

半導体露光用ArFエキシマレーザの高繰り返し化に関する研究

石原, 孝信

<https://doi.org/10.15017/1398401>

出版情報：九州大学, 2013, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済



博 士 学 位 論 文

半導体露光用 ArF エキシマレーザの
高繰り返し化に関する研究

2013 年 9 月

石 原 孝 信

目次

第 1 章 序論	1
1.1 本研究の背景	1
1.2 本研究の意義と要約	2
1.3 本論文の構成	4
第 2 章 エキシマレーザと半導体露光技術	6
2.1 はじめに	6
2.2 エキシマレーザ	6
2.2.1 エキシマレーザの概要	6
2.2.2 エキシマレーザの励起・脱励起・吸収過程	8
2.2.3 放電励起エキシマレーザ装置	16
2.3 半導体露光技術	22
2.3.1 半導体露光技術の概要	22
2.3.2 半導体集積回路の微細化	26
2.4 半導体露光用エキシマレーザ	32
2.4.1 半導体露光用エキシマレーザへの技術的要求	32
2.4.2 半導体露光用エキシマレーザの構成	35
2.4.3 半導体露光用 ArF エキシマレーザの今後の課題	38
第 3 章 ガス密度くぼみおよび音響波の計測	41
3.1 はじめに	41
3.2 ガス密度くぼみの計測	42
3.2.1 計測システム	42
3.2.2 放電領域の電子密度の算出	44
3.2.3 ガス密度くぼみ領域のガス粒子密度変化の算出	46
3.3 音響波の計測	46
3.4 まとめ	52

第 4 章	10 kHz の繰返し周波数での空間的に均一な放電の形成	54
4.1	はじめに	54
4.2	実験装置	55
4.3	実験結果	57
4.3.1	放電幅とガス密度くぼみの幅	57
4.3.2	ガス密度くぼみ領域の放電開始電圧の低下	60
4.3.3	放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔	62
4.3.4	フッ素を含むガスの放電での最大繰返し周波数	65
4.4	考察	69
4.5	まとめ	74
第 5 章	総括	76
5.1	本研究の成果	76
5.2	今後の展望	78
	参考文献	80
	謝辞	88

第 1 章 序論

1.1 本研究の背景

エキシマレーザは 1966 年に Basov によって提案され¹⁾、その後、放電励起の希ガス-ハライドエキシマレーザを中心に高出力化、高繰り返し化と長寿命化などの高性能化の研究開発が進められた。エキシマレーザは、近紫外域のいくつかの波長でこれまでになく高出力で高効率な発振が得られる。発振波長は、レーザガスの組み合わせにより変わり、代表的な組み合わせは、XeF（波長 351.1 nm）、XeCl（波長 308 nm）、KrF（248.5 nm）と ArF（193.2 nm）である。近紫外域の波長で発振するエキシマレーザは光子のエネルギーが高く、化学作用が強いので、研究用途のみならず産業で実用化されている。

XeCl エキシマレーザは液晶アニール装置用の光源で、KrF エキシマレーザは半導体露光装置用の光源で、ArF エキシマレーザは半導体露光装置用の光源と近視矯正手術装置用の光源で実用化されている。この中で市場の大きな産業は半導体露光装置用の光源で着実に成長を遂げている。半導体露光装置は、コンピュータや携帯電話を構成する CPU やメモリといった電子部品に刻まれている、ナノメートル単位の微細な半導体集積回路をつくる装置である。電子部品に刻まれる半導体集積回路は、コンピュータや携帯電話の性能向上のため、年々微細化されてきている。この微細化を支えたのは、微細加工技術の発展で、中でも半導体露光技術の発展の功績は大きい。近紫外域の波長で発振するエキシマレーザは、半導体集積回路の微細化のため、半導体露光装置用の光源として採用された。KrF エキシマレーザを用いた半導体露光装置は 1990 年代の後半に、ArF エキシマレーザを用いた半導体露光装置は 2004 年に実用化された。

半導体露光用エキシマレーザへの技術的要求は、つぎの 4 つである²⁾。(1) 解像度向上のための短波長化、スペクトル幅の狭帯域化、および高精度な波長制御。(2) スループット向上のための繰り返し周波数の向上、レーザ出力の向上、

および高精度なエネルギー дози量制御（露光量制御）。(3) 歩留り改善のためのレーザパラメータ（スペクトル幅、エネルギー дози量とビームポインティング）の計測と安定化。(4) ランニングコスト低減のための保守性の向上、信頼性の向上、およびモジュール寿命の延長。これらのうち、スループット向上のための、繰返し周波数の向上とレーザ出力の向上は強く要求されている。

現在の半導体露光用 ArF エキシマレーザの繰返し周波数は 6 kHz で、レーザ出力は 60 W である。次世代の半導体露光装置の光源に要求されているレーザ出力は 100 W 以上である。この高出力化は、半導体露光装置やエキシマレーザ自身の光学素子のダメージの点から、繰返し周波数を上げて実現するのが望ましい。このような背景から、放電励起 ArF エキシマレーザで 10 kHz 動作を実現することが期待されている。

1.2 本研究の意義と要約

放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、10 kHz 動作を実現するには、高繰返し動作の阻害要因であるガス密度くぼみと音響波を高い分解能で計測し、これらの影響を把握する必要がある。そして、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件と課題を明らかにすることが重要である。ここで言う空間的に均一な放電とは、幅数 mm でレーザの光軸方向に数百 mm の長さを持つ電極対が間隔 10 mm 程度で対向しているとき、後述（2.2.2 項）のように電極のギャップ空間で電極の幅方向の中心を結ぶ面に沿って空間的に均一な非熱的プラズマが形成されるような放電である。

ガス密度くぼみは、単発放電時に、マッハツェンダー干渉法で密度変化が³⁾、シュリーレン法でガス温度プロファイルが⁴⁾計測された報告がある。高繰返し運転時には、XeCl エキシマレーザで、マイケルソン干渉計および高速度カメラを用いたシステムでガス密度乱れが計測された報告がある⁵⁾。空間的に均一な放電を形成するために要求される、放電位置に対するガス密度くぼみ

の空間的位置関係に関する報告例はなく、これらの空間的位置関係は明らかにされていない。本研究では、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係および放電領域とガス密度くぼみ領域の密度変化を高い分解能で計測するために、狭帯域色素レーザーを用いたマッハツェンダー干渉法による計測システムを構築した。この計測システムの時間分解能は 500 ps で、空間分解能は 0.05 mm である。また、電子密度とガス粒子密度変化の検出下限は、それぞれ、 10^{19} m^{-3} と 10^{21} m^{-3} である。

音響波は、干渉法⁶⁾、シャドウグラフ法⁷⁾とシュリーレン法⁸⁾で計測された多くの報告がある。本研究では、ガス粒子の密度変化を感度よく可視化できるシュリーレン法を用いた計測システムを構築した。このシステムにより音響波の伝播の様子、およびチャンバ内の構造物で反射して放電領域に戻ってくる音響波を可視化できるようになった。このシュリーレン法の時間分解能は 1 μs で、空間分解能は 0.05 mm である。

そして、放電励起 ArF エキシマレーザーで 10 kHz 動作を実現するために、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件を調べた。高繰返し動作は、一般的にはガス流速を速くすることにより達成している。しかし、ガスを循環しているファンへの投入電力は回転数の 3 乗に比例して増加するので、効率な方法ではない。本研究では、フッ素を含まないガスの放電で、空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域に対するガス密度くぼみ領域の空間的位置関係を、マッハツェンダー干渉法を用いた計測システムで調べた。その結果、電極のギャップ間隔を短くすると、空間的に均一な放電を形成するために必要な放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔は狭くなることを確認した。最短間隔を狭くできれば、ガス流速を速くすることなく、繰返し周波数を上げることが可能となる。

つぎに、放電励起 ArF エキシマレーザーにおいて、電極のギャップ間隔を短くして、空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数を、10 kHz の繰返し周波数まで放電できるように充電電源等を改造して調べた。その結果、空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数は、電極のギャップ間隔が短くな

るに従い増加した。そして、電極のギャップ間隔を 8 mm にすることにより、放電励起 ArF エキシマレーザで、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できることを明らかにした。このように電極のギャップ間隔が短くなるに従い、最大繰返し周波数が増加する要因として、放電幅が狭くなることと、電極間の電界強度分布が電極幅の中心に集中することを示した。

電極のギャップ間隔を 8mm にして 10 kHz 動作したときのレーザパルス出力エネルギーは、標準の電極ギャップ間隔のときの 1/3 に低下した。電極のギャップ間隔を短くして高繰返し動作を実現する場合は、レーザパルス出力エネルギーの増大化が重要な課題であることを明らかにした。

さらに、ガス密度くぼみの影響を放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より検討した。ガス密度くぼみの影響は、圧力低下の影響と放電生成物等の他の要因に影響の 2 つに分けて見積もった。その結果、ガス密度くぼみ領域の圧力低下の影響は、電極のギャップ間隔に関係なくほぼ同じであったが、放電生成物等の他の要因の影響は電極のギャップ間隔が短くなるに従い大きくなった。そして、放電生成物等の他の要因の影響は、圧力低下の影響の 5 倍以上であった。

以上述べたように、放電励起 ArF エキシマレーザで、電極のギャップ間隔を短くすることにより、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成することを明らかにした。本研究で提示した方策は、レーザ出力の向上のみならず、光学素子のダメージ抑制に結びつく有益な指針となるものである。

1.3 本論文の構成

本論文は、5 章より構成される。

第 1 章は序論であり、本研究の背景と意義について述べるとともに、本論文の内容を要約した。

第 2 章では、エキシマレーザと半導体露光技術について述べた後、半導体露

光用エキシマレーザへの技術的要求、装置構成および今後の課題について記述した。最後に、本研究の位置づけを示した。

第3章では、エキシマレーザの高繰返し動作の阻害要因であるガス密度くぼみと音響波の計測のために、構築した計測システムを示した。ガス密度くぼみの計測は、マッハツェンダー干渉法を用いた計測システムについて、音響波の計測は、シュリーレン法を用いた計測システムについて記述した。

第4章では、電極のギャップ間隔と、空間的に均一な放電を形成するために必要な放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔との関係の実験結果を記述した。そして、放電励起 ArF エキシマレーザで、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件と課題を示した。さらに、ガス密度くぼみの影響を、放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より検討した。

第5章は総括であり、本研究で得られた成果をまとめるとともに、今後の展望について述べた。

第 2 章 エキシマレーザと半導体露光技術

2.1 はじめに

本章では、研究対象であるエキシマレーザ、その産業用途である半導体露光技術、および半導体露光用エキシマレーザについて概説する。エキシマレーザについては、概要、励起・脱励起・吸収過程、および放電励起エキシマレーザ装置の構成要素について述べる。半導体露光技術については概要と半導体集積回路の微細化について述べる。最後に、半導体露光用エキシマレーザへの技術的要求、装置の構成、および今後の課題について述べた後、本研究の位置づけを示す。

2.2 エキシマレーザ

2.2.1 エキシマレーザの概要

エキシマレーザは 1966 年に Basov によって提案され¹⁾、1970 年に、液体キセノン (Xe) を電子ビームで励起して 172 nm の波長で Xe ダイマーの発振に成功した⁹⁾。実用性の高い希ガス-ハライド系のエキシマレーザに関しては、従来はほとんど研究がなく、1975 年の Searles と Hart による電子ビーム励起の XeBr エキシマレーザが最初の発振である¹⁰⁾。そして、1976 年には、Burnham らにより放電励起の希ガス-ハライドエキシマレーザの発振が報告された¹¹⁾。その後、放電励起の希ガス-ハライドエキシマレーザを中心に高出力化、高繰り返し化と長寿命化などの高性能化の研究開発が進められた。

エキシマ (Excimer) とは、励起状態の原子 (分子) と基底状態の原子 (分子) が、相互に強く結合してできる分子の励起状態をいい、Excited Dimer が語源となっている。エキシマのエネルギー準位の概略図を図 2.1 に示す。基底状態の

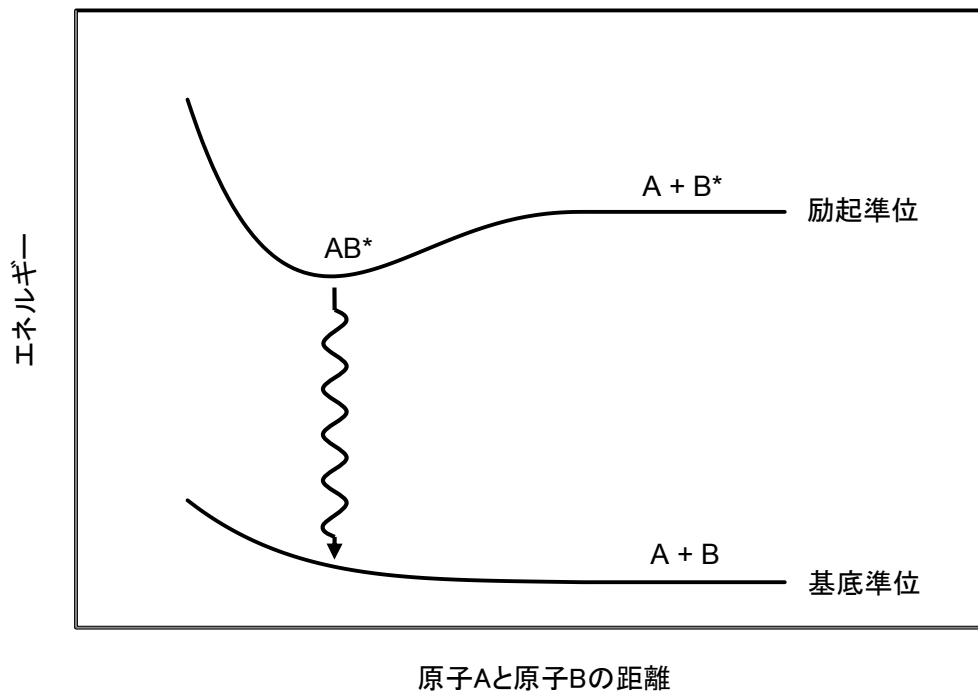


図 2.1 エキシマのエネルギー準位の概略図

原子 A と励起状態の原子 B*から励起準位のエキシマ AB*が形成される。エキシマ AB*は、連続スペクトルを放射し原子 A と原子 B に解離する。つまり、エキシマレーザは、励起準位のエキシマと 2 個の原子に解離する基底準位の bound-free 遷移によって実現される。エキシマレーザは、基底準位で自動的に解離または非常に解離しやすい状態にあるため、反転分布を容易に得ることが可能で発振の効率が良い。

エキシマレーザの特徴は、近紫外域のいくつかの波長で、これまでになく高出力で高効率な発振が得られる点である。現在までにレーザ発振しているエキシマの組み合わせは、希ガス-希ガス、希ガス-ハライド、金属-ハライド、希ガス-希ガスエキシマと希ガス-酸素である。この中でもっとも高出力で高効率なエキシマの組み合わせは、希ガス-ハライドである。希ガス-ハライドエキシマレーザの組み合わせと発振波長を表 2.1 に示す。この中で、XeF (波長: 351.1 nm)、XeCl (波長:308 nm)、KrF (波長:248.5 nm) と ArF (波長:193.2 nm) が代表的な組み合わせである。

近紫外域の波長で発振するエキシマレーザは光子のエネルギーが高く、化学作用が強いので、研究用途のみならず産業で実用化されている。XeCl エキシマレーザは液晶アニール装置用の光源で、KrF エキシマレーザは半導体露光装置用の光源で、ArF エキシマレーザは半導体露光装置用の光源と近視矯正手術装置用の光源で実用化されている。

2.2.2 エキシマレーザの励起・脱励起・吸収過程¹²⁾

1) 励起過程

エキシマの形成方法には、放電励起と電子ビーム励起がある。放電励起は、放電によって生成した電子が原子（またはイオンや分子）に衝突してエネルギーを与え、原子を励起することによりエキシマを形成する方法である。エキシマは、電子のエネルギーが低いため、おもに中性原子（希ガスなど）の準安定状態から形成される。電子ビーム励起は、エネルギーのそろった電子のビーム

表 2.1 希ガス-ハライドエキシマレーザの組み合わせと発振波長

	発振波長 (nm)		
	F	Cl	Br
Xe	353.1, 351.1	308	281.8
Kr	248.5	221.1	
Ar	193.2	175	

を原子に照射してエキシマを形成する方法である。エキシマは、電子のエネルギーが高いため、おもに1価のイオンから形成される。

実用性の高いエキシマの形成方法は放電励起である。これは、小型で高効率な発振が可能で、さらに装置の構成が簡単なためである。エキシマレーザの発振には数 MW/cm^3 の励起強度が必要なため、横方向大気圧放電励起（TEA: Transversely Excited Atmospheric）を用いる。10 mm程度の間隔に配置した平行な電極（幅数mm、長さ数百mm）間に数気圧のレーザガスを封入し、電極間に数十kVの高電圧を印加して、光軸（電極の長手方向）と直交する電極間方向にパルス放電させる。

パルス放電で効率よくエキシマを形成するためには、空間的に均一な放電を形成しなければならない。空間的に均一な放電中では、電子の温度は中性粒子やイオンの温度に比べて著しく高く、エキシマが効率よく生成されるからである。しかし、数気圧のガス中の放電としては、放電電流が局所的に集中したアーク放電が一般的で、空間的に均一な放電を形成することは難しい。アーク放電中は、中性粒子、イオンと電子はほぼ熱平衡状態となり、温度が非常に高くなる。このため、高いエネルギーをもった中性粒子とイオンにより、形成されたエキシマは容易に破壊され、レーザ発振に必要な反転分布は得られない。

高気圧のガス中で空間的に均一な放電を形成するためには、放電領域にあらかじめ予備電離により十分な密度の電子を生成しておくことが必要である¹³⁾。高気圧のガス中で、予備電離電子の密度が不十分な場合の放電の形成過程を図 2.2 に、予備電離電子の密度が十分な場合の放電の形成過程を図 2.3 に模式的に示す。高気圧ガス中で、電極間に数十 kV の高電圧を印加した場合、放電領域に存在する初期電子は電界により加速され、衝突電離と光電離により電子増倍が進む。この現象は、電子なだれと呼ばれる。この電子なだれは、図 2.2 (a) と図 2.3 (a)に示すように、電子は陽極に向かって移動するが、イオンはこの時間ではほとんど動きはない。これは、電子のドリフト速度がイオンのドリフト速度に比べて速いためである。予備電離電子の密度が不十分な場合は、初期電子が空間的に離れているので、電子なだれは単独または局所的に発生する。こ

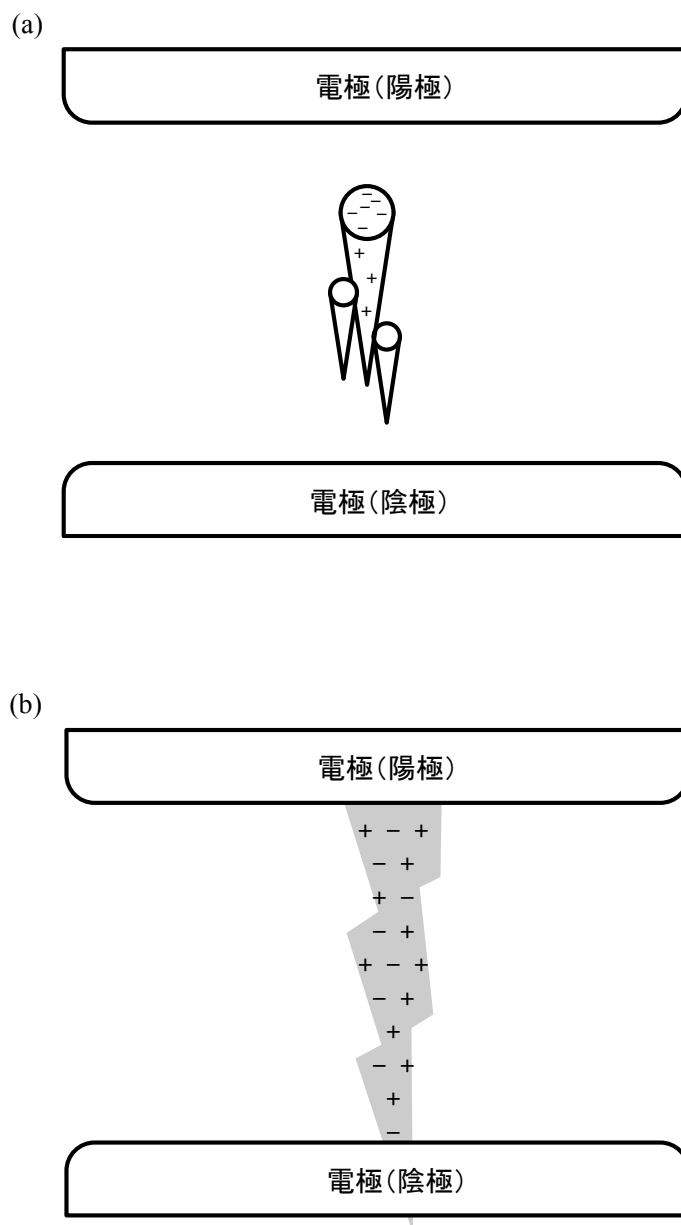


図 2.2 予備電離電子の密度が不十分な場合の放電の模式図
 (a)放電の初期、(b)放電が形成されたとき

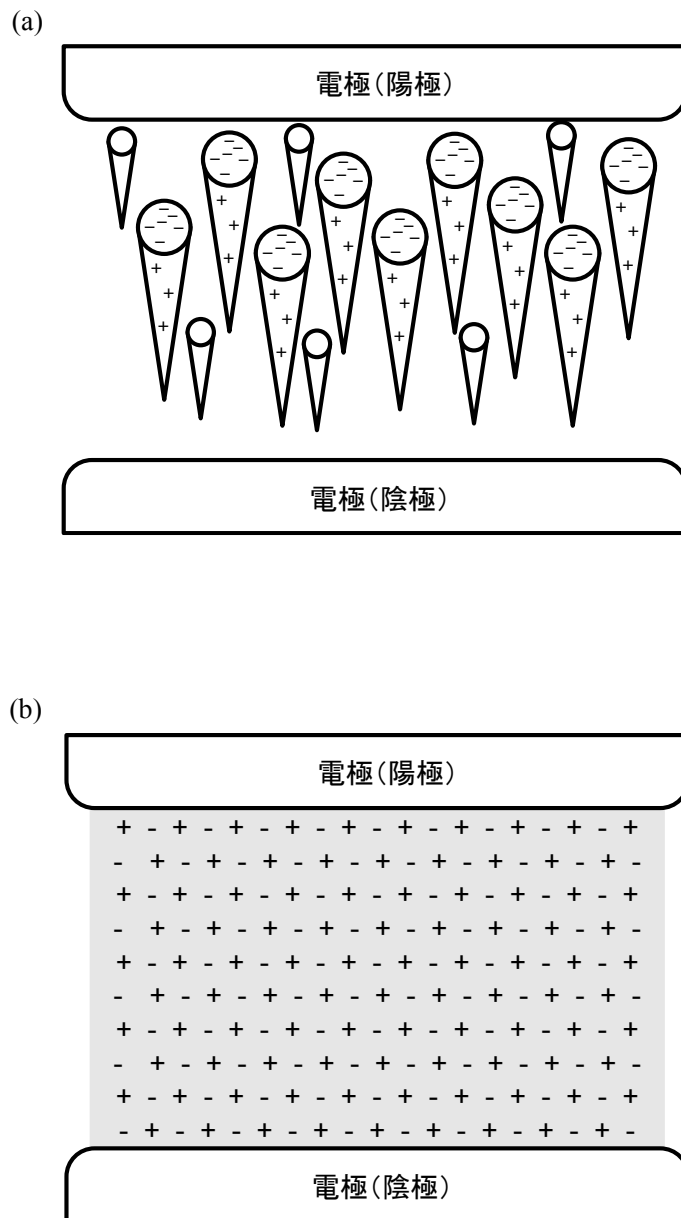


図 2.3 予備電離電子の密度が十分な場合の放電の模式図
 (a)放電の初期、(b)放電が形成されたとき

のため、局所的に集中した不均一な放電が形成される（図 2.2 (b)参照）。予備電離電子の密度が十分な場合は、予備電離により生成された電子から形成された電子なだれは重なり合い、空間電荷による電界が平坦化される（図 2.3 (a)参照）。そして、電子なだれが均一に成長して、空間的に均一な放電が形成される（図 2.3 (b)参照）。このモデルは、その後詳細に検討され、空間的に均一な放電を形成するためには、予備電離電子を生成しておくことだけでは不十分で、電極間に立ち上がり時間の短い電圧を印加する必要性が明らかにされた¹⁴⁾。具体的には、必要最小限の電子密度は、レーザガスの圧力が 1 atm のときは 10^{10} – 10^{12} m⁻³ で、6 atm のときは 10^{11} – 10^{13} m⁻³ である。電極間電圧の必要な立ち上がり時間は、レーザガスの圧力が 1 atm のときは 15 ns 以下で、6 atm のときは 6 ns 以下である。現状、電極間に印加する電圧の立ち上がり時間の条件は、満足することが難しく実現できていない。しかし、おおむね空間的に均一な放電を形成できている。

放電励起による ArF エキシマの励起ダイアグラムを図 2.4 に示す。アルゴン (Ar) とフッ素 (F₂) の混合比率は、おのおの数%と 0.1~0.3% である。希釈ガスとして、ネオン (Ne) またはヘリウム (He) が用いられる。ArF エキシマ (ArF*) は、電子 (e) と Ar との非弾性衝突により生成した励起状態のアルゴン原子 (Ar*) と F₂ との直接反応で形成される。Ar* の第 1 励起準位は 11.5 eV であるから、ArF* の形成には、11.5 eV 以上の電子エネルギーが必要である。希釈ガスの Ne と He の第 1 励起準位は、それぞれ 16.7 eV と 20.2 eV で、Ar の第 1 励起準位 (11.5 eV) に対して高い。それゆえ、希釈ガスから ArF* 形成への寄与は少ない。したがって、放電励起による ArF* の形成は単純で、



が主過程となる。希釈ガスは、おもに電子エネルギーの分布関数やインピーダンスなどの放電の状態を決定している。電子エネルギーの分布関数だけから見ると、希釈ガスは Ne の方が He より Ar* の生成効率が優れている。

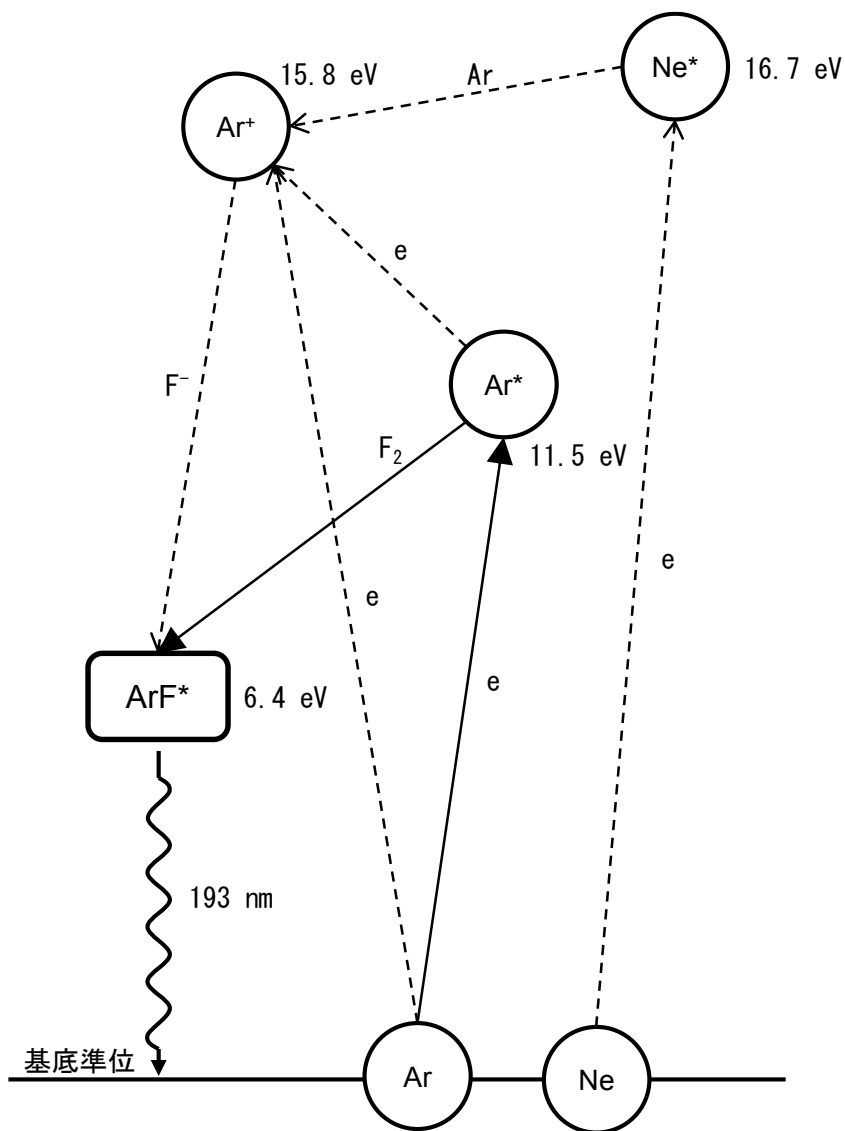


図 2.4 放電励起による ArF エキシマの励起ダイアグラム

2) 脱励起過程

エキシマレーザの脱励起過程では、自然放射、誘導放射と衝突脱励起が重要になる。KrF エキシマと ArF エキシマは、基底準位で 2 つの原子に解離しているため、誘導吸収は起こらない。XeF エキシマと XeCl エキシマは、基底準位で非常に解離しやすい状態であるが完全に解離してないため、誘導吸収が起こる可能性がある。しかし、通常の動作状態では熱的解離が早く無視できる¹⁵⁾。誘導放射の確率は、 $I\sigma/h\nu$ (I : レーザ強度、 σ : 誘導放射断面積、 $h\nu$: 光子エネルギー) であり、衝突脱励起と自然放射によるエキシマの消滅の確率は $1/\tau_t$ (τ_t : エキシマの寿命) である。両者が一致するときのレーザ強度が飽和強度 (I_s) である。

$$I_s = \frac{h\nu}{\sigma\tau_t} \quad (2.2)$$

衝突脱励起と自然放射にうちかって誘導放射で効率よくエネルギーを取出すためには、 $I \gg I_s$ である必要がある。

3) 吸収過程

吸収過程は脱励起過程と同様にエネルギーの取出し効率に影響する。おもな吸収は、ハロゲンの負イオンによる吸収^{16, 17)}とイオンエキシマによる吸収¹⁸⁾である。いずれも、広い波長域で吸収があり、レーザ光を吸収する。XeBr、KrCl、ArCl と XeI エキシマレーザで高いレーザ出力が得られない要因の 1 つは、ハロゲンの負イオンやイオンエキシマなどによりレーザ光が吸収されることである。ArF、KrF、XeCl と XeF エキシマレーザは、これらによる吸収が比較的少なく、優れたレーザ出力特性を示している。ただし、ArF エキシマレーザは、発振波長 (193 nm) が酸素 (O_2) の吸収帯 (Schumann-Runge 帯) と重なっている¹⁹⁾。このため、レーザ光の光路中は窒素 (N_2) パージ等で O_2 の吸収を排除する必要がある。

2.2.3 放電励起エキシマレーザー装置

放電励起エキシマレーザー装置の主な構成要素は以下の6つである。(1) レーザガスを励起してエキシマを生成する放電部を有するレーザーチャンバ。(2) エキシマからの発光を2枚の反射鏡で閉じ込め増幅する共振器。(3) 予備電離電子の生成回路を備えた励起回路。(4) 励起回路に高電圧を印加する充電電源。(5) 放電管内にレーザーガスを供給または排気するガスモジュール。(6) 励起回路をスイッチングするためのトリガーパルス回路を備えたコントロールモジュール。本項では、レーザーチャンバと励起回路の基本的な構成と動作およびレーザーガスの劣化と長寿命化について概要を述べる。

1) レーザチャンバ

レーザーチャンバの断面図を図 2.5 に示す。レーザーチャンバは、放電のための電極、放電によって劣化したガスを放電空間から取り除くためのガス循環装置、そして放電により発生した熱を除去する熱交換器などで構成される。

電極は、空間的に均一な放電を形成するとともに、大電流(数 kA)の繰返し放電に耐えるものでなければならない。このために、電極の断面形状は、均一な電界を印加できる形状がよい。このような断面形状として、Chang²⁰⁾または Ernst²¹⁾によって提案された形状が広く利用されている。両断面形状は端部に違いがあり、Ernst によって提案された形状は、幅が狭くコンパクトである。

ガス循環装置は、電極と同程度の長さをもつクロスフローファンと、このクロスフローファンへ回転トルクを与える磁気結合回転子等で構成される。クロスフローファンにより、ガスは、光軸および放電方向に対して垂直な方向に循環される。ガスの循環に必要なガス流速(v)は、一般に、

$$CR = \frac{v}{fw} \quad (2.3)$$

の関係²²⁾から決められる。ここで、 CR は、クリアランスレシオ(Clearance Ratio)と呼ばれており、装置の機械的電氣的機構に依存する。 f は動作可能な繰返し

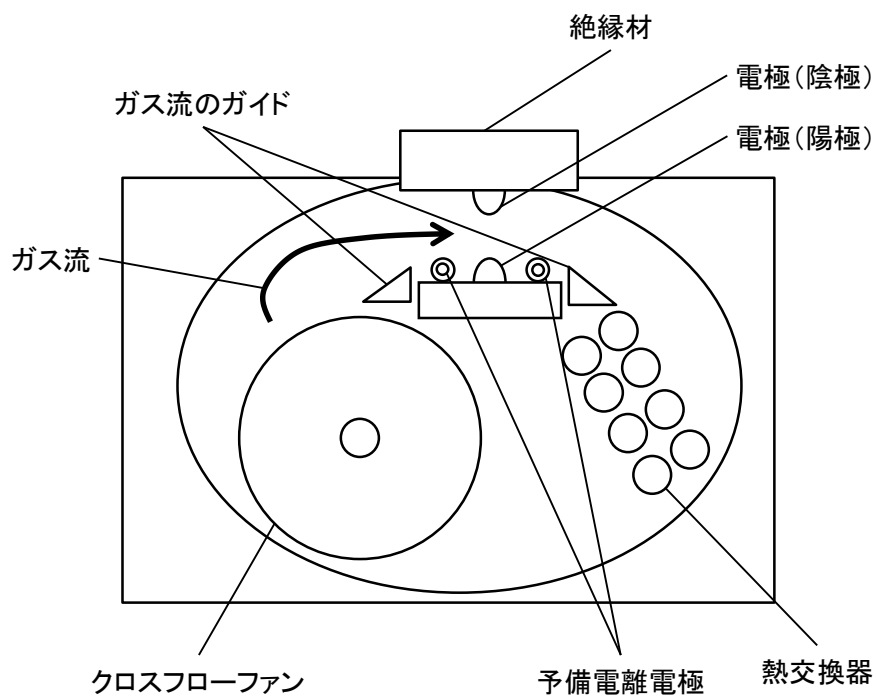


図 2.5 レーザチャンバの断面図

周波数で、 w は放電幅である。一般的に、 CR の値は3-5であるが、2程度でも十分な場合もある。

熱交換器は、レーザガスの循環路中に配置され、レーザガスを冷却している。レーザガスの温度が上昇すると、レーザチャンバの内壁やチャンバ内部品の表面から吸着物質が放出され、放出されたガスあるいは放出されたガスとハロゲンガスとの反応生成ガスにより、レーザパルス出力エネルギーが低下するためである。ただし、ArFエキシマレーザの4-6 kHzの繰返し周波数の動作においては、レーザパルス出力エネルギーの安定化のために、レーザガスの温度を、例えば40°Cまたは60°Cで一定に制御することが有効である²³⁾。

2) 励起回路¹²⁾

放電励起エキシマレーザ装置では、種々の励起回路と予備電離方法が用いられている。以下に、その主なものについて基本的な構成と動作を述べる。

励起回路には、LCR回路、容量移行型回路、LC反転回路とパルス整形線路(PFL: Pulse forming line)の4つがある。これらの回路の中で最も広く用いられているのは容量移行型回路である。容量移行型回路は、比較的容易に高速大電流の電圧パルスを電極間に印加できる。さらに、スイッチへの負担を小さくできるので、高繰返し動作をおこなうことも容易である。容量移行型回路の動作について、図2.6に示す回路図をもとに説明する。充電用コンデンサ C_1 に充電電源より、 C_1 および回路の浮遊インダクタンス L_1 、 L_2 と充電用インダクタンス L_3 の回路で高電圧を印加する。 C_1 の充電後スイッチ SW を閉じると、 C_1 の電荷は、 C_1 、 L_1 、ピーキングコンデンサ C_p と SW の回路で C_p に移行する。 C_p の電圧が充分高くなり、電極間の放電開始電圧に達すると、 C_p 、 L_2 と放電抵抗 R_d の回路でパルス放電が生じる。回路中の L_1 は、電極間に立ち上がり時間の短い電圧を印加するために小さくしなければならない。 L_2 は、レーザ発振効率を高めるために小さい方がよく、一般的に L_1 より小さい。 L_3 は、 L_1 や L_2 より大きなインダクタンスになるように設計するので、パルス放電にはほとんど関与しない。

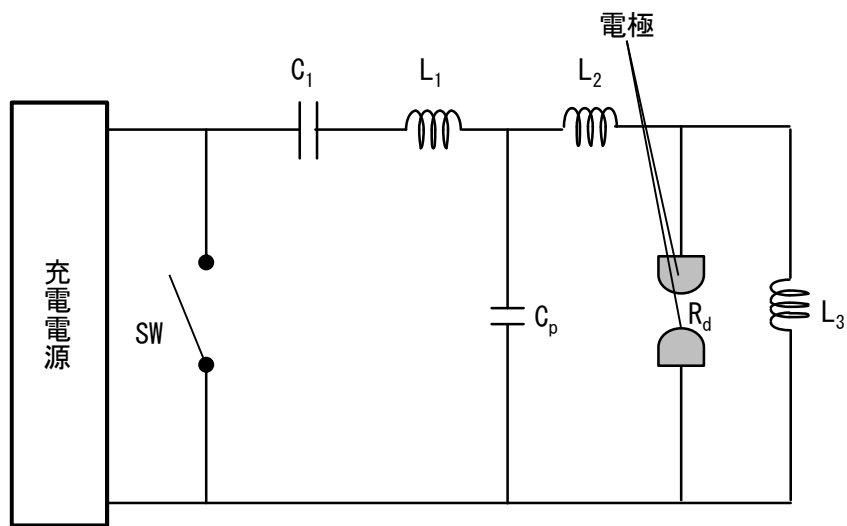


图 2.6 容量移行型回路

回路中のスイッチには、高電圧（数十 kV）の高速大電流（数百 ns、数 kA）で動作し、低インピーダンス（数十 nH）であることが要求される。この要求を満足するスイッチとしてサイラトロンと半導体スイッチが広く用いられている。サイラトロンの基本構造は、陰極と陽極の間にスイッチ動作を制御するためのグリッドを設けた三極管である。サイラトロンは放電管であるので、電極の摩擦により寿命は 2.5×10^9 パルスと短く、さらに、1 kHz をこえる繰返し周波数で動作が難しい。このため、1 kHz をこえる繰返し周波数のエキシマレーザでは、半導体スイッチが用いられることが多い。半導体スイッチには、ゲートターンオフサイリスタ（GTO: Gate Turnoff Thyristor）²⁴⁾や絶縁ゲートバイポーラトランジスタ（IGBT: Insulated Gate Bipolar Transistor）²⁵⁾などがある。

半導体スイッチを用いる場合は、磁気圧縮回路でスイッチの負担を軽減する必要がある。磁気圧縮回路は、電荷移行時の電圧パルスを押縮できるため、レーザの高出力化を図ることもできる。電圧パルスの押縮には、磁気スイッチが用いられる^{26, 27)}。磁気スイッチは、強磁性体の磁束の飽和特性を利用した素子である。高パルス押縮を実現するには、未飽和時の比透磁率が大きく、磁束密度の飽和時のインダクタンスが小さい磁性材料を選ぶ必要がある。そのような材料として、フェライトやアモルファス金属などがある。

励起回路に備えられている予備電離電子の生成回路には、UV (ultraviolet) 予備電離、コロナ予備電離、X線予備電離の3つがある。これらの中で、高繰返しエキシマレーザに用いられているのは、コロナ予備電離である。コロナ予備電離は、予備電離電極のスパッタリングが非常に少なく、レーザガスを汚染しないためである。コロナ予備電離は、コロナ放電領域から発生する紫外光により、放電領域のガスを予備電離する方法である。構成要素は、高電圧を印加する電極対と電極間に挿入する誘電体（テフロン、ガラスやセラミックなど）である。コロナ放電は、電極間に高電圧を印加して誘電体の表面で生成する。たとえば、円筒状のセラミック内に棒状の内電極を配置し、セラミックの周囲に接してワイヤー状あるいは板状の外電極を配置して、電極間に高電圧を印加することにより円筒状のセラミック表面にコロナ放電を発生させている²⁸⁾。

3) レーザガス

希ガス-ハライドエキシマレーザのレーザガスには、反応性の高いハロゲンガスが含まれている。とくに、フッ素は、電気陰性度が 4.0 と全ての元素の中で最も高く、他の原子と即座に反応する。このため、ハロゲンガスはレーザチャンバ内部の構成部品あるいは材料表面の吸着分子と化学反応して不純物ガスを生成する。この不純物ガスはレーザ発振のパルス数とともに増加するため、レーザパルス出力エネルギーは徐々に低下する。KrF および ArF エキシマレーザの不純物ガスは、主に窒素 (N_2)、酸素 (O_2)、二酸化炭素 (CO_2)、四フッ化炭素 (CF_4)、四フッ化ケイ素 (SiF_4) とフッ化水素 (HF) である^{29, 30)}。ArF エキシマレーザは、不純物ガスによるレーザパルス出力エネルギーの低下量が、KrF エキシマレーザより 1 桁程度大きい^{31, 32)}。このため、レーザガスの長寿命化は、KrF エキシマレーザより ArF エキシマレーザの方が難しい。

不純物ガスの発生を抑制するためには、反応性の低い材料を選択する必要がある¹²⁾。反応性の低い金属として、ニッケル (Ni)、Ni メッキを施したアルミ合金、ステンレスおよび黄銅などが用いられる。絶縁物の材料には、フッ素樹脂 (テフロンやダイフロン KF ポリマーなど) やアルミナセラミックスが用いられる。フッ素樹脂は、紫外光が強く照射されると分解し、この分解物とフッ素などが反応して不純物ガスを生成する。このため、フッ素樹脂の配置には注意が必要である。気密保持のための O リングにはバイトンやカルレッツが用いられる。クロスフローファンの軸受は、転がり軸受よりターボ分子ポンプに採用されている磁気軸受を用いるのが良い。さらに、レーザチャンバ内の金属部品毎にフッ化不動態処理を実施し、O リング材に金属を用いることにより、不純物ガス濃度を高純度フッ素混合ガスのガスボンベのレベルまで低減できている³¹⁾。フッ化不動態処理とは、熱処理によってフッ素とステンレスやニッケルなどの金属とを直接反応させることにより、化学量論組成のフッ化鉄 (FeF_2) やフッ化ニッケル (NiF_2) などの不動態膜を形成する技術である³³⁾。

ArF エキシマレーザは、レーザガス中に Xe ガスを添加することにより、高出力が図られている。10ppm の Xe ガスを添加すると、レーザパルス出力エネ

ルギーは3倍に向上する^{31, 32)}。これは、Xeのイオン化エネルギー(12.1 eV)が、レーザガスであるArとF₂のイオン化エネルギー(Ar: 15.8 eV、F₂: 17.4 eV)より小さいため、予備電離による初期電子の密度が増加するためと考えられている³⁴⁾。

2.3 半導体露光技術

2.3.1 半導体露光技術の概要³⁵⁾

今日の高度な情報化社会は、半導体集積回路の微細化によってもたらされている。半導体集積回路は1959年、米国テキサス・インスツルメンツ社のキルビーとフェアチャイルド社のノイスとによって別々に発明された。半導体集積回路は、電子部品を小型化できることからさまざまな電気製品で幅広く用いられるようになった。最初に導入されたのは電子式卓上計算機である。その後、半導体集積回路は、微細化と高機能化が進み、コンピュータや携帯電話に代表される情報機器や、それらをネットワークでつなぐさまざまなシステムに組み込まれ、高度情報化社会を支えている。今後は、スマートフォンやタブレット端末が、半導体集積回路の微細化と高機能化をけん引すると考えられる。

半導体集積回路の微細化と高機能化を支えたのは、微細加工技術の発展で、中でも半導体露光技術の発展の功績は大きい。半導体露光技術において、半導体集積回路を大量に作る場合は、光を用いた露光技術(光露光技術)が一般的である。光露光技術は、設計された回路パターンマスクを作り、これをSiウエハ上に形成されたフォトレジストに転写する技術である。図2.7に光露光技術と半導体集積回路の微細化の変遷を示す。最初に用いられた光露光方法は、1960年代から開始されたコンタクト露光である。コンタクト露光は、あらかじめ焼き付けるべきパターンを形成しておいたフォトマスクに、ウエハを密着させて、日光写真のように転写する方法である。解像度は2 μm程度まで可能であった。

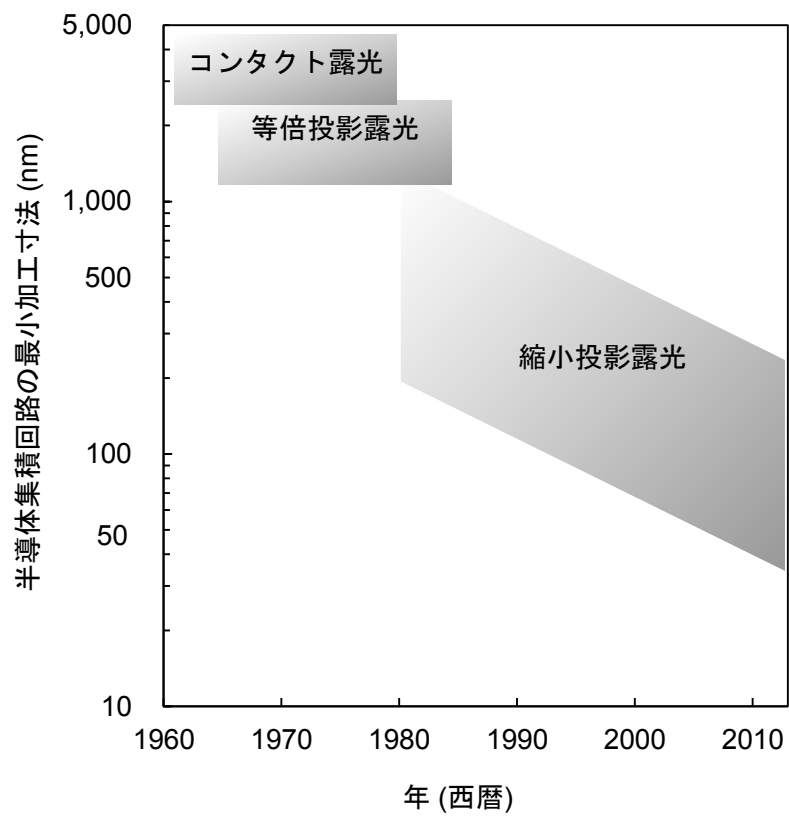


図 2.7 光露光技術と半導体集積回路の微細化

この方法では、ごみの挟み込みによる欠陥の発生、解像度の劣化、マスクとウェハ上のフォトリソトとの接着などの問題があった。この問題を解決するために、マスクとウェハを密着させない等倍投影露光法（1:1プロジェクション）が広く利用された³⁶⁾。しかし、解像度は3-2 μmで、1 μmレベルの加工は難しかった。この解像限界を打ち破り、光露光技術の発展の基礎を築いたのが縮小投影露光法である³⁷⁾。縮小投影露光法は、レチクルのパターンを投影レンズにより1/4から1/5に縮小して、ウェハに比べ小さい領域を一度に露光し、これを繰返してつないでいくことで、ウェハ全面を露光する方法である（図2.8参照）。縮小投影露光法は、最初は、露光する際にレチクルとウェハは固定して露光する方式（ステッパー）が主流であった。その後は、露光面積の拡大等のために、レチクルとウェハを相対運動させて露光するスキャン方式（スキャナー）へと進化した³⁸⁾。

縮小投影露光法の解像度には Rayleigh の式³⁹⁾と呼ばれる評価量があり、解像線幅 RP は、投影レンズの開口数 NA (Numerical Aperture)、半導体露光装置用の光源の波長 λ、比例定数 k_1 をパラメータとして、

$$RP = \frac{k_1 \lambda}{NA} \quad (2.4)$$

と表される。NA はウェハ上のある一点に結像する光束の拡がりをも $\pm \theta$ としたとき（図 2.8 参照）、

$$NA = n \sin \theta \quad (2.5)$$

と表される。ここで、 n は屈折率で、通常は空気中に置かれるので 1 である。(2.4) 式より、解像線幅 RP を小さくするためには、マスクと半導体露光装置のセッティングなどにより定まる比例定数 k_1 を小さく、光源の波長 λ を短く、そして投影レンズの NA を大きくすれば良い。光源の波長 λ は、高圧水銀ランプの g 線の 436 nm から i 線の 365 nm、KrF エキシマレーザの 248 nm、そして ArF エキシマレーザの 193 nm へと短波長化され、現在に至っている。

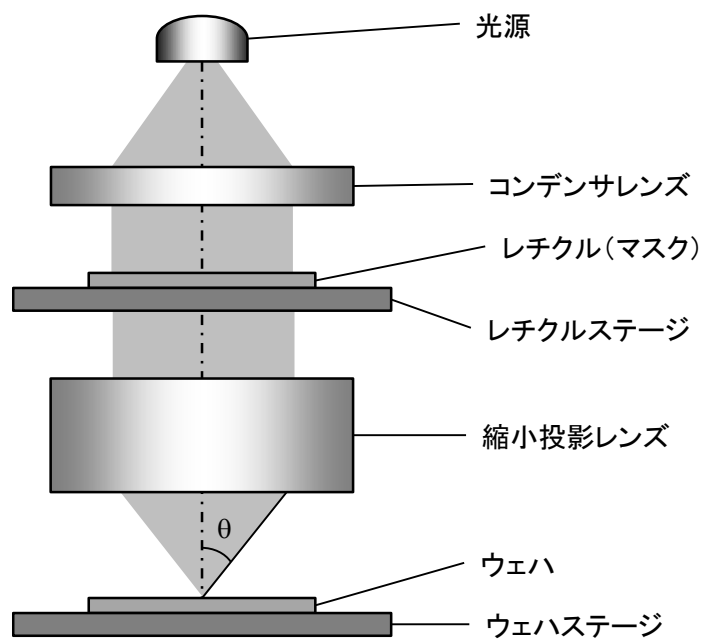


図 2.8 縮小投影露光法の基本構成

2.3.2 半導体集積回路の微細化

ArF エキシマレーザを光源として用いた半導体露光装置による半導体集積回路の微細化の変遷を図 2.9 に示す。縦軸は、Dynamic Random Access Memory (DRAM) および NAND 型フラッシュメモリのハーフピッチ (hp: 繰返しパターンのピッチの半分) である。ArF エキシマレーザは、hp 90 nm のときから半導体露光装置用の光源として実用化された。その後、液浸露光を適用することにより hp 45 nm を実現した^{40, 41)}。液浸露光は、投影レンズとウェハの間を純水で満たすことにより高 NA 化を図り、解像線幅を小さくするものである。純水の屈折率は 1.44 で、空気の 1.44 倍であるため、(2.5) 式より開口数 NA が大きくなる。

ArF エキシマレーザを用いた液浸露光による半導体集積回路の微細化は、hp 40 nm が限界だと考えられた。しかし、ダブルパターニング技術の登場により、NAND 型フラッシュメモリは、2010 年に hp 32 nm を 2011 年に hp 22 nm を実現した⁴²⁾。DRAM と MPU は、2012 年に hp 32 nm を実現した。ダブルパターニング技術は、1 回の露光では実現できない微細な寸法のパターンを 2 回の露光に分けて加工することによって、1 回の露光の半分のピッチのパターンまで実現するものである。ダブルパターニング技術には、大きく分けてピッチスプリット型 (またはリソエッチ・リソエッチ型) とサイドウォールスペーサ型の 2 つの手法がある⁴³⁾。ピッチスプリット型は、1 回目と 2 回目の露光において重ね合わせが必要になる。この重ね合わせ精度は、従来の半導体露光装置に要求されていた精度の数倍必要である。このため、この手法は実用化に至っていない。これに対し、サイドウォールスペーサ型は、縞状のパターン等にパターン形状は限られるが、重ね合わせ精度に影響されないという特徴がある。サイドウォールスペーサ型のプロセスフローを図 2.10 に示す。第 1 回目の露光によりパターンを形成後、現像、エッチングとレジスト剥離を行う。その後、形成されたパターン上にスペーサ膜を成膜する。そして、ハードマスクを除去してスペーサ膜の側壁をマスクとして用いる。ここで、スペーサ膜の側壁には不要な

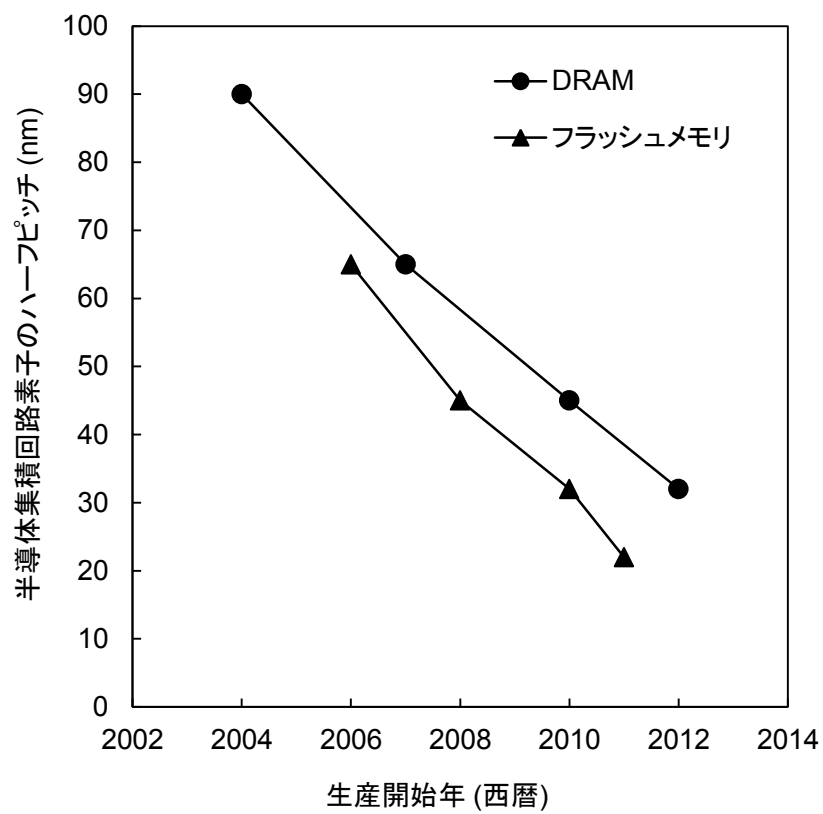


図 2.9 ArF エキシマレーザを用いた半導体露光装置による微細化

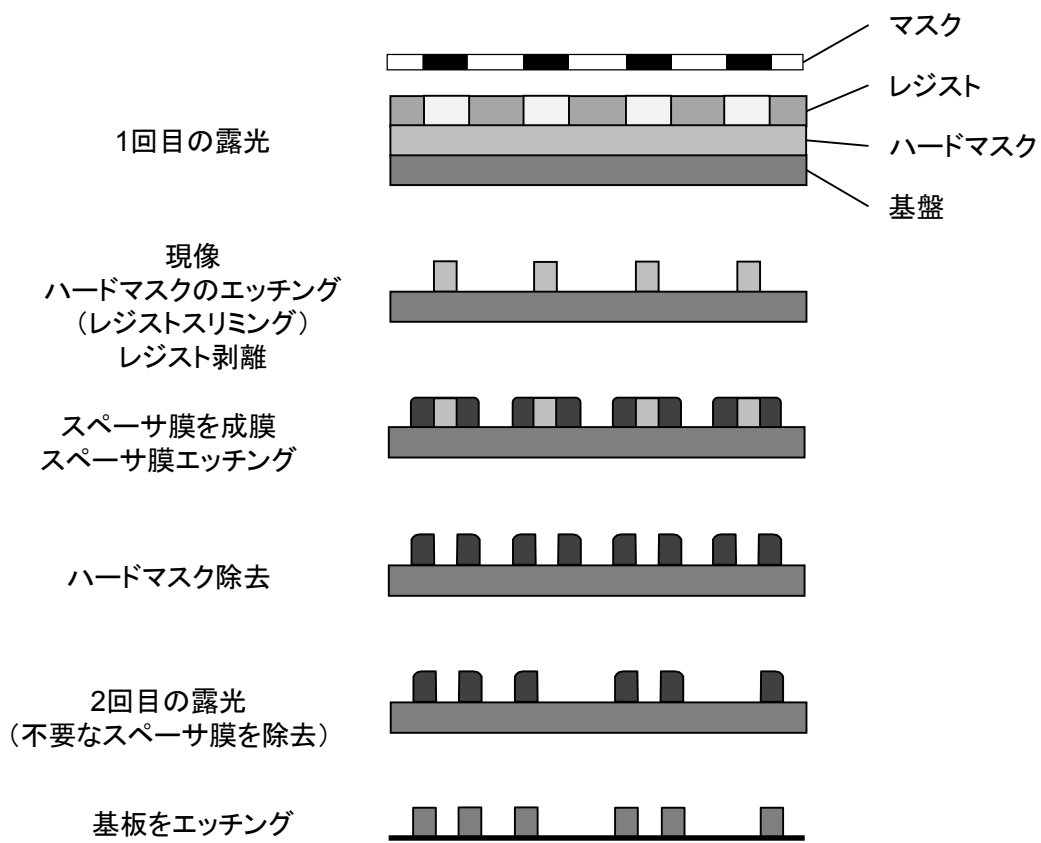


図 2.10 サイドウォールスペーサ型のプロセスフロー

部分があるので、2回目の露光で除去する。NAND型フラッシュメモリは、最も微細なパターンが縞状のパターンから構成されているため、この方式で製造することが可能である。

次世代の半導体に関しては、米国、日本、欧州、韓国、台湾の世界5極の専門家によって国際半導体技術ロードマップ (ITRS: International Technology Roadmap for Semiconductor)が作成され、数年毎に見直しを行っている。2011年版のロードマップによると、次世代の、hp 16 nmのNAND型フラッシュメモリおよびhp 22 nmのDRAMとMPUに対応する半導体露光の候補技術は、極端紫外線 (EUV: Extreme Ultraviolet) 露光とマルチパターニング技術を用いた液浸露光である⁴⁴⁾。

EUV露光は、光源波長をArFエキシマレーザの10分の1以下の13.5 nmにすることにより、hp 22 nmを実現するものである。EUV露光システムの基本構成を図2.11に示す。EUV光源から発したEUV光は、照明光学系を介して反射型レチクル(マスク)を照明する。ここでマスクパターン情報をもって、投影光学系によりウェハ上に形成されたレジスト膜を感光する。EUV露光は、パターン形状の制限なしに解像度を向上できる露光技術であるので、早急な実用化が強く望まれている。しかし、実用化するには、解決すべき技術課題が多く残されている。世界中のEUV開発の関係者が集まって、International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography (EUVL Symposium)が毎年秋に開催されている。この会議では、EUV露光技術のフォーカスエリアの見直しがおこなわれ、ハードルが高い順に発表される。2008年から2012年のフォーカスエリアを表2.2に示す。ここ5年のトップは、光源かマスクである。光源は、長期安定動作が望まれている。マスクは、パターンの欠陥検査装置の開発が望まれている。

もう1つの候補技術のマルチパターニング技術は、2回の露光だけではなく、複数回の露光に分けて加工するものである。原理的には加工の回数が増えれば、微細なパターンの形成も可能となる⁴⁵⁾。マルチパターニング技術は、既存の技術をそのまま利用できる利点はあるが、コストと精度が課題である。

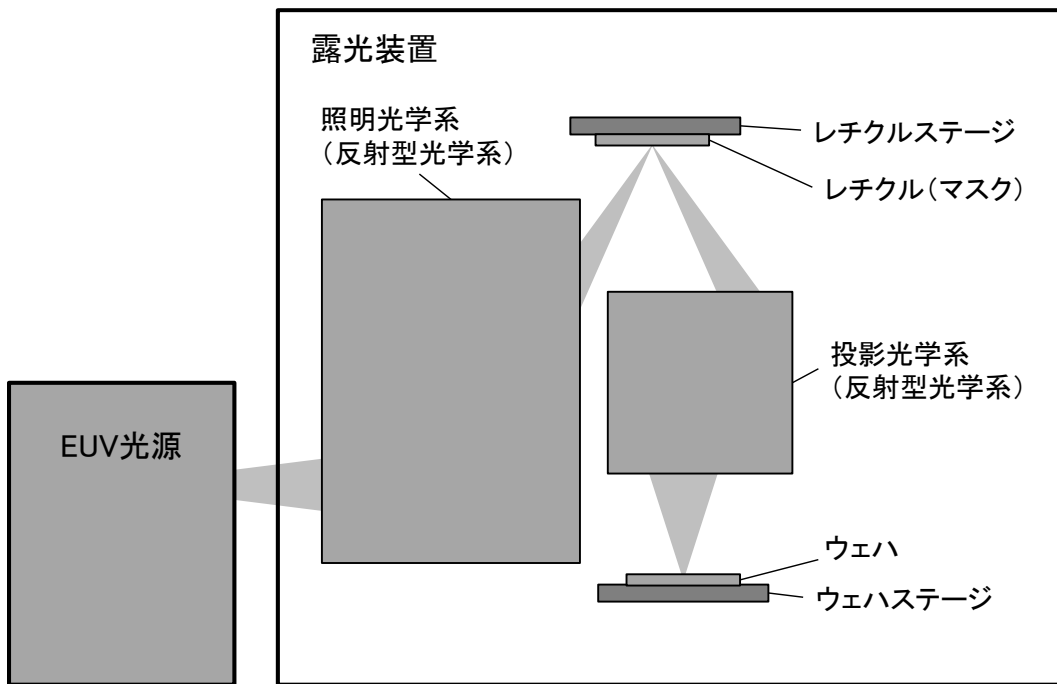


図 2.11 EUV 露光システムの基本構成

表 2.2 EUV 露光技術のフォーカスエリアの変遷 (EUVL Symposium)

2008年	2009年	2010年	2011年	2012年
1. 光源	1. マスク	1. マスク	1. 光源	1. マスク
2. マスク	2. 光源	2. 光源	2. マスク	2. 光源
3. レジスト	3. レジスト	3. レジスト	3. レジスト	3. レジスト

2.4 半導体露光用エキシマレーザ

2.4.1 半導体露光用エキシマレーザへの技術的要求

半導体露光用エキシマレーザへの技術的要求²⁾を表 2.3 に示す。技術的要求は、つぎの4つである。(1) 解像度向上のための短波長化、スペクトル幅の狭帯域化、および高精度な波長制御。(2) スループット向上のための繰返し周波数の向上、レーザ出力の向上、および高精度なエネルギー дози制御（露光量制御）。(3) 歩留り改善のためのレーザパラメータ（スペクトル幅、エネルギー дози量、ビームポインティング）の計測と安定化。(4) ランニングコスト低減のための保守性の向上、信頼性の向上、およびモジュール寿命の延長。特に強い要求は、スペクトル幅の狭帯域化、繰返し周波数の向上とレーザ出力の向上である。

この技術的要求に応えるために、米国の Cymer, Inc. とギガフォトン株式会社を中心に半導体露光用エキシマレーザの開発が進められた。KrF エキシマレーザを光源とした半導体露光装置は、1990 年代後半に実用化された。このときの繰返し周波数は 1 kHz、平均出力は 10 W、そしてスペクトル幅は 2.0 pm (E95 : スペクトル中の 95% のエネルギーが集中している幅) であった。その後、繰返し周波数は、1998 年に 2 kHz、2004 年に 4 kHz に向上した。現在主力の KrF エキシマレーザの繰返し周波数は 4 kHz、平均出力 40 W、そしてスペクトル幅 1.1 pm (E95) である。2013 年後半には、ギガフォトン株式会社から、繰返し周波数は 4 kHz、平均出力 50 W の G42K が商品化される予定である⁴⁶⁾。

ギガフォトン株式会社の半導体露光用 ArF エキシマレーザの変遷を図 2.12 に示す⁴⁶⁾。上述 (2.3.2 項) のように、ArF エキシマレーザを光源とした半導体露光装置は、2004 年の hp 90 nm のときから実用化された。このときの繰返し周波数は 4 kHz、平均出力は 20 W、そしてスペクトル幅は 0.85 pm (E95) であった。同じ 2004 年に、ダブルチャンバ・インジェクションロック方式の高効率・高安定の GT40A (4 kHz, 45 W, 0.5 pm) が商品化された^{47- 49)}。2005 年には繰返し周

表 2.3 エキシマレーザへの技術的要求

目的	技術的要求
解像度向上	短波長化
	スペクトル幅の狭帯域化
	高精度な波長制御
スループット向上	繰返し周波数の向上
	レーザ出力の向上
	高精度なエネルギードーズ量制御
歩留り向上	レーザパラメータの計測と安定化
	スペクトル幅
	エネルギードーズ量
	ビームポインティング
ランニングコスト低減	保守性の向上
	信頼性の向上
	モジュール寿命の延長

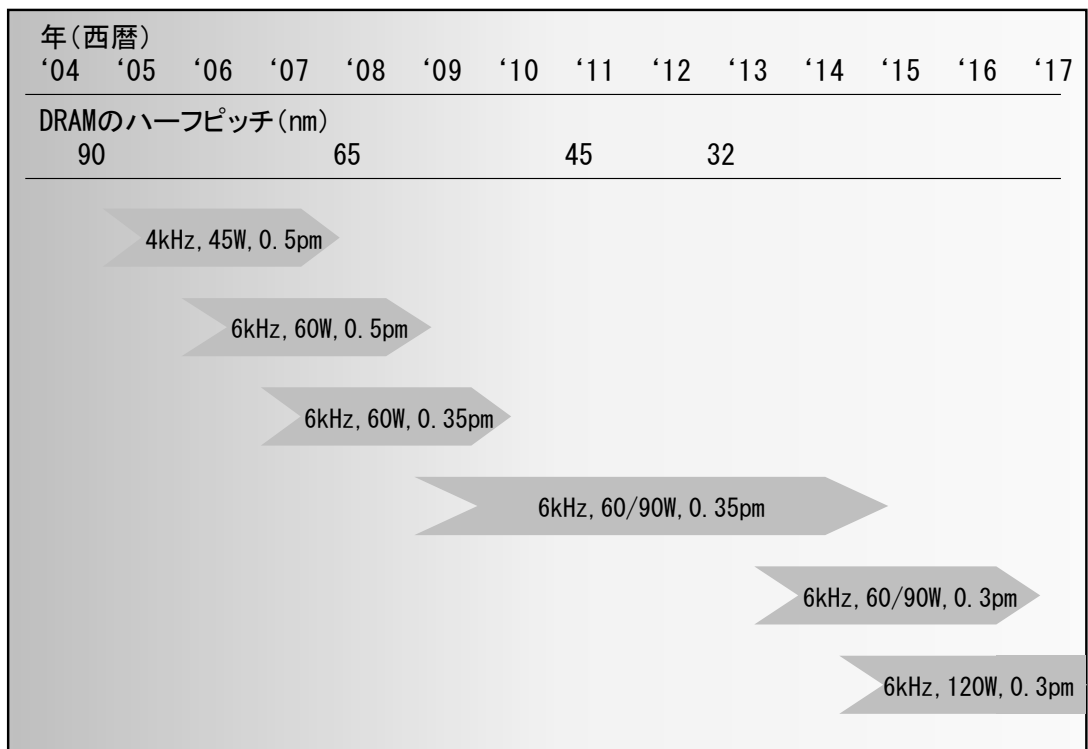


図 2.12 半導体露光用 ArF エキシマレーザの変遷

波数を1.5倍に向上させたGT60A (6 kHz, 60 W, 0.5 pm)^{50, 51)}、2007年には液浸露光に対応したGT61A (6 kHz, 60 W, 0.35 pm)⁵²⁾、2009年にはダブルパターンニング技術を用いた液浸露光に対応したGT62A (6 kHz, 60/90 W, 0.35 pm)⁵³⁾、そして、2013年の初めにはマルチパターンニング技術を用いた液浸露光に対応したGT63A (6 kHz, 60/90 W, 0.3 pm)⁵⁴⁾が商品化された。このGT63Aの主仕様とモジュール保守間隔を表2.4に示す。

2.4.2 半導体露光用エキシマレーザの構成

半導体露光用エキシマレーザの基本構成を図 2.13 に示す。上述 (2.2.3 項) のエキシマレーザと半導体露光用エキシマレーザの構成要素の違いは、つぎの3点である。(1) 共振器中に、レーザの発振スペクトルを狭帯域化する狭帯域化モジュールが配置されている。(2) レーザパルス出力エネルギーと発振波長を計測するモニターモジュールが配置されている。(3) モニターモジュールの計測結果を充電電源、励起回路と狭帯域化モジュールにフィードバックし、おのおのの特性を安定に維持するコントロールモジュールが配置されている。本項では、半導体露光用エキシマレーザに特有の狭帯域化モジュールについて概要を述べる。

エキシマレーザを半導体露光装置用の光源として用いる場合は、スペクトル幅を狭くする必要がある。水銀ランプまでは、色収差の補正を、分散の異なる硝材を組み合わせでおこなってきた。しかし、KrF エキシマレーザおよび ArF エキシマレーザは波長が短いため、レーザ光を透過できる光学材料は蛍石(CaF₂)に限定され、同じ方法では色収差を補正できない。この課題は、エキシマレーザのスペクトル幅を狭帯域化することにより解決した³⁵⁾。狭帯域化していない希ガスーハライドエキシマレーザのスペクトル幅は、0.5–1.5 nm である。このスペクトル幅を、狭帯域化モジュールを用いて狭くしている。

スペクトル幅を狭帯域化する方法として、つぎの4つの方法がある。(1) 回折格子をリトロ配置で用いる方法⁵⁵⁾、(2) 斜入射回折格子を用いる方法⁵⁶⁾、

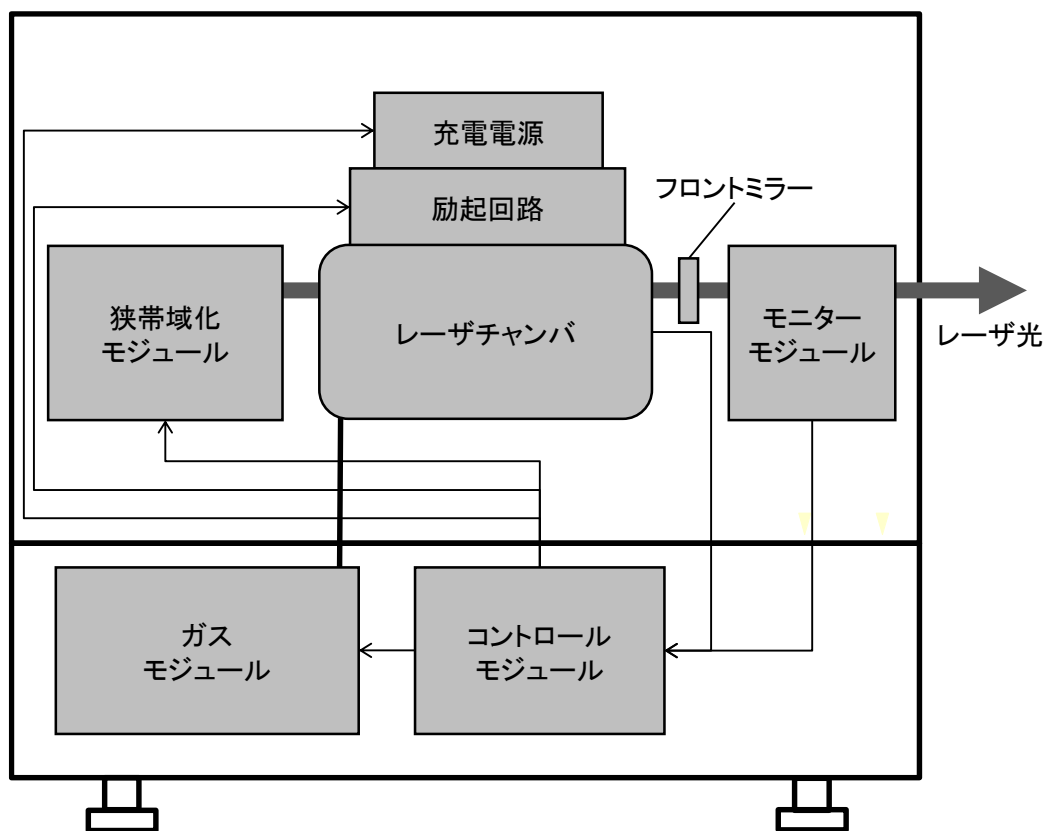


図 2.13 半導体露光用エキシマレーザーの基本構成

表 2.4 GT63A の主仕様とモジュール保守間隔

主仕様		
発振波長	(nm)	193
レーザ出力	(W)	60/90
レーザパルス出力エネルギー	(mJ)	10.0/15.0
繰返し周波数	(kHz)	6
スペクトル幅 (E95)	(pm)	0.3
モジュール保守間隔		
発振段レーザチャンバ交換	(Bpls)	30
増幅段レーザチャンバ交換	(Bpls)	30
増幅段用フロントミラー交換	(Bpls)	30
増幅段用リアミラー交換	(Bpls)	30
モニターモジュール交換	(Bpls)	30
フッ素トラップ交換	(Cycles)	24

(3) 複数個の分散プリズムを用いる方法⁵⁷⁾、そして(4) 複数個のエタロンを用いる方法⁵⁸⁾である。半導体露光用エキシマレーザの狭帯域化モジュールには、回折格子をリトロ配置で用いる方法が用いられている。レーザのスペクトル幅が狭帯域化されると同時に、狭帯域化の効率が高いためである⁵⁹⁾。構成要素は、レーザ光を回折格子の分散方向に拡大するプリズムと高効率で高分解能な回折格子である。スペクトル幅は、回折格子の格子密度またはレーザ光の拡大率を大きくすることにより、狭くすることができる。ただし、回折格子の格子密度を大きくすることは限界にきている。このため、レーザ光の拡大率を大きくすることにより、スペクトル幅の狭帯域化を実現している。このとき、回折格子の長さが実用上 350 mm 程度で限界であるため、レーザ光の拡大率を大きくするためには、レーザ光の幅を狭くする必要がある。レーザ光の幅は、自由に可変できないので、スリットでカットすることにより狭くしている。このため、スペクトル幅の狭帯域化を実現するには、レーザ出力の低下を補う高出力化も必要になる。

2.4.3 半導体露光用 ArF エキシマレーザの今後の課題

半導体露光装置用 ArF エキシマレーザへの技術的要求の中で、繰返し周波数の向上とレーザ出力の向上は強く要求されている。現在、ArF エキシマレーザは、ダブルパターニング技術を用いた液浸露光により hp 32 nm の露光装置用の光源として使用されている。今後は、マルチパターニング技術を導入して、hp 22 nm の半導体露光装置用の光源としても使われようとしている。ダブルパターニング技術やマルチパターニング技術は、各エリアの露光回数が 2 回以上になるため、スループットが低下する。これを補うために高出力化が要求されている。要求されるレーザ出力は 100 W 以上である。この高出力化は、半導体露光装置やエキシマレーザ自身の光学素子のダメージの点から、繰返し周波数を上げて実現するのが望ましい。ArF エキシマレーザの光子エネルギーは 6.4 eV と高く、物質の分子結合を切断するのに十分なエネルギーをもっている

ので、レーザパルス出力エネルギーのピーク値が高くなると、光学素子のダメージも大きくなる⁶⁰⁾。現在の ArF エキシマレーザのレーザ出力は 60 W で、繰返し周波数は 6 kHz である。したがって、100 W 以上のレーザ出力を、繰返し周波数を 10 kHz 以上に上げて実現することが期待されている。

放電励起エキシマレーザで 10 kHz 動作を達成するには、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成する必要がある。高繰返し動作時に空間的に均一な放電の形成を阻害する要因は、(1) ガス密度くぼみ、(2) 音響波、(3) 陰極輝点 (ホットスポット) の 3 つである。

ガス密度くぼみは、放電時のガスの瞬間的な加熱により生成されるガス粒子密度が希薄な領域である。ガス密度くぼみは、ガス流に応じて移動するが、次の放電時に放電領域またはその近傍に存在すると、放電はガス密度くぼみ領域で局所的に形成され、空間的に不均一になる³⁾。ガス密度くぼみ領域は、ガス密度が希薄なうえに、寿命の長いハロゲンガスの負イオン⁶¹⁾ や電極からの蒸発金属⁶²⁾ などの放電生成物の存在し、他の領域より放電しやすい領域である。

音響波は、放電時のガスの瞬間的な加熱により発生する。発生後は音速の数倍の速さで伝播するが、しだいに遅くなり、音速で伝播する。この音響波がチャンバ内を伝播し、次の放電時に放電領域でガス密度揺らぎを形成すると、空間的に不均一な放電、およびレーザ光路における屈折率の不均一分布を引き起こす⁶⁾。このため、レーザパルス出力エネルギーは低下し、スペクトル幅は広がる^{50, 63)}。音響波は、スペクトル幅への影響が顕著で、ある特定の周波数でスペクトル幅が広がる。これは、繰返し周波数により、伝播している音響波の位置が変わるためである。また、音響波の影響は、一般的には、高繰返し化にともない強くなる。これは、繰返し周波数が増加するとレーザパルスの間隔が短くなり、音響波が十分減衰しないためである。

陰極輝点 (ホットスポット) は、電極の陰極表面に周期的に現れ、これが引き金になって、放電は局所的に集中し、空間的に不均一になる⁶⁴⁾。これは、陰極輝点が形成された部分は局所的にガス密度が低下すると共に、イオン化が促進されるためである。陰極輝点が発生する要因については、電極表面の微細な

凹凸の影響で形成されるという報告がある⁶⁵⁾。

高繰返しエキシマレーザには、空間的に均一な放電の形成を阻害する要因を排除するために、さまざまな方法が織り込まれている。ガス密度くぼみの影響は、高速のガス流により次の放電までに放電領域外に移動することにより排除している²⁵⁾。音響波はつぎの3つの方法で影響を排除している。チャンバ内部に音響波の吸収体を設置すること⁶⁶⁾、放電空間近傍の部品形状を音響波が減衰しやすいように変更すること、および音響波の反射体となる部品や構造をできる限り除去することである⁶⁷⁾。陰極輝点の影響は、6 kHzの繰返し周波数までは顕著に表れていない。このため、陰極輝点の影響を排除する方法は、積極的には織り込まれていない。

以上述べたように、放電励起 ArF エキシマレーザは、ダブルパターニング技術を用いた液浸露光やマルチパターニング技術を用いた液浸露光のときのスループット向上のために、100 W 以上のレーザ出力が要求されている。そして、この高出力化は、光学素子のダメージを抑えるために、繰返し周波数を 10 kHz 以上に上げて実現するのが望ましい。このような背景から、放電励起 ArF エキシマレーザで 10 kHz 動作を実現することが期待されている。

第3章 ガス密度くぼみおよび音響波の計測

3.1 はじめに

放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、10 kHz 動作を実現するには、高繰返し動作の阻害要因であるガス密度くぼみおよび音響波を、高い分解能で計測することが重要である。エキシマレーザにおいて、動作可能な周波数は、一般的にはクリアランスレシオ (CR) を用いて検討される。CR をもとにした解析は、10 kHz の繰返し周波数のレーザ装置の設計指針になる。しかし、何が放電と CR の関係を決めているかの答えを与えてくれるものではない。このため、ガス密度くぼみと音響波を計測し、そして、空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係を定量的に把握することが重要である。

ガス密度くぼみは、単発放電時に、マッハツェンダー干渉法でガス粒子密度変化が³⁾、シュリーレン法でガス温度プロファイルが⁴⁾計測された報告がある。高繰返し動作時においては、XeCl エキシマレーザで、マイケルソン干渉計および高速度カメラを用いたシステムでガス密度乱れが計測された報告がある⁵⁾。空間的に均一な放電を形成するために要求される、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係に関する報告例はなく、これらの空間的位置関係は明らかにされていない。

音響波は、干渉法⁶⁾、シャドウグラフ法⁷⁾とシュリーレン法⁸⁾で計測された多くの報告がある。干渉法は、密度分布が精度よく求まるが、シャドウグラフ法やシュリーレン法より感度が悪く、大きな密度変化がある場合に適用される。シュリーレン法は、シャドウグラフ法より緩やかな密度勾配のときでも感度が良く、3つの方法の中で最も感度が良い。

本章では、空間的に均一な放電を形成するために要求される、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係、および放電領域の電子密度とガス密度

くぼみ領域のガス粒子密度変化を計測するために、構築したマッハツェンダー干渉法を用いた計測システムについて述べる。さらに、音響波の計測のために構築したシュリーレン法を用いた計測システムについて述べる。

3.2 ガス密度くぼみの計測⁶⁸⁾

3.2.1 計測システム

空間的に均一な放電を形成するために要求される、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係、および放電領域の電子密度とガス密度くぼみ領域のガス粒子密度変化を定量的に計測するために、構築したマッハツェンダー干渉法を用いた計測システムを図 3.1 に示す。マッハツェンダー干渉法の光源は、窒素レーザー励起の狭帯域色素レーザー (LTB 製 UDL300) である。色素レーザーの波長は 600 nm、スペクトル幅は 0.1 nm 以下、レーザーパルスの半値全幅は 500 ps、そしてレーザーパルス出力エネルギーは 20 μ J である。狭帯域色素レーザー光をレンズ 1 で拡大したのち、レンズ 2 で平行光束にする。そして、ハーフミラー 1 により、レーザーチャンバ内の電極間を通る光路 (試験光路) とミラー 3 を通る光路 (参照光路) に分けた。干渉縞はハーフミラー 2 の後に形成され、ICCD カメラ (PCO 製、DiCAM PRO) で観察した。放電光は、バンドパスフィルターを用いて抑制した。レーザーチャンバ内の放電開始時刻に対する狭帯域色素レーザー光の入射の遅れ時間は、ディレイジェネレーター (Stanford Research System 製、DG535) を用いて変化させた。遅れ時間は、狭帯域色素レーザー光とレーザーチャンバの放電光を光電管 (浜松ホトニクス製、R1193U-51) で計測して確認した。このマッハツェンダー干渉法の時間分解能は 500 ps で、空間分解能は 0.05 mm である。

マッハツェンダー干渉法の調整方法には、無限幅干渉縞法と有限幅干渉縞法の 2 つがある⁶⁹⁾。無限幅干渉縞法では、等密度干渉縞から密度分布が算出され、

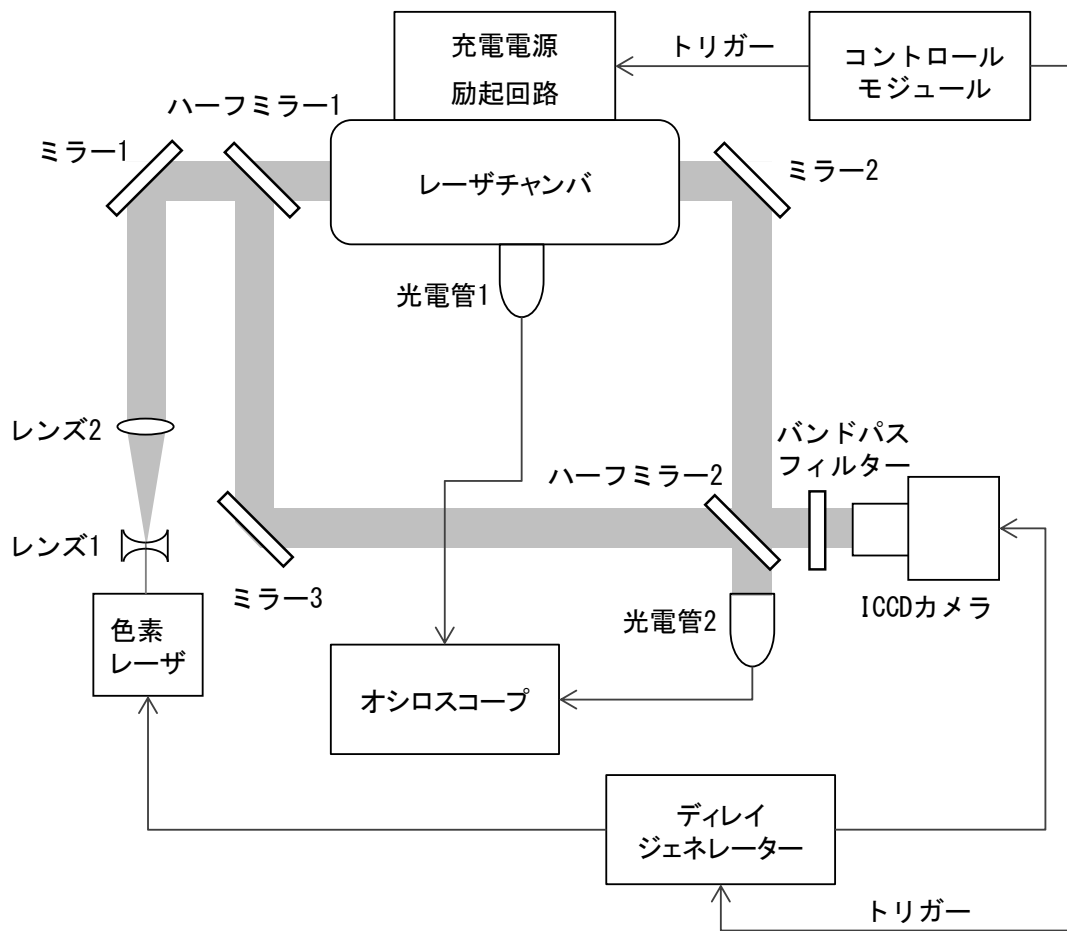


図 3.1 マッハツェンダー干渉法を用いた計測システム

有限幅干渉縞法では移動干渉縞から密度分布が算出される。本研究では、密度の測定が細やかにできる有限幅干渉縞法を用いた。調整方法は、まず、電極間で放電してない状態で、試験光路と参照光路の光路長を同じにする。光路長が同じであれば、試験光路と参照光路のレーザ光が干渉して、ICCDカメラでは、一様な明るさの像が観察できる。この状態から、ハーフミラー2を放電方向に対して垂直な軸（水平方向の軸）のまわりに微小角度回転させると、等間隔で平行な直線干渉縞が形成される（図 3.2 参照）。この縞模様は、有限幅干渉縞または平行干渉縞とよばれる。この状態から、放電により電子密度およびガス粒子密度が変化すると、密度が変化した領域の屈折率が変化する。屈折率が変化した領域の干渉縞は、密度の変化量に応じて移動する。したがって、この干渉縞の移動量から密度変化を算出することができる。

3.2.2 放電領域の電子密度の算出

マッハツェンダー干渉法の干渉縞は、放電時の電子密度 (n_e) と、その後のガス粒子密度変化 (n_a) で移動する。 n_e 、 n_a と干渉縞の移動量 (s) の関係は、

$$s = -4.46 \times 10^{-14} n_e L \lambda + \frac{\eta n_a L}{\lambda} \quad (3.1)$$

のように表される⁷⁰⁾。 L は放電長 (545 mm)、 λ は狭帯域色素レーザの波長 (600 nm)、 η はガス種に依存する定数である。なお、移動量 (s) は、有限幅干渉縞の間隔を 1 として規格した値である。右辺の第 1 項が n_e による干渉縞の移動量で、第 2 項が n_a による干渉縞の移動量である。電子密度の減衰時定数は、ハロゲンガスを含まないガスの放電では 1 μ s 程度である⁷¹⁾。したがって、干渉縞は放電開始から 1 μ s までは電子密度による移動が優勢で、1 μ s 以降は、ガス粒子密度変化による移動が優勢となる。このことから、放電開始から 1 μ s までは、 n_a は無視できるので、この時までの n_e の算出には、(3.1) 式の右辺は第 1 項のみを用いればよい。

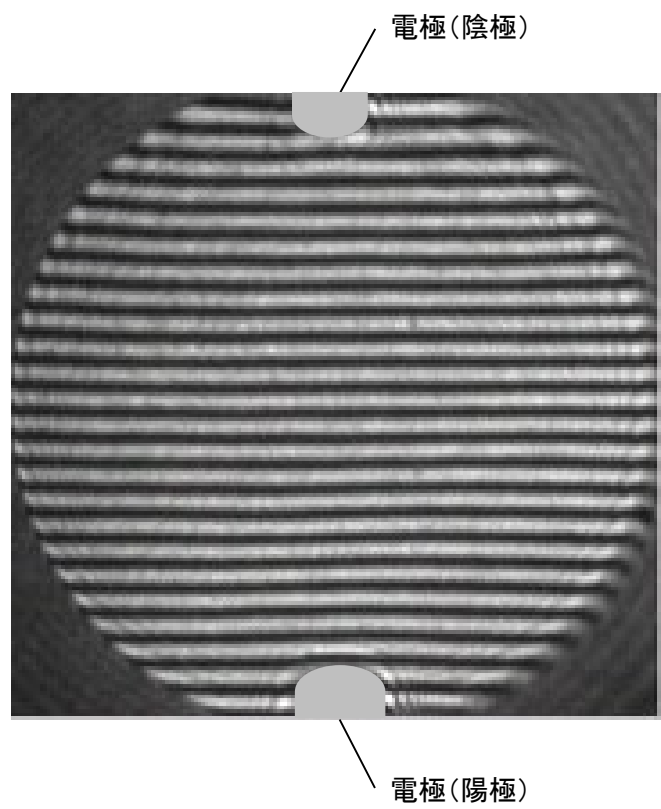


図 3.2 電極間で放電してないときの干渉像（有限幅干渉縞）

放電開始から 30 ns 後のマッハツェンダー干渉法による計測結果を図 3.3 に示す。放電により放電領域は電子密度が増加して干渉縞が移動している。この干渉縞の移動量 (s) から、(3.1)式の右辺は第 1 項のみを用いて、放電領域の電子密度を算出することができる。この計測システムの電子密度の検出下限は、 10^{19} m^{-3} である。

3.2.3 ガス密度くぼみ領域のガス粒子密度変化の算出

放電開始から 125 μs 後のマッハツェンダー干渉法による計測結果を図 3.4 に示す。ガス密度くぼみ領域は、ガス流により、放電空間から右側に移動している。このガス密度くぼみ領域の干渉縞の移動方向は、図 3.3 の電子密度の増加による干渉縞の移動方向と同じである。密度の増減は逆であるが、(3.1)式の符号が逆であるので、干渉縞の移動方向は同じになる。ガス密度くぼみ領域の n_a は、放電開始から 1 μsec 以降は n_e が無視できるので、(3.1)式の右辺の第 2 項のみを用いて算出することができる。ガス種に依存する定数 η は、チャンバ内のガスの 96.5% がネオン (Ne) であるので、Ne の定数: $2.46 \times 10^{-30} \text{ m}^3$ を用いた⁷²⁾。さらに、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係も計測可能となった。この計測システムのガス粒子密度変化の検出下限は、 10^{21} m^{-3} である。

3.3 音響波の計測⁵⁰⁾

シュリーレン法を用いた音響波の計測システムを図 3.5 に示す。シュリーレン法の光源は、メタルハライドランプ (シグマ光機製、IMH-250) である。ランプからの光束は、点光源にするために配置した 1 mm のピンホールにライトガイドで導入した。このピンホールをレンズ 1 ($f_1 = 500 \text{ mm}$) の焦点位置に配置することにより、光束を平行にして、レーザチャンバ内の電極間に通した。そして、電極間を通過した平行光束をレンズ 2 ($f_2 = 1000 \text{ mm}$) により集光し、

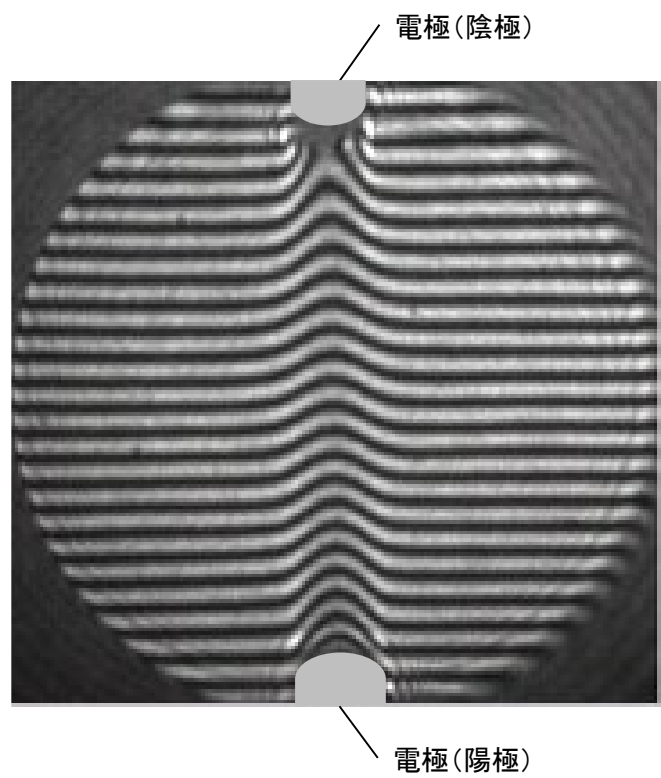


図 3.3 放電開始から 30 ns 後のマッハツエンダー干渉像

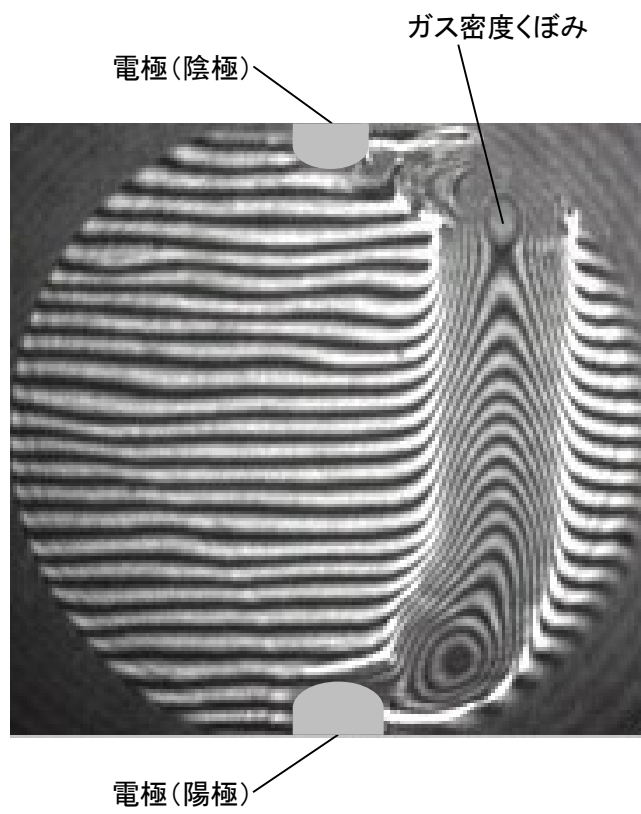


図 3.4 放電開始から 125 μs 後のマッハツェンダー干渉像

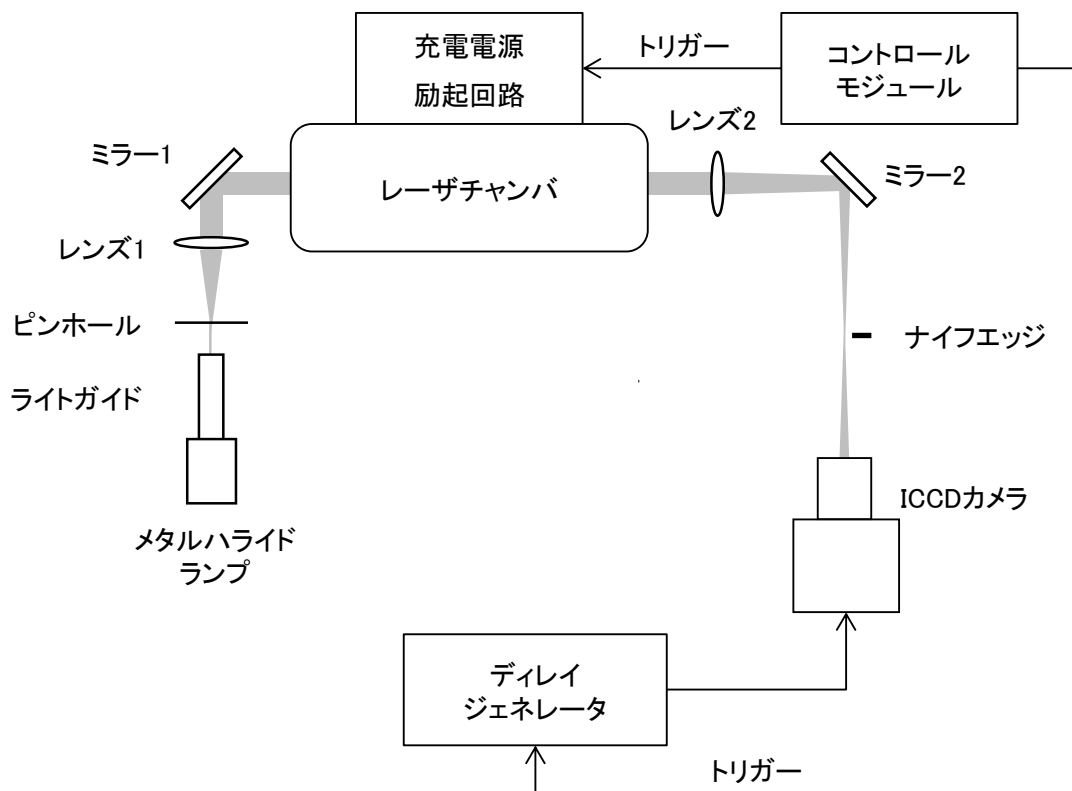


図 3.5 シュリーレン法を用いた音響波の計測システム

レンズ 2 の焦点位置に配置したナイフエッジで、光束の 1 部分をカットした。通過した像は ICCD カメラ (PCO 製、DiCAM PRO) で観察した。ICCD カメラの露光時間は、ランプの光量とガス粒子の移動速度から $1 \mu\text{s}$ とした。レーザチャンバ内の放電開始時刻に対する計測の遅れ時間は、ディレイジェネレーター (Stanford Research System 製、DG535) を用いて変化させた。放電開始時刻に対する計測の遅れ時間は μs のオーダーであるので、数十 ns の ICCD カメラ等のジッターは無視した。このシュリーレン法の時間分解能は $1 \mu\text{s}$ で、空間分解能は 0.05 mm である。

上述のように、光束の 1 部分をナイフエッジでカットすると、すべての光束が一様に影響を受けるから、ICCD カメラで観察される像は一様に暗くなる。ナイフエッジ部の模式図を図 3.6 に示す。この位置における、幅 l 、高さ h の長方形の像の 1 部分をナイフエッジでカットすると、カットされていない部分 h_1 に比例する明るさ E の光束が ICCD カメラに到達する。この状態から、レーザチャンバ内で放電し、発生した音響波が放電領域に残留しているときに計測すると、密度分布が一様ではないので、光線は屈折する。光線の y 方向のふれ角を ε_y とすれば、ナイフエッジにおける像の y 方向の変位は、 $\Delta h = f_2 \varepsilon_y$ と近似できる。同様に光線の x 方向のふれ角を ε_x とすれば、像の x 方向の変位は $\Delta l = f_2 \varepsilon_x$ と近似できる。そして、変位 Δh に比例する明るさ ΔE が像に加えられるが、変位 Δl は明るさに関係しない。したがって、コントラストは、 $\Delta E/E = \Delta h/h_1$ と定義すれば、

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{\Delta h}{h_1} = \frac{f_2 \varepsilon_y}{h_1} = \frac{f_2 K L}{h_1} \frac{\partial \rho}{\partial y} \quad (3.2)$$

のように表される⁷³⁾。 K はグラッドストーン・デイル定数 (gladsstone-Dale constant) で、気体に固有の定数である。 L は放電長である。 ρ はレーザチャンバ内のガスの密度である。(3.2) 式より、像のコントラストは、ナイフエッジに垂直方向の流れの密度勾配に比例する。また、シュリーレン法の感度を上げるには、レンズ 2 の焦点距離 (f_2) を大きくし、グラッドストーン・デイル定

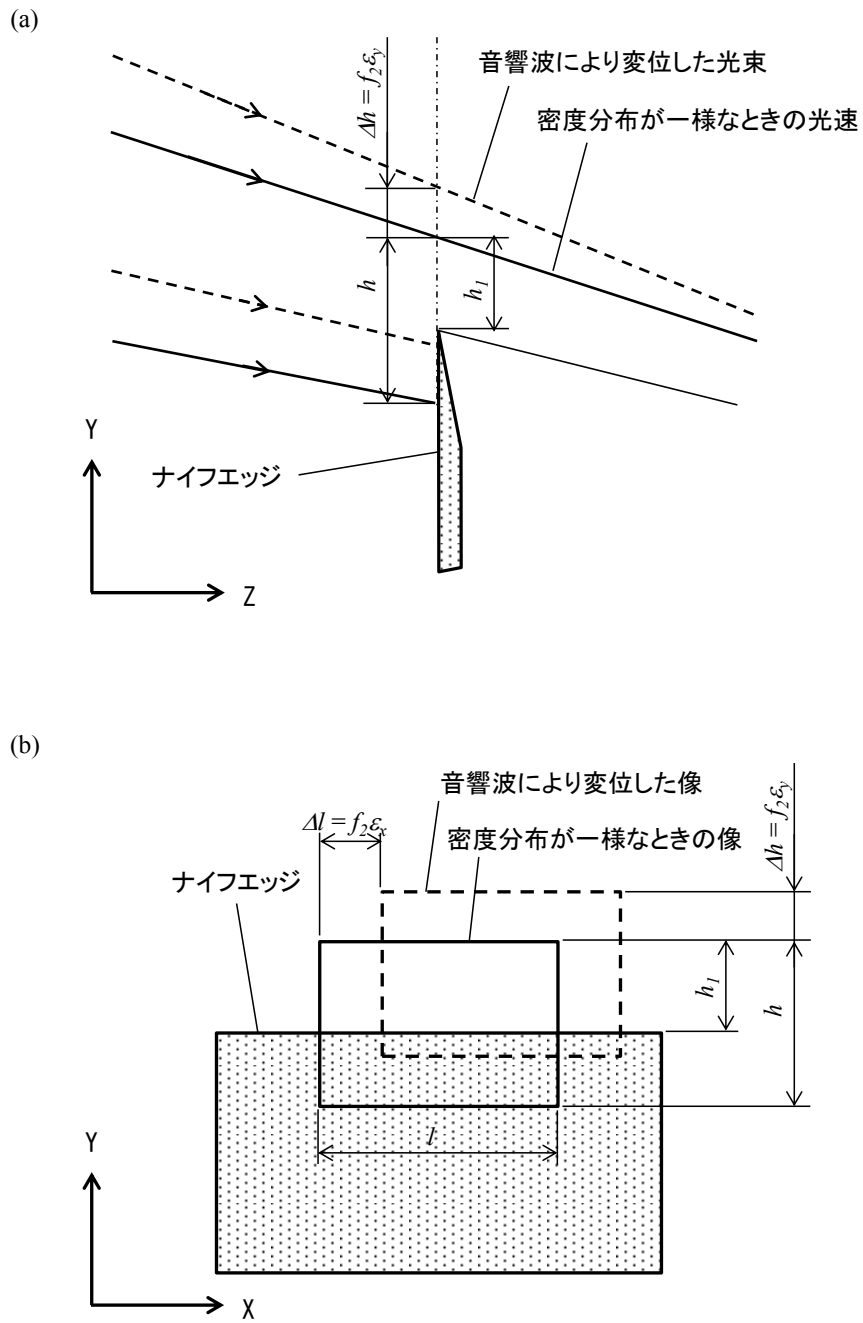


図 3.6 ナイフエッジ部の模式図

(a) 側面から見た図、(b) 正面から見た図

数 (K) の大きな気体をレーザチャンバ内に充填し、放電長 (L) を長くし、そしてナイフエッジでカットされていない部分 (h_l) を小さくすればよい。

シュリーレン法による音響波の計測結果を図 3.7 に示す。放電開始後 30 μs から 100 μs の間に音響波が伝播してゆく様子が観察できる。放電時のガスの瞬間的な加熱により発生する音響波には、電極表面で反射して対向する電極へ垂直方向に伝播するものと (図中 A)、放電領域から放電方向に対して垂直方向に伝播するものがある (図中 B)。さらにこれらの音響波がチャンバ内の構造物で反射して放電領域に戻ってくるものも確認できる (図中 C)。また、ガス密度くみ領域は、ガス流により下流方向に移動する様子が観察できる (図中 D)。

3.5 まとめ

放電励起エキシマレーザの、高繰返し動作の阻害要因であるガス密度くぼみと音響波を計測するシステムを構築した。以下に構築したシステムを示す。

- (1) 放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係および放電領域の電子密度とガス密度くぼみ領域のガス粒子密度変化を高い分解能で計測するために、狭帯域色素レーザを用いたマッハツェンダー干渉法による計測システムを構築した。この計測システムの時間分解能は 500 ps で、空間分解能は 0.05 mm である。また、電子密度とガス粒子密度変化の検出下限は、それぞれ、 10^{19} m^{-3} と 10^{21} m^{-3} である。
- (2) 音響波の計測のために、ガス粒子の密度変化を感度よく可視化できるシュリーレン法を用いた計測システムを構築した。このシステムにより音響波の伝播の様子、およびチャンバ内の構造物で反射して放電領域に戻ってくる音響波を可視化できるようになった。この計測システムの時間分解能は 1 μs で、空間分解能は 0.05 mm である。

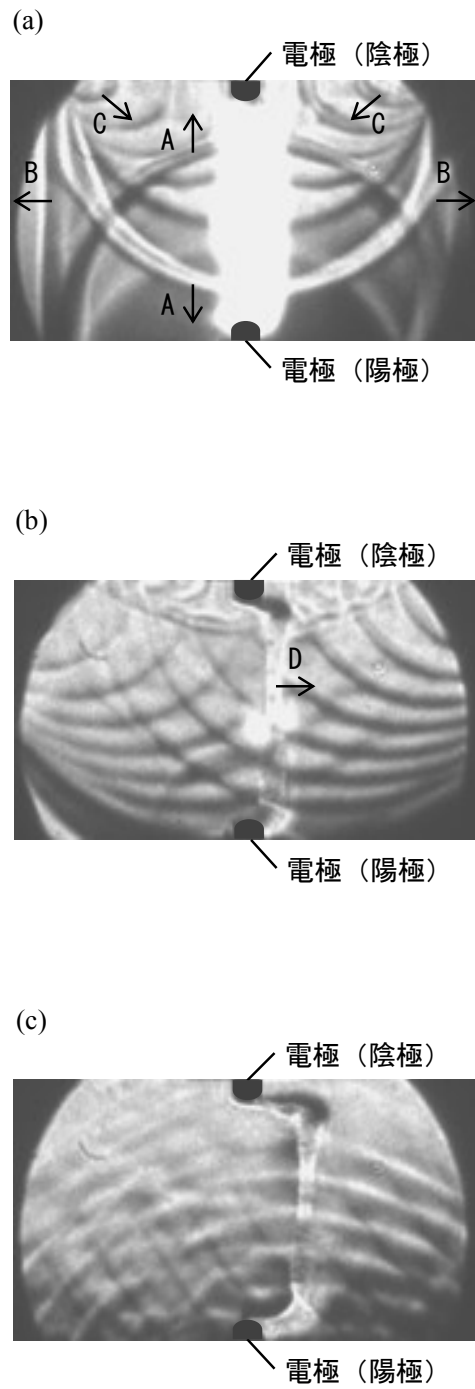


図 3.7 シュリーレン法による音響波の計測結果
 (a) 放電開始から $30 \mu\text{s}$ 後、(b) $50 \mu\text{s}$ 後、(c) $100 \mu\text{s}$ 後

第4章 10 kHzの繰返し周波数での空間的に均一な放電の形成

4.1 はじめに

放電励起 ArF エキシマレーザで 10 kHz 動作を実現するためには、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件を見つけることが重要である。そして、なにが課題であるかを明らかにする必要がある。高繰返し動作は、一般的にはガス流速を速くすることにより達成している。しかし、ガスを循環しているファンへの投入電力は回転数の3乗に比例して増加するので、効率な方法ではない。さらに、ガス流速を速くするために、クロスフローファンの回転数を上げると、装置の振動が大きくなりレーザ特性の安定性を損なう。並びに、クロスフローファンの軸受に用いられている磁気軸受の制御が難しくなる。そこで、6 kHz の繰返し周波数の ArF エキシマレーザは、電極の幅と断面形状を見直すことにより放電幅を狭くしてガス流速の増大を抑制した⁷⁴⁾。しかし、この見直しで放電幅を狭くすることは限界である。このため、本研究では、空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域に対するガス密度くぼみ領域の空間的位置関係を、第3章で述べたマッハツェンダー干渉法の計測システムを用いて調べた。その結果、電極のギャップ間隔を短くすると、空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔は狭くなることを確認した。最短間隔を狭くできれば、ガス流速を速くすることなく、繰返し周波数を上げることが可能となる。

本章では、電極のギャップ間隔と、空間的に均一な放電を形成するために必要な放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔との関係の実験結果を述べる。そして、放電励起 ArF エキシマレーザで、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件と課題を示す。さらに、ガス密度くぼみの影響を、放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より検討した結果について述べる。

4.2 実験装置^{68, 75)}

実験に用いたレーザ装置は 6 kHz の繰返し周波数の放電励起 ArF エキシマレーザ装置である。電極の長さは 545 mm で、ギャップ間隔は 16 mm である。ただし、本研究では、電極ギャップ間隔を標準の 16 mm から 13 mm と 8 mm に変化させた。クロスフローファンとガス流のガイドは、ガスを効率よく循環できるように配置されている。熱交換器は、放電時に発生する熱を除去するため、8 本の水冷パイプと放熱フィンから構成されている。レーザチャンバ内には、3.5% のアルゴン (Ar) と 10ppm のキセノン (Xe) を含んだ 96.5% のネオン (Ne) の混合ガスを 200 kPa 充填、または 3.5% Ar、0.1% フッ素 (F₂) と 10ppm Xe を含んだ 96.4% Ne の混合ガスを 220 kPa 充填した。

音響波の影響の低減には、第 3 章で述べたシュリーレン法を用いた計測システムおよびこの計測システムよりパラメータを設定したシミュレーションを用いた。計測とシミュレーションにより、放電領域に戻ってくる音響波を特定し、上述 (2.4.3 項) の 3 つ対策を実施した。その結果、6 kHz の繰返し周波数までスペクトル幅が広がることはなくなった⁵⁰⁾。

充電電源から電極までの回路を図 4.1 に示す。充電電源からは、2.1 J のエネルギーを供給した。スイッチは、8 kHz 以上の繰返し周波数まで動作できる複数の絶縁ゲートバイポーラトランジスタ (IGBT) で構成されている。2 段の磁気圧縮回路は、高効率な励起を実現するために、電圧の立ち上がり時間を短くしている。放電回路は、コロナ放電自動予備電離を用いた容量移行型回路である。予備電離の構造は、セラミックチューブ内に棒状の内電極があり、外側には板状の外電極が線接触した構成である。コロナ放電はセラミックチューブの表面で発生し、この放電光でガスが予備電離される。

空間的に均一な放電を形成するために要求される、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係、および放電領域の電子密度とガス密度くぼみ領域のガス粒子密度変化を定量的に計測するために、第 3 章で述べたマッハツェン

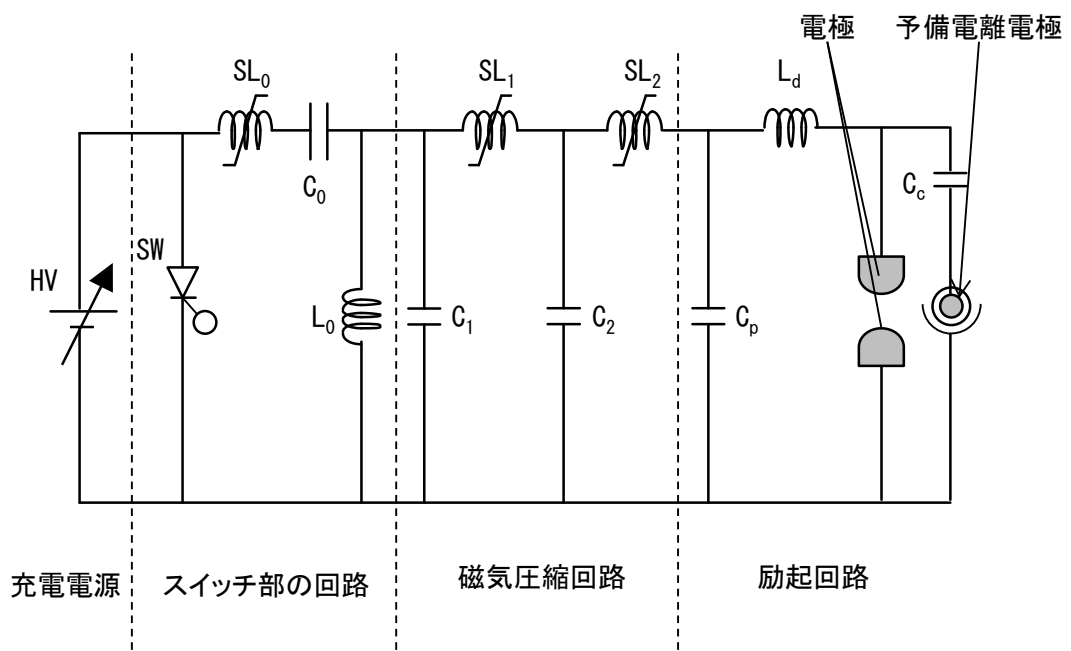


図 4.1 充電電源から電極までの回路

ダー干渉法による計測システムを用いた。そして、放電開始から 30 ns 後のマッハツェンダー干渉像から放電幅を算出した。放電幅は、電子密度 (n_e) の最大値が 10^{22} m^{-3} に近い値となったので、電極間中央で電子密度 (n_e) が $1 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 以上の幅とした。さらに、放電開始から 125 μs 後のマッハツェンダー干渉像からガス密度くぼみの幅を算出した。ガス密度くぼみの幅は、ガス粒子密度変化 (n_a) の最大値が 10^{24} m^{-3} オーダーの値となったので、電極間中央の放電に対して垂直な面内で、ガス粒子密度変化 (n_a) が $1 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ 以上の幅とした。

4.3 実験結果^{68, 75)}

4.3.1 放電幅およびガス密度くぼみの幅

電極のギャップ間隔が 16 mm、13 mm と 8 mm のときの放電開始から 30 ns 後のマッハツェンダー干渉像の計測結果を図 4.2 に示す。同図には、算出した放電幅を実線で示す。なお、これらの計測は、3.5% Ar と 10ppm の Xe を含んだ 96.5% Ne の混合ガスを 200 kPa の圧力まで充填しておこなった。電極のギャップ間隔が 16 mm のときの放電幅は 3.5 mm、13 mm のときは 3.0 mm、そして 8 mm のときは 2.3 mm であった。電極のギャップ間隔が短くなるに従い、放電幅が狭くなるので、(2.3) 式より、動作可能な繰返し周波数は増加する。さらに、スペクトル幅を狭帯域化するとき、スリットでカットされるレーザー光が減少し、レーザーパルス出力エネルギーの低下を抑制することができる。電極間中央の最大電子密度は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは $6.4 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 、13 mm のときは $8.6 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ 、そして 8 mm のときは $9.9 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ であった。

電極のギャップ間隔が 16 mm、13 mm と 8 mm のときの放電開始から 125 μs 後のマッハツェンダー干渉像の計測結果を図 4.3 に示す。同図には、算出したガス密度くぼみの幅を実線で示す。なお、ガス密度くぼみ領域は、ガス流により、放電空間から右側に移動している。電極のギャップ間隔が 16 mm のときの

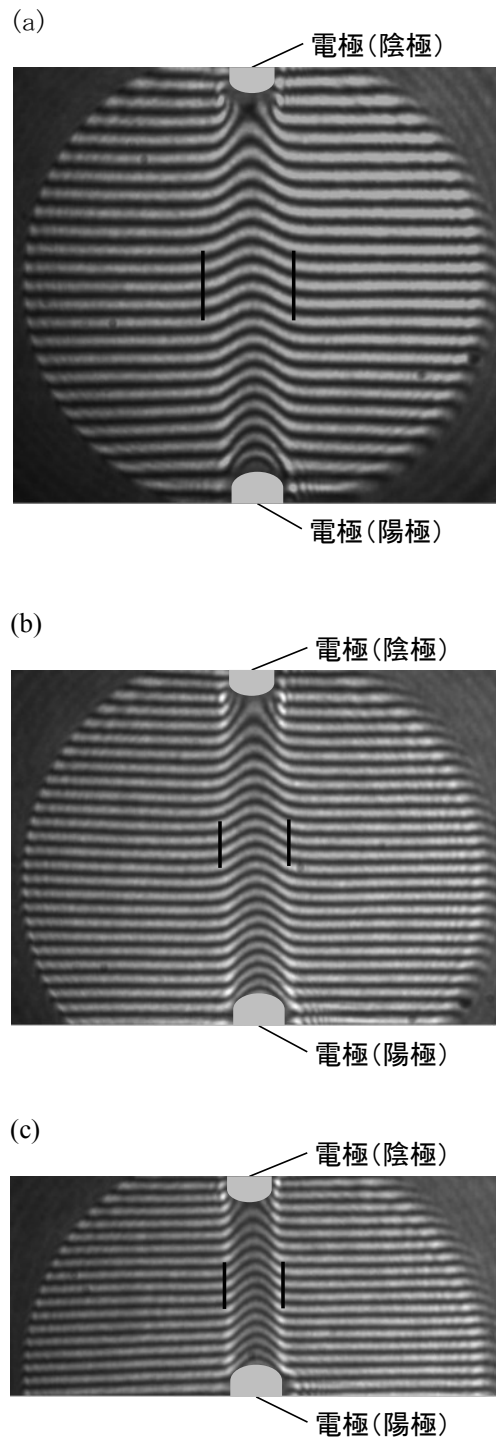


図 4.2 放電開始から 30 ns 後のマッハツェンダー干渉像
(a) 電極のギャップ間隔 16 mm、(b) 13 mm、(c) 8 mm

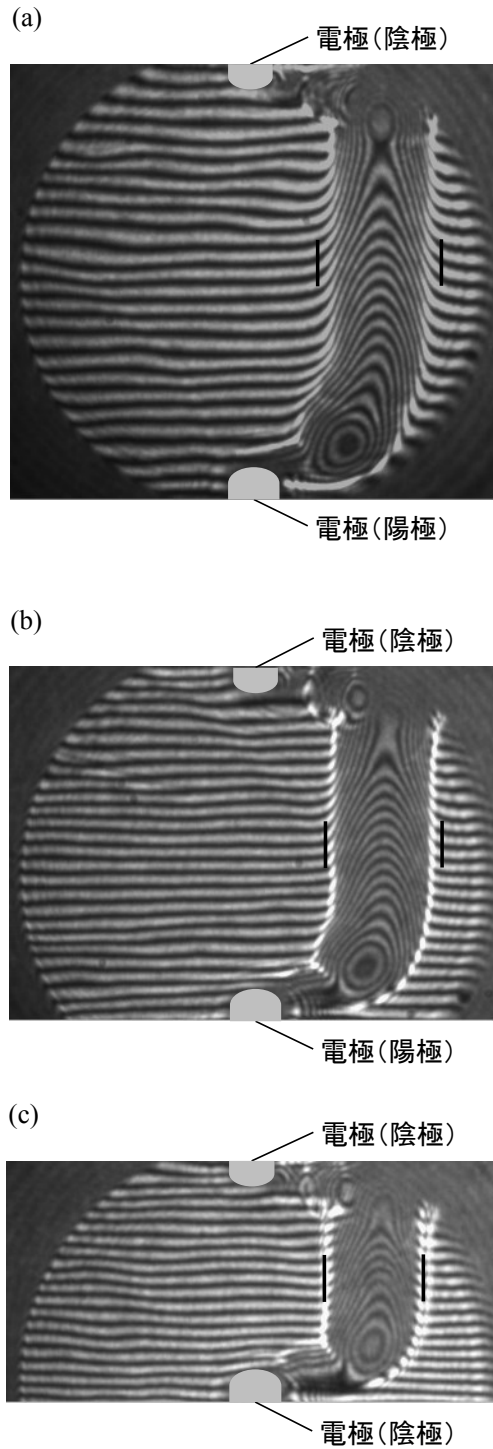


図 4.3 放電開始から $125 \mu\text{s}$ 後のマッハツェンダー干渉像
(a) 電極のギャップ間隔 16 mm、(b) 13 mm、(c) 8 mm

ガス密度くぼみの幅は 5.2 mm、13 mm のときは 4.4 mm、そして 8 mm のときは 3.7 mm であった。ガス密度くぼみの幅も、放電幅同様に電極のギャップ間隔が短くなるに従い狭くなった。電極間中央の放電に対して垂直な面内の最大ガス粒子密度変化は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは $2.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ 、13 mm のときは $3.0 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ 、そして 8 mm のときは $3.3 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ であった。これを圧力変化に換算すると、16 mm のときは 13.0 kPa、13 mm のときは 13.9 kPa、そして 8 mm のときは 15.5 kPa となる。

4.3.2 ガス密度くぼみ領域の放電開始電圧の低下

ガス密度くぼみ領域の圧力低下の計測結果から、圧力低下の影響による放電開始電圧の低下を見積もった。放電開始電圧の低下を見積もるため、ガス圧力が 200 kPa と 300 kPa のときの放電開始電圧を計測した。放電開始前後の電極間電圧の計測結果を図 4.4 に示す。本研究では、アノード電極はグラウンド電位でカソード電極に負の高電圧を印加している。このため、放電開始電圧は電圧波形の最小点にあたる。電極のギャップ間隔が 16 mm の場合の放電開始電圧は、200 kPa のときは 15.9 kV で、300 kPa のときは 18.2 kV である。13 mm の場合は、200 kPa のときは 13.7 kV で、300 kPa のときは 15.7 kV である。8 mm の場合は、200 kPa のときは 10.0 kV で、300 kPa のときは 11.3 kV である。放電開始電圧とガス圧力とは、電極間の電圧が低く電子の増倍が遅れる場合を除くとほぼ比例関係にある⁷⁶⁾。したがって、ガス密度くぼみ領域の圧力低下の影響による放電開始電圧の低下は、ガス圧力が 200 kPa と 300 kPa のときの放電開始電圧の差と、ガス密度くぼみ領域の圧力低下の実測値から見積もることができる。ガス密度くぼみ領域の圧力低下の影響による放電開始電圧の低下は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 0.3 kV、13 mm のときは 0.28 kV、そして 8 mm のときは 0.20 kV と見積もられる。これを変化割合にすると、16 mm のときは 1.9%、13 mm のときは 2.0%、そして 8 mm のときは 2.0%で、ほぼ 2%である。

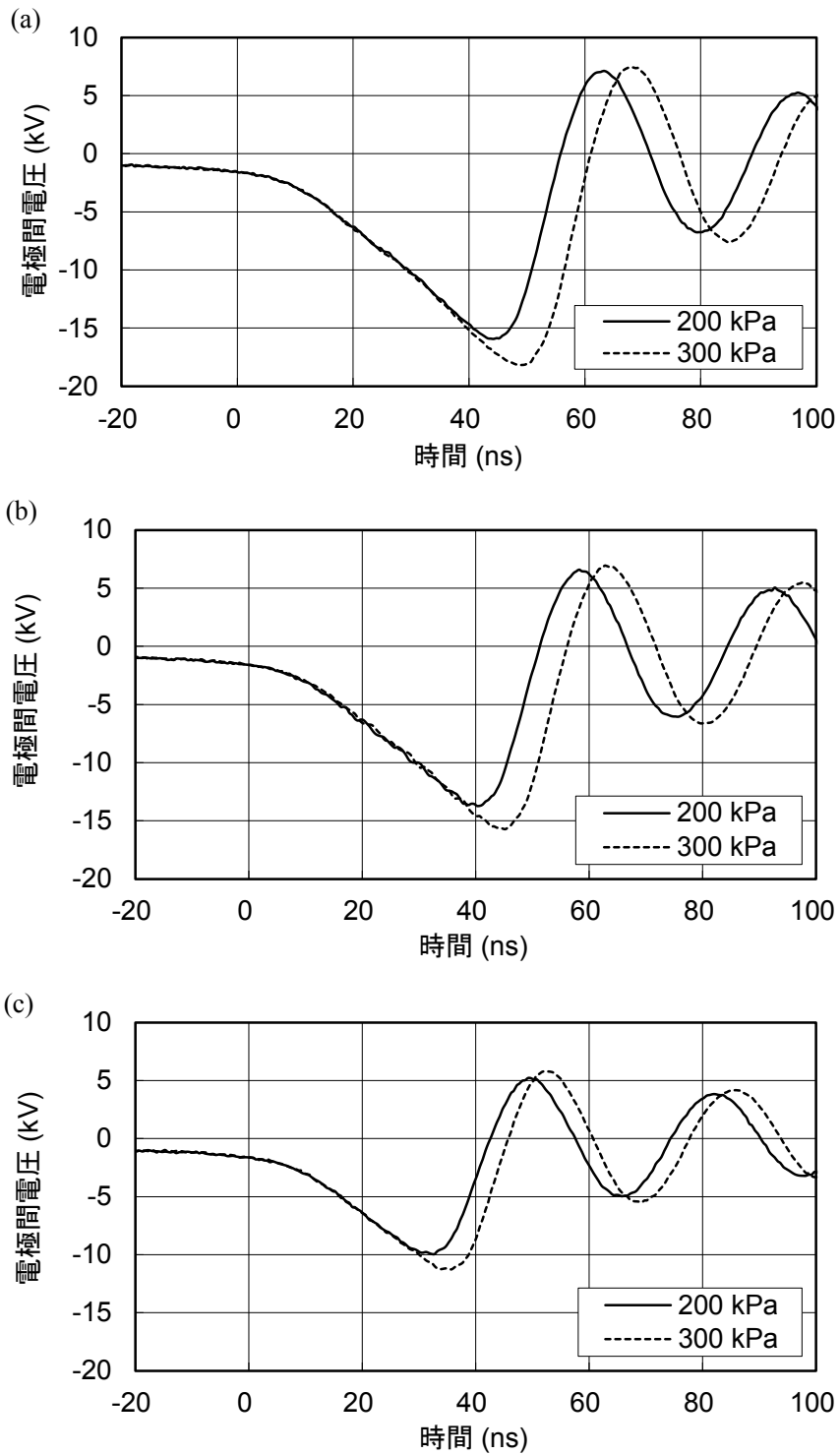


図 4.4 放電開始前後の電極間電圧波形

(a) 電極のギャップ間隔 16 mm、(b) 13 mm、(c) 8 mm

4.3.3 放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔

空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔を次の方法で計測した。ガス流速を意図的に 12–14 m/s まで下げて、4 回連続のパルス放電を発生させ、4 パルス目の放電の様子をマッハツェンダー干渉法で計測した。放電の繰返し周波数を変化させることにより、放電領域の中心と前の放電で生成したガス密度くぼみ領域の中心の間隔を 0.2-0.3 mm 単位で変えた。なお、この計測は、3.5% Ar と 10ppm の Xe を含んだ 96.5% Ne の混合ガスを 200 kPa の圧力まで充填しておこなった。

電極のギャップ間隔が 16 mm のときの、10 回計測した中の典型的な結果を図 4.5 に示す。10 回の測定結果に、ほとんど変化は見られず良い再現性を示した。中心間隔が 5.2 mm のときと 4.9 mm のときは、2 パルス目、3 パルス目の放電により生成したガス密度くぼみ領域の干渉縞は、それぞれの領域の中心に対して対称である。4 パルス目の電極間の干渉縞も放電領域の中心に対して対称である。しかし、中心間隔が 4.6 mm のときと 4.3 mm のときは、2 パルス目、3 パルス目の放電により生成したガス密度くぼみ領域の干渉縞に乱れがあり対称ではない。中心間隔が 4.9 mm のときと 4.6 mm のときの電極間中央の干渉縞を抜き出して図 4.6 に示す（図 4.5 中の矢印の干渉縞）。横軸は、電極幅方向の位置で、0 点は電極幅の中心である。4.9 mm のときの 3 パルス目のガス密度くぼみ領域の干渉縞の最大移動量は 4.8 mm である。4.6 mm のときは 2.8 mm で、4.9mm のときより 42% 小さい。さらに、4.6 mm のときは 2 パルス目と 3 パルス目の間の干渉縞が移動している。したがって、4.6 mm のときの 3 パルス目の放電は、2 パルス目の放電で生成したガス密度くぼみ領域で発生している。これは、ガス密度くぼみ領域は電極間の放電領域より放電開始電圧が低いと考えられる。以上より、空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔は 4.9 mm と判断できる。この最短間隔を、今後は最短間隔 MD とする。

電極のギャップ間隔が 8 mm のときの、10 回計測した中の典型的な結果を

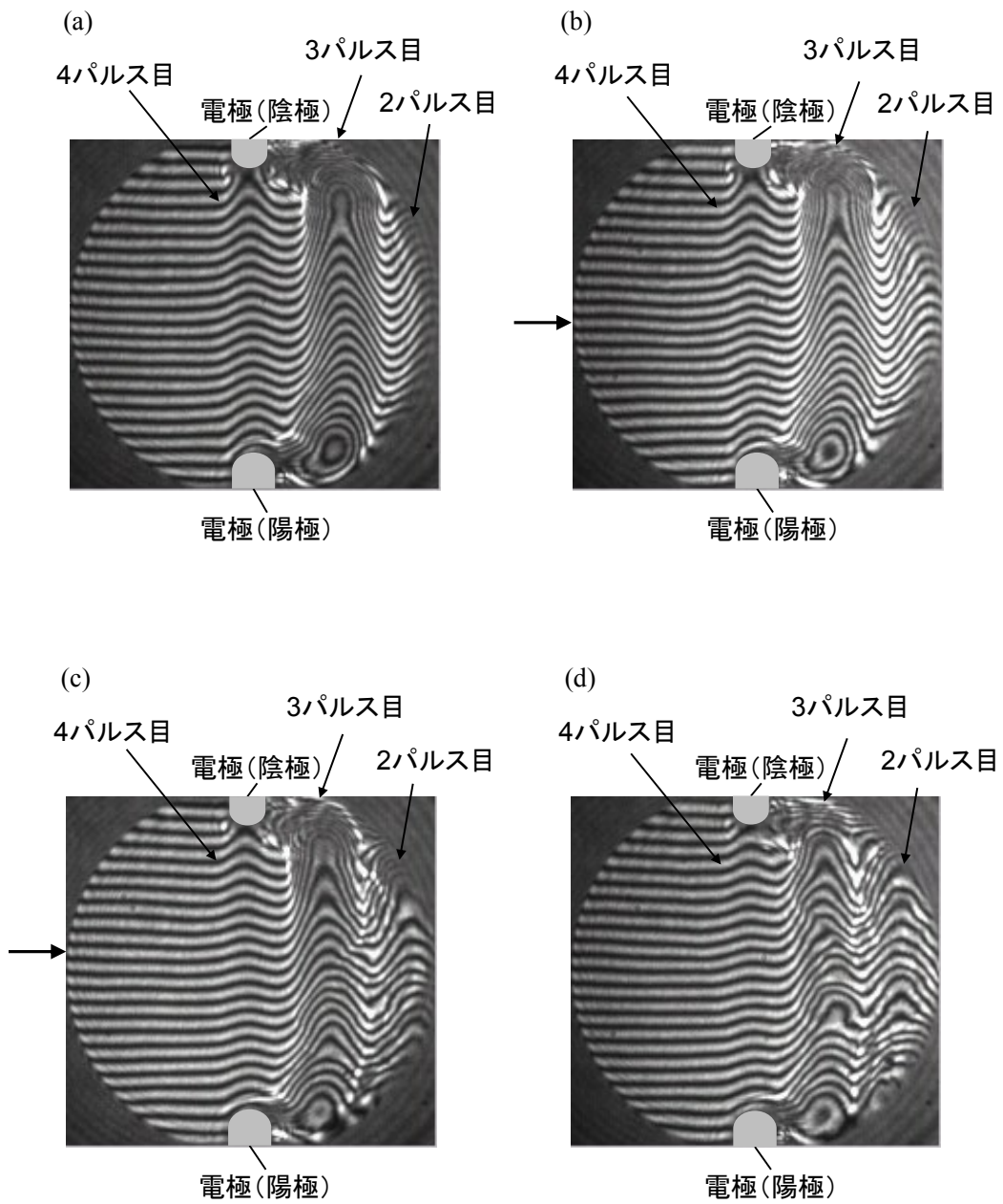


図 4.5 4パルス目の放電開始から 30 ns 後のマッハツェンダー干渉像
 電極のギャップ間隔 16 mm、(a) 放電領域の中心とガス密度くぼみ領
 域の中心の間隔 5.2 mm、(b) 4.9 mm、(c) 4.6 mm、(d) 4.3 mm

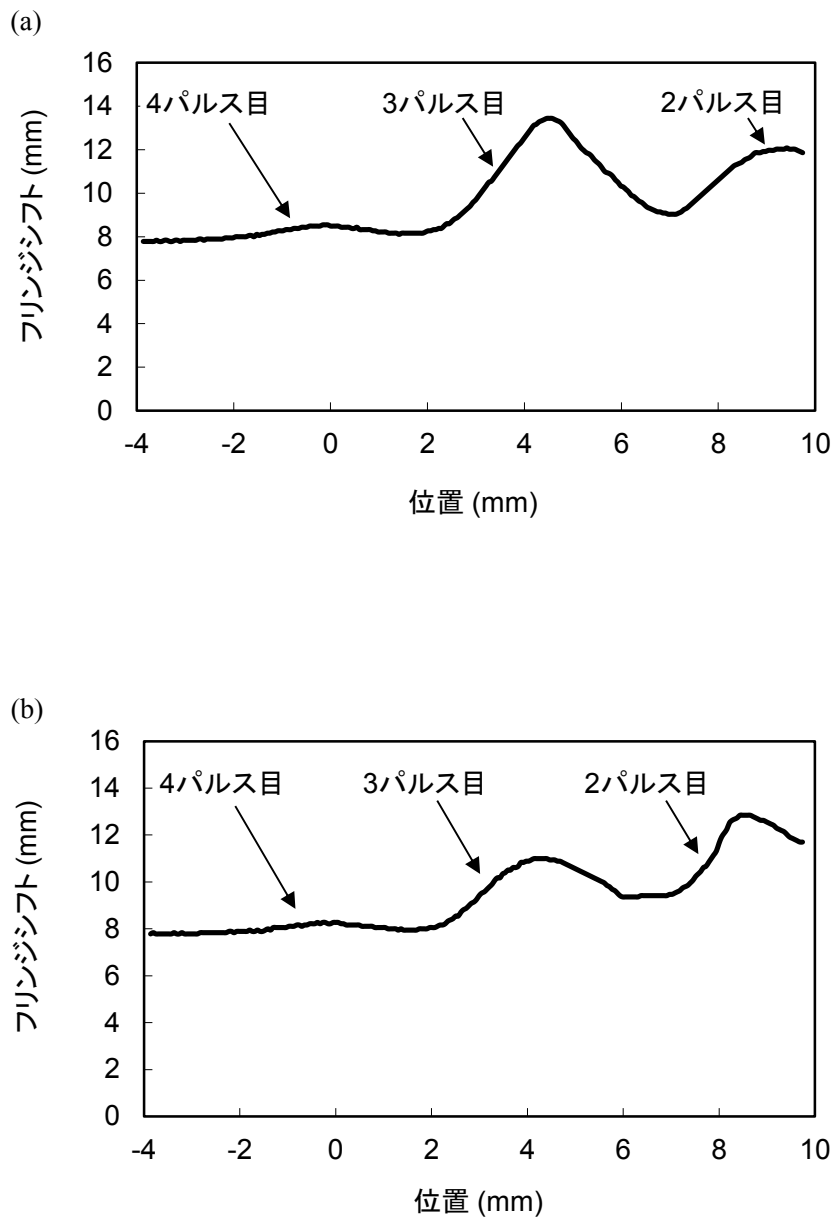


図 4.6 4パルス目の放電から 30 ns 後の電極間中央のフリンジシフト
 電極のギャップ間隔 16 mm、横軸は電極幅方向の位置で 0 点は電極幅の中心
 (a) 放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の間隔 4.9 mm、(b) 4.6 mm

図 4.7 に示す。中心の間隔が 3.8 mm のときと 3.6 mm のときは、2 パルス目、3 パルス目の放電により生成したガス密度くぼみ領域のフリンジシフト及び 4 パルス目の放電時の電子密度によるフリンジシフトは明らかに対称である。中心の間隔が 3.4 mm のときも、2 パルス目、3 パルス目の放電により生成したガス密度くぼみ領域のフリンジシフトは対称である。しかし、4 パルス目の放電時の電子密度によるフリンジシフトは右上がり非対称である。このため、放電はガス密度くぼみ領域に移行しつつある。よって、最短間隔 MD は 3.4 mm と判断できる。

電極のギャップ間隔が 13 mm のときも同様に、放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の間隔を 0.3 mm 単位で変えて最短間隔 MD を計測した。その結果、最短間隔 MD は 4.2 mm であった。

以上より、電極のギャップ間隔が短くなるに従い、最短間隔 MD が狭くなるので、ガス流速を速くすることなく、空間的に均一な放電を形成できる周波数が上がると考えられる。電極のギャップ間隔を標準の 16 mm から 8 mm になると、最短間隔 MD の逆数比より、最大繰返し周波数は 1.4 倍になると予想される。

4.3.4 フッ素を含むガスの放電での最大繰返し周波数

フッ素を含むガスで、電極のギャップ間隔を短くすることにより、空間的に均一な放電を形成できる周波数が増加するか調べた。放電の繰返し周波数を上げていくと、レーザパルス出力エネルギーのばらつきは、ある周波数から悪化する。これは、局所的に集中した不均一な放電が発生し始めるためである。それゆえに、本研究では、レーザパルス出力エネルギーが悪化し始める周波数を、空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数とした。3 つの電極ギャップ間隔のときのとレーザパルス出力エネルギーのばらつき σ (標準偏差) の繰返し周波数特性の計測結果を図 4.8 に示す。レーザパルス出力エネルギーのばらつき σ は、連続した 10,000 パルスのレーザパルス出力エネルギーの、9,001-

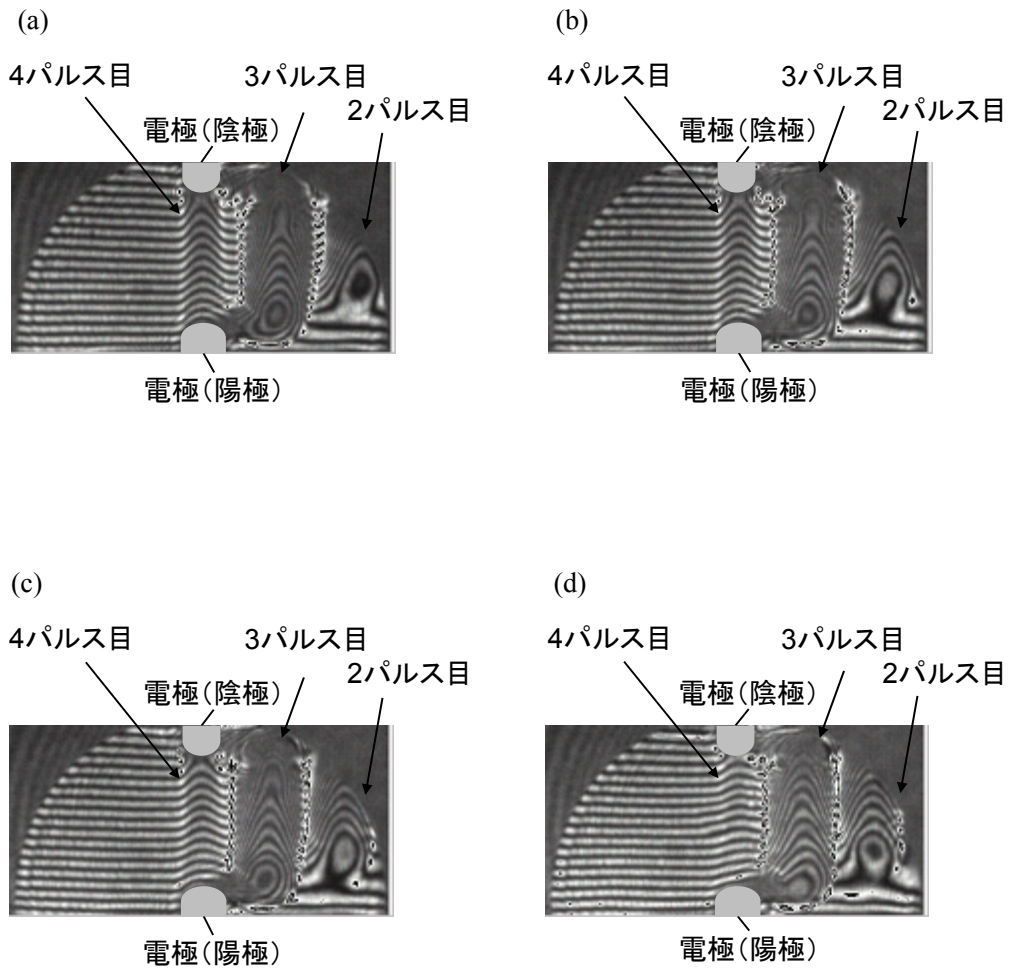


図 4.7 4パルス目の放電から 30 ns 後のマッハツェンダー干渉像
電極のギャップ間隔 16 mm、(a)放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の間隔 3.8 mm、(b) 3.6 mm、(c) 3.4 mm、(d) 3.2 mm

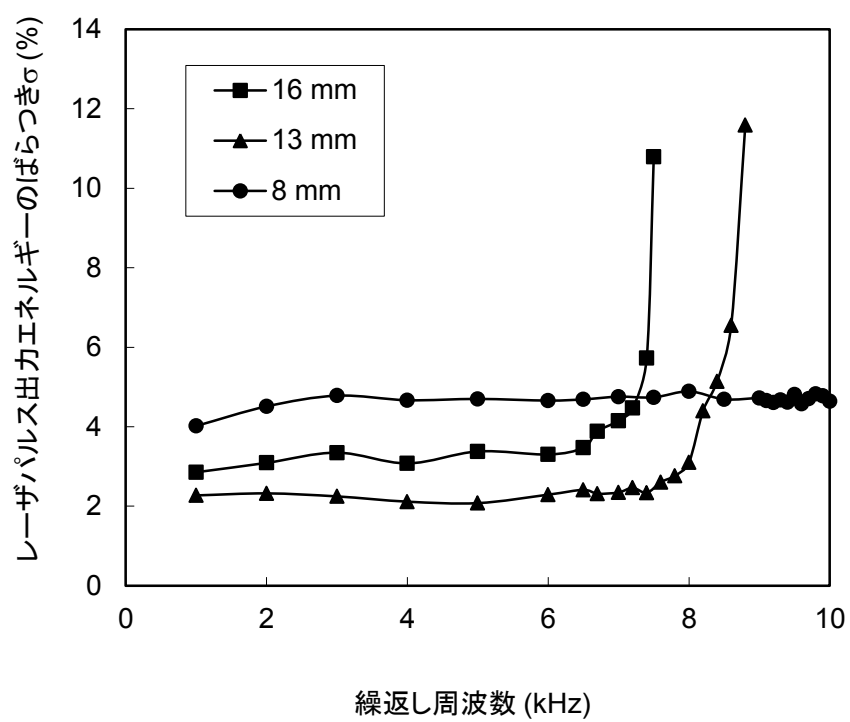


図 4.8 レーザパルス出力エネルギーの繰返し周波数特性

10,000 番目のパルスから算出した。レーザチャンバ内には、3.5% Ar、0.1% F₂ と 10ppm の Xe を含んだ 96.4% Ne の混合ガスを 220 kPa の圧力まで充填した。充電電源等は、10 kHz の繰返し周波数まで動作できるように改造した。ただし、熱対策を実施してないため、動作時間は数秒に限定される。図 4.8 より、電極のギャップ間隔が 16 mm の場合は、7 kHz から急激にレーザパルス出力エネルギーのばらつきが悪くなる。空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数は 7 kHz と判断できる。同様に、電極のギャップ間隔が 13 mm の場合の最大繰返し周波数は、8 kHz と判断できる。電極のギャップ間隔が 8 mm の場合は、10 kHz までレーザパルス出力エネルギーのばらつきの悪化が見られない。最大繰返し周波数は、10 kHz 以上と判断できる。

空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数は、電極のギャップ間隔が短くなるに従い増加した。そして、電極のギャップ間隔を標準の 16 mm から 8 mm にすることにより、放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できた。この場合、最大繰返し周波数は 1.4 倍以上になり、フッ素を含まないガスの放電のときの最短間隔 MD からの予想と同等、またはそれ以上である。

フッ素を含むガスの放電での最短間隔 MD を、最大繰返し周波数とガス流速から算出した。ガス流速は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 53 m/s、13 mm のときは 49 m/s、そして 8 mm のときは 46 m/s で、ギャップ間隔が短くなるに従い遅くなった。この要因は、電極のギャップ間隔が短くなると、電極間の通気抵抗が大きくなるためと考えられる。電極のギャップ間隔が 16 mm のときの最短間隔 MD は 7.6 mm、13 mm のときは 6.1 mm、そして 8 mm のときは 4.6 mm となる。フッ素を含むガスの放電での最短間隔 MD は、フッ素を含まないガスの放電での最短間隔 MD より広くなる。

電極のギャップ間隔が 8 mm で、10 kHz 動作時のレーザパルス出力エネルギーは 2.2 mJ であった。電極のギャップ間隔が標準の 16 mm で、6 kHz 動作時のレーザパルス出力エネルギーは 7 mJ 程度である。したがって、電極ギャップを標準の 16 mm から 8 mm にすると、レーザパルス出力エネルギーは 1/3 になる。

主な要因は、放電断面積の低下と考えられる。電極のギャップ間隔が 8 mm のときの放電断面積は、16 mm のときの約 1/3 である。

本研究で得られた、放電幅と最大電子密度、ガス密度くぼみの幅と最大ガス密度変化、ガス密度くぼみ領域の圧力低下の影響による放電開始電圧の低下、最短間隔 MD、およびフッ素を含むガスで空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数の計測結果を表 4.1 にまとめて示す。

4.4 考察^{68, 75)}

ガス密度くぼみの影響を、放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より考察する。電界強度分布はシミュレーションソフト (Ansoft 製 Maxwell Ver. 6.5.04) を使用して、チャンバ内を真空として計算した。なお、本研究では、残留電荷および予備電離で生成される電荷の影響は無視した。

アノード電極をグランド電位とし、カソード電極に放電開始電圧が印加されたときの、電極間の中心面内の電界強度分布を図 4.9 に示す。横軸は、電極幅方向の位置で、0 点は電極幅の中心である。第二縦軸は、電界強度の最大値が 1.00 になるように規格化した値である。同図内には、以下の 3 つの線も示す。

(1) 規格化した電界強度が 0.98 (最大電界強度より 2%小さい) になる位置を点線で示す。この点線は、ガス密度くぼみ領域の圧力低下の影響を表している。上述 (4.3.2 項) のように、ガス密度くぼみ領域の圧力低下の影響による放電開始電圧の低下は、約 2%と見積もられる。放電開始電圧の低下と電界強度の低下は等価であるので、圧力低下の影響による電界強度の低下も 2%となる。(2) フッ素を含まないガスの放電の場合の、最短間隔 MD のときのガス密度くぼみの位置と電界強度を一点鎖線で示す。(3) フッ素を含むガスの放電の場合の、最短間隔 MD のときのガス密度くぼみの位置と電界強度を二点鎖線で示す。

フッ素を含むガスの放電の場合の、最短間隔 MD のときの電界強度より (図 4.6 の二点鎖線)、ガス密度くぼみ領域の放電開始電圧は、電極間の放電領

表 4.1 計測結果のまとめ

		電極のギャップ間隔 (mm)		
		16	13	8
放電領域				
幅	(mm)	3.5	3.0	2.3
最大電子密度	($\times 10^{21} \text{ m}^{-3}$)	6.4	8.6	9.9
ガス密度くぼみ領域				
幅	(mm)	5.2	4.4	3.7
最大ガス密度変化	($\times 10^{24} \text{ m}^{-3}$)	2.8	3.0	3.3
圧力低下による 放電開始電圧の低下	(%)	1.9	2.0	2.0
最短間隔MD				
フッ素を含まないガスの放電	(mm)	4.9	4.2	3.4
フッ素を含むガスの放電	(mm)	7.6	6.1	4.6
最大繰返し周波数				
フッ素を含むガスの放電	(kHz)	7	8	>10

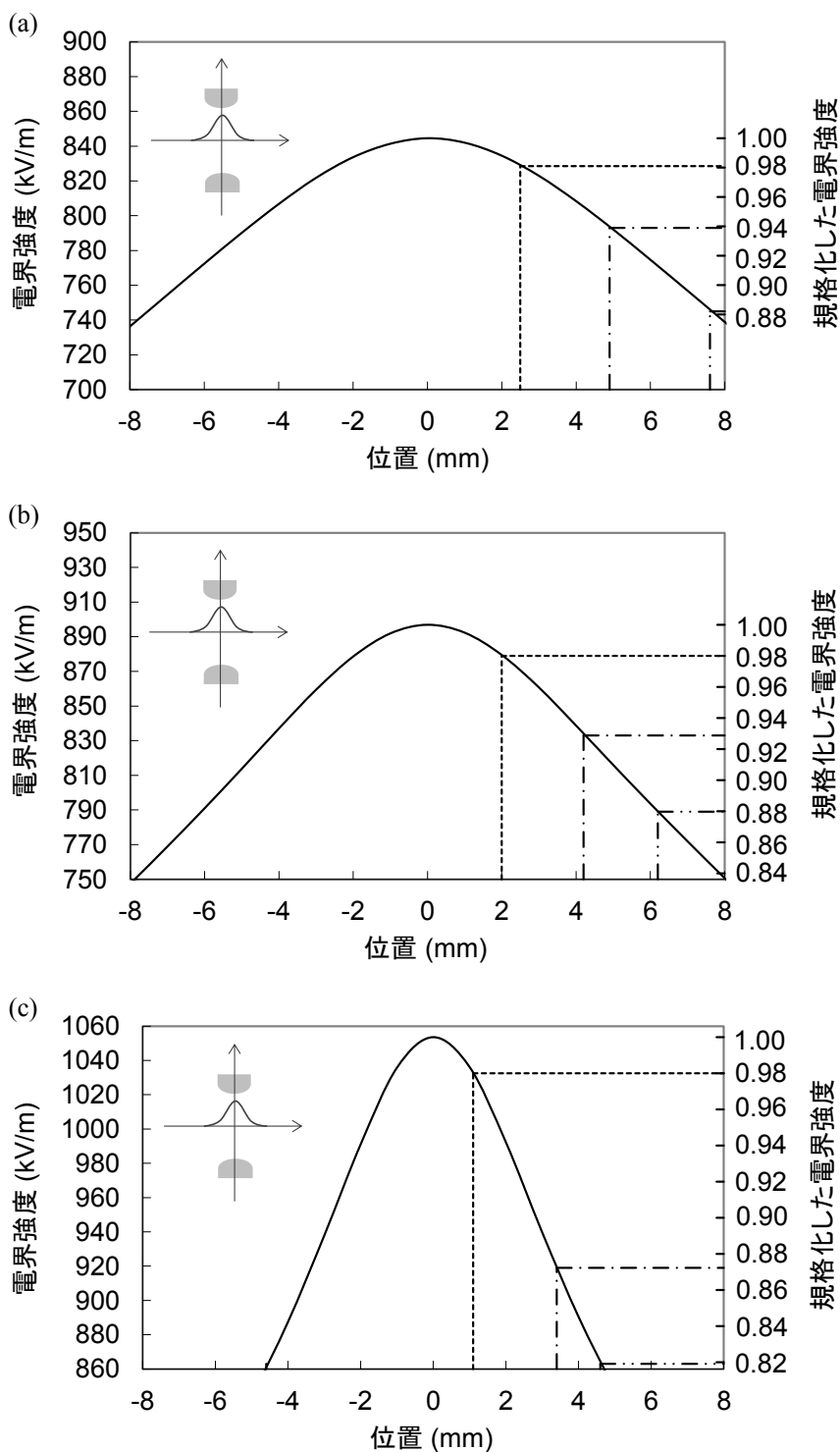


図 4.9 放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布

横軸は電極幅方向の位置で 0 点は電極幅の中心

(a) 電極のギャップ間隔 16 mm、(b) 13 mm、(c) 8 mm

域より、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 11.6%、13 mm のときは 12.0%、そして 8 mm のときは 18.1%低いと考えられる。電極のギャップ間隔が短くなるに従い、ガス密度くぼみ領域の放電開始電圧は低くなる。しかし、上述(4.3.4項)のように、電極のギャップ間隔が短くなるに従い、空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数は増加した。この要因の 1 つは、図 4.9 より、電極ギャップ間隔が短くなるに従い、電極間の電界強度分布が電極幅の中心に集中することである。

点線と一点鎖線との電界強度の差および点線と二点鎖線との電界強度の差は放電生成物等の他の要因の影響である。フッ素を含まないガスの放電の場合の(一点鎖線)、放電生成物等の他の要因の影響による放電開始電圧の低下は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 4.1%、13 mm のときは 5.1%、そして 8 mm のときは 10.8%と見積もられる。フッ素を含むガスの放電の場合は(二点鎖線)、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 9.7%、13 mm のときは 10.0%、そして 8 mm のときは 16.1%と見積もられる。この放電生成物等の他の要因の影響は、圧力低下の 5.0–8.1 倍と大きい。

ここで、放電生成物として、残留電子およびイオンの影響を、フッ素を含まないガスの放電の場合について検討する。再結合による電子またはイオンの密度 n の減少率は、

$$-\frac{dn}{dt} = \alpha n^2 \quad (4.1)$$

で表される。 α は再結合係数である。上式を積分して、 $t = 0$ のときの初期電子または初期イオンの密度を n_0 とすると(4.1)式は、

$$\frac{1}{n_i} = \frac{1}{n_0} + \alpha t \quad (4.2)$$

となる。イオンと電子の再結合反応は、(1) 放射再結合、(2) 二重電子再結合、(3) 解離再結合、(4) 三体再結合の 4 つに分類される。放電開始後、これらの再

結合反応がどのような割合ですすむかは明確になっていない。そこで、残留電荷の見積もりには、係数の大きいアルゴン (Ar) の解離再結合係数: $10^{-12} \text{ m}^3\text{s}^{-1}$ を用いる⁷⁷⁾。初期電子および初期イオンの密度 n_0 は、計測した電極間中央の最大電子密度: 10^{22} m^{-3} と仮定する。放電開始から数百 μs 後の残留電子および残留イオンの密度は、(4.2) 式より、 10^{15} m^{-3} のオーダーと見積もられる。この見積もり結果は、XeClエキシマレーザにおける Xe_2^+ および Cl^- の 250 μs 後の残留密度: 10^{15} m^{-3} と同じオーダーである⁷⁸⁾。一方、予備電離により生成される電子の密度は、 10^{14} - 10^{16} m^{-3} である^{79, 80)}。見積もった残留電荷の密度は、予備電離により生成される電子密度とほぼ同じである。したがって、放電間隔が数百 μs の場合は、ガス密度くぼみ領域の残留電荷は、次の放電に影響すると考えられる。フッ素を含むガスの放電の場合の放電生成物等の他の要因の影響は、フッ素ガスを含まないガスの放電の場合より大きい。この要因の1つは、残留電荷密度の違いである。フッ素を含むガスの放電の場合の最短間隔MDのときの放電間隔は 100–143 μs で、フッ素ガスを含まないガスの放電の場合は 278–357 μs と短い。このため、フッ素を含むガスの放電の場合の残留電荷密度は、フッ素ガスを含まないガスの放電の場合の残留電荷密度より大きい。別の要因として、寿命の長いフッ素の負イオン⁶¹⁾の影響の可能性も考えられる。

本研究では、電極のギャップ間隔が 8 mm のときに、ArF エキシマレーザで 10 kHz の繰返し周波数まで空間的に均一な放電を形成できた。しかし、そのときのレーザパルス出力エネルギーは 2.2 mJ と小さかった。したがって、半導体露光装置用の光源として使用するには、レーザパルス出力エネルギーを上げる必要がある (たとえば 10 mJ)。つまり、電極のギャップ間隔を短くして高繰返し動作を実現する場合は、レーザパルス出力エネルギーの増大化が重要な課題である。

4.5 まとめ

放電励起 ArF エキシマレーザにおいて 10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を、ガス流速を速くすることなく実現するために、フッ素を含まないガスの放電で、電極のギャップ間隔と、空間的に均一な放電を形成するために必要な放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔との関係を、狭帯域色素レーザを用いたマッハツェンダー干渉法による計測システムで調べた。つぎに、放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、電極のギャップ間隔を短くして、空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数を、10 kHz の繰返し周波数まで放電できるように充電電源等を改造して調べた。さらに、ガス密度くぼみの影響を、放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より検討した。以下に得られた結果をまとめて示す。

- (1) 放電幅は、フッ素を含まないガスの放電で、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 3.5 mm、13 mm のときは 3.0 mm、そして 8 mm のときは 2.3 mm であった。ガス密度くぼみの幅は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 5.2 mm、13 mm のときは 4.4 mm、そして 8 mm のときは 3.7 mm であった。電極のギャップ間隔が短くなるに従い、放電幅とガス密度くぼみの幅はともに狭くなることを示した。
- (2) 空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔は、フッ素を含まないガスの放電で、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 4.9 mm、13 mm のときは 4.2 mm、そして 8 mm のときは 3.4 mm であった。電極のギャップ間隔が短くなるに従い、最短間隔は狭くなることを示した。
- (3) 放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 7 kHz、13 mm のときは 8 kHz、そして 8 mm のときは 10 kHz 以上であった。放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、電極のギャップ間隔を 8 mm にすることにより、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できることを示した。

- (4) 放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、電極のギャップ間隔が短くなるに従い、最大繰返し周波数が増加した要因として、放電幅が狭くなることと、放電開始時の電極間の電界強度分布が電極幅の中心に集中することを示した。
- (5) 電極のギャップ間隔を 8 mm にして、10 kHz 動作したときのレーザパルス出力エネルギーは 2.2 mJ で、標準の電極ギャップ間隔 (16 mm) のときの 1/3 に低下した。電極のギャップ間隔を短くして高繰返し動作を達成する場合は、レーザパルス出力エネルギーの増大化が重要な課題であることを示した。
- (6) ガス密度くぼみ領域の圧力低下は、フッ素を含まないガスの放電で、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 13.0 kPa、13 mm のときは 13.9 kPa、そして 8 mm のときは 15.5 kPa であった。電極のギャップ間隔が短くなるに従い、ガス密度くぼみ領域の圧力低下は大きくなることを示した。
- (7) ガス密度くぼみの影響を、圧力低下の影響と放電生成物等の他の要因に影響の 2 つに分けて見積もった。その結果、フッ素を含むガスの放電の場合の、圧力低下の影響による放電開始電圧の低下は、電極のギャップ間隔に関係なく約 2% で、放電生成物等の他の要因の影響による放電開始電圧の低下は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 9.7%、13 mm のときは 10.0%、そして 8 mm のときは 16.1% であった。放電生成物等の他の要因の影響は、圧力低下の影響の 5.0-8.1 倍と大きいことを示した。
- (8) ガス密度くぼみ領域に存在する電荷 (電子とイオン) の、放電開始から数百 μs 後の残留密度を見積もった結果、予備電離により生成される電子の密度とほぼ同じであった。ガス粒子くぼみ領域の残留電荷は、次の放電に影響すると考えられる。

第 5 章 総括

5.1 本研究の成果

本研究は、放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件を明らかにすることを目的とした。このために、詳細な音響波の計測をもとに 6 kHz の繰返し周波数までスペクトル幅の広がりのないレーザチャンバを開発した。さらに、放電位置に対するガス密度くぼみの空間的位置関係を高い分解能で計測可能な、狭帯域色素レーザを用いたマッハツェンダー干渉法による計測システムを構築した。そして、電極のギャップ間隔を短くして、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件を調べた。さらに、放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より、ガス密度くぼみの影響を検討した。以下に本研究で得られた結果を要約して示す。

1. 放電励起 ArF エキシマレーザにおいて 10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を、ガス流速を速くすることなく実現するために、電極のギャップ間隔と、空間的に均一な放電を形成するために必要な放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔との関係を、狭帯域色素レーザを用いたマッハツェンダー干渉法によるシステムで調べた。なお、計測は、放電領域への投入エネルギーが 2.1 J という放電条件下において、3.5% Ar と 10ppm の Xe を含んだ 96.5% Ne の混合ガスを 200 kPa の圧力まで充填しておこなった。以下に得られた結果を示す。

(1) 放電幅は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 3.5 mm、13 mm のときは 3.0 mm、そして 8 mm のときは 2.3 mm であることを示した。ガス

密度くぼみの幅は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 5.2 mm、13 mm のときは 4.4 mm、そして 8 mm のときは 3.7 mm であることを示した。放電幅とガス密度くぼみの幅は、ともに電極のギャップ間隔が短くなるに従い狭くなることを確認した。

- (2) 空間的に均一な放電を形成するために必要な、放電領域の中心とガス密度くぼみ領域の中心の最短間隔は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 4.9 mm、13 mm のときは 4.2 mm、そして 8 mm のときは 3.4 mm であることを示した。最短間隔は、電極のギャップ間隔が短くなるに従い狭くなることを確認した。

2. 放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、電極のギャップ間隔を短くして、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できる条件を調べた。なお、計測は、放電領域への投入エネルギーが 2.1 J という放電条件下において、3.5% Ar、0.1% F₂ と 10ppm の Xe を含んだ 96.5% Ne の混合ガスを 220 kPa の圧力まで充填しておこなった。以下に得られた結果を示す。

- (1) 空間的に均一な放電を形成できる最大繰返し周波数は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 7 kHz、13 mm のときは 8 kHz、そして 8 mm のときは 10 kHz 以上であることを示した。電極のギャップ間隔を 8 mm にすることにより、放電励起 ArF エキシマレーザにおいて、10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を形成できることを明らかにした。
- (2) 電極のギャップ間隔が短くなるに従い、最大繰返し周波数が増加する要因として、放電幅が狭くなることと、電極間の電界強度分布が電極幅の中心に集中することを示した。
- (3) 電極のギャップ間隔を 8 mm にして、10 kHz 動作したときのレーザパルス出力エネルギーは 2.2 mJ で、標準の電極ギャップ (16 mm) のときの 1/3 に低下することを示した。レーザパルス出力エネルギーの増大化

が重要な課題であることを明らかにした。

3. ガス密度くぼみの影響を放電開始時の電極間の中心面内の電界強度分布より検討した。以下に得られた結果を示す。

(1) ガス密度くぼみの影響を、圧力低下の影響と放電生成物等の他要因の影響の2つに分けて見積もった。その結果、フッ素を含むガスの放電の場合の、圧力低下の影響による放電開始電圧の低下は、電極のギャップ間隔に関係なく約 2%で、放電生成物等の他の要因の影響は、電極のギャップ間隔が 16 mm のときは 9.7%、13 mm のときは 10.0%、そして 8 mm のときは 16.1%であった。放電生成物等の他の要因の影響は、圧力低下の影響の 5.0-8.1 倍と大きいことを確認した。

(2) ガス密度くぼみ領域に存在する電荷（電子とイオン）の、放電開始から数百 μs 後の残留密度を見積もった結果、予備電離により生成される電子の密度とほぼ同じであった。ガス粒子くぼみ領域の残留電荷は、次の放電に影響すると推定される。

5.2 今後の展望

放電励起 ArF エキシマレーザの 10 kHz 動作のために、今後は、レーザパルス出力エネルギーを増大化する必要がある。このレーザパルス出力エネルギーの増大化に有効な手段は、高出力 ArF エキシマレーザで採用されているツインチャンバ方式である。ツインチャンバ方式で実用化されている方式は、注入同期^{47, 48)}と MOPA (Master Oscillator Power Amplifier)⁸¹⁾の2つである。両方式とも、発振段レーザ（第1のチャンバ）から増幅段（第2のチャンバ）に、スペクトル幅が狭く、エネルギーの小さいレーザ光を注入する。そして増幅段で、レーザ光を増幅する。この増幅段は、それぞれの方式で違いがあり、注入同期

の増幅段は、レーザ共振器を有しているが、MOPA の増幅段はレーザ共振器を有していない。発振段レーザは、レーザパルス出力エネルギーが小さいので、本研究で提示した方策が適用できる。さらに、放電幅が狭くなることから、スペクトル幅を狭帯域化するとき、スリットでカットされるレーザ光が低減し、レーザパルス出力エネルギーの低下を抑制することができる。増幅段は、レーザパルス出力エネルギーが大きいため、レーザ光のサイズが小さくなると、エネルギー密度が現状以上に高くなり、光学素子の損傷が大きくなる。このため、本研究で提示した方策は、増幅段には適用できない。レーザ光のサイズを維持して 10 kHz 動作を実現する方法として、増幅段のチャンバを 2 台にする構成がある⁸²⁾。増幅段のそれぞれのチャンバを 5 kHz で交互に動作させることにより、増幅段もレーザ光のサイズを維持して 10 kHz 動作が可能となる。このようなシステムで、放電励起 ArF エキシマレーザの 10 kHz 動作が可能になると考えられる。

本研究で提示した、放電励起 ArF エキシマレーザにおいて 10 kHz の繰返し周波数で空間的に均一な放電を、ガス流速を速くすることなく実現する方策は、レーザ出力の向上のみならず、光学素子のダメージ抑制に結びつく有益な指針となるものである。EUV 露光技術の開発が遅れていることから、現行の露光技術を延命する必要があり、本研究の技術成果が、ArF エキシマレーザを用いた露光の延命に活用されることが期待される。

参考文献

- 1) N. G. Basov: "Opening Remarks: Fourth International Quantum Electronics Conference" IEEE J. Quantum Electron. **2** (1966) 354.
- 2) D. Basting and G. Marowsky: *Excimer Laser Technology* (Springer, Berlin Heidelberg New York, 2004) p.90.
- 3) 今田剛、増田渉、八井浄:「高気圧パルスグロー放電に及ぼす気体密度くぼみの影響」電気学会論文誌 A **118** (1998) 1139.
- 4) S.Kosugi, K. Maeno, and H. Honma: "Measurement of Gas Temperature Profile in Discharge Region of Excimer Laser with LaserSchlieren Method" Jpn. J. Appl. Phys. **32** (1993) 4980.
- 5) 石井彰、安岡康一、丹羽景子、坂野美菜、玉川徹、大島巖:「4kHz 動作 XeCl エキシマレーザの放電安定性と Xe 分圧の関係」電気学会論文誌 A **115** (1995) 24.
- 6) M. L. Sentis, P. Delaporte, B. M. Forestier, and B. L. Fontaine: "Design and Characteristics of High Pulse Repetition Rate and High Average Power Excimer" IEEE J. Quantum Electron **27** (1991) 2332.
- 7) 井河博、曾田征宏、上代良文、今田剛、升方勝己、増田彩渉、八井浄:「高繰返し放電励起エキシマレーザのガス攪乱計測」電気学会放電研究会資料 **ED-94-6** (1994) 45.
- 8) 張伯羊、吉岡健司、行村健:「エキシマレーザ放電中の衝撃波やアークに伴う流体力学的現象」電気学会プラズマ研究会資料 **EP-97-65** (1997) 19.
- 9) N. G. Basov, V. A. Danilychev, Y. M. Popov, and D. D. Khodkevich: "Laser operating in the vacuum region of the spectrum by excitation of liquid xenon with an electron beam" JETP Lett. **12** (1970) 329.
- 10) S. K. Searles and G. A. Hart: "Stimulated emission at 281.8 nm from XeBr" Appl. Phys. Lett. **27** (1975) 243.
- 11) R. Burnham, N. W. Harris, and N. Djeu: "Xenon fluoride laser excitation by

- transverse electric discharge” Appl. Phys. Lett. **28** (1976) 86.
- 12) 前田三男: エキシマーレーザー (学会出版センター, 1993).
 - 13) A. J. Palmer: “A physical model on the initiation of atmospheric-pressure glow discharge” Appl. Phys. Lett. **25** (1974) 138.
 - 14) J. I. Levatter and S. C. Lin: “Necessary conditions for the homogeneous formation of pulsed avalanche discharge at high gas pressures” J. Appl. Phys. **51** (1980) 210.
 - 15) 前田三男 : 「エキシマ光源の原理」 レーザー研究 **23** (1995) 1027.
 - 16) A. Mandl: “Electron Photodetachment Cross Section of the Negative Ion of Fluorine” Phys. Rev. A **3** (1971) 251.
 - 17) D. E. Rothe: “Radiative Capture of Electrons by Chlorine, Bromine, and Iodine Atoms” Phys. Rev. **177** (1969) 93.
 - 18) W. R. Wadt: “The electronic states of Ne_2^+ , Ar_2^+ , Kr_2^+ , and Xe_2^+ . II. Absorption cross sections for the $1(1/2)_u \rightarrow 1(3/2)_g$, $1(1/2)_g$, $2(1/2)_g$ transitions” J. Chem. Phys. **72** (1980) 3915.
 - 19) R. Burnham and N. Djeu: “Ultraviolet-preionized discharge-pumped lasers in XeF, KrF, and ArF”, Appl. Phys. Lett. **29** (1976) 707.
 - 20) T. Y. Chang: “Improved Uniform-Field Electrode Profiles for TEA Laser and High - Voltage Applications” Rev. Sci. Instrum. **44** (1973) 405.
 - 21) G. J. Ernst: “UNIFORM-FIELD ELECTRODES WITH MINIMUM WIDTH” Opt. Commun. **49** (1984) 275.
 - 22) G. S. Dzakowic and S. A. Wutzke: “High-pulse-rate glow-discharge stabilization by gas flow” J. Appl. Phys. **44** (1973) 5061.
 - 23) A. Sumitani, T. Ishihara, T. Fukuoka, and K. Uchino: “Elucidation of a Step-Like Output Energy Decrease Observed in an ArF Excimer Laser for Microlithography” Jpn. J. Appl. Phys. **46** (2007) 2921.
 - 24) H. Mizoguchi, N. Ito, H. Nakarai, Y. Kobayashi, Y. Itakura, H. Komori, O. Wakabayashi, T. Aruga, T. Sakugawa, and T. Koganezawa: “High Power KrF

- Excimer Laser with a Solid State Switch for Microlithography" Proc. SPIE **2726** (1996) 831.
- 25) K. Kakizaki, Y. Sasaki, and T. Inoue: "High-repetition-rate (6 kHz) and long-pulse-duration (50 ns) ArF excimer laser for sub-65 nm lithography" Rev. Sci. Instrum. **77** (2006) 035109-1.
 - 26) I. Smilanski, S. R. Byron, and T. R. Burkes: "Electrical excitation of an XeCl laser using magnetic pulse compression" Appl. Phys. Lett. **40** (1982) 547.
 - 27) T. Shimada, M. Obara, and A. Noguchi: "An all solid-state magnetic switching excter for pumping excimer lasers" Rev. Sci. Instrum. **56** (1985) 2018.
 - 28) R. Marchetti and E. Penco: "A new type of corona-discharge photoionization source for gas lasers" J. Appl. Phys. **56** (1984) 3163.
 - 29) G. M. Jursich, W .A. Von Drasek, R. K. Brimacombe, and J. Reid: "Gas contaminant effects in discharge-excited KrF lasers", Appl. Opt. **31** (1992) 1975.
 - 30) T. Saito and S. Ito: "Gas contaminant effect in a discharge-excited ArF excimer laser", Appl. Phys. B **66** (1998) 579.
 - 31) 住谷明、石原孝信、内野喜一郎 :「微量ガス制御によるリソグラフィ用 ArF エキシマレーザーの高性能化」 レーザー研究 **33** (2005) 262.
 - 32) O. Wakabayashi, T. Enami, T. Ohta, H. Tanaka, H. Kubo, T. Suzuki, K. Terashima, A. Sumitani, and H. Mioguchi: "Billion level durable ArF excimer laser with highly stable energy", Proc. SPIE **3679** (1999) 1058.
 - 33) N. Miki, M. Maeno, K. Maruhashi, Y. Nakagawa, and T. Ohmi: "Fluorine passivation of metal surface for self-cleaning semiconductor equipment", Proc. IEEE Transaction on Semiconductor Manufacturing **3** (1990) 1.
 - 34) N. Kataoka, M. Itagaki, K. Uchino, K. Muraoka, A. Takahashi, T. Okada, M. Maeda, T. Hori, K. Terashima, A. Sumitani, T. Enami, and H. Mizoguchi: "Performance Improvement of a Discharge-Pumped ArF Excimer Laser by Xenon Gas Addition" Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) 6735.

- 35) 岡崎信次、鈴木章義、上野巧：はじめての半導体リソグラフィ技術（工業調査会, 2003).
- 36) D. A. Markle: "A new projection printer" *Solid State Technology* **17** (1974) 50.
- 37) M. J. Buzawa and A. R. phollips: "Ultraviolet Objectives For Submicron Photolithography" *Proc. SPIE* **135** (1978) 77.
- 38) J. D. Buckley, D. N. Galburt, and C. Karatzas: "Step and Scan Lithography Using Reduction Optics" *J. Vac. Sci. Technol. B* **7** (1989) 1607.
- 39) M. Born and E. Wolf: *Principle of Optics* (Pergamon Press, Oxford, 1980) 6th ed.
- 40) S. Owa and H. Nagasaka: "Immersion lithography; its potential performance and issues", *Proc. SPIE* **5040** (2003) 724.
- 41) S. Owa, H. Nagasaka, K. Nakano, and Y. Ohmura: "Current status and future prospect of immersion lithography" *Proc. SPIE* **6154** (2006) 615408-1.
- 42) V. Wiaux, J. Bekaert, E. Hendrickx, S. Vehaegen, G. Vandenberghe, S. Locorotondo, S. Beckx, J. Finders, and M. Dusa: "193nm immersion lithography towards 32nm hp using double patterning" *Digest of Abstract of 3rd International Symposium on Immersion Lithography* (2006) 26.
- 43) 岡崎信次：「光リソグラフィ技術の限界と極端紫外リソグラフィ」*光学* **41** (2012) 116.
- 44) ITRS 2011 Edition lithography pp. 14-15, Figure LITH3A and Figure LITH3B.
- 45) C. Noelscher, M. Heller, B. Habets, M. Markert, U. Scheler, and P. Moll: "Double line shrink lithography at $k_l=0.16$ " *Microelectronic Eng.* **83** (2006) 730.
- 46) ギガフォトン株式会社ホームページ URL; <http://www.gigaphoton.com/>.
- 47) O. Wakabayashi, T. Ariga, T. Kumazaki, K. Sasano, T. Watanabe, T. Yabu, T. Hori, K. Kakizaki, A. Sumitani, and H. Mioguchi: "Beam quality of a new-type MOPO laser system for VUV laser lithography", *Proc. SPIE* **5377** (2004) 1772.
- 48) K. Kakizaki, J. Fujimoto, T. Yamazaki, T. Suzuki, T. Matsunaga, Y. Kawasuji, Y. Watanabe, M. Kaminishi, T. Inoue, and H. Mizoguchi: "Development of high-

- power ArF/F₂ laser platform for VUV microlithography", Proc. SPIE **5377** (2004) 1805.
- 49) S. Tanaka, H. Tsushima, T. Nakaike, T. Yamazaki, T. Saito, H. Tomaru, K. Kakizaki, T. Matsunaga, T. Suzuki, O. Wakabayashi, S. Nagai, J. Fujimoto, T. Inoue, and H. Mizoguchi: "GT40A: durable 45-W ArF injection-lock laser light source for dry/immersion lithography", Proc. SPIE **6154** (2006) 61542O-1.
- 50) T. Hori, T. Yabu, T. Ishihara, T. Watanabe, O. Wakabayashi, A. Sumitani, K. Kakizaki, and H. Mizoguchi: "Feasibility study of 6 kHz ArF excimer laser for 193 nm immersion lithography", Proc. SPIE **5754** (2005) 1285.
- 51) H. Watanabe, S. Komae, S. Tanaka, R. Nohdomi, T. Yamazaki, H. Nakarai, J. Fujimoto, T. Matsunaga, T. Saito, K. Kakizaki, and H. Mizoguchi: "Reliable high- power injection locked 6kHz 60W laser for immersion lithography", Proc. SPIE **6520** (2007) 652031-1.
- 52) M. Yoshino, H. Nakarai, T. Ohta, H. Nagano, H. Umeda, Y. Kawasuji, T. Abe, R. Nohdomi, T. Suzuki, S. Tanaka, Y. Watanabe, T. Yamazaki, O. Wakabayashi, T. Matsunaga, K. Kakizaki, J. Fujimoto, and H. Mizoguchi: "High- power and high-energy stability injection lock laser light source for double exposure or double patterning ArF immersion lithography", Proc. SPIE **6924** (2008) 69242S-1.
- 53) H. Umeda, H. Tsushima, H. Watanabe, S. Tanaka, M. Yoshino, S. Matsumoto, H. Tanaka, A. Kurosu, Y. Kawasuji, T. Matsunaga, J. Fujimoto, and H. Mizoguchi: "Ecology and high-durability injection locked laser with flexible power for double-patterning ArF immersion lithography", Proc. SPIE **7973** (2011) 79731K-1.
- 54) A. Kurosu, M. Nakano, M. Yashiro, M. Yoshino, H. Tsushima, H. Masuda, T. Kumazaki, S. Matsumoto, K. Kakizaki, T. Matsunaga, S. Okazaki, J. Fujimoto, and H. Mizoguchi: "A reliable higher power ArF laser with advanced functionality for immersion lithography", Proc. SPIE **8326** (2012) 83261F-1.

- 55) T. W. H. Hänsch: "Repetitively Pulsed Tunable Dye Laser for High Resolution Spectroscopy" *Appl. Opt.* **11** (1972) 895.
- 56) I. Shoshan, N. N. Danon, and U. P. Oppenheim: "Narrowband operation of a pulsed dye laser without intracavity beam expansion" *J. Appl. Phys.* **48** (1977) 4495.
- 57) T. J. McKee: "Spectral-narrowing techniques for excimer laser oscillators" *Can. J. Phys.* **63** (1985) 214.
- 58) T. J. Pacala, I. S. McDermid, and J. B. Laudenslager: "Single longitudinal mode operation of an XeCl laser" *Appl. Phys. Lett.* **45** (1984) 507.
- 59) 若林理:「リソグラフィー用レーザのスペクトル評価に関する研究」学位論文、九州大学 (2003).
- 60) 永井伸治、柿崎弘司、堀司、田中智史:「エキシマレーザ装置」特開 2008-42072 (2006).
- 61) M. R. Osborne and J. M. Green: "Negative ion assisted preionization for excimer lasers" *J. Appl. Phys.* **71** (1992) 3127.
- 62) R. V. Arutyunyan, V. M. Borisov, A. Yu. Vinokhodov, Yu. B. Kiryukhin, and A. N. Morozov: "Electrode effects in a pulse-periodic excimer laser" *Sov. J. Quantum Electron.* **16** (1986) 1589.
- 63) T. Saito, T. Suzuki, M. Yoshino, O. Wakabayashi, T. Matsunaga, J. Fujimoto, K. Kakizaki, T. Yamazaki, T. Inoue, K. Terashima, T. Enami, H. Inoue, A. Sumitani, H. Tomaru, and H. Mizoguchi: "Ultra line-narrowed ArF excimer laser G42A for sub-90-nm lithography generation" *Proc. SPIE* **5040** (2003) 1704.
- 64) R. Turner: "The glow-to-arc transition in a pulsed high-pressure gas discharge" *J. Appl. Phys.* **52** (1981) 681.
- 65) R. Dreiskemper and W. Botticher: "Current Filamentation of Strongly Preionized High Pressure Glow Discharge in Ne/Xe/Hcl Mixtures" *IEEE Trans. Plasma Sci.* **23** (1995) 987.
- 66) H. Mizoguchi, K. Kakizaki, T. Saito, and N. Kataoka: "Pulse oscillating gas

- laser device” U. S. Patent 6639929 (2003).
- 67) 柿崎弘司、佐々木陽一、片岡直樹：「パルス発振型放電励起レーザ装置」特開 2003-298155 (2002).
- 68) 石原孝信、堀司、柿崎弘司、内野喜一郎：「半導体露光装置用 ArF エキシマレーザの高繰返しグロー放電に及ぼす放電幅とガス密度くぼみの影響」電気学会論文誌 A **130** (2010) 1060.
- 69) 流れの可視化学会：流れの可視化ハンドブック新版（朝倉書店、1986）.
- 70) A. J. Alock and S. A. Ramsden: “Two Wavelength Interferometry of a Laser-Induced Spark in Air” Appl. Phys. Lett. **8** (1966) 187.
- 71) S. Nagai, H. Furuhashi, A. Kono, Y. Uchida, and T. Goto: “Measurement of Temporal Behavior of Electron Density in a Discharge-Pumped ArF Excimer Laser” IEEE J. Quantum Electron **34** (1998) 942.
- 72) S. Choroba and W. Botticher: “Interferometric Measurement of Two-Dimensional Xe* and Electron Density Distributions in XeCl Laser Discharges” Appl. Phys. B **51** (1990) 379.
- 73) 生井武文、松尾一泰：圧縮性気体の力学（理工学社、1989）p.172.
- 74) 藪隆之、渡邊隆之、堀司、柿崎弘司：「放電励起式パルス発振ガスレーザ装置」特許第4845094号（2005）.
- 75) T. Ishihara, T. Hori, K. Kakizaki, and K. Uchino: “ArF Excimer Laser operated at 10 kHz with Small Electrode Separations” Rev. Laser Eng. **41** (2013) 517.
- 76) 斉藤善夫、佐藤行雄、殖栗成夫：「KrF エキシマガスにおける放電開始特性の定量化」電気学会論文誌 A **115** (1995) 1180.
- 77) T.G. Beuthe and J. S. Chang: “Chemical Kinetic Modelling of Non-Equilibrium Ar-H₂ Thermal Plasmas” Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) 4576.
- 78) 高木茂行、柿崎弘司、岡本昇、佐藤三郎、後藤達美：「高繰返しエキシマレーザの開発（Ⅱ）－Xe 分圧低減による 4 kHz、200 W 動作－」レーザー研究 **21** (1993) 566.

- 79) S. Takagi, S. Sato, and T. Goto: "Electron Density Measurements in UV-Preionized XeCl and CO₂ Laser Gas Mixtures" *Jpn. J. Appl. Phys.* **28** (1989) 2219.
- 80) 清水幸浩、向当正朗、丸山貴司、行村建:「エキシマレーザの予備電離を目的とした高誘電率のセラミックを用いたコロナ発生装置」電気学会放電研究会資料 **ED-96-45** (1996) 91.
- 81) V. B. Fleurov, D. J. Colon, D. J. W. Brown, P. O'Keeffe, H. Besaucele, A. I. Ershov, F. Trinchouk, T. Ishihara, P. Zambon, R. Rafac, and A. Lukashev: "Dual-chamber ultraline-narrowed excimer light source for 193 nm lithography", *Proc. SPIE* **5040** (2003) 1694.
- 82) 堀司、石原孝信、柿崎弘司:「高繰返し動作が可能で狭帯域化効率の高いエキシマレーザ装置」特許第4972427号 (2007).

謝辞

本論文を作成するにあたり、終始丁寧なご指導とご鞭撻を賜りました九州大学大学院総合理工学府量子プロセス理工学専攻の内野喜一郎教授に謹んで感謝の意を表します。先生の適切なご指導のおかげをもちまして、研究成果を論文にまとめることができました。また、本論文をまとめるにあたり、有益なご教示をいただきました九州大学大学院総合理工学府量子プロセス理工学専攻の浜本貴一教授、並びに九州大学大学院総合理工学府先端エネルギー理工学専攻の渡辺幸信教授に御礼申し上げます。

ギガフォトン株式会社の溝口計博士、藤本准一博士、斎藤隆博士と白石裕氏、並びに株式会社小松製作所の住谷明博士には、本論文をまとめる機会を与えて頂くとともに、さまざまな便宜を図って頂き、深く感謝いたします。

本研究を進めるにあたり、ギガフォトン株式会社の柿崎弘司博士と堀司博士には、有益な討論、助言、および実験協力をいただき厚く感謝いたします。また、論文作成の際には、ギガフォトン株式会社の Dr. Georg Soumagne と英文の表現を議論することによって論文の完成度が高まりました。心より感謝いたします。

本論文の完成までには、ギガフォトン株式会社、株式会社小松製作所、並びにウシオ電機株式会社のエキシマレーザとEUV光源の研究開発に関わる皆様の協力がありました。御礼申し上げます。

最後に、本論文の作成に対して、協力してくれた家族の陽子、大聖と大夢に感謝します。

2013年7月 著者記す