

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008 ～ 2010

課題番号：20340166

研究課題名(和文) レーザー・放電ハイブリッド励起プラズマ光源における原子輻射過程の統合モデル構築

研究課題名(英文) Development of an integrated model of the hybrid pumping plasma light source based on laser assisted discharge

研究代表者

佐々木 明 (SASAKI AKIRA)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：10215709

研究成果の概要(和文)：

レーザー・放電ハイブリッド励起プラズマ光源のモデリング手法の研究を行い、原子過程シミュレーションにおいては、Sn などの高 Z 多価イオンのレベルポピュレーションや輻射放出、吸収係数を正しく計算し、発光スペクトルを再現できるモデルを開発した。その温度、密度特性から、プラズマの輻射圧力が密度に対して非単調に振る舞い、プラズマの不安定性や構造形成が発生する可能性があることを示した。また、開発したモデルを用い、将来の EUV リソグラフィで用いられると予想される、Tb プラズマの発光特性予測、評価を行った。輻射流体シミュレーションにおいては、時空間の構造形成を再現するためのモデリング手法の重要性を明らかにし、従来の MHD シミュレーションや、粒子、流体手法を階層的に統合する手法に替え、統計手法のひとつであるパーコレーションモデルが有用であることを、放電の初期のストリーマ構造生成過程を再現することで明らかにした。

研究成果の概要(英文)：

Modeling methods of laser-plasma hybrid pumping plasma light sources are investigated. On the modeling of plasma atomic processes, a model, which calculates level population, emissivity and opacity of the plasma with a reasonable accuracy and is capable of reproducing emission spectrum, is developed. Calculated dependence of the plasma radiation pressure, which shows non-monotonic behavior with respect to density, suggests instability of the plasmas. The model is also applied to evaluate the emission characteristics of Tb plasma for future EUV applications. On the modeling of plasma radiation hydrodynamics, importance of modeling methods, which can calculate the temporal and spatial structure formation, is discussed. Instead of existing MHD and other fluid and particle approach, it is found that using the percolation model, the initial structure of the discharge can be reproduced.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	4,300,000	1,290,000	5,590,000
2009 年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
2010 年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
年度			
年度			
総計	13,100,000	3,930,000	17,030,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：プラズマ制御・レーザー、プラズマ光源、シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

レーザーや放電励起によるプラズマ光源は、次世代半導体製造のための EUV リソグラフィ技術において初めて産業用の光源として注目されるようになった。特に、レーザー励起 EUV 光源の研究では、発光機構の理論的な解明の成果に基づいて、レーザーやターゲット技術の開発が進められてきた。原子過程とプラズマ物理の知識を統合化した輻射流体シミュレーションによって、それまで経験的に議論されていた光源の特性の定量的な評価が可能になった。

プラズマ光源のもうひとつの励起法である放電方式では、よりコンパクトな装置が実現できるとが期待されてきたが、ピンチ放電を用いることにより、流体力学的不安定性の影響を受けて発光効率が低いなどの問題もあった。

それに対して、レーザー照射で生成したプラズマ中で放電を起こす新しいハイブリッド光源が提案され、プラズマの供給と放電の開始を独立に制御して、画期的な高出力、高効率化が期待された。ハイブリッド光源の技術を確立すると UV から X 線領域の広い波長領域のプラズマ光源の実用化にも貢献することから、現象を合理的に説明できるモデルを構築することが期待されていた。

EUV 光源の発光機構は、Sn や Xe の 10 価付近のイオンの原子過程によって決まる一方、放電光源において、プラズマの時空間構造は、局所的な電子の加速、電離に起因するプラズマの不安定性に依存すると考えられる。放電プラズマの空間的構造は、究極的には微視的な原子分子過程を経て形成されるので、巨視的な MHD シミュレーションと、微視的なシミュレーションを統合した解析が必要であると考えられている。

従来このような統合シミュレーションは、計算量が非常に大きくなりしばしば実行が困難であると考えられてきた。プラズマから放出される輻射エネルギー特定のエネルギー領域に偏っていることなどの、プラズマ原子過程の知見に基づく光源プラズマ固有の性質を利用して、計算格子数や次元数を削減して計算量を削減することができ、ハイブリッド光源の特性を再現するモデルの構築ができると考えた。このようなモデルの構築は、レーザー、放電ハイブリッドプラズマ光源の動作機構のより深い理解につながり、将来必要とされる、プラズマ光源のさらなる高出力化、短波長化に寄与すると考えられた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、UV から X 線領域のプラズマ光源のシミュレーションモデルを構築

し、それを用いて高出力、高効率化の実現性を理論的に明らかにすることにある。巨視的なプラズマシミュレーションと、微視的な原子過程シミュレーションを統合し、レーザー照射で予備生成したプラズマ中で放電を起こすハイブリッド光源の媒質プラズマ中における、原子過程や輻射輸送の空間、時間的、あるいは電子や光のエネルギー空間での不均一性と非平衡の効果を記述する理論モデルを構築する。

3. 研究の方法

本研究では、ハイブリッド方式による放電プラズマ光源の媒質プラズマ（電子温度は 10-100eV、密度は大気圧程度以下 ($10^{17-19}/\text{cm}^3$) で、Sn などの多価電離した純物質を想定）で起こる物理過程を理論的に解析するとともに、計算手法の評価を行って、シミュレーションモデルを構築する。大きく分けて、プラズマの発光特性と、その時空間構造の形成に重要な寄与をする、プラズマ原子過程と、輻射流体力学のモデリングについて研究する。

前者のプラズマ原子過程については、原子物理計算コード (HULLAC 等) を用いて、プラズマ中に生成する多価 Z イオンのエネルギー準位、電子衝突や輻射による、電離、励起過程の衝突断面積、レート係数を求め、次に衝突輻射モデルを構築し、プラズマの温度、密度に対する、イオンアバンドランス、レベルポピュレーションを求め、さらに詳細な発光線の構造を考慮して、輻射放出、吸収係数を求め、発光スペクトルの評価を行う。

後者のプラズマ輻射流体力学については、電流によるプラズマの加熱、膨張と自己磁場によるピンチなどの巨視的な過程と、局所的な電界の集中によって加速された電子や、加熱領域から発生する輻射の作用等の、微視的な過程を取り扱う手法の検討を行う。そして、巨視的な MHD シミュレーションと、微視的なモンテカルロまたは Boltzmann シミュレーションの統合計算の手法について検討する。

このような統合シミュレーションは、一般に計算量が非常に多く計算困難であることから、具体的なシミュレーションを実現するために、物理および数理モデル化手法の研究を行う。すなわち、異なる計算モデルを階層的に接続して物理量を交換する手法や、格子の動的再配置のような数値手法とともに、空間領域やエネルギー領域における物理量のパラメータ化や粗視化を行い、さらに統計理論を用いたモデル化を試みる。

次に、開発したモデルの検証と性能の評価を行う。EUV 光源プラズマの統合計算を行って電流・電圧特性や発光スペクトルを求め、結果を、EUV 光源開発研究を通じて蓄積され

ている発光スペクトルなどの実験結果と系統的に比較し検証する。

プログラム自体の信頼性を高めるためには、オブジェクト指向によるコード開発の可能性について検討する。最後に、結果の検証のための可視化技術や、計算の履歴を管理し再現性を高めるデータベース技術についても検討する。

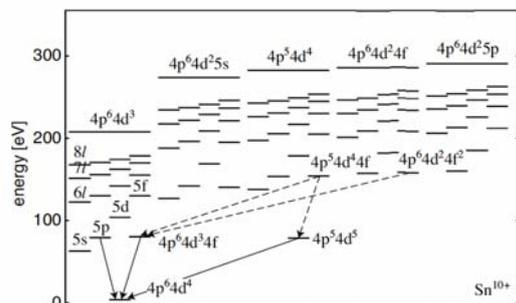
4. 研究成果

プラズマ原子過程のモデリングについて、光源の媒質プラズマの発光特性、さらに状態方程式に関係する物性について、詳細な原子過程の解析を行った。

EUV 光源として用いられる Sn, Xe プラズマを想定して、レーザーや放電励起によって起こりえるプラズマの温度、密度条件での特性の評価のため、中性原子から 40 個程度のイオンを含む衝突輻射モデルを構築した。対象とするイオンが、多数の軌道電子を持つことで、複雑なエネルギーレベル構造を持ち、複雑な発光スペクトルを放出する特徴を的確に再現出来るモデルを構築した。

すなわち、正確な原子データを用いること、特にエネルギーレベルの構造を正確に再現することと、完全なモデルを構築すること、プラズマ中で大きなポピュレーションを持つ状態、二電子性再結合過程の寄与を含め、電離、励起過程への寄与の大きい状態をもれなく取れることを考慮したモデルを構築した。

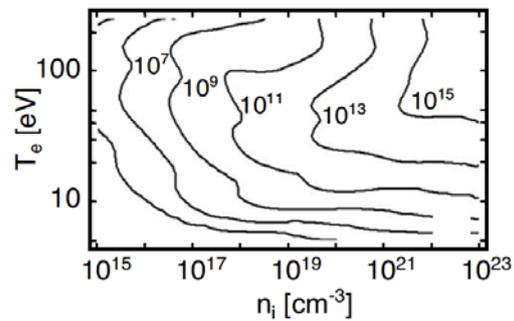
(図 1) は、 Sn^{10+} のエネルギー準位の構造を示す。発光に重要な寄与のある、多重、内殻励起状態からの遷移(サテライト線)を含むモデルによって、輻射放出係数を計算した結果を(図 2)に示す。この結果を用いた輻射流体シミュレーションは、レーザー励起 Sn プラズマの発光特性を良く再現する。



(図 1) Sn^{10+} イオンのエネルギーレベル構造

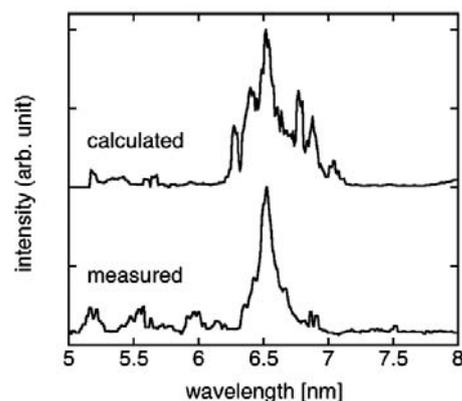
(図 2) の結果はまた、プラズマの輻射強度が、温度、密度に対し強い非線形性を持つことを示す。閉殻構造を持つイオンにおいて輻射放出係数が低下することに起因し、圧力が増し、電離が進行すると、輻射強度が減少する条件が存在することが分かった。このよう

な条件では、熱的圧力と輻射圧力の和であるプラズマの圧力が、密度に対して非単調な振る舞いを示し、不安定性や、構造形成を起こし得ると考えられる。



(図 2) Sn プラズマの輻射放出係数 $[\text{W}/\text{cm}^3]$ の温度、密度依存性。

このようにして構築したプラズマの原子過程モデルを用い、将来の EUV リソグラフィでの利用が予想される、波長 6.5nm 領域の光源の特性の解析を行った。原子番号が 50 以上の原子の Pd 様付近のイオンの 4d-4f 遷移は EUV 波長領域で強い光を放出し、その波長が原子番号が増すに従って短波長化する性質に基づき、Gd, Tb イオンのモデリングと発光スペクトルの評価を行った。(図 3)のようにシミュレーションで実験のスペクトルを再現できるようにし、また輻射流体モデルと組み合わせて効率の評価を行い、Sn 光源と同程度の変換効率 (CE) が得られることを示す一方、Sn 光源の場合に比べて高い電子温度が必要であり、光源の実用化のためには、励起レーザーの高強度化が必要なことを示した。



(図 3) Tb プラズマからの発光スペクトルの理論計算と実験との比較。

プラズマの輻射流体力学のモデリングについて、まず従来の MHD シミュレーション等の手法で、レーザー・放電ハイブリッド励起による、EUV 光源において想定される、プラ

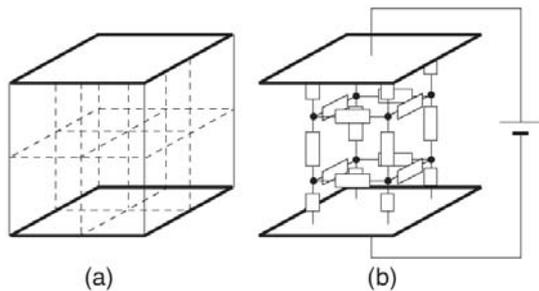
ズマの条件の検討を行った。

次に、原子分子過程と電子の分布関数を評価するために Boltzmann 方程式を解く方法、電子、輻射の輸送を粒子的に扱う手法、非局所熱伝導を評価する Fokker-Planck シミュレーションなどの手法の検討、および微視的な手法と巨視的な手法の統合の方法について検討した。

これらの計算手法は、一般的に計算量が過大であり、特に輻射輸送シミュレーションは、輻射を波長および角度方向に分けるとともに、原子過程シミュレーションと結合して行う必要がある。しかも、実際のプラズマへの適用においては、光学的に薄い状態から厚い状態をとともに取り扱う必要があり、従来の手法による計算は極めて難しいと考えられた。また、問題を時間、空間的に階層化する手法は、各シミュレーション要素を、自己無撞着に結合することが難しいと考えられた。

一方で、プラズマ光源などで問題になる、プラズマの不均一性は、突然発生し、複雑な時空間の構造を示すなど、相転移現象に見られるような特徴を持つ。このようなプラズマの振る舞いを再現するため、パーコレーション転移モデルを考え、それに基づいて初期の放電路の形成のシミュレーションによる再現を試みた。

(図 4) にモデルの概念図を示すように、放電の構造の再現に特化したモデルとして、まず、媒質を格子でセルに分け、媒質中の原子過程を簡略化し、それぞれが絶縁体である中性媒質か、導電体であるプラズマのいずれかであると考えた。



(図 4) パーコレーションモデルによる放電シミュレーションの概念図で、空間を格子で分けて電離しているかどうかを評価し (a)、その際の電流を回路方程式によって評価する (b) ことを示す。

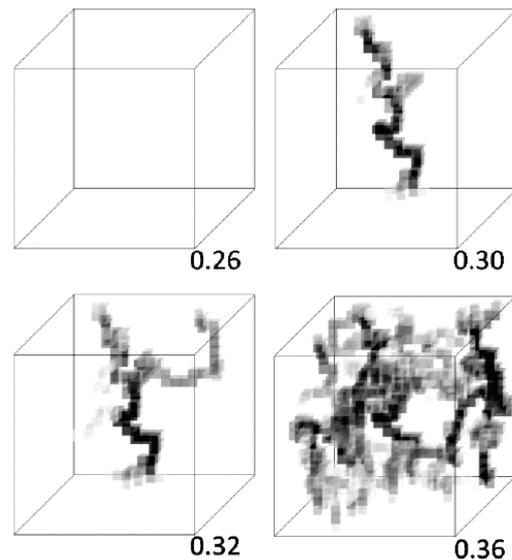
そして、媒質中の放電の経路を、領域の上下を電極として、その間に電圧を印加したと考え、回路方程式を解くことによって求めた。初期には媒質は全て絶縁体であったものが、各場所が確率的にプラズマ化すると考えて、電流分布の変化を計算した結果を(図 5)に示す。

放電は、電離した領域によって上下の極板

間が短絡されることによって瞬時に発生し、しばしば枝分かれや遠回りのある経路が生成する様子が再現される。

本モデルによると、回路方程式を解くことにより、媒質中の電離の進行に従う、電界分布の変化を評価することもできる。各場所の電界、電流の大きさに依存する媒質の電離領域の生成、消滅の確率を与えて、計算結果を実験と比較することにより、実際の放電進展の機構について考察することもできる。電界の二乗に比例する電離の確率を与えることにより、レーザーガイド放電の確率的な特性を再現する結果も得られている。

これらのことは、プラズマの時空間の構造形成の評価のために、統計手法(パーコレーションモデル)が有効なことを示唆する。放電においては、先端の逐次的な成長とともに、非局所的、ランダムな電離が重要なことを示す。今後は、原子過程シミュレーションや、粒子手法による電子や輻射輸送などの微視的なモデルと互いにつじつまが合うように統合することにより、光源等で用いられるレーザーや放電励起プラズマの特性の評価に応用することや、時空間の構造形成の臨界現象としての特性の評価を行うことが課題と考えられる。



(図 5) パーコレーションモデルによる放電路生成のシミュレーションの結果の例

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件)

① 佐々木明、西原功修、「レーザー生成 XUV 光源の放射物理と将来の短波長化への展望」レーザー研究、査読有 vol. 38, 969-957

(2010).

② A. Sasaki, K. Nishihara, A. Sunahara, H. Furukawa, T. Nishikawa, and F. Koike, “Theoretical investigation of the spectrum and conversion efficiency of short wavelength extreme-ultra-violet light sources based on terbium plasmas”, *Appl. Phys. Lett.* 査読有 97, 231501 (2010).

DOI: 10.1063/1.3524494

③ A. Sasaki, Y. Kishimoto, E. Takahashi, S. Kato, T. Fujii, and S. Kanazawa, “Percolation simulation of laser guided electrical discharge”, *Phys. Rev. Lett.*, 査読有 105, 075004 (2010).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.075004

④ A. Sasaki, A. Sunahara, H. Furukawa, K. Nishihara, S. Fujioka, T. Nishikawa, F. Koike, “Modeling of radiative properties of Sn plasmas for EUV source”, *J. Appl. Phys.*, 査読有 107, 113303 (2010).

DOI: 10.1063/1.3373427

⑤ H. Ohashi, S. Suda, H. Tanuma, S. Fujioka, H. Nishimura, A. Sasaki, and K. Nishihara, “EUV emission spectra in collisions of multiply charged Sn ions with He and Xe”, *J. Phys.* 査読有 B43, 065204 (2010).

DOI: 10.1088/0953-4075/43/6/065204

⑥ A. Sunahara, K. Nishihara, A. Sasaki, “Optimization of extreme ultraviolet emission from laser-produced tin plasmas based on radiation hydrodynamics simulations”, *Plasma Fusion Res.*, 査読有 3, 043 (2008).

http://www.jspf.or.jp/PFR/PFR_articles/pfr2008/pfr2008_03-043.html

⑦ 西原功修、砂原淳、佐々木明、田沼肇、小池文博、藤岡慎介、西村博明、島田義則、「極端紫外光源の原子モデルと最適設計」レーザー研究、査読有、vol. 36, 690-699 (2008).

[学会発表] (計 4 件)

① A. Sasaki, “Formation mechanism of non-uniform structure in the gain distribution and its effect to the plasma x-ray lasers”, *Proceedings SPIE, X-ray lasers and coherent x-ray sources*, vol. 8140, 814017 (2011).

② A. Sasaki, K. Nishihara, A. Sunahara, H. Furukawa, T. Nishikawa, F. Koike, “Modeling of atomic and plasma processes in the LPP and LA-DPP EUV sources”, *Proceedings SPIE, Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography* vol. 7636, 3D (2010).

③ A. Sasaki, A. Sunahara, H. Furukawa, K. Nishihara, T. Nishikawa, F. Koike and H. Tanuma, “Atomic modeling of the

plasma EUV sources, II”, paper presented at 14th international workshop on radiative properties of hot dense matter, HEDP, 5 147-151 (2009).

④ A. Sasaki, K. Nishihara, A. Sunahara, H. Furukawa, T. Nishikawa, F. Koike, *Proceedings*. “Atomic processes in the LPP and LA-DPP EUV sources”, *SPIE, Alternative Lithographic Technologies*, vol. 7271, 30 (2009).

[図書] (計 1 件)

① 第 14 章「レーザー生成プラズマ」pp.319-329, 「プラズマ原子分子過程ハンドブック」浜口智志、村上泉、加藤太治、プラズマ・核融合学会編、大阪大学出版会 2011 年.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐々木 明 (SASAKI AKIRA)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
研究者番号：10215709

(2) 研究分担者

西原 功修 (NISHIHARA KATSUNOBU)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・特任研究員

研究者番号：40107131

砂原 淳 (SUNAHARA ATSUSHI)

(財)レーザー技術総合研究所・研究員

研究者番号：00370213

古河 裕之 (FURUKAWA HIROYUKI)

(財)レーザー技術総合研究所・

副主任研究員

研究者番号：70222271

小池 文博 (KOIKE FUMIHIRO)

北里大学・医学部・准教授

研究者番号：90095505

西川 亘 (NISHIKAWA TAKESHI)

岡山大学・自然科学研究科・助教

研究者番号：80243492

(3) 連携研究者

甲斐 健師 (KAI TAKESHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・特任研究員

研究者番号：70403037

沼波 政倫 (NUNAMI MASANORI)

自然科学研究機構・核融合科学研究所・助教

研究者番号：40397203