

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 12 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22340172

研究課題名（和文）高出力極端紫外（EUV）光による物質アブレーションとその解明

研究課題名（英文）Investigation of material ablation by high power extreme-ultra violet light (EUV)

研究代表者：西村 博明(NISHIMURA HIROAKI)

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター・教授

研究者番号：60135754

研究成果の概要（和文）：レーザー駆動極端紫外線（以下、EUV と記載）を光源とし、これによって加熱された物質の加熱からアブレーションに至る実験データベースを構築するとともに、関連するエネルギー輸送過程や物性状態、流体運動など関連物理を解明した。また、これらの成果を活かして、従来のパルスレーザーアブレーション(PLD)法に代わり、一様加熱された結果放出されるアブレーションプラズマによる材料合成等、EUV アブレーション応用の新しい可能性を調べた。

研究成果の概要（英文）：Experimental database of material ablation caused by an intense extreme ultra-violet (EUV) light generated by laser has been constructed to study energy transport, change in material states and hydrodynamic motions. By utilizing these results, possibility of material synthesizing with expanding plumes and micro-processing was investigated as substitution of conventional pulsed laser deposition (PLD).

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	5,700,000	1,710,000	7,410,000
2011 年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
2012 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度	0	0	0
年度	0	0	0
総計	13,200,000	3,960,000	17,160,000

研究分野：数理系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：極端紫外（EUV）光源、EUV アブレーション、WDM 物理、レーザープラズマ光源

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 高出力レーザーを物質に集光照射することにより、テラヘルツからEUV、X線、 $\gamma$ 線などの広帯域にわたる高輝度な電磁波を放射することができ、レーザー駆動高輝度量子ビームとしてその発生から応用へ向けた研究が広がりつつある。中でも、波長10-数10nm領域にあるEUV領域においては、レーザープラズマ放射EUV光源に加え、プラズマ放射X線レーザーや高次高調波、自由電子X線レー

ザー(XFEL)など、新しいEUV領域の高輝度光源が開発されるとともに、全反射鏡や多層膜反射鏡、ビームスプリッター、ゾーンプレートなどのEUV光学技術が大きく進展している。

(2) EUV光は、光子エネルギーが可視光よりも1-2桁(50-100eV)大きく、臨界密度は固体密度をはるかに超えるため、固体密度領域にエネルギーを直接注入することができる。しかも、レーザー加熱における電子熱伝導で

みられる様々な非線形性が存在せず、加熱領域はイオン化熱波にともなって伝導 (Marshak 波)、エネルギー付与量は密度深さ積あたりほぼ一様であるといった特徴を持っている。このためEUV 加熱では、このような温度、密度が空間的に一様な加熱 (isochoric加熱) が期待でき、Warm Dense Matter(WDM)研究の新しいツールとなりうる。しかし、これまで研究に適した高出力EUV 光源が限られていたため、EUV 光による加熱やアブレーションに関する物理や応用研究は緒についたばかりである。

(3) 申請者らは、これまでレーザープラズマ放射EUV 光源開発研究を実施し、波長13.5nm、帯域幅2%においてレーザーエネルギーの4%の変換効率 (世界最高) を達成するとともにプラズマから放出されるデブリ (光源プラズマからの飛散微粒子) の抑制が出来ることを実証した[文献1]、また、開発された光源を用いて、純EUV 光によるアブレーションが出来ることを確認した (図1)。

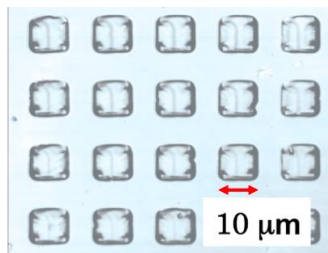


図1 EUVアブレーション加工の例

(4) EUV 光源を用いた微細加工に関しては、レーザー駆動EUV 光源での加工[2]やプラズマ研究所 (チェコ) でプラズマ軟X線レーザーを集光した試みが開始されているが、EUV アブレーション物理はまだ良く理解されていない。

## 2. 研究の目的

本研究では、EUV アブレーションに関して (1) 予測された描像の妥当性を検証し、その高精度化を図ることに重点を置いた。

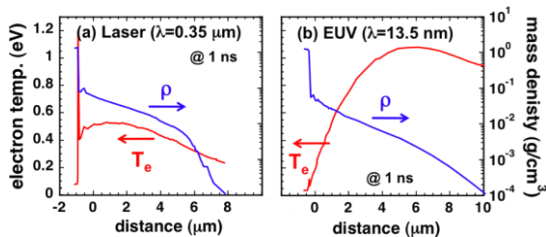


図2 (a) レーザーと (b) EUV との構造比較

図2は、簡易モデルにより得られた、強度  $3 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$  下でポリスチレンを照射した場合の温度、密度構造を比較したものである。レーザー照射では古典吸収が支配的となり、吸収されたエネルギーが電子熱伝導により運ばれるため、エネルギー注入領域は高密度領域で極めて局所化しているのに対し、EUV アブレーションでは、エネルギー注入領域の密度厚さ積がほぼ固定化され、一様性の高いアブレーション構造を示していることが判る。

(2) このような予想をもとに、アブレーション内部構造を解明するための新たな診断手法を開発した。レーザープラズマ放射EUV 光源の条件 (強度、スペクトル、パルス幅等) や被照射材料の条件 (光物性、初期導電性、表面状態など) を変化させ、飛散粒子に関して分光計測、粒子組成、膨張運動、空間分布などを観測した。また、比較のため、加熱源をレーザーに変え同一照射強度下での計測実施し、比較を行った。

(3) こうして、EUV アブレーションに関する実験データベースを整えた。

## 3. 研究の方法

(1) 開始当初の2年間を目処にEUV 集光照射系と診断法の開発を進め、EUV 照射手法の開発を進めた。具体的には、全反射楕円鏡を基本としたEUV 照射系を設計・製作し、最大照射強度を得る条件を明らかにした。

(2) 次に、各種材料をEUV アブレーションさせ、膨張粒子の流体運動や粒子種構成、温度、密度計測などを実施した。

(3) また、既存放射流体コードを元に、被加熱材料の膨張領域におけるレーザー (またはEUV) の吸収機構を調べた。

## 4. 研究成果

### (1) 連続 EUV パルス出射装置

連続的に固体キセノターゲットを供給する方法として、回転ドラム型クライオターゲット供給装置を開発した。その模式的構造を図3に示す。銅製の回転ドラム内に液体窒素を満ちし、このドラムとガス容器との間にキセノガスを封入して固体キセノ層を製作

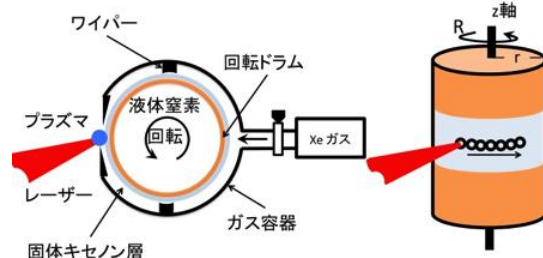


図3 回転ドラム式固体キセノターゲット

した。レーザー照射に伴うターゲット面の窪みは内部ワイパーにて固体キセノンを掻き寄せる構造となっている。この回転ターゲットを10Hzの繰り返しEUVパルス光を出射できるようにした。

加熱レーザーは、Nd:YAGレーザー（波長10.5nm, パルス幅10ns, エネルギー500mJ）であった。EUVパルスの時間幅は、加熱レーザーの時間幅とほぼ一致している。

## (2) EUV 出力特性

図4にEUV分光器で観測した放射スペクトルを示す。波長11nm近傍に自己吸収によるスペクトルの凹みが見える。アブレーションに使用出来る波長域は10-20nm帯域である。

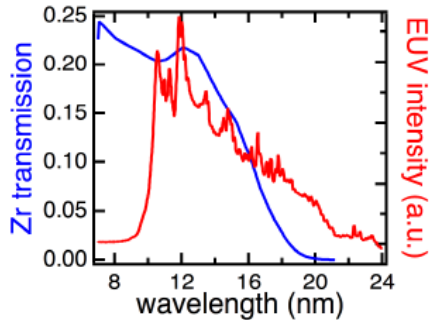


図4 放射スペクトル（赤）と、Zrフィルター透過特性（青）

放射スペクトルはレーザー照射強度、すなわち、キセノンプラズマの温度、密度に依存するので、レーザー条件を固定して、装置から取り出せるEUVエネルギーを最大にする最適化を行った。図5は、EUV集光鏡における反射率（波長と入射角度の関数）を考慮した、EUV集光点で得られるEUVエネルギーを、投入レーザーエネルギーで除した総合効率の照射強度依存性を示している。1Jのレーザーエネルギーに対し、照射強度 $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ で、試料上には約10mJのEUV光が集光できる。

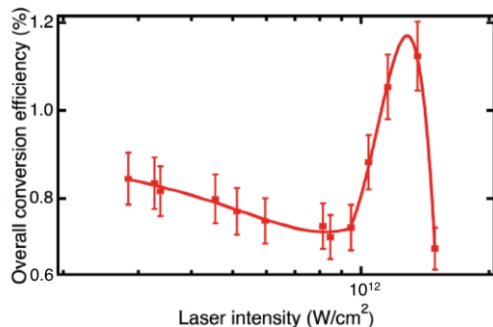


図5 EUV集光点における変換効率のレーザー照射強度依存性

EUV放射プラズマの空間形状は、EUV単色ピンホールカメラにて観測した。このカメラには13.5nm@45度入射のMo/Si多層膜反射鏡とZrフィルターが設けられている。代表的画像を図6に示す。EUVパルスを試料上に照射するには、トロイダル楕円鏡を用いた。この集光系では、EUV発光領域の画像を試料上に1:1で結像する関係になるので、EUVプラズマサイズが小さく、また変換効率が高いことは、EUV照射強度を高く保つ上で都合が良い。

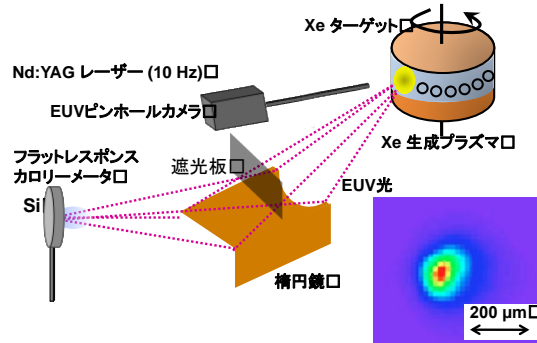


図6 EUV照射配置と13.5nmEUV単色画像

## (3) EUV アブレーションプラズマからの発光スペクトル観測

EUVパルスを試料に集光し、発生したプラズマプルームの発光スペクトルをEUV照射軸に直交した、試料側面方向から観測した。図7にSi試料からの発光スペクトル履歴を示す。上半分がEUV照射の場合、下半分がレーザー照射の場合である。縦軸が対数表示に

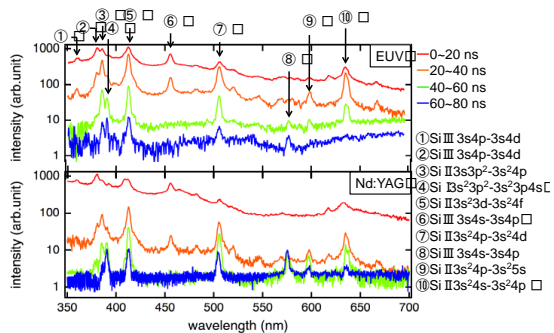


図7 EUVならびにレーザー照射を受けたSi試料からの可視光放射スペクトル

なっていることに注意したい。いずれの加熱源の場合にも、輝線幅は太く、連続スペクトルに埋もれるような形状となっているが、時間の経過とともに、連続線強度は大幅に低下する一方で、相対的に輝線が顕在化してくる。プラズマ膨張とともに、密度が低下するとともに、再結合遷移による輝線発光が支配的になってくる様子が推定される。スタルク広が

りを仮定し、輝線スペクトル幅から電子密度を、スペクトル強度比から電子温度を求めると、図8のような結果となった。

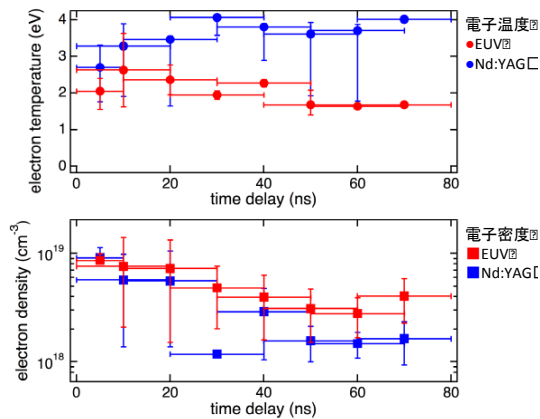


図8 輝線スペクトルから求めた電子温度と電子密度

電子温度で見ると、EUV 加熱で約 2eV、レーザー加熱で約 3.4eV 程度であり、いずれの場合も照射終端後もこの温度を長時間保っている。一方、電子密度は、EUV、レーザー何れも  $10^{19} \text{cm}^{-3}$  から始まり、徐々に低下している様子が見える。臨界密度から推定して、レーザー加熱領域の電子密度は  $10^{19} \sim 10^{21} \text{cm}^{-3}$  と予測されるので、可視光スペクトル観測では、比較的低密度領域の温度状態を示していることになる。一方、EUV の加熱域は一般にもっと高密度領域を期待するが、試料が低温の Si である限り電離が進まず、Si の L 吸収端による EUV 吸収が支配的となり、高密度領域まで EUV エネルギーが届いていない（加熱されていない）と考えられる。この様子は、既存の放射流体コードによる計算でも再現されている。

プラズマ温度が低下しないのは、高密度側から流れ来る高温成分が、放射脱励起しつつ可視光を発生している為と思える。要するに、特定の粒子群の流れを追っているのではなく、定点観測して上流からの情報が流れている様子が推測される。これらの仮説を実証するには、試料を変え膨張プラズマによる加熱源の、途中での吸収を抑制したり、高密度側の情報を得るため、観測波長をさら短くして真空紫外域のスペクトル観測も必要であることが分かった。

#### (4) EUV アブレーションプラズマのエネルギー分布

EUV アブレーションの特徴が現れる現象として膨張プラズマのエネルギー分布を上げることができる。この膨張プラズマ流につ

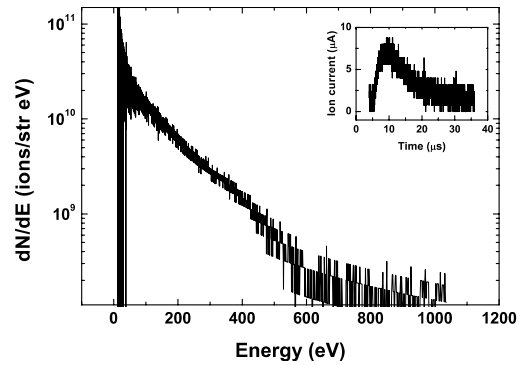


図9 EUV 加熱を受けたアルミサンプルからの膨張プラズマエネルギー分布

いて、チャージコレクターによる観測を実施した。図9は、EUV 加熱を受けたアルミプラズマのエネルギー分布を示す。エネルギーに対して極めて単調な減少を示しており、単一温度プラズマとなっている。すなわち、加熱が一様であることを示している。マクスウェル分布を仮定した場合、勾配はプラズマ温度に対応し、図に示す条件下では 160eV となった。

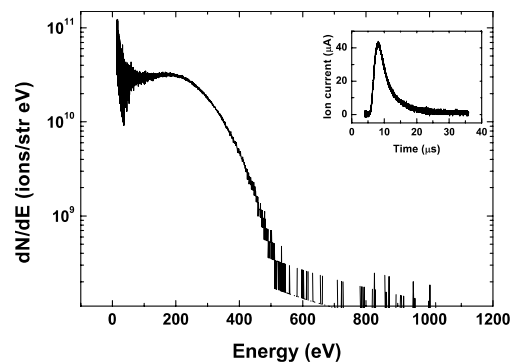


図10 レーザー加熱を受けたアルミサンプルからの膨張プラズマエネルギー分布

一方、レーザー加熱を受けたアルミプラズマのエネルギー分布を示す。エネルギーに対して上に凸の曲線となり複数の温度分布をもったプラズマとなっていることが分かる。400eV 近傍のプラズマに対してマクスウェル分布を仮定した場合、プラズマ温度は 60eV と、同一照射強度下のプラズマであるにも関わらず、低い温度を示した。ここで注意したいのは、どのエネルギー近傍のプラズマ流を対象とするかで、分布、すなわち温度を一様に決定することが出来ないことに、特徴がある点である。

以上の様に、EUV 加熱プラズマの特徴をある程度明確にすることができた。しかし、高

密度領域の分光観測やアブレーションプラズマによる材料成膜の試みなど、当初計画期間中には実施に至らなかった研究項目が残った。このため、今後さらに研究を継続し、EUV 加熱物理と応用に関する新しい知見を明らかにしていく予定である。

#### 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9件)

1. Z. Zhang, H. Nishimura, T. Namimoto, S. Fujioka, Y. Arikawa, H. Nagatomo, M. Nakai, T. Ozaki, M. Koga, T. Johzaki, A. Sunahara, H. Chen, J. Park, G.J. Williams, H. Shiraga, S. Kojima, M. Nishikino, T. Kawachi, 他7名, *Quantitative measurement of hard X-ray spectra from laser-driven fast ignition plasma*

High Energy Density Physics, 査読有、Vol. 9 (2013) 435-438

<http://dx.doi.org/10.1016/j.hedp.2013.04.001>

2. M. Tagawa, K. Kishida, K. Yokota, Y. Kimoto, M. Koga, and H. Nishimura

*Extreme Ultraviolet Emission from Laser-Induced Plasma During Atomic Oxygen Tests*

J. of Spacecraft and Rockets, 査読有、Vol. 50, (2013) 460-462.

3. Y. Matsuoka, S. Fujioka, H. Nishimura  
*Two-facing Laser Pulses to Suppress Position Shift of Expanded Tin Microsphere for Extreme Ultraviolet Light Source*

Applied Physics Express, 査読有、Vol. 4, (2011) 056201-1~3.

<http://dx.doi./10.1143/APEX.4.056201>

4. H. Nishimura, R. Mishra, S. Ohshima, H. Nakamura, 他14名, *X-ray spectroscopy to study energy transport of a low-Z, reduced-mass target irradiated with a high intensity laser pulse*

High Energy Density Physics, 査読有、Vol. 7 (2011) 117-123

5. H. Nishimura, R. Mishra, S. Ohshima, H. Nakamura, M. Tanabe, T. Fujiwara, N. Yamamoto, S. Fujioka, 他10名, *Energy transport and isochoric heating of a low-Z, reduced-mass target irradiated with a high intensity laser pulse*  
Physics of Plasma, 査読有、Vol. 18 (2011) 022702-1~9.

6. Y. Matsuoka, Y. Nakai, S. Fujioka, S. Maeda, M. Shimomura, Y. Shimada, A. Sunahara, H. Nishimura, and M. Yoshida, *Comparative and*

*quantitative study of neutral debris emanated from tin plasmas produced by neodymium-doped yttrium-aluminum-garnet and carbon dioxide laser pulses*, Appl. Phys. Lett., 査読有、Vol. 97 (2010) 111502-1~3.

[学会発表] (計5件)

1. 鶴籠照之、藤岡慎介、西村博明、レーザー生成6.7nm 光源用ガドリニウムターゲットの供給法に関する研究、応用物理学会 2012年09月11日、愛媛大学

2. H. Nishimura, M. Miyake, T. Ugomori, M. Yoshida, H. Azechi  
*Conversion efficiency of 6.X nm Emitted from Nd:YAG Laser Produced Plasma*  
2011 International Workshop on EUV and Soft X-ray Sources, 2011年11月7-10日  
ダブリン (アイルランド)

3. 羽根一嘉、藤岡慎介、張鉄竜、他4名  
*Optimization of extreme ultraviolet (EUV) pulses emitted light source for ablation studies*  
応用物理学会連合講演会、平成24年3月16日、早稲田大学

4. 松岡祐司、藤岡慎介、羽根一嘉、長畑学、島田義則、西村博明、プレパルス対向照射によるEUV光源ターゲットの形状制御・移動抑制、レーザー学会学術講演会第31回年次大会 2011年1月9日、電気通信大学

[その他]

ホームページ:

<http://www.ile.osaka-u.ac.jp/jp/groups/radiation/pxs.html>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

西村 博明 (NISHIMURA HIROAKI)  
大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・教授  
研究者番号: 60135754

##### (2) 研究分担者

藤岡 慎介 (FUJIOKA SHINSUKE)  
大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・准教授  
研究者番号: 40372635

##### (3) 連携研究者

村上 匡且 (MURAKAMI MASAKATSU)  
大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・教授  
研究者番号: 80192772

島田 義則 (SHIMADA YOSHINORI)  
公益財団法人 レーザー技術総合研究所・  
副主任研究員  
研究者番号：80250091

河村 徹 (KAWAMURA THORU)  
東京工業大学・総合理工学研究科・講師  
研究者番号：10370214

河内 哲哉 (KAWACHI TETSUYA)  
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・光量子科学研究  
ユニット  
研究者番号：40343941