

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340185

研究課題名(和文) EUV光源、X線レーザー媒質プラズマ中の原子・輻射過程に起因する相転移現象の解明

研究課題名(英文) Investigation of phase transition processes arises from atomic and radiative property of plasmas for EUV and X-ray laser applications

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・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究副主幹

研究者番号：10215709

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円、(間接経費) 4,050,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、レーザー生成プラズマや放電中にしばしばみられる不均一構造が、原子・輻射過程に起因する一種の相転移現象に起因する可能性に着眼し、詳細な原子モデルと、パーコレーション転移モデルによってプラズマの特性を解析し、構造形成のメカニズムの解明を目指す研究を行った。タングステンの原子モデルの研究を行い、モデルをパラメータ化して収束計算を行って計算精度を高めた。パーコレーションの研究では、プラズマ領域確率を求めるために、SF6ガスの電離、付着係数を用いて、実験の放電の成長を再現できることを示した。原子・輻射モデルと相転移モデルの統合は、プラズマ現象をより良く理解することに貢献すると考えられる。

研究成果の概要(英文)：We investigate the mechanism of formation of the inhomogeneous structure in laser produced plasmas and discharge plasmas, by taking the phase transition processes into account, which originate from atomic and radiative properties of plasmas. We develop a detailed atomic model of tungsten, which is interested in fusion plasmas. The size of the model is parameterized, and accuracy of the calculation of mean charge and radiative power loss is improved by sensitivity studies and benchmark calculations. We also investigate percolation transition in discharge plasmas. We investigate development of discharge in SF6 based on its material properties such as ionization and attachment coefficient to reproduce experimental observations from initial partial discharge to later growth of the stepped leader to cause breakdown. By combining both atomic model, radiative transfer model and phase transition model understanding of structure formation in the plasmas will be improved.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：プラズマ原子過程 プラズマ分光 パーコレーション 相転移 放電 EUV光源 シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

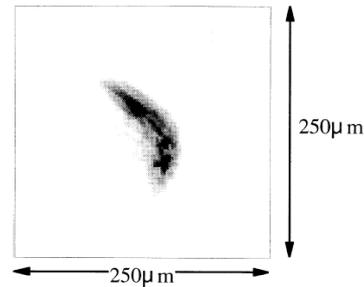
レーザーや放電励起によって生成するプラズマの紫外からX線領域の光源としての応用可能性は以前から注目されていたが、近年 Sn プラズマを用いた $\lambda=13.5\text{nm}$ における高出力、高効率な極端紫外 (EUV) 光源が、次世代半導体リソグラフィ用光源として実用化されるようになった。一方、X線レーザーの研究は、EUV 光源よりも早くから行なわれ、Ag プラズマを媒質として $\lambda=13.9\text{nm}$ におけるレーザー発振が得られている。X線レーザーの単色性、優れたコヒーレンスには、半導体製造技術からも興味を持たれているが、発光効率が低く ($\approx 10^{-6}$) 実用化には至っていない。

X線レーザーのビームプロファイルの詳細な観察の結果 (図 1) から、利得分布は、特徴的な大きさが $10\mu\text{m}$ 程度の不均一構造を持つことが知られている。その様子は、あたかもプラズマ中に、輝く小さな砂粒が散らばっているようだとされることもある。このような利得領域の空間構造によって、X線レーザー光が吸収、散乱を受けることが、X線レーザーの発光効率が低いことの原因のひとつと考えられている。EUV 光源においても、レーザー照射初期のプラズマの不均一性が、レーザー光の吸収を妨げるなどの効果が、発光効率の低下の原因になるのではないかと考えられている。

これまでに、励起レーザー光の均一性を高めるなどの方法による、プラズマ中の不均一性の発生の抑制が試みられ、X線レーザーや EUV 光源の性能が改善したが、にもかかわらず (図 1) のような構造が見られることから、プラズマ中に不均一構造が形成される現象は、プラズマの持つ、より本質的な特徴の現れなのではないかと考えるようになった。

核融合実験装置でも、本来共存しないはずの低価数のイオンからの発光と高価数のイオンからの発光スペクトルが同時に観測されることがある。この結果は、高温のコアプラズマと低温のエッジプラズマを分光器の視線方向に同時に観測しているためと言われるが、異なる価数のイオンが近接した場所に共存する可能性も完全には否定されない。

提案者は、プラズマが低電離から高電離の状態へ遷移する時に、もしも水と氷の間の転移のような相転移現象が存在するならば、プラズマ中に低価数と高価数のイオンが共存する状態が起こり、X線レーザーの媒質プラズマにおいては、利得の不均一性として現れるのではないかと考えた。他方、提案者は、放電現象を例として、現象論的モデルにより、プラズマの構造形成を再現できること示し、プラズマ現象を理解するために、相転移の概念とその解析手法が重要なことを示した (A. Sasaki, et al. Phys. Rev. Lett. **105**, 075004(2010))。これらのことから、提案者は、プラズマ中に相転移現象が存在する可能性を考えることがプラズマ現象の理解に役立つと考えるに至った。



(図 1) X線レーザー媒質の利得分布の不均一性 (M. Tanaka, J. Plasma Fusion Res. **79**, 386 (2003).)

2. 研究の目的

本研究は、レーザーや放電で励起する EUV 光源や X線レーザー等のプラズマ光源の出力などの特性に影響を与える、プラズマ中に生じる不均一構造の生成機構を明らかにし、制御の方法を見出すことを目的として行った。プラズマの原子・輻射過程は、強い非線形性を持ち、低電離プラズマが、わずかな温度、密度の変化によって、急激に高電離のプラズマへと変化することや、高温のプラズマが放出する強い輻射が、周囲を次々と電離することが知られている。本研究は、このようなプラズマの振る舞いが、物性理論における相転移現象の特徴と良く似ていることに着目し、プラズマの原子・輻射過程に起因する相転移現象の有無と、それに伴う臨界現象としてのプラズマの不均一構造の生成機構とを解明し、相転移現象に伴ってどのようなプラズマ現象が起こり、プラズマ光源の特性にどのような影響が生じるかを、理論、シミュレーションによって明らかにすることを目指して行った。

3. 研究の方法

本研究では、研究計画に挙げた研究項目、研究方法のうち、特に多電子・多価電離イオンの原子過程のシミュレーションと、統計手法によるプラズマの構造形成のシミュレーションに注目し、プラズマの温度、密度に対するその状態の変化の詳細な解析を行った。また、パーコレーションモデルによるシミュレーションによって、放電プラズマにおける構造形成のメカニズムの解析を行った。

(1) プラズマ原子過程シミュレーション

数値計算によって求めた原子素過程データをもとに、大規模な衝突輻射モデルを構築し、EUV 光源用 Sn、核融合用 W プラズマの価数、輻射損失などの特性の解析を行った。

(2) プラズマ構造形成シミュレーション

放電プラズマを対象とし、プラズマ中の原子過程を粗視化すると一方で、その状態が媒質内に確率的に分布して、マクロな電気的特性が回路方程式で決定できるというモデルを構築し、放電の特性の解析を行った。

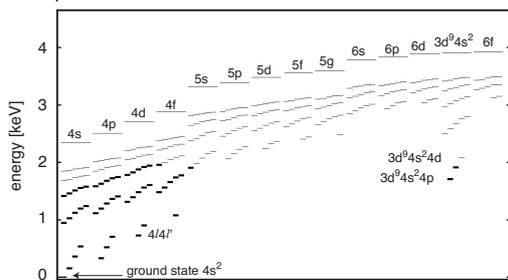
4. 研究成果

本研究では、プラズマ原子過程のシミュレーションとプラズマ構造形成のシミュレーションにおいて以下の代表的な成果を挙げた。

(1) W プラズマの原子過程モデルの研究

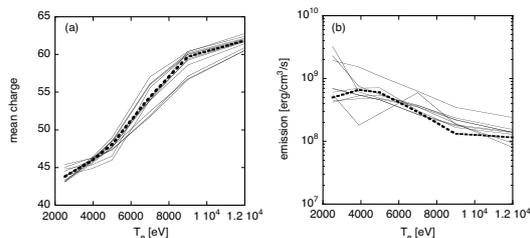
電子温度数 100eV から数 keV の条件で W 原子は 20~50 個のイオンとなる。これらのイオンは N, M 殻に多数の軌道電子を持つため、原子構造は極めて複雑になる。本研究では、プラズマ中で多く分布する (ポピュレーションが大きい) 状態や、主要な電離、再結合チャネル (二電子再結合チャネル) を推定するアルゴリズムを考案し、衝突輻射モデルの構築を行った。さらに計算されるプラズマ価数、輻射損失のモデルのサイズに対する収束計算を行うとともに、国際的なコード比較ワークショップに参加して、世界の代表的な研究所で開発されているモデルと計算結果の比較を行い結果が一部を除いておおむね一致することを確認した。

(図 2) に W^{44+} イオンのエネルギーレベルの構造を示す。 W^{44+} イオンには多数の内殻、多重励起状態が存在する。本研究では、このような励起状態を、共通のコア電子配置を持つ状態毎に $4s^2nl, 4s4pnl$ のようにグループ分けし、エネルギーの低いグループから順に衝突輻射モデルに取り入れ、結果が収束するまで計算を行った。



(図 2) W^{44+} イオンのエネルギーレベルの構造

(図 3) は、今回計算した W プラズマの価数と輻射損失を、NLTE ワークショップで発表された他の計算結果と比較して示す。今回の結果はばらつきのほぼ中央に位置していることを示す。

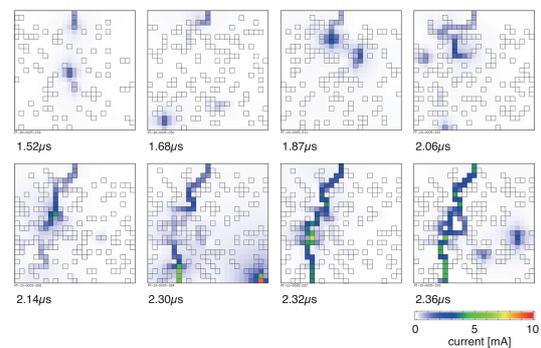


(図 3) W の価数 (a) と輻射損失 (b) の今回計算結果 (破線) と他の結果の比較。

(2) SF_6 ガス中の放電の構造形成の研究

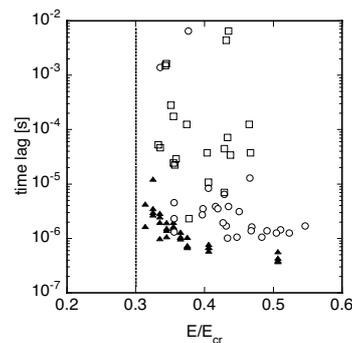
パーコレーションモデルは、放電が、枝分かれや遠回りをする経路を通して突然発生するようすを再現する。本研究では、パーコレーションモデルによる放電シミュレーションにおいて、空間の静電容量を考慮すること、媒質中の電離領域の生成、消滅のダイナミクスを考慮する改良を行い、放電の時間発展の計算を行った。特に電離領域の生成、消滅確率を求めるために、 SF_6 ガスの電離、付着係数を用い、媒質の物性を考慮した現実的な条件での計算を試みた。

(図 4) に放電の時間発展の計算結果を示す。本研究では、電離領域の生成、消滅確率の電界、電流に対する依存性のパラメータを変化させた計算を行った。その結果、電離領域の消滅確率が放電電流に反比例して抑制されると考えると、実験結果が再現されることが分かった。すなわち、電極間に電圧を印加すると、はじめ針電極近傍に短いストリーマが生じる部分放電が生じ、ある時間遅れを経てステップリーダーが急激に階段状に進展し、ブレイクダウンに至る傾向が再現された。



(図 4) パーコレーションモデルによる放電経路の時間発展の計算結果

(図 5) に示す、ブレイクダウンの遅れ時間の電界依存性においても、計算結果は実験の傾向を再現することが分かった。



(図 5) ブレイクダウンの遅れ時間の換算電界に対する依存性 ▲ が今回の結果、□ ○ は M. Seeger, et al. J. Phys. **D41**, 185204 (2008) による。

以上のように、本研究においては、原子過程の詳細なモデルにより、プラズマの価数や輻射損失の特性が正確に求められるようになった。また、パーコレーション転移モデルが放電の構造形成を再現し、プラズマ中の相転移現象の解析に有効なことが確かめられた。今後は、両モデルを統合した解析や、輻射輸送モデルの改良と、及びそれによる解析により、EUV光源やX線レーザーの媒質として用いられる実際のプラズマにおいて相転移的な振る舞いが起こるメカニズムを解明することが重要になると考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計6件)

- ① A. Sasaki, S. Kato, E. Takahashi, S. Kanazawa, “A Percolation Model of the Streamer Discharges”, JPS Conf. Proc. 1, 015029 (2014) DOI: 10.7566/JSPSC.1.015029 査読有
- ② A. Sasaki and I. Murakami, “Algorithm based modeling of fractional ion abundance and rates of ionization and recombination for tungsten plasmas”, J. Phys. B46, 175701 (2013) DOI: 10.1088/0953-4075/46/17/175701 査読有
- ③ A. Sasaki, “Construction of a collisional radiative model of complex multiple charged ions for mid- to high-Z elements”, High Energy Density Phys, 9, 325 (2013) 査読有 DOI: 10.1016/j.hedp.2013.01.009
- ④ A. Sasaki and I. Murakami, “Validation of collisional radiative model of high-z multiple charged ions at NLTE code comparison workshop”, Plasma Fusion Res. 8, 2401021 (2013) URL: http://www.jspf.or.jp/PFR/PDF/pfr2013_08-2401021.pdf 査読有
- ⑤ 佐々木明, 砂原淳, 西原功修 “原子過程と輻射流体”, プラズマ核融合学会誌, 89, 654 (2013). URL: http://www.jspf.or.jp/Journal/PDF_JSPF/jspf2013_10/jspf2013_10-654.pdf 査読無
- ⑥ 佐々木明, “高Z多価イオンのモデリングの現状”, プラズマ核融合学会誌, 89, 308 (2013). URL: http://www.jspf.or.jp/Journal/PDF_JSPF/jspf2013_05/jspf2013_05-308.pdf 査読無

[学会発表] (計5件)

- ① A. Sasaki, K. Nishihara, A. Sunahara, H. Furukawa, T. Nishikawa, F. Koike, “Modeling of laser plasma interaction for the EUV sources”, 2013 International symposium on extreme ultraviolet lithography, Nov. 9 2013, Toyama, Japan.
- ② A. Sasaki, K. Nishihara, A. Sunahara,

H. Furukawa, T. Nishikawa, F. Koike, “Atomic Process and quation of state of high Z plasmas for EUV sources and their effect to spatial and temporal evolution of plasmas”, The 8th international conference on inertial fusion science and applications, Sep. 9 2013, Nara, Japan.

- ③ A. Sasaki, “Percolation modeling of spatial and temporal structure formation of discharge during ionization of neutral medium and formation of plasmas”, 16th international workshop on radiative properties of hot dense matter”, 6 Nov. 2012, Santa Barbara, CA, U.S.A.
- ④ 佐々木明, “高Z多価イオンのモデリングの現状” 日本物理学会第67回年会領域1,2合同シンポジウム「高温プラズマにおける高Z多価イオンの分光と原子構造に関する研究の新展開」神戸(2012.3.25).
- ⑤ 佐々木明, “パーコレーション転移モデルによる放電の突発性・構造形成の解明” Plasma conference 2011 シンポジウム「プラズマ相転移: プラズマ・放電の突発性や構造形成を解く新しい概念とその応用」, 金沢(2011.11.24) .

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 原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・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・研究員

研究者番号: 40107131

砂原淳 (SUNAHARA, Atsushi)

財団法人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)

財団法人レーザー技術総合研究所・研究員

研究者番号: 70222271

西川亘 (NISHIKAWA, Takeshi)

岡山大学自然科学研究科・助教

研究者番号: 80243492

小池文博 (KOIKE, Fumihiro)

上智大学理工学部・その他

研究者番号: 90095505