

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03893

研究課題名（和文）高強度極端紫外(EUV)光で駆動される物質アブレーション現象の機構解明

研究課題名（英文）Study of dynamical extreme ultraviolet radiation driven material interactions

研究代表者

田中 のぞみ（Tanaka, Nozomi）

大阪大学・レーザー科学研究所・特任助教（常勤）

研究者番号：60581296

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：レーザー駆動プラズマ極端紫外(LPP-EUV)光源を用いて、高強度EUV光照射により生成される光電離/光解離水素プラズマの機構と特性を解明した。可視分光とレーザー誘起蛍光法を導入し、電子密度温度、各軌道状態の水素原子密度を求めた。各軌道の水素原子密度分布は衝突輻射モデルとの良い一致を示し、継続的なイオン化と再結合がプラズマ生成の主な過程であり、またプラズマが準定常状態を継続することを示した。更に駆動レーザー強度を変化させることでLPP光源からの放射波長領域を制御し、高強度では光電離過程による水素プラズマ生成、低強度では光解離過程による水素原子生成が主となることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではデータベースが豊富であり、モデル化が比較的容易な水素を対象とすることでプラズマ生成メカニズムから特性までを明らかにすることができた。短波長光照射による光電離プラズマは生成過程や特性がレーザーアブレーションプラズマとは大きく異なることから、例えばWarm dense matterなどの特殊な状態として学術的な研究意義が深い。一方EUV光照射による光電離水素プラズマはEUVリソグラフィ光源内に存在し、受動的ではあるが汚染除去に用いられている。本研究はEUV光源における水素プラズマの特性、そして汚染除去に向けた最適化の制御ノブを示したことに大きな社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：The mechanism and characteristics of photoionization/photodissociation hydrogen plasma produced by intense extreme ultraviolet (EUV) light were investigated by using a laser produced plasma (LPP) EUV light source. Visible spectroscopy and laser-induced fluorescence methods obtained the electron density, electron temperature, and the population density of hydrogen atoms for each orbital state. The population density showed good agreement with a collisional radiative model, indicating that continuous ionization and recombination are the main processes of plasma formation, and that the plasma is in a quasi-steady state. Further, 1D radiation hydrodynamic simulation showed that the emission spectrum of the LPP can be controlled, having peak from vacuum ultraviolet down to EUV, by controlling the drive laser intensity in the range of  $1\text{E}9\text{-}1\text{E}11\text{ W/cm}^2$ . Thus, we can selectively produce photoionized hydrogen plasma at high intensity, and photo-dissociated hydrogen atoms at low intensity.

研究分野：極端紫外光応用

キーワード：極端紫外(EUV)光 光電離プラズマ 物質アブレーション 分光計測

### 1. 研究開始当初の背景

近年軟 X 線照射を利用した物質の加工や改質、物質との相互作用に関する物理が注目されている。軟 X 線波長域の光-物質相互作用の特性は従来の紫外-可視-赤外域にわたるレーザーとは大きく異なる特徴を示すため、新たな加工技術や物理的な研究領域として期待が寄せられる。波長域 1-100 nm にわたる EUV 光は特に高い質量吸収係数を示し、これは物質への吸収が特に強いことを意味する。光子エネルギーが 100 eV 前後と高い EUV 光を物質に照射することで内殻電子の光電離が起こる。集光により照射強度が高い場合、光電子やオージェ電子(光電離の後)による近傍へのエネルギー付与を経てプラズマ生成に至るアブレーションが起こり、生成されるプラズマは固体密度を超える高密度かつ、数 eV 程度の低温であると考えられている。更にプラズマ発生後も EUV 光はプラズマを通り抜け、固体ターゲットに直接エネルギーを付与し続ける。従来のレーザーアブレーションでは古典吸収と呼ばれる、プラズマ中で固体表面から離れた低密度領域での逆制動放射によるエネルギー吸収と、電子熱伝導による固体加熱機構が主であることを考えると、全く異なる加熱メカニズムとプラズマ生成過程を考える必要がある。

ナノ秒パルス照射では、EUV パルス照射中には、固体領域の光電離とその結果生じた低速電子のエネルギー緩和が同時進行で起こる。アブレーションを起こす条件の一つである閾値を決定づける要因、生じたプラズマの特性などは未知の部分が多い。EUV 光を含む軟 X 線生成プラズマは、理学的には Warm dense matter 領域の物性研究、工学的にはパワーデバイス開発に欠かせないワイドバンドギャップ材料の効率的な直接加工や、極浅表面加工など新たな加工プロセスツールとして、学術的な価値が高い。しかしレーザーのように光源が市販されておらず、近年建設が進む X 線レーザーへのアクセスも限られる現在、その光-物質相互作用の原理に関する実験的研究は多くはない。特に「EUV アブレーションで生成されるプラズマはどのような特性を持つか。何が EUV 光による光電離プラズマを主とするアブレーションを決定づけるのか」という問いに対する答えは、今後リソグラフィ技術以降の EUV 光応用研究に進んでいく上で、ひとつの指針となりうる。

### 2. 研究の目的

本研究では、レーザー駆動高強度パルス EUV 光により物質のアブレーションを起こし、そのプラズマの時間分解光計測と放射流体コードによるプラズマパラメータのシミュレーションを手法として、EUV アブレーション機構のメカニズムを解明することを目的とする。具体的には温度密度パラメータの時間発展を計測し、EUV 光の光電離に起因するプラズマがナノ秒スケールの間にどのように変化していくか、光電離の結果生じた電子はプラズマ加熱にどのように関与するかなどを明らかにする。

これまでの EUV 光による物質アブレーションの研究では、時間的に積分された情報や事後の現象が多く対象とされてきた。例えばアブレーション痕の観測によるアブレーションメカニズムの研究[1]や、膨張イオンの距離が離れた位置でのエネルギー計測[2]が挙げられる。一方本研究では 1) 時間分解計測でプラズマの in-situ 計測を行う点、2) 実験室レベルで特殊な物性状態を研究することを可能にする点で新規性、独自性、創造性のある研究を行う。

### 3. 研究の方法

#### 3-1 EUV 光源とターゲット

本研究ではレーザー駆動プラズマ(Laser produced plasma: LPP)光源からのプラズマ放射光を集光し、ターゲットに高強度パルス EUV 光を照射する EUV 光源を用いた。ターゲットには水素ガスを用いた。水素プラズマはモデル化がしやすく、豊富なデータベースを備えるため、初期の光電離プラズマの研究には適切である。またガスであることから連続ターゲット供給が容易なことも利点である。

Fig. 1 に実験装置図を示す。駆動レーザー(Nd:YAG レーザー、1064 nm)を照射強度  $2 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> で固体キセノターゲットに集光照射し、キセノンプラズマを生成する。光源のキセノターゲットを固体状態に維持するため、液体窒素で低温に保たれた銅の回転ドラムターゲット上にキセノンガスを吹き付けて連続供給ターゲットとしている。[3]キセノンプラズマからは 8 mJ/sr の高エネルギー EUV 帯域内(8-20 nm)光が放射されている。キセノンプラズマから放射される EUV より超波長の光は、表面を金でコートした回転楕円鏡でターゲットに集光

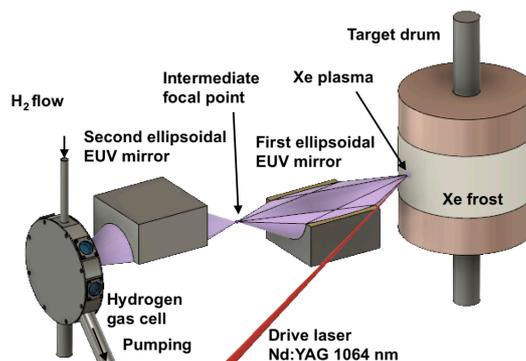


Fig. 1 Xe plasma EUV source and experimental setup.

される。光源からのデブリ抑制のため、本研究では2枚の回転楕円鏡を用いた。[4] 水素ガスターゲットに関しては、EUV光源内部はEUV光透過のために $10^{-2}$  Pa以下の低真空に保つ必要があるため、作動排気構造を持ったガスセルターゲットの設計製作、評価を行った。Fig. 2にターゲットガスセルと水素プラズマ計測系を示す。直径8 cmのガスセルには6個の計測ポートが取り付けられており、光電離プラズマの計測が可能である。集光EUV光は全面に取り付けられたアパチャから入射される。実験は水素圧力5 Paで行った。

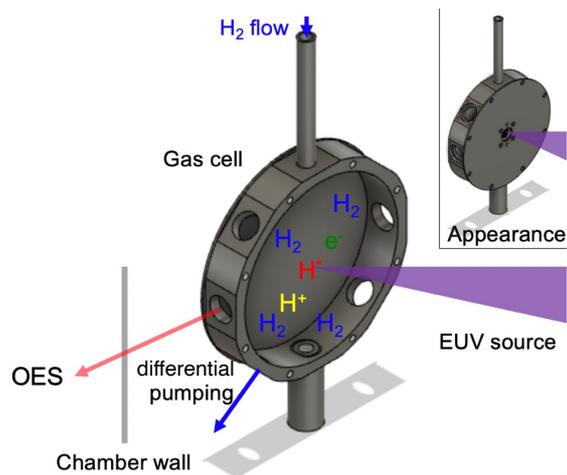


Fig. 2 Target gas cell and diagnostics.

### 3-2 Xe 放射スペクトル

透過型回折格子分光器を用いて、キセノンプラズマの真空紫外スペクトル計測を行った。一方でX線フォトダイオードを導入し、キセノンプラズマ放射を計測した。フィルタなどの無いX線フォトダイオードと、EUV光フィルタとしてZrフィルタを用いたX線フォトダイオードによる計測から、全帯域光とEUV光の比を駆動レーザー照射強度 $10^9$  W/cm<sup>2</sup>から $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>の範囲で求めることで、レーザー強度に対するスペクトルの変化を定性的に検証した。また一次元輻射流体コード、STAR1D [5]により同範囲における放射スペクトルを計算した。

### 3-3 プラズマ計測

可視分光計測を用いて、水素原子バルマー系列の輝線スペクトルを計測し、電子密度、主量子数 $n=2,3,4$ の中性水素原子密度分布を求めた。また水素プラズマの単色画像からプラズマ膨張速度を求め、電子温度を求めた。一方205 nmのプロンプレーザー(Fig.3)を構築し、レーザー誘起蛍光法により $n=1$ の中性水素原子密度を求めた。またそれぞれのパラメータに対し、100 ns程度までの時間発展データを取得した。

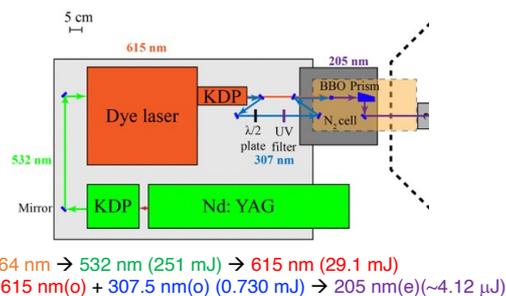


Fig. 3 LIF probe laser.

## 4. 研究成果

### 4-1 キセノンプラズマ放射の特性

透過型回折格子分光器を用いたキセノンプラズマの真空紫外スペクトル計測により、帯域外光として200 nm帯の光が多く含まれていることが分かった。一方 $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>から $10^9$  W/cm<sup>2</sup>に強度を下げると、帯域外光/帯域内光の割合が1倍から100倍程度まで増加した。これは、照射強度の低い領域ではキセノン放射のスペクトルが超波長側にシフトすることを意味する。一次元輻射流体コードによるシミュレーション結果は、 $10^8$  -  $10^9$  W/cm<sup>2</sup>の領域でスペクトルピークが完全に100 nm帯にシフトすることを示した。以上の実験及びシミュレーション結果により、水素分子の波長に対する断面積データ[6] (Fig. 4)からEUVおよび帯域外放射を水素ガスに集光照射した際、レーザー強度領域によって水素への光の吸収過程が全く異なり、 $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>台以上のレーザー照射では光電離過程、 $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>台を切ると光解離過程が主な吸収過程となることが示唆された。

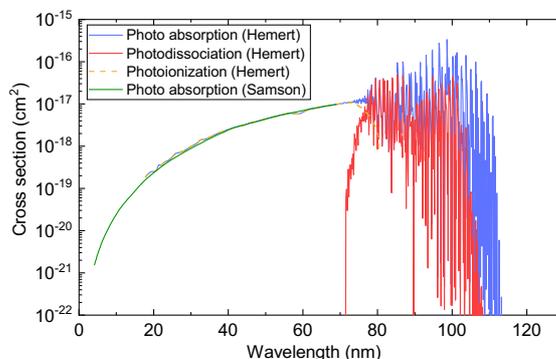


Fig. 4 Cross section of photon-hydrogen molecule interaction.

#### 4-2 光電離水素プラズマの特性と生成機構

レーザー強度  $4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$  の条件で放射される EUV ドミナント光を集光し、水素ガスに照射した水素光電離プラズマについて特性を調べた。

$H_\alpha$  および  $H_\beta$  スペクトルをガウス関数項とローレンツ関数項に逆畳み込みをして解析した。ガウス関数項のドップラー広がりから電子温度を求めた。また水素プラズマの二次元画像を計測し径方向の膨張速度からも電子温度を同定した結果、時間積分した電子温度はドップラー広がりから求めた電子温度と良い一致を示し、 $1.0 \pm 0.2 \text{ eV}$  であることが分かった。この実験結果は従来から指摘されてきた「EUV アブレーションではプラズマが低温で生成される」という予測を裏付ける。一方ローレンツ関数項のシュタルク広がりから電子密度は  $2.0 \pm 0.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$  であることが分かった。同様に受動分光によるそれぞれのバルマー線の強度から  $n=3,4,5$  の励起状態水素原子密度を求めた[7]。更にレーザー誘起蛍光法により

Table 1 Summary of plasma parameters obtained in this study.

Parameters	Values	Method
Electron & Ion Temperature	$1.0 \pm 0.2 \text{ eV}$	Doppler effect & Expansion
Electron density	$(2.0 \pm 0.4) \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$	Stark effect
Density of hydrogen radical at the p = 1 state	$4.8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$	Laser-induced fluorescence
Density of excited hydrogen radical at the p = 3 state	$1.7 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$	Absolute intensity of $H_\alpha$ emission
Density of excited hydrogen radical at the p = 4 state	$1.6 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$	Absolute intensity of $H_\beta$ emission
Density of excited hydrogen radical at the p = 5 state	$6.0 \times 10^6 \text{ cm}^{-3}$	Absolute intensity of $H_\gamma$ emission

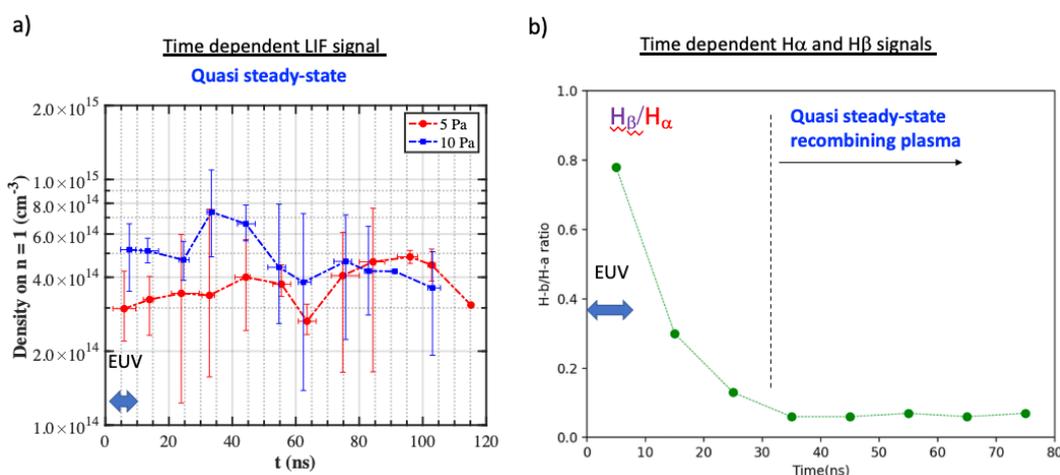


Fig. 5 a) Time dependence of LIF signal, and b) time dependence of hydrogen emission showing continuous quasi-steady state.

$n=1$  の中性水素原子密度を求めた。Table 1 に各パラメータのまとめを示す。本研究では、集光高強度パルス EUV 光を利用したことで、van der Horst らの先行研究[8]よりも 6 桁高い電子密度の光電離プラズマを得ることができた。

軌道ごとの水素原子密度分布は、イオン化と再結合を考慮した衝突輻射モデルを用いた理論計算との良い一致を示した。一方基底状態と励起状態の水素原子密度時間発展データにより、準定常状態のプラズマが継続していることが分かった(fig. 5)。継続的なイオン化と再結合がプラズマ生成の主な過程であり、準定常状態を継続すると結論づけられた。

以上の成果は国内学会、国際学会、学術論文、特許にて公開した他、The 18<sup>th</sup> International Conference on X-ray lasers において招待講演として報告を行う予定である。

#### 参考文献

1. M. Ishino et al., Appl. Phys. A, 110, 179 (2012)
2. N. Tanaka et al., Appl. Phys. Lett., 107, 114101 (2015)
3. M. Masuda et al., Appl. Phys. B, 119, 421, (2015)
4. N. Tanaka et al., High Energy Density Physics, 37 100865 (2020)
5. A. Sunahara and K. A. Tanaka, Fusion Eng. Des., 85, 935 (2010)
6. STRW database:  
[https://home.strw.leidenuniv.nl/~ewine/photo/display\\_h2\\_ca2bf3f6b7e18a508253e9521510a4b5.html](https://home.strw.leidenuniv.nl/~ewine/photo/display_h2_ca2bf3f6b7e18a508253e9521510a4b5.html)
7. C. Liu et al., Appl. Phys. Express, 15, 036002 (2021)
8. R M van der Horst et al., J. Phys. D: Appl. Phys., 49, 145203 (2016)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Liu Chang, Tanaka Nozomi, Zhu Baojun, Nishihara Katsunobu, Fujioka Shinsuke, Sik Kang Kyung, Suh Youngduk, Kim Jeong-Gil, Ozawa Ken, Kubo Minoru	4. 巻 15
2. 論文標題 Time-resolved measurement of radical populations in extreme-ultraviolet-light-induced hydrogen plasma	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 036002 ~ 036002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac4faa	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tanaka Nozomi, Wada Nao, Kageyama Yasuyuki, Nishimura Hiroaki	4. 巻 37
2. 論文標題 Mitigation of debris from a laser plasma EUV source and from focusing optics for thin film deposition by intense EUV radiation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 High Energy Density Physics	6. 最初と最後の頁 100865 ~ 100865
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.hedp.2020.100865	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 2件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Nozomi Tanaka, Yubo Wang, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Atsushi Sunahara, Tomoyuki Johzaki, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Shinji Ueyama, Ken Ozawa
2. 発表標題 Comparison of focusing optics for extreme vacuum ultraviolet and vacuum ultraviolet emission from laser produced plasma
3. 学会等名 第70回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 James Edward Hernandez, Nozomi Tanaka, Yubo Wang, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Atsushi Sunahara, Tomoyuki Johzaki, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Shinji Ueyama, Ken Ozawa
2. 発表標題 Spectroscopic diagnostics of H-radicals formed by an extreme ultraviolet light source generated with a laser produced plasma
3. 学会等名 第70回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Nozomi Tanaka, Yubo Wang, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Atsushi Sunahara, Tomoyuki Johzaki, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Shinji Ueyama, Ken Ozawa
2. 発表標題 Characteristics of the extreme ultraviolet spectrum from a laser produced plasma
3. 学会等名 第83回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yubo Wang, Nozomi Tanaka, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Atsushi Sunahara, Tomoyuki Johzaki, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Shinji Ueyama, Ken Ozawa
2. 発表標題 A high-transmittance EUV-VUV light focusing system with high intensity with Schwarzschild objective (S0) and laser-plasma light source
3. 学会等名 第83回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nozomi Tanaka, Baojun Zhu, Chang Liu, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Ken Ozawa, Minoru Kubo
2. 発表標題 Cleaning of tin layer on EUV multilayer mirrors by the EUV induced hydrogen plasma ”,
3. 学会等名 第68回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Chang Liu, Nozomi Tanaka, Baojun Zhu, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Ken Ozawa, Minoru Kubo
2. 発表標題 Optical Emission Spectroscopy (OES) measurement of EUV-induced plasma parameters in hydrogen
3. 学会等名 第68回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Baojun Zhu, Chang Liu, Nozomi Tanaka, Katsunobu Nishihara, Shinsuke Fujioka, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Ken Ozawa, Minoru Kubo
2. 発表標題 Two-photon laser-induced fluorescence of hydrogen atom in EUV photoionized plasma
3. 学会等名 第68回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nozomi Tanaka, Baojun Zhu, Chang Liu, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Ken Ozawa, Takeshi Takagi, Minoru Kubo, Shinsuke Fujioka
2. 発表標題 Cleaning of Sn layer in hydrogen plasma induced by intense pulsed EUV radiation
3. 学会等名 第67回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Chang Liu, Nozomi Tanaka, Baojun Zhu, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Ken Ozawa, Takeshi Takagi, Minoru Kubo, Shinsuke Fujioka
2. 発表標題 Spectroscopic diagnostics of hydrogen radicals in EUV induced hydrogen plasma
3. 学会等名 第67回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Baojun Zhu, Chang Liu, Nozomi Tanaka, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, Ken Ozawa, Takeshi Takagi, Minoru Kubo, Shinsuke Fujioka
2. 発表標題 Two-photon laser-induced fluorescence of hydrogen atom in EUV photoionized plasma
3. 学会等名 第67回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Tanaka, Y. Wang, K. Nishihara, S. Fujioka, A. Sunahara, T. Johzaki, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, S. Ueyama, K. Ozawa
2. 発表標題 Actively controlled radical production in a photo-ionized hydrogen plasma for tin contamination cleaning
3. 学会等名 ”, 6th Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 N. Tanaka, B. Zhu, C. Liu, Y. Wang, K. Nishihara, S. Fujioka, Kyung Sik Kang, Youngduk Suh, Jeong-Gil Kim, K. Ozawa, M. Kubo
2. 発表標題 Comprehensive measurements of hydrogen radicals in hydrogen plasma induced by intense extreme ultraviolet radiation
3. 学会等名 The 30th International Toki Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 露光装置及び汚染除去装置	発明者 田中のぞみ 他7名	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-148245	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------