

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：24506

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2014

課題番号：23654204

研究課題名(和文)連続供給固体希ガスターゲットによるレーザープラズマ真空紫外光源の研究

研究課題名(英文)Development of laser plasma VUV source using solid rare gas targets supplying continuously

研究代表者

天野 壮 (Amano, Sho)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・助教

研究者番号：50271200

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：真空紫外領域で新型の小型・高出力光源として連続発生レーザープラズマ光源を開発した。プラズマターゲット材として冷却固化した希ガスを選び、これを連続供給する装置の開発に成功した。これによって供給されるキセノン、クリプトン、アルゴンの固体ターゲットで、Nd:YAG Qスイッチレーザーの10Hzまでの繰り返しに対応した安定なプラズマパルス連続発生に成功した。その真空紫外発光スペクトルが明らかにされ、連続的なブロード発光に固有イオンのラインスペクトルが乗っている形状であった。

研究成果の概要(英文)：A laser plasma source, which can generate continuously repetitive pulses, has been developed for a novel compact and powerful VUV source. We successfully developed a one-dimensionally translating substrate system with a closed He gas cryostat that can continuously supply various cryogenic targets for ~10 Hz laser pulses. Solid Ar, Kr and Xe layers were formed and a Nd:YAG Q-switched laser irradiated them, it was shown that stable output power was achieved continuously from the plasma emission at frequencies of 1-10 Hz. VUV Spectra of these emissions showed specific ion's lines on continuous broad emissions.

研究分野：レーザー理工学

キーワード：レーザープラズマ光源 真空紫外光 固体希ガス 極低温

### 1. 研究開始当初の背景

真空紫外からX線領域の連続発生光源として広く加速器放射光施設が使われているが、産業応用上、装置が大きくコストも高いため代替の光源が求められている。この要求を満たすものが、レーザープラズマ光源である。 $10^{10}\text{W}/\text{cm}^2$ 以上の高強度パルスレーザーを、種々の物質(ターゲット)に照射して生成される高温高密度プラズマからは、そのターゲット材の種類により、可視からX線領域まで様々な波長の光を放射する。このため、小型な高輝度光源として産業応用上期待が集まり、特に次世代高集積半導体製造用の極短紫外リソグラフィ用光源としての研究が近年盛んに行なわれている。我々もこのリソグラフィ光源用として、それまで13nmで発光する固体キセノン(Xe)によるレーザープラズマ光源の開発研究を行ってきた。その結果、13nm@2%バンド幅で1W、発光利用帯域を5-17nmまで拡大すれば、20Wの高平均出力の極短紫外光源開発に成功した。これらの研究を受け、ターゲット材を変えてプラズマ発光波長域を拡大して、より産業応用が広がる今までに無い高輝度・高出力真空紫外光源(100-200nm)が出来ないかとの着想に至り、本研究を開始した。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、産業応用上加速器放射光源の代替となりえる、真空紫外領域で今までに無い波長をカバーする新型の小型・高出力の連続発生レーザープラズマ光源を開発する事である。

### 3. 研究の方法

連続発生プラズマ光を達成するには、繰り返しレーザーパルスに対応してプラズマターゲットを連続供給できる装置が必須であり、その開発から始めた。ここでプラズマターゲット材としては冷却固化した希ガスを選んだ。希ガスは、プラズマ化した際の光源周辺の光学系に付着しないというデポジションフリーターゲットであり、いわゆる「プラズマデブリ問題」が少ない。そのため連続運転が出来て産業応用上優位である。また発光効率を上げるために固化して密度を上げる事とした。ターゲット材を変えて発光波長域を拡大するため凝固点の低いArまで固化できる様に、冷却装置としてはヘリウムガス密封式極低温冷凍機を用いる事とした。これにより固化した希ガスターゲットをレーザー照射点に連続供給する駆動機構を備えたターゲット供給装置の開発を行った。この開発したターゲット連続供給装置と市販のNd:YAG Qスイッチレーザーを用いて、レーザープラズマ光源を構築した。連続発生されたレーザープラズマ光は、真空紫外分光システム等を用いて、その真空紫外領域での発光特性を明らかにした。

### 4. 研究成果

#### (1) ターゲット連続供給装置

固体希ガスターゲット連続供給装置には、ターゲット連続供給する駆動物を極低温にしてこれを維持するという性能が要求され、これが技術的課題であった。思考錯誤の末、図1に示す形態にたどり着いた。ガスの固体層を生成するためのターゲット銅板が、ヘリウムガス密封式極低温冷凍機(クライオスタット)先端にとりつけられており冷却される。ターゲット銅板には温度センサーが取り付けられており、最低到達温度は15Kであった。この銅板表面にターゲットガスを吹き付け、冷却固化させたクライオターゲット層を生成する。ターゲット層が着いた銅板を、クライオスタットごと上下方向の1次元往復運動させる事により、レーザー照射点に常にフレッシュなターゲット固化層を連続供給する。上下方向に60mmの範囲を0~11mm/secの速度で可変でき往復運動する。開口部2カ所のワイパーは、ターゲット層の厚みを一定にすると共に、レーザー照射によってできたクレータにターゲット材を掻き集めクレータ修復速度を上げる効果をもっている。銅板表面とワイパーとの隙間は500 $\mu\text{m}$ に調節され、従って厚さ500 $\mu\text{m}$ のターゲット層が開口部のレーザー照射領域に送られるが、この厚さで銅板にレーザー照射ダメージが発生することはない。

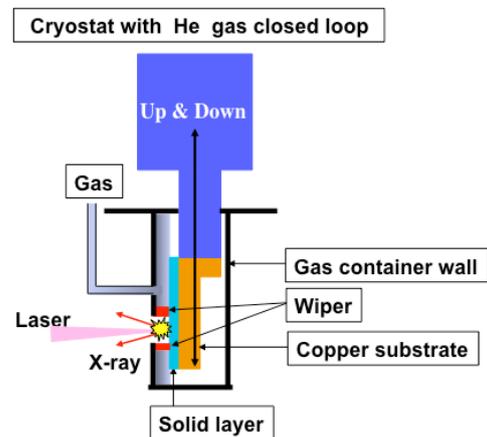


図1 連続固体希ガスターゲット供給装置

#### (2) 連続動作条件とターゲット膜特性

レーザー連続照射に対応するための銅板の動作パラメータについて述べる。条件は、「レーザーショット毎に新たなターゲット面を供給して重ね打ちしない。即ちレーザーショットによりターゲット上にできたクレータを、次にその位置をショットするまでに上下移動中に修復しておく。」である。そのため、レーザーショットで出来るクレータ直

径を  $D$ 、その深さを  $\delta$ 、ターゲット膜の成長率を  $vd$ 、レーザーパルスの周波数を  $f$ 、ターゲット上下のスキャン幅を  $L$  とすると、ターゲットを上下に動かすスキャン速度  $V$  は次の関係式を満たさなければならない。

$$2fD \leq V \leq \frac{4Lv_d}{\delta} \quad (1)$$

この式を満たす周波数  $f$  と速度  $V$  を決めるため、クレータ直径  $D$  と深さ  $\delta$  のレーザーエネルギー依存性、膜成長率  $vd$  のガス流量依存性を実験により求めた。直径  $D$  は表面に形成されるクレータのサイズを顕微鏡で観測し、その深さ  $\delta$  はターゲットを剥離するのに必要なパルスショット数により見積もった。成長率  $vd$  は、形成されていく固体層を真横から顕微鏡システムでモニターしてその膜厚を測定した。それぞれの測定結果を図 2、3、4 に示す。

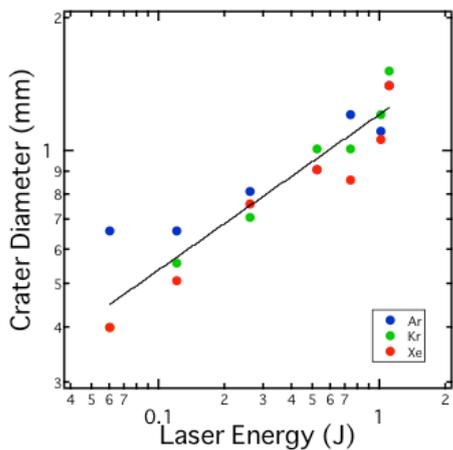


図 2 レーザークレーター直径

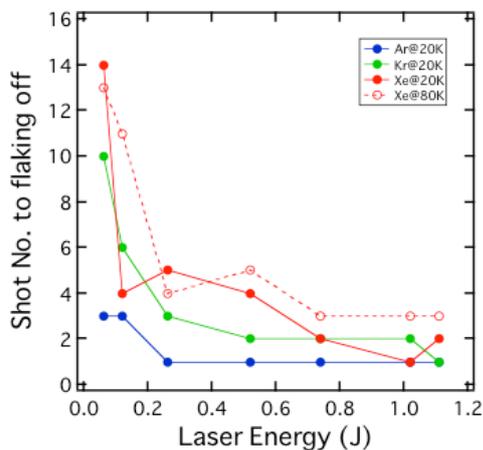


図 3 ターゲット剥離ショット数

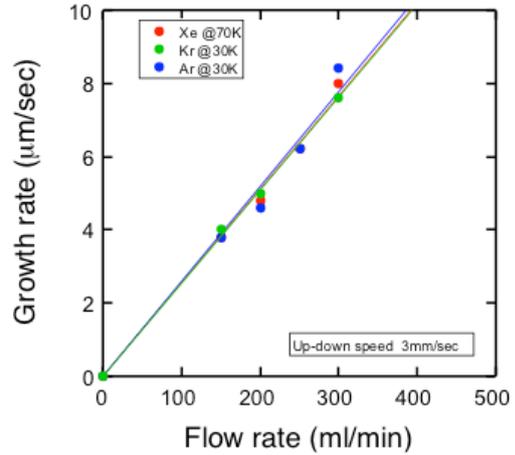


図 4 ターゲット膜成長率

### (3) レーザープラズマ光連続発生

クレータ直径  $D$  と深さ  $\delta$ 、膜成長率  $vd$  が求められたので、レーザー繰り返し周波数  $f$  とターゲットスキャン速度  $V$  を式 (1) より求め、ターゲット装置連続動作パラメータを決めた。ターゲットガスに Ar を選んだ場合、例えば、レーザーエネルギー  $E=1\text{J}$ 、繰り返し数  $f=1\text{Hz}$  の場合、ガス流量  $250\text{mL/min}$  ( $vd=6\text{mm/s}$ )、移動速度  $V=4\text{mm/s}$ 、またレーザーエネルギー  $E=0.1\text{J}$ 、繰り返し数  $f=10\text{Hz}$  の場合には、ガス流量  $400\text{mL/min}$  ( $vd=10\text{mm/s}$ )、移動速度  $V=11\text{mm/s}$  とすれば良い事が判る。この動作パラメータで実際にターゲット連続供給してプラズマを連続発生させた。そのプラズマ連続発光をダイオードでモニターして確認した結果が図 5 である。1Hz と 10Hz 動作共、10 往復程度移動しているが、上下の折り返しの影響もなく安定した出力が得られた。これは設計通り、レーザーショット毎に修復されたフレッシュなターゲット面を供給している事を表しており、デザイン則が確立できたと言える。ターゲットガスが Kr, Xe の場合でも同様なプラズマ光連続発生が得られた。

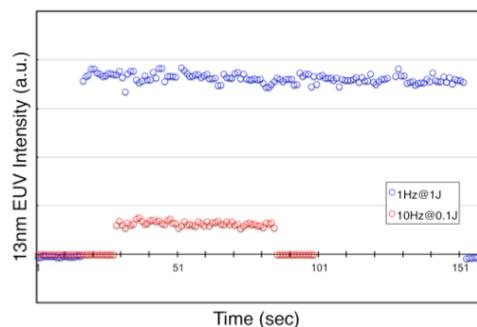


図 5 Ar 膜による連続パルス発生動作

#### (4) VUV スペクトル特性

連続発生に成功したプラズマ真空紫外光パルスの発光スペクトルを開発した分光システムで調べた。図6に、固体 Ar, Kr, Xe ターゲットからの 100-200 nm プラズマ発光スペクトルを、また比較のために、チャンバ内に 1atm の Ar, Kr ガスを充填した時のプラズマ発光スペクトルも示す。固体ターゲットでは自己吸収がほとんど無いため、気体ターゲットに比べ連続的なブロード発光に固有イオンの強いラインスペクトルが乗っており、短波長側の強度が強い。そのラインスペクトルは I ~ VI イオンからであり、絶対波長同定ができた。これらピーク波長はターゲット材に依存するため、適当なターゲット材により、応用に必要な波長が求まる。発光効率最適化のためレーザー強度、エネルギー依存性を調べたが、強い依存性は認められなかった。

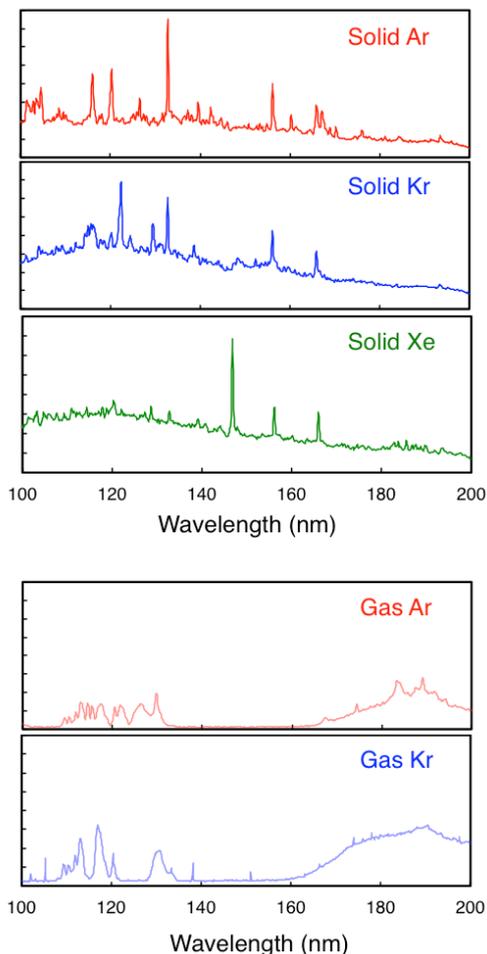


図6 各ターゲットの VUV スペクトル

以上、固体希ガスターゲットを連続供給できる装置の開発に成功し、市販の Nd:YAG レーザー照射によって、10Hz までの繰り返しレーザープラズマ真空紫外光パルスの連続発生を達成した。本光源は今までにない強力な

小型真空紫外光源であり、放射光光源に代わり産業応用上有用である。例えば、半導体製造用ガス分析やこの波長帯の吸収を利用した物質の表面改質、表面クリーニング、微細加工など新しい産業応用の発展に寄与するものと思われる。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- ① Sho Amano, Laser plasma cryogenic target on translating substrate for generation of continuously repetitive EUV and soft X-ray pulses, Rev. Sci. Instrum., 査読有, Vol. 85, 2014, 063104  
DOI:10.1063/1.4879975

〔学会発表〕(計 6 件)

- ① Sho Amano, Continuous Generation of Laser Plasma x-ray using Solid Rare Gas Targets, The 4<sup>th</sup> Advanced Lasers and Photon Source Conference (ALPS' 15), 2015 年 4 月 24 日, 横浜メッセ (神奈川県・横浜市)
- ② 天野 壯, 固体希ガスによる連続発生レーザープラズマ VUV ~ X 線原, Plasma Conference 2014, 2014 年 11 月 21 日, 朱鷺メッセ (新潟県・新潟市)
- ③ 天野 壯, 極低温冷凍機による連続供給レーザープラズマターゲット (III), 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 2013 年 9 月 18 日, 同志社大学 (京都府・京田辺市)
- ④ 天野 壯, 希ガスクライオターゲットによるレーザープラズマ X 線の連続発生, レーザー学会学術講演会第 33 回年次大会, 2013 年 1 月 28 日, 姫路商工会議所 (兵庫県・姫路市)
- ⑤ 天野 壯, 極低温冷凍機による連続供給レーザープラズマターゲット (II), 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 12 日, 愛媛大学 (愛媛県・松山市)
- ⑥ 天野 壯, 極低温冷凍機による連続供給レーザープラズマターゲット, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 2012 年 3 月 17 日, 早稲田大学 (東京都新宿区)

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

天野 壯 (AMANO, Sho)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・助教

研究者番号: 50271200