

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25800303

研究課題名(和文) 極端紫外(EUV)光アブレーション粒子計測によるEUVプラズマ特性の解明

研究課題名(英文) Study of plasma properties of EUV material ablation by particle diagnostics

研究代表者

田中 のぞみ(Tanaka, Nozomi)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センタ・特任研究員(常勤)

研究者番号：60581296

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：波長数-数10 nmの領域にある極端紫外(EUV)光の応用研究が注目されてきている。EUV光は原理的に従来の長波長レーザーとは一線を画す特徴的な物質との相互作用を起こす。特にEUV光による物質アブレーションは材料加工など様々な分野での応用が期待できるが、その物理的な機構や従来のレーザーアブレーションとの差異はほとんど明らかにされていなかった。

本研究では、アブレーションの最終過程である膨張粒子の実験的計測とプラズマパラメータのモデル計算を用いて、原理的に予測されうる高密度低温度のプラズマの生成、低い電離度、直線的なプラズマ膨張など、レーザーとは明確に異なるアブレーションメカニズムを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Recently application study of extreme ultraviolet (EUV) light has attracted much attention. The interaction of EUV light and matter principally differs from that of conventional lasers with longer wavelength. Application use of EUV ablation of materials, such for nano-machining or analytical methods, could be one of the technological innovation. However, the underlying physics and noticeable difference from laser ablation had not been much studied yet.

This study clarified noticeable difference in ablation process, such as formation of high-density and low-temperature plasma, formation of low-charged expanding ions, and one dimensional plasma expansion by measurements of expanding plasma particles and calculation of plasma parameters.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：極端紫外(EUV)光 物質アブレーション プラズマ膨張 粒子計測 物質加熱

1. 研究開始当初の背景

高強度レーザーにより生成されたプラズマからは極端紫外(EUV)光、X線、ガンマ線などの高強度電磁場や、数 eV から数 MeV 級のエネルギーを有する粒子が放射される。これらレーザー駆動光量子は高温高密度物質の診断や、バイオメディカル応用、放射線応用、産業応用などへ広がりを見せている。波長数十 nm 領域にある EUV 光においては近年リソグラフィ技術の発展に伴い、高効率、安定な光源開発が精力的に行われてきており、特にレーザー駆動 EUV 光源へのアクセスが年々容易になってきている。さらに近年建設が進んでいる X 線自由電子レーザーの普及も併い、リソグラフィ技術に限らず EUV 波長領域光の応用利用に向けた研究が各方面で開始されている。

EUV 光は可視、紫外レーザーと異なり、光子エネルギーが 100 eV 付近と高く、内殻準位の電子を含むイオン化が可能である。また臨界密度が固体密度を超えるため、物質へのエネルギー付与のメカニズムが原理的にレーザーと大きく異なる。特に高強度集光パルスによる物質アブレーションにおいては、レーザーアブレーション法と比較して加熱や膨張の機構が顕著に異なることが予測される。その特性を生かし、材料加工などの分野での利用が可能であるが、光源開発や材料加工などの研究[Y. Matsuoka, S. Fujioka, and H. Nishimura, Appl. Phys. Express, 4, 056201 (2011), T. Makimura et.al, J. Phys. Conf. Ser. 59 279 (2007)]と比較して、粒子の挙動を始めとする EUV アブレーションプラズマ中の物理機構に関する実験的研究を行った例はいまだ少ない。今後 EUV 光と材料相互作用を能動的に制御し、加工技術に応用していく上で、これらのアブレーションプラズマ、膨張粒子の特性を系統的に計測し、EUV 光加熱された材料の物性状態を明らかにする物理モデルを構築する事、また従来のレーザーアブレーションとの相違点や有位点を明らかにすることは、EUV 光源利用にとって重要な課題の一つである。

申請者は、様々な材料表面からの反射粒子、スパッタ粒子などの計測、またプラズマ中の荷電粒子及び中性粒子の計測を行って来た経験をふまえ、これらの計測技術を EUV アブレーション粒子計測に応用することを着想した。一方、大阪大学レーザーエネルギー学研究所の西村教授らのグループでは純 EUV 光によるアブレーションに成功しており、この光源と申請者のこれまでの研究で培ってきた直接的な粒子計測手法を組み合わせることにより、EUV プラズマの粒子の特性を明らかにし、その物理機構の解明につなげるという着想に至った。

2. 研究の目的

(1) 本研究では高強度パルス EUV 光を物質に照射した際のアブレーションの加熱からプラズマ膨張のメカニズムを、粒子計測を中心とした実験的手法と、モデル計算を用いて明らかにすることを目的とする。

(2) 従来のレーザー加工に代わり、EUV 光利用の今後の可能性を検討するには、従来の手法との相違点を明らかにすることが重要である。そこで、代表的なレーザーとして 1064 nm の Nd:YAG レーザーによる物質アブレーションを行い、プラズマ等特性の比較を行うことで EUV 光特有の現象を明確にする。

3. 研究の方法

(1) EUV 光源と集光光学系

本研究に用いる EUV 光源として、図 1 に示す固体キセノン(Xe)をターゲットとしたレーザー駆動プラズマ EUV 光源を用いた。レーザー駆動 Xe プラズマから放射される広帯域(11-20 nm)の EUV 光を全反射光学系で集光するため、10 mJ 以上の EUV 光エネルギーをサンプルに照射することが可能である。これは一般的な X 線レーザーなどと比較して 3 桁程高い照射エネルギーであり、集光することで物質をアブレーションすることが容易である[M. Masuda et al., Applied Physics B: Lasers and Optics, 119, 421, (2015)]。サンプルには EUV 光をスポット径 $\sim 150 \mu\text{m}$ 、照射強度 $\sim 5 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ で集光照射した。同じスポット径、照射強度で Nd: YAG レーザーを用いたアブレーションも行った。

アブレーションを行う材料には Xe EUV 波長領域に Si の L 吸収端があることから、基礎研究に適切だと判断し、Si (111)を選択した。本報告書に示す物質アブレーションの結果は全て Si のアブレーションである。

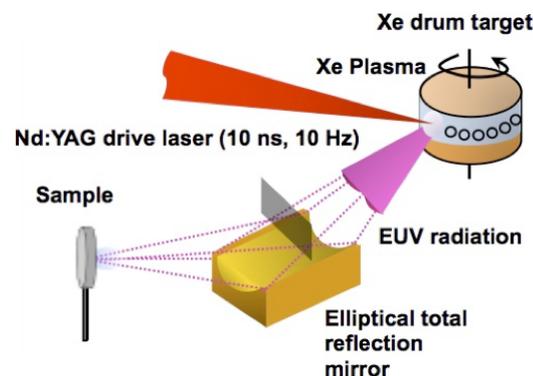


図 1 EUV 光源と集光系

(2) 膨張粒子の計測

高強度光による高温高密度の物質アブレーションプラズマの計測には、一般的に分光などの光計測がよく用いられているが、EUV 光による物質アブレーションでは固体密度

付近の超高密度プラズマが生成されるため、可視分光、真空紫外分光では、臨界密度の理由から高密度領域の情報を得る事が困難である。先行研究において、可視および真空紫外分光による EUV アブレーションとレーザーアブレーションのプラズマ分光を行ったが、スペクトルには決定的な差異が見られなかった[N. Tanaka et al., J. Phys.: Conf. Ser., **688** 012122 (2016)]。そこで、アブレーションの最終過程としてのプラズマ周辺、および膨張粒子を実験的に計測し、モデル計算との比較を行う事で、加熱からプラズマ膨張に至るメカニズムを明らかにするという方法を用いた。プラズマパラメータの計算には一次元流体コード、Star1D [A. Sunahara and K. A. Tanaka, Fusion Eng. Des. **85**, 935 (2010)]を用いた。

4. 研究成果

(1) 図2にStar1Dコードによるプラスチックターゲットに対するアブレーションプラズマパラメータの計算結果を示す。プラスチックターゲットに対する状態方程式は長年のレーザー核融合研究に用いられてきており、新たにSiに対するシミュレーションを行うよりは信頼性が高い。EUVアブレーションの場合、材料表面より内側に高密度低温のプラズマが生成されていることが分かる。同時に、光子エネルギーがこの高密度領域に集中して付与されている。このことから、EUV光はプラズマを透過し、固体密度領域まで到達している事が分かる。一方レーザーアブレーションの場合、材料の外側の広い領域に低密度高温のプラズマが生成されており、エネルギーが主にこの部分に付与されている。これは、プラズマ中にレーザー波長に対する臨界密度領域が存在するため、光子エネルギーは逆制動放射により古典的にプラズマに付与されているためである。

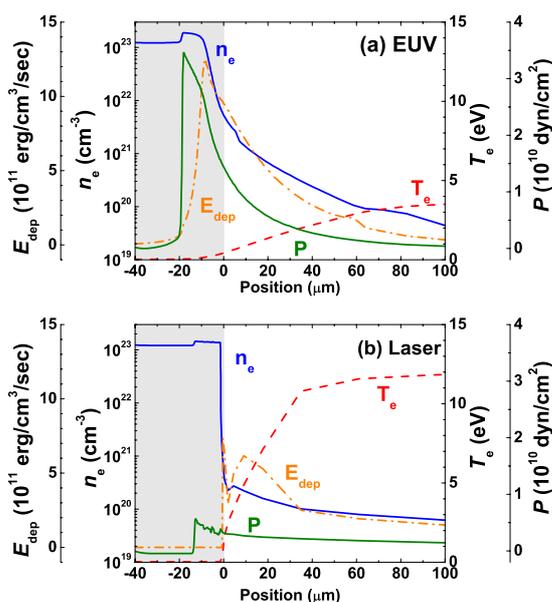


図2 C₈H₈に対するアブレーションプラズマパラメータの計算結果。

(2) EUVアブレーションプラズマの膨張過程の解明。

アブレーションプラズマから膨張するイオンのエネルギースペクトルの角度分布計測を、ファラデーカップ型チャージコレクタを用いてTOF(Time of Flight)法により行った。イオン強度の角度分布はEUVアブレーションの方がレーザーアブレーションよりも狭い分布を示した。また、全ての角度におけるイオンの運動エネルギースペクトルは、EUVアブレーションとレーザーアブレーションで顕著な違いを示した(図3)。Murakamiらによる膨張ジオメトリを含むプラズマ膨張モデル[M. Murakami, et al., Phys. Plasmas **12**, 062706 (2005)]を用いて考察を行ったところ膨張のジオメトリを決定づけるパラメータがEUVとレーザーで異なり、EUVの場合は一次元平板的に、レーザーの場合は一次元球対象的にプラズマが膨張していると考えられた。

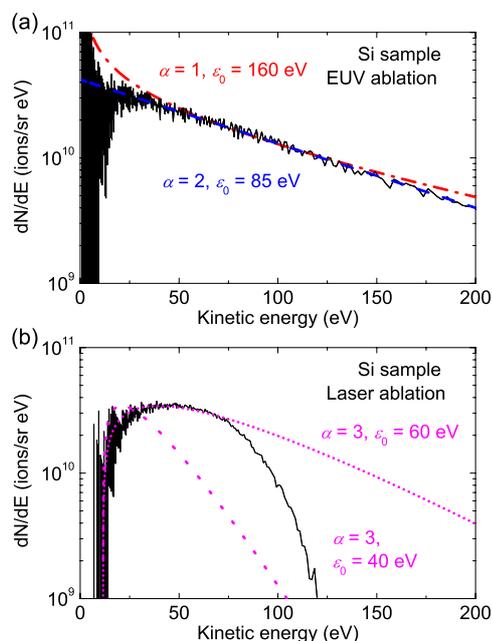


図3 膨張イオンエネルギースペクトル

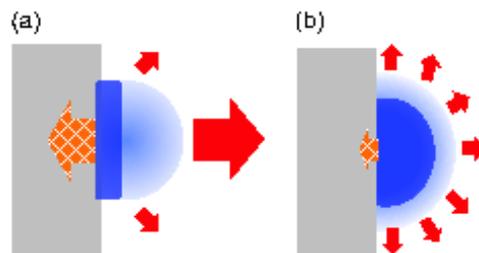


図4 EUV及びレーザーアブレーションに対するプラズマ膨張モデル

図2に示すプラズマパラメータのシミュレーション結果のうち、EUV の場合は狭い(薄い)領域に高密度のプラズマが存在し、シャープな圧力ピークと大きな圧力勾配がかかっていることが分かる。随って、EUV アブレーションの場合は円盤状の高密度高圧なプラズマが生成され、サンプル垂直方向に膨張の力が働いたと考えられる(図4)。[N. Tanaka et al., Appl. Phys. Lett., **107**, 114101 (2015)]。

(3) プラズマ膨張イオンの質量価数分析による EUV アブレーション、レーザーアブレーションの加熱機構の差異の解明。

プラズマパラメータの差異は、生成されるイオンの電離度や価数に影響することが予測されることから、当初から質量価数分離による計測を行う予定であった。膨張するイオンの速度を考えた時、磁場掃引型の分析器よりは、電場磁場を用いてスクリーン状にそれぞれの m/q に対するエネルギースペクトルを投影するタイプの質量価数分析器であるトムソンパラボラ分析器が適切であると判断した。EUV アブレーション及びレーザーアブレーションをした Si サンプル垂直方向で検出されたイオンのエネルギースペクトルを図5に示す。実直線は等エネルギー線、実線パラボラ曲線は軌道計算による理論値フィッティングである。

EUV アブレーションでは Si の 1 価のみ、レーザーアブレーションの場合は 3 価までのイオンが検出された。図2のプラズマパラメ

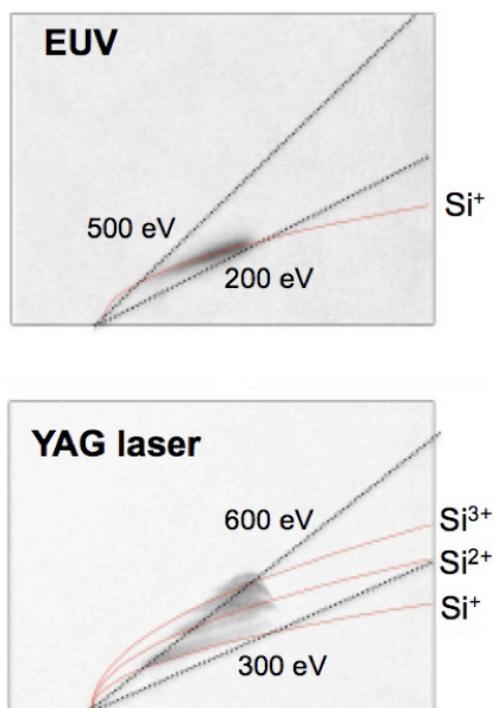


図5 トムソンパラボラ分析器によるイオンスペクトル

ータのうち、電子温度に着目すると、材料表面付近では、EUVの方が圧倒的に低い電子温度を示しており、電子衝突による原子、イオンの電離が EUV では進みにくいことが分かる。この実験結果は Star1D コードによる平均価数の計算結果とも一致し、EUV アブレーションでは、高密度低温プラズマが生成され、電離が進まないことを実験的に明らかにしたと言える。このような特徴は、原子やイオンの電離にエネルギーを利用することを避けるような応用研究に有位に働くと考えられる。

本研究では粒子計測の手法を用い、モデル計算を利用することで、実験的に EUV アブレーションとレーザーアブレーションの差異を明らかにした。更にそれぞれに対するアブレーションメカニズムやプロセスを考察した。このように系統的に、かつ包括的な EUV アブレーションメカニズムを研究した例は他には無く、今後の EUV 応用研究にとって革新的な研究結果を得た。以上の成果により本研究は当初の研究目的を順調に達成したと言える。

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3件)

- ① N. Tanaka, K. Hane, H. Shikata, M. Masuda, K. Nagatomi, A. Sunahara, M. Yoshida, S. Fujioka, H. Nishimura, “Spectroscopic measurements of ablation plasma generated with laser-driven intense extreme ultraviolet (EUV) light”, Journal of Physics: Conference Series, **688** 012122 (2016), (査読無)
DOI: 10.1088/1742-6596/688/1/012122
- ② Nozomi Tanaka, Masaya Masuda, Ryo Deguchi, Masakatsu Murakami, Atsushi Sunahara, Shinsuke Fujioka, Akifumi Yogo, and Hiroaki Nishimura, “Characterization of material ablation driven by laser generated intense extreme ultraviolet light”, Applied Physics Letters, **107**, issue 11, 114101 (2015.09.14), (査読有)
DOI: 10.1063/1.4930958
- ③ M. Masuda, N. Tanaka, K. Hane, A. Sunahara, S. Fujioka, and H. Nishimura, “Spectroscopic observation of ablation plasma generated with a laser-driven extreme ultraviolet light source”, Applied Physics B: Lasers and Optics, **119**, 421, (2015), (査読有)
DOI: 10.1007/x00340-015-6041-0

〔学会発表〕(計 9 件)

国際学会

- ① R. Deguchi, N. Tanaka, N. Wada, A. Sunahara, M. Murakami, A. Yogo, and H. Nishimura, “Characterization of ion plumes generated by laser-driven intense extreme ultraviolet (EUV) light”, The 15th International Conference on X-Ray Lasers, May 24th, 2016, Nara (Poster presentation)
- ② N. Tanaka, R. Deguchi, A. Sunahara, M. Murakami, A. Yogo, and H. Nishimura, “Plasma Expansion from Material Ablation by Intense Laser Driven Extreme Ultraviolet Light” The 9th International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (IFSA2015), September 21st, 2015, Bellevue (Poster presentation)
- ③ N. Tanaka, M. Masuda, M. Murakami, A. Sunahara, S. Fujioka, H. Nishimura, “Ion expansion from extreme ultraviolet (EUV) and laser ablation plasmas”, 9th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications, October 1st, 2014, Matsue, Japan (Oral presentation)
- ④ M. Masuda, N. Tanaka, A. Sunahara, S. Fujioka, and H. Nishimura, “spectroscopic observation of ablation plasma generated with a laser-driven extreme ultraviolet (EUV) light source”, 9th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications, October 1st, 2014, Matsue, Japan (Poster presentation)
- ④ N. Tanaka, K. Hane, H. Shikata, M. Masuda, K. Nagatomi, A. Sunahara, M. Yoshida, S. Fujioka, and H. Nishimura, “Spectroscopic measurements of ablation plasma generated with laser-driven intense extreme ultraviolet (EUV) light”, The 8th International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications, September 13th, 2013, Nara, Japan (Oral presentation)

国内学会

- ⑤ 出口亮, 田中のぞみ, 増田将也, 砂原淳, 余語覚文, 西村博明, “レーザー駆動 EUV 光による物質アブレーションにおけるイオンエネルギーと価数診断”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京都目黒区, 2016 年 3 月 20 日 (口頭発表)
- ⑥ 出口亮, 田中のぞみ, 増田将也, 砂原淳, 余語覚文, 西村博明, “レーザー駆動 EUV 光による物質アブレーションにおけるイオン膨張に関する研究”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川県平塚市, 2015 年 3 月 11 日 (口頭発表)

- ⑦ 田中のぞみ, 増田将也, 出口亮, 砂原淳, 村上匡且, 余語覚文, 藤岡慎介, 西村博明, “レーザー駆動集光 EUV 光による物質アブレーションとその応用”, Plasma Conference 2014, 新潟県新潟市, 2014 年 11 月 21 日 (口頭発表)
- ⑧ 増田将也, 田中のぞみ, 永富健介, 吉田実, 砂原淳, 藤岡慎介, 西村博明, “光・粒子を用いたレーザー駆動 EUV 光源アブレーションプルームの診断”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川県相模原市, 2014 年 3 月 19 日(口頭発表)
- ⑨ 田中のぞみ, 増田将也, 永富健介, 砂原淳, 吉田実, 藤岡慎介, 西村博明, “光・粒子計測を用いた集光 EUV 及びレーザーによるアブレーションの比較”, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 京都府京田辺市, 2013 年 9 月 17 日 (口頭発表)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 のぞみ (TANAKA, Nozomi)
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 : 60581296

(2) 研究協力者

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

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

砂原 淳 (SUNAHARA, Atsushi)
公益財団法人レーザー技術総合研究所
研究者番号 : 00370213

増田 将也 (MASUDA, Masaya)
大阪大学工学研究科・レーザーエネルギー学研究センター・修士課程学生

永富 健介 (NAGATOMI, Kensuke)
近畿大学理工学部・学部学生

出口 亮 (DEGUCHI, Ryo)
大阪大学工学研究科・レーザーエネルギー学研究センター・修士課程学生

和田 直 (WADA, Nao)
大阪大学工学研究科・レーザーエネルギー学研究センター・修士課程学生