

## (研究紹介) レーザープラズマ X 線源のプラズマパラメータ計測

富田健太郎

### 1. はじめに

軟 X 線 (Soft X-Ray: SXR) 及び極端紫外線 (Extreme Ultra-Violet: EUV) (波長 1-20 nm) は、X 線分光を通じた新材料開発 [1] や、生体その場観測 (水の窓領域、波長 2.4-4.4 nm) [2]、次世代半導体露光 [3] (波長 6.x nm, 13.5 nm) などに利用可能で、基礎科学や産業応用の基盤となる重要な波長領域である。この領域の光源方式は様々あるなかで、レーザー生成プラズマ (Laser-Produced Plasma: LPP) 方式は、多価に電離したプラズマ (高 Z プラズマ) を生成し、特定の波長域のみに大光量の光源を可能とする。LPP は加速器に対して小型で圧倒的な経済的優位性を有すると同時に、X 線管を始めとする実験室光源よりも 6 桁程度高い輝度を有する [4]。また硬 X 線と異なり、SXR/EUV では反射 (干渉) 光学系が存在するため、求められるのは照明光学系が許容するエタンデュ (発光面積×立体角) 内での高出力である。加速器に代表される超低エタンデュ (エミッタンス)・高輝度光源とは全く異なる性能が求められる。経済性と高出力・高輝度を併せ持つため、半導体露光 (波長 13.5 nm) では LPP が採用されており [5]、X 線分光や生体観測用としても、LPP 方式への期待が高まっている。

しかし LPP の光源設計は容易ではない。SXR/EUV 光源となりうる 10 価程度以上のイオンのデータは乏しく、そのようなプラズマからの詳細なスペクトルはおろか、イオン化エネルギーも明らかでない。現状では原子物理シミュレーションにより、所望の波長域内で発光するイオン種・スペクトル線の同定が行われ、それを最大化しうるプラズマ温度・密度が衝突放射モデルにより見積もられる。ただしプラズマの空間構造は非一様かつ時々刻々と変化するため、流体シミュレーションによる解析も同時に行わなければ、最適なプラズマ生成条件は決定できない。

SXR/EUV 領域で最も研究が進んでいる LPP 光源の一つに、波長 13.5 nm を用いた半導体露光用光源 (以下 EUV 光源) がある。10 価程度の Sn プラズマからは EUV 露光に利用可能な 13.5 nm (2%幅。多層膜ミラー効率で制限) に集中する 1000 以上の 4d-4f, 4p-4d 遷移が原子物理シミュレーションから計算され、UTA (: Unresolved Transition Array) として対応する強い発光が観測されるなど、研究成果が得られている。しかしプラズマ密度を増加させると、複数電子軌道の配置混合効果のため、利用できない周辺波長域にあるサテライト線のポピュレーション増加が進み、むしろ発光効率は低下することが実験で明らかとなり、プラズマ生成用レーザーの波長変更 (1.064  $\mu\text{m}$ →10.6  $\mu\text{m}$ ) という大規模な修正が求められた。このように、多くの研究が行われている EUV 光源においても、光源設計過程は十分と言えない。学術的知見を集約することで、SXR/EUV 光源応用とし

ての LPP は、果たしてどこまで正確に表現可能であるか、そしてその成果として、光源の性能はどこまで向上できるのか、産業界および学術界から問われている

このような背景のもと、著者らは光源用プラズマの診断・計測という立場から、レーザープラズマ X 線源の研究、特に EUV 光源用プラズマの研究に携わってきた。EUV の最高出力や安定稼働時間は日々進化している。露光システム全体の最新事情は他の文献に譲るとして [3,5]、ここでは著者らが行ってきた、EUV 光源用プラズマの電子状態、すなわち電子密度や電子温度の計測技術開発と、それがもたらす光源設計の新たな可能性について紹介する。著者らの研究により、「なぜこの条件でプラズマを生成すれば、EUV 強度が高くなるのか」を、プラズマの電子状態から明確に説明可能となった。

以下、第 2 章では、著者らが光源診断の軸として行ったレーザートムソン散乱 (Laser Thomson scattering: LTS) 法の概要を述べ、第 3 章では、EUV 光源の研究背景と LTS 法適用までの技術的課題、そして高効率 EUV 光源のプラズマ構造について示す。第 4 章ではむすびとして、本研究紹介をまとめる。

### 2. LTS 計測法の概要

LTS 計測法について概説する [6]。LTS 計測法では、計測用レーザーによりプラズマ内自由電子を強制的に振動させ、そこから 2 次の電磁波を分光・解析する。レーザー軸とは異なる方向から観測する「散乱」計測であり、局所情報が得られ、数 ns の時間分解が容易に達成できる。散乱光は電子の熱速度を反映してドップラーシフトするため、散乱光のスペクトル拡がりから電子温度  $T_e$  を決定できる。電子の熱的揺らぎ成分が検出されるため、散乱光強度から電子密度  $n_e$  が得られる。ただし計測の波数ベクトル  $k$  とプラズマ条件によって、個々の電子ふるまいではなく、プラズマ中の集団的ふるまい (イオン音波や電子プラズマ波など) が反映される。集団的ふるまいが反映される場合を協同散乱と呼び、反映されない場合を非協同散乱と呼ぶ。協同散乱ではさらに、イオン項・電子項という強度も幅も大きく異なる二つのスペクトルからなる。計測用レーザーに可視波長域を利用すると、EUV 光源の場合は協同散乱となる。また、さまざまな事情で、そのうちのイオン項の計測を行った。

### 3. 光源用多価電離プラズマの LTS 計測

#### 3.1 EUV 露光のための光源プラズマ開発

ここで改めて EUV 露光技術について述べる [5]。波長 13.5 nm ( $\pm 1\%$ 幅) を用いた極端紫外 (Extreme-ultraviolet, EUV) 露光は、ArF エキシマレーザー (波長 193 nm、液浸 ArF は 134nm 相当) の次の光露光技術として実用化しつつある。露光装置の核であ

る光源は、Sn にパルスレーザーを照射して生成した多価電離プラズマである。既に 250W 以上の安定出力が確認されているが [5]、さらなる出力改善が求められている。Sn の多価電離プラズマ状態が光源として用いられるのは、適切なイオン価数  $Z$  (10-12 価) の Sn プラズマであれば、数千に及ぶ電子遷移線が、波長 13.5 nm 付近に集中することが原子物理計算から示唆され、実験的にも確認されているからである [7]。

適切な  $Z$  が実現されるプラズマの  $n_e$ ,  $T_e$  が、衝突・放射モデルで見積もられ、それぞれ  $10^{24}$ - $10^{25}$  m<sup>-3</sup>, 30-40 eV (1eV は 11,300 K) 程度であると算出されている。佐々木らは原子物理計算により、in-band EUV 光の輝度 (Emissivity) がイオン密度  $n_i$  と  $T_e$  で決定され、それらの定量的な関係を報告している [7]。特筆すべきは  $T_e$  であり、低温側から EUV 光量のピーク値を示す 30-40 eV にかけて、Emissivity は急激に増加する。例えば 10 eV の場合の Emissivity は 30 eV の場合の 1/300 以下であり、10 eV のプラズマを生成しても、発光への寄与はほとんど期待できない。40 eV を超えても Emissivity は減少するので、高すぎる温度もエネルギーの無駄遣いとなる。このように光源の性質は  $T_e$  で著しく変化するため、光源設計において本来は最優先されるべきパラメータである。しかし微小 (<0.5 mm)・短寿命 (<30 ns) な EUV 光源の  $T_e$  および  $n_e$  の空間構造・時間進展を計測することは難しく、現状では制御パラメータとして取り扱っていない。LTS 法であれば原理的には十分な時間・空間分解能で  $n_e$ ,  $T_e$  の計測が可能であり、同法の EUV 光源への適用を進めた。

### 3.2 EUV 光源用プラズマの LTS 計測

現在、高効率 EUV 光源は、ミスト状に膨張させたスズターゲットに複数の炭酸ガス (CO<sub>2</sub>) レーザー (パルス幅 20ns 程度) を照射して生成する。液滴スズの発生やレーザーには高度な制御が求められ、露光光源を開発するギガフォトン株式会社が所有するテスト機を利用する必要があった。そこで、同社の実験室内で新たに特製の分光器を組み立て、協同トムソン散乱のうち、イオン項スペクトルの計測を行った [8]。プラズマ生成方法について説明する [9]。直径 26 μm の液滴 Sn は、ピコ秒パルスレーザーでミスト状に膨張させ、異なる 3 タイミングで CO<sub>2</sub> レーザー照射を行った (ピコ秒レーザーからの遅延時間  $\Delta t$  が 1.3 μs, 2.0 μs, 2.5 μs)。 $\Delta t$  が 2.0 μs の場合の、CO<sub>2</sub> レーザー照射直前の膨張した Sn ターゲットのシャドウグラフと、EUV (13.5 nm±1%幅) 発光強度を図 1 に示す。同図には変換効率 (CO<sub>2</sub> レーザーエネルギーから EUV 光への変換効率) も示す。 $\Delta t=2.0$  μs が最も効率が良い結果が良く、変換効率は 4% に達した。

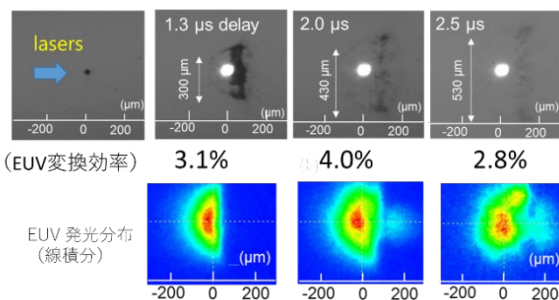


図 1. EUV 光源用プラズマの初期形状と発光の様子

LTS 計測配置を図 2 に示す。LTS 計測用レーザー (YAG レーザー第 2 高調波、波長 532 nm) を前述のピコ秒プリパルスおよび CO<sub>2</sub> レーザーと同軸に入射した (図 2 の x 軸方向)。その方向に分光器入口スリット高さ方向を合わせることで、分光器出口上に波長と x 軸上の空間分布の 2 次元分布を形成させ、電子増光型 CCD カメラ (ICCD カメラ) で捉えた。LTS 計測の研究としては、得られたイオン項スペクトルの解釈が最も興味深いところではあるが、スペースの関係で、ここでは割愛する。詳細は文献 [9] にあるので、参照していただきたい。以下では得られた結果のみを示す。

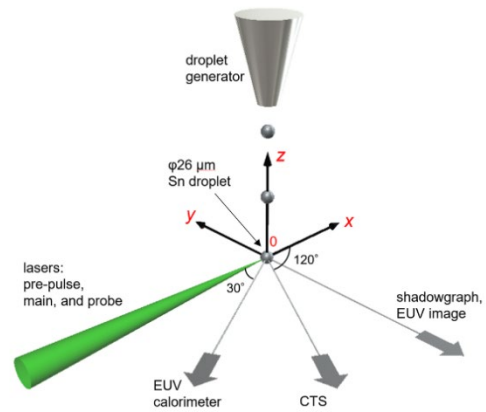


図 2. LTS 計測配置

半径方向にプローブレーザーを移動して測定を行うことで  $n_e$ ,  $T_e$  の 2 次元分布を得ることができる。光源生成 3 条件での  $n_e$ ,  $T_e$  の 2 次元分布を図 3 に示す。光源はレーザーに沿って軸対称だと仮定し、上側半分 ( $r > 0$ , 図 2 の  $y > 0$ ) だけを計測した。図 3 は、EUV 強度最大の時刻で計測したもので、時間幅は 5 ns である。図 3 では 200 点ほどの計測点同士の間を補完し、滑らかにつないで示している。

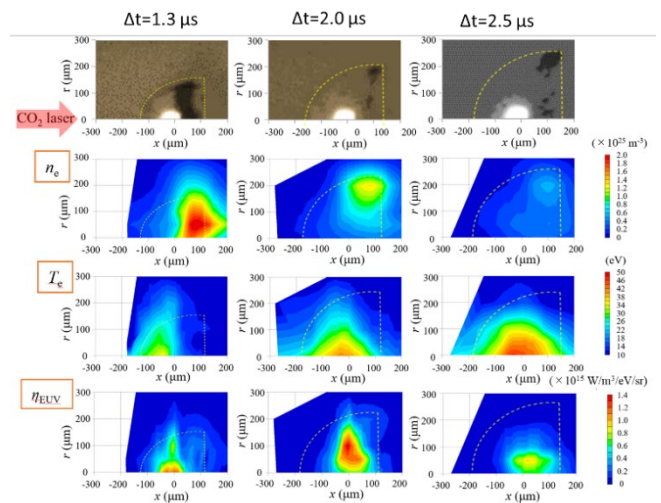


図 3. 光源生成 3 条件での  $n_e$ ,  $T_e$  の 2 次元空間分布と発光強度  $\eta_{EUV}$

最終段は、計測で得られた  $n_e, T_e$  (およびイオン価数  $Z$ 。ここでは示していない) から、発光強度 Emissivity を算出し、プロットしたものである。簡単に各プラズマの状況を見ていく。まず  $\Delta t = 1.3 \mu\text{s}$  のプラズマ (以降は  $1.3 \mu\text{s}$  プラズマと呼ぶことにする) では、他のプラズマよりも  $n_e$  が高いことがわかる。この理由はわかりやすく、初期の Sn 原子密度が高いことが関係していると考えられる。CO<sub>2</sub> レーザーは逆制動放射過程 (古典的な、よく知られた電磁波の吸収過程) を通じてプラズマ内の電子を加熱するが、密度の低い領域 ( $x < 0$ ) を通過した後にカットオフ密度 (CO<sub>2</sub> レーザーの場合は約  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  の  $n_e$  であり、これより高い  $n_e$  の領域には、レーザー光は侵入できない) で遮断されるため、その前面部分のみを加熱することがわかる。CO<sub>2</sub> レーザーで効率よく加熱される領域は、カットオフ密度に達する直前の  $100 \mu\text{m}$  幅程度 ( $-100 \mu\text{m} < x < 0$ ) に集中しており、理想的な  $T_e, n_e$  が形成される領域が狭いことがわかる。結果として高い発光強度となる領域が小さくなる。初期の Sn 原子密度、およびプラズマの密度が高すぎても、発光効率は上がらないことがわかる。次に  $2.5 \mu\text{s}$  の結果を見ていく。 $n_e$  はどこも  $10^{24} \text{ m}^{-3}$  台と低く、カットオフ密度に到達する箇所はみあたらない。これはスズターゲットが膨張しすぎたため、初期のスズ原子密度が低いことが関係していると思われる。その結果、広い範囲で CO<sub>2</sub> レーザーが吸収され、 $T_e$  分布としては良好である。しかし  $n_e$  (と同様にイオン密度) が低すぎるため、EUV 発光強度は全体的に低い。本実験における最高の変換効率 (4%) を達成した  $2.0 \mu\text{s}$  プラズマでは、 $n_e$  は中心部で約  $4 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ 、半径  $200 \mu\text{m}$  程度の部分で  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  以上となっている。このような中空様の  $n_e$  分布構造は、これまで予想されていなかったものである。他方、 $T_e$  は、プラズマ中心部では  $40 \text{ eV}$  程度となっており、これは理論上の EUV 光生成最適  $T_e$  条件と合致する。また、半径方向  $100 \mu\text{m}$  にわたり  $30 \text{ eV}$  以上の領域が形成されている。文献[7]で議論しているように、ここで観測された  $n_e, T_e$  の分布が、大きな体積での高効率の EUV 光発光を可能としている。しかし  $2.0 \mu\text{s}$  であっても、 $r = 200 \mu\text{m}$  あたりに、EUV 発光に寄与していない低温 ( $< 15 \text{ eV}$ ) のスズイオンが大量に存在することがわかる。変換効率改善には、このような「生煮え」のイオンを狙い撃ちすることが、一つの案として考えられる。

#### 4. おわりに

EUV 光源は直径  $0.5 \text{ mm}$  程の「点光源」であるが、その内部構造を詳細に計測していくと、EUV 出力をプラズマの電子状態まで遡って、定量的に評価可能となることを示した。このような計測を、レーザープラズマ X 線源設計に標準的に組み込み、光源最適化に役立てていきたい。

#### 参考文献

1. H. S. Casalongue et al., Nature Communications **4**, 2817 (2013)
2. B. Kim et al. Appl. Phys. Lett. **88** 141501 (2006)
3. V. Bakshi et al. EUV Lithography <https://doi.org/10.1117/3.769214>, PDF ISBN: 9780819480705 (2008)

4. 富江敏尚: EUV リソグラフィー用プラズマ光源に関する技術的考察, 産総研技術報告 AIST01-A00007 (2002)
5. 溝口 計 他, 応用物理/88 巻 (2019) 1 号/ p. 41-45, [https://doi.org/10.11470/oubutsu.88.1\\_41](https://doi.org/10.11470/oubutsu.88.1_41)
6. D. H. Froula et al., Plasma Scattering of Electromagnetic Radiation 2nd ed. (New York: Academic) (2011).
7. A. Sasaki et al. J. Appl. Phys. **107** 113303 (2010).
8. K. Tomita et al. Appl. Phys. Express **8** 126101 (2015).
9. K. Tomita et al, Scientific Reports **7** 12328(2017)
10. Y. Sato et al. Jpn. J. Appl. Phys. **56** 36201 (2017).