

における $4d$ 殻の電子数), その結果として, 波長 13.5 nm 付近の幅およそ 1 nm の範囲に多数の発光線が集まる [4]. さらに, 10 価から 18 価くらいまでのイオンの発光線がほぼ同じ波長域に重畳し, EUV 波長領域に特に強い発光が得られることが, これらの原子を含むプラズマを特徴づけるものになる [5].

10 価程度の Sn イオンは, 多数の発光線をもつので, 高密度のレーザープラズマ中では, 多くの多重, 内殻励起状態が生成し (図 1), それらは多数の $4d$ - $4f$ 遷移のサテライト線を放出する. サテライト線は多くの場合, 共鳴線の長波長側に現れ, このため高密度 Sn プラズマからのスペクトルは, 長波長側に裾野をもち, 波長 12 nm から 18 nm くらいまで広がった構造を示す. 実際のプラズマでは, 自己吸収の効果によって, 発光スペクトルはさらに広がる傾向がある [6].

熱平衡状態にある媒質では, 通常の本線の線スペクトルから得られる発光のパワーは, プランク輻射で制限される. これに比べると, 幅をもつ UTA からはより多くの発光のパワーを取り出すことができる. サテライト線の寄与を含めると発光のパワーはさらに大きくなり, このような媒質では励起レーザーのエネルギーを効率的に EUV 光に変換できると期待される.

しかしながら, リソグラフィ技術においては, 6 枚から 8 枚の Mo/Si 多層膜反射鏡からなる光学系を経て, 露光を行なうために, 利用できる光のスペクトル帯域幅は 2% に制限される. そのため, リソグラフィ用 EUV 光源では, むしろ狭いスペクトル幅を持つ光を発生することが必要である. Sn プラズマからの発光スペクトルの幅は, 密度が低いほどサテライト線の寄与が減って狭まるので [7], 励起条件を最適化し, 電子密度 10^{18} cm^{-3} 以下のプラズマを生成することが必要と考えられている [8].

2.3 EUV 光源のモデリング

波長 13.5 nm における EUV 光源の発光は, パルスレーザーで Sn ドロップレットターゲットを照射し, プラズマを生成することによって得られる. 核融合や粒子加速などの条件に比べると, 低温で長パルス幅の条件とはいえ, 微小なプラズマ中で短時間だけ起こる現象を用い, 温度, 密度などのパラメータを計測することも困難なことから, 動作条件の解析, 最適化のために, シミュレーションは重要な役割を担っている.

シミュレーションの中で最も重要な役割をもつのは, 輻射流体シミュレーションである. その内容は, 本年 6 月号の本誌で砂原によって詳しく述べられている [9]. レーザー核融合のプラズマのモデルをもとにした, 高密度プラズマの流体力学と, 媒質である Sn の多価電離イオンの原子過程, 輻射輸送を統合したモデルから構成されている.

輻射流体シミュレーションでは, 固体ターゲットの表面がレーザー光を吸収してプラズマ化し, 生成したプラズマがさらに高温に加熱され, Sn 原子が 10 価前後まで電離し, EUV 光を発生するまでの, プラズマの時間発展を計算する.

EUV 光源のシミュレーションでは, 効率の評価のために, エネルギー収支を正確に計算することが必要である. そのためには, まず励起レーザーの吸収の計算が重要である. 実際のターゲットと照射レーザー光の配置を考慮して, 生成するプラズマの密度の二 (三) 次元空間分布とレーザーの吸収を, 互いに自己無撞着に計算する. 高効率化のためには, ダブルパルス照射による低密度プラズマ生成過程の特徴を評価できることも必要である.

一方, Sn のような高 Z 原子の多価電離イオンは, プラズマ中で非常に強く発光する. したがって, プラズマの加熱過程を評価する上で, 電子熱伝導とともに, 輻射輸送の効果の評価することが重要である. プラズマ中の原子過程と輻射輸送は本来結合しているが, 現在よく用いられている計算手法では, 両者を分離し, まず衝突輻射モデルにより, 定常状態, 衝突輻射平衡 (CRE: Collisional Radiative Equilibrium) にあるプラズマの温度, 密度に対する, 輻射放出, 吸収係数 (emissivity, opacity) を求めておく. 次に, それを用いた多群拡散近似によりスペクトル依存の輻射輸送を考慮する流体シミュレーションを行う. 波長 13.5 nm における 2% 帯域という, 限定された波長領域における発光効率の評価を行うという点では, スペクトルを高い精度で予測することも重要である. 現在, 輻射放出, 吸収係数とそのスペクトルを求めるためには, GRASP [10], HULLAC [11], FAC [12] などの原子物理計算コードを用いて原子エネルギーレベル構造, および電離, 励起の速度定数を求め, それを用いてプラズマの温度, 密度に対する Sn イオンの占有密度を求める方法が用いられている.

輻射流体シミュレーションを用いると, 様々な条件で EUV 光源の発光スペクトルや変換効率の実験結果を再現する結果が得られ, 数値的な最適化とともに, 得られた知見をもとに, 効率を決定する要素について解析し, より高い効率が得られる条件を明らかにすることができる. 一方, 数値計算に基づく原子過程の解析は, 他の原子にも容易に適用可能で, 短波長光源の解析にも応用できる.

2.4 光源の高効率化

2.4.1 高効率化のメカニズム

次に極端紫外光源プラズマの最適化について述べる. まず, 目的波長域の極端紫外光発生の高効率化について考える. レーザーから極端紫外線への変換効率 (Conversion efficiency: CE) は次の式で表される [13].

$$CE = \eta_L \times \eta_{\text{rad}} \times \eta_{\text{EUV}} \quad (1)$$

即ち, レーザーから 13.5 nm 域など, 目的とする極端紫外波長域への変換効率は,

- (A) プラズマのレーザー吸収率: η_L
- (B) 吸収されたパワーから輻射パワーへの変換率: η_{rad}
- (C) 全輻射パワーに占める目的波長域のパワーの割合: η_{EUV}

の 3 つの項の積で表すことができる. (B) と (C) をまとめることも可能であるが, 後で述べるように (C) は原子過程と対応しやすいため, 独立の項として残す.

まず(A)の最大化を考える。プラズマによるレーザー吸収率を増加させるには、(a)逆制動放射が主なレーザー光の吸収機構であるから自由電子とイオンの衝突周波数を増加させる、(b)レーザー吸収に寄与する原子数を増やす、即ちレーザー入射軸方向のプラズマのスケールを増大させる、の2つが考えられる。このうち自由電子とイオンの衝突周波数は、後に述べる項(C)の関数となるため目的とする極端紫外線を放射しやすい密度、温度のプラズマの得るのに最適なレーザー波長、レーザー強度を選択すると値が決まってしまう、自由に選ぶことはできない。そこでレーザー吸収率を増加させるには(b)のプラズマのスケールを増加させることになる。

次に(B)の最大化を考える。吸収されたレーザーエネルギーは、

- (a) プラズマのイオン化、内部エネルギー、
- (b) 運動エネルギー、
- (c) 輻射エネルギー、

の3つの過程に使われる。(a)は項(C)の関数となる係数とプラズマのスケールの積で与えられる。(b)の運動エネルギーは元々プラズマの内部エネルギーであったものが運動エネルギーへと変換されるため、本来は(a) + (b)として一括りで考えるべきものである。目的とする極端紫外線の放射に適した密度、温度を維持する限り、即ち(a)を維持する限り、プラズマは放射し続ける。流体運動が生じ、内部エネルギーが運動エネルギーへと変換されるとプラズマは冷却され、発光は終わる。通常のアブレーションにおいてはプラズマの運動をなんらかの機構で減速させない限り、内部エネルギーから運動エネルギーへの変換を止めるのは困難である。そこで(c)輻射エネルギーを増加させることを考えることにする。簡単化のために空間的に均一な幅Lのプラズマを考える。目的とする波長の吸収係数を χ_ν 、放射係数を η_ν とすると、ある視線方向に空間積分された放射強度 I_ν は

$$I_\nu = \frac{\eta_\nu}{\chi_\nu} \{1 - \exp(-O.D.)\} \quad (2)$$

となる。ここで、O.D.は光学的厚さであり、 $\int_0^L \chi_\nu(x') dx'$ である。O.D. ≈ 0 で放射強度 I_ν はプラズマのスケールに比例し、O.D.の増加とともに飽和し始め、O.D. $\gg 1$ で $I_\nu = \eta_\nu / \chi_\nu$ に漸近する。故に、スケールに比例して増加する(項(a) + (b))に対する項(c)の割合はO.D. ≈ 0 の極限で最大値をとり、O.D.の増加とともに低下する。

(B)を最大化するにはO.D. ≈ 0 であればいいということになるが、放射強度 I_ν は0に近づく。即ち、効率はいいが、放射強度は小さい。反対にO.D. $\gg 1$ では放射強度 I_ν は大きくなるが、(B)は小さくなり、効率は低下する。現実的な折衷案として、我々はO.D. が1を超えない程度のプラズマ生成し、効率と放射強度の両方を満たすことにする。

3つ目の(C)特定の波長域のパワー/全波長積分パワーを増加させるためには目的波長域の放射に寄与する原子状態の原子数割合、即ちアバンダンスを増加させることが必要である。13.5 nmの極端紫外線の場合、Snの8価から16

価の電離度にある4d-4f遷移が13.5 nmの発光に主に寄与するため、8価から16価程度のSnのアバンダンスを増加させる必要がある。佐々木等により 10^{18} cm^{-3} 以下の低密度領域で30%を超える密度、温度領域が存在すると見積もられている[7]。これが臨界密度が比較的強く、低密度プラズマの加熱に適した炭酸ガスレーザーをメインのレーザーとして採用する理由である。この30%の値は吸収を考慮しない場合であり、O.D.=1程度のプラズマを通過する間の吸収を考慮すると $0.3 \times \exp(-1) = 0.11$ となり、吸収を考慮すると 10^{18} cm^{-3} 以下の低密度領域では10%程度になる。

次に実際に輻射流体シミュレーションで見積もった上記(A)~(C)の効率を、

- (a) 波長 1.06 μm の Nd:YAG レーザー を直径 500 μm の Sn の球に 1.2 ns 照射した場合、
- (b) 波長 10.6 μm の炭酸ガスレーザーを用いて、Sn の平板に 200 μm のスポット径で10ns照射した場合、
- (c) 波長 10.6 μm の炭酸ガスレーザーを用いて、Sn の平板に 200 μm のスポット径で40ns以上照射した場合、

の3つのケースについて図2に示す。波長 10.6 μm の炭酸ガスレーザーを用いた場合には、波長 1.06 μm の Nd:YAG レーザーに比べ、レーザーの吸収率が低下している。また、Nd:YAG レーザーでは効率(C)が炭酸ガスの場合に比べて比較的小さい。また、炭酸ガスレーザー同士でも、パルス幅を長くするとX線全体の放射割合(B)は増加するが、13.5 nmの割合(C)は減少している。この数値計算による効率(A)~(C)の変化は上の議論と自己無撞着である。現在、13.5 nmの極端紫外線の発生には炭酸ガスレーザーが使用されているが、レーザーの吸収率向上が高効率化の鍵になることがわかる。

2.4.2 プラズマの生成方法

前節ではどのようなプラズマをめざすべきか、レーザーから極端紫外光への変換効率とパワーの観点から考え、13.5 nmの場合にはO.D.が1を超えない炭酸ガスレーザー生成Snプラズマが有望であり、レーザー吸収率改善がさらなる効率化の鍵になることがわかった。次にこのようなプ

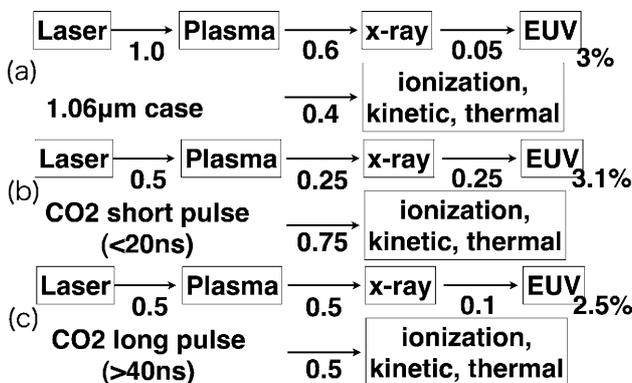


図2 輻射流体シミュレーションにより見積もられたレーザーから13.5 nmの極端紫外域へのパワーの流れ。(a)波長1.06 μm のNd:YAGレーザー1.2 ns照射、(b)波長10.6 μm の炭酸ガスレーザー10 ns照射、(c)波長10.6 μm の炭酸ガスレーザー40 ns照射。

ラズマをどのように生成するかを考える。いくら最適なプラズマ状態がわかっていたとしても、現実に生成できなければ応用上意味がない。レーザーの吸収率を増加させるにはプラズマのスケールを大きくする必要がある。しかし、単一パルスでパルス幅をのばしてもレーザースポットから3次元的に広がって膨張するためにレーザー入射軸方向のプラズマスケールは簡単に増加しない。そこでダブルパルス方式を採用し、炭酸ガスレーザーとは別のパルスを用いて、あらかじめ最適な状態のプラズマを生成することが考えだされた[8]。図3に13.5 nmの極端紫外光源に用いられるダブルパルス照射方式を概要を示す。ここではデブリ発生を最小限に抑制するために径の小さいSnドロプレットがターゲットとして用いられ、Nd:YAGレーザーなどのプリパルスによってあらかじめプリプラズマが生成される。炭酸ガスレーザーの吸収率を増加させるには炭酸ガスレーザーのスポットサイズ程度にプラズマが広がる必要があり、200 μm以上のスケール長のプラズマが必要となるため、プリパルスを照射後、プラズマが膨張し、スケール長が増大するまで待ってからメインレーザーの炭酸ガスレーザーをプリプラズマに照射し、極端紫外光を得る。輻射流体計算ではレーザー吸収率を改善する十分に長いスケールのプリプラズマに炭酸ガスレーザーを照射すれば6%を超える変換効率達成が可能であることが計算されている。しかしながら、Snドロプレットにプリパルスを照射してプリプラズマを生成をする際のダイナミクスはまだよく理解されておらず、輻射流体計算としてもチャレンジングな問題である。また、このダブルパルス方式の有効性は実験でも確認され、4%を超える変換効率が実証されている[14]が、まだ輻射流体計算が示す6%以上の変換効率には届いておらず、プラズマ状態把握のための計測技術、詳細な輻射流体シミュレーションの向上、実験とシミュレーション双方の比較検討が求められている。

2.5 光源の短波長化

Snにおいて波長13.5 nmで発光する4d-4f遷移は、図4(a)に示すように、より原子番号の大きい原子でも観測され、その波長は原子番号が増すに従って短くなることが知られている。この性質をもとに、将来のリソグラフィ技術のために、希土類原子を媒質として、6 nm付近の波長で発光する、EUV光源を実現する可能性が考えられている。EUV領域では、多層膜反射鏡は、使用する材料によって決まる限られた波長でしか得られない。したがって、波長を選択する際には、光源と多層膜反射鏡を相互に最適化する必要がある。

図4(b)に、衝突輻射モデルによって、媒質の原子番号と発光線波長と、発光を得るためのプラズマの電子温度を予測した結果を示す。LaB₄CやMo/B₄Cを用いた多層膜反射鏡の波長(6.7 nm)での発光を得るためには、GdやTbがターゲットとして適しているという評価も発表されている[15]。

プラズマの温度がより高くなり、イオンの電離がさらに進むと、3d-4f遷移、3p-3d遷移など、他の遷移が強く発光

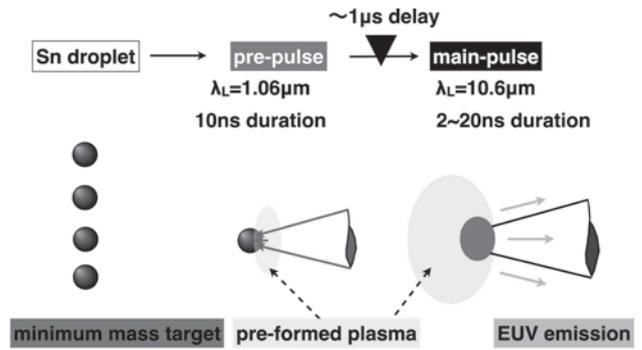


図3 13.5 nmの極端紫外光源に用いられるダブルパルス照射方式。

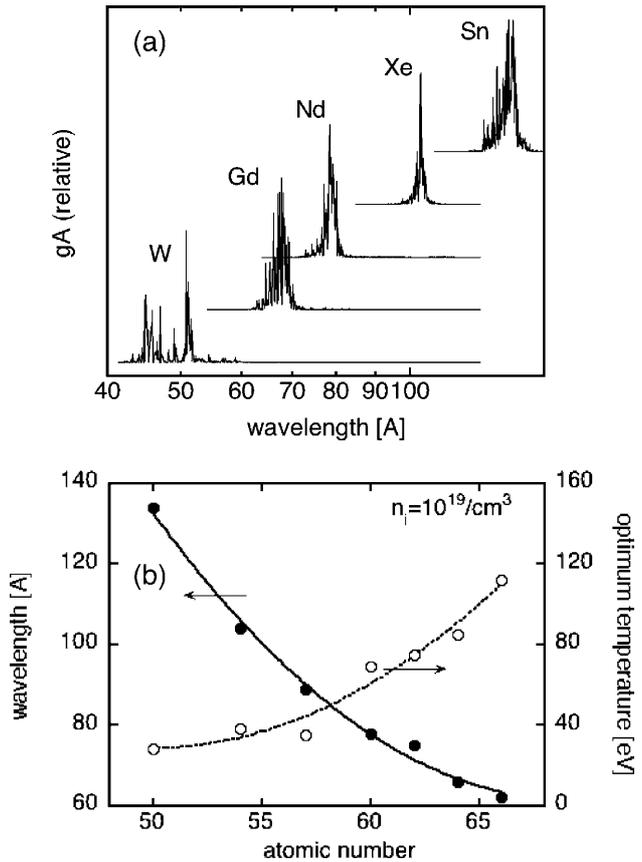


図4 (a)Sn, Xe, Nd, Gd, Wイオンの4d-4f遷移(配置混合による4p-4d遷移の寄与を含む)のgA値で表したスペクトル強度, (b)希土類原子のプラズマを用いた光源で予想される、最適発光線波長と必要な電子温度の原子番号に対する依存性。

する条件もある。実際、温度、密度条件およびターゲット原子を変えることによって、広い波長範囲の発光を得ることができ、例えばBiの4d-4f発光線を用い、波長2.3~4.4 nmの水の窓領域の発光も得られている[16]。これらの結果については、本小特集の第5章でも紹介される。

しかしながら、波長6.x nmの光源と、それを用いたリソグラフィ技術は、波長13.5 nmにおけるものよりもさらに困難なことも予想される。多層膜反射鏡の反射率は、媒質の吸収が増加するために、短波長になるほど低下する傾向があり、波長6.x nm付近では40%程度であり、帯域幅も0.5%程度に限られる。このことは、短波長化するほど、光源に要求されるパワーが大きくなることを示唆する。ま

た、より原子番号の大きい原子を、価数の高い状態まで電離するため、必要となるプラズマの電子温度も 100 eV 以上になる。局所熱平衡 (LTE) にあるプラズマからの輻射は、プランクの法則により、温度の 4 乗に比例するので、電子温度が 2 倍になるとは、輻射パワーが 1 桁増すことを意味し、1 桁大きな励起レーザー光強度が必要になると見込まれる [17]。このように、波長 $6.x$ nm の光源を実現するには、多層膜反射鏡、レーザーなどの技術に進展が求められる一方、媒質プラズマ中で起こる現象、重要となる物理過程も、Sn を用いた光源と異なったものになる可能性があると考えられる。

2.6 まとめと今後の課題

以上に紹介したように、EUV 光源の研究開発は、原子過程、輻射流体のシミュレーションが積極的な役割を果たすことによって進展している。一方、高効率化、短波長化のためには、モデリングにおける新たな課題があることも指摘されるようになってきている。

EUV 光源の高効率化のためには、ダブルパルス励起により、第 1 のパルスで液滴ターゲットを微粒子に分散し、第 2 パルスで EUV 発光が得られる温度まで加熱する方法が用いられるようになってきている [18, 19]。そこでは、固体物質とレーザー光の初期の相互作用、固体物質が液相、気相を経てプラズマ化するまでの過程が重要となる。より適切な状態方程式 [20] を用いることや、相転移に伴う臨界現象としての解析が重要である。微粒子とレーザーの相互作用など、これまでの従来のレーザー核融合のシミュレーションでも考慮していなかった現象を扱う必要もあると考えられる。一方で、これらの過程、現象はレーザー加工分野でモデリングが進んでいたり [21]、warm dense matter として新しい興味の対象にもなっており [22]、それらの知見を取り入れることによって研究の相互の進展も期待できるのではないかと考えられる。

EUV 光源プラズマ中では、加熱に伴ってイオンの電離、励起が起こると、輻射が放出され、周囲のプラズマへと伝播して、新たな電離や励起を引き起こすと考えられる。電離、励起されたイオンが背景電子と緩和することによってプラズマの加熱が起こり、逆に、プラズマ中の多電子多価電離イオンから生じる強い放射によって、プラズマの冷却が起こる。このようにプラズマの流体力学と、原子過程は相互に深く結びついているが、従来のシミュレーションでは、流体力学と原子過程を分離した取り扱いが行われている。

一般に、プラズマの原子過程を評価するためには、詳細な原子構造を考慮した衝突輻射モデルを解くことが必要であり、輻射輸送を解くためには、輻射を多くのエネルギーおよび角度成分に分解する必要がある。Sn のような複雑な原子においては、計算上の独立変数、次元数が非常に多くなり、原子過程、輻射流体を統合した問題は、例えば原子のエネルギー準位の数に対して、計算時間が多項式時間を

越える依存性で増加する問題 (NP 問題) のような、計算が本質的に困難な問題であることが疑われる。意味のある結果を得るために、数学的な処理で、衝突輻射モデルを低次元化する方法が考えられている [23]。

シミュレーションの精度、信頼性の向上のためにさらに重要なことは、計算結果を実験結果と比較して、適切に検証することと考えられる。衝突輻射モデルを理論的に検証する試みが行われ、成果を挙げているが [24]、実験的との比較では、観測されるプラズマの発光スペクトルは、プラズマの温度、密度分布とその時間変化や、自己吸収の影響を受けるので、比較にも仮定が含まれるという困難がある。また、シミュレーションには多くのパラメータが含まれ、そのひとつひとつを特定して決定することは困難である。今後、計算、検証可能な形にモデルを再構築することも必要になるのではないかと考えられる。

EUV 光源の研究は、プラズマの原子過程、輻射流体の研究に多くの問題を投げかけ、高効率化や短波長化の要求は、さらに新しい研究課題を生み出している。これまでも多くの実験、シミュレーションが行われた結果、物理的理解の進展が得られ、今後得られると期待される成果は、核融合プラズマ研究をはじめとする、基礎・応用研究にも貢献するのではないかと考えられる。

参考文献

- [1] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **79**, 226 (2003).
- [2] 富江敏尚：プラズマ・核融合学会誌 **79**, 234 (2003).
- [3] G. O'Sullivan and P.K. Carrol, *J. Opt. Soc. Am.* **71**, 227 (1991).
- [4] F. Koike *et al.*, *J. Plasma Fusion Res. SERIES*, **7**, 253 (2006).
- [5] H. Ohashi *et al.*, *J. Phys.* **43**, 065204 (2009).
- [6] A. Sasaki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5857 (2004).
- [7] A. Sasaki *et al.*, *J. Appl. Phys.* **107**, 113303 (2010).
- [8] K. Nishihara *et al.*, *Phys. Plasmas* **15**, 056708 (2008).
- [9] 砂原 淳：プラズマ・核融合学会誌 **89**, 416 (2013).
- [10] F. A. Parpia *et al.*, *Comput. Phys. Commun.* **94**, 249 (1996).
- [11] A. Bar-Shalom *et al.*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **71**, 169 (2001).
- [12] M.F. Gu, *Astrophys. J.* **590**, 1131 (2003).
- [13] K. Nishihara *et al.*, "Modeling EUV Sources", Chap.10 of "EUV Sources for Lithography", edited by V. Bakshi, SPIE press. (2005).
- [14] S. Fujioka *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 241502-1 (2008).
- [15] B. Li *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 013112 (2012).
- [16] B. Li *et al.*, *Appl. Phys.* **102**, 041117 (2013).
- [17] A. Sasaki *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 231501 (2010).
- [18] 藤本准一, 溝口 計：光学 **41**, 125 (2012).
- [19] A. Endo, *Proc. 2012 EUV source workshop* (2012).
- [20] R. More, プラズマ・核融合学会誌 **89**, 408 (2013).
- [21] 山田知典：プラズマ・核融合学会誌 **89**, 500 (2013).
- [22] 米田仁紀：プラズマ・核融合学会誌 **81**, 172 (2005).
- [23] H.P. Summers *et al.*, *Plasma Phys. Control. Fusion* **48**, 263 (2006).
- [24] Yu. Raichenko *et al.*, *AIP Conf. Proc.* **1161**, 242 (2009).