

# 高強度レーザー光とクラスターの相互作用による 高効率 X 線発生

近藤 公伯<sup>\*,\*\*</sup>・森 道昭<sup>\*</sup>

## X-Ray Generation from Clusters Irradiated by Intense Laser Light

Kiminori KONDO<sup>\*,\*\*</sup> and Michiaki MORI<sup>\*</sup>

The atomic cluster jet has a solid density as a local density, while the average density is a gaseous one. If the pulse width of the pump pulse is much shorter than the thermal expansion time of the laser-heated cluster, the laser energy can be efficiently absorbed to the gaseous cluster jet. By irradiating the Xe cluster jet with a sub-picosecond UV excimer laser pulse, 10% of the laser energy is estimated to be converted to the extreme ultraviolet (EUV) light. This technology is thought to be attractive for the debris free EUV light generation method in EUV lithography source.

**Key words:** X-ray generation, extreme ultraviolet (EUV) lithography, debris free, ultrashort high peak power laser, optical high field, cluster

### 1. クラスターによる高効率エネルギー吸収

通常、光はその波長で決まる遮断密度より高密度の物質を透過することができず、すなわち、光を固体表面に照射してもほとんどの成分は表面で反射あるいは散乱される。高出力レーザーパルスを用いれば照射の際に表面にプラズマが発生し、この遮断密度以下の低密度プラズマ中で光は古典吸収され、レーザーエネルギーはいったん熱電子に変換される。熱電子は低温の固体中へエネルギー輸送されると同時に、原子（イオン）に再結合して輻射脱励起するので、このときに熱電子エネルギーに匹敵する X 線あるいは極紫外 (EUV: extreme ultraviolet) 光が発生する。ところが、レーザーとして超短パルスを用いた場合、固体表面にレーザープラズマが形成される時間がないので、光の表皮深さ分だけ固体中へ浸透することはできるが、ほとんどの成分はむしろ反射される<sup>1)</sup>。したがって、固体ターゲットを用いても効率よくエネルギーを与えることさえ不可能ということになる。ところで、真空中へ高圧ガスをノズルで噴射すれば、断熱膨張による急激な温度低下を伴い、原子や分子はファンデルワールス力により凝集し、局所的に固体密度を有するクラスタージェットが生成される<sup>2)</sup>。こうして生成されたクラスターと電磁場の相互作用において、

クラスターサイズが光の表皮深さより小さければ、固体密度を有するにもかかわらず、クラスターを形成する原子すべてとレーザー電磁場が効率よく相互作用することができるとは限らない。したがって、レーザー照射エリアに十分な数のクラスターをさらすことができれば、ほとんどのレーザーエネルギーをクラスタージェットに吸収させることが可能となる<sup>3)</sup>。実際の実験で用いたクラスターは Xe クラスターであり、高圧 Xe ガスを真空中へパルスガスバルブによって噴出することにより生成した。パルスガスバルブの背圧をおよそ 3 気圧以上にした状態で高出力超短パルス KrF レーザーを集光照射すれば、レーザーエネルギーは Xe クラスターでほとんど吸収され、レーザーパルスの透過がほとんどなくなった<sup>3,4)</sup>。クラスターターゲットの平均原子数密度はパルスレーザーを用いた干渉光計測により、レーザーパルス照射位置付近でたかだか  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  程度であることがわかっており<sup>5)</sup>、レーザー照射によって Xe 原子がイオン化し、10 価程度になったとしても、平均的な電子プラズマ密度は  $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  程度である。この密度は、KrF エキシマーレーザーの波長における光の遮断密度  $1.6 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$  に比べて十分低い。したがって、レーザーパルスはほとんど透過するはずと考えるのが常識であるが、実際には

\* 筑波大学先端学際領域研究センター (〒305-8577 つくば市天王台 1-1-1)

\*\* 現)：大阪大学工学研究科 (〒565-0871 吹田市山田丘 2-1) E-mail: kiminori@ile.osaka-u.ac.jp

上述のようにほとんどのレーザーエネルギーがクラスターで吸収された。クラスターにおけるレーザーによる加熱メカニズムは、クラスターをマイクロプラズマとみだてた古典吸収による説明<sup>6)</sup>が理解しやすく、 $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> 以下の照射強度領域では有効であると考えられる。ちなみに実験で用いた Xe クラスターのクラスターサイズは $\sim 10^6$  個程度であり、直径およそ 50 nm の粒径であると評価できる<sup>7)</sup>。

## 2. クラスターによる高効率 X 線発生

かつてレーザー核融合研究で明らかにされたように<sup>8)</sup>、いったんレーザーエネルギーが熱電子に変換されれば、吸収されたエネルギーの相当な割合で、熱電子の温度程度の波長をもつ軟 X 線、あるいは EUV 光に変換されると考えられる。実験ではパルス幅 500 fs の KrF エキシマーレーザーパルス (波長 248 nm) を上述の Xe クラスタージェットに集光照射し、Xe プラズマが放出する EUV 光を透過型回折格子で分光し、背面照射型 CCD (charge coupled device) 検出器で検出した。図 1 に得られたスペクトルを示す。縦軸は EUV 光スペクトルの絶対強度から評価した単位波長あたりの変換効率を示し、これを積分すればトータルの EUV 光発生量が評価できる。5~18 nm の波長領域への変換効率は単位立体角あたりおよそ 0.9%/sr と評価できる。EUV 光輻射の角度分布が等方的であると仮定すれば、レーザーエネルギーから EUV 光へのトータルの変換効率は 12% と評価できる<sup>4,5)</sup>。また、超短パルスレーザーを使用しなければ、レーザーで加熱されている最中に、クラスターのクーロン爆発や熱膨張を伴うので、たちどころにプラズマの局所電子密度が低下して、エネルギー吸収率が低下し、それと同時に、EUV 光発生量も著しく低下するものとみられる。実際に波長 800 nm の近赤外チタンサファイアレーザーを用いてパルス幅のみを変化させ、Xe クラスターから発生する EUV 光発生量を実験的に計測した。パルス幅がピコ秒以上になれば EUV 光発生量が著しく低下した。このことはレーザー照射開始からピコ秒程度時間がたてば、クラスターの局所密度の低下が無視できなくなることを意味している。さらに励起波長の最適化を行うため、超短パルスチタンサファイアレーザーを用いて EUV 光観測を行った。クラスター加熱の場合、遮断密度以上の高密度プラズマにおける逆制動輻射過程を考えることになるが、低密度の場合と反対で、励起波長を短くするほうが高い加熱効率が得られると考えられ<sup>7)</sup>、励起レーザーとして近赤外光を用いるより紫外光を用いるほうが、より効率よく EUV 光を発生できることが実験的に判明した。

Xe クラスタージェットをサブピコ秒紫外エキシマーレ

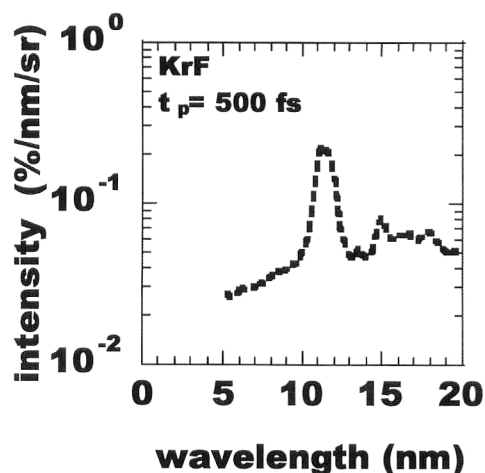


図 1 サブピコ秒高出力 KrF レーザーで Xe クラスターを励起した際に得られた EUV 光のスペクトル。

レーザーで照射することにより、照射レーザーエネルギーの 10% 程度を波長 10 nm 前後の EUV 光に変換できることを示した。この方法ではターゲットが粒径の小さなクラスター (粒径 50 nm 程度) からなるガスなので、固体や液体を用いた場合に問題となるデブリ発生が大きく改善できると考えられ、高繰り返しレーザーを用いた高平均出力 X 線源として魅力的と考えられる。とくに、比較的近い将来必要になるといわれている EUV リソグラフィ光源の発生法として興味深いと考えている。

最後に、研究遂行にあたり産業技術総合研究所の三浦永祐主任研究員の多大なる協力があつたことを申し添えたい。

## 文 献

- 1) M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, M. D. Rosen and R. W. Falcone: "Ultrafast X-ray pulses from laser-produced plasmas," *Science*, **251** (1991) 531-536.
- 2) O. F. Hagen: "Cluster ion sources," *Rev. Sci. Instrum.*, **63** (1992) 2374-2379.
- 3) K. Kondo, A. B. Borisov, C. Jordan, A. McPherson, W. A. Schroeder, K. Boyer and C. K. Rhodes: "Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters," *J. Phys. B*, **30** (1997) 2707-2716.
- 4) E. Miura, H. Honda, K. Katsura, E. Takahashi and K. Kondo: "Soft X-ray emission from noble gas clusters excited by an ultrashort KrF laser pulse," *Appl. Phys. B*, **70** (2000) 783-787.
- 5) M. Mori, T. Shiraishi, E. Takahashi, H. Suzuki, L. B. Sharma, E. Miura and K. Kondo: "Extreme ultraviolet emission from Ce clusters excited by high-intensity lasers," *J. Appl. Phys.*, **90** (2001) 3595-3601.
- 6) T. Ditmire, T. Donnelly, A. M. Rubenchik, R. W. Falcone and M. D. Perry: "Interaction of intense laser pulses with atomic clusters," *Phys. Rev. A*, **53** (1996) 3379-3402.
- 7) H. Honda, E. Miura, K. Katsura, E. Takahashi and K.

Kondo: "Evidence for wavelength dependence of Xe M-shell emission from clusters," Phys. Rev. A, **61** (2000) article no. 23201.

- 8) R. Kodama, K. Okada, N. Ikeda, M. Mineo, K. A. Tanaka, T. Mochizuki and C. Yamanaka: "Soft x-ray emission from

$\omega_0$ ,  $2\omega_0$ , and  $4\omega_0$  laser-produced plasmas," J. Appl. Phys., **59** (1986) 3050-3052.

(2002年10月9日受理)