

X線結像光学ニュースレター

No. 51 2020年7月発行

将来の EUV リソグラフィに向けた大強度 EUV-FEL の開発

高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設

河田 洋、阪井 寛志、加藤 龍好、中村 典雄

1. はじめに

著者の一人はX線結像光学のバックグラウンドを若干持っているが、ほかのメンバーはそのバックグラウンドがなく、また半導体微細加工に関しては全員が専門家ではないので、必ずしも学術的に正しくない記述があるかも知れないが、その点をご容赦いただきたい。

まず、半導体の微細加工の状況に関して我々の知るところを紹介する。シリコン半導体の微細加工は、長年にわたり数々の技術開発を重ねて Moore の法則に従って、微細化の進展が 2015 年ほどまでは ArF エキシマレーザーの波長 193 nm の光源を用い、高分解能を確保するために開口率 (NA) を増強させるため、液体中で露光する技術 (液浸露光)、さらには多重露光を駆使することで 10 nm ノードの微細化量産体制を確保している。しかし、図 1 で示すような単純なムーアの法則に比較すると、微細化のペースは近年停滞気味となっている。これは更なる微細化 (7 nm ノード以下) に到達するために必要とされる光源の波長を一桁以上短くした極端紫外光 (Extreme Ultra-violet: EUV) リソグラフィ (波長 13.5 nm) の開発が実用化に時間を要していたからであろう。本題からは少し外れるが、この EUV リソグラフィ

の開発の研究 [1,2] は、1980 年台後半に当時 NTT の研究者として従事されていた木下博雄兵庫県立大学名誉教授が KEK のフォトンファクトリーに建設された NTT ビームライン (当時の BL1) で行われ、正に日本から草分け的な発信が行われたといっても過言ではない。

EUV 領域での光学系は、本 X 線結像光学の専門家には皆様には自明のことであるが、透過型のレンズによる縮小光学系を利用することはできない。しかし、Mo/Si や Mo/Be のような多層膜反射鏡を用いた縮小光学系を用いることが可能である。このことは 1980 年台初頭から日本を含む諸外国で多くの開発が進められていた放射光 X 線による等倍転写技術と異なり、またそれ故に、現在に至るまで、粘り強く EUV リソグラフィの開発が進められてきたと想像される。

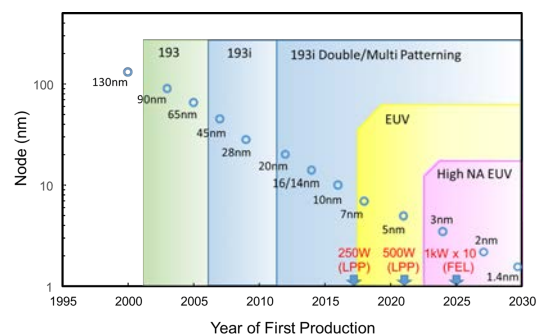


図 1: ロジック LSI の微細化の年次変化

長年の開発の結果、現在、EUV 光源による量産化が開始されようとしている。今後の微細化動向により、更なる光源出力の状況は必要。

そして、昨年、30年を超える開発期間を経て、その実用化に到達した [3]。その背景には、世界的な EUV リソグラフィ 露光装置本体の開発を進めたオランダの ASML 社の貢献が大きい。露光装置のシステムは Mo/Si の多層膜ミラーによる縮小光学系をベースにした図 2 に示すように照明光学系、反射マスク、投影光学系からなり、合計 12 枚の多層膜ミラーからなる構成である。

同社が公開している EUV リソグラフィの動画 [4] は、その内容を理解する上で一助になるであろう。多層膜ミラーの反射率は 68% 程度であることから、最後のレジストへの露光に至るまでに逐次減衰され、1% 程度の強度にまで減衰される。そのことも相まって、量産機における EUV 光源強度は 250 W 以上が要求されていた。現在、光源システムは LPP (Laser-Produced-Plasma) 方式で、Sn のドロップレットに大強度の CO₂ レーザーを照射し、Sn 原子をプラズマ状態（高価数イオン状態）にし、その遷移状態から高強度の 13.5 nm の EUV 光を取り出すものである。そのためには、プラズマ状態に励起するための CO₂ レーザーの大出力化（～20 kW 以上）とプリパルスによる Sn ドロップレットの形状整形による変換効率の向上といった数多くの工夫が施されており、近年 250 W の安定運転が可能となり、露光機システムの構築につながったといってもよいであろう。しかし、更なる大強度化にはいくつかの問題を解決する必要がある。最も深刻な問題は Sn のプラズマを作成するがゆえに、Sn が蒸気形で放出され、それがコレクターミラーに付着するデブリ問題である。ASML 社や、日本で光源開発をしているギガフォトン社もこのデブリ問題の解決のため、コレクターミラー表面に保護膜をつけたり、蒸着した Sn を乖離させるための反応性ガスを流したり工夫を様々な工夫をしている [5]。

一方、その量産化が開始されるに当たり、次のキーワードとなる“Stochastic Effect”が、半導体微細加工の国際会議で重要項目となってきている。これは「統計効果」というべきものであるが、現在においても露光におけるショットノイズにより加工の精

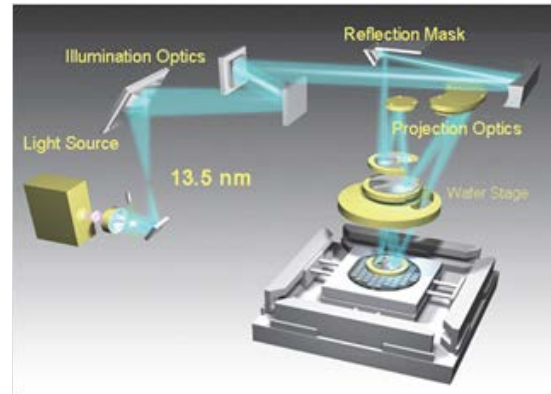


図 2: EUV 露光システム図 (文献 [5] から転写)

度が必ずしも十分ではなく、更なる微細加工に踏み込んで行くには光源強度の更なる増強と適切なレジスト開発の必要性を示唆するものであった。現在のロジック 7 nm ノードの微細加工では 250 W で量産化が開始されているが、例えば 3 nm ノードでは 1 kW を超える、更には 2 nm ノードでは 3 kW に肉薄する EUV 光源強度が最大のスループットを保つためには必要であることが、昨年開催された第 4 回 EUV-FEL ワークショップでキオクシアの井上氏が報告している [6]。すなわち、図 1 に示すように、EUV リソグラフィの更なる微細化の動向が進むとするならば、おそらく 3 nm ノードの微細化となったところから、光源の強度は露光機一台あたりに 1 kW レベルが必要となることが想定される。

そのような大強度光源として、我々は近年 ERL (エネルギー回収型ライナック : Energy Recovery Linac) をベースにした SASE-FEL 光源の実現性を検討してきている。その強度は 10 kW を超える強度が期待され、十分に 3 nm ノードを超える微細化に必要な EUV 光源強度を備えていると同時にデブリの問題を原理的に有しないクリーンな大強度光源である。

2. EUV-FEL 光源の開発状況

2.1 光源の概要

近年、日本国内では SACLA を代表とするように加速器を用いた自由電子レーザー (FEL) 光源が現実のものとして稼働し、学術的な研究成果が着実に

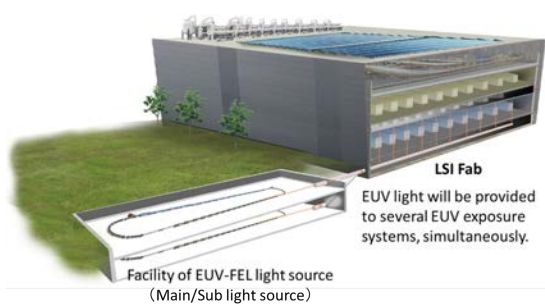


図3：EUV-FELの量産工場の想像図。

	LCLS	SACLA	FLASH	Euro-XFEL	LCLS II	EUV-FEL
Type	Normal conducting		Super conducting			
Configuration	Linac		Linac			ERL
Operation Mode	Pulse		Long-pulse			CW
Country	US	Japan	Germany	EU	US	---
Repetition rate (pulse/sec)	120	60	<5000	<27000	1M	162.5M
Beam energy (GeV)	14.3	6~8	1.25	17.5	4	0.8
Wavelength (nm)	0.15	0.08	4.2-52	0.05	-0.3	13.5
FEL Pulse energy (mJ)	~10	~10	<0.5	~10	~1	~0.1
Average FEL power (W)	~1	~1	<0.6	~100	~1k	>10k
Beam dump power (W)	~1.5k	~0.5k	~6k	~0.5M	~1M	~0.1M
FEL / Dump (%)	0.07	0.2	0.01	0.02	0.1	10
Status	Operation 2009	Operation 2011	Operation 2004	Operation 2017	Construction 2020	Planning

図4：世界のFELにおける我々の検討しているEUV-FELの位置付け。

生み出されている。本 EUV-FEL 光源はその延長線上のハードウェアである。実は、このような大強度光源の可能性の指摘は決して近年になってのことではなく、約 10 年前に既に行われていた [7]。半導体産業から見れば、加速器技術の大規模化もあり、近年に至るまで盛り上がりはなかった。しかし、近年、前述のように、LPP 光源での EUV リソグラフィの量産化が開始する状況となつてはいるが、今後更なる大強度の EUV 光源の必要性も問いただされている。一方、加速器技術の根幹となる FEL 技術とエネルギー回収型ライナック (ERL) 技術向上から、大強度光源の可能性の再検討が期待されて来ている。

半導体装置メーカーから期待される EUV 光源出力は 10 kW クラスである。これは、一台の露光機には 1 kW レベルで良いとしても、全体の光源建設コストを勘案すると、一台の FEL から図 3 に示すように 10 台程度の露光機に分配できるようにすることが一台当たりの光源コスト、運転コストの観点から

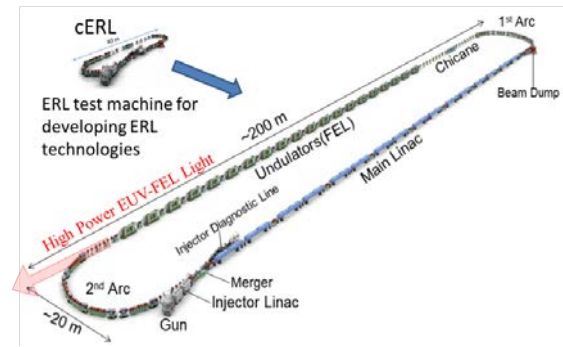


図5：EUV-FELの概念図 KEKですでに稼働しているコンパクト ERL (cERL) の技術を用いて設計を進めている。

必要だからである。10 kW クラスの EUV 光源を FEL で取り出すためには ERL-FEL の加速器構造を取ることが必須となる。

そのことを具体的な世界の FEL 光源を例にとって説明しよう。図 4 は諸々の FEL 光源の出力といくつかの重要な加速器パラメータをまとめたものである。

SLAC の LCLS や日本の SACLA は常伝導加速器を用いているため繰り返し周波数はおおむね 100 Hz 程度となる。そのため、1 ショット当たりのパルスエネルギーは 10 mJ 程度であっても平均出力は高々 1 W 程度である。繰り返し周波数を上げるためには、超伝導加速器を導入し、ロングパルス運転、さらには CW 運転の FEL が世界で稼働もしくは建設されている。例えば、現在建設中の LCLSII 計画では、1 MHz の繰り返し周波数で CW 運転を行い、1 ショット当たりのパルスエネルギーは 1 mJ 程度であるので、平均出力を 1 kW にまで増大する。しかし、まだ 10 kW には届いていない。その理由は、加速器の携帯が単なるライナックであるがゆえに、繰り返し周波数が上がる (電流値が上がる) とそれに比例する形でビームダンプのパワーが増大する。LCLSII の場合、そのビームダンプパワーを 1 MW で設計しているが、この値は現時点での技術力で安全に電子ビームを捨てることのできるパワーと考えられている。

一方、我々が提案している EUV-FEL の加速器の形態は ERL であり、その概念図を図 5 に示す。まず、

表 1 : EUV-FEL の主な加速器パラメータ

Items	Design Values at the EUV-FEL
Energy for injector (MeV)	10.5
Energy of Accelerator(MeV)	800
Charge /bunch (pC)	60
Repetition rate (MHz)	162.5
Average Current (mA)	9.75
Emittance for electron beam (mm mrad)	~0.7
Gradient of the accelerated energy (MV/m)	12.5
Wavelength of EUV-FEL (nm)	13.5
Average power of EUV-FEL (kW)	Higher than 10 kW

ERL 加速器の形態をこの図で説明しよう。

加速器の性能（パワー）は電子ビームの加速エネルギーと電流値の積で代表される。しかしその値を増大すると通常のライナックでは比例してビームダンプのパワーも増大してしまい、現実には運転ができなくなる。ERL ではそれを回避する形態となっている。電子銃ライナックから主加速部超伝導空洞に入射された電子は、超伝導空洞が作る交代電場の加速位相に乗って加速する。ERL では周回部を用い、そこで FEL 光を発生させ、その加速器の性能に合わせた効果を取り出す。その後、ただ単にビームを捨ててしまえば、通常のライナックと何ら変わりはないが、ERL では再び主加速部超伝導空洞にその電子ビームが導入される。しかしここでは交代電場の減速位相に乗って電子ビームは減速され、初めに入射された電子エネルギーまで減速されて、ビームダンプへと導入される。つまり、ビームダンプのパワーは初めの電子銃ライナックのパワーに抑えることができ、安全に運転することができるシステムである。

具体的な加速器のパラメータを表 1 に示し、各加速器コンポーネントを順に説明する。

本 EUV-FEL は高輝度電子銃から取り出した電子を超伝導・前段加速空洞で約 10 MeV まで加速し、その後、1.3 GHz で共振している超伝導・主加速空洞で約 800 MeV まで加速する。この電子ビームは 1/8 の分周された 162.5 MHz の連続的な繰り返し (CW) で、かつ一つの電子の塊 (バンチ) 当たり 60

pC の電荷を想定しており、10 mA の平均大電流ライナックである。この電子ビームを周回部で電子バンチを圧縮し、電子バンチにおける電流密度を上げることによってその次に用意されている長尺アンジュレーターによって FEL 発振を可能とする。上記の条件で FEL 発振の強度を見積もると、十分に 13.5 nm 波長の FEL 光が 10 kW の出力をもって発振することが期待される。発振した後の電子ビームは、次の周回部でバンチ圧縮を解いて、再び超伝導空洞に導かれる。今度は、この超伝導空洞に減速モードのタイミングで電子ビームが導入させる。その結果、電子ビームのエネルギーは空洞内の電磁波の形で回収され、回収されたエネルギーは次の電子ビーム加速に使用される。最終的に 10 MeV まで減速されビームダンプに導入され、ビームダンプのエネルギーは、約 100 kW であり、このパワーは十分に安全に電子ビームをダンプすることができる。以上のように、大強度の EUV 光源を実現するには、ERL-FEL の加速器構造を用いることが重要であることが理解できよう。また、数々の開発の方向（稼働率、光源加速器の小型化等々）に関する詳細は既に報告しているのでご興味のある方は参照願いたい [8-13]。

2.2 コンパクト ERL を用いた開発状況

KEK では JAEA（現在の QST を含む）をはじめとする複数の機関からの研究者・予算を投入する形で 2006 年から次期放射光源として開発を進めてきた。しかし、2016 年に、その出口が次期光源から産業応用に変更する状況となった [14]。出口の変更があったものの、そのテスト加速器であるコンパクト ERL (cERL) は運転にまで漕ぎつけることができ、産業応用に向けての運転を開始している。表 2 は 2016 年度末における cERL の達成された加速器のパラメータである。

これらの値と表 1 に EUV-FEL のパラメータを比較すると次の点が大きく異なっている。

- (1) 加速エネルギー 20 MeV ⇒ 800 MeV
- (2) 平均電流 1 mA ⇒ 10 mA

表 2 : cERL で 2016 年度末までに達成した主な加速器パラメータ

Items	Achieved values in cERL
Energy for injector (MeV)	2.9-6
Energy of Accelerator(MeV)	20
Charge /bunch (pC)	40
Repetition rate (MHz)	162.5-1300
Average Current (mA)	1.0
Emittance for electron beam @ 40 pC/bunch (mm mrad)	2-10
Gradient of the accelerated energy (MV/m)	8.6

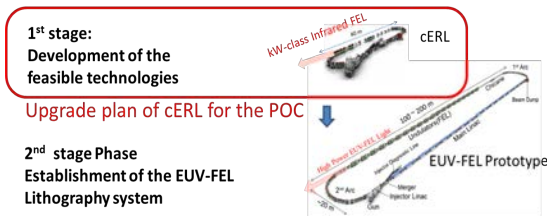


図 6 : EUV-FEL 光源に向けた段階的な開発構想。第 1 段階で cERL に FEL を導入し、加速器技術としての POC を示す。第 2 段階で EUV-FEL の開発拠点形成を図る。

- (3) 最大バンチ電荷量とそのときのエミッタンス
40 pC、2-10 mm mrad ⇒ 60 pC、0.7 mm mrad
- (4) 超伝導空洞の加速勾配 8.6 MV/m ⇒ 12.5 MV/m

(1) の加速エネルギーは超伝導空洞の挿入台数であり、これは実行予算化で解決できると考えられる。(2) および (3) に関してはビーム運転にかかわる調整技術に関係する項目であり、cERL を用いてビーム開発を試みることは重要である。(4) の超伝導空洞の加速勾配に関しては、現状の上限を定めているのは空洞からなフィールドエミッションである。EUV-FEL では 10 mA が最大電流と考えられ、空洞形状の最適化を図ることでフィールドエミッションフリーの空洞設計が進められている [15]。

一方、ERL をベースにした共振器型ではない SASE-FEL は、世界のどの研究機関でもまだ実証さ

れていない。このことは産業化という大きな壁を乗り越えて進んでいく際に、業界のサポートを得るうえで大きな障害にもなっている。幸いにして KEK では既に試験加速器としての cERL を既に稼働させており、この資産を有効に利用して、図 6 に示すように段階的に開発を進めるシナリオも重要である。

第 1 段階として、cERL に必要な増強（例えば、FEL 光源の源であるアンジュレータの導入、産業化に必要なフィールドエミッションフリーでかつ高い Q 値を持つ超伝導空洞モジュールの導入等々）を行い、波長は EUV 領域ではなく赤外領域ではあるが、確かに 100 MHz オーダーの高繰り返しの SASE-FEL が安定して発生できることを検証する。この検証はある意味で EUV-FEL の POC (Proof of Concept) となり、同時にその加速器技術の根幹を開発することが出来ると考えている。

第 2 段階として、現実の EUV-FEL の建設を行い、高繰り返しの SASE-FEL の EUV 光源を実証すると同時に、その光をハンドリングする技術（露光機まで導入、露光機とマッチングした光源への変換光学系）の検証を行い、最終的には露光機を含めたテストが出来ると国際的な研究開発施設に結びつけていくことを夢見ている。

幸いにして、半導体リソグラフィの開発テーマからは離れるが NEDO のプロジェクト「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」のもとで、「分子振動を利用する高効率加工プロセス用中赤外高出力レーザー光源開発」の立場で cERL に FEL を導入し、中赤外領域の FEL を実現するプロジェクトが 2018 年度末から開始されている。図 7 に示すように、cERL の南直線部に 2 台のアンジュレータをそれぞれ 2020 年 1 月、5 月にそれぞれ設置し、ビーム運転を開始している [16]。

この 2 台のアンジュレータから発振した FEL 光の観測に関する詳細は後日別途報告するが、着実に EUV-FEL の POC 機の開発が進められ、その結果は次の EUV-FEL への結びついていくことが大いに期待される。

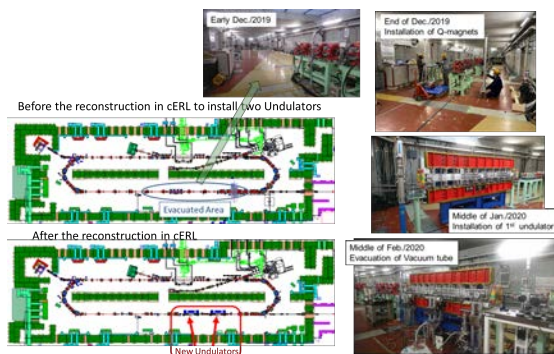


図7: NEDO のプロジェクト「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」のもと、中赤外を発生するアンジュレータがcERLに導入されつつある。

3. まとめ

半導体の微細加工は数々の開発が行われ、依然 Moore の法則を守って進展してきている。その中で長年業界が次期のリソグラフィの根幹技術と考えてきた EUV リソグラフィが近年、LPP の 250 W の光源開発の進展から、正に量産機として導入される段階に到達してきた。第 1 段階の光源強度としては満足のいくものと理解されているものの、将来の更なる微細化に向けては、1 kW レベル、もしくはそれ以上の出力が今後 10 年程度の間が必要とされることも容易に想像される。

そのような状況の中、加速器の、特に ERL 技術を用いた ERL-FEL による高繰り返しの大強度 FEL は 10 kW 以上の EUV 光を発生させることが可能であり、次世代の EUV リソグラフィにおける大強度光源の候補である。産業化に向けて、EUV-FEL 光源産業化研究会を立ち上げ、検討を進めると同時に定期的にワークショップを開催し、業界に少しずつ認知されるようになってきている。本紙面ではほとんど取り上げなかったが、EUV-FEL の加速器の設計検討、産業化にとって必要な Availability の確保の見通し、光源サイズの縮小化等についても検討を進めているので、そちらを参照願いたい [12]。

さらに、現在世界的にも共振器型ではない ERL-SASE-FEL が稼働していないが、その POC 機に対応するプロジェクトが cERL を利用して開始している。

謝辞

本小文を執筆するに当たり、cERL の建設グループメンバー、EUV-FEL 検討メンバー、そして EUV-FEL 光源産業化研究会の皆様の検討結果を紹介させて頂きました。ここに、各メンバーの皆様にご感謝いたします。

本研究の一部は NEDO 「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」の資金を用いて行っている。

参考文献

- [1] 木下他: 第 47 回応用物理学関係連合講演会予稿集 No. 2, p. 322 (1986).
- [2] H. Kinoshita et al., J. Vac. Sci. Technol. B **7**, 1648 (1989).
- [3] 例えば、
<https://www.samsung.com/semiconductor/minisite/exynos/products/mobileprocessor/exynos-9825/>
- [4] <https://www.youtube.com/watch?v=5yTARacBxHI>
- [5] H. Mizoguchi et al., "Short wavelength light source for semiconductor manufacturing: Challenge from excimer laser to LPP-EUV light source," Komatsu Technical Report **62**, No. 169 (2016).
- [6] S. Inoue, "Trend of Leading-Edge Semiconductors and the Patterning Technologies," 第 4 回 EUV-FEL ワークショップ,
<https://conference-indico.kek.jp/event/93/>
- [7] 例えば、R. Hajima et al., *EUV Source WS, Barcelona, Spain* (2006).
- [8] N. Nakamura et al., Proc. of ERL2015, Stony Brook, NY, USA, June 7-12, 2015, pp. 4-9.
- [9] T. Miyajima et al., Proc. of the 12th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 2015, pp. 247-250.
- [10] R. Kato, Proc. of 2016 EUVL Workshop, Berkley, CA, USA, June 13-16, 2016, S43.
- [11] H. Kawata, Proc. of 2016 Source Workshop, Amsterdam, Netherland, November 7-9, 2016, S62.
- [12] N. Nakamura et al., J. Phys.: Conf. Ser. **874**,

012013 (2017).

[13] N. Nakamura *et al.*, Proc. of the 15th Annual Meeting of PASJ, Nagaoka, 2018, WEP128.

[14] KEK Project Implementation Plan (KEK-PIP)
<http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20160802141100/>

[15] T. Konomi *et al.*, Proc. of the 13th Annual Meeting of PASJ, Chiba, 2016, pp. 263-267.

[16] R. Kato *et al.*, "Practical development to realize the EUV-FEL high power light source for future lithography", SPIE Advance lithography, (2020), San Jose.

誘電体の軟 X 線フェムト秒レーザー加工

産業技術総合研究所 澁谷 達則, 黒田 隆之助
東京大学 坂上 和之

1. はじめに

強いレーザーを固体表面に照射すると、材料の表面近傍から蒸発が起きる。このような現象をレーザーアブレーションと呼び、1970年代から現在に至るまで盛んに研究が行われている。特に興味深いのは、レーザーパラメータ(波長、パルス幅、出力、繰り返し)と物質を適切に選択することで、放出粒子や母材料に形態的な機能が発現することである。この現象は表面微細構造形成、切断、溶接、薄膜形成、液滴/膜転写などのレーザー加工技術に応用されており、学理解明にはレーザーパラメータと機能発現の関係性を明らかにすることは重要である。本稿では、レーザー加工技術のもっとも基本的な評価特性である加工閾値と加工モルフォロジーについて述べる。

2. 軟 X 線レーザーアブレーション

短パルス光を固体に照射すると、固体内の電子のみが加熱される。このホット電子が格子と結合すると格子温度が上昇し、その後、融点または沸点を超えることによって材料の除去が起きる。この時、電子と格子の結合の強さは電子温度に依存しており、例えば銅の場合、電子温度の上昇とともに電子—格子間の結合係数が大きくなる。この挙動を上手く取り入れた二温度モデルはもっとも簡単なフェムト秒レーザー加工のモデリング法として知られている [1]。また、半導体や誘電体のようなワイドバンドギャップ材料の場合、金属とは異なり、初期のホット電子の生成プロセスを取り込む必要がある [2]。レーザー光が入射すると価電子帯の電子が光子を吸収して伝導帯に励起される。この時、励起された電子のもつ余剰エネルギーによってさらに価電

子帯の電子を励起し(衝突イオン化)、カスケード的に電子の増幅が起きる。これらの初期電子の生成や緩和の時間スケールはフェムト秒スケールであり、そのため、レーザーパルス光をフェムト秒程度まで短パルス化することにより、電子—格子間の緩和時間よりも短い時間でエネルギー投入を完了できるため、熱拡散の効果を最小限に抑えられる。例えば、近赤外領域では短パルス化 (~ 5 fs) が進むと、極めて表面清潔な加工モルフォロジーが発現することも知られており [3]、微細加工への応用が期待できる。

これらの数値計算や先進的な実験結果から、一見フェムト秒レーザー加工はよく理解されているように思われるが、図 1 に示すように、例えば a-SiO₂ ガラスの超短パルスでのアブレーション/損傷閾値を比較してみると、これまで調査された波長領域は深紫外から近赤外領域に限定されていることがわかる [3-6]。この傾向は Si, C, Mo などの X 線光学系に用いられる材料以外、同様である。当然、加工モルフォロジーは不明であり、その特性を評価する必要がある。現在では、自由電子レーザー、レーザー生成プラズマ、高次高調波などの開発やリソースオープン化に伴い、高強度軟 X 線光源を利用することが可能となっており、アブレーションを引き起こすには十分なパルス強度 (~ 10¹⁶ W/cm²) を有している [7]。そこで、我々の研究では、軟 X 線超短パルスを用いたガラスの加工特性を評価することを目指した。

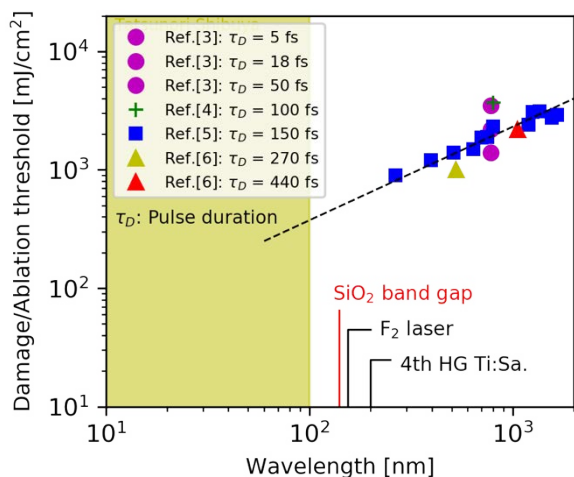


図 1 : 石英ガラスの損傷/アブレーション閾値フルエンス—レーザー波長依存性

3. 実験

本研究では、大型放射光施設 SPring-8 内にある X 線自由電子レーザー-SACLA の軟 X 線自由電子レーザービームライン BL1 を利用して実験を行った [8]。BL1 では、前段に配置した C バンド加速器によって電子ビームを 800 MeV まで加速し、K 値を変えることによって光子エネルギーを 20 から 150 eV まで変更することができる。X 線パルスと電子ビームは偏向電磁石によって分離され、金属薄膜フィルターを通過して、多層膜炭素コーティングされた Kirkpatrick-Baez (K-B) ミラーによって試料上に集光された。集光した際の開口数 (Numerical Aperture: NA) は水平方向 : 0.0018、垂直方向 : 0.0025 であった。パルスエネルギーの制御はあらかじめ校正しておいた 16 枚の Zr-Si 製の強度変調フィルターを用いて、独立にビームライン上に出し入れすることにより、出力透過率を 0.0044% ~ 100% の間で調整し、スポット径は直径 200 μm の金ワイヤーを用いてナイフエッジスキャンすることによって測定を行った (水平方向 : 8.05 μm 、垂直方向 : 14.5 μm)。また、パルス幅は相関法に基づき、光子エネルギー 100 eV で測定され、70 fs (FWHM) であった [9,10]。本実験では、材料を加工する光子エネルギーを 92 eV (波長 13.5 nm) に設定した。実験の詳細なセットアップについては図 2 に示した。

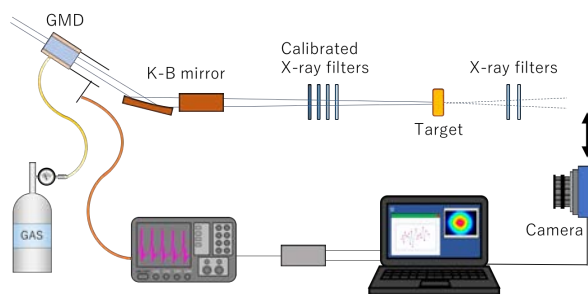


図 2 : 実験セットアップ

照射試料は厚さ 0.5 mm の合成石英ガラスを採用した。原子間力顕微鏡 (AFM) の表面測定の結果から、この試料における算術平均粗さは 2.2 nm であった。また、赤外線領域の吸収分光測定 (OH 濃度 : 60 ppm)、紫外線領域の分光光度測定 (吸収端 : 波長 160 nm)、顕微ラマン分光測定 [D1 ピーク (490 cm^{-1}) 及び D2 ピーク (608 cm^{-1}) のピーク強度測定] を行うことで市販の無水合成石英と同程度であることを確認した。

照射実験では、レーザー光はターゲットに対して垂直に入射され、各サンプルに対してシングルショットとマルチショットを行った。シングルショット実験では、強度変調フィルターの減衰率設定とパルスエネルギーの再設定を行い、160 箇所をシングルショットパルスで照射した (図 3)。この時、最大ピークフルエンスは 21.3 J/cm^2 で照射を行った。マルチショット実験においても同様の設定でパルス強度の設定を行い、強度変調フィルターは固定のまま、照射パルス数を 1, 2, 4, 8, 10, 20, 40 \dots 10000 パルスと照射を行った。

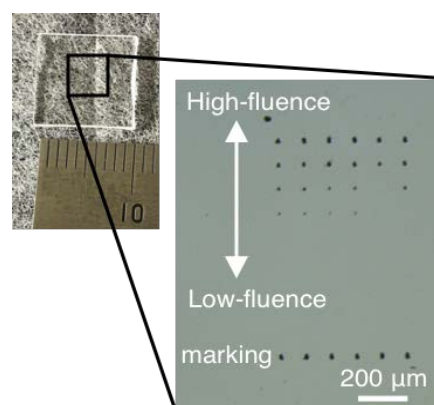


図 3 : 照射試料と照射マトリックス

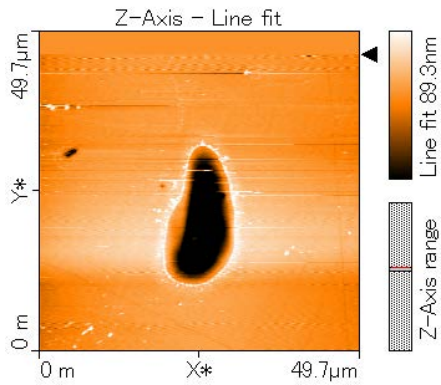


図4：フルエンス 0.97 J/cm^2 、波長 13.5 nm でシングルショット照射したガラスの原子間力顕微鏡画像

図4には、フルエンス 0.97 J/cm^2 でシングルショットした合成石英の原子間力顕微鏡 (AFM) 画像を示す。同様の処理を図3に示したシングルショット照射点一点一点に対して行い、参考文献 [11] の手順に従ってアブレーション閾値フルエンスを算出した。この結果から、光子エネルギー 92 eV 、パルス幅 70 fs 、の光源を用いた際の合成石英のシングルショットアブレーション閾値フルエンスは、 $\sim 0.2 \text{ J/cm}^2$ であることがわかった。

次に、マルチショット照射した結果について図5に示す。前提として、パルチショットのホール形状はAFMのカンチレバーの先端形状の制限から形状を計測することが困難であることから、集束イオンビーム (FIB) 装置を用いた加工スポットの断面出し後、走査型イオン顕微鏡による観測を行なった。この時FIB装置からのガリウムビームが帯電するのを防止するため、タングステンと白金を試料表面へと堆積させた。図5は、左から80, 100, 200, 400パルス照射して形成された加工ホールであり、パルス毎に形成された穴が深くなっていく様子が見られる。厚さ 0.5 mm の厚さのサンプルは約3000パルスでレーザー光が貫通し、貫通ホールが形成された。このとき、入射側と出射側のホール直径比： $\omega_{\text{ex}}/\omega_{\text{ent}} = 2$ でビーム集光スポットサイズよりもホール直径が小さくなる箇所が存在した。また、貫通ホール形

状からは熱溶解やクラックは観測されなかった [12]。

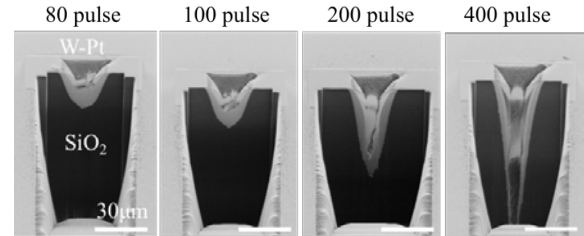


図5：マルチショット照射したクレーターの断面方向からの走査イオン顕微鏡画像。表面のグレー部は保護用の金属であり、黒色部が照射したガラス部である。スケールバーは $30 \mu\text{m}$ に等しい。

4. まとめ

本稿では、軟X線フェムト秒パルスを用いたガラスのレーザー加工について紹介した。本研究では、はじめて軟X線領域での石英ガラスのアブレーション閾値フルエンス値が示し、また、多数パルス(数千パルス)を照射しても、優れた材料表面品質を保持されることが判明した。今後は、ガラスの優れた加工特性の起源を明らかにするとともに、よりコンパクトなレーザー光源による実践的な加工の確立を目指す。

謝辞

本研究は、NEDO 委託事業「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」(TACMI プロジェクト)の一部として行われました。また、実験の一部は理研共同利用施設 SACLA 施設を用いて行われました。また、本研究の一部は産総研 NPF の支援を受けて実施されました。関係各位に感謝致します。

参考文献

- [1] S. I. Anisimov *et al.*, Zh. Eksp. Teor. Fiz **66**, 375 (1974).
- [2] B. Chimier *et al.*, Phys. Rev. B **84**, 094104 (2011).

- [3] M. Lenzner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **40**, 4076 (1998).
- [4] L. Gallais *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 223103 (2015).
- [5] T. Q. Jia *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 054105 (2006).
- [6] B. C. Stuart *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 2248 (1995).
- [7] H. Motoyama *et al.*, J. Synchrotron Rad. **26** 1406 (2019).
- [8] S. Owada *et al.*, J. Synchrotron Rad. **25**, 282 (2018).
- [9] Y. Kubota *et al.*, IEEE Xplore, MEGAGAUSS, 68-71 (2019).
- [10] T. Sato *et al.*, Appl. Phys. Express **8**, 012702 (2014).
- [11] J. M. Liu, Opt. Lett. **7**, 196-198 (1982).
- [12] T. Shibuya *et al.*, Appl. Phys. Lett. **113**, 171902 (2018).



編集部より

原稿をお寄せくださった高エネルギー加速器研究機構・加速器研究施設の河田先生、阪井先生、加藤先生、中村先生、産業技術総合研究所の澁谷先生、黒田先生、東京大学の坂上先生に深く感謝申し上げます。またもや依頼から編集まで遅れてしまったことを皆様に深くお詫び申し上げます。

COVID-19 でみなさまの生活から研究環境に至るまで大きく変化し、その対応に追われていることと思います。小生も、2020 年度前期は新入生向けの対応から、高校生向けの対応、オンライン授業の対応で自転車操業状態に陥りました。研究室の運営も学生対応として慎重にならざるを得ない状況が続いております。従来、研究や授業のことなど、学会や研究会の会場で情報交換してきたところではありますが、これからはオンラインでの情報交換になってくるのでしょうか。しかしながら、オンライン会合で話がうまくいっても満足感がイマイチ足りない感じがするのは、そのあとの懇親会がないからでしょうか。早く落ち着くことを願うばかりです。

(文責：東口 武史)

【メーリングリスト（登録メールアドレスの変更などについて）】

本ニュースレターは原則、メーリングリスト (xio-nl@prec.eng.osaka-u.ac.jp) によるメール配信となっております。メールアドレス変更などの際には、お手数ですが、編集部 (xioedit@prec.eng.osaka-u.ac.jp) までご連絡ください。メーリングリストは、研究会のお知らせなど、会員全員に情報を配信したいときなどにも便利なので、積極的にご活用ください。

X線結像光学ニュースレター
No.51 (2020年7月)

発行 X線結像光学研究会
(代表 兵庫県立大 籠島靖)
編集部 山内和人 (大阪大)、齋藤彰 (大阪大)、矢代航 (東北大)、
松本浩典 (名古屋大)、東口武史 (宇都宮大)
E-mail: xioedit@prec.eng.osaka-u.ac.jp
