

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 17 日現在

機関番号：84502

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13415

研究課題名(和文) 表面プラズモン共鳴を介した極短電子バンチ長の非破壊・即時計測技術の開発

研究課題名(英文) Non-destructive electron bunch length measurement via the surface plasmon resonance

研究代表者

岡安 雄一 (Okayasu, Yuichi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・加速器部門・研究員

研究者番号：90509910

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：数十フェムト秒(FWHM)の電子バンチの空間電荷分布を加速器真空系の外で非破壊・リアルタイムで計測する測定系を開発した。真空ダクトにメタマテリアル層を蒸着したプリズムを設置し、電子バンチ起因のクーロン場で表面プラズモン共鳴(SPR)を励起させ、これを計測する。SPR基板の構造は、実際の加速器の運転条件を反映した数値計算で最適化した。2015、2016年に京大ナノハブで製作し、レーザー顕微鏡でパターンの寸法・表面粗さの評価を行った。実証試験はSPRING-8のRFフォトカソード電子銃試験加速器で行う。加速器の増強工事と制御系の整備が予定よりも大幅に遅れた為、2017年12月以降を予定している。

研究成果の概要(英文)：We developed a non-destructive and real time electron bunch charge distribution measurement system via an organic Pockels Electro-Optic (EO) sampling apart from accelerator vacuum systems. The targeted bunch length is a few tens of femto-seconds (FWHM). Coulomb fields associated with the electron bunch excite surface plasmonic resonance (SPR) through a meta-material deposited prism and the SPR is measured by the EO sampling. Structures of the meta-material layer on the SPR substrate was optimized by a numerical analysis. The substrates were assembled at Kyoto University on 2015 and 2016 and geometrical structures of meta-material layers were measured with a 3D laser microscope. Feasibility test is demonstrated at an RF photocathode electron gun test accelerator, however the accelerator and its control system upgrade constructions are still undergoing, thus the feasibility test is scheduled to start from December 2017.

研究分野：加速器科学

キーワード：量子ビーム測定手法 E0 サンプリング 表面プラズモン励起 SPR フェムト秒 電子加速器 有機 E0 結晶

1. 研究開始当初の背景

現在、世界で稼働する X 線自由電子レーザー加速器の電子バンチ長は、数十フェムト秒 (fs) 程度 (FWHM) が一般的になりつつある。この電子バンチ長の非破壊・リアルタイム計測が可能となれば、極めて安定且つ高出力な seeded-FEL 発振のユーザー共用が実現する。

従来はストリークカメラや RF ディフレクタを用いたバンチ長計測が行われてきたが、いずれも破壊型であることから、リアルタイム計測には適さない。2000 年代初頭からは、GaP や ZnTe といった無機ポッケルス電気光学 (Electro-Optic; EO) 結晶を用いた EO サンプリング (EOS) による、非破壊バンチ長計測がドイツやスイスの加速器施設において開発されてきた。しかしながら、いずれも低周波数領域から出現する顕著な THz 場の吸収特性により、時間分解能は 120 fs (FWHM) 程度に制限されてきた。

他方、1986 年に東北大学の岡田らにより開発された、巨大な非線形性・電気光学特性を有する有機非線形光学媒質 DAST は、THz 場の吸収特性が極めて狭帯域 (0.8 - 1.3 THz) であり、光整流により ~200 THz までの広帯域で THz 場の高出力発生を可能とする。また DAST の様な 共役系有機材料の場合、一般に分子内の電子が電場応答に寄与するため、fs の応答速度と数十 fs (FWHM) の時間分解能が期待される。

上記の背景を踏まえ、我々は 2012 年 2 月、SPring-8 / SACLA 附設の EUV-FEL 試験加速器 (閉鎖・解体済、電子バンチ長 ~200 fs [FWHM]) において、上記で述べた有機ポッケルス EO 結晶 DAST を用いた EOS による電子バンチ長計測を世界で初めて成功させたが、同時に有機ポッケルス EO 結晶が加速器の放射線により損傷し、EO 信号が低減する問題があることを明らかにした。

2. 研究の目的

数十 fs の単一電子バンチについて、加速器真空系の外で測定系の放射線損傷を気にすること無く、非破壊・リアルタイムで電子バンチ長を計測可能にする、新しい概念を導入した測定系 (SPR - EOS) の開発を目的とする。

3. 研究の方法

電子バンチのバンチ長を、表面プラズモン共鳴 (SPR) を介して計測する手法を提唱する。図 1 に測定系の概念図を示す。真空チャンバーの一部に、クレッチマン配置でプリズムを設置する。プリズムの大気側表面には、金によるメタマテリアル層を蒸着した合成

石英板 (SPR 基板) をプリズムにオプティカル接合する。

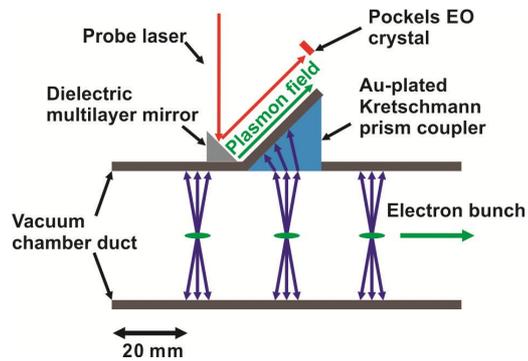


図 1. 表面プラズモン場を介した EOS による電子バンチ長計測の概念図。

プリズムの形状に関しては、メタマテリアル層に対する電子バンチ起因のクーロン場の入射角が、表面プラズモン場を誘起させるための共鳴条件を満たす様、最適化する (一般的には約 45°)。メタマテリアル層の表面に励起された SPR を、超広帯域 (795 nm ± 150 nm) ・高出力 (10 μJ) のプローブレーザー (既に構築済み) と有機ポッケルス EO 結晶 DAST を用いて EOS 計測を行う。有機ポッケルス EO 結晶に誘起された SPR を印加させることにより、結晶の屈折率が電場の強度により変化する (電気光学効果)。同じタイミングで結晶にプローブレーザーを透過させることにより、プローブレーザーの偏光位相がシフトする。この位相変調成分をポライザーで切り分け、分光器で計測することにより、電子バンチの空間電荷分布が得られることから、最終的にバンチ長として復調し、評価するものである。

本研究は SPring-8 / SACLA 附設の RF フォトカソード電子銃試験加速器で行う。表 1 に RF フォトカソード電子銃試験加速器の主要性能 (設計値) を示す。

表 1. RF フォトカソード電子銃試験加速器の主要性能 (設計値)

* 電子バンチ	
エネルギー	~70 MeV (最大 85 MeV)
バンチ電荷	20 - 60 pC
バンチ長 (FWHM)	20 - 50 fs
繰り返し周波数	10 Hz
* プローブレーザーパルス	
バンド幅 (FWHM)	300 nm @ 795 nm
パルスエネルギー	~10 μJ
繰り返し周波数	10 Hz

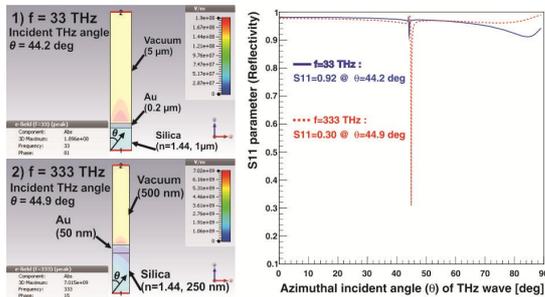


図 2. SPR 基板構造 (左) と、異なる周波数の THz 波の金属面に対する入射角と金属面における反射率特性 (右)。

図 2 に 2 種類の THz 場に対応した基板構造 (左) と金属 (Au) 面に対する THz 波の入射角と金属面における反射率の相関 (右) を示す。本研究の実験条件では、クーロン場の周波数は 33 THz に相当する。この場合、入射角を適切に選ぶことにより、THz 波の透過率は 10% 程度に留まり、金属表面から 1 mm 離れた E0 結晶での SPR 強度は 5 MV/m 程度と見積られる。このような数 MV/m 程度の比較的弱い電場を EOS 計測する場合、無機ポッケルス E0 結晶では S/N が悪く難しいが、有機ポッケルス E0 結晶であれば我々は既に実績があり、可能である。

4. 研究成果

(1) メタマテリアル層の材質選定

SPR 励起に用いられるメタマテリアル層の材質として、金と銀が一般的であるが、ここではアルミニウムも加えてメタマテリアル層における入射波 (加速器の電子バンチ起因クーロン場を想定した THz 波) の反射率 (S11) の計算結果を比較し、図 3 に示す。メタマテリアル層の厚みはいずれも 83 nm であり、合成石英は厚さ 1 μm の S-BSL7 (OHARA) を仮定した。また、数値計算で使用したコード CST MICROWAVE STUDIO SUITE で入射波として仮定した電場の時間分布も図 3 に重ね書きした。

比較の結果、メタマテリアル層の材質に金を採用し入射角度を 44.3° とした場合、入射波の反射率は 0.02 と最も低いことが判った。反射率を最小とする入射角範囲は 0.1° 程度と極めて狭いことから、プリズム、若しくは測定チェンバー本体に精度の良いゴニオメータなどの回転機構を設けることが必須である。

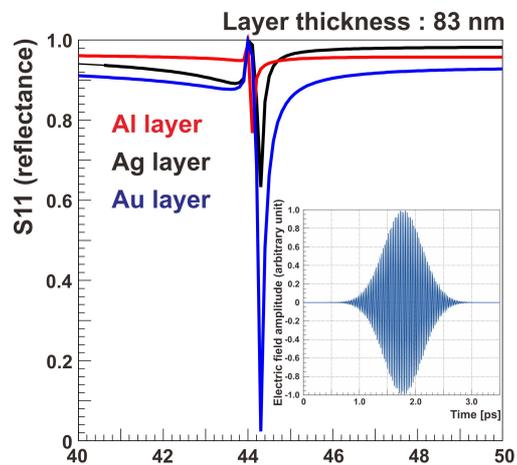


図 3. メタマテリアル層に金、銀、アルミニウムを仮定した場合の入射波の反射率 (S11) 比較。

(2) メタマテリアル層の厚みとクーロン場入射角の最適化

メタマテリアル層の材質は金に決定した。続いてメタマテリアル層の厚みとクーロン場の入射角度の反射率に対する相関を調査した。合成石英板は同様に厚み 1 μm の S-BSL7 (OHARA) を仮定している。横軸にメタマテリアル層の厚み、縦軸にクーロン場の入射角を取った場合の反射率の計算結果を図 4 に示す。

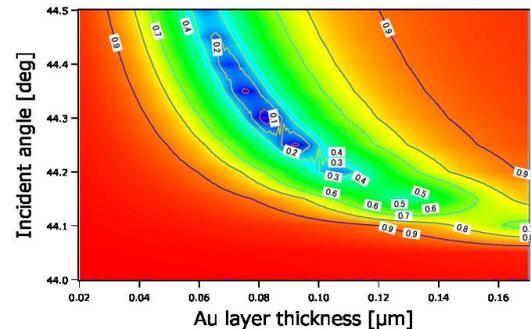


図 4. メタマテリアル層の厚さとクーロン場の入射角の反射率 (S11) 依存性。

計算ではメタマテリアル層の厚みを 20 - 170 nm、入射角を 44.0° - 44.5° の範囲で振ったが、厚み 83 nm、入射角 44.3° で反射率の最小が得られることを確認した。また、図 4 の計算結果より、入射角度は 44.3° ± 0.2%、メタマテリアル層の厚みは 83 μm ± 20.5% の許容があり、メタマテリアル層の製作において厚み交差に余裕があることが判る。

(3) プリズム (合成石英) の選定

プリズムに使用される合成石英の種類は豊富に存在するが、ここでは想定されるクーロン場の中心波長 9 μm に対する屈折率について、表 2 に示す様に幅広い種類の材質に対し、83 nm 厚のメタマテリアル層におけるクーロン場の反射率を比較した (図 5)。

表 2. 合成石英の種類と反射率

合成石英の種類	屈折率 @ $\lambda = 9 \mu\text{m}$
N-FK51A (SCHOTT)	1.1487
BSC7 (HOYA)	1.2289
BAF10 (HOYA)	1.3014
E-SF11 (HIKARI)	1.3690
S-BSL7 (OHARA)	1.4233
ZF13 (CDGM)	1.4323
ZF4 (CDGM)	1.4536

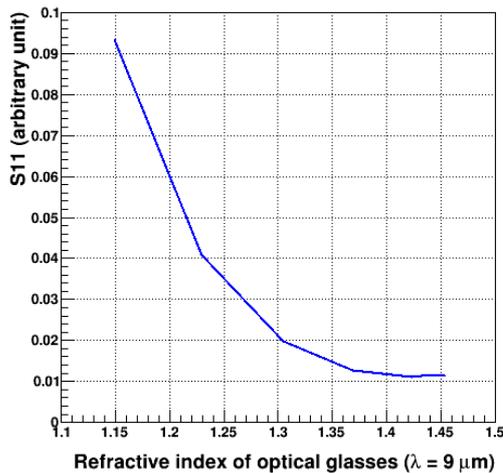


図 5. メタマテリアル層におけるクーロン場の反射率と合成石英の屈折率依存性。

クーロン場の入射角度を 44.3° に固定した場合、BK7 群 (S-BL7) が最も低い反射率を与えることが判る。材質の汎用性・入手性も良好であるため、合成石英には BK7 を採用する。

(4) メタマテリアルパターン構造最適化

合成石英板に蒸着した金のメタマテリアル層のパターンは、SPR 励起効率と加工の安定性を鑑みて、一直線上に凹凸を繰り返すスリット構造を採用した。プリズムを通してメタマテリアル層へ入射するクーロン場起因の THz 波の入射角と、励起する SPR の強度に相当する S11 パラメータの相関を、スリットの深さ 20 nm 固定でスリット幅を 150 - 300 nm で可変とした場合 (図 6 左上) と、スリット幅を 200 nm に固定してスリットの深さを 20 - 50 nm で可変にした場合 (図 6 右上) について、CST MICROWAVE STUDIO SUITE で計算・評価した。またいずれの場合も、合成石英とメタマテリアル層の間には、厚さ 20 nm のニッケル接着層を仮定した。その結果、スリットの幅は 200 nm、深さは 20 nm が最適であると判断し、合成石英及びメタマテリアル層の構造を図 6 (下) の通りに決定した。図 6 (下) のパターン図において、メタマテリアル層の周りに描かれている 6 つの点は、金蒸着面へパターンを転写する際のアイメント用の目印である。

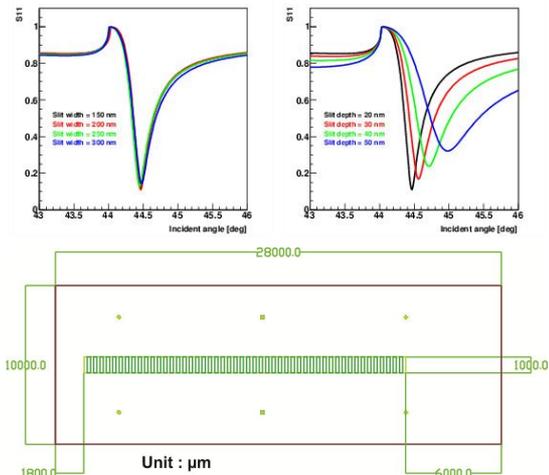


図 6. メタマテリアル層に加工したスリットパターンについて、入射 THz 場反射率のスリット間隔の依存性 (左上)、スリット深さの依存性 (右上) の計算比較。下段はスリット深さ 20 nm、スリット間隔 200 nm に決定し、合成石英薄板に施したメタマテリアル層に加工したパターンの最終設計。

(5) SPR 基板製作

2015 年 12 月及び 2016 年 1 月に、京都大学吉田キャンパスのナノテクノロジーハブ拠点 (以下、京大ナノハブ) において、SPR 基板の製作を行った。当該施設はクラス 100 - 100,000 のクリーンルームに数多くの最新鋭のリソグラフィー装置、材料加工装置、分析・評価装置を所有する。京大ナノハブでは、幅 10 mm x 長さ 28 mm x 厚さ 3 mm の合成石英板に 1 mm x 20 mm のパターン加工し、加工済みの合成石英板とプリズムの光学接合は株式会社ジャパンセル (東京都町田市) に依頼した。実際のパターニングではその工程で試行錯誤を繰り返したが、最終的に確立したパターニング工程 (図 7) について報告する。

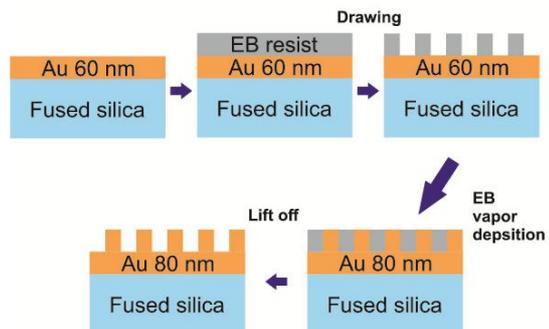


図 7. パターニング工程の流れ

パターニング工程の詳細を以下にまとめる。各項目の括弧内の数字は作業時間 [時間] (目安) である。

基板洗浄 (1)

硫酸と過酸化水素水の混合液 (5:1) に合成石英板を 2 分浸し、蒸留水で 5 分洗浄した後乾燥。

Ni / Au 蒸着・ベーキング (3)

電子線蒸着装置（キャノンアネルバ製 EB-1200）により、合成石英板に Ni、Au の順で蒸着を行った。厚みは Ni で 20 nm 相当 (217 Å)、Au で 60 nm 相当 (601 Å) とした。その後、ホットプレートを使用し、200 で 5 分ベークを実施。

フォトリソ塗布 (1)

厚膜フォトリソ (以下、PR) 用スピニング装置 (ズース・マイクロ・テック製 Delta80、他) を用いて、リフトオフ用 PR 剤 (日本ゼオン製 ZPN1150-90、10 cc 程度) を合成石英板に塗布した。ローテーターの回転数は 2600 rpm で 5 秒の後、4000 rpm で 30 秒実施した。その後 90 で 90 秒間プリベークを実施。

露光・現像 (1)

高速マスクレス露光装置 (ナノシステムソリューションズ製 DL-1000GS/KCH) でパターンを載せる領域のみ露光 (140 mJ/cm²)。110 x 90 秒で露光後、レジストベーク (PEB) でレジストの安定化を図り、未感光部を除去。現像液は NMD-3 を使用し、現像時間は 70 秒。

Au / Ni エッチング (4)

最初に合成石英に蒸着した Ni / Au のうち、パターンを載せない領域をエッチング処理。エッチャントと時間は Au が AURUM302 で 3 分間、Ni は硝酸と酢酸の混合液 (2:1) で 2 分間。

PR 除去・ベーク (1)

合成石英板をアセトンに浸し、1 分間超音波洗浄を実施。その後エタノールと蒸留水で 5 分間洗浄。150 x 5 分間の除湿ベーク。

PR 塗布 (1)

HMDS (ヘキサメチルジシロキサン) に 1 分間浸し、合成石英板を疎水化表面処理。その後 の処理を実施。

露光・現像 (2)

と同様の処理を実施。但し露光条件は、合成石英面に対しては 240 mJ/cm²、Au 面に対しては 140 mJ/cm²。

Au 蒸着 (2)

の装置を用い、Au を 20 nm 相当 (202 Å) 蒸着。

リフトオフ (16)

剥離剤 (microposit 製 remover1165) に 75 で 1 分間浸した後、室温にて 15 時間浸す。

(6) SPR 基板の表面観察と寸法評価

製作した SPR 基板について、京大ナノハブの三次元レーザー顕微鏡で表面観察及び寸

法と表面粗さの非破壊計測を実施した。図 8 (上) は合成石英板を含む、メタマテリアル層の端の表面観察例を示す。

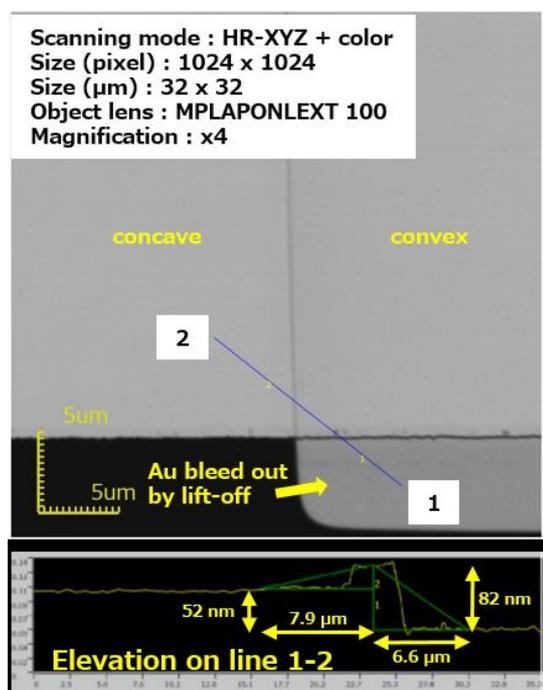


図 8. 三次元レーザー顕微鏡による金蒸着面のパターン拡大図 (上) と拡大図で定義した 1 と 2 を結ぶ直線でのパターンの計測寸法。

中央の線を隔てて左側が金蒸着面に加工したスリット凹部、右側が凸部であり、左下の黒い領域が合成石英板である。右下の合成石英板とスリット凸部に囲まれた領域は、リフトオフ時に合成石英板へ染み出した Au である。Au の染み出し部とスリット凹部に定義した直線部 (1 - 2) に対し、三次元レーザー顕微鏡 (OLYMPUS 製 LEXT OLS4000、繰り返し精度 : ±6 nm) で凹凸構造の高さを評価した結果を図 8 (下) に示す。また製作した SPR 基板のスリット幅、深さ、表面粗さの代表値を表 3 にまとめる。

表 3. メタマテリアル層パターン構造の計測寸法 (代表値)

スリット幅 (凹部)	194 μm
スリット幅 (凸部)	206 μm
スリット深さ	18 μm
表面粗さ	±5 nm

スリット幅において、凸部より凹部の方が狭い理由は、PR の断面形状が上底の長い台形のためであり、リフトオフによるパターニングの特徴である。PR の断面形状は (5) パターニング工程記載の工程 で実施するプリベークの温度に依存し、温度が低い場合は上底の長い台形で、温度が高いほど半円形になる。因みにリフトオフではない他のパターニング方法である、ドライエッチングによるパターニングの場合、溝の形状は制御できるがエッチングで残した膜厚を正確に制御できない短所がある。スリット深さの値は、幅 1 mm のパターン中心部での測定値であり、端部は 30 nm 程度である。表面粗さについては相対的に大きくなってしまい、更に精度良く制御する手法の開発が今後の課題である。一方で三次元寸法計測で使用した顕微鏡の繰り返し精度は、表面粗さとほぼ同等である。また、レーザー顕微鏡の場合、合成石英板のような透明な被測定体は計測精度が劣ることから、透明な被測定体を含めより精度良く寸法計測が可能なる手法の開発が必要である。

蒸着と PR 塗布、若しくはドライエッチングによるパターン加工は、主として精度の良い膜厚の制御に限界がある。蒸着においては、電子線蒸着装置の電流及び照射時間による経験則から膜厚を予想し、PR 塗布についてはスピコーティングの回転数と時間で膜厚を予想する。標的とするパターン寸法の一割程度のオーダーが、加工精度・計測精度となっているのが現状である。

最後に ICF152 の SUS304 製フランジへバックシールで接合した SPR 基板付きプリズムの実機を図 9 に示す。また図 10 に実証試験を行う SPR - EOS チェンバーの断面図 (上) と試作機 (下) を示す。実証試験は 2016 年 10 月に行う予定であったが、加速器及びレーザー光源の増強工事と制御系の整備が予定よりも大幅に遅れているため、2017 年 12 月以降を予定している。

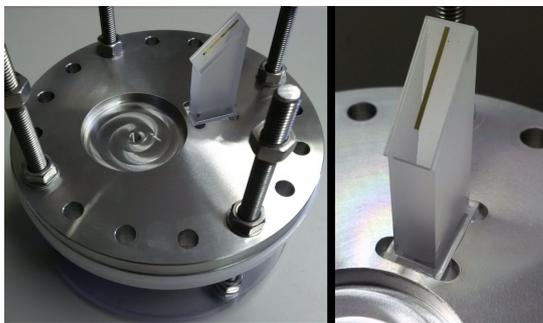


図 9. メタマテリアル層にパターン加工を施した SPR 基板を合成石英プリズムにオプティカル接合した SUS304 製 ICF152 フランジ。

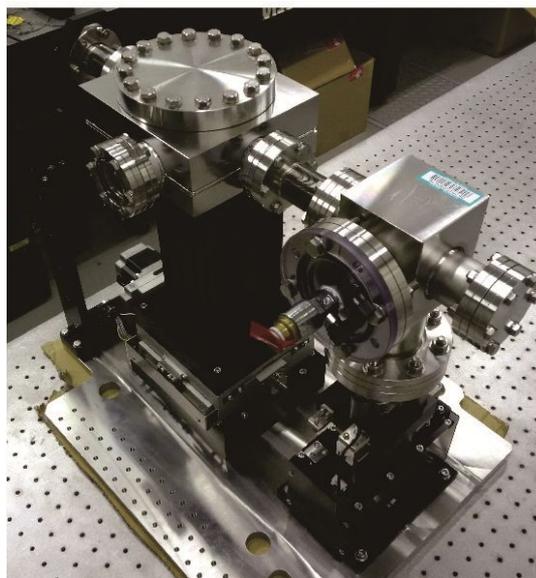
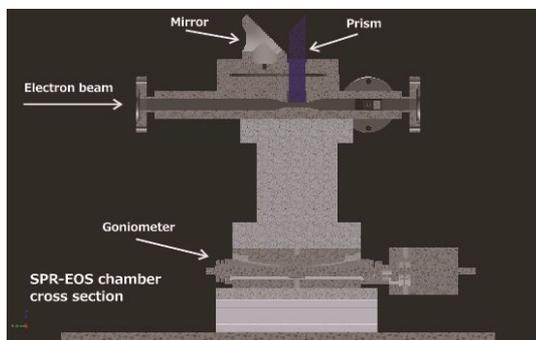


図 10. SPR - EOS チェンバーの断面図 (上) と実機 (下)。

< 引用文献 >

- S. Casalbuoni *et al.*, Phys. Rev. ST Accel. Beams **11**, 072802 (2008)
- H. Nakanishi *et al.*, Proc. MRS Int. Mtg. Adv. Mater. **1**, 97 (1989)
- Y. Okayasu *et al.*, Phys. Rev. ST Accel. Beams **16**, 052801 (2013)
- <http://refractiveindex.info>

5 . 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 2 件)

岡安雄一、表面プラズモン共鳴を介した電子パンチ長の非破壊計測の検討 (1)、第 12 回日本加速器学会年会、2015 年 8 月 6 日、福井県敦賀市

岡安雄一、表面プラズモン共鳴を介した電子パンチ長の非破壊計測の検討 (2)、第 13 回日本加速器学会年会、2016 年 8 月 8 日、千葉県千葉市

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

岡安 雄一 (OKAYASU, Yuichi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター
加速器部門・研究員

研究者番号：90509910