

令和元年6月26日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05030

研究課題名(和文) レーザープラズマを用いた高輝度X線集光技術の開発

研究課題名(英文) Development of focusing technique of highly brilliant x-rays by use of laser-produced plasma

研究代表者

河内 哲哉 (Kawachi, Tetsuya)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所・所長(定常)

研究者番号：40343941

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：レーザー生成プラズマの急峻な密度勾配による屈折率変化を利用したX線集光レンズ等の新しいX線光学素子の実現を目的とし、金、モリブデン等のサンプル表面に光学レーザーを照射した際に固体表面に生成する原子数層の薄膜プラズマがX線領域のビームスプリッターとして機能することを軟X線プローブを入射することにより実証した。また、炭素プラズマによるX線レンズの実現に向けて、衝突輻射モデルによるレーザー照射時の炭素多価イオンの生成ダイナミクス及び電子密度の時間発展を計算するとともに、2次元流体コードによる電子密度分布に対するX線光線追跡を行い、プラズマのX線集光レンズとしての性能を定量的に評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、高輝度軟X線源の新しい集光技術の実証に先鞭をつけたものであり、近年の発展が著しいX線自由電子レーザーや高次高調波、更にはX線管などからのK殻特性X線などの他のX線源の集光技術やビームスプリッターとして適用可能である。従って、X線利用技術を一段と高める基盤技術として、物質科学や材料科学、創薬・医療技術、更には非破壊検査などの多くの産業分野や学術分野における計測・観察技術の高性能化へと繋がると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Aiming at the realization of novel X-ray optics such as X-ray focusing lens using the change in the refractive index originated from the steep density gradient in laser-produced plasmas, we demonstrated an X-ray beam splitter transiently generated in laser-produced plasma. A gold or molybdenum sample was irradiated by an optical laser pulse, and thin film with several atomic layers was generated in the front of the expanding plasma. This thin film formed on the surface was probed by SACLA soft x-ray laser, and we found that the thin film worked as X-ray beam splitter. In order to realize an X-ray lens by carbon plasma, we calculated the temporal evolution of highly-charged carbon ions and the electron density using the collisional-radiative model. In addition, X-ray ray trace was performed on the electron density distribution by 2D hydrodynamics simulation to evaluate the performance of the plasma as an x-ray focusing lens.

研究分野：コヒーレントX線科学

キーワード：X線レーザー X線光学 プラズマ科学 プラズマ分光学 高強度レーザー レーザー科学

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

X線は、物質科学や、創薬・医療技術、更には非破壊検査などの計測技術や観察技術に広く一般に応用されており、現代の科学技術や産業において必要不可欠な存在になっている。一方、近年の超短パルス高輝度X線源（高次高調波、プラズマX線レーザー、X線自由電子レーザー等）の急速な発達は、従来の放射光やX線管等のX線源に比べて何桁も高い輝度を持つ、ピコ秒(10^{-12} 秒)からフェムト秒(10^{-15} 秒)領域の軟X線～X線が利用できる環境を作りつつあり、今まさに、これらの高輝度X線源による物質科学の探究や、材料加工、高空間時間分解の非破壊検査技術などへの応用を行う土壌が整いつつある。高輝度X線の利用を展開するうえで、X線集光素子は必要不可欠である。既存のX線集光素子としては、超精密加工による Kirkpatrick-Baez (K-B) 鏡や、市販化されているものとしては、フレネルゾーンプレート、キャピラリーチューブ、そしてEUV領域における Mo/Si 多層膜鏡などが挙げられる。しかしながら K-B 鏡に関しては非常に高価なうえに、斜入射光学系が基本となるため、X線の集光に大きな空間を必要とすること、また、市販品については、損傷耐力が十分に高くないことに加え、ゾーンプレートやキャピラリーチューブについては、効率が低いこと、更に多層膜鏡に関しては、利用できる波長範囲が限られていることなど、既存のX線集光光学素子は、サイズ、効率、損傷耐力などに問題点を持っている。このような背景のもと、コンパクトな光学配置で耐力に優れ、高効率で安価な新しいX線集光光学素子の探求が求められている。

2. 研究の目的

近年、我々はX線の蜃気楼現象をプラズマ中で初めて観測したが、その際にプラズマの特殊な電子密度分布が、高品質でほとんどロスのないX線の凹レンズとして作用することを見いだした。このプラズマレンズは、X線の吸収の影響が小さく、高い波面精度を有し、様々な焦点距離の凸レンズ生成も期待でき、入射X線に対する破壊強度が非常に高い、などの優れた可能性を有している。本研究では、このプラズマを用いたX線光学素子を、世界に先駆けて具現化することを目標に定め、そのためにプラズマの電子密度空間分布の制御によるX線集光レンズの生成手法の確立と、その性能評価を行うとともに、同じくX線領域の光源の制御に有用なビームスプリッターの生成とその利用の実証を行い、X線光学素子としてのプラズマの可能性を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) X線ビームスプリッターの生成とその利用の実証研究

短パルスの光学レーザーを金属固体表面に照射し、その際に生じる表面原子数層の剥離（スパレーション）とその後に起きる電離によって生成する薄膜プラズマを実験的に生成し、それが軟X線領域のビームスプリッターとして作用することを示す。プローブ光源（軟X線源）としては、量研関西研の波長13.9nmのプラズマ軟X線レーザー及び理研SACLAの軟X線レーザー（EUV領域で可変）を用い、ポンププローブ手法により、プラズマ中に生成するX線ビームスプリッターや密度勾配を利用したX線レンズ等の過渡的特性を明らかにする。

(2) 数値シミュレーションによるX線プラズマレンズの原理実証とその特性評価

プラズマの密度勾配による軟X線～X線の屈折を利用したレンズの原理実証を行うために、中空の炭素ターゲットの内側に生成するプラズマの電子密度分布を数値計算により導出し、そのプラズマにより波長13.9nmのレーザーが実際に集光できることを示す。炭素プラズマの電離過程が電子密度空間分布へ与える影響を調べるために衝突輻射モデルによるイオン化及び電子密度の

時間発展について評価するとともに、流体シミュレーションから導出される電子密度空間分布に対してX線の光線追跡を行い、その集光特性を評価する。

4. 研究成果

(1) X線ビームスプリッターの生成とその利用の実証研究

レーザー生成プラズマを用いたX線光学素子の実現に向けて、複数の金属サンプルに対してフェムト秒の光学レーザーを照射し、そのフルエンス等の違いによる反射像や反射率変化の計測を実施した。サンプル表面にレーザープラズマを生成させる閾値近傍の照射強度ではスパレーションという薄膜飛散が発生する。スパレーション薄膜の表面の急峻な密度勾配を利用することでX線領域の屈折光学素子を実現することも可能であるが、ここではスパレーション膜を利用したX線ビームスプリッターの可能性を検討した。図1は、金、モリブデン、タングステンサンプルを対象としてフェムト秒レーザーを照射した数100ps後のアブレーションプラズマによる波長13.9 nmの軟X線レーザービームの反射像である。図1に見られるように実験では軟X線領域のニュートンリングの生成が確認された。このニュートンリングは、スパレーション薄膜で反射する軟X線と、薄膜を透過し固体表面で反射する軟X線の干渉によって引き起こされるものであり、レーザー生成プラズマが軟X線のビームスプリッターとして機能することの証明になる。また、得られた干渉縞の輪郭が明瞭なことから、このビームスプリッターが軟X線に対して十分な面精度を有することも明らかになった。

最終年度には、X線自由電子レーザー施設SACLAの軟X線自由電子レーザービームラインBL1を用いた、軟X線レーザーの屈折計測のためのポンププローブ実験を開始した(SACLA2018A期)。SACLA BL1の軟X線レーザーは硬X線レーザー(SACLA BL2またはBL3)に比して、プラズマ中の電子密度分布による屈折の影響を受けやすいため、屈折計測には都合が良い。実験ではチタンサファイアレーザー(ポンプ光)によって生成したプラズマに軟X線自由電子レーザー(プローブ光)を入射し、プラズマの密度勾配から期待される軟X線レーザーの光路変化をビームライン後方に設置した二次元検出器(X線CCDカメラ)の検出位置情報として取得することを試みた。プラズマ生成のための試料は、前年度まで検討を進めてきた窒化シリコン(Si_3N_4)窓および Si_3N_4 窓上に成膜した金属薄膜を用いた。照射実験を進める中で、SACLAの強度の最適化の必要性やポンプ光及びプローブ光の試料上での照射位置や集光径の調整の必要性などの課題が明らかとなった。本実験提案はSACLA基盤開発プログラムに「SXFEL照射強度の精密調整機構を備えたポンプ-プローブ実験装置の構築」(フィジビリティ調査)として採択され、2019年夏頃の設置をめざしたBL改造が行われている。今後、上記技術的な課題の解決を図りながらX線領域の過渡的な凸レンズ生成技術の確立を目指すことになる。



図1 固体表面からのスパレーションを利用したX線ビームスプリッターの概念図(左)と各金属サンプルに対して各々の表面で観測された軟X線領域のニュートンリング

(2) 数値シミュレーションによるX線プラズマレンズの原理実証とその特性評価

炭素をターゲットとして用いるプラズマ光学素子の実現に対する定性的・定量的な理解を得る為に、衝突輻射モデルによるイオンの励起状態占有密度及び電子密度の時間発展を数値計算的に評価した。シミュレーションでは、現象の把握が比較的容易である再結合プラズマを対象としてコードの開発を行い、その後、電離プラズマへの適応を行なうこととした。水素様炭素イオンの再結合過程における占有密度の時間変化を求め、その際の電子密度の空間分布の変化を計算した。電子密度の空間分布の時間変化は、各エネルギー準位間の励起・脱励起及び電離・再結合等の素過程に支配されるところが大きいため、占有密度のダイナミクスを流入や流出による模式図で視覚的に理解できるアプリケーションを開発した。

更に、与えられた電子密度空間分布に対して、どの程度の軟X線領域のレンズ効果が得られるかを調べるために、流体シミュレーションとX線光線追跡を組み合わせた計算を行なった。

ターゲットの形状は図2(a)の通りであり、奥行きは100 μm とした。このターゲットの内側に照射強度 $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のレーザーを均一照射し、プラズマを吹き出させる。各時刻のプラズマの電子密度空間分布に対してビーム直径50 μm の波長13.9 nmの軟X線レーザーを打ち込んだ際の屈折の様子を計算した。図2(b), (c)は、レーザー照射後100 ps後のプラズマに軟X線レーザーを入射した際の結果であり、各々、プラズマから1 cm、1 mの距離でのビームパターンであり、明らかに集光効果を見ることができる。1 mの位置での集光径は大凡5 μm であり、入射ビーム径と焦点距離及び波長で決まる回折限界に近い値になっている。また、図2(c)において、特に内向きのプラズマの膨張により生じるプラズマ同士の衝突による局所的な高密度領域により集光されずに発散する成分が見られるが、定量的には20%程度であり、約80%のX線の集光が可能であるという結果を得た。

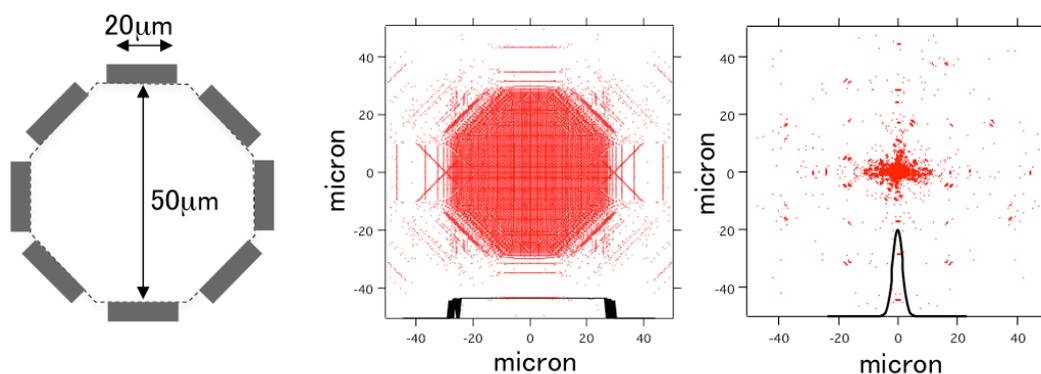


図2 数値シミュレーションで仮定した炭素ターゲットの形状(a)と、X線レンズ通過後の波長13.9nmレーザーのビームパターン。プラズマからの距離は(b); 1cm、(c); 1m。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

- ① Ishino Masahiko, Dinh T.-Hung, Hasegawa Noboru, Sakaue Hitoshi, Higashiguchi Takeshi, Ichimaru Satoshi, Hatayama Masatoshi, Washio Masakazu and Nishikino Masaharu, Development of soft x-ray laser irradiation beamline for ablation and damage study, Proceedings of SPIE, 査読有, 10905, 109051C (2019).

DOI: 10.1117/12.2513390

- ② Ishino Masahiko, Inogamov Nail, Tamotsu Satoshi, Zhakhovsky Vazili, Hasegawa Noboru, Skobelev Igor, Faenov Anatoly, Pikuz Tatiana, Mikami Katsutoshi, Kawachi Tetsuya and Nishikino Masaharu, Study of damage structure formation on aluminum film targets by picosecond soft X-ray laser ablation around threshold region, Applied Physics A, 査読有, 124, 649, 1-8 (2018).
DOI: 10.1007/s00339-018-2072-9
- ③ Pikuz Tatiana, Faenov Anatoly, Nishikino Masaharu, Tetsuya Kawachi他16名, In Situ Characterization of XFEL Beam Intensity Distribution and Focusibility by High-Resolution LiF Crystal Detector, Proceedings of the 15th International Conference on X-ray Lasers, Springer Conference Series, 査読有, 202, 21-24 (2018).
DOI: 10.1007/978-3-319-73025-7_17
- ④ Nishikino Masaharu, Hasegawa Noboru, Ishino Masahiko, Imazono Takashi, Sasaki Akira, Mikami Katsutoshi, Dinh T.-Hung, Suemoto Toru, Namba Sinichi, Faenov Anatoly, Pikuz Tatiana, Ichimaru Satoshi, Hatayama Masatoshi, Kawachi Tetsuya, Progress and Prospects of X-Ray Laser Research in QST, Proceedings of the 15th International Conference on X-ray Lasers, Springer Conference Series, 査読有, 202, 21-24 (2018).
DOI: 10.1007/978-3-319-73025-7_3
- ⑤ Kawazome Hayato, Namba Sinichi, Numerical Calculation of Gain Coefficient for Recombination X-Ray Lasers in a Carbon Cluster Plasma, Proceedings of the 15th International Conference on X-ray Lasers, Springer Conference Series, 査読有, 202, 63-68 (2018).
DOI: 10.1007/978-3-319-73025-7_10
- ⑥ Nishikino Masaharu, Hasegawa Noboru, Tomita Takuro, Minami Yasuo, Eyama Takeshi, Kakimoto Naoya, Izutsu Rui, Baba Motoyoshi, Kawachi Tetsuya, and Suemoto Toru, Formation of x-ray Newton's rings from nano-scale spallation shells of metals in laser ablation, AIP Advanced 査読有, 7, 015311-1-5 (2017).
DOI: 10.1063/1.4975218
- ⑦ Faenov Anatoly, 石野雅彦, 河内哲哉, 高密度プラズマによるX線レーザーの屈折効果, J. Plasma Fusion Res. 査読有, 92, 523-529 (2016).
DOI: なし

[学会発表] (計5件)

- ① Nishikino Masaharu, Surface Ablation by Soft X-ray Laser Pulse for EUV nano-scale fabrication, 2018 Source Workshop, EUV Litho, Inc. (招待講演)、2018年11月、プラハ、チェコ共和国.
- ② Kawachi Tetsuya, Generation of short wavelength radiation and energetic particles using PW-class lasers, The 16th International Conference on X-ray Lasers (招待講演)、2018年10月、プラハ、チェコ共和国.
- ③ Kawachi Tetsuya, Generation of energetic charged particles and radiation by use of peta-watt lasers in QST-KPSI, The 10th Asian Symposium on Intense Laser Science (招待講演)、2018年3月、シャルージャ、アラブ首長国連邦.

- ④ Kawachi Tetsuya, Recent Progress of Laser-Driven Intense X-ray Sources and the Applications, 24th Congress of the International Union of Crystallography (招待講演), 2017年8月, ハイデラバード、インド.
- ⑤ Nishikino Masaharu, Hasegawa Noboru, Tomita Takuro, Minami Yasuo, Eyama Takeshi, Kakimoto Naoya, Izutsu Rui, Baba Motoyoshi, Kawachi Tetsuya, and Suemoto Toru, Observation of fs-laser spallative ablation by soft x-ray laser probe, SPIE Photonics west:Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing(LAMOM) XXII (招待講演)、2017年01月31日、サンフランシスコ・米国.

〔図書〕(計1件)

河内哲哉、レーザー科学における革新的な大発明、東京化学同人、現代科学 2018年12月号 p33-37.

〔その他〕

関西光科学研究所ホームページ

<https://www.qst.go.jp/site/kansai/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

① 研究分担者氏名：錦野 将元

ローマ字氏名：(NISHIKINO, Masaharu)

所属研究機関名：国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

部局名：関西光科学研究所 光量子科学研究部

職名：グループリーダー

研究者番号(8桁)：70370450

② 研究分担者氏名：川染 勇人

ローマ字氏名：(KAWAZOME, Hayato)

所属研究機関名：独立行政法人国立高等専門学校機構 香川高等専門学校

部局名：情報工学課

職名：准教授

研究者番号(8桁)：90391325

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：長谷川 登

ローマ字氏名：(HASEGAWA, Noboru)