

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2012

課題番号：23760040

研究課題名（和文） X線レーザーの偏光制御技術の実用化

研究課題名（英文） Polarization control technique for x-ray laser

研究代表者

今園 孝志 (IMAZONO TAKASHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究職

研究者番号：50370359

研究成果の概要（和文）：

本研究の目的は、Mo と Si から成る反射型多層膜鏡がレーザープラズマ励起に基づくX線レーザー(XRL)光源(波長 13.9 nm)に対して移相子(四分の一波長板($\lambda/4$ 板))として機能すること、及びこれを用いて XRL の偏光を制御し、円偏光化できること実証することである。これの実現のために、多層膜移相子の設計・製作、放射光源による移相子の偏光特性評価を行った。更に、XRL 光源を用いた検証実験を行い、円偏光 XRL 光源を実現できたことを確認した。

研究成果の概要（英文）：

The purpose of this study is to verify that a Mo/Si multilayer mirror acts as a reflection phase shifter having a retardation of 90 degrees, i.e., quarter-wave plate, for laser-driven soft x-ray laser (XRL). The Mo/Si multilayer phase shifter allows us to control the state of polarization of XRL. A reflection-type Mo/Si multilayer phase shifter is designed and fabricated, and of which the polarization property is characterized by using synchrotron radiation light. The experimental results clearly show that a circularly polarized XRL light is created by means of the phase shifter.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,000,000	600,000	2,600,000

研究分野：工学

科研費の分科、細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：軟X線多層膜、偏光解析、X線レーザー、偏光子、移相子、偏光制御

1. 研究開始当初の背景

原子力機構関西光科学研究所(KPSI)では、7 ps 幅、波長 13.9 nm、数百 nJ の高輝度で高いコヒーレンスを持つ軟X線レーザー(XRL)システムを建設、運用している。これは 10 J、ピコ秒幅の Nd ガラスレーザーを 2 組のテープ状銀ターゲットに照射して生成したニッケル様銀プラズマをそれぞれシード光及び増幅器として用いている。これはダブルターゲット方式と呼ばれ、シングルターゲット方式より約 5 倍ピーク強度を高輝度化でき、また、ビームダイバージェンスを 5～10 mrad から約 0.2 mrad に小さくできる。こ

のような特徴を有する XRL は、物質に照射され、空間的・時間的性質を利用したスペックル計測、ナノスケールのダイナミクスや表面改質などの研究に利用されている。

XRL の特性はレーザー照射によって生成されるプラズマの密度勾配、電子温度などに依存する。プラズマに関する知見はプラズマが放出する X 線の偏光を詳細に解析(偏光プラズマ分光)することで得ることが出来る。つまり、偏光はプラズマ科学のみならず、これと密接に関連する核融合研究等においても重要である。しかし、KPSI の XRL 光源の偏光に関してこれまで定量的な評価研究は行わ

れてこなかった。また、XRLの偏光状態は、光源（プラズマ）から利用実験が行われるエンドステーションまでの間に設置された複数のMo/Si多層膜反射鏡（ビーム転送や集光に利用）によって保存されず、変化していると考えられる。具体的には、Mo/Si多層膜は擬ブリュースター角近傍（屈折率がほぼ1のため約 45° ）で偏光選択性が強く現れ、偏光子として機能するため、エンドステーションでのXRLは定性的には鉛直に直線偏光であると考えられ、その直線偏光度は不明である。よって、光源開発やその利用実験においてプラズマやエンドステーションでの偏光状態を予め定量的に評価することは重要である。

円偏光は、磁性体や異方性物質の光学活性の研究等に有用で、数keV以上のX線領域においては可変偏光型アンジュレータの他、平面アンジュレータにダイヤモンド移相子（ $\lambda/4$ 板）を組み合わせて直線偏光から円偏光を生成するだけでなく、偏光ヘリシティの高速切り替えまでも実現している。2 keV以下の軟X線領域においては高効率な移相子がないために円偏光の生成には可変偏光型アンジュレータが不可欠である。もし、XRLで機能する移相子を開発することができれば、コヒーレントな円偏光XRL光源を生成でき、軟X線領域の光学活性研究等に利用できる。すなわち、XRLで機能する高機能な偏光素子（偏光子、移相子）を開発することが必要である。

多層膜生成技術の進展により軟X線領域でも $\lambda/4$ 板が開発されるようになった。これまでの $\lambda/4$ 板は全て透過型で、その場合、膜の構成物質だけでなく基板の吸収が大きいこと自立型あるいは薄膜型基板でなければならない。透過型の場合、透過強度の低さ、膜の応力や面歪みによる素子性能の劣化・不安定性、機械的強度の脆弱性、製作・大型化・ハンドリングの難しさ等が常に存在する。従って、軟X線領域で透過型移相子とXRLを組み合わせて高輝度な円偏光を得るのは困難であり、このことが偏光XRLの利用研究のボトルネックになっていた。もし、透過型素子ではなく、反射型を開発できれば、平滑度の高いSiウェハやガラス基板等の利用により高効率化が期待でき、製作及びハンドリングが容易で、機械的強度も強く、透過型の問題点を全て解決でき、結果として、高強度、短パルス、コヒーレントな円偏光XRL光源を発生でき、新たな軟X線ビーム応用の展開を図ることが出来ると期待される。

2. 研究の目的

本研究では、Mo/Si多層膜反射鏡が発振波長13.9 nmのXRL光源に対して反射型の移相子（ $\lambda/4$ 板）として機能すること、及びそれを用いることでXRLを円偏光化（偏光制御）

できることを実証し、高強度、短パルス性、高コヒーレンス性に加え、偏光性を用いたXRL光源の新たな応用研究の展開の可能性を示すことである。これを実現するために以下の課題を行った。

- (1) 反射型Mo/Si多層膜移相子の設計
- (2) イオンビームスパッタ（IBS）法による多層膜移相子の製作
- (3) シンクロトロン放射（SR）光源による反射型移相子の偏光特性評価
- (4) 反射型移相子による円偏光XRL制御

3. 研究の方法

(1) 反射型Mo/Si多層膜移相子の設計

偏光特性は、s偏光反射率（ $R_s = |r_s|^2$ ）、p偏光反射率（ $R_p = |r_p|^2$ ）、偏光能（ $Z = (R_s - R_p) / (R_s + R_p)$ ）、位相差（ $\Delta = \arg(r_p/r_s)$ ）で特徴付けられる。ここに、 r_s 、 r_p は、それぞれs偏光とp偏光の複素振幅反射率である。本研究では、反射型Mo/Si多層膜移相子の偏光特性が波長13.9 nmで R_s と R_p が共に大きく、 $Z=1$ 、 $\Delta=90^\circ$ となるようにLayer-by-layer法に基づく自作のシミュレーションコードを用いて設計を行った。

また、移相子と共に、擬ブリュースター角（約 45° ）近傍で機能するMo/Si多層膜偏光子（検光子）も設計した。

(2) IBS法による多層膜移相子の製作

反射型Mo/Si多層膜移相子は、数十ピコメートルオーダーでの膜厚制御が可能なIBS法により製作した。偏光子（検光子）も同様にIBS法により製作した。どちらも最上層はMoであり、移相子と偏光子の周期長（MoとSiの1対の膜厚）はそれぞれ20 nm、10.2 nmである。これらの膜構造はX線回折パターンにより確認した。

(3) SR光源による反射型移相子の偏光特性評価

製作したMo/Si多層膜移相子と偏光子の偏光特性（s及びp偏光反射率、位相差等は、立命館大学SRセンターの軟X線ビームライン（BL-11）に設置している軟X線偏光解析装置（iSXPE）を用いて行った。iSXPEは、検光子（A）と、偏光子あるいは移相子（P）の2つの偏光素子を組み合わせた回転検光子法に基づく偏光測定が可能で、偏光素子の偏光特性と共に、入射光の偏光状態も同時に明らかにすることが出来る。具体的には、偏光子を用いて、偏光子及び検光子の R_s 、 R_p 、Z、光の直線偏光度（ P_l ）、偏光楕円の長軸の傾き（ δ ）を評価した。また、移相子を用いて、移相子及び検光子の全ての偏光特性、光の円偏光度（ P_c ）を決定した（完全偏光測定）。

iSXPEは、Pの方位角（ χ ）、入射角（ ϕ ）、高さ（H）、アーム角（ ψ ）、Aの方位角（ η ）、

入射角 (ω)、高さ (X)、検出器アーム角 (θ)、検出器前スリット (T) の計 9 軸の独立駆動軸を用いて偏光測定が可能である。検出器にはその受光面に迷光除去フィルタが直接積層されたフォトダイオード (IRD 社製、AXUV100Si/Zi) を用いた。

BL-11 の分光器は、Monk-Gillieson 型分光器 (ラミナ型ホログラフィック不等間隔溝平面回折格子 (G1: 300 本/mm) と球面鏡 (M5: 偏角 172°) の組み合わせ) を選択し、波長を KPSI の XRL 光源と同じ 13.9 nm に合わせた。分解能は、分光器の入射-出射スリット幅 200-220 μm の時、数百程度であった。迷光や高次光カット用フィルタとして出射スリットと後置鏡 (M7) の間に 0.5 μm 厚の Si 薄膜を用いた。iSXPE の試料位置 (偏光子 P) においてビームサイズが約 2mm 角であることを分光器の 0 次光により確認した。BL-11 は偏光電磁石光源であるため、ほぼ水平に直線的に偏光していると考えられるが、その直線偏光度は不明確であり、以下の偏光測定によって明らかになった。

(4) 反射型移相子による円偏光 XRL 制御

反射型 Mo/Si 多層膜移相子による円偏光 XRL 光源の生成を実証するために、まず、XRL ビームラインのエンドステーションに専用の装置として設置できる小型の偏光解析装置 (cSXPE) を開発した。なぜなら、上述 iSXPE をエンドステーションに設置するには大きすぎるためである。cSXPE は iSXPE と同様、2 枚の偏光素子を用いた回転検光子法に基づく偏光計測が可能である。

本研究では、シングルターゲット方式により XRL を発生させた。XRL は、1 つの Mo/Si 多層膜球面鏡 (曲率半径 2000 mm、入射角約 3°) と 3 つの Mo/Si 多層膜平面鏡 (入射角約 45°) により反射された後、cSXPE に導入された。多層膜平面鏡を擬ブリュースター角近傍で用いたことにより、cSXPE に入射する XRL は鉛直方向にほぼ完全に直線偏光していると考えられる。ビームサイズは cSXPE の検出器の位置で約 4 mm と見積もった。

本研究では、まず、cSXPE に偏光子と検光子を搭載し、それを回転検光子法により計測し、XRL の直線偏光度を確認した。次に、cSXPE に移相子と検光子を搭載し、直線偏光化した XRL を方位角 45° で移相子に入射させ、その反射光を回転検光子法により計測し、円偏光 XRL の生成を確認した。

4. 研究成果

(1) 反射型 Mo/Si 多層膜移相子の設計

図 1 に、入射波長 13.9 nm における反射型 Mo/Si 多層膜移相子の反射率の入射角依存性の計算結果を示す。 R_s と R_p が交差する入射角 66.4° で $R_s = R_p = 17\%$ 、かつ、 $\Delta \sim 90^\circ$ であ

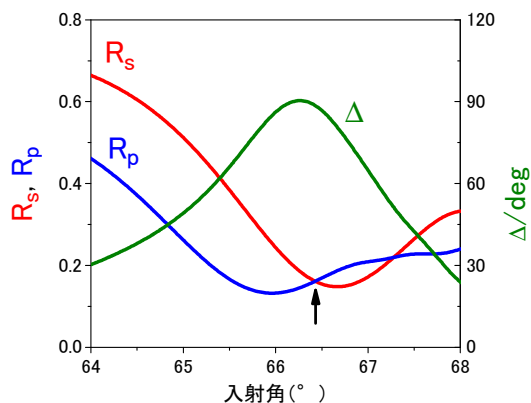


図 1 反射型 Mo/Si 多層膜移相子の反射率の入射角依存性 (計算値)。 R_s : s 偏光反射率、 R_p : p 偏光反射率、 Δ : 偏光成分間の位相差。矢印の入射角 (66.4°) 近傍で、 $\lambda/4$ 板として機能している。

るのが分かる。これは正に反射型 $\lambda/4$ 板であり、従来軟 X 線領域にはなかった 1 回反射で位相差 90° を与える高反射率な $\lambda/4$ 板として機能することを示唆している。この多層膜に直線偏光を方位角 45° で入射させるとその反射光は左回り円偏光 (光に正対した時、反時計回りを正と定義) に、また、s、p 偏光の入れ替え、換言すると方位角 135° (= 45° + 90°) で入射させると反射光は右回り円偏光となり、偏光ヘリシティのスイッチングが可能である。

(2) IBS 法による多層膜移相子の製作

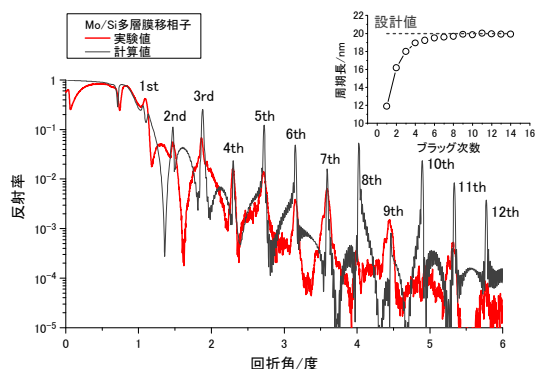


図 2 Mo/Si 多層膜移相子の X 線回折プロファイル。挿入図は、ブラッグ角と回折次数の関係から評価した周期長の値を示している。

図 2 は、IBS 法により製作した Mo/Si 多層膜移相子の X 線回折プロファイルである。ブラッグピークの位置は計算結果と良く一致している。挿入図に示すように、これから得られたブラッグ角と回折次数の関係から評価した周期長は誤差 0.2% 以下の精度で設計値 (20 nm) に一致した。なお、高次回折光ほどより正確な周期長を評価することが出来る。同様に、IBS 法で製作した偏光子もほぼ設計通り (1% 以下の誤差) に成膜できてい

ることを確認した。

(3) SR 光源による反射型移相子の偏光特性評価

図 3 (a) に、製作した Mo/Si 多層膜偏光子及び検光子の反射率 (入射角依存) を、(b) に偏光測定 (方位角依存) の結果をそれぞれ示す。偏光子と検光子は共に設計通り擬ブリュースター角 (約 45 度) 近傍で R_s が R_p より高い反射率を示すことが分かった。また、詳細な偏光測定の結果、偏光子及び検光子の偏光能はそれぞれ $Z = 99.6\%$ 、 99.4% であり、高い偏光特性を有することが分かった。更に、本測定結果から、SR 光の直線偏光度 P_L と偏光楕円の長軸の傾き δ がそれぞれ $P_L = 93\%$ 、 $\delta = -0.23^\circ$ であることが明らかとなった。

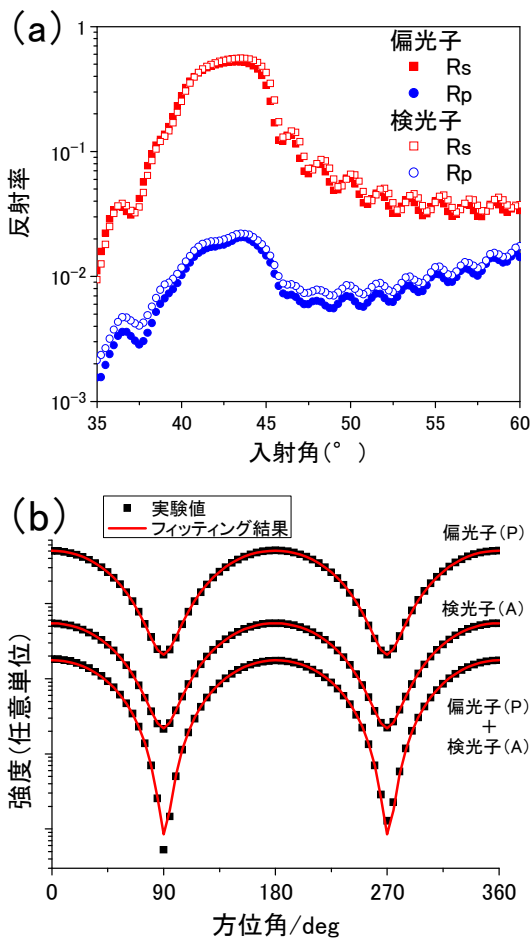


図 3 (a) 偏光子 (P) 及び検光子 (A) の偏光別反射率の入射角依存性。(b) P による反射光、A による反射光、P による反射光を A で反射した光のそれぞれの方位角依存測定の結果。実線は、マリユス (Malus) の法則で定義されるフィッティング関数である。

図 4 に、Mo/Si 多層膜移相子の R_s 、 R_p 、 Δ の測定結果を示す。矢印が示す入射角近傍で $R_s = R_p \sim 7\%$ 、 $\Delta \sim 93^\circ$ を得た。これは世界で初めて 1 回反射で位相差 90° かつ高反射率

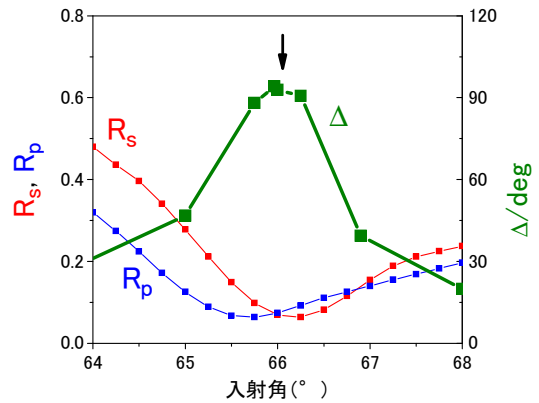


図 4 Mo/Si 多層膜移相子の R_s 、 R_p 、 Δ の入射角依存性 (測定値)。矢印近傍の入射角で $\lambda/4$ 板として機能している。

を与える $\lambda/4$ 板の開発に成功したことを意味する。なお、図 1 に示した計算結果より反射率が 5 割以下に低下しているのは基板の面粗さ、歪、多層膜の界面粗さが影響していると考えられる。更に、本測定結果から、SR 光は円偏光度 $P_C \sim 20\%$ の極端に偏平した楕円偏光であることがビームライン BL-11 の建設以来初めて明らかになった。

(4) 反射型移相子による円偏光 XRL 制御

図 5 に、XRL ビームラインのエンドステーションに設置可能な小型の軟 X 線偏光解析装置 (cSXPE) の模式図を示す。P に偏光子 (または移相子)、A に検光子を搭載できる。独立駆動軸として計 6 軸 (χ 、 ϕ 、 η 、 ω 、 ψ 、 θ) を搭載し、SR ビームラインに設置している iSXPE 同様、完全偏光測定が可能である。cSXPE は小型化のために、iSXPE に搭載されている偏光素子の位置を高精度で決定するための高さ調整軸 (H、X) と検出器前スリット (T) を持たないため、図 5 の PH1~PH4 で示す位置に測定時には取り外すことが出来る着脱式アライメント用ピンホール ($\phi 2\text{mm}$) を設けることで比較的高い精度で偏光素子の位置をオフラインで調整出来るようにした。検出器 (D) には iSXPE 同様、迷光除去用フィルタ付フォトダイオードを用いた。

図 6 は、予め直線偏光化した XRL を回転検光子法により計測した結果 (直線偏光度測定) である。解析の結果、直線偏光度 $P_L \sim 100\%$ であることが分かった。図 7 は、直線偏光 XRL が方位角 45° で移相子に入射した際、その反射光を回転検光子法により計測した結果である (円偏光度測定)。図 6 と図 7 の消光比 (最小値対最大値) に着目すると、移相子からの反射光の場合 (図 7)、約 $1/5$ であり、直線偏光を計測している図 6 の場合、約 $1/800$ である。移相子によって消光比が大きく変化している。これは、p 偏光成分が生成されたことを意味し、更に、図 4 に示したように、

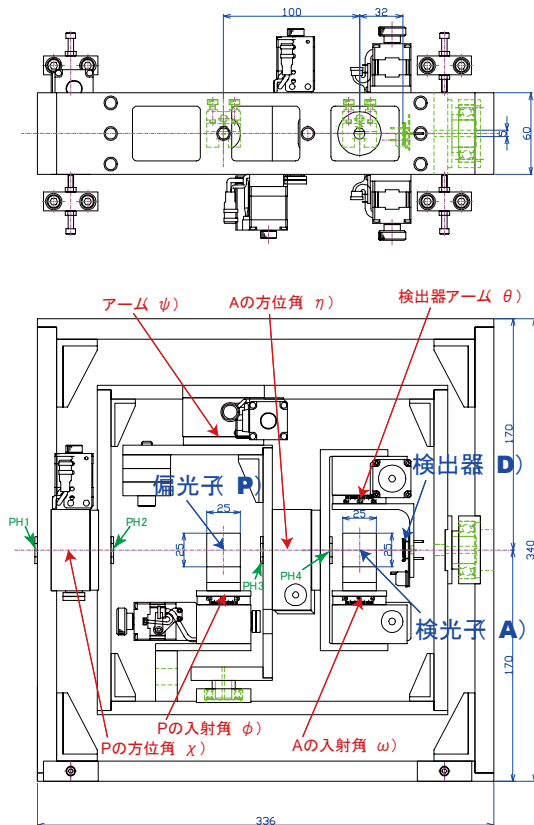


図5 cSXPEの模式図。P：偏光子（または移相子）、A：検光子、D：検出器、 χ ：Pの方位角、 ϕ ：Pの入射角、 ψ ：アーム角、 η ：Aの方位角、 ω ：Aの入射角、 θ ：検出器のアーム角、PH1～PH4：ピンホール（ ϕ 2mm）。

s 偏光と p 偏光成分間に約 90° の位相差が与えられる。詳しい解析の結果、移相子で反射した光は円偏光度約 70%の円偏光であることが分かった。XRLのコヒーレント長は数百 μm オーダーであり、多層膜移相子及び検光子の全膜厚は $1\mu\text{m}$ にも満たないため、XRLのコヒーレンスが消失することは考えにくい。すなわち、本研究成果はコヒーレントな円偏光 XRL 光源の生成に世界で初めて成功したことを意味する。

本研究では、Mo/Si 多層膜偏光素子（偏光子、移相子）を用いて波長 13.9nm の XRL の偏光状態を計測・制御でき、XRL の偏光利用研究も可能な高強度の円偏光 XRL を生成できることを実証した。本研究成果は、可視光領域で行われているような計測手法を軟 X 線領域まで拡張できることを意味している。例えば、元素選択的な内殻励起によるキラルな物質（鏡像異性体）の光学活性研究等に貢献すると期待できる。更に、次世代のコヒーレントな軟 X 線光源として注目される高次高調波軟 X 線光源の偏光制御にも利用できると期待できる。このように、本研究成果は多くの科学・技術分野へ貢献し得ると考える。

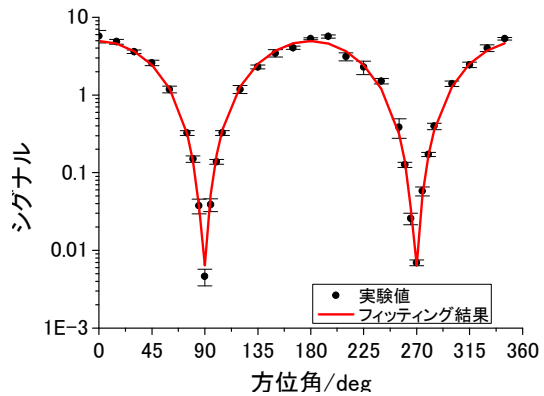


図6 XRLの直線偏光度測定の結果。

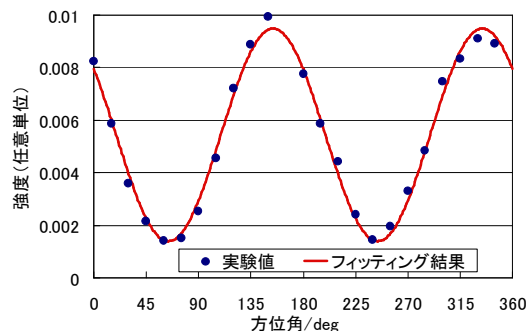


図7 XRLの円偏光度測定の結果。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計3件)

- ① 今園孝志、小池雅人、Development of a compact polarization analysis apparatus for plasma soft x-ray laser、6th International Conference on Spectroscopic Ellipsometry (ICSE-VI)、2013年5月26日～31日、京都リサーチパーク、京都市
- ② 今園孝志、小池雅人、プラズマ軟X線レーザーの偏光計測・制御装置の開発、第26回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2013年1月12日～14日、名古屋大学、名古屋市
- ③ 今園孝志、小池雅人、A compact apparatus for polarization measurement and control of plasma soft x-ray laser、第13回光量子科学研究シンポジウム、2012年11月15日～16日、日本原子力研究開発機構（京都府木津川市）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

今園 孝志 (IMAZONO TAKASHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・

量子ビーム応用研究部門・研究職

研究者番号：50370359