科学研究費助成事業

研究成果報告書



研究成果の概要(和文):X線顕微鏡は,バイオ科学や生命科学の分野に応用できる.しかしながら,シングル ショットで動作する水の窓X線の明るい小型光源は未だに実現されておらず,シングルショット撮影は実現でき ていないのが現状である.そこで,レーザー生成ビスマスプラズマ光源により,シングルショット撮影に必要な 水の窓X線放射出力を実現することを目的とした. 具体的には,(A)中赤外レーザーとしての炭酸ガスレーザーを短パルス化,高強度化した.(B)重元素多価イオ ンの分光計測および放射流体スペクトル解析を行い,光源出力を最適化した.(C)X線顕微鏡に接続し,顕微鏡

を動作させながら撮像実験を行い,光源出力と光学系を最適化した.

研究成果の概要(英文):X-ray microscope is applied to the biological and life science. However, there is no demonstration of a compact, high brightness, single-shot water-window soft x-ray source. We propose the improvement of the high output flux for single-shot imaging in the water-window soft x-ray spectral region by a laser-produced bismath plasma. In this study, we focus on three points: (A) development of the short pulse, high intensity carbon-deoxide laser as a middle infrared laser, (B) optimization of the output flux (number of

photons) by analizing the measurement of the emission from highly charged heavy element ions and the radiation hydrodynamic simulation, and (C) optimization of the source output and optical system in the water-window soft x-ray microscope system.

研究分野:光工学および光量子科学関連

キーワード: 水の窓軟X線 レーザー生成プラズマ光源 X線顕微鏡 バイオイメージング

1. 研究開始当初の背景

生体の構成要素によって X 線の透過率が 違う特性を生かし、水の窓領域の X 線を用い た生体細胞撮影やタンパク質等の物性構造 解析に関する研究が行われている. X 線顕微 鏡は、生体分子を生かしたまま、細胞の反応 機構や病気の発生機構やタンパク質の構造 異常などを解明することができるため、バイ オ科学や生命科学の分野から大きな期待が 寄せられている. X 線顕微鏡が実現されると、 脱水することなく、生かしたままで高分解能 での観測が可能になる. しかしながら、シン グルショットで動作する水の窓 X 線の明る い小型光源は未だに実現されておらず、シン グルショット撮影は実現できていないのが 現状である.

これまで,水の窓領域の生体観察で強力な ツールになっているのはシンクロトロン放 射光や超短パルスレーザーの非線形波長変 換による高次高調波, レーザー生成窒素プラ ズマ輝線放射などであるが、1 パルスあたり のエネルギーが小さいため、多重ショットを 駆使して試料撮影を行っているのが現状で あり、小さな実験室でのシングルショット撮 影はできていない. また, 従来の光源装置は いずれも装置規模が大型であり、レーザー装 置の技術も高度で,広い意味で利用率が低く, 大学や研究所での研究室レベルでの X 線光 源を所有することは難しい. コンパクトで簡 便かつ高輝度の水の窓領域 X 線光源が生命 科学や物性研究において要求されているに も関わらず、適切な高効率・高出力で簡便な コンパクトX線光源がないために、大型装置 を使わざるを得ず、研究時間、手法、利用者 が限定されているのが現状である.

そこで、本研究では、ビスマスを用いるレ ーザープラズマ光源方式により、シングルシ ョット撮影に必要な水の窓 X 線放射出力を 実現することを目的とした.

2. 研究の目的

ビスマスを用いるレーザープラズマ光源 方式により、シングルショット撮影に必要と なる水の窓 X 線放射出力を実現することを 目的とし、以下のような研究課題を設けた.

- (A) 高品質短パルス中赤外レーザーによる 重元素多価イオン放射水の窓 X 線エ ネルギーを観測し,変換効率を評価す る.具体的には、中赤外レーザーとし ての炭酸ガスレーザーを短パルス化, 高強度化する.
- (B) 重元素多価イオンの分光計測および放 射流体スペクトル解析を行い,光源出 力を最適化する.
- (C) X 線顕微鏡に接続し,顕微鏡を動作させながら撮像実験を行い,高出力化と 光学系を最適化する.

3.研究の方法

(A-1) 高品質短パルス中赤外レーザーの高強 度化と多価イオン軟 X 線光源の高効率化・高 輝度化

これまで開発してきた Q スイッチ炭酸ガ スレーザー(波長:10.6 μm, パルス幅 10~15 ns, パルスエネルギー:100~300 mJ)を短パ ルス化し,高強度化した.図1に示すような リング型発振器と14 パスによるマルチパス 増幅により構成した.ビーム品質は良好であ った.短パルス化を進める上で,発振器と増 幅器の間にGe基板によるレーザー誘起半導 体スイッチ(固体プラズマミラー)を挿入し, パルス幅を制御した.このことにより,パル ス幅は3~15 nsで連続的に変化できるように した.パルス幅を可変にしたあと,14 パス増 幅器によりパルスエネルギーを増幅した.



(A-2) 重元素多価イオンの放射の高効率化・

高輝度化 ビスマスによる多価イオンプラズマから のUTA (unresolved transition array)帯域放射 による X 線光源開発と特性評価実験を行っ た.光学的に薄い多価イオンからはスペクト ル幅が狭く,帯域内放射効率がよくなる.そ こで,Photon Factory(高エネ研)で較正さ れた斜入射分光器(2400本/mmの回折格子と X 線 CCD カメラで構成されている)と帯域 内放射エネルギーメーターを同時に用い,重 元素多価イオンからの UTA 放射の出力(光 子密度)を評価した. (B) 多価イオン生成の放射流体シミュレーションとスペクトル効率の向上

放射流体シミュレーションを行った.この ため,衝突放射 (CR) モデルまたは局所熱平 衡 (LTE) モデルで計算し,原子コードによ る振動子強度などを計算した.

(C) 波長 4 nm に最適化されたミラーによる 軟 X 線顕微鏡の構築・撮影時の光子密度の評 価・生体細胞のフラッシュ撮影の実証

図2の軟X線顕微鏡を構築し,撮像試験を 行った.



図 2:本研究で用いた水の窓軟 X 線顕微鏡

4. 研究成果

(A-1) 高品質短パルス中赤外レーザーの高強 度化と多価イオン軟 X 線光源の高効率化・高 輝度化

Ge 基板を用いて光スイッチによるパルス スライスする. 波長 1064 nm の Nd:YAG レー ザーによるコントロールパルスを Ge 基板に 照射すると、多光子吸収により Ge 基板に自 由電子のキャリアによるプラズマが生成さ れる. このプラズマ密度が CO, レーザーの臨 界密度以上になると Ge 基板表面は CO₂ レー ザーを反射するミラーの役割を果たす. タイ ミングよくコントロールパルスを Ge 基板に 照射することでGe基板を透過する CO₂レー ザーパルスを切り出すことができる.本研究 ではコントロールパルスにパルス幅150psの Nd:YAG レーザーとパルス幅 10 ns の Nd:YAG レーザーを使用した.パルス幅が150 psのNd:YAG レーザーによる高いキャリア密 度をパルス幅 10 ns の Nd: YAG レーザーによ って長時間持続させることにより、CO2 レー ザーを切り出した.この方法により,最小パ ルス幅が3nsの短パルスCO2レーザーを実証 した.

その後,14パスのマルチパス増幅器により, CO2 レーザーパルスを増幅することで、高出 力の短パルス CO2 レーザーを得た. 図3はパ ルス幅が3nsのCO,レーザーパルスの時間波 形である.本研究で用いている CO2 レーザー の増幅器は大気圧で動作する TEA レーザー であることから, バンド幅は約 500 MHz であ る.このことから予想される最短パルス幅は 2 ns であることから、本研究で得られたパル ス幅は、これ以上短くできないパルス幅に近 いところまで短パルス化できたことを意味 している.14 パスのマルチパス増幅後のパル スエネルギーを測定し、パルスエネルギーか ら評価されるレーザー強度(パワー密度) は 10^{11} W/cm²のオーダーであり、本研究に必 要なパワー密度にやや不足しているものの, 実験には使うことができる状況になった.



図 3: 短パルス化 (3 ns) された CO₂ レーザーの時 間波形

(A-2) 重元素多価イオンの放射の高効率化・ 高輝度化

本研究を進める過程で,短パルス高強度 CO₂レーザーでは、光学的に薄い高温プラズ マを生成でき,多価イオンを生成できること が明らかになっているが、水の窓軟 X 線顕微 鏡の駆動用レーザーとしては高温化するこ とと光源サイズを小さくし、水の窓軟 X 線を 高輝度化することは難しいことがわかった. そこで,固体レーザーを駆動用レーザーとす ることで、この問題を解決した. レーザー生 成多価イオン放射による生体細胞の写真撮 影に適した元素(特にBi)に二重レーザーパ ルス照射法を組み合わせ,水の窓軟X線への 高効率エネルギー変換を実現し、高出力化し た. ここでは、紙面の都合から、光源の更な る高出力化のための二重パルス照射法の実 験結果を示す.

較正された斜入射分光器の回折効率および X線 CCD カメラの量子効率を考慮して時間積分スペクトルから水の窓軟 X線領域の波長 2.3~4.4 nmの出力を評価し、二重パルスの遅延時間依存性を明らかにしたのが図 4である.各遅延時間での水の窓出力に規格化されている.遅延時間が 7 nsのとき、プリパルスが無いときよりも水の窓軟 X線の出力は

20%増加した.これは、プリプラズマとメインパルスレーザーが効率的にエネルギー結合したことに起因していると考えている.このことから、プラズマ生成と加熱を分けて遅延時間を能動的に制御することにより、出力を制御できることが分かった.一方、遅延時間が100 nsのときは水の窓軟X線の出力はプリパルスが無いときよりも60%減少した.これは、光源プラズマが膨張した結果、密度勾配が長くなり、オパシティーの効果が効いて再吸収された結果、光量が減少したものと考えている.



遅延時間依存性

(B) 多価イオン生成の放射流体シミュレーションとスペクトル効率の向上

図4の実験結果を計算的に再現,評価する ためには,放射能率と吸収係数を組み込んだ 放射流体数値解析が必要であることから,図 5に示すように,衝突放射モデルにより放射 能率と吸収係数の電子温度依存性を評価し た.また,この結果を用いて放射流体シミュ レーションを進めている.



(C) 波長 4 nm に最適化されたミラーによる 軟 X 線顕微鏡の構築・撮影時の光子密度の評 価・生体細胞のフラッシュ撮影の実証

図2の軟X線顕微鏡を構築し,撮像試験を 行っている.この光源に適したトロイダル鏡 を開発した.このことで,光源部からサンプ ル部へのスループットは約10⁴倍向上した. 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計 18 件)

- B. Li, T. Otsuka, E. Sokell, P. Dunne, G. O'Sullivan, H. Hara, G. Arai, T. Tamura, Y. Ono, T.-H. Dinh, and <u>T. Higashiguchi</u>, "Characteristics of laser produced plasmas of hafnium and tantalum in the 1-7 nm region," Eur. Phys. J. D 71, 278 (2017).
- ② H. Hara, H. Ohashi, B. Li, P. Dunne, G. O'Sullivan, A. Sasaki, C. Suzuki, N. Tamura, H. Sakaue, D. Kato, I. Murakami, <u>T. Higashiguchi</u>, and LHD Experiment Group, "Spectral evolution of soft x-ray emission from optically thin, high electron temperature platinum plasmas," APL Photon. 2, 081301 (2017).
- ③ R. Lokasani, E. F. Barte, P. Gavrilov, P. Hribek, A. Jancarek, D. Kos, M. Nevrkla, L. Pina, <u>T. Higashiguchi</u>, G. O'Sullivan, and J. Limpouch, "High ionization states observed in soft x-ray spectra from plasmas of second row transition elements produced by femtosecond laser pulses," J. Phys. B 50, 145001 (2017).
- ④ J. Sheil, P. Dunne, <u>T. Higashiguchi</u>, D. Kos, E. Long, T. Miyazaki, F. O'Reilly, G. O'Sullivan, P. Sheridan, C. Suzuki, E. Sokell, E. White, and D. Kilbane, "Analysis of soft x-ray emission spectra of laser-produced dysprosium, erbium and thulium plasmas," J. Phys. B **50**, 065006 (2017).
- (5) C. Suzuki, I. Murakami, F. Koike, N. Tamura, H. A. Sakaue, S. Morita, M. Goto, D. Kato, H. Ohashi, <u>T. Higashiguchi</u>, S. Sudo, and G. O'Sullivan, "Extreme ultraviolet spectroscopy and atomic models of highly charged heavy ions in the Large Helical Device," Plasma Phys. Control. Fus. **59**, 014009 (2017).
- (6) T. Wu, <u>T. Higashiguchi</u>, B. Li, G. Arai, H. Hara, Y. Kondo, T. Miyazaki, T.-H. Dinh, F. O'Reilly, E. Sokell, and G. O'Sullivan, "Analysis of unresolved transition arrays in XUV spectral region from highly charged lead ions produced by subnanosecond laser pulse," Opt. Commun. **385**, 143 (2017).
- T.-H. Dinh, Y. Kondo, T. Tamura, Y. Ono, H. Hara, H. Oikawa, Y. Yamamoto, M. Ishino, M. Nishikino, <u>T. Makimura</u>, P. Dunne, G. O'Sullivan, S. Ohta, K. Kitano, T. Ejima, H. Tadashi, and <u>T. Higashiguchi</u>, "Evaluation of a flat-field grazing incidence spectrometer for highly charged ion plasma emission in soft x-ray spectral region from 1 to 10 nm," Rev. Sci. Instrum. 87, 123106 (2016).

- (8) H. Hara, G. Arai, Y. Kondo, T.-H. Dinh, P. Dunne, G. O'Sullivan, T. Ejima, T. Hatano, W. Jiang, M. Nishikino, A. Sasaki, A. Sunahara, and <u>T. Higashiguchi</u>, "Characteristics of the soft X-ray emission from laser-produced highly charged platinum plasmas," Appl. Phys. Express 9, 066201 (2016).
- H. Hara, G. Arai, Y. Kondo, T.-H. Dinh, P. Dunne, G. O'Sullivan, T. Ejima, T. Hatano, W. Jiang, M. Nishikino, A. Sasaki, A. Sunahara, and <u>T. Higashiguchi</u>, "Characteristics of the soft X-ray emission from laser-produced highly charged platinum plasmas," Appl. Phys. Express 9, 066201 (2016).
- T. Wu, <u>T. Higashiguchi</u>, B. Li, G. Arai, H. Hara, Y. Kondo, T. Miyazaki, T.-H. Dinh, P. Dunne, F. O'Reilly, E. Sokell, and G. O'Sullivan, "Spectral investigation of highly ionized bismuth plasmas produced by subnanosecond Nd:YAG laser pulses," J. Phys. B 49, 035001 (2016).
- H. Hara, G. Arai, T.-H. Dinh, W. Jiang, T. Miura, A. Endo, T. Ejima, B. Li, Padraig Dunne, G. O'Sullivan, A. Sunahara, and <u>T.</u> <u>Higashiguchi</u>, "Numerical evaluation of a 13.5-nm high-brightness microplasma extreme ultraviolet source," J. Appl. Phys. 118, 193301 (2015).
- T. Wu, <u>T. Higashiguchi</u>, B. Li, Y. Suzuki, G. Arai, T.-H. Dinh, P. Dunne, F. O'Reilly, E. Sokell and G. O'Sullivan, "XUV spectral analysis of ns- and ps-laser produced platinum plasmas," J. Phys. B 48, 245007 (2015).
- 13 T.-H. Dinh, Y. Suzuki, G. Arai, B. Li, P. Dunne, G. O'Sullivan, S. Fujioka, N. Hasegawa, T. Kawachi, M. Nishikino, and <u>T. Higashiguchi</u>, "Temporal behavior of unresolved transition array emission in water window soft x-ray spectral region from multiply charged ions," Appl. Phys. Lett. **107**, 121101 (2015).
- B. Li, H. Hara, Y. Suzuki, G. Arai, <u>T. Higashiguchi</u>, H. Ohashi, W. Jiang, <u>T. Makimura</u>, H. A. Sakaue, C. Suzuki, D. Kato, I. Murakami, P. Dunne, E. Long, P. Sheridan, X. Chen, and G. O'Sullivan, "Properties of the extreme ultraviolet emission from germanium and gallium plasmas," J. Appl. Phys. **118**, 073302 (2015).
- T. Wu, <u>T. Higashiguchi</u>, B. Li, Y. Suzuki, G. Arai, T.-H. Dinh, P. Dunne, F. O'Reilly, E. Sokell, L. Liu, and G. O'Sullivan, "Analysis of extreme ultraviolet spectra from laser produced rhenium plasmas," J. Phys. B 48, 165005 (2015).
- (6) G. O'Sullivan, B. Li, R. D'Arcy, P. Dunne,

P. Hayden, D. Kilbane, T. McCormack, H. Ohashi, F. O'Reilly, P. Sheridan, E. Sokell, C. Suzuki, and <u>T. Higashiguchi</u>, "Spectroscopy of highly charged ions and its relevance to EUV and soft x-ray source development," J. Phys. B **48**, 144025 (2015).

- H. Ohashi, <u>T. Higashiguchi</u>, Y. Suzuki, G. Arai, B. Li, P. Dunne, G. O'Sullivan, H. A. Sakaue, D. Kato, I. Murakami, N. Tamura, S. Sudo, F. Koike, and C. Suzuki, "Characteristics of x-ray emission from optically thin high-*Z* plasmas in soft x-ray region," J. Phys. B 48, 144011 (2015).
- (B) G. O'Sullivan, B. Li, P. Dunne, P. Hayden, D. Kilbane, R. Lokasani, E. Long, H. Ohashi, F. O'Reilly, J. Sheil, P. Sheridan, E. Sokell, C. Suzuki, E. White, and <u>T.</u> <u>Higashiguchi</u>, "Sources for Beyond Extreme Ultraviolet Lithography and Water Window Imaging," Phys. Scr. **90**, 054002 (2015).
- 〔学会発表〕(計 12 件)
- (1)T. Higashiguchi, "Homework of laboratory-scale EUV & soft x-ray sources and various applications," 4th Research Workshop: Collaboration between UCD & Utsunomiya University, Extreme Ultraviolet Source Development For Lithography, Surface Morphology & Water Window Imaging, 9:15-9:45, University Dublin, Dublin, Ireland College (2017.11.3). [invited]
- 2 <u>T. Higashiguchi</u>, "Compact, Efficient Short Wavelength Light Source in Laser-produced Plasmas by Heavy Elements," OSA Laser Congress, Laser Applications Conference (LAC), LM2B-3, Convention Center Nagoya, Nagoya, Aichi, Japan (2017.10.2). [invited]
- <u>東口 武史</u>,山内 駿,篠崎 夏美,小倉 拓 人,藤井 雄介,江島 丈雄,坂上 和之, 魚本 幸,島津 武仁, MOCEK Tomas, 「高平均出力水の窓軟 X 線光源のため の薄ディスクレーザーの開発」,第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 5p-S44-7,福岡国際会議場(福岡県福岡 市)(2017.9.5).
- ④ <u>東口 武史</u>,田村 賢紀,小野 祐一,原 広 行,近藤 芳希,荒居 剛己,江 偉華, 羽多野 忠,江島 丈雄,「水の窓軟 X 線 領域で高繰り返し動作可能なターゲッ ト元素の選定」,第 78 回応用物理学会秋 季学術講演会, 5p-S44-6,福岡国際会議 場 (福岡県福岡市)(2017.9.5).
- (5) <u>東口 武史</u>,小野 祐一,田村 賢紀,陳 文 博,小倉 拓人,原 広行,近藤 芳希, 若山 俊隆,羽多野 忠,江島 丈雄,「水 の窓軟 X 線顕微鏡による高分解能撮像

に向けて」,第78回応用物理学会秋季学 術講演会,5p-S44-5,福岡国際会議場 (福岡県福岡市)(2017.9.5).

- (6)T. Higashiguchi, "Unresolved Transition Array (UTA) Emission from Highly-charged Ions in Heavy-element Plasmas by a Dual-laser Pulse Irradiation," International Workshop on EUV and Soft X-Ray Sources (2016 Source Workshop), S44. Amsterdam Science Park Congress Centre. Science Park. Amsterdam, Netherlands (2016.11.9). [invited]
- T. Higashiguchi, "Recent results in Utsunomiya University: from laboratory experiments to extreme condition experiments," Ireland Japan Collaboration Workshop, 2:05-2:35, University College Dublin, Dublin, Ireland (2016.11.3). [invited]
- (8) <u>T. Higashiguchi</u>, "Efficient EUV and soft x-ray sources with unresolved transition array from highly charged ions in high-Z plasmas," 23rd International Conference on Spectral Line Shapes, Tu.O.1.I1, Culture and Congress Centre Jordanki, Toruń, Poland (2016.6.21). [invited]
- ⑨ <u>東口 武史</u>,「レーザー生成多価イオンプ ラズマ水の窓軟 X 線光源」, 放射光学会 第 8 回若手研究会 "軟 X 線イメージン グの描く未来", 16:30-17:00, 分子科学 研究所 明大寺キャンパス (愛知県岡崎 市) (2015.9.8). (依頼講演)
- ① <u>東口 武史</u>,「小型レーザー生成多価イオ ンプラズマ光源と水の窓軟 X 線顕微鏡 応用」,レーザー学会,第480回研究会 「レーザー応用」,11:00-12:00,北九州 学術研究都市・産学連携センター(福岡 県北九州市)(2015.9.7).(レーザー学会 九州支部特別講演)
- (II) <u>T. Higashiguchi</u>, "Efficient EUV & soft x-ray sources by laser-produced high-Z plasmas," The 7th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation (7th AWCXR), P-9, the Center for Relativistic Laser Science of Institute for Basic Science, Gwangju Institute of Science and Technology (GIST), Gwangju, Korea (2015.8.31). [invited]
- 12 <u>T. Higashiguchi</u>, "Efficient extreme ultraviolet emission in highly ionized high-Z laser-produced plasmas," The 4th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS'15), ALPS6-3, Conference Center, PACIFICO Yokohama, Yokohama Japan (2015.4.23).

〔図書〕(計 4 件)

 Y. Kondo, T.-H. Dinh, T. Tamura, S. Ohta, K. Kitano, T. Ejima, T. Hatano, and <u>T.</u> <u>Higashiguchi</u>,

"Evaluation of a flat-field grazing incidence spectrometer for highly charged ion plasma emission in 1-10 nm," X-Ray Lasers 2016, Chap. 62, pp. 409-412 (2018). [ISBN 978-3-319-73024-0]

- T. Ejima, Y. Kondo, Y. Ono, T.-H. Dinh, <u>T. Higashiguchi</u>, and T. Hatano,
 "Development of Soft X-Ray Microscope in Water Window Using Laser-Produced Plasma Light Source," X-Ray Lasers 2016, Chap. 59, pp. 395-399 (2018).
 [ISBN 978-3-319-73024-0]
- R. Amano, T.-H. Dinh, A. Sasanuma, G. Arai, Y. Fujii, A. Takahashi, D. Nakamura, T. Okada, T. Miura, and <u>T. Higashiguchi</u>, "A 10-Hz short pulse CO₂ laser system for extreme ultraviolet source," X-Ray Lasers 2016, Chap. 54, pp. 367-371 (2018). [ISBN 978-3-319-73024-0]
- ④ <u>T. Higashiguchi</u>, P. Dunne, and G. O'Sullivan, "Laser-Produced Heavy Ion Plasmas as Efficient Soft X-Ray Sources," in the book "Plasma Science and Technology - Progress in Physical States and Chemical Reactions" edited by T. Mieno, ISBN 978-953-51-2280-7 (InTech, 2016).
- 〔産業財産権〕
 ○出願状況(計1件)
 名称:広帯域レーザー出力装置
 発明者:<u>東口武史</u>
 権利者:同上
 種類:特許
 番号:特許願 2016-127278
 出願年月日:2016年6月28日
 国内外の別:国内

○取得状況(計0件)

〔その他〕 ホームページ等 http://photonics.sixcore.jp

6.研究組織
 (1)研究代表者
 東口 武史(HIGASHIGUCHI, Takeshi)
 宇都宮大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 80336289

(2)研究分担者
 牧村 哲也(MAKIMURA, Tetsuya)
 筑波大学・数理物質系・准教授
 研究者番号: 80261783