

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04685

研究課題名(和文) X線レーザーによる時間分解偏光計測技術の開拓

研究課題名(英文) Development of time-resolved ellipsometry technique using X-ray laser

研究代表者

今園 孝志 (Imazono, Takashi)

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 光量子科学研究部・主幹研究員(定常)

研究者番号：50370359

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、レーザーアブレーション等の短パルスレーザーと物質の相互作用の理解に資するレーザー駆動プラズマX線レーザー(XRL)による時間分解偏光計測技術を確立することを目的とする。本課題の達成には、ショット毎に大きく変動するXRLのビーム強度を正確に計測し、偏光状態を高精度に観測することが要求される。本研究では、時間分解偏光計測技術の基盤技術である以下の研究開発を実施した。(1) 波長13.9 nmのXRLに対応する2種類のビーム強度モニタ(Mo/Si多層膜コートフォトダイオード検出器、Moコート回折格子)、(2)絶対反射率計測に基づく多層膜偏光素子を用いた軟X線偏光解析法。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to develop a time-resolved ellipsometry technique using laser-driven plasma X-ray laser (XRL). It is necessary to measure accurately the beam intensity of the XRL beam with a large intensity fluctuation and then to analyze precisely the polarization state. In this study, the following has been developed: (1) two types of beam intensity monitors working at a wavelength of 13.9 nm based on a Mo/Si multilayer-coated photodiode and a molybdenum-overcoated diffraction grating; (2) soft X-ray ellipsometry with multilayer polarizing elements based on absolute reflectometry. The above is a basic technique for time-resolved ellipsometry that contributes to understand ultrashort pulse laser-materials interaction, such as laser-ablation.

研究分野：工学

キーワード：ビーム強度モニタ 偏光解析 絶対反射率 X線レーザー 多層膜偏光素子 フォトダイオード 回折格子

1. 研究開始当初の背景

量子科学技術研究開発機構(QST)のX線レーザー施設では、高強度レーザーで生成した高温高密度な銀プラズマを発振器及び増幅器として用いたレーザー駆動プラズマX線レーザー(XRL)を供給し、短パルス性(幅 7 ps)、単色性(波長 13.9 nm、波長幅 10^{-4})、高空間コヒーレンス性を活用したシングルショット反射計測等の時間分解計測により物質表面の構造変化を追跡する研究に利用されている。このような反射計測に偏光技術を組み合わせることで物質固有の情報である光学定数(屈折率、消衰係数)の時間発展に関する知見が得られると期待される。

一般に、物質に直線偏光を照射すると、その反射光は楕円偏光になる。偏光計測では、その偏光状態の変化を偏光素子で計測することで光学定数などを高速かつ高感度で分析できる。XRLの波長域ではMo/Si多層膜が高い反射率と偏光特性を有することで知られる。ここで重要なことは、偏光測定では試料だけでなく偏光素子の反射率の情報が不可欠な点である。特に、XRLの出力はその発生原理上レーザー媒質を担うプラズマの反転分布で規定される利得に対して指数関数的に変化することから、ショット毎の利得の僅かな変動によってXRLビーム強度が大きく変動してしまう。そのため反射率計測ではショット毎に入射光と反射光の両方の強度を同時に定量的に計測する必要がある。しかし、現状ではその実現には至っていない。これは軟X線領域でビーム強度モニタとして機能するハーフミラー等のビームスプリッタ(BS)が殆ど無いことに起因する。BSは入射した光を透過光と反射光に分割し、前者はプローブ光として、後者はビーム強度モニタとして利用される。可視や赤外領域では実用的なBSを容易に入手できるが、軟X線領域は物質による吸収が極めて強いため基板のない自立型のMo/Si多層膜がBSとして利用されている。しかし、そのような素子には機械強度の脆弱性、膜応力や面歪みによる性能の不安定性、製作や取り扱いの困難さなど、幾つか課題がある。

2. 研究の目的

レーザーアブレーションは、高強度レーザー照射によるプラズマの発生に伴って固体表面から原子、分子、クラスター等が爆発的に放出される現象で、微細加工、元素分析、薄膜形成技術等として用いられている。しかし、そのメカニズムは極めて複雑で、その理解は不十分である。本研究ではレーザーアブレーション時における過渡物質からの絶対反射率を計測し、その方位角依存性から偏光状態を定量的に解析することで光学定数の時間発展をピコ秒スケールで解明し、レーザーアブレーションの初期過程のメカニズムに関する知見を得ることを最終目標としている。ショット毎に大きく変動するXRLビーム強度を正確に計測し、偏光状態を高精度に観測することが要求されることから、以下の研究開発を実施した。(1)2種類のXRL用ビーム強度モニタの開発(Mo/Si多層膜コートフォトダイオード検

出器、Moオーバーコート回折格子)、(2)絶対反射率計測に基づく多層膜偏光素子を用いた軟X線偏光解析法の開発。

3. 研究の方法

(1)Mo/Si多層膜コートフォトダイオードビーム強度モニタ(MPBM)

X線用シリコン p-n ジャンクションフォトダイオード検出器(AXUV100G(Opto Diode))の受光面は研磨された平滑面である。この受光面に波長 13.9 nm の XRL の反射光強度を高めるように設計された Mo/Si 多層膜を直接積層した。成膜はイオンビームスパッタ法を用い、Cu-K α 線を用いたX線反射率から膜構造を評価するとともに、放射光(SR)及びXRLを用いて光検出器としてだけでなく反射鏡としての性能を確認した。具体的には、反射率と透過率(フォトダイオード検出器に透過及び吸収されて発生する電流値からの換算値)の相関を調べた。

(2)Moオーバーコート回折格子ビーム強度モニタ(GBM)

ラミナ型不等間隔溝レプリカ回折格子(30-002(島津製作所):Au膜(< 100 nm厚)、1200本/mm)の表面に回折効率を高めるためのMo膜をイオンビームスパッタ法で積層した。SR及びXRLを用いて回折格子からの0次光と1次光の回折光強度を同時計測し、その相関を調べた。

(3)実験

SR実験は高エネルギー加速器研究機構Photon Factoryの軟X線ビームラインBL-11Dに設置された専用の高精度反射率計を用いて行った。一方、XRL実験はQSTのXRLビームラインに申請者が開発した6軸偏光解析装置を設置して行った。プラズマから発せられたXRLビーム(発散角約10 mrad)は、可視光及び連続X線を除去するためのZrフィルタを通過し、球面鏡SM(曲率半径2 m、入射角約3°)に照射される。その反射光は平面鏡M1(入射角約45°)によって水平方向に反射された後、MPBM、平面鏡M2を経由して6軸偏光解析装置に導入される。図1に実験配置の概略図を示す。

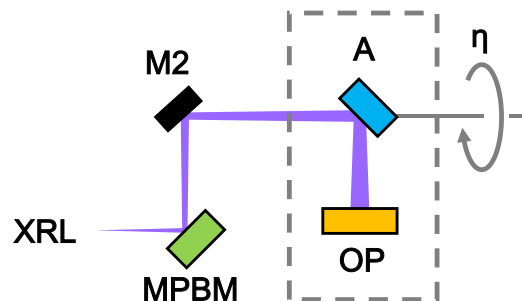


図1. XRLを用いたMPBMの評価実験の概略図。X線フォトダイオード検出器OPを除いて、MPBM、平面鏡M2、偏光子AはMo/Si多層膜でコーティングされている。破線は6軸偏光解析装置を表し、Aの入射角及びOPとの相対位置を固定した状態でAの方位角 η を光軸周りに1回転させて偏光解析を行う。

ビームライン及び 6 軸偏光解析装置で使用した Mo/Si 多層膜光学素子 (M1, SM、移相子 M、偏光子 A) は M2 を除いて予め SR を用いて評価されている。

他方、GBM の評価には本課題にて開発したビーム強度モニタユニット (図 2) 及び 2 軸偏光解析ユニット (図 3) を用いた。

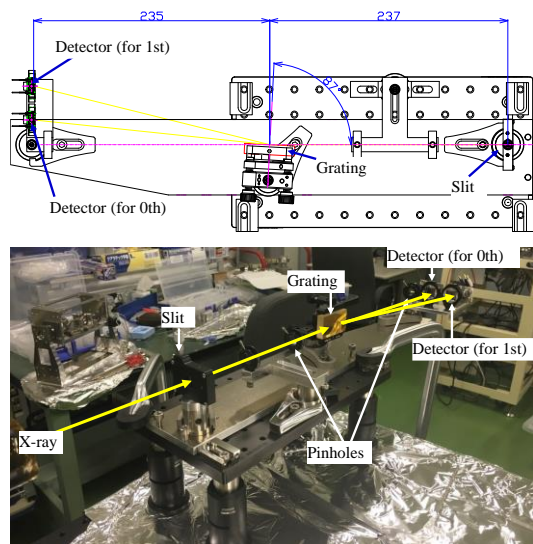


図 2. GBM 用ビーム強度モニタユニットの光学配置 (上) と写真 (下)。

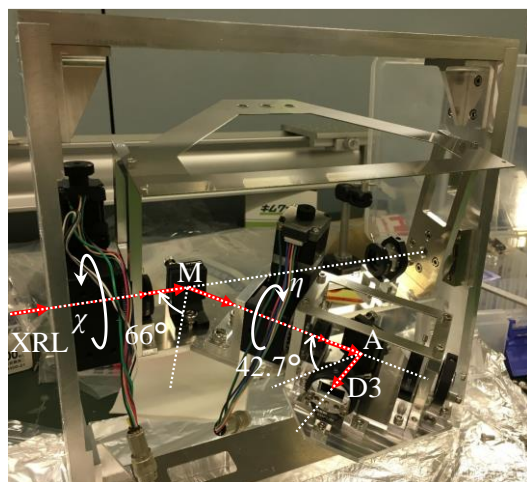


図 3. 2 軸偏光解析ユニットの写真 (上) と光学配置 (下)。駆動軸 χ 及び η で移相子 M 及び偏光子 A それぞれの方位角をリモートで変化させることができる。一方、M と A の入射角、フォトダイオード検出器 D3 の検出角は固定である。

GBM 用ビーム強度モニタユニットは、1200 本/mm 回折格子用標準平面結像型分光器のマウ

ントパラメータ (87° 入射、入口スリットから回折格子までの距離 237 mm、回折格子から像面までの距離 235 mm) に準拠している。入口スリット (0.1 mm × 13.6 mm) から入射された XRL は回折格子で 0 次光と 1 次光に分けられ、像面の位置に設置されたフォトダイオードで 0 次光と 1 次光それぞれが独立に同時計測される。また、上述と同様に、2 軸偏光解析ユニットでも SR で予め評価された偏光素子 (M、A) が搭載された。なお、本課題で使用したフォトダイオードの内、多層膜が積層されているのは MPBM だけであることに留意されたい。

4. 研究成果

(1) MPBM

図 4 (a) は、入射角 $\phi = 45^\circ$ で MPBM に照射された入射光強度 $I_{OP}(180)$ とその反射光強度 $I_{OP}(90)$ を左縦軸に、これらの強度比、すなわち、反射率 $R(45) = I_{OP}(90)/I_{OP}(180)$ を右縦軸に入射波長の関数として表す。ここで、 $I_{OP}(2\phi)$ の 2ϕ は、ゴニオメータ上の検出角を表す。波長 13.9 nm で反射率 52.5% を得た。

図 4 (b) は、MPBM に直入射で照射された時の照射強度 $I_{MPBM}(0)$ と入射角 $\phi = 45^\circ$ で照射された時の照射強度 $I_{MPBM}(90)$ を左縦軸に、これらの強度比 (透過率と定義) $T(45) = I_{MPBM}(45)/I_{MPBM}(0)$ を右縦軸に入射波長の関数として表す。波長 13.9 nm で透過率 8.96% を得た。反射率と透過率の比は $R(45)/T(45) = 5.86$ であった。反射率と透過率はそれぞれ個別の検出器で計測されており、また、表面物質が異なることに伴い検出感度も異なる。そこでビームに正対したフォトダイオードで検出される信号を用いて感度補正因子 $\alpha = I_{OP}(180)/I_{MPBM}(0)$ を定義すると、 $\alpha = 2.91$ であった。

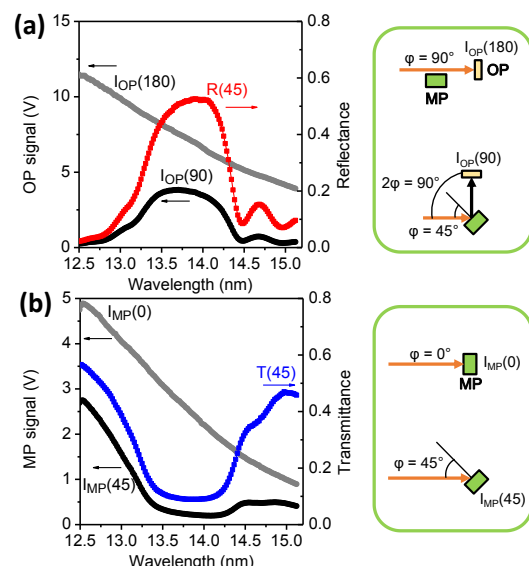


図 4. (a) 挿入図の実験配置図で得られた入射光強度 $I_{OP}(180)$ 、反射光強度 $I_{OP}(90)$ 、反射率 $R(45) = I_{OP}(90)/I_{OP}(180)$ の入射波長依存性、(b) 挿入図の実験配置図で得られた照射強度 $I_{MPBM}(0)$ 、 $I_{MPBM}(45)$ 、透過率 $T(45) = I_{MPBM}(45)/I_{MPBM}(0)$ の入射波長依存性。【T. Imazono, Appl. Opt. 56 (2017) 5824.】

次に、XRL を用いて得られた結果を示す。図 5 (a) は、挿入図の光学配置で得られた M2 の反射強度 $I_{OP}(90)$ と MPBM で計測した照射強度 $I_{MPBM}(45)$ の相関である。高い相関 (0.965) が認められており、XRL 用ビームスプリッタとして機能していることが分かる。この結果から、M2 の反射率 R_{M2} (SR で未評価) は、 $R(\varphi)T(\varphi)$ 、 α 、 $I_{MPBM}(\varphi)$ 、 $I_{OP}(2\varphi)$ を用いて、

$$I_{OP}(2\varphi) = R_{M2} [R(\varphi)T(\varphi)] \alpha I_{MPBM}(\varphi)$$

で見積もることができる。 $\varphi = 45^\circ$ の時、反射強度 $I_{OP}(90)$ は、SR で得られた結果を用いて、

$$I_{OP}(90) = 17.1 R_{M2} I_{MPBM}(45)$$

となり、図 5 (b) に示すように、ショット毎の R_{M2} を見積もることが出来た。平均値 $\langle R_{M2} \rangle = 0.568$ は、後述する偏光子 A とほぼ一致し、リーズナブルである (両光学素子は報告者によってほぼ同一仕様で製作された)。

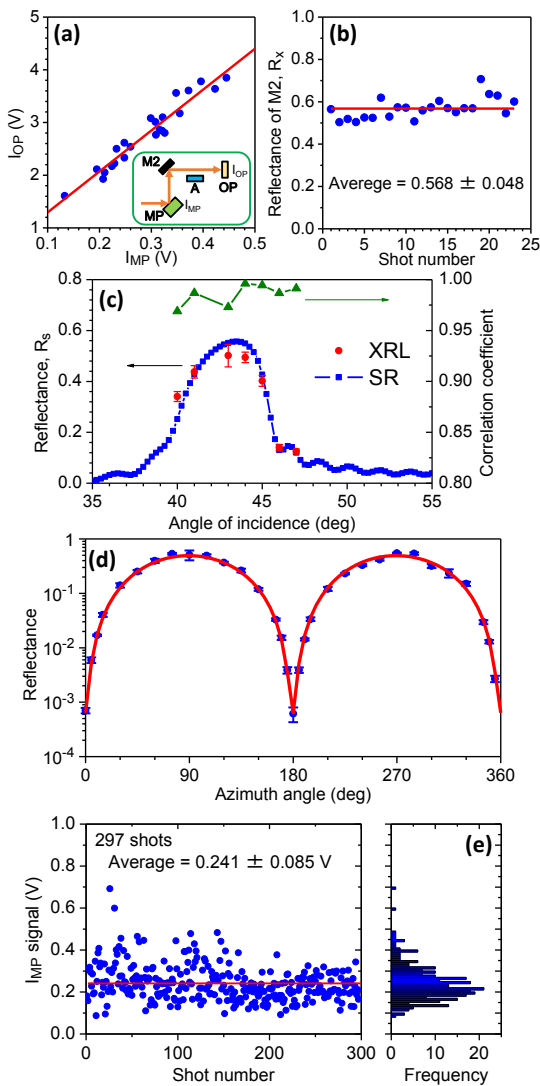


図 5. (a) 挿入図の光学配置で得られた M2 の反射強度 $I_{OP}(90)$ と MPBM の照射強度 $I_{MPBM}(45)$ との相関、(b) M2 のショット毎の反射率 R_{M2} 、(c) SR と XRL で計測した偏光子 A の s 偏光反射率 (左縦軸)、2 つのフォトダイオードの信号強度 ($I_{OP}(90)$ と $I_{MPBM}(45)$) の相関係数 (右縦軸)、(d) 偏光子 A の反射率の方位角 η 依存性、(e) 全 297 ショットの $I_{MPBM}(45)$ 。【T. Imazono, Appl. Opt. 56 (2017) 5824.】

図 5 (c) は、SR と XRL で計測した偏光子 A の s 偏光の絶対反射率 (左縦軸) である。右縦軸は本測定の際に得られたフォトダイオードの信号強度 ($I_{OP}(90)$ と $I_{MPBM}(45)$) の相関係数である。XRL で得られた反射率は SR で得られた値とほぼ一致していることが分かる。

図 5 (d) は、入射光の光軸周りに一回転させた時に得られた偏光子 A の反射率の方位角 η 依存性である。解析の結果、偏光子 A に照射される入射 XRL の偏光状態が明らかとなった (偏光楕円の長軸が鉛直方向から 0.53° 傾いた完全直線偏光)。これは、入射 XRL が A に照射される前に上流側の光学素子 (M1、MPBM、M2) によって偏光角 (約 45°) 近傍の反射を経ていることに起因している。

図 5 (e) は、図 5 (c) と (d) の実験において MPBM で計測された全 297 ショットの $I_{MPBM}(45)$ である。XRL ビームは平均出力に対して約 35% ばらつくことが分かった。大きなビーム強度変動があるにも関わらず、XRL を用いた絶対反射率計測や偏光計測を実現できていることは、MPBM がビーム強度モニタとして効果的に機能していることの証左である。

(2) GBM

図 6 (a) は、波長 13.9 nm、入射角 87° の時の Au 回折格子 (AuG) 及び Mo 回折格子 (MoG) の回折効率 (0~6 次光) の測定結果である。SR ビームラインからの 2 次光が入射光に混入しているために 0.5th も観測されている。MoG の回折効率は 0th 及び 1st とともに AuG に比して高効率であり、Mo オーバーコーティングによる回折効率の向上効果が確かめられた。また、Mo 膜はベースレベルを低減させることも分かった。0th と 1st の回折効率の比は、AuG で 7.97、MoG で 5.73 であった。

図 6 (b) は、XRL で得られた AuG 及び MoG の 0th 光強度 I_{0th} と 1st 光強度 I_{1st} の相関を表す。AuG は強い正の相関を認め (0.994)、強度比 $I_{0th}/I_{1st} = 7.51$ は実線で示した SR 実験の結果 (図 6 (a) 参照) と概ね一致している (僅かなずれは両実験における入射角の設定のずれに起因していると考えられる)。MoG も同様に良い相関 (0.997) が認められ、強度比 $I_{0th}/I_{1st} = 5.87$ も SR 実験の結果と良く一致した。以上の結果から、AuG 及び MoG はどちらも XRL 用ビーム強度モニタとして機能するが、より高効率な Mo 回折格子が有用であることが分かった。

次に、図 3 に示した実験配置で、MoG からの 0 次光を入射光とする XRL の偏光測定を実施した結果について述べる。図 7 (a) に、回折格子の 1st 光強度 I_{1st} (ビーム強度モニタ用) と 0th 光強度 I_{0th} (偏光測定用で、移相子 M と偏光子 A の反射光強度) の相関を示す。M は方位角 $\chi = 0$ (位相変調なし)、A も方位角 $\eta = 0$ である。これは水平方向への反射を意味し、s 偏光配置である。ばらつきが確認されるものの、 I_{1st} と I_{0th} の間には高い正の相関 (0.953) が認められた。

図 7 (b) は、 $\chi = 0$ の時の強度比 I_{0th}/I_{1st} の方位角 η 依存性である。S/N が悪いのは、回折格子

の収差(鉛直方向に伸びる)の影響で 0th 回折光が非対称なビーム形状であることに起因している。解析の結果、直線偏光度は $P_L = 0.86$ であった。これはリーズナブルである。なぜなら、上述の MPBM の実験では、偏光角近傍で M1、MPBM、M2 の 3 回反射のために $P_L \sim 1$ (完全直線偏光) であったが、本実験では M1 のみであるために P_L は低くなる。

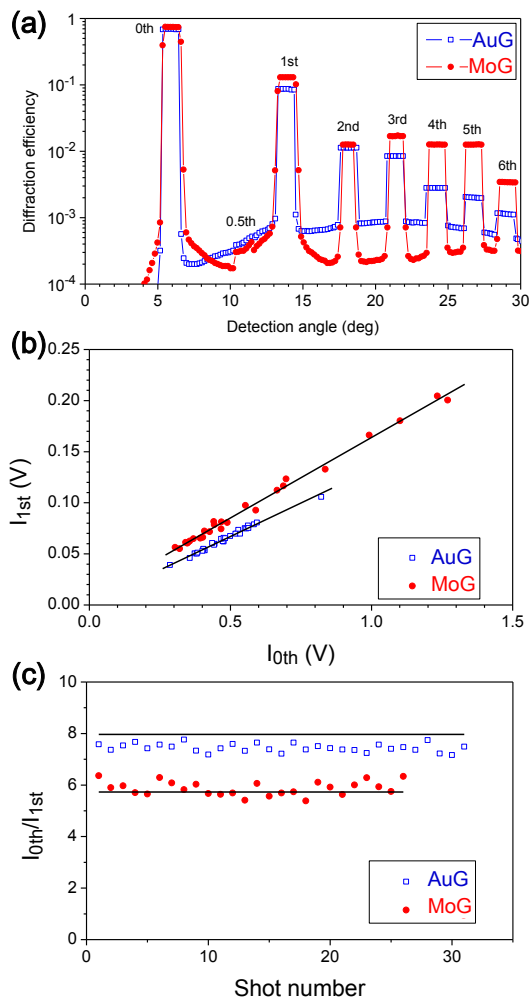


図 6. (a) AuG 及び MoG の回折効率、(b) AuG 及び MoG で得られた 0th 光強度 I_{0th} と 1st 光強度 I_{1st} の相関、(c) ショット毎の強度比 I_{0th}/I_{1st} 。実線は SR 実験で得られた結果。【T. Imazono et al., submitted as proceeding of the SRI2018 conference.】

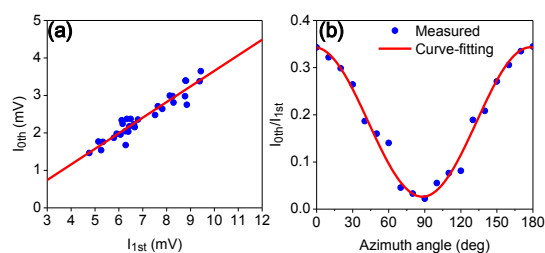


図 7. (a) 1st 光強度 I_{1st} と 0th 光強度 I_{0th} (M と A の反射光強度) の相関、(b) $\chi = 0$ の時の強度比 I_{0th}/I_{1st} の η 依存性。【T. Imazono et al., submitted as proceeding of the SRI2018 conference.】

(3) まとめ

本課題では、2 種類のビーム強度モニタ (Mo/Si 多層膜コートフォトダイオード検出器 (MPBM)、Mo オーバーコート回折格子、(GBM)) を開発した。その性能は SR と XRL を用いて確かめられ、ビーム強度モニタとして効果的に機能していること、これらを用いることでショット毎に大きなビーム強度変動がある XRL を用いたとしても絶対反射率計測や偏光計測が可能であることが明らかになった。

残念ながら、移相子 M を使った偏光実験の実施には至らなかった ($\chi = \pm 45^\circ$ の時、左右の円偏光生成実験)。また、最終目標である時間分解偏光計測によるレーザーアブレーション等の過渡物質の光学定数の評価実験も実施には至らなかった。しかし、その実現に不可欠な要素技術であるビーム強度モニタ技術と偏光計測技術を構築できたことは有意義であったと結論づけることができる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

1. T. Imazono, “Mo/Si Multilayer-coated photodiode detector for monitoring soft X-ray laser intensity,” Springer Proc. in Physics 202, 309-313 (2018); doi: 10.1007/978-3-319-73025-7_46. (査読有)
2. M. Nishikino, T. Imazono (15 名中 4 番目), “Progress and Prospects of X-Ray Laser Research in QST,” Springer Proc. in Physics 202, 21-24 (2018); doi: 10.1007/978-3-319-73025-7_3. (査読有)
3. T. Imazono, “Multilayer-coated photodiode-based beam intensity monitor for polarization analysis of plasma soft X-ray laser,” Appl. Opt. 56 (21) 5824-5829 (2017); doi: 10.1364/AO.56.005824. (査読有)
4. T. Imazono, “Development of a flat-field spectrometer with a wideband Ni/C multilayer grating in the 1-3.5 keV range,” AIP Conf. Proc. 1741, 040044 (2016); DOI: 10.1063/1.4952916. (査読有)
5. T. Imazono (他 11 名), “Experimental evaluation of a method to enhance the diffraction efficiency by overcoating diamond-like carbon (DLC) on soft X-ray laminar-type gratings,” AIP Conf. Proc. 1741, 040043 (2016); DOI: 10.1063/1.4952915. (査読有)
6. M. Koike, T. Imazono (10 名中 2 番目), “Enhancement of diffraction efficiency of laminar-type diffraction gratings overcoated by diamond-like-carbon (DLC) in soft X-ray region,” AIP Conf. Proc. 1741, 040045 (4 pages) (2016); DOI: 10.1063/1.4952917. (査読有)
7. T. Imazono (他 4 名), “Heat load testing of wideband multilayer gratings in the multi-keV region,” Photon Factory Activity

Report 2015, 33 (2016) B.
http://pfwww.kek.jp/acr/2015pdf/part_b/pf15b0370.pdf (査読無).

[学会発表] (計 30 件)

1. T. Imazono, H. Nishihara, R. Ukita, H. Sasai, and T. Nagano, "Improvement Study on Heat Resistance of Multilayer-Coated Replica Gratings," 13th Int'l Conf. Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2018), Taipei International Convention Center, Taipei, Taiwan, 2018.
2. T. Imazono, H. Nishihara, R. Ukita, H. Sasai, and T. Nagano, "Mo-Coated Grating-Based Beam Intensity Monitor for 13.9 nm X-Ray Laser," 13th Int'l Conf. Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2018), Taipei International Convention Center, Taipei, Taiwan, 2018.
3. 今園孝志, 西原弘晃, 笹井浩行, 長野哲也, "オーバーコート軟 X 線回折格子の光学特性評価," 光・量子ビーム科学合同シンポジウム (OPTO2018), 2018 年.
4. 今園孝志, "プラズマ X 線レーザーの偏光測定," 光・量子ビーム科学合同シンポジウム 2017, 2017 年.
5. 今園孝志, "レーザー駆動プラズマ X 線レーザーのビーム強度モニタ用 Mo/Si 多層膜コートフォトダイオード検出器の試作," 第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2017 年.
6. T. Imazono, "A Mo/Si Multilayer-Coated Photodiode Detector for Monitoring Soft X-Ray Laser Intensity," 15th Int'l Conf. X-Ray Lasers (ICXRL2016), 2016.
7. T. Imazono, "Experimental evaluation of a method to enhance the diffraction efficiency by overcoating diamond-like carbon (DLC) on soft X-ray laminar-type gratings" 12th Int'l Conf. Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2015), 2015.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.kansai.qst.go.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

今園 孝志 (IMAZONO Takashi)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発
機構・関西光科学研究所光量子科学研究
部・主幹研究員

研究者番号: 50370359