

平成 22 年 6 月 4 日現在

研究種目：若手研究 (B)  
 研究期間：2008～2009  
 課題番号：20740326  
 研究課題名 (和文) 軟 X 線レーザーを用いた物質表面微小変位の高時間分解イメージング手法の開発  
 研究課題名 (英文) Development of the time-resolved imaging method of nano-scale fluctuation on the material surfaces by using the soft-x-ray laser  
 研究代表者  
 越智 義浩 (OCHI YOSHIHIRO)  
 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・研究副主幹  
 研究者番号：20370372

研究成果の概要 (和文)：固体表面における微小変位の観測を目的とし、波長 13.9 ナノメートル、パルス幅 7 ピコ秒の軟 X 線レーザーパルスを探プローブ光源とした干渉計を開発した。この軟 X 線レーザー干渉計により、2 次元平面内での空間分解能は 1.5 マイクロメートル、深さ方向の感度は 1 ナノメートル以下を達成した。また、シングルショットによる観測が可能であり、露光時間 7 ピコ秒での時間分解スナップショットが得られた。本装置を用い、フェムト秒レーザーによるアブレーションの初期過程における固体表面の観測を実施した結果、レーザー照射後数 10 ピコ秒の時間スケールにて、プリアブレーションによるナノメートルスケールでの表面の膨張が起こることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：We developed a soft-x-ray laser interferometer dedicated to solid surface morphology. The probe soft-x-ray laser was 13.9 nm wavelength and 7 ps duration pulse. The interferometer achieved lateral resolution of 1.5  $\mu\text{m}$  and depth sensitivity better than 1 nm. A single shot image could be obtained, therefore the time resolution of the system was 7 ps. We applied the soft-x-ray laser interferometer for observation of the initial dynamics of the fs laser ablation and found that the nanometer scale expansion due to a pre-ablation occurred in the 10 picoseconds range after the laser onset.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009 年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,000,000	600,000	2,600,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：プラズマ応用、軟 X 線レーザー

## 1. 研究開始当初の背景

固体表面でピコ秒オーダーかつ分子スケールで発生する様々な過渡現象の高時間分

解イメージング手法が求められていた。例えば、ジアリールエテン結晶は紫外光照射による表面の結晶構造の異性化により表面形状

が変化するが、可視光照射により元の状態に戻る事が知られていた。これは原子間力顕微鏡をもちいた静的観察により数層の分子で生じるナノメートルスケールの現象である事が判っていた。また、中性イオン性相転移はフェムト秒レーザー励起により可逆的に発生する。その時間スケールは数〜数十ピコ秒であることが示唆されており、放射光施設を用いた構造解析により動的構造変化の様子が明らかになりつつあった。しかし、一般に計測に使われている X 線 CCD では時間分解がなく、高速で計測可能な X 線ストリークカメラは原理的に空間分解能が期待できなかった。一方で、報告者の所属するグループでは、レーザー生成プラズマを利得媒質とするレーザー駆動型の軟 X 線レーザーを開発し、現在までに数〜50 ナノメートルの波長域においてレーザー発振を確認していた。特に波長 13.9 ナノメートルのニッケル様銀レーザーは、極めて高い単色性 ( $\lambda/\Delta\lambda > 10^4$ ) と短パルス性 (〜ピコ秒) を併せもつ実験室規模で利用可能なコヒーレント軟 X 線光源であったことから、これをプローブ光源として用いることで、ナノメートルの変位分解能とピコ秒の時間分解能を同時に達成する観測手法が実現できると考えられた。

## 2. 研究の目的

軟 X 線レーザーを用いた干渉計とイメージングを組み合わせる事により、1 ミクロンの空間分解能、ナノメートルの変位分解能、及びピコ秒の時間分解能を合わせ持つ高時間分解イメージング手法を開発し、その性能を実証することを目的とする。また、開発した装置にてポンプ&プローブ実験を実施し、アブレーション等の初期ダイナミクスを解明する事を目的とする。

## 3. 研究の方法

プローブ光源として、軟 X 線レーザーを用いる。軟 X 線レーザーは物質 (ここでは固体の銀) にプリパルスと超短パルスレーザーを照射することにより、プラズマ中に反転分布を生成することで利得媒質を形成し、そこから発振する。発振波長は 13.9 ナノメートル、パルス幅は 7 ピコ秒である。日本原子力研究開発機構では、2 つの利得媒質 (プラズマ) を使い、第 1 媒質にて発生した軟 X 線レーザー

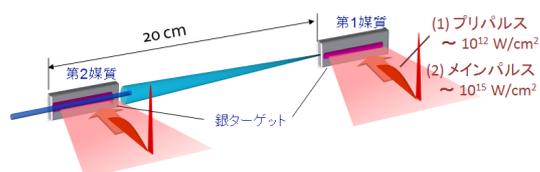


図1 完全な空間コヒーレンスを有する軟 X 線レーザーの発生方法

一の空間モードの良い部分のみを第 2 媒質にて増幅することにより、完全な空間コヒーレンスを有する軟 X 線レーザーを実現している (図 1)。

プローブ光源が軟 X 線であることから、干渉計は反射型の光学素子のみで構成する (図 2)。第 1 番目の軟 X 線用 Mo/Si 球面鏡にて軟 X 線レーザー発生源であるプラズマ像をサンプル手前に像転送することで、光量の増大と空間配置の安定化を図っている。サンプル直前には、軟 X 線の反射率を考慮してサンプルへの入射角を調整出来るよう、入射用プラチナ鏡を配置している。サンプルの像は、Mo/Si 多層膜の球面鏡にて検出器であり CCD カメラ上に転送される。この際、検出器への光路上に微小角をつけた 2 枚のプラチナ鏡 (ダブルロイズ鏡) を配置し CCD カメラ上で軟 X 線レーザーの一部を重ねることで干渉像を観測する。CCD カメラ上で観測される干渉縞の間隔 ( $\omega$ ) とプローブ光の波長 ( $\lambda$ ) の間には、 $\omega = L \lambda / d$  の関係がある。ここで  $L$  は光源 (球面鏡の焦点) から検出面までの距離、 $d$  は 2 枚のロイズ鏡でそれぞれ投影した擬似光源間の距離であり、ダブルロイズ鏡の傾き角 ( $\delta$ ) と光源からダブルロイズ鏡までの距離 ( $a$ ) を用いて、 $d = 2a \cdot \sin\delta$  で表される。試料上に高さ  $\Delta h$  のステップ状の構造があり、ダブルロイズ鏡で分割される 2 本のうち、一方のビームはその上部、他方は下部で反射した場合に生じる光路差 ( $\Delta l$ ) は、試料への斜入射角を  $\theta$  とすると、 $\Delta l = 2\Delta h \cdot \sin\theta$  である。これが波長の整数倍になるという干渉条件より、観測される干渉縞のシフト ( $\Delta\omega/\omega$ ) から試料上での起伏の大きさ  $\Delta h$  が次式により求まる。

$$\Delta h = (\lambda/2 \sin\theta) (\Delta\omega/\omega)$$

この関係を用い、サンプル表面の変位を干渉縞シフトから求める。軟 X 線レーザーのパルス辺りの光子数は約  $10^{11}$  個であり、本干渉計内の反射率等の効率を考慮した結果、シングルショットでの撮像は可能であり、パルス幅である 7 ピコ秒の時間分解画像が得られる。

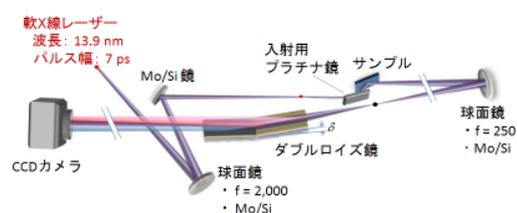


図2 軟 X 線レーザー干渉計の構成。光学素子は全て真空チャンバー内に配置され、サンプル像転送用球面鏡から CCD カメラまでの距離は約 5 メートルである。ダブルロイズ鏡の傾き角  $\delta$  は  $0.04^\circ$  とした。

#### 4. 研究成果

集束イオンビーム装置 (FIB) を用いて厚み 100 ナノメートルのプラチナ基板に、深さ約 6 ナノメートルの溝ペアを加工したテストサンプル (図 3a) を用いて、今回開発した軟 X 線レーザー干渉計の分解能評価を行った。図 3b に干渉計により得られた像を示す。この画像は、シングルショットで撮像された画像であり、7 ピコ秒の時間分解画像となっている。溝に対応する部分にて、干渉縞の左向きへのシフトが明確に観測できている。干渉縞のシフト量から数値解析により再構成した二次元画像が図 3c である。図 3a 及び 3c にて波線で示した部分の断面プロファイルを図 3d に示す。実線は原子間力顕微鏡にて測定した結果、■は干渉計データからの数値解析結果であり、両者は良く一致している。原子間力顕微鏡による観測から、加工した溝のエッジの立ち下がりには 1 ナノメートル以下であるのに対し、干渉計データでは 1.5 ミクロンとなっていることから、本干渉計の二次元平面分解能は 1.5 ミクロンである。一方、深さ方向に対しては、6 ナノメートルの深さに対する干渉縞のシフト量は検出器上で 6~7 ピクセルに相当することから、1 ナノメートル以下の感度を有している。以上から、今回開発した軟 X レーザー干渉計が、二次元空間分解能 1.5 ミクロン、変位分解能 1 ナノメートル以上、時間分解能 7 ピコ秒を同時に達成していることが実証された。

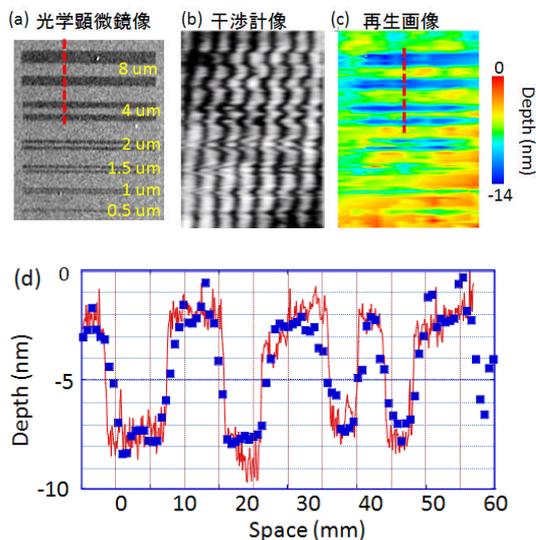


図 3 (a) 分解能評価に用いたテストサンプルの光学顕微鏡像。深さ約 6 ナノメートルの溝ペアが加工されている。(b)干渉計により観測された干渉縞シフト。(c)干渉縞シフトから数値解析により求めた再生画像。(d)波線で示した領域の断面プロファイル。原子間力顕微鏡による観測(実線)と干渉計データにより求めた結果(■)はよく一致している。

この干渉計を用いて、ポンプ&プローブ実験によりフェムト秒レーザーアブレーションの初期過程の観測を行った。ポンプ光として用いたのは、パルス幅 70 フェムト秒、波長 800 ナノメートルのチタンサファイアレーザーである。サンプル上での照射強度は約  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> とした。軟 X 線レーザープローブ時刻を変化させ、サンプル表面形状変化を観測した結果を図 4 に示す。上段から、ポンプ光非照射時 (参照データ)、照射後約 25 ピコ秒、50 ピコ秒、及び照射後の静的状態での干渉計データである。これらの時系列にそった結果から、レーザー照射後約 25 ピコ秒にて変形が始まり、50 ピコ秒に照射スポットにおける表面の膨張が生じ、その後中心付近がプラズマ化してアブレートし、クレーターが形成されたことが示唆されている。約 50 ピコ秒後における膨張部分のピークの高さは 30 ナノメートル、周辺付近でも変位量は 8 ナノメートルであった。これらは、アブレーション閾値近傍でのプリアブレーションに伴う変位であると考えられる。このようにアブレーションのごく初期過程のナノメートルオーダーの変位量を直接観察した例は今までになく、本研究により開発した計測手法によって始めて可能となったものである。

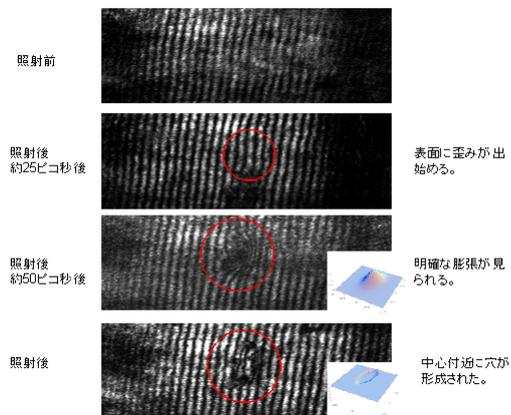


図 4 フェムト秒レーザー照射によるアブレーション初期過程の観測結果。照射後約 25 ピコ秒にて変形が始まり (2 段目)、照射後にはクレーターが形成されている (4 段目)。この途中において、約 50 ピコ秒後では表面の膨張が観測された (3 段目)。

#### 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 4 件)

- ① Y. Ochi, T. Kawachi, N. Hasegawa, K. Nagashima, M. Nishikino, M. Kishimoto, and M. Tanaka, Development of Driver

- Laser System for 0.1-Hz X-ray Laser, The Review of Laser Engineering、査読有、supplement volume 2008、2008、1136-1138
- ② Y. Ochi, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Nishikino, T. Ohba, M. Tanaka, M. Kishimoto, T. Kaihori, K. Nagashima, and A. Sugiyama、Demonstration of SubmicroJoule, Spatially Coherent Soft-X-Ray Laser Pumped by 0.1 Hertz, 10 Joule, Picosecond Laser, Jan. J. Appl. Phys. (Rapid Communication)、査読有、vol. 48、2009、1202121:1-3
- ③ Y. Ochi, N. Hasegawa, M. Nishikino, M. Tanaka, T. Ohba, T. Kaihori, M. Kishimoto, M. Kado, M. Ishino, T. Imazono, K. Sato, and T. Kawachi, Development of Plasma Soft-X-Ray Lasers for Applications, proceedings of APLS 2010、査読有、2010、pp. 30
- ④ T. Suemoto, K. Terakawa, Y. Ochi, T. Tomita, M. Yamamoto. N. Hasegawa, M. Deki, Y. Minami, and T. Kawachi, Single-shot picoseconds interferometry with one-nanometer resolution for dynamical surface morphology using soft X-ray laser, Opt. Express、査読有、掲載決定

[学会発表] (計 11 件)

- ① 越智 義浩、New driver laser system for double target X-ray lasers、第 11 回 X 線レーザーに関する国際会議、2008 年 8 月 20 二値、英国・ベルファスト
- ② 越智 義浩、10J, picosecond, 0.1-Hz Nd:glass laser system dedicated to X-ray lasers、第 3 回先進的レーザーとその応用に関する国際会議、2008 年 10 月 29 日、中国・同里
- ③ 越智 義浩、Development of 0.1-Hz Double-Target X-ray Laser and Its Application, Ultrafast Optics VII/High Field Short Wavelength XIII、2009 年 9 月 3 日、フランス・アルカション
- ④ 越智 義浩、軟 X 線レーザー干渉計を用いたナノスケール擾乱の高時間分解観察、日本物理学会 2009 年秋季大会、2009 年 9 月 27 日、熊本大学
- ⑤ 越智 義浩、軟 X 線レーザープローブによる固体表面における高速過渡現象の観測、高速度イメージングとフォトンクスに関する総合シンポジウム 2009、2009 年 12 月 10 日、大阪大学
- ⑥ 越智 義浩、高輝度プラズマ軟 X 線レーザーの高繰り返し発生と物性研究への応用、レーザー学会学術講演会第 30 回年次大会、2010 年 2 月 4 日、千里ライフサイエンス

センター (吹田市)

- ⑦ 越智 義浩、Applications of Laser Driven Plasma Soft X-ray Laser in JAEA、レーザー共同研究所設立記念国際シンポジウム、2010 年 2 月 18 日、アクアトム敦賀
- ⑧ 富田 卓朗、コヒーレント軟 X 線プローブによるフェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの観測、第 57 回 応用物理学関連連合講演会、2010 年 3 月 17 日
- ⑨ 越智 義浩、軟 X 線レーザープローブによる固体表面ダイナミクス観測手法の開発、日本物理学会第 65 回年次大会、2010 年 3 月 10 日、岡山大学
- ⑩ 寺川 康太、ポンプ-プローブ軟 X 線干渉計によるアブレーションダイナミクスの観測、日本物理学会第 65 回年次大会、2010 年 3 月 10 日、岡山大学
- ⑪ 越智 義浩、Development of Plasma Soft-X-Ray Lasers for Applications、第 7 回アジア・パシフィックレーザーシンポジウム、2010 年 5 月 12 日、韓国済州島

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

越智 義浩 (OCHI YOSHIHIRO)

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・研究副主幹

研究者番号：20370372