

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26390113

研究課題名(和文) 固体アルゴンを用いた「水の窓」3nm帯連続発生軟X線源の研究

研究課題名(英文) Study of a solid Ar plasma source generating continuously soft X-ray pulses in water window around 3nm

研究代表者

天野 壮 (Amano, Sho)

兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・助教

研究者番号：50271200

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：「水の窓」と呼ばれる3nm帯軟X線は生体細胞観察の軟X線顕微鏡用や有機材料の微細加工光源として期待されている。この軟X線を放射して、放射光施設に代わる小型で安価なX線源として、我々は固体アルゴンをターゲットとしたレーザープラズマ軟X線源の開発を行った。市販のQスイッチNd:YAGレーザーを用いて「水の窓」軟X線で0.5Wの高平均出力を達成し、PMMAサンプルのミクロンサイズの微細加工も成功して実用的小型X線源である事を示した。

研究成果の概要(英文)：Water window soft X-ray around 3 nm are expected in soft X-ray microscope imaging of live biological samples or micromachining for organic polymer samples. We developed a laser plasma source that had a solid Ar target and generated the soft X-ray. It is both compact and inexpensive compared to conventional synchrotron radiation sources. A high average power of 0.5 W was achieved in the water window soft X-ray irradiated by a commercial Nd:YAG Q-switched laser. Micromachining in micron size scale for PMMA samples was succeeded and we demonstrated the laser plasma source was practical and useful.

研究分野：レーザー工学

キーワード：レーザープラズマ 軟X線 水の窓 固体アルゴン 高平均出力 微細加工

### 1. 研究開始当初の背景

我々は産業実用化を目指して、放射光施設に代わるコンパクトで使い易いスタンドアロンの小型軟 X 線源としてレーザープラズマ X 線源の開発を進めてきた。その結果、本研究開始時までに、固体希ガスターゲットを用いた繰り返しパルス数 10Hz までの連続発生軟 X 線源の開発に成功した [1]。

このターゲットの内、固体アルゴンの発光は 3nm 帯にあり、これは特に「水の窓」と呼ばれる特徴的な波長帯である。この波長帯の軟 X 線は水とタンパク質の吸収率の差が大きいため生体細胞観察の X 線顕微鏡光源として期待されている。また、この軟 X 線は炭素の内核励起を起こすので、種々の有機材料での効果的な表面改質、微細加工が期待できる。この様に、この 3nm 帯軟 X 線は様々な応用展開が期待されるが、そのための 3nm 帯の連続発生レーザープラズマ X 線源は、アルゴンガスを使った報告があるのみであった [2]。これに対し固体アルゴンを用いた我々の光源では、プラズマ発光密度が上がり、より高輝度高効率の実用的光源となる事が予想された。

#### <引用文献>

[1] S. Amano, Laser plasma cryogenic target on translating substrate for generation of continuously repetitive EUV and soft X-ray pulses, Rev. Sci. Instrum, vol. 85, 2014, 063104.

[2] A. Bartnik, H. Fiedorowicz, R. Jarocki, L. Juha, J. Kostrecki, R. Rakowski, M. Szczurek, Microelectr. Eng., Micromachining of organic polymers of X-ray photo-etching using a 10Hz laser-plasma radiation source, vol. 78-79, 2005, 452.

### 2. 研究の目的

我々のレーザープラズマ光源は、そこに用いる固体希ガスターゲット連続供給装置が平成 23-26 年度までの科研費助成 (No. 23654204) により開発できていたが、これを用いた実際の光源特性の評価までは至っていなかった。そこで本研究により、この装置を用いた固体アルゴンターゲットによる「水の窓」3nm 帯の連続発生軟 X 線源の光源特性を研究し、その応用を示して実用的小型光源である事を実証する事を目的とした。

### 3. 研究の方法

本光源は、固体アルゴンターゲットを用いて、新しい高輝度・高効率・高平均出力の連続発生レーザープラズマ X 線源を目指すものであった。

そのため、開発されたターゲット連続供給装置を用いて、プラズマターゲットとして固体アルゴンを供給して、繰り返しレーザーパルス照射して、アルゴンプラズマを連続発生させた。ここで用いたのは市販の最大エネルギー 1 J、最大パルス繰り返し数 10Hz の Q-sw

Nd:YAG ロッドレーザーであった。このプラズマが発する「水の窓」3nm 帯軟 X 線源の特性評価のため、絶対校正エネルギー検出器 (XRD; X-Ray Diode)、透過回折格子分光器、イオン検出器 (FC; Farady Cup) 等を用いた。レーザー照射条件等の最適化を行ないながら X 線・イオン特性を測定して、最大性能を明らかにして高輝度・高効率・高平均出力の光源であることを示した。

クライオスタットによる真空チャンバーへの振動を評価・対策を施して、集光ミラーを用いて実際に PMMA サンプルへの集光照射実験を行い、微細加工応用を示した。

### 4. 研究成果

#### (1) 軟 X 線発光特性

分光器で速定した固体アルゴンターゲットからの発光スペクトルを図 1 に示す。ArXIII から ArIX イオンに由来する幾つかの特徴的ピークが確認できて、最大ピーク波長は 3.0nm にあり、「水の窓」領域 (2.3-4.4nm) 領域全体で強く発光している。

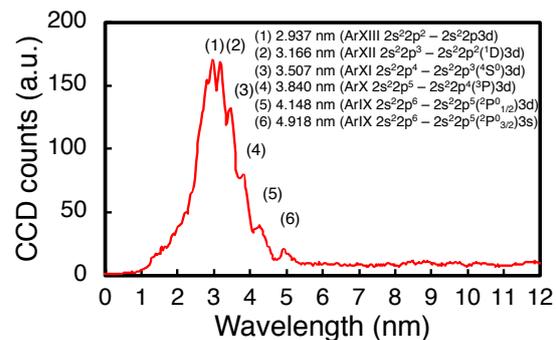


図 1 固体アルゴンの発光スペクトル

この発光強度を最大限にするため種々の動作パラメータの最適化を図った。

まず、絶対校正エネルギー検出器 XRD で発生 X 線をモニターして、ターゲット動作状態の依存性、即ち発生 X 線のターゲット速度依存性、アルゴンガス流量依存性を確認した。その結果、今回の動作範囲内では発生 X 線量はターゲット動作状態の依存性が無い事が判った。

そこでターゲット動作条件を速度 3mm/s、流量 250mL/min に設定し、レーザー集光スポット径とレーザーエネルギーを変化させて、XRD のモニター X 線が最大となる最適レーザー強度を調べた。その結果、レーザー強度  $5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> の時、エネルギー 1J、繰り返し数 1Hz で、レーザーから 2.3-4.4nm の「水の窓」軟 X 線エネルギーへの変換効率が最大となり 14% であった。この効率は全空間で積分した値であり、その計算には図 2 に示す測定した空間分布を用いた。

また、1 ショット当たりの輝度は  $5 \times 10^{12}$  photon/ $\mu\text{m}^2/\text{sr}$  であり、アルゴンガスでの  $1.11 \times 10^9$  photon/ $\mu\text{m}^2/\text{sr}$  に比べて大きい。

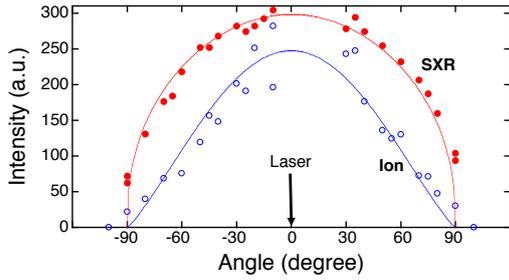


図2 「水の窓」軟 X 線 (赤) とアルゴンイオン (青) の放射空間分布

### (2) 高平均出力軟 X 線発生

本ターゲット供給装置を使った軟 X 線源に於ける平均出力限界について検討を行った。最大変換効率率はレーザーエネルギー 1 J (レーザー強度  $5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) の時に得られているので、高平均出力化とはレーザーエネルギー 1 J で繰り返し数をどこまで上げられるかという事に他ならない。上下 1 次元往復運動する本ターゲット装置における、連続動作条件は式 (1) の様に表される。

$$2fD \leq V \leq \frac{4Lv_d}{\delta} \quad (1)$$

ここで、レーザーショットで出来るクレータ直径を  $D$ 、その深さを  $\delta$ 、ターゲット膜の成長率を  $vd$ 、レーザーパルスの周波数を  $f$ 、ターゲット上下のスキャン幅を  $L$ 、ターゲットを上下に動かすスキャン速度を  $V$  とした。現装置では  $L = 60$  mm、最大速度  $V_{max} = 12$  mm/s である。

本装置で条件 (1) を満たすには、レーザーエネルギー 1 J の時繰り返し数 3.3 Hz まで可能であり、この時  $V = 9$  mm/s、 $F = 400$  mL/min に設定すれば、連続発光動作が可能となる。この条件で実際にプラズマ X 線連続発生実験を行い、XRD より「水の窓」軟 X 線平均出力をモニターした結果が図 3 である。6 往復移動しているが、上下の折り返しの影響もなく安定した出力が得られ、その平均出力は 0.5 W に達した。レーザー繰り返し数を 5 Hz に上げると、上下折り返し端からターゲット層が剥がれ出し、もはや連続運転出来なくなってしまう。以上の事より、式 (1) を満たす場合のみ設計通り、レーザーショット毎に修復されたフレッシュなターゲット面を供給して連続動作可能であると言える。

そこで次に、レーザーエネルギー 1 J で繰り返し数 10 Hz 入射可能で、「水の窓」軟 X 線平均出力を 1 W クラスへ増強するための条件を探った。その結果、 $V = 25$  mm/s、 $L = 150$  mm と簡単なメカニカルの改良をすれば良いことを明らかにした。

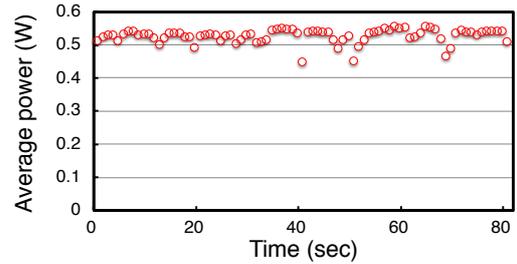


図3 「水の窓」軟 X 線の 0.5W 平均出力発生

### (3) プラズマデブリ評価

アルゴンターゲットは希ガスであるため deposition free ターゲットであり、金属ターゲットに比べこの分のデブリは無いが、X 線と同時にプラズマから放出される高速イオンは付近の光学系をスパッタしてダメージを与えるプラズマデブリとなる。プラズマ X 線源の応用を考えた時、このイオン特性を知ることは必要でありイオン検出器 FC で測定を行った。その結果から電荷数 1 と仮定して計算して求めたイオンエネルギースペクトルを図 4 に示す。これより、発生イオンはその運動エネルギーが 2 KeV 以下のものが大部分で低い事が判った。

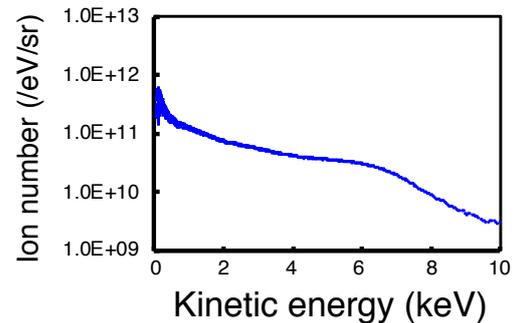


図4 アルゴンイオンのエネルギースペクトル

アルゴンイオンの放射空間分布を測定した結果も図 2 に示した。X 線放射空間分布と比較すると、X 線分布は  $(\cos \theta)^{0.41}$  で近似できる分布であったのに対し、イオン測定結果は  $(\cos \theta)^{1.2}$  で近似できる分布であり、X 線分布に比べて前方に集中している事が判る。これより、例えば 45 度方向では X 線はピークの 87% 減なのに対しイオンは 66% に減少するので、応用上、前方からずらして使うのがいい事が判った。

また、図 4 の結果と SRIM コード ([www.srim.org](http://www.srim.org)) を使って、アルゴンイオンによる光学系へのスパッタダメージを見積もった。コンタクト軟 X 線顕微鏡应用到に使う窒化シリコン窓、集光実験で用いるニッケルミラーについて計算したが、その結果は問題にならないレベルのスパッタ量である事を明らかにした。

#### (4) クライオスタットによる振動特性

本研究で用いるターゲット供給装置は冷却にクライオスタットを採用しており、これが振動を発生する。この振動が集光ミラーに伝搬して集光 X 線スポットがぶれる恐れがあったため、この振動特性を評価した。光源真空チャンバー上に加速度ピックアップセンサを置き振動を測定した。その結果、何もしないとクライオスタット特有の 2.4 Hz 周期の振動が伝搬し、その変位は 3 μm 程度あったが、防振材の使用により振動変位は μm 以下とほとんど抑制できる事を明らかにした。

#### (5) 集光軟 X 線による微細加工

発生軟 X 線を効率良く集光して応用実験に用いるために、NiCr/V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 多層膜エリプソイダル軟 X 線集光ミラーを採用した 3nm 帯軟 X 線集光加工システムを完成させた。ミラー焦点に XRD を置き絶対エネルギー値を測定して、その値が設計通りであることを確認した。次に集光スポット径をバーンパターン法で測定し、軟 X 線集光強度が 7 kW/cm<sup>2</sup> であることを確認した。次に、その焦点位置に PMMA サンプルとニッケルメッシュ (2000 line/inch) によるコンタクトマスクをおいて、集光 X 線による微細加工を行った。また、テフロンと DLC サンプルについても微細加工を行い、いずれの材料でも数ミクロンサイズの微細加工に成功した。

以上本研究成果により、固体アルゴンターゲットを用いた本レーザープラズマ「水の窓」3nm 帯軟 X 線源が高輝度・高効率・高平均出力であり、微細加工応用に有用であることを明らかにした。

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Sho Amano, Laser plasma soft X-ray source in the water window based on cryogenic targets, Electronics and Communications in Japan, 査読有、vol. 101, 2018, 55-60  
DOI:10.1002/ecj.12022
- ② 天野壯、クライオターゲットによる「水の窓」レーザー生成プラズマ軟 X 線源、電気学会論文誌 C(電子・情報・システム部門誌)、査読有、137 巻、2017, 406-410  
DOI:10.1541/ieejieiss137.406
- ③ Sho Amano, High-average-power water window soft X-ray from an Ar laser plasma, Appl. Phys. Express, 査読有、vol. 9, 2016, 076201-1-3  
DOI:10.7567/APEX.9.076201

[学会発表] (計 12 件)

- ① 天野壯、ワット救出力の「水の窓」軟 X 線源、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018 年 3 月

- ② 天野壯、高効率・高平均出力レーザープラズマ「水の窓」軟 X 線源、Plasma Conference 2017、2017 年 11 月
- ③ Sho Amano, Laser plasma soft X-ray source based on cryogenic target, SPIE, Optics-Optoelectronics, (invited), 2017, April
- ④ 天野壯、レーザープラズマ「水の窓」軟 X 線源、レーザー励起 X 線源とその応用研究会、2016 年 12 月
- ⑤ Sho Amano, Laser plasma VUV~ X-ray source using solid rare gas targets, The 39<sup>th</sup> international conference on vacuum ultraviolet and X-ray physics (VUVX2016), 2016, July
- ⑥ Sho Amano, Laser plasma X-ray source based on cryogenic targets, The 15<sup>th</sup> international conference on X-ray lasers (ICXRL2016), 2016, May
- ⑦ 天野壯、固体 Ar と N<sub>2</sub> レーザープラズマの「水の窓」軟 X 線特性、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 3 月
- ⑧ 天野壯、宮本修治、固体希ガスレーザープラズマ X 線源とその応用、レーザー学会第 483 回研究会、2015 年 12 月
- ⑨ 天野壯、固体 Ar レーザープラズマ X 線源のデブリ特性、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月
- ⑩ Sho Amano, Continuous generation of laser plasma X-ray using solid rare gas targets, The 4<sup>th</sup> advanced lasers and photon source conference (ALPS2015), 2015, April
- ⑪ 天野壯、120mW 出力「水の窓」軟 X 線の連続発生、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、2015 年 3 月
- ⑫ 天野壯、「水の窓」3nm 帯軟 X 線連続発生レーザープラズマ光源の研究、レーザー学術講演会第 35 回年次大会、2015 年 1 月

[図書] (計 2 件)

- ① Sho Amano, Springer, X-Ray Lasers 2016, 2018, 199-202
- ② Sho Amano, SPIE, Proc. of SPIE, Vol. 10243, 2017, 10243Q-1-8

### 6. 研究組織

#### (1) 研究代表者

天野 壮 (AMANO, Sho)  
兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・助教  
研究者番号：50271200

#### (2) 研究分担者

宮本修治 (MIYAMOTO, Shuji)  
兵庫県立大学・高度産業科学技術研究所・教授  
研究者番号：90135757