

**X線レーザーを用いた固体の時間分解分光の研究
(学位論文)**

Time-resolved Spectroscopy of Solid-state Materials Using an X-ray Laser
(Thesis)

田中 桃子

Momoko TANAKA

量子ビーム応用研究部門
X線レーザー利用研究グループ

X-ray Laser Group
Quantum Beam Science Directorate

June 2008

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

X線レーザーを用いた固体の時間分解分光の研究 (学位論文)

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 光量子ビーム利用研究ユニット
田中 桃子

(2008年3月31日 受理)

X線レーザーはEUV光源の一種であり、数ピコ秒のパルス幅、狭い波長幅、高コヒーレンスといった性質を持った特徴的な光源である。高効率の多層膜ミラーが使用可能な波長 13~14 nm 付近でも高輝度の発振を実現しており、EUVリソグラフィ分野を始めとして様々な分野での応用研究が期待されている。しかしながら、イメージングや干渉計測などへのX線レーザーの応用が進められている一方で、発光計測分野における実用例は乏しかった。本研究は、従来式X線レーザーの問題点の一つであったビーム発散角の問題を解決し、ビームラインの構築が可能なレベルのX線レーザーを発振させると共に、その利用研究の例として、X線レーザー励起による発光計測を実用化することを目的とする。X線レーザーのビーム発散角は、2つの利得媒質を用いたダブルターゲット方式により改善させた。ニッケル様銀(波長 13.9 nm)の過渡利得電子衝突励起X線レーザーにおいて、ビーム発散角 0.2 mrad、空間的にフルコヒーレントで、パルスあたりコヒーレント光子数が 10^8 個に達する、高輝度、高コヒーレントのEUV光を発生させることに成功した。また、X線レーザーのビーム発散角が改善したことにより、数メートルに渡るビームラインを構築し、1インチ径程度のミラーで取り扱うことが可能となり、利用計測における利便性が大幅に向上した。X線レーザー励起による発光計測の対象としては、ZnO単結晶の波長 13.9 nm 励起による紫外発光の計測を行い、EUVシンチレーターとしての評価を行った。X線レーザー励起と 351 nm の紫外レーザー励起の二つの場合についてZnOからの発光を時間分解分光計測した結果、それぞれ 380 nm 付近のエキシトン発光が明瞭に観測された。発光の時間減衰は寿命 1 ns と 3 ns の2成分で構成されており、X線レーザー励起と紫外励起で励起波長による差異が全く無かった。このことは、シンチレーターとして用いる際に既存の紫外光源による事前アライメントが可能であることを意味しており、シンチレーション物質として好適であることを示している。発光寿命は、パルス幅が数ナノ秒程度のレーザーを用いて発生されているEUVリソグラフィ用光源を用いた評価を行うのに十分な時間分解能である。また、この計測により、X線レーザーがEUVリソグラフィ用光学素子などの評価や発光計測にも有用なツールであることが見いだされた。特に時間分解計測については、X線レーザーのパルス幅が数ピコ秒程度であることから、高速のストリークカメラと組み合わせることにより高い時間分解能の計測が可能となる。今後、更に高速のシンチレーション物質の探索や、従来は可視光の多光子励起により行われていた透明材料の発光計測など、様々な応用が期待される。

**Time-resolved Spectroscopy of Solid-state Materials
Using an X-ray Laser
(Thesis)**

Momoko TANAKA

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency
Kizugawa-shi, Kyoto

(Received March 31, 2008)

X-ray laser is a characteristic extreme ultraviolet (EUV) source with short pulse duration of several pico-seconds, narrow spectral width, and high coherence. In particular, x-ray laser with the wavelength of around 13 nm is expected as a powerful tool of various research fields such as EUV lithography because the multilayer mirror with high reflectance is commercially prepared. However, spectroscopic studies of materials optically excited with x-ray laser are few while imaging and interference measurements are intensively studied. In this study, the beam divergence and spatial coherence of x-ray laser was improved and applied to the measurement of time resolved emission spectroscopy of a solid-state material. The beam divergence of the x-ray laser was improved by double target configuration using two gain media. The nickel-like silver x-ray laser at the wavelength of 13.9 nm was improved to be spatially fully coherent beam with the divergence of 0.20 mrad. The number of coherent photons of this beam was 10^8 per pulse. The narrow divergence allowed us the beam transported by use of a simple mirror system with a small diameter of 1 inch. As an application of the x-ray laser, the UV emission from the zinc oxide (ZnO) single crystal excited by the 13.9 nm x-ray laser was observed and evaluated for EUV scintillator. The time-resolved emission spectra were observed for 13.9 nm excitation and 351 nm excitation. In both the excitation conditions, a prominent fluorescence peak of the ZnO exciton transition was observed at around 380 nm. The time profile at the peak of the spectra could be expressed by a double exponential decay with time constants of 1 ns and 3 ns in the both cases. The lifetimes and intensity ratio of the two decay components in the both cases were almost similar in spite of the huge difference in the excitation photon energy. The response time is sufficiently short for characterizing EUV lithography light sources having several nanoseconds duration. It is also shown that the x-ray laser is an excellent tool for time-resolved spectroscopy and characterization of materials intended for next-generation lithography applications. Especially for time-resolved measurement, high-speed phenomenon can be observed with resolution of several pico-seconds using the x-ray laser.

Keywords: X-ray Laser, EUV, Scintillator, ZnO, Time-resolved Spectrum

目 次

| | |
|------------------------|----|
| 1. 序論 | 1 |
| 1.1 X線レーザーの概略 | 1 |
| 1.1.1 X線レーザー研究の始まり | 1 |
| 1.1.2 過渡利得電子衝突励起X線レーザー | 1 |
| 1.1.3 ダブルターゲットX線レーザー | 2 |
| 1.1.4 X線レーザーの利用研究 | 2 |
| 1.2 他のEUV光源との比較 | 3 |
| 1.3 この論文の目的 | 4 |
| 参考文献 | 5 |
| 2. X線レーザーの発生 | 9 |
| 2.1 原理 | 9 |
| 2.1.1 X線レーザー発振の方式 | 9 |
| 2.1.2 空間コヒーレンスの改善 | 10 |
| 2.2 ダブルターゲット増幅実験 | 11 |
| 2.2.1 装置 | 11 |
| 2.2.2 シングルターゲットX線レーザー | 17 |
| 2.2.3 ダブルターゲットX線レーザー | 23 |
| 2.3 利得領域の観察 | 23 |
| 2.3.1 発光強度の時間変化 | 23 |
| 2.3.2 近視野像計測 | 24 |
| 2.4 コヒーレンス評価 | 26 |
| 2.4.1 発散角からの評価 | 26 |
| 2.4.2 ヤングの実験 | 27 |
| 2.5 パルス幅計測 | 29 |
| 2.6 コヒーレント光子数 | 30 |
| 参考文献 | 31 |
| 3. 時間分解分光計測 | 33 |
| 3.1 EUVシンチレーション物質の概要 | 33 |
| 3.2 酸化亜鉛 (ZnO) の概略 | 34 |
| 3.3 時間分解分光計測 | 35 |
| 3.3.1 試料 | 35 |
| 3.3.2 計測系 | 35 |
| 3.3.3 結果と考察 | 39 |
| 参考文献 | 43 |
| 4. 総括 | 46 |
| 謝辞 | 47 |

Contents

| | |
|---|----|
| 1. Introduction | 1 |
| 1.1 Outline of x-ray laser | 1 |
| 1.1.1 X-ray laser research in early times | 1 |
| 1.1.2 Transient collisional excitation x-ray laser | 1 |
| 1.1.3 Double target x-ray laser | 2 |
| 1.1.4 Application of x-ray laser | 2 |
| 1.2 X-ray laser and other EUV sources | 3 |
| 1.3 Purpose of this study | 4 |
| References | 5 |
| 2. Generation of the x-ray laser | 9 |
| 2.1 Method | 9 |
| 2.1.1 Scheme of the x-ray laser generation | 9 |
| 2.1.2 Improvement of the spatial coherence | 10 |
| 2.2 Demonstration of double target amplification | 11 |
| 2.2.1 Experimental set-up | 11 |
| 2.2.2 Single target x-ray laser | 17 |
| 2.2.3 Double target x-ray laser | 23 |
| 2.3 Observation of the gain region | 23 |
| 2.3.1 Temporal profile of the output energy | 23 |
| 2.3.2 Near-field imaging | 24 |
| 2.4 Spatial coherence of the x-ray laser | 26 |
| 2.4.1 Evaluation from the beam divergence | 26 |
| 2.4.2 Characterization using the Young's interferometer | 27 |
| 2.5 Pulse duration | 29 |
| 2.6 Number of coherent photons | 30 |
| References | 31 |
| 3. Time-resolved spectroscopy | 33 |
| 3.1 Outline of the scintillator for EUV region | 33 |
| 3.2 Outline of zinc oxide (ZnO) | 34 |
| 3.3 Measurement of time-resolved spectrum | 35 |
| 3.3.1 Sample | 35 |
| 3.3.2 Experimental setup | 35 |
| 3.3.3 Results and discussion | 39 |
| References | 43 |
| 4. Conclusion | 46 |
| Acknowledgements | 47 |

1. 序論

1.1 X線レーザーの概略

1.1.1 X線レーザー研究の始まり

レーザーは、媒質中に反転分布が生成し、その中を通る自然放出光やシード光が誘導放出により増幅する現象である。X線レーザーはこれをEUV（極端紫外光）からX線の波長領域で起こしたものである。現在レーザー発振が確認されているのはEUV領域のみであり、従ってEUVレーザーと呼ぶのが正確であろうが、光源開発を行っているプラズマ工学や自由電子レーザーの分野で軟X線レーザー又は単にX線レーザーと称されるのが一般的であるため、本論文でもX線レーザーと呼ぶことにする。

X線レーザーは1964年に当時のソビエト連邦の研究者によって水素プラズマを反転分布媒質として用いることが提案され[1]、以後、プラズマ物理学の分野で実証が試みられてきた。1985年には米国の二つのグループにより、波長20 nm付近での明瞭な誘導増幅の実験結果が報告された[2, 3]。このうちローレンスリバモア国立研究所は、レーザー核融合に用いる大規模レーザーを金属表面に線状に集光して高密度の多価イオンプラズマを生成し、プラズマ中での電子衝突励起により反転分布を生成する方式を採用している。この方式はその後、ニッケル様イオンを用いることでより短波長での発振実験が行われ、発振の高効率化、ビームパターンの高品質化などの詳細な研究を経て[4-8]、波長4 nm付近での実証にも成功している[9, 10]。

1.1.2 過渡利得電子衝突励起X線レーザー

過渡利得方式は、電子衝突励起方式の一方式として1989年にソビエトのグループにより提案された[11]。これは、ナノ秒程度の時間幅のレーザーパルスでプラズマを生成した後、ピコ秒程度の追加熱パルスで電子衝突励起を促進し過渡的に利得を生成する方式で、従来の電子衝突励起方式（準定常方式）で使用されていたキロジュールクラスの大規模レーザーではなく、数十ジュール程度の励起レーザーで高い利得を生成することができる。追加熱にピコ秒のレーザーパルスを使用するため、発振するX線レーザーも十ピコ秒程度のパルス幅が見込める。X線レーザー励起用に適したドライバーとして、Mourou [12] らによって1985年に考案されたチャープパルス増幅法による小型高出力レーザーの技術を用いたネオジウムガラスレーザーが用いられるようになり、1997年にネオン様チタンの3p-3s遷移での発振が報告され[13]、2000年にはアメリカのグループが19 nmで飽和増幅を達成している[14]。その後、短波長化の研究が進められ、波長12 nmまでの領域で飽和増幅に成功した[15-17]。

このように、高輝度X線レーザーの発生自体はほぼ順調に進んでいると言えるが、EUV領域の光に対して高い効率を有する光学素子は現状では十分に世の中に存在するとは言えない。しかしながら、13~14 nm近辺の波長域に関しては、高い反射率（70%程度）を有するモリブデン・シリコンによる多層膜ミラーが確立した技術として存在するため[18]、EUVリソグラフィによる半導体加工用光源の本命として光源開発が盛んであり[19-21]、この波長域でのX線レーザー発振についても詳細な研究がなされている[22-25]。最近では追加熱パルスの入射を工夫して利得生成領域でのエネルギー吸収率を上げることにより、より小型で高繰り返し回のレーザーでのX線レーザー発振が実現しており[26-29]、13 nm付近での定常運転が期待されている。

1.1.3 ダブルターゲットX線レーザー

電子衝突励起X線レーザーは、固体ターゲットに励起レーザーを照射することによって吹き出す高密度のプラズマをレーザー媒質とする。媒質プラズマには吹き出し方向に密度勾配があるため、X線レーザーは媒質中を伝搬している間に屈折の影響を受け、10 mrad程度の広い発散角を持つ[17, 30, 31]。これを補償するために、屈折したX線レーザーを二つ目のターゲットで逆向きに屈折させる[32, 33]、ターゲットの形状を湾曲させる[34-36]等の工夫がなされてきた。

2003年には当時の日本原子力研究所で、20 cm離れた二つのターゲットを用い、それぞれの励起レーザーのタイミングを変えることにより、ビーム発散角が0.2 mradという回折限界に近いX線レーザーの発振に成功した[37, 38]。Figure 1-1に各国研究所で発振したプラズマX線レーザーのビーム発散角を示す[5, 28-34, 37-46]。この研究で発振したX線レーザーが飛躍的に改善したことが分かる。この方式では、一つめの媒質で発生したX線レーザーが、二つめの媒質プラズマ中で密度勾配の緩やかな領域に利得が生成しているタイミングで入射することにより、ほとんど屈折の影響を受けずに増幅されていると考えられている。また、二つのターゲットを離れたことにより、一つめの媒質からのX線レーザーの空間的にコヒーレントな成分のみが二つめの媒質で増幅されており、高い空間コヒーレンスが得られている。この研究については第2章で詳しく説明する。

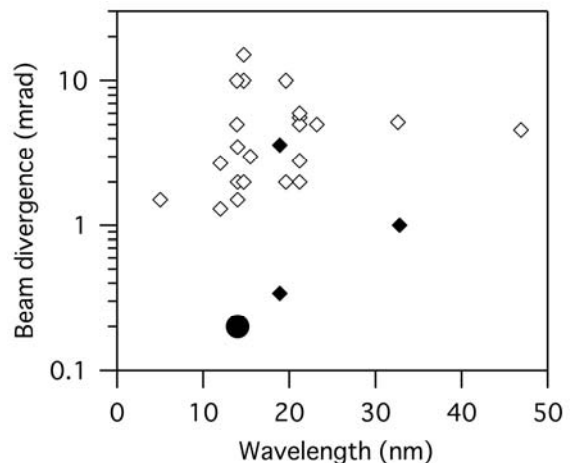


Figure 1-1. 各国研究所で発振したプラズマX線レーザーのビーム発散角[5, 28-34, 37-46]。黒丸が本研究で発振させたX線レーザーである。菱形は他研究による発振で、白抜きが従来方式、黒塗りはシーディングや斜入射励起などの新方式である。

1.1.4 X線レーザーの利用研究

X線レーザー研究は、これまで述べてきたように、発振させることを目的としたものからより利用しやすいものへと改善する方向に変化してきた。前述のように、波長13~14 nm付近では多層膜の技術により反射率が70%に近い直入射ミラーが作成可能であるため、EUVリソグラフィ分野などへの応用が期待されている。電子衝突励起方式のX線レーザーは、ニッケル様銀のプラズマを媒質として用いることによりこの波長領域で高輝度、高コヒーレンスを実現しており、この波長領域での光学素子や検出器の評価など、様々な関連技術の展開が図れる可能性をもっている。実際に、散乱を利用した表面観察や[47, 48]、透過干渉像計測[49, 50]、顕微鏡[51]、ホログラフィー[52]、リソグラフィ[53]などの分野において、X線レーザーは特徴的なEUV光源の一つとして応用範囲を広げつつある。発振実験ではなく、X線レーザーの利用応用をメインとした研究が報告されるようになったのは比較的近年のことであり、まだ大半の応用計測は原理実証の段階であるが、今後、計測技術開発が進められると同時にX線レーザーの高繰り返し運転が可能となり、物性研究や生物研究などの分野に実用的に使用されるようになると期待する。

Table 1-1. 代表的なX線、EUV光源とX線レーザーの基本スペック[38, 54, 55]

| | Synchrotron radiation | | | Laser induced source | | |
|--|-----------------------|------------------|------------------|----------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| | Bending magnet | Undulator | FEL | Plasma point source | Harmonics | X-ray laser |
| Wavelength (nm) | 0.1 ~ 10 | 1 ~ 10 | 0.1 ~ | 0.2 ~ 30 | 7 ~ 100 | 6 ~ 30 |
| Tunability | continuum | tunable | tunable | lines & bands | tunable | discrete lines |
| Band width (%) | | 1 | 0.08 | 0.1 | 1 ~ 0.02 | 0.01 |
| Pulse width (ns) | 0.2 | 0.2 | 10 ⁻⁴ | 2 | 10 ⁻⁴ ~ 10 ⁻¹ | 0.002 ~ 3 |
| Peak brilliance (photons/s/mm ² /mrad ² /0.1%BW) | 10 ¹⁴ | 10 ²⁰ | 10 ³³ | 10 ¹⁸ | 10 ¹⁸ ~ 10 ²⁶ | 10 ²⁵ |
| Average brilliance (photons/s/mm ² /mrad ² /0.1%BW) | 10 ¹² | 10 ¹⁸ | 10 ²⁵ | 10 ¹² | 10 ⁸ ~ 10 ¹⁶ | 10 ¹⁰ ~ 10 ¹⁶ |

1.2 他のEUV光源との比較

EUV (極端紫外光) とは、空気による吸収が強い 200 nm から 0.2 nm 程度の波長領域の光である。中でも物質の垂直入射での反射率がほとんどゼロになる波長 30 nm 以下の範囲 (軟X線) のみを指す場合もある。Table 1-1 に代表的なX線、EUV光源とX線レーザーの基本スペックを示す[38, 54, 55]。シンクロトロン放射光は、磁場により電子ビームの軌道を変えることにより放出される光を取り出したもので、電子ビームをマルチバンチ化することにより高繰り返しを実現している。放射光は連続光であるため、通常は分光器により単色化して用いる。従って、光源としては波長可変光源である。放射光施設の建設により、従来はX線管球を用いて行われていたX線、EUV領域の研究は飛躍的に進んだ。現在は、磁石を連ねて電子ビームを蛇行させ連続的に放射光を発生させてパルス増幅するアンジュレータを備えたものが主流である。

自由電子レーザー (FEL) は放射光の応用で、共振器中に増幅器としてアンジュレータを置いたもので、電子ビームの軌道放射を誘導的に起こすことによりレーザー発振する。現在ヨーロッパ、アメリカ、日本などで建設中であり、コヒーレンス度やパルスあたり光子数などのシンクロトロン放射光の弱点をカバーする光源として期待されている。アンジュレータ磁場または電子ビームのエネルギーを変えることにより波長を変えることも可能である。ただし、リングにビームラインを増設すれば同時に多数の実験を共存させられるシンクロトロン放射光と比べ、若干使い勝手が低下する懸念がある。

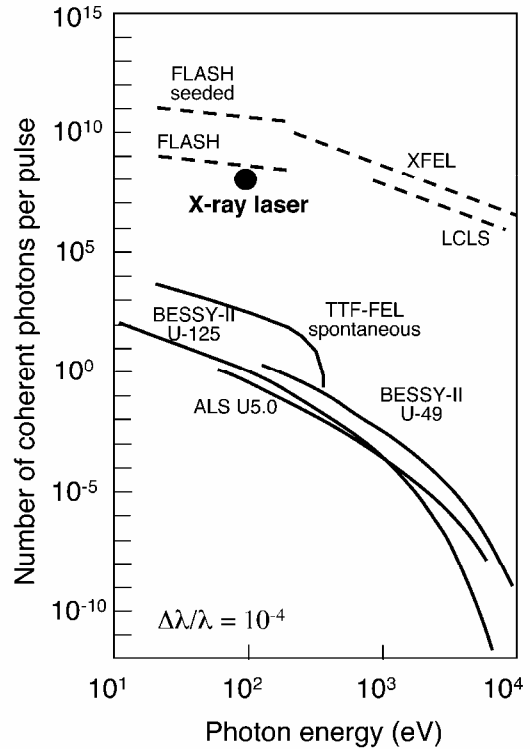


Figure 1-2. X線レーザーと放射光のコヒーレント光子数の比較[37, 55]。黒丸が本研究で発振させたX線レーザーである。点線で示された自由電子レーザーのデータは建設中のデザインスペックである。

一方、レーザー誘起によるEUV光源は、放射光光源と比べて小型、低コストで実験室レベルの運用が可能な光源として発展し、特に小型・高効率化に重点を置いて開発が進められてきた。形態としては、プラズマ点光源、高次高調波、X線レーザーなどが挙げられる。プラズマ点光源は、物質にレーザーを点集光してプラズマを発生させ、プラズマの自発光を用いるもので、励起レーザーの集光能力により光源サイズを小さくして理想的な点光源に近づけることができるので、発散光ながらある程度の空間コヒーレンスが見込める。このことは、十分な能力を持った光学系を用いれば励起レーザーの波長程度まで集光することができることを意味する。また、最近の研究では励起レーザーからEUV光への変換効率が数パーセントに達しており、EUVリソグラフィ用光源の本命として精力的に研究されている[19, 20]。

高次高調波は可視・近赤外レーザーを用いて非線形効果を起こしたもので、基本波の性質を残すため時間・空間コヒーレンスが高いことが期待できる。理化学研究所のグループではチタンサファイアレーザーの27次高調波(29.6 nm)で0.3 μJ の出力を得ており[56]、59次(13.5 nm)でも25 nJ程度の出力が得られている[57]。

過渡利得電子衝突励起のX線レーザーはこれらの光源に対し、シングルショットレーザーで繰り返し回数は少ないが、短波長で高出力を得ることができる。波長13.9 nmでパルスあたり20 μJ の出力を得ており、空間コヒーレンスを改善したダブルターゲットX線レーザーではパルスあたり 10^8 個のコヒーレント光子数(ボース縮退度)を得ている。Figure 1-2に示したように、X線レーザーは既存の放射光光源と比べてはるかに高いコヒーレント光子数を有しており、自由電子レーザーが未だ建設中の現状ではこれに変わる光源は無い。従って、パルスあたりの光子数が必要とされる計測、時間的にゆらぎのある系の瞬間撮影や非線形効果などの計測には、X線レーザーを用いるのが最適といえる。

1.3 この論文の目的

本研究は、従来式X線レーザーの問題点の一つであったビーム発散角の問題を解決し、ビームラインの構築が可能なレベルのX線レーザーを発振させると共に、その利用研究の例として、X線レーザー励起による発光計測を実用化することを目的とする。X線レーザーは可視光よりも波長が短いため高空間分解能が期待できることから、イメージング分野では利用研究が進んでいる。しかしながら、X線レーザーを励起光源として用いた発光計測の例は、1996年にフランスのグループが波長21.2 nmのX線レーザーを励起光源としてヨウ化セシウムの可視域での発光計測を行い、強励起の場合に発光強度がリニアに増加しないことを見いだした研究が代表的なもので[58]、それに続く研究はあまりない。発光の時間計測を行った研究も報告がない。一方で、EUVの波長領域は真空中で取り扱う必要性や高輝度光源の不在から、分光計測や時間分解計測を行うことが難しく、可視・紫外や硬X線励起の実験と比べると研究件数は少ない。X線レーザーは波長可変ではないものの、パルスあたりの光子数では放射光光源より数桁高い輝度を持っており、これを用いることで発光の時間分解分光計測などが従来よりも簡易になることが期待される。高強度EUV励起では可視・紫外域の発光からEUV領域での発光まで、また2光子励起などの非線形現象などの計測も考えられるが、この研究では発光計測の第一段階として固体の紫外発光の時間分解分光計測を行う。

発光計測の対象物質としては、X線レーザーのEUVリソグラフィ分野への貢献が期待されていることから、EUV用のシンチレーション物質とした。EUVリソグラフィの要素技術は、EUV光源開発に始まり、マスク、投影光学系、レジスト、真空中駆動のステージ類、またこれ

らをアライメントする技術や評価するための検出系など、多岐にわたる[59]。中でもリソグラフィ用投影光学系などのアライメント、評価などに必要不可欠な素子の一つとして、高効率、高速、大面積のEUV用シンチレーターが挙げられる。本研究では、シンチレーターの候補物質である酸化亜鉛単結晶の紫外領域での時間分解発光計測を行い、EUV用シンチレーション物質としての評価を行うことにより、X線レーザーが実用的な発光計測に使用できることを示す。発光計測については第3章で説明する。

参考文献

- [1] L. I. Gudzenko, L. A. Shelepin, “Negative absorption in a nonequilibrium hydrogen plasma,” *Sov. Phys. JETP* **18**, pp.998-1000 (1964).
- [2] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Meddecki, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone, T. A. Weaver, “Demonstration of a soft x-ray amplifier,” *Phys. Rev. Lett.* **54**, pp.110-113 (1985).
- [3] S. Suckewer, C. H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane, D. Voorhees, “Amplification of stimulated soft-x-ray emission in a confined plasma column,” *Phys. Rev. Lett.* **55**, pp.1753-1756 (1985).
- [4] R. C. Elton, *X-ray lasers* (Academic Press, San Diego, ISBN 0-12-238080-0, 1990).
- [5] B. Rus, A. Carillon, P. Dhez, P. Jaeglé, G. Jamelot, A. Klisnick, M. Nantel, P. Zeitoun, “Efficient, high-brightness soft-x-ray laser at 21.2 nm,” *Phys. Rev. A* **55**, pp.3858-3873 (1997).
- [6] J. Zhang, P. J. Warwick, E. Wolfrum, M. H. Key, C. Danson, A. Demir, S. Healy, D. H. Kalantar, N. S. Kim, C. L. S. Lewis, J. Lin, A. G. MacPhee, D. Neely, J. Nilsen, G. J. Pert, R. Smith, G. J. Tallents, J. S. Wark, “Saturated output of a Ge XXIII x-ray laser at 19.6 nm,” *Phys. Rev. A* **54**, p.R4653 (1996).
- [7] S. Sebban, H. Daido, N. Sakaya, Y. Kato, K. Murai, H. Tang, Y. Gu, G. Huang, S. Wang, A. Klisnick, Ph. Zeitoun, F. Koike, H. Takenaka, “Full characterization of a high-gain saturated x-ray laser at 13.9 nm,” *Phys. Rev. A* **61**, p.043810 (2000).
- [8] H. Daido, “Review of soft x-ray laser researches and development,” *Rep. Prog. Phys.* **65**, pp.1513-1576 (2002).
- [9] B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. J. Fields, C. J. Keane, J. A. Koch, R. A. London, D. L. Matthews, S. Maxon, S. Mrowka, A. L. Osterheld, J. H. Scofield, G. Shimkaveg, J. E. Trebes, R. S. Walling, “Short wavelength x-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory,” *Phys. Fluids B* **4**, pp.2326-2337 (1992).
- [10] H. Daido, S. Ninomiya, M. Takagi, Y. Kato, F. Koike, “Wavelength measurement of the Ni-like soft-x-ray lasing lines and comparison to the atomic-physics calculation,” *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, pp.296-300 (1999).
- [11] Yu. V. Afanas’ev, and V. N. Shlyaptsev, “Formation of a population inversion of transitions in Ne-like ions in steady-state and transient plasmas,” *Sov. J. Quantum Electron* **19**, pp.1606-1612 (1989).
- [12] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Opt. Commun.* **56**, pp.219-221 (1985).
- [13] P. V. Nickles, V. N. Shlyaptsev, M. Kalachnikov, M. Schnürer, I. Will, W. Sandner, “Short pulse x-ray laser at 32.6 nm based on transient gain in Ne-like titanium,” *Phys. Rev. Lett.* **78**, p.2748 (1997).
- [14] Y. Li, J. Dunn, J. Nilsen, T. W. Barbee Jr., A. L. Osterheld, V. N. Shlyaptsev, “Saturated tabletop x-ray

- laser system at 19 nm,” *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, pp.1098-1101 (2000).
- [15] A. Klisnick, P. Zeitoun, D. Ros, A. Carillon, P. Fourcade, S. Hubert, G. Jamelot, C. L. S. Lewis, A. G. Mac Phee, R. M. N. O’Rourke, R. Keenan, P. V. Nickles, K. Janulewicz, M. Kalashnikov, J. Warwick, J.-C. Chanteloup, A. Migus, E. Salmon, C. Sauteret, J. R. Zou, “Transient pumping of a Ni-like Ag x-ray laser with a subpicosecond pump pulse in a traveling-wave irradiation geometry,” *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, pp.1093-1097 (2000).
- [16] J. Dunn, Y. Li, A. L. Osterheld, J. Nilsen, J. R. Hunter, V. N. Shlyaptsev, “Gain saturation regime for laser-driven tabletop, transient Ni-like ion x-ray lasers,” *Phys. Rev. Lett.* **84**, pp.4834-4837 (2000).
- [17] T. Kawachi, M. Kado, M. Tanaka, A. Sasaki, N. Hasegawa, A. V. Kilpio, S. Namba, K. Nagashima, P. Lu, K. Takahashi, H. Tang, R. Tai, M. Kishimoto, M. Koike, H. Daido, Y. Kato, “Gain saturation of nickel-like silver and tin x-ray lasers by use of a tabletop pumping laser system,” *Phys. Rev. A* **66**, pp.033815 (2002).
- [18] 波岡武、山下広順、『X線結像光学』(培風館、ISBN 4-563-02248-9 C3042, 1999).
- [19] Y. Shimada, H. Nishimura, M. Nakai, K. Hashimoto, M. Yamaura, Y. Tao, K. Shigemori, T. Okuno, K. Nishihara, T. Kawamura, A. Sunahara, T. Nishikawa, A. Sasaki, K. Nagai, T. Norimatsu, S. Fujioka, S. Uchida, N. Miyanaga, Y. Izawa, C. Yamanaka, “Characterization of extreme ultraviolet emission from laser-produced spherical tin plasma generated with multiple laser beams,” *Appl. Phys. Lett.* **86**, p.051501 (2005).
- [20] S. Fujioka, H. Nishimura, K. Nishihara, A. Sasaki, A. Sunahara, T. Okuno, N. Ueda, T. Ando, Y. Tao, Y. Shimada, K. Hashimoto, M. Yamaura, K. Shigemori, M. Nakai, K. Nagai, T. Norimatsu, T. Nishikawa, N. Miyanaga, Y. Izawa, K. Mima, “Opacity effect on extreme ultraviolet radiation from laser-produced tin plasmas,” *Phys. Rev. Lett.* **95**, p.235004 (2005).
- [21] C. Pagani, E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, M. V. Yurkov, “Design considerations of 10 kW-scale extreme ultraviolet SASE FEL for lithography,” *Nucl. Instr. and Meth. A* **463**, pp.9-25 (2001).
- [22] R. Tommasini, K. Eidmann, T. Kawachi, E. E. Fill, “Preplasma conditions for operation of 10-Hz subjoule femtosecond-laser-pumped nickel-like x-ray lasers,” *Phys. Rev. E* **69**, p.066404 (2004).
- [23] J. Kuba, R. F. Smith, D. Benredjem, C. Möller, L. Upcraft, R. King, A. Klisnick, L. Drška, G. J. Pert, J. C. Gauthier, “Modeling of the transient nickellike silver x-ray laser,” *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, pp.208-214 (2003).
- [24] K. A. Janulewicz, P. V. Nickles, R. E. King, G. J. Pert, “Influence of pump pulse structure on a transient collisionally pumped Ni-like Ag x-ray laser,” *Phys. Rev. A* **70**, p.013804 (2004).
- [25] A. Klisnick, O. Guilbaud, D. Ros, K. Cassou, S. Kazamias, G. Jamelot, J.-C. Lagron, D. Joyeux, D. Phalippou, Y. Lechantre, M. Edwards, P. Mistry, G. J. Tallents, “Experimental study of the temporal and spatial profile of the 13.9 nm transient X-ray laser,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **99**, pp.370-380 (2006).
- [26] Y. Wang, M. A. Larotonda, B. M. Luther, D. Alessi, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, J. J. Rocca, “Demonstration of high-repetition-rate tabletop soft-x-ray lasers with saturated output at wavelength down to 13.9 nm and gain down to 10.9 nm,” *Phys. Rev. A* **72**, p.053807 (2005).
- [27] R. Keenan, J. Dunn, V. N. Shlyaptsev, R. F. Smith, P. K. Patel, D. F. Price, “Efficient pumping schemes for high average brightness collisional x-ray lasers,” *Proc. SPIE* **5197**, pp.213-220 (2003).
- [28] R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith, V. N. Shlyaptsev, “High-repetition-rate grazing-incidence pumped x-ray laser operated at 18.9 nm,” *Phys. Rev. Lett.* **94**, p.103901 (2005)

- [29] T. Ozaki, R. A. Ganeev, A. Ishizawa, T. Kanai, H. Kuroda, "Highly directive 18.9 nm nickel-like molybdenum x-ray laser operating at 150 mJ pump energy," *Phys. Rev. Lett.* **89**, p.253902 (2002).
- [30] J. Dunn, R. F. Smith, J. Nilsen, J. R. Hunter, T. W. Barbee Jr, V. N. Shlyaptsev, J. Filevich, J. J. Rocca, M. C. Marconi, H. Fiedorowicz, A. Bartnik, "Recent x-ray laser experiments on the COMET facility," *Proc. SPIE*, **4505**, pp.62-74 (2001).
- [31] A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, A. Carillon, G. Jamelot, R. Smith, F. Strati, G. J. Tallents, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, P. Nickles, K. A. Janulewicz, F. Bortolotto, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A. G. MacPhee, C. Chenais-Popovics, J. C. Chanteloup, D. Joyeux, D. Phalippou, H. Daido, H. Tang, "Temporal and far-field characterization of the transient Ni-like Ag X-ray laser under traveling-wave irradiation," *Proc. SPIE* **4505**, pp.75-84 (2001).
- [32] C. L. S. Lewis, D. Neely, D. M. O'Neill, J. O. Uhomobhi, M. H. Key, Y. Al Hadithi, G. J. Tallents, S. A. Ramsden, "An injector/amplifier double target configuration for the Ne-like Ge x-ray laser scheme," *Opt. Comm.* **91**, pp.71-76 (1992).
- [33] H. Daido, S. Sebban, N. Sakaya, Y. Tohyama, T. Norimatsu, K. Mima, Y. Kato, S. Wang, Y. Gu, G. Huang, H. Tang, K. Murai, R. Butzbach, I. Uschmann, M. Vollbrecht, E. Förster, "Experimental characterization of short-wavelength Ni-like soft-x-ray lasing toward the water window," *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, pp.2295-2299 (1999).
- [34] H. Daido, R. Kodama, K. Murai, G. Yuan, M. Takagi, Y. Kato, I. W. Choi, C. H. Nam, "Significant improvement in the efficiency and brightness of the $J = 0-1$ 19.6-nm line of the germanium laser by use of double-pulse pumping," *Opt. Lett.* **20**, pp.61-63 (1995).
- [35] R. Kodama, D. Neely, Y. Kato, H. Daido, K. Murai, G. Yuan, A. MacPhee, C. L. S. Lewis, "Generation of small-divergence soft x-ray laser by plasma waveguiding with a curved target," *Phys. Rev. Lett.* **73**, pp.3215-3218 (1994).
- [36] R. Tommasini, F. Loewenthal, J. E. Balmer, "Soft-x-ray lasing and saturation in nickellike silver at pump energies below 30 J," *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, pp.1664-1667 (1999).
- [37] M. Tanaka, M. Nishikino, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Kado, M. Kishimoto, K. Nagashima, Y. Kato, "X-ray laser beam with diffraction-limited divergence generated with two gain media," *Opt. Lett.* **28**, pp.1680-1682 (2003).
- [38] M. Nishikino, M. Tanaka, K. Nagashima, M. Kishimoto, M. Kado, T. Kawachi, K. Sukegawa, Y. Ochi, N. Hasegawa, Y. Kato, "Demonstration of a soft-x-ray laser at 13.9 nm with full spatial coherence," *Phys. Rev. A* **68**, p.061802(R) (2003).
- [39] P. Lu, Y. Li, E. Fill, "Angular energy distribution and temporal evolution of pulses emitted from low-Z neonlike $J = 0-1$ x-ray lasers," *Phys. Rev. A* **54**, pp.5193-5200 (1996).
- [40] T. Mocek, B. Rus, A. R. Präg, M. Kozlová, "Beam properties of a deeply saturated, half-cavity zinc soft-x-ray laser," *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, pp.1386-1391 (2003).
- [41] J. Zhang, A. G. MacPhee, J. Nilsen, J. Lin, T. W. Barbee Jr, C. Danson, M. H. Key, C. L. S. Lewis, D. Neely, R. M. N. O'Rourke, G. J. Pert, R. Smith, G. J. Tallents, J. S. Wark, E. Wolfrum, "Demonstration of saturation in a Ni-like Ag x-ray laser at 14 nm," *Phys. Rev. Lett.* **78**, pp.3856-3859 (1997).
- [42] J. E. Balmer, R. Tommasini, F. Löwenthal, "Saturated lasing in neon- and nickel-like ions at pump energies below 30 J," *Proc. SPIE* **3776**, pp.66-74 (1999).
- [43] J. E. Balmer, M. Braud, C. Siegel, "Towards full characterization of nickel-like soft-x-ray lasers," *Proc. SPIE* **4505**, pp.93-99 (2001).

- [44] N. Yamaguchi, T. Hara, T. Ohchi, C. Fujikawa, T. Sata, “Demonstration of x-ray amplification in an x-ray laser cavity pumped by a pulse-train yttrium aluminum garnet laser,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **38**, pp.5114-5116 (1999).
- [45] C. D. Macchietto, B. R. Benware, J. J. Rocca, “Generation of millijoule-level soft-x-ray laser pulses at a 4-Hz repetition rate in a highly saturated tabletop capillary discharge amplifier,” *Opt. Lett.* **24**, pp.1115-1117 (1999).
- [46] Ph. Zeitoun, G. Faive, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, C. Valentin, “A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam,” *Nature* **431**, pp.426-429 (2004).
- [47] R. Z. Tai, K. Namikawa, M. Kishimoto, M. Tanaka, K. Sukegawa, N. Hasegawa, T. Kawachi, M. Kado, P. Lu, K. Nagashima, H. Daido, H. Maruyama, A. Sawada, M. Ando, Y. Kato, “Picosecond snapshot of the speckles from ferroelectric BaTiO₃ by means of x-ray lasers,” *Phys. Rev. Lett.* **89**, p.257602 (2002).
- [48] R. Z. Tai, K. Namikawa, A. Sawada, M. Kishimoto, M. Tanaka, P. Lu, K. Nagashima, H. Maruyama, M. Ando, “Picosecond view of microscopic-scale polarization clusters in paraelectric BaTiO₃,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, p.087601 (2004).
- [49] J. Filevich, J. J. Rocca, E. Jankowska, E. C. Hammarsten, K. Kanizay, M. C. Marconi, S. J. Moon, V. N. Shlyaptsev, “Two-dimensional effects in laser-created plasmas measured with soft-x-ray laser interferometry,” *Phys. Rev. E* **67**, p.056409 (2003)
- [50] H. Tang, O. Guilbaud, G. Jamelot, D. Ros, A. Klisnick, D. Joyeux, D. Phalippou, M. Kado, M. Nishikino, M. Kishimoto, K. Sukegawa, M. Ishino, K. Nagashima, H. Daido, “Diagnostics of laser-induced plasma with soft x-ray (13.9 nm) bi-mirror interference microscopy,” *Appl. Phys. B* **78**, pp.975-977 (2004).
- [51] M. Kishimoto, M. Tanaka, R. Tai, K. Sukegawa, M. Kado, N. Hasegawa, H. Tang, T. Kawachi, P. Lu, K. Nagashima, H. Daido, Y. Kato, K. Nagai, H. Takenaka, “Development of soft x-ray microscopy system using x-ray laser in JAERI Kansai,” *J. Phys. IV France* **104**, pp.141-143 (2003).
- [52] P. W. Wachulak, R. A. Bartels, M. C. Marconi, C. S. Menoni, J. J. Rocca, “Sub 400 nm spatial resolution extreme ultraviolet holography with a table top laser,” *Optics Express* **14**, pp.9636-9642 (2006).
- [53] P. W. Wachulak, M. G. Capeluto, M. C. Marconi, C. S. Menoni, J. J. Rocca, “Patterning of nano-scale arrays by table-top extreme ultraviolet laser interferometric lithography,” *Optics Express* **15**, pp.3465-3469 (2007).
- [54] 富江敏尚、「高エネルギー密度プラズマからの輻射」、*J. Plasma Fusion Res.* **75**, supplement-II, pp.59-60 (1999).
- [55] *The European X-ray Free Electron Laser Technical Design Report*, (ISBN 978-3-935702-17-1, 2007).
- [56] E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obata, K. Midorikawa, “Generation of highly coherent submicrojoule soft x rays by high-order harmonics,” *Phys. Rev. A* **66**, p.021802(R) (2002)
- [57] E. Takahashi, Y. Nabekawa, K. Midorikawa, “Low-divergence coherent soft x-ray source at 13 nm by high-order harmonics,” *Appl. Phys. Lett.* **84**, pp.4-6 (2004).
- [58] P. Jaeglé, S. Sebban, A. Carillon, G. Jamelot, A. Klisnick, P. Zeitoun, B. Rus, M. Nantel, F. Albert, D. Ros, “Ultraviolet luminescence of CsI and CsCl excited by soft x-ray laser,” *J. Appl. Phys.* **81**, pp.2406-2409 (1997).
- [59] 村上勝彦、岡崎信次、「EUVリソグラフィと露光装置」、*J. Plasma Fusion Res.* **79**, pp.221-225 (2003).

2. X線レーザーの発生

2.1 原理

2.1.1 X線レーザー発振の方式

本研究で使用しているX線レーザーは、ニッケル様銀プラズマを用いた過渡利得電子衝突励起方式によって発振させている。Figure 2-1 にスキームを示す。ニッケル様イオンとは、束縛電子数がニッケル原子と同数の 28 個を残した多価イオンのことである。銀（原子番号 47）の場合、19 価に相当する。ニッケル様イオンは 3d 軌道の閉殻構造をとっているため、他のイオン種と比べて安定であり、プラズマ内で高い割合を実現しやすい。同様の理由から、ネオン様イオンもX線レーザー発振に多く用いられている。ニッケル様銀X線レーザーとは、固体の銀にレーザーを照射することによって高密度のプラズマを生成し、その中に含まれる銀のニッケル様イオンを反転分布物質として使用したレーザーである。

電子衝突方式とは、プラズマをレーザー光で加熱することにより内部の自由電子がイオンと衝突する頻度を上げ、多価イオン化、励起状態生成を促進する方式である。自由電子による励起では光学的選択則で禁制となっている遷移も起こるため、様々な励起状態が生成する。多くの励起種は短時間で放射失活するが、d-d 遷移など基底状態に対して禁制遷移の励起種は長い寿命を持つため、エネルギーの低い励起状態よりも高い励起状態の方が分布が多くなる反転分布が生成する。例えばニッケル様銀の場合、4p 励起状態が容易に放射失活するのに対し 4d 励起状態は基底状態に対し禁制であるため、4p 励起状態よりも 4d 励起状態の密度が高くなる。この反転分布を利用して誘導放出を起こしたものがX線レーザーである。ニッケル様銀では、発振に寄与するのは $3d^9 4d^1 S_0 \rightarrow 3d^9 4p^1 P_1$ の遷移で、波長は 13.9 nm（光子エネルギーで 89 eV）付近である[1]。

電子衝突励起X線レーザーでは、高出力レーザーを用いることによりレーザーの持続時間程度の準定常的なレーザー発振が可能であるが、プラズマ生成用と加熱用のパルスに分け、加熱パルス为数ピコ秒程度に短くすることによりレーザー装置を小型化することができる。プラズマ生成用のプリパルスは、(1) プラズマを生成することで、メインパルスの吸収効率を上げる。(2) メインパルスの吸収密度領域（波長 1 μm のレーザー光の場合の臨界密度は 10^{27} m^{-3} ）のスケール

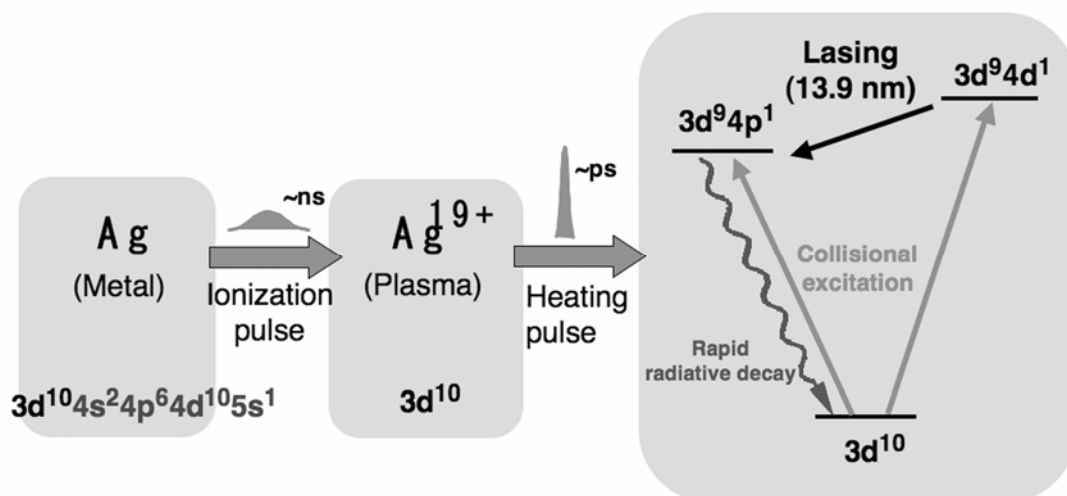


Figure 2-1. ニッケル様銀X線レーザーの発振スキーム

長を大きくすることで、加熱領域（利得領域）中の密度勾配によるX線の屈折を低減させることと同時に、利得領域自体を大きくする役目を持つ。この方式は、利得が時定数十ピコ秒程度で過渡的に生成するために、過渡利得方式と呼ばれている。

2.1.2 空間コヒーレンスの改善

過渡利得方式によるX線レーザーは、数十ジュールクラスのレーザーによる励起で、短パルスで高輝度のEUV光を得ることのできる光源であるが、空間コヒーレンスが不十分でビーム発散角が10 mrad程度と大きいために[2-5]、利用実験に供するには空間的制約が大きく、また波長や光量から期待される性能を発揮していなかった。以下に、ビーム発散角が大きくなる2つの理由と改善方法について述べる。

1つ目の理由としては、過渡利得方式X線レーザーは利得が大きく、短い媒質長で飽和増幅に達するため、結果的にフレネル数が大きくなるということが挙げられる。これは、距離を離れた2つの利得媒質で増幅することにより、媒質長を実効的に長くすることで改善できる。ビームパターンがガウス関数で表すことのできるシングルモードのレーザーの場合、回折限界角 θ は次式のように近似できる。

$$\theta \approx \frac{\lambda}{d} \quad (2.1)$$

λ はX線レーザーの波長、 d は光源のサイズである。一方で、レーザー媒質の大きさから幾何学的に決まる発散角は媒質の始端から終端までの距離 L を使って、

$$\theta' \approx \frac{d}{L} \quad (2.2)$$

と表すことができる。X線レーザーの波長は13.9 nm、媒質径は拡大光学系を用いた近視野像計測により50 μm 程度と求まっているので[6-8]、媒質長が18 cm以上あれば幾何学的に決まる発散角がガウスビームの発散角と同程度になる。過渡利得X線レーザーの場合、利得係数が大きく1 cm以内で飽和増幅に達するので、全長に渡って利得媒質が存在する必要はなく2つの媒質を18 cmの間隔で並べるだけでよい。

X線レーザーのビーム発散角が大きくなる2つ目の理由は、利得媒質プラズマの密度勾配によりX線ビームが屈折して広がるということである。一般的に電子衝突励起方式のX線レーザー媒質は固体にレーザー照射して生成する高密度プラズマを使用する。反転分布が生成するにはイオン密度が高く高温である必要がある。プラズマが時間と共に膨張する一方で、加熱用のレーザーの出力は限られているために、このような条件は固体表面近傍の電子密度勾配の急峻な領域に生成しやすい。このため、X線レーザーは利得媒質中を伝搬する間に密度勾配の影響を受け屈折する。この影響は、密度勾配の緩やかな媒質に利得を作ることにより抑えることができる。最近の衝突・輻射モデルと組み合わせた流体力学シミュレーションでは、過渡利得方式X線レーザーの利得領域のピーク位置は時間とともに移動するという結果が得られている[9-11]。利得領域がプラズマの密度勾配が緩やかな領域に生成しているタイミングでシード光を入れて増幅させれば、屈折の影響の抑えられたX線レーザーを発生させることが可能である。

本研究では、2つの利得媒質を用いてX線レーザーの増幅を行うダブルターゲット増幅により、過渡利得方式のニッケル様銀X線レーザーのビーム発散角を改善することに成功した[12-14]。この実験では、2つのターゲット上にそれぞれ利得媒質プラズマを作り、1つめの媒質で発生したX線レーザーの一部を、プラズマ密度勾配の低い領域に利得を生成した2つめの媒質で増幅した。

2.2に増幅実験の詳細について説明する。

2.2 ダブルターゲット増幅実験

2.2.1 装置

X線レーザーの利得媒質プラズマは、ピコ秒ガラスレーザーを銀のターゲット上に線集光させて生成する。Figure 2-2 に励起用ガラスレーザーの模式図を示す。このレーザーシステムはチャープパルス増幅 (CPA) 方式を採用しており、チタンサファイア発振器の出力をパルスストレッチし、再生増幅器又は光パラメトリック増幅により数ミリジュール程度まで、更にネオジウムドープガラスの多段増幅器により 20 J 程度まで増幅した後、パルスコンプレッサーで数ピコ秒程度のパルス幅に圧縮することにより、短パルスで高輝度の出力を得る。波長はネオジウムガラスの特性により 1053 nm である。ガラス増幅器の前にビームスプリッター、追加のパルスストレッチャー、遅延光路を配置することにより、プラズマ生成用のプリパルスと利得生成用のメインパルスと同軸上に作っている。ビームラインは 2 系統あり、それぞれ第 1 媒質、第 2 媒質の生成に用いられる。それぞれ 2 パルスから成る励起レーザーを銀のターゲット上に線集光させて横長のプラズマを生成することにより、X線レーザー利得媒質としている。励起レーザーシステムの構成については文献 15、ニッケル様銀 X線レーザー発振の詳細については文献 9 に詳しい。

Figure 2-3 にダブルターゲット X線レーザーの発生部と計測系の概略を示す。利得媒質プラズマは、ピコ秒ガラスレーザーをターゲット上に $6 \text{ mm} \times 20 \text{ }\mu\text{m}$ に線集光させて銀を加熱することにより発生させる。線集光の大きさは、スラブのチタンに実際に励起レーザーを照射し、ついた傷跡から見積もっている。Figure 2-4 に示したのは、チタンターゲットの顕微鏡像である。X線レーザー発振時のターゲットには、平面精度を出すためにスライドガラスに $2 \text{ }\mu\text{m}$ の銀を蒸着したものをを用いている。加熱レーザーはパルス幅 300 ps のプリパルスと、その 600 ps 後に続く追加加熱パルスの 2 つのパルスにより構成されている。過渡利得方式では、追加加熱パルスは、第 1 ターゲット用がパルス幅 4 ps で進行波励起になっており、第 2 ターゲット用はパルス幅 12 ps で進行波励起ではない。2 つのターゲットの間隔は 20 cm である。第 1 媒質で発生したシード X線レーザーが第 2 媒質に入射するタイミングは、第 1 ターゲットに照射する加熱レーザーの光路に設置した遅延光学系を用いて変化させた。

ダブルターゲット X線レーザーは、間隔を離れた 2 つの利得媒質を並べることで擬似的に媒質を長くしているため、2 つの利得媒質が同一直線上に水平に並んでいる必要がある。Figure 2-5 にターゲットと線集光の位置調整の要求精度を図解する。第 1 媒質の回転角のずれは、第 1 媒質の回転角がずれた場合にも第 2 媒質にシード X線が入射され得る値と考えると、ターゲット間隔 20 cm、第 1 媒質からのシード X線レーザーの発散角を 6 mrad としたときに、 $\pm 3 \text{ mrad}$ までが許容値である。一方、第 2 媒質の回転角は、シード光の軸に対して利得媒質の長手方向が外れない限界値として、利得媒質の大きさ $30 \text{ }\mu\text{m} \times 6 \text{ mm}$ から、 $\pm 5 \text{ mrad}$ まで許容と考えることができる。これらの値は、ターゲットの設置精度および線集光の調整精度の両方に要求される。並進位置については、 $\pm 600 \text{ }\mu\text{m}$ の範囲内であればターゲットの位置関係のずれがシード X線レーザーの発散角の範囲内に入る。並進のずれにより第 2 ターゲットの回転角が光軸に対してずれる影響はもっと小さい。線集光の品質はターゲット位置のずれが $\pm 200 \text{ }\mu\text{m}$ を超えると崩れるので、並進の精度はこちらの方で限界が決まる。その結果、ターゲットのアライメント精度は回転方向に $\pm 3 \text{ mrad}$ 、並進方向に $\pm 200 \text{ }\mu\text{m}$ 程度に収めれば第 2 媒質での増幅は行われることになる。一方で、ターゲットは励起レーザー照射により著しく損傷するのでショットごとにずらして新しい面を出す必要があるが、得られる X線レーザービームのポインティング安定性が回折限界の発散角 0.2 mrad 以内であることが望ましいと考えると、ターゲットの並進位置の再現性は $10 \text{ }\mu\text{m}$ 程度に収まっていなければ

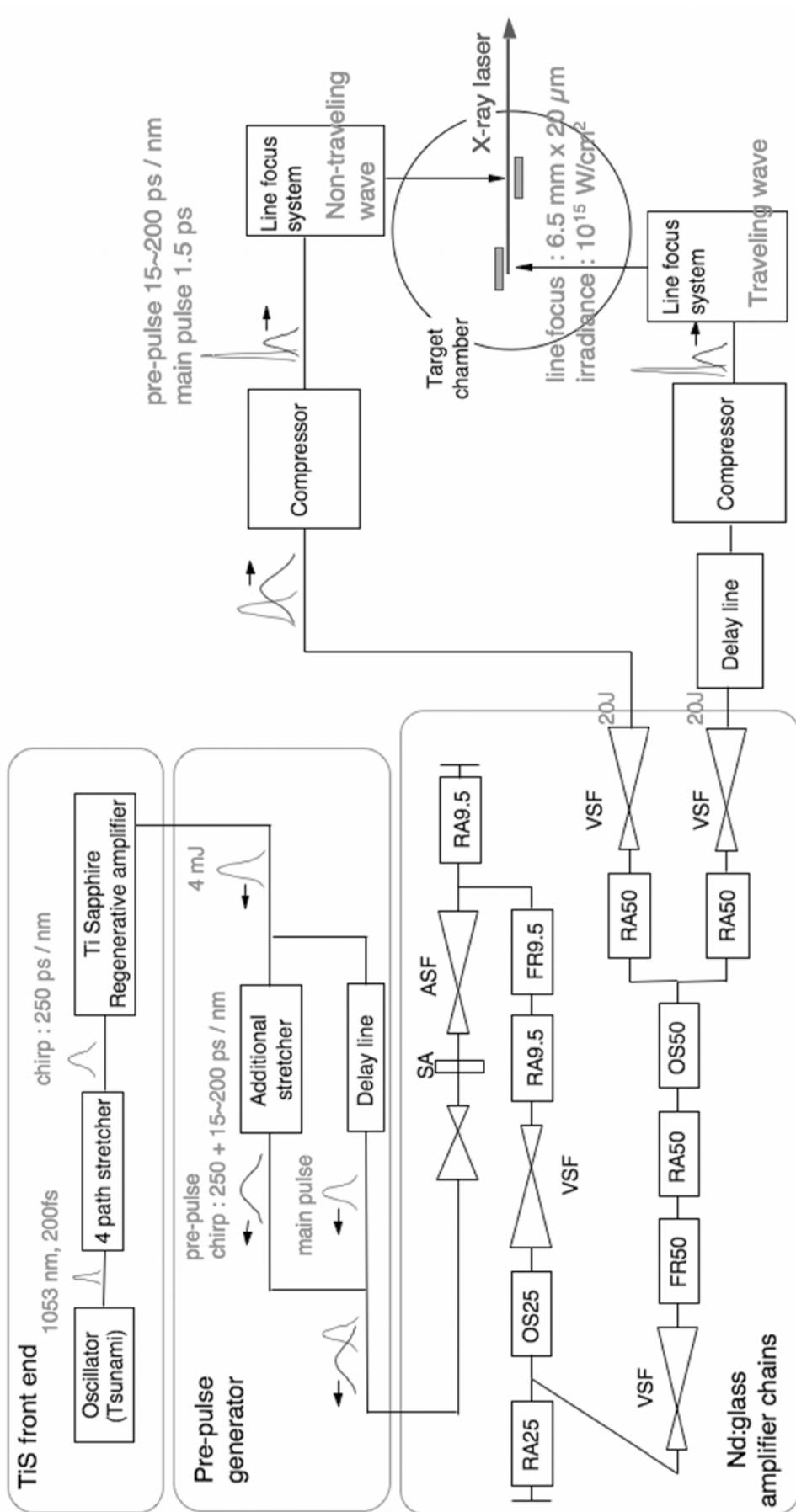


Figure 2-2. X線レーザー励起用ガラスレーザーシステム模式図
 略号：SA (ソフトアパーチャ)、ASF (大気中スペーシャルフィルタ)、RA (ロッドアンプ、数値はロッドの径)、FR (フ
 アラーローター)、VSF (真空スペーシャルフィルタ)、OS (オプティカルシャッター)

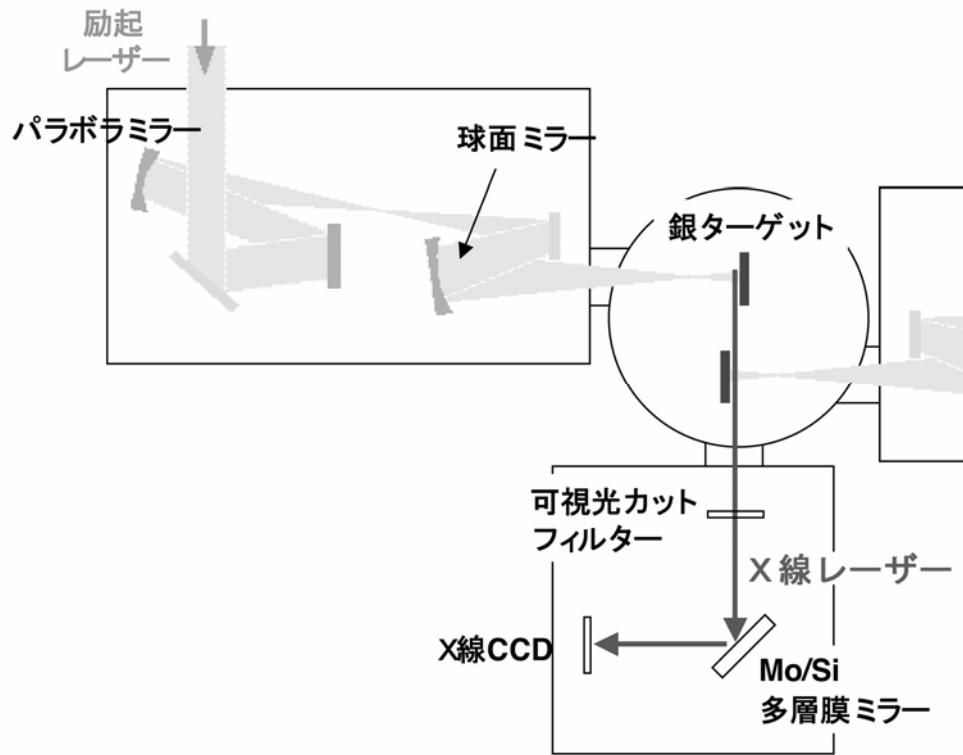


Figure 2-3. ダブルターゲットX線レーザーの発生部と計測系の概略

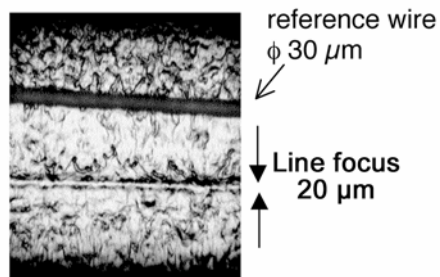
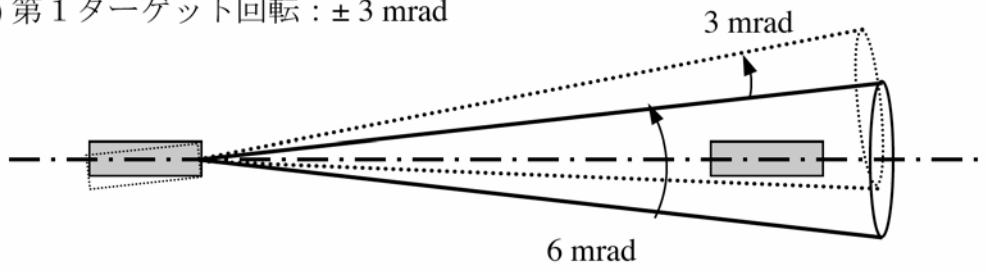
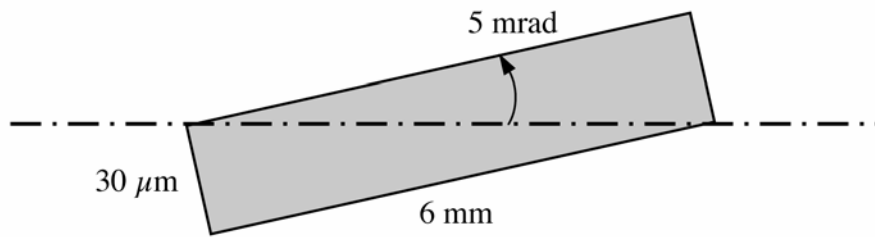


Figure 2-4. チタンターゲットにつけた線集光跡の顕微鏡写真。上はスケール参照用のワイヤである。

(1) 第1ターゲット回転：±3 mrad

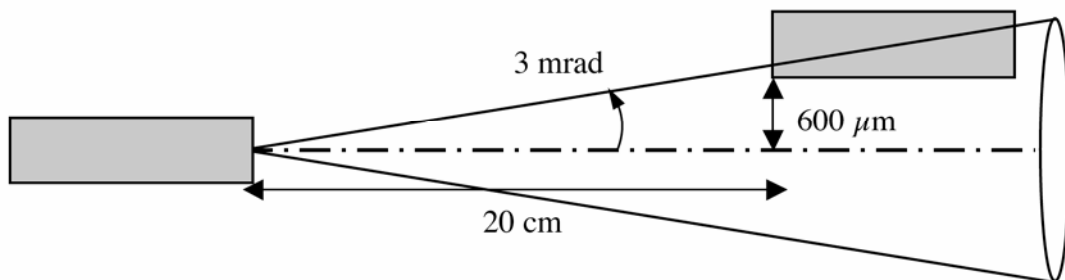


(2) 第2ターゲット回転：±5 mrad



(3) 並進

a) 第2ターゲットで増幅可能な範囲：±600 μm



b) 線集光範囲：±200 μm

c) ビームのポインティングが発散角以下：±10 μm

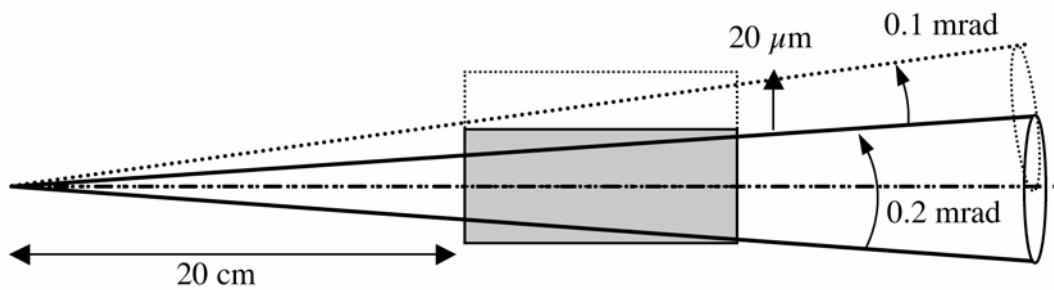


Figure 2-5. ターゲットと線集光の位置調整の要求精度

ばならない。ターゲットや線集光のアライメントは、これらの条件を満たす方法で行う必要がある。

アライメントは、2つの線集光を同一直線上にそろえる必要性から、ターゲット用真空容器の中心線に張ったワイヤにターゲット表面と線集光位置を合わせるといった方法をとっている。Figure 2-6 に概略を示す。ワイヤは太さ 20 μm のタングステンを使用しており、両端に錘を付けてV字溝を切った支柱に掛けることで、真空容器の中心線上にたわみ無く設置される。V字支柱は上下可動式とし、調整時は両端をレベルで監視して実験室に対して正確に 1020 mm の高さに合わせ、X線レーザー発振時は光軸上から取り除く。アライメントは、まず集光用光学系のミラーを調整して励起レーザー光の線集光をワイヤの位置に合わせた後、ワイヤに対して水平になるように微調整する。次にターゲット用真空容器に取り付けた監視カメラを使って、ワイヤの位置にターゲットの表面を合わせる。この方法により合わせられる精度は並進 50 μm 、回転 2 mrad 程度であるので、ショットごとのターゲットの位置再現性は別の方法で担保する必要がある。

Figure 2-7 にターゲットアライメントのためのセットアップを示す。ターゲットはワイヤにより線集光位置に合わせた後、ダイオードレーザーを用いた位置検出システムでマーカし、以後はワイヤを使わずにこれを用いてアライメントする。この方法は、ターゲットが鏡面になっていることを利用して、2つの異なる角度からターゲット表面に照射されたダイオードレーザーの反射

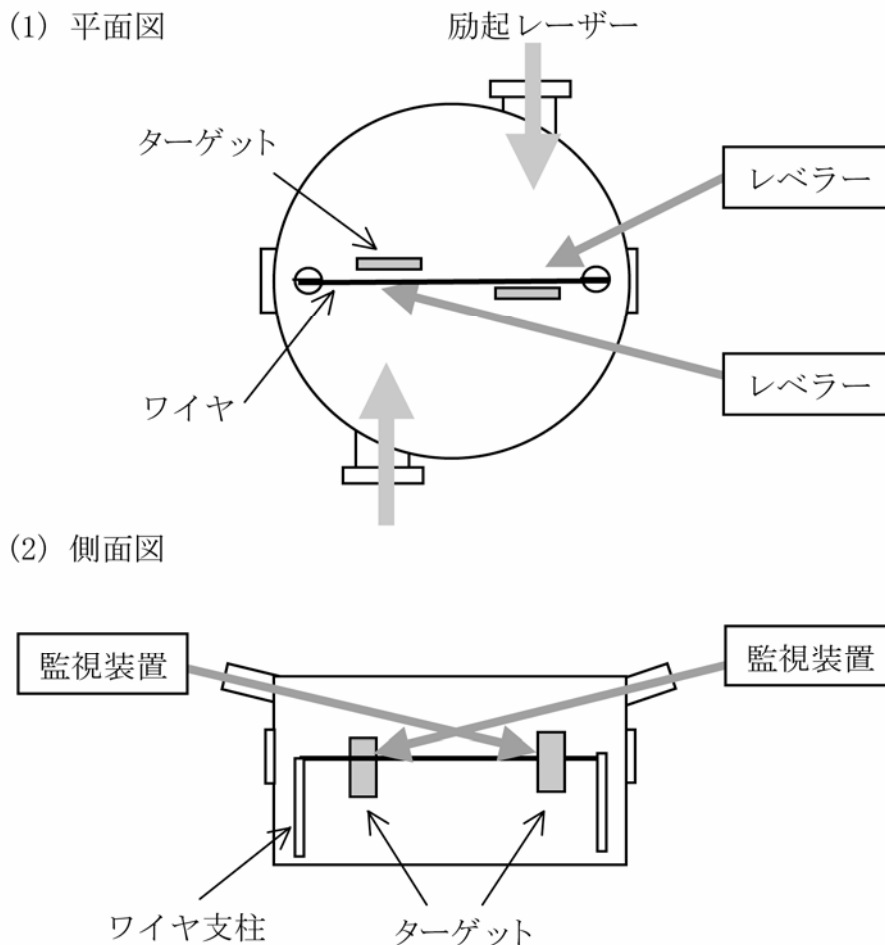


Figure 2-6. ワイヤによるターゲットアライメント系の概略図

光の位置をそれぞれポジションセンサで正確に検出することで、ターゲット表面の並進位置、回転角のマーカ位置からのずれを割り出すものである。ポジションセンサの出力をコンピュータに取り込み、フィードバックをかけてターゲットの設置されている電動ステージを操作することにより、ターゲット表面をオートマチックに元の位置に戻せる。この方法によるターゲットの位置再現性は並進方向に $\pm 12 \mu\text{m}$ 、回転方向に $\pm 0.1 \text{ mrad}$ である[16]。

発生させたX線レーザーは、光源から十分に離れた位置でのビームパターンである遠視野像を軟X線CCDで撮影することにより観測している。また、必要に応じて分光器、ストリークカメラ、近視野結像光学系などを用いて評価を行っている。

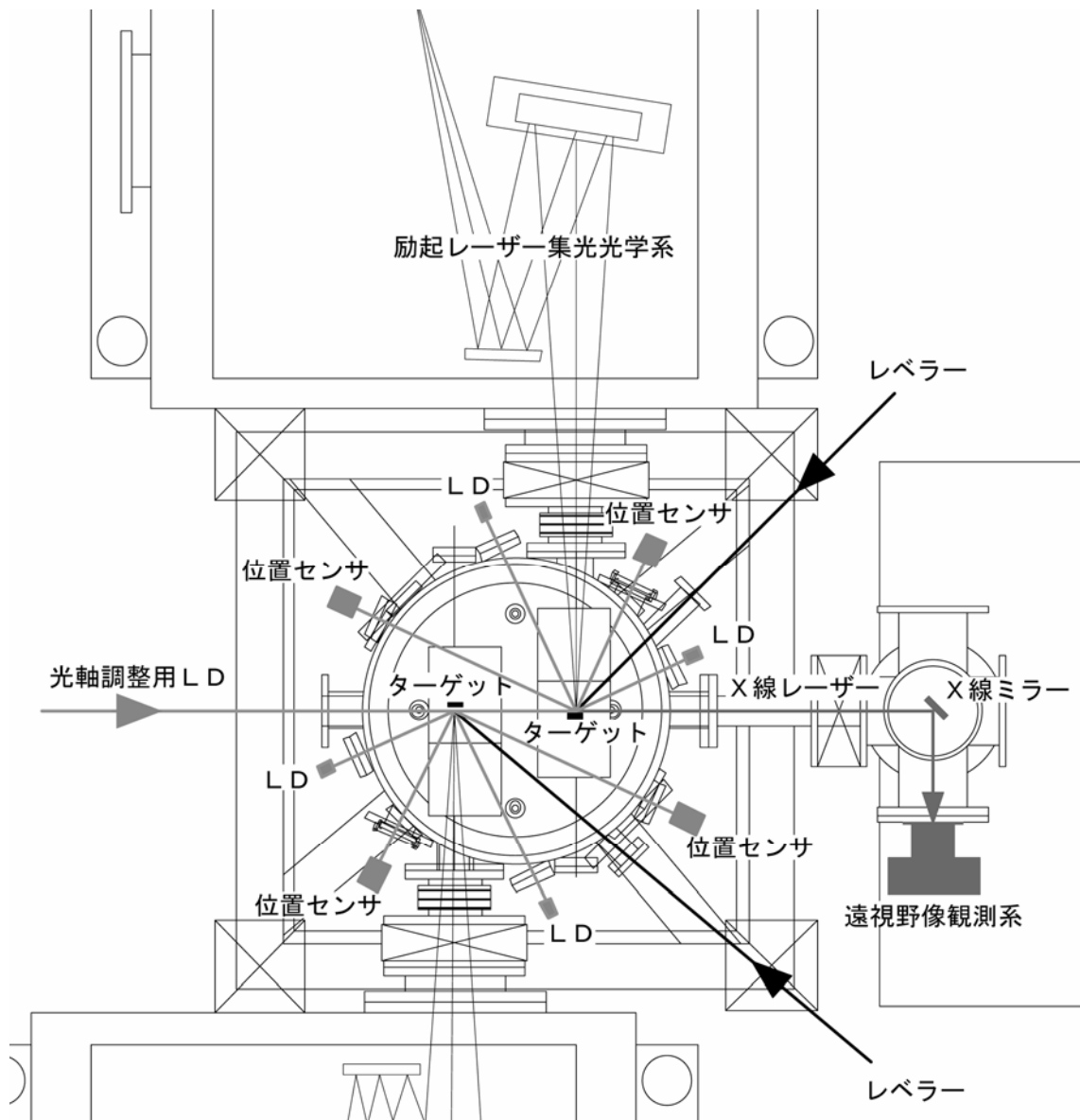


Figure 2-7. ダイオードレーザー（LD）を用いたターゲットアライメントのセットアップ図面

2.2.2 シングルターゲットX線レーザー

Figure 2-8 に斜入射分光器を用いて測定したシングルターゲットのX線レーザーのスペクトルを示す。プラズマ長は、Figure 2-9 に示したように励起レーザーをターゲットの縁に照射し、線集光の一部のみを当てることによって2.0 mm、3.0 mm、4.8 mmに変化させている。分光器に使用した回折格子は、島津製作所製の不等間隔平面回折格子で有効格子定数は1200本/mmである[17]。また、可視光カットフィルターとして、0.2 μmの窒化シリコン膜上にイットリウム又はアルミニウムを蒸着したものをを用いている。Figure 2-10にHenkeのデータテーブル[18]より計算したフィルターの透過率スペクトルを示す。分光スペクトル右側に現れる連続光の切れ落ちは、フィルター基盤の構成元素であるシリコンの吸収端である。アルミニウムのフィルターは、X線レーザーの発振強度が強い条件の計測で、CCDに強すぎる光が入るのを防ぐ目的で使用している。図に見られるように、プラズマ長がのびるに従ってX線レーザーの発光線のみが際だっけいき、飽和増幅領域(図中プラズマ長さ4.8 mm)ではレーザー線のピーク強度はプラズマからのバックグラウンド光よりも数桁強く観測される。中心波長はより精密な分光計測により 13.887 ± 0.002 nmと求まっている[19]。X線レーザーの波長は銀のニッケル様イオンの遷移により決まっているので、ダブルターゲットX線レーザーの場合も同様のスペクトルと考えて差し支えない。

Figure 2-8に見られるように、媒質プラズマからの自然放出X線は、波長積分強度は強いものの広い波長領域にわたっているため、多層膜ミラーを用いて波長選択することで、その大部分をカットすることができる。Figure 2-11に、プラズマからのX線をモリブデン・シリコンの多層膜ミ

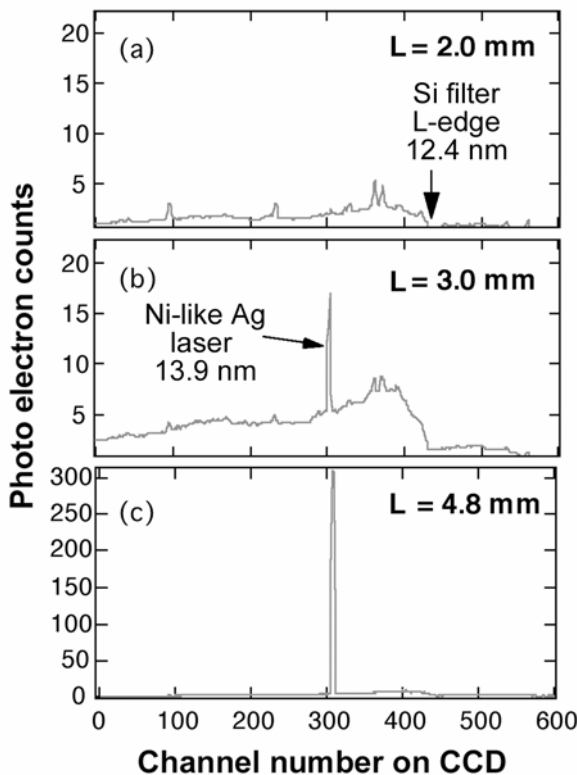


Figure 2-8. プラズマ長 (a) 2.0 mm、(b) 3.0 mm、(c) 4.8 mm の時のプラズマからのX線の分光スペクトル。プラズマ長がのびるに従ってX線レーザーの発光線のみが際だっけいく。

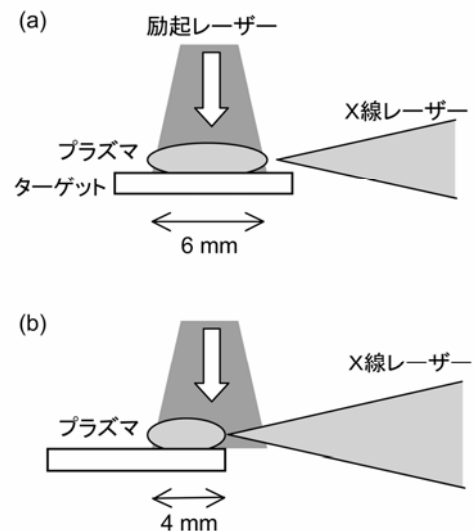


Figure 2-9. 利得媒質プラズマの長さは、ターゲットの位置を線集光に対してずらすことにより変化させている。

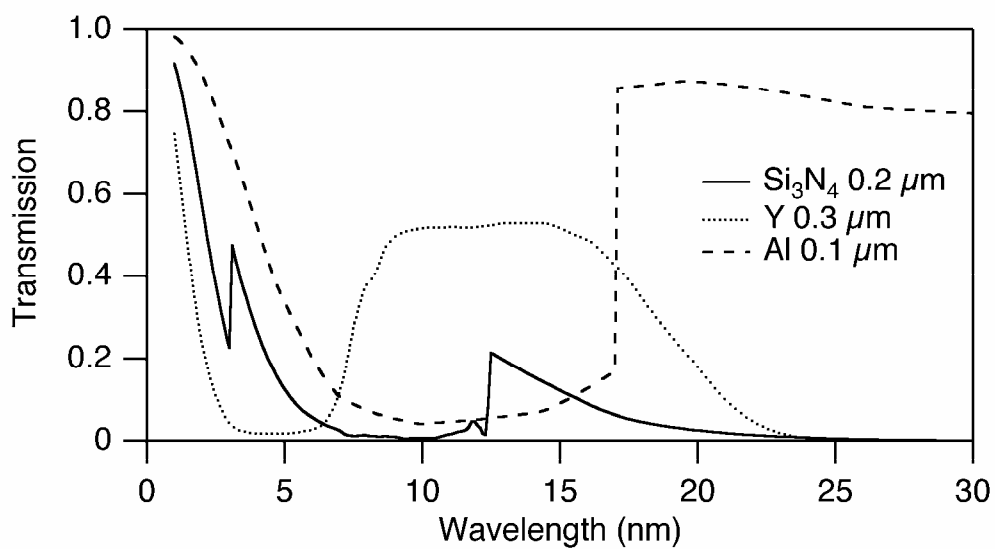


Figure 2-10. 分光計測に使用したフィルターの透過率曲線。

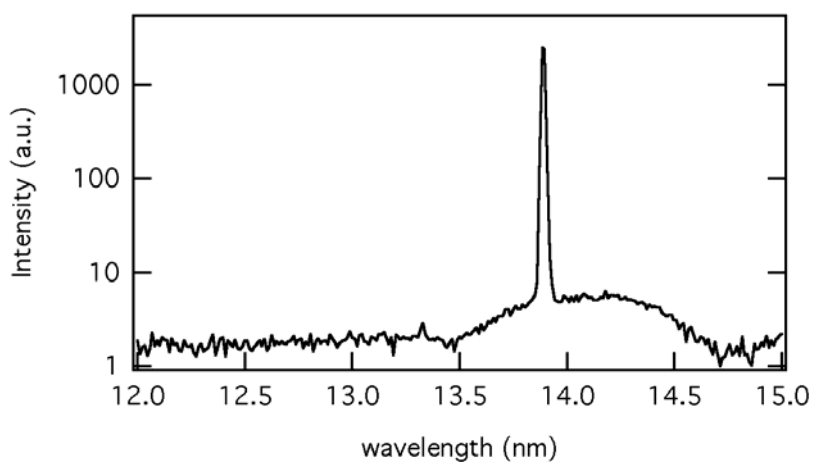


Figure 2-11. プラズマからのX線を多層膜ミラー2枚で反射したあとのスペクトル。増幅X線の波長積分強度は多層膜ミラーで反射された自然放出X線の積分強度の100倍程度である。

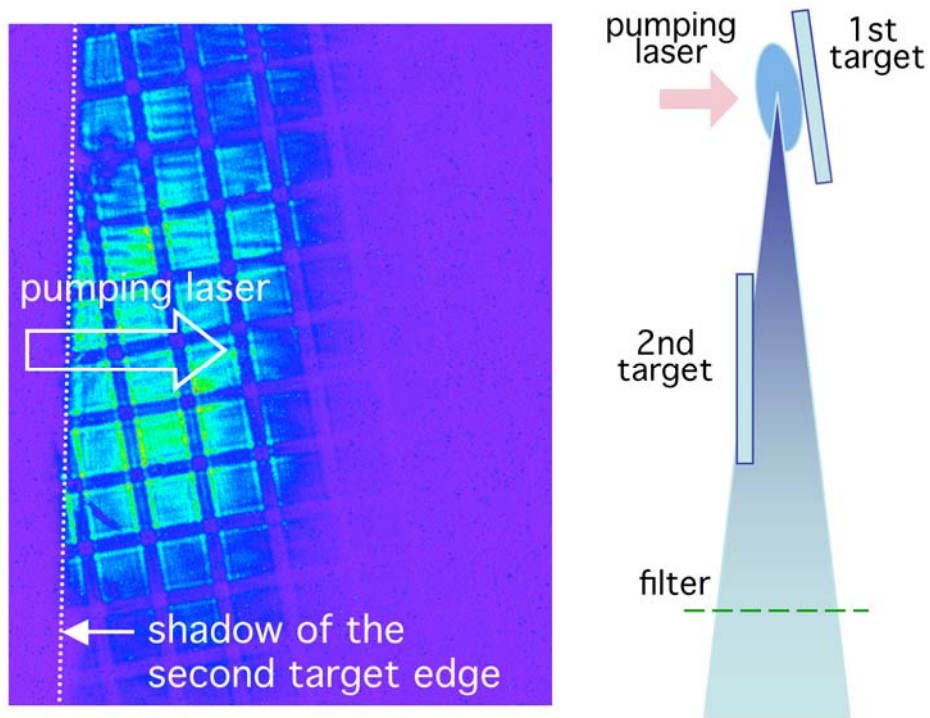


Figure 2-12. 第1ターゲットを単独で発振させたときの遠視野像
 左側に下流に設置してある第2ターゲットの影が写っている。パターンの中に見える格子縞はジルコニウムフィルターを保持しているニッケルメッシュの影である。

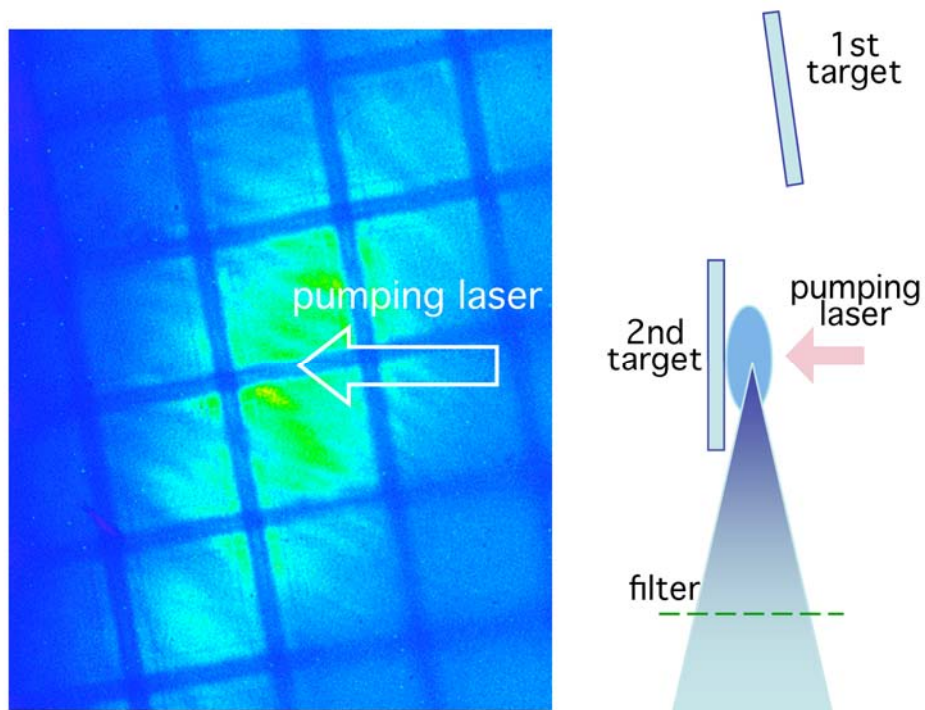


Figure 2-13. 第2ターゲットを単独で発振させたときの遠視野像
 第1ターゲットからの発振と比べてフィルターまでの距離が近いためにメッシュの影は広い間隔で写る。

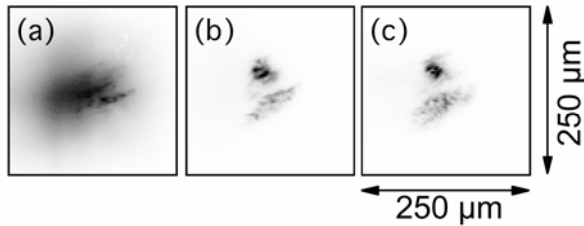


Figure 2-14. プラズマ長(a) 1.8 mm、(b) 3.4 mm、(c) 6.0 mm のときのプラズマからのX線の近視野像。プラズマ長が短いときにはプラズマ全体の発光が見えているが、プラズマ長を長くしていくと特定の領域でX線が増幅されていく様子が観測される。

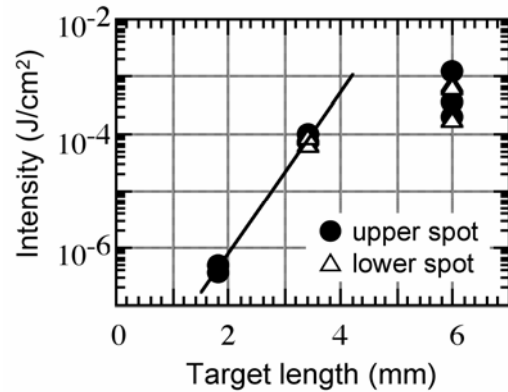


Figure 2-15. 近視野像中の2つのスポットのピーク強度。同じプラズマ長では2つのスポットの強度は同程度である。プラズマ長 4 mm 付近で飽和増幅に達している。Linford の式[20]によるフィッティングにより、利得係数は 32 cm^{-1} と見積もられた。

ラー 2 枚で反射したあとで測定したスペクトルを示す。増幅 X 線の波長積分強度は多層膜ミラーで反射された自然放出 X 線の積分強度の 100 倍である。従って、多層膜ミラーによって転送された像は、単に媒質プラズマの X 線発生領域を見ているのではなく、利得領域を通ってきた X 線レーザーの像を選択的に見ていることになる。以下に示す遠視野像、近視野像の画像は、すべて X 線レーザーのパターンそのものを見ていると考えて良い。

Figure 2-12、2-13 に第 1 ターゲット、第 2 ターゲットをそれぞれ単独で発振させたときの遠視野像を示す。発生した X 線レーザーは、プラズマからの連続 X 線を避けるために多層膜ミラーで反射することにより単色化し、軟 X 線 CCD で観測した。また、プラズマから発生する可視光をカットするために、フリースタンドのジルコニウム薄膜をフィルターとして使用している。パターンの中に見える格子縞はジルコニウムフィルターを保持しているニッケルメッシュの影である。フィルターと CCD の位置は二つの計測で同一なので、光源とフィルターの距離により、第 1 媒質からの X 線のできる影は格子間隔の狭い影が、第 2 媒質からの場合は間隔の広い影ができる。

Figure 2-14 に、プラズマ長 1.8 mm、3.4 mm、6.0 mm の時の X 線レーザーの近視野像を示す[6-8]。近視野像はレーザー媒質に近い位置でのビームパターンであり、利得領域の分布を反映する。ここでは、利得媒質末端での発光強度分布を結像光学系を用いて CCD 上に像転送したものを観測している。プラズマ長が短いときにはプラズマ全体の発光が見えているが、プラズマ長を長くしていくと特定の領域で X 線が増幅されていく様子が観測され、プラズマの末端では (Figure 2-14 (c)) X 線のエネルギーは $25 \mu\text{J}$ であった。X 線レーザーの利得領域はターゲット表面から $50 \mu\text{m}$ 程度の位置に存在し、2つの特に強いスポットを持っていた。2つのスポットは励起レーザーに対して垂直方向に $50 \mu\text{m}$ 程度分かれており、大きさは半値全幅で $20 \mu\text{m}$ 程度であった。Figure 2-15 に2つのスポットのピーク強度をプロットした。図から分かるように同じプラズマ長では2つのスポットの強度は同程度であった。シーダーや共振器を組まないシングルターゲット X 線レーザーは自然放出光の増幅光であるので、出力は ASE (Amplified Spontaneous Emission) について記

述した Linford の式[20]

$$I \propto \frac{[\exp(gL)-1]^{3/2}}{[gL \exp(gL)]^{1/2}} \quad (2.3)$$

で表すことができる。 I は出力、 g は利得係数、 L は利得長である。フィッティングにより利得係数 g は 32 cm^{-1} と見積もられ、プラズマ長 4 mm 付近で、利得が有限の値を持つために増幅が指数関数的でなくなる、飽和増幅領域に達していることがわかった。プラズマ長 4 mm 以上では、X線近視野像の形状にもほとんど変化がない。Figure 2-16 に斜入射分光器で計測したデータを用いて同様の解析を行った結果を示す[9]。利得係数、飽和増幅に関しては、波長 13.9 nm についてプロットした場合でもほぼ同じ結果が得られており、多層膜ミラーによる結像光学系を用いて観測されたパターンはX線レーザーのパターンと考えるとよい。

X線レーザーの近視野像が2つのスポットを持つ理由については、次の2つの理由が考えられる。一つ目は利得領域の分布が2つのピークを持っているとする考え方、二つ目はプラズマ中を伝搬するX線がプラズマの密度勾配により屈折し2つに分かれるとする考え方である。今回得られた近視野像については主に利得の形状を反映しており、X線レーザーの屈折の影響は小さいように見える。

Figure 2-14 において、X線の強い領域は二つに分かれているが、密度勾配による屈折が原因とした場合、同じ位置から出発した光が 6 mm 伝搬する間に $50 \mu\text{m}$ 離れるには屈折角が 4 mrad 程度でなければならないが、ターゲット長 6 mm の場合と 3.4 mm の場合で屈折角を求めたところ $0 \sim 2 \text{ mrad}$ となり、屈折だけではパターンが説明できない。従って、利得が二つの極大を持った分布を持っていたといえる。屈折により利得領域から離れた成分は増幅をあまり受けなため、結果的に利得領域を通った成分のみがパターンに反映していると考えられる[7]。X線レーザーは媒質中で屈折を受けるためX線近視野像と利得領域の空間分布は必ずしも一致するとは限らないが、このようにプラズマ長を変えることで、両者の関連を調べることができる。

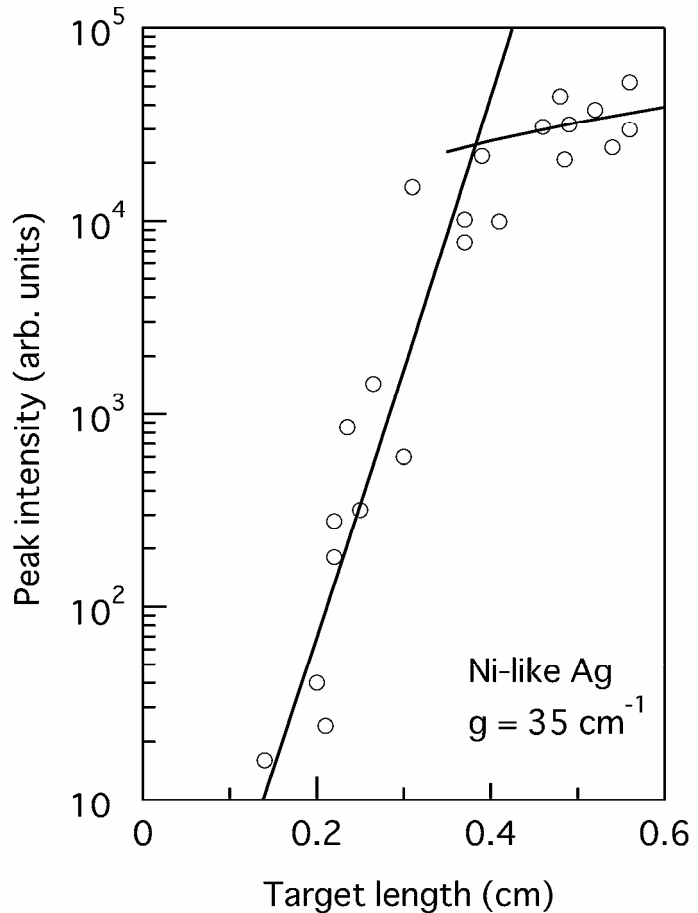


Figure 2-16. 分光スペクトル中のX線レーザーのラインのピーク強度。プラズマ長 4 mm 付近で飽和増幅に達し、利得係数は 35 cm^{-1} と見積もられた。

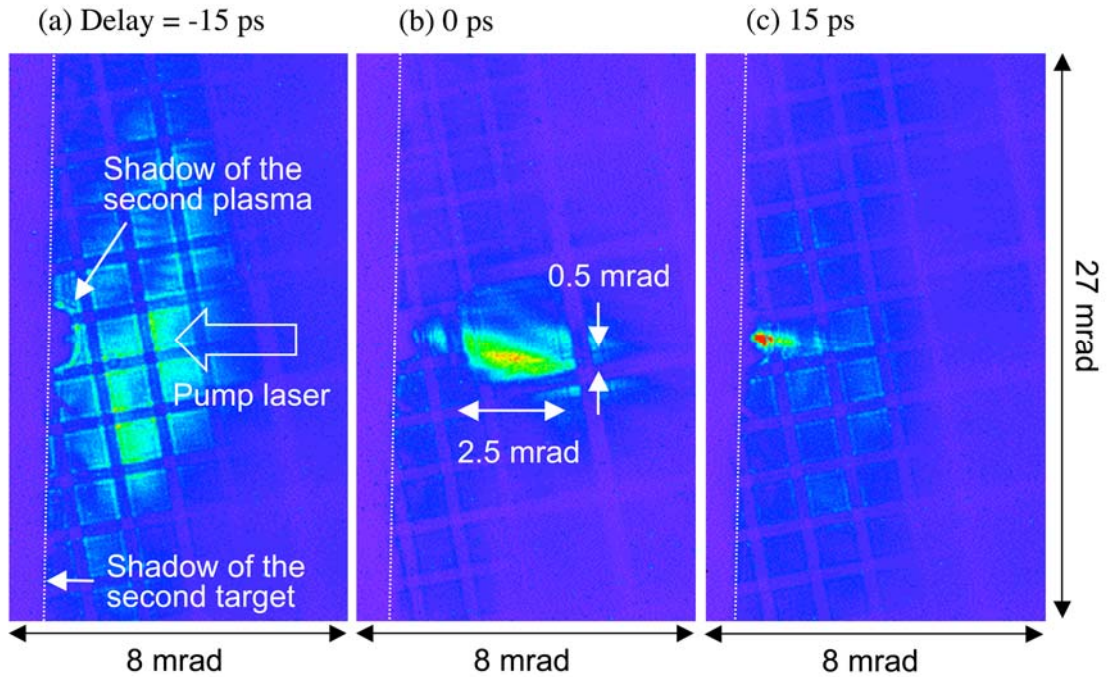


Figure 2-17. 第1、第2両媒質を励起したときの遠視野像
 第2媒質の長さは4 mmである。媒質間距離20 cmをX線が伝搬するのに要する時間667 psに対して、第1媒質の励起時間がそれぞれ、(a) 15 ps 早い、(b) 同じ、(c) 15 ps 遅い場合の結果である。破線は第2ターゲットの表面を示しており、ポンプレーザーは図の右手方向から入射している。第2ターゲット上に媒質プラズマの影がみえている。

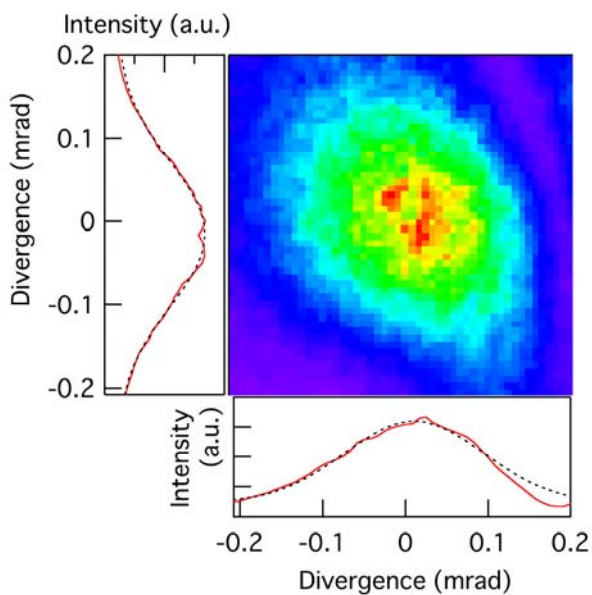


Figure 2-18. シードX線入射タイミング+15 ps のときの遠視野パターンで、Figure 2-17 (c)にみられる小さいスポット成分の拡大図。第2媒質の長さは6.5 mmである。グラフはそれぞれ縦・横方向の強度空間分布を示す。実線は測定値、点線は測定値のガウスフィッティングを示している。

2.2.3 ダブルターゲットX線レーザー

第1ターゲットのポンプ時間を第2ターゲットよりも652 ps早くしたときの遠視野パターンをFigure 2-17 (a) に示す[12]。媒質間距離 20 cm をX線が伝搬するのに要する時間は667 psであるので、第1ターゲットで発生したX線レーザーは第2ターゲット上に利得が生成するよりも15 ps前に第2ターゲットに到達する。以下、Figure 2-17 (a)のタイミングをディレイ-15 psと記述する。-15 psのディレイでは、第1媒質とは独立に第2媒質から発生したX線レーザーは弱いために判別しにくく、第1媒質から発生したシードX線レーザーのみが見えている。図の左手方向には第2ターゲットの影が写っていて、その表面にプリパルスにより生成したプラズマの影がみられる。シードX線のビーム発散角は半値全幅で6 mrad程度であり、積分強度は270 nJであった。

Figure 2-17 (b), (c) にディレイ 0 ps, +15 ps のときの遠視野パターンを示す。シードX線レーザーが第2媒質中で増幅されて強いスポットが現れている。ディレイ 0 ps では、増幅されたビームの発散角は縦方向では0.5 mradまで改善している。横方向の発散角は少し広めで2.5 mradであるが、これはパターン中のメッシュの影が第2媒質を光源とする場合と同様に広い間隔を持つことから、X線が第2媒質中を伝搬中に屈折して広がるためであると推測される。このことは、0 psのときの利得がプラズマの密度勾配の大きい高密度領域に生成していることを示している。シード光を入射するタイミングを遅らせていくと、横方向に広がっている成分は小さくなり、代わりに小さいスポットがプラズマの影の中に出現し、ディレイ+15 psではほとんどこの成分だけが残る (Figure 2-17 (c))。Figure 2-18 にこの小さいスポットの拡大図を示す。パターンはガウス関数で良くフィッティングでき、ビーム発散角は0.20 mradまで改善している。

Figure 2-19 に示したのは細いビームのトータルエネルギーを媒質長に対してプロットしたものである。媒質長 6.5 mm のときで、エネルギーは25 nJ得られている。利得係数は、測定点を指数関数フィッティングすることにより、 7.9 cm^{-1} と求まった。この値はシングルターゲットの実験で得られている 35 cm^{-1} と比べて小さく、利得が低密度で屈折の影響の少ない領域にできていることを示唆している。

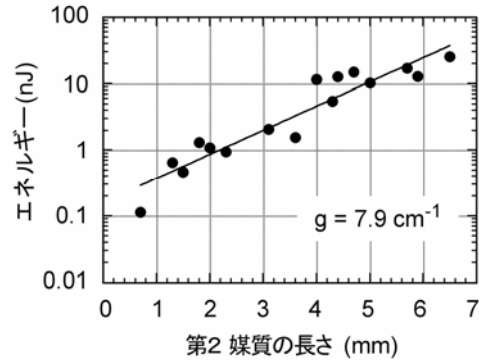


Figure 2-19. 発散角の小さいビームの積分エネルギーの媒質長依存性。シードX線の入射タイミングは +15 ps である。実線は測定点を指数関数フィッティングしたものである。利得係数は 7.9 cm^{-1} と見積もられた。

2.3 利得領域の観察

2.3.1 発光強度の時間変化

シーディングの実験は、シード光をプローブ光と考えれば、第2媒質における利得領域の状況を見るためのポンプ・プローブの実験にもなっている。第1ターゲットのポンプ時間をずらしていったときの、屈折して広がっている成分と発散角の小さい成分の強度変化をFigure 2-20に示す。これは、第2媒質中でX線レーザーの屈折の起こりやすい領域と少ない領域に、それぞれ発生す

る利得の時間発展を現している。Figure 2-17 の遠視野像から示されているように、ディレイ 0 ps では屈折を受けながら増幅する成分がメインで小さいスポットは現れていないが、ディレイを遅らせていくに従ってこの成分が成長し、20 ps で最大となる。利得の持続時間は屈折増幅する成分と比べて長く、20~30 ps 程度である。

2.3.2 近視野像計測

それぞれのタイミングでの利得領域の状態を観測するために、Figure 2-21 に示したような近視野像観測系を組んだ。X線レーザーを曲率半径 2000 mm のモリブデン・シリコン多層膜球面ミラーで集光し、2 枚の平面ミラーで折り返した後 CCD 上に結像した。倍率は 8.5 倍である。一般的な結像実験では時間積算したプラズマの像が観測されるのに対し、第 1 媒質からの X 線でシードされた光を選択的に結像することにより、時間分解された第 2 媒質プラズマの情報を得ることができる。Figure 2-22 に得られた第 2 媒質末端の近視野像を示す。ターゲット

表面から 30~50 μm 程度の位置に、50 μm 程度の利得領域が生成しており、領域内に 20 μm 程度の特に明るい領域が見られる。過渡利得方式の X 線レーザーで利得領域が複数に分かれる現象は、近視野像の計測でいくつかの報告がある[8, 21]。励起レーザーパターンの不均一性により媒質中にムラができるため、又は、プラズマに追加熱パルスが入るときにプラズマの密度勾配による屈折の影響を受け、上下に分離してエネルギーが与えられるためと解釈されており、シングルターゲットの X 線レーザーのパターンに干渉縞状の構造が出る原因とされている[22]。ダブルターゲット X 線レーザーの場合は指向性が良いために、このように利得領域が分かれているような状況では、遠視野パターンも Figure 2-23 のように複数のスポットを持つ。

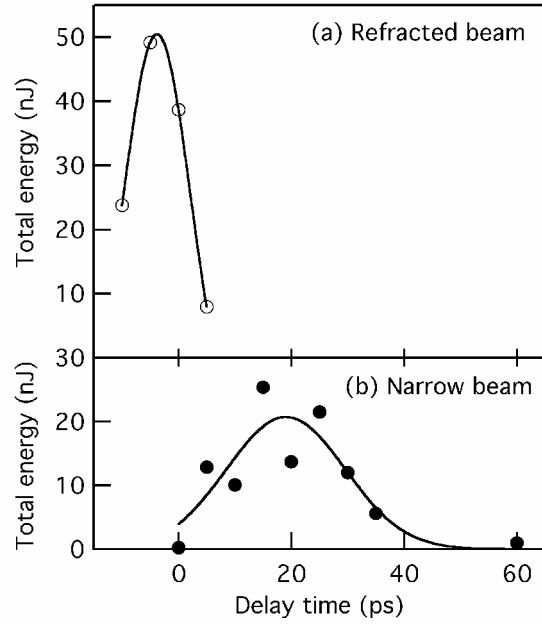


Figure 2-20. シード光のタイミングをずらしていったときの、2成分の強度変化。(a)第2媒質中で屈折を受けて増幅した成分。第2媒質の長さは 4.5 mm である。(b)屈折を受けずに増幅した成分。媒質長は 6.5 mm。実線はガウス関数でフィッティングしたもの。

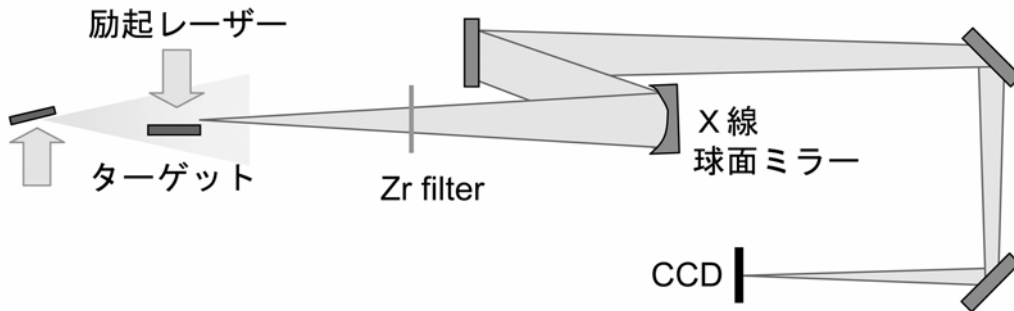


Figure 2-21. 近視野像計測系の概念図
第2媒質末端の像を X 線用多層膜球面ミラーを用いて CCD 上に転送している。

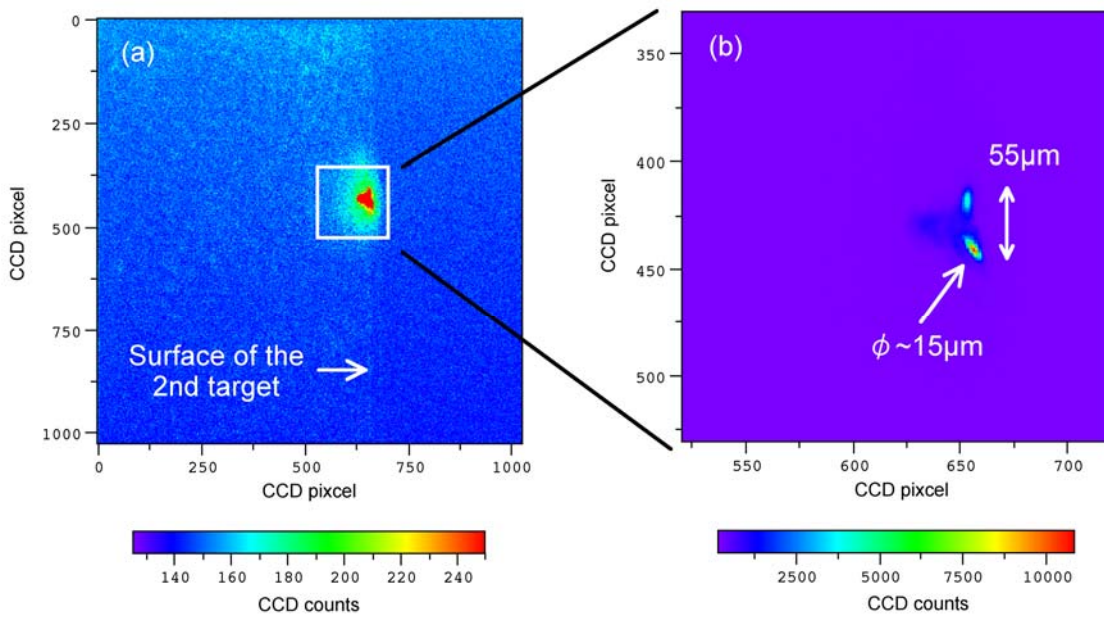


Figure 2-22. 第2媒質末端の近視野像

(a) 第2ターゲットは図中右側にある。第1媒質からのX線レーザーにバックライトされて影が写っており、矢印で示した位置がターゲット表面である。ポンプレーザーは図の左手方向から入射している。(b) (a)の四角で囲んだ部分の拡大図。利得領域中に複数の特に強い領域が存在する。細かいスポットの形状はショットによって変わる。利得全体の大きさは $55 \mu\text{m}$ 程度で、各スポットの大きさは $10\sim 30 \mu\text{m}$ である。

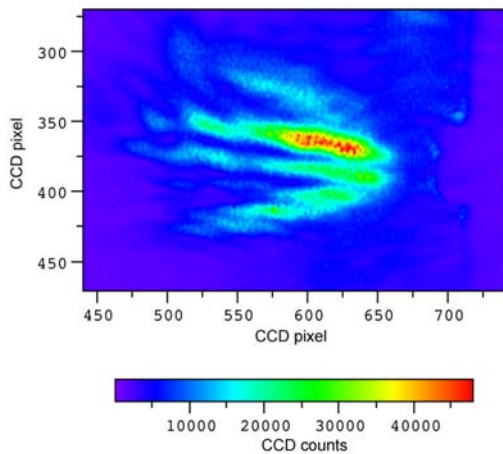


Figure 2-23. 利得領域中に強い部分が複数存在する状況での遠視野像の例

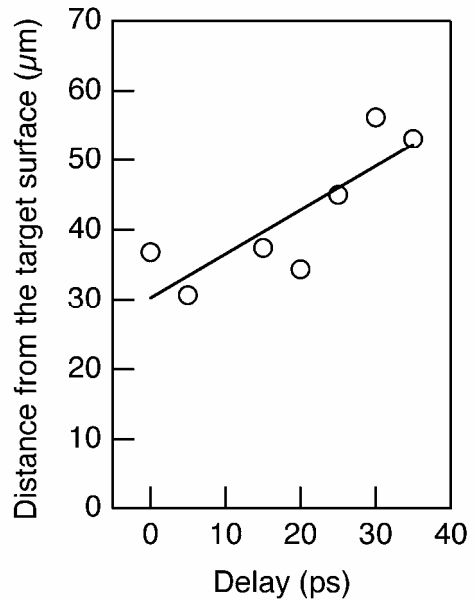


Figure 2-24. 利得領域の位置の時間変化。30 ps の間にターゲット表面から離れる方向に $30 \mu\text{m}$ 程度移動している。

Figure 2-24 に近視野像から得られた、利得領域の位置の時間変化を示す。流体力学シミュレーションで予想されているように、時間と共に利得領域が低密度側に移動していく様子が観測されている。利得領域は、初期状態ではターゲット表面から 30 μm 程度の位置に生成し、30 ps の間に 30 μm 程度、ターゲットから離れる方向に移動する。プラズマの密度勾配を単純な指数関数で定義すると、屈折の影響が無視できる密度領域はターゲット表面から 100 μm 以上離れていることが予想される[14]。一方で、過渡利得方式の場合、利得生成に複数のパルスを使うためにプラズマの密度分布は複雑化する。二次元の流体力学コードを用いたシミュレーションにより、励起レーザーにプリパルスやペDESTALが存在する状況で、ターゲット表面近傍にプラズマの密度勾配がフラットに近い領域が生成する現象が報告されている[23]。屈折の影響の少ない成分の由来を明らかにするためには、更にプラズマの密度計測や利得生成過程を組み合わせた二次元シミュレーションなどの研究を要する。

2.4 コヒーレンス評価

レーザーの品質を表す重要なパラメータの一つにコヒーレンス（干渉性）がある。光の位相が揃っており干渉性を持つことをコヒーレントであると言う。ビーム断面の異なる2点間での干渉性を空間コヒーレンス、伝搬方向の異なる2点（固定点で観測した場合の時間的に異なる2点）の間の干渉性を時間コヒーレンスと呼ぶ。レーザーは、誘導放出により同じ位相の光を増幅するため高いコヒーレンスを持ち得る。レーザーでは、空間コヒーレンスは光源が有限の大きさを持っているため、時間コヒーレンスは光のエネルギーが有限の幅を持っているために、一定の値に制限される。ダブルターゲットX線レーザーは、第1ターゲットで発生させたX線レーザーのうち、空間コヒーレンスの高い成分のみを第2ターゲットで増幅することにより、光源のサイズで決まる程度の高い空間コヒーレンスを実現している。以下に、空間コヒーレンスの評価を行った結果を示す。

2.4.1 発散角からの評価

Figure 2-25 のように、光源から離れた位置に何らかの空間プロファイルを持つ透過媒体が置かれている場合を考える。遠視野像 $U(s)$ は、光源と透過媒体の空間プロファイル g_1 、 g_2 を使って次式のような波面積分で表される[24]。

$$U(s) = \iint g_1(s_1) \frac{\exp(-ikr_1)}{r_1} g_2(s_2) \frac{\exp(-ikr_2)}{r_2} ds_1 ds_2 \quad (2.4)$$

s は空間座標、 r_1 は光源から透過媒体までの距離、 r_2 は透過媒体から観測点までの距離を表す。透

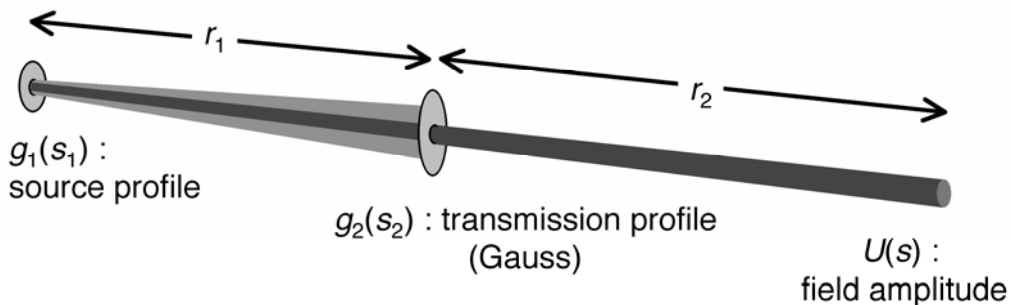


Figure 2-25. ダブルターゲットX線レーザーの遠視野像計算の概念図

過媒体を通った後の光の発散角は、観測点での空間パターンの大きさと距離から求められる。光源からの光が g_2 の地点で平面波と近似でき、 g_2 がガウス関数で表せる場合はコヒーレント gaussian ビームに相当する。この場合、回折限界角 θ は次式で表せる。

$$\theta_{FWHM} = \frac{2 \ln 2}{\pi} \frac{\lambda}{d_{FWHM}} \quad (2.5)$$

d は g_2 の径を示す。ダブルターゲット X 線レーザーに適用する場合には、光源を第 1 ターゲット、透過媒体を第 2 ターゲットと置き換えることができる。Figure 2-26 に、光源を点光源又は平面波、透過媒体の空間プロファイルがガウス分布と仮定し、透過媒体の径に対するビーム発散角を計算したものを示す。光源と透過媒体間の距離 r_1 はターゲット間隔 20 cm を使用した。比較のために、 $d = 50 \mu\text{m}$ の位置に実測値を乗せてある。光源サイズ $50 \mu\text{m}$ のフルコヒーレントなガウスビームの回折限界角の計算値は 0.11 mrad であり、実験値はその 1.8 倍にすぎず、ほぼ回折限界といえる。

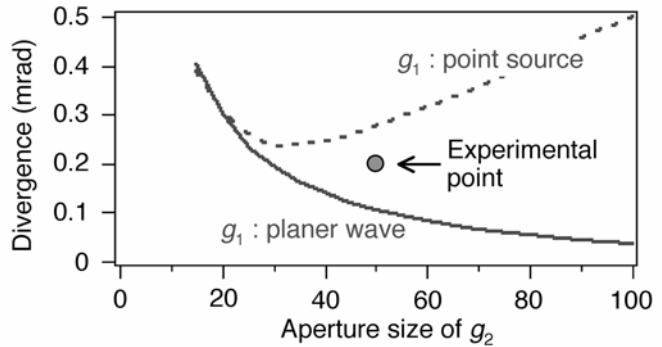


Figure 2-26. 透過媒体 g_2 の空間プロファイルがガウス分布と仮定したときのビーム発散角を計算したものである。点線が光源 g_1 を点光源とした場合、実線が平面波とした場合である。光源と透過媒体間の距離 r_1 は 20 cm である。光源サイズ $50 \mu\text{m}$ のフルコヒーレントなガウスビームの回折限界角の計算値は 0.11 mrad であり、実験値はその 1.8 倍程度である。

2.4.2 ヤングの実験

X 線レーザー光のコヒーレンス度を評価するために、ヤングの実験を行った[13]。Figure 2-27 に実験の配置図を示す。第 2 ターゲットから 2.3 m の位置にダブルスリットを置き、更に 3.9 m の位置に X 線 CCD を置いて干渉像を観測した。スリットの幅は $16 \mu\text{m}$ で、間隔は 150、200、300、 $350 \mu\text{m}$ の 4 種類を使用した。例として、間隔 $150 \mu\text{m}$ のダブルスリットを縦方向に置いた場合の干渉像を Figure 2-28 に示す。スリットを縦に並べているため、干渉像はビームの水平方向のコヒーレンスを反映している。図に見られるように、スリット幅によるフラウンホーファー回折の 3 次の成分に至るまで、明瞭な干渉縞が観測されている。各間隔のダブルスリットを用いて水平方

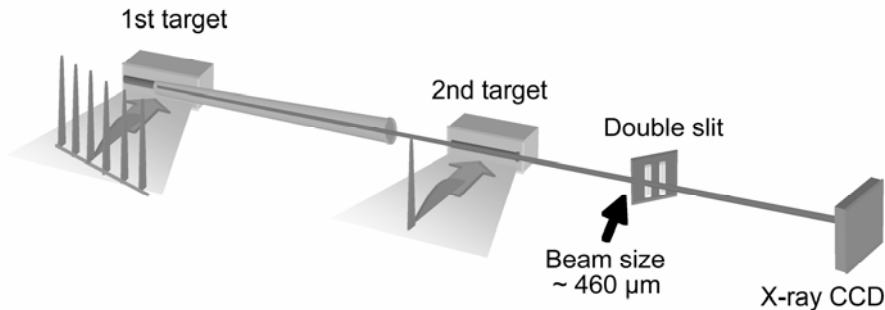


Figure 2-27. ヤングの実験の配置図

第 2 ターゲット～ダブルスリットは 2.3 m、ダブルスリット～X 線 CCD は 3.9 m、スリット位置でのビーム径は $460 \mu\text{m}$ である。ダブルスリットは幅 $16 \mu\text{m}$ 、間隔 $150\sim 350 \mu\text{m}$ のものを使用している。

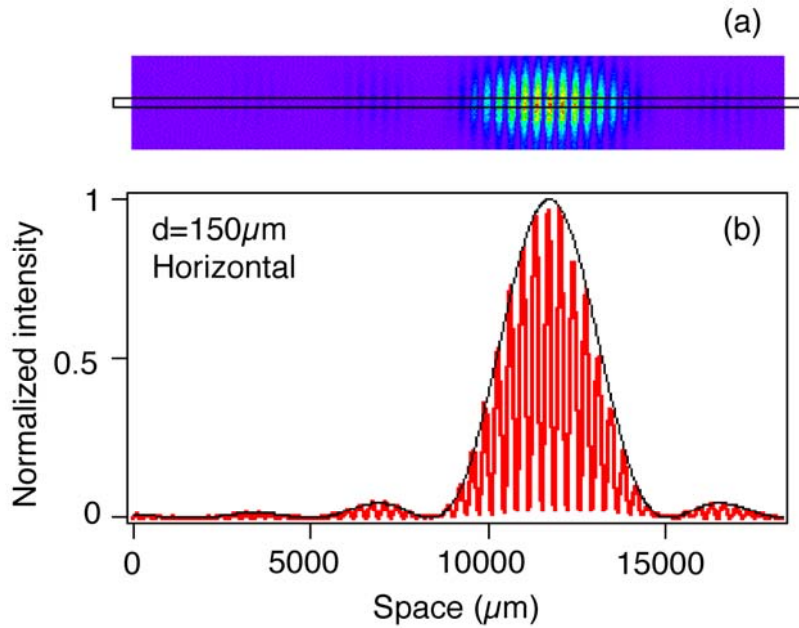


Figure 2-28. (a) 間隔 150 μm のダブルスリットを縦方向に置いた場合の干渉パターン。(b) (a)の四角で囲んだ部分を縦方向に積算したもの。黒線は干渉縞のエンベロープをフィッティングしたもので、スリット幅によるフラウンホーファー回折を表す。

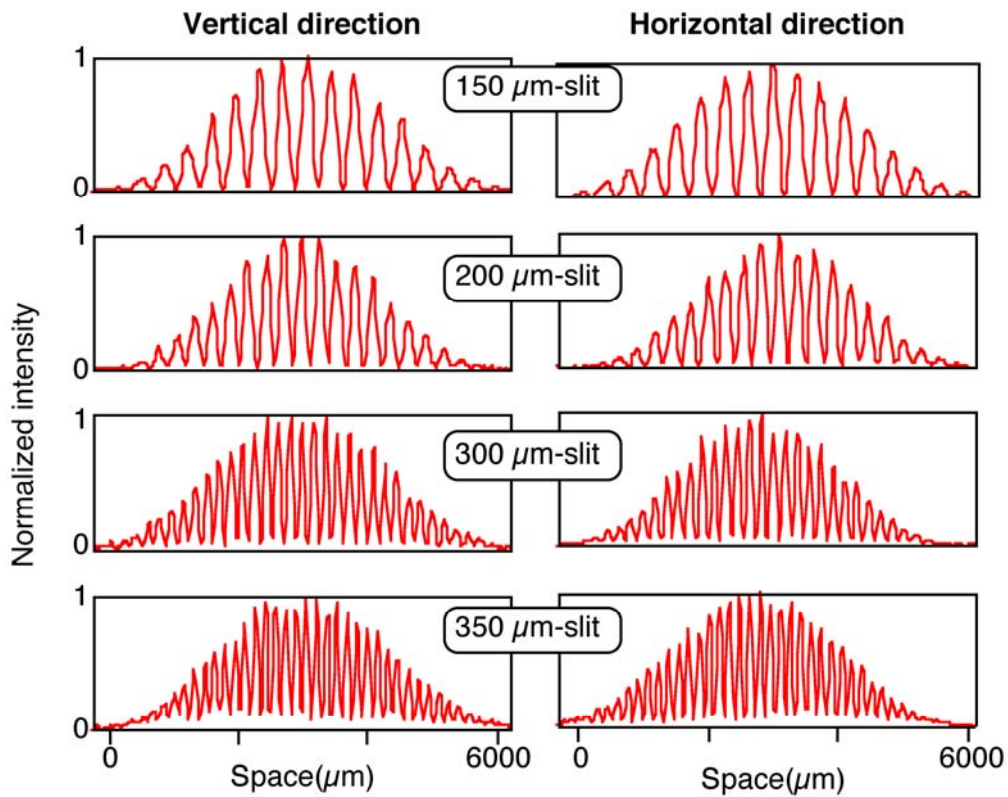


Figure 2-29. 各間隔のダブルスリットを用いて撮影した干渉縞

向、垂直方向について撮影した干渉縞を Figure 2-29 に示す。最大幅の 350 μm 間隔のダブルスリットを用いた場合でも、水平方向、垂直方向共に明瞭な干渉縞が得られている。

干渉縞のコントラストを示す指標として、次式で表されるビジビリティが一般的に用いられる。

$$V = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad (2.6)$$

I_{\max} は干渉縞の山の強度、 I_{\min} は谷の強度である。インコヒーレントな成分が多いほど干渉縞は不明瞭になり、ビジビリティは低くなる。準単色光の場合、ビームの空間コヒーレンス度はビジビリティとイコールの関係にある[24, 25]。実在の光源に関して空間コヒーレンスを議論する際には、コヒーレンス度が 2 点間の距離の関数で表されるとする Schell モデルを用いるのが一般的である。ガウスビームの場合、光の空間パターンだけではなく空間コヒーレンス度もガウス分布で表せるとするガウス型 Schell モデルがよく用いられる[26, 27]。この場合、空間コヒーレンス度に対応した量であるビジビリティは、空間コヒーレント長 L_c を用いて次式のように表される。

$$V(\Delta x) = \exp\left(-\frac{\Delta x^2}{2L_c^2}\right) \quad (2.7)$$

ここで、 Δx はビーム中の任意の 2 点間距離、つまりスリット間隔に対応する。

Figure 2-30 にタイミング+15 ps のときの干渉縞のビジビリティを、スリット間隔に対してプロットしたものを示す。実線および点線で示したのは、実測点に対し 2.7 式でフィッティングしたものである。フィッティングにより得られた空間コヒーレント長は垂直方向で 640 μm、水平方向で 580 μm であり、スリット位置でのビーム径 460 μm と比べて十分に大きいことから、ビーム全体でフルコヒーレントであるといえる。第 1 ターゲットをポンプするタイミングをずらし、Figure 2-17 (b) のようにビームが水平方向に発散する条件で同様の計測を行った場合も、スリット位置での空間コヒーレント長は同程度である。ビームに複数の空間モードが含まれることにより発散角が広がっていると解釈できる。

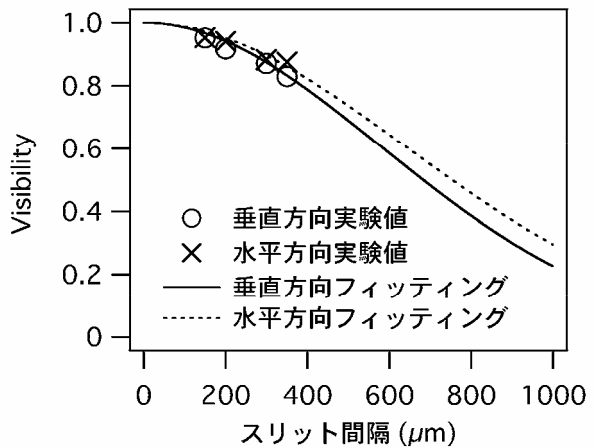


Figure 2-30. X線レーザーのビーム発散角が小さいときの干渉パターンのビジビリティ
ガウス型 Schell モデルでフィッティングを行うと、空間コヒーレント長は垂直方向で 640 μm、水平方向で 580 μm である。この値はスリット位置でのビーム径 460 μm と比べて十分大きいため、このレーザーはビーム全体でフルコヒーレントであると言える。

2.5 パルス幅計測

X線ストリークカメラ（浜松ホトニクス C4575）を用いてダブルターゲットX線レーザーのパルス幅計測を行った結果を Figure 2-31 に示す。点線で示したのは掃引をかけていないときのストリークカメラのスリット像で、これにより決まる時間分解能は 1 ps である。X線レーザーのパルス幅は半値全幅で 7 ps と求めた。シングルターゲットX線レーザーのパルス幅は 7~9 ps と求まっており[9, 28]、今回計測したダブルターゲットX線レーザーのパルス幅と同程度である。一方で、Figure 2-20 で示した通り第 2 媒質の利得の持続時間が 20 ps と長いことから、一般的にシーデ

ィングの実験で期待されるように、第2媒質を通った後のX線レーザーもシード光のパルス幅を反映していることがわかる。

スペクトル幅が $\Delta\lambda/\lambda$ で 10^{-4} 以下であることから、X線レーザーのコヒーレント時間は500 fs程度であると予想される。つまり、パルスあたり十数个程度の縦モードが含まれる。ガスタターゲットのX線レーザーで高次高調波をシード光として用いることにより時間コヒーレンスを改善することに成功した例があり[29]、固体ターゲットの場合でも同様の手法により更に短パルス化、高コヒーレント化が試みられている[30]。

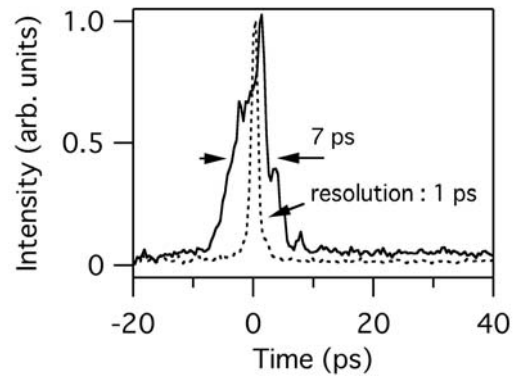


Figure 2-31. X線レーザーのパルス幅
点線はストリークカメラのスリット像で、装置の分解能は1 ps である。X線レーザーのパルス幅は半値全幅(矢印の幅)で7 ps である。

2.6 コヒーレント光子数

光子はボース粒子であるので、同一の粒子状態内を複数の光子が占めることができる。光子の一粒子状態とは縦横のコヒーレンス度が保たれる範囲内であるので、Figure 2-32 に示したように、光源サイズに対応した回折限界角と時間コヒーレンス長（時間コヒーレンスを伝搬方向の長さで表したもの）で括られるコヒーレント体積内が一つのモードの大きさと捉えることができる。パルス全体の光子数に対し、コヒーレント体積内に含まれる光子数をコヒーレント光子数、又はボース縮退度と呼ぶ。物質との相互作用を考えた場合、一つの原子や分子と同時に相互作用することのできるのは同一のコヒーレント体積内に含まれる光子だけであるので、非線形光学過程などを考える際には重要なパラメーターとなる。

コヒーレント光子数は、Figure 2-32 に示したように、ビーム発散角とパルス幅で括られるパルス全体の体積に対するコヒーレント体積の割合を、パルス全体の光子数にかけることで求めるこ

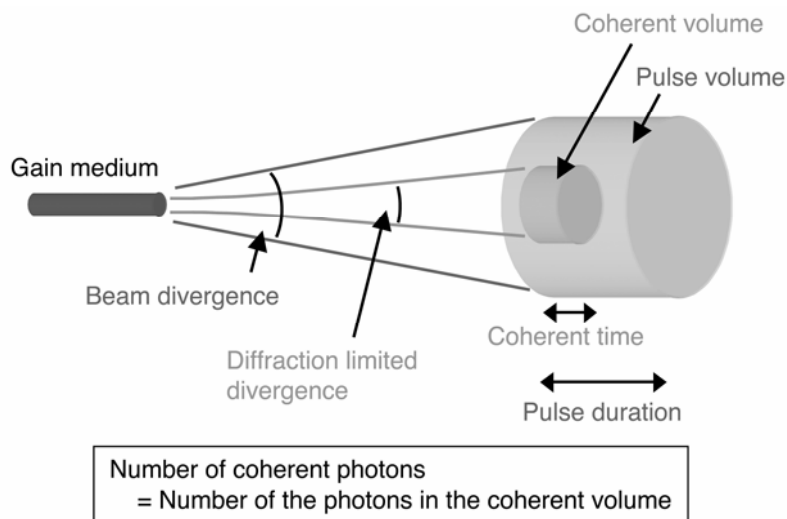


Figure 2-32. コヒーレント体積の見積もり方

コヒーレント体積は、光源サイズに対応した回折限界角と時間コヒーレント長で括られる体積である。この内部に含まれる光子数をコヒーレント光子数と呼ぶ。

とができる。放射光光源などの評価に一般的に用いられているピークブリリアンスを光子数に変換した量に対応する。この研究で発振した高コヒーレントX線レーザーの出力は25 nJであり、コヒーレント光子数は 10^8 個程度である。この値は第1章のFigure 1-2に示したように既存の放射光光源よりもはるかに高く、 10^8 倍に相当し、自由電子レーザーのデザインスペックと比べても遜色ない。自由電子レーザーが未だ建設中の現状ではこれに変わる光源は無く、非線形光学過程の検出など、高輝度光コヒーレンスが要求される計測の唯一の光源として期待されている。

参考文献

- [1] J. H. Scofield and B. J. MacGowan, "Energies of nickel-like 4d to 4p laser lines," *Phys. Scr.* **46**, pp.361-364 (1992).
- [2] H. Tang, H. Daido, M. Kishimoto, K. Sukegawa, R. Tai, S. Mosesson, M. Tanaka, R. Lu, T. Kawachi, K. Nagashima, K. Nagai, T. Norimatsu, K. Murai, H. Takenaka, Y. Kato, K. Mima, K. Nishihara, "Spatial coherence measurement of 13.9 nm Ni-like Ag soft x-ray laser pumping 1.5 ps, 20 J laser," *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, pp.443-448 (2003).
- [3] A. Lucianetti, K. A. Janulewicz, R. Kroemer, G. Priebe, J. Tümmeler, W. Sandner, P. V. Nickles, V. I. Redkorechev, "Transverse spatial coherence of a transient nickellike silver soft-x-ray laser pumped by a single picosecond laser pulse," *Opt. Lett.* **29**, pp.881-883 (2004).
- [4] A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, A. Carillon, G. Jamelot, R. Smith, F. Strati, G. J. Tallents, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, P. Nickles, K. A. Janulewicz, F. Bortolotto, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A. G. MacPhee, C. Chenais-Popovics, J. C. Chanteloup, D. Joyeux, D. Phalippou, H. Daido, H. Tang, "Temporal and far-field characterization of the transient Ni-like Ag X-ray laser under traveling-wave irradiation," *Proc. SPIE* **4505**, pp.75-84 (2001).
- [5] A. Klisnick, O. Guilbaud, D. Ros, K. Cassou, S. Kazamias, G. Jamelot, J.-C. Lagron, D. Joyeux, D. Phalippou, Y. Lechantre, M. Edwards, P. Mistry, G. J. Tallents, "Experimental study of the 13.9 nm transient X-ray laser," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **99**, pp.370-380 (2006).
- [6] M. Tanaka, T. Kawachi, M. Kado, N. Hasegawa, K. Sukegawa, A. Nagashima, Y. Kato, H. Takenaka, "Gain profile of transient collisional excitation x-ray laser," *J. Phys. IV France* **11**, Pr2 pp.55-57 (2001).
- [7] M. Tanaka, T. Kawachi, M. Kado, N. Hasegawa, K. Sukegawa, P. Lu, K. Nagashima, Y. Kato, H. Takenaka, "Near field imaging of the transient collisional excitation Ni-like Ag x-ray laser," *Surface Rev. Lett.* **9**, pp.641-644 (2002).
- [8] 田中桃子、河内哲哉、「プラズマX線レーザー媒質の高空間分解測定」、*J. Plasma Fusion Res.* **79**, pp.386-390 (2003).
- [9] T. Kawachi, M. Kado, M. Tanaka, A. Sasaki, N. Hasegawa, A. V. Kilpio, S. Namba, K. Nagashima, P. Lu, K. Takahashi, H. Tang, R. Tai, M. Kishimoto, M. Koike, H. Daido, Y. Kato, "Gain saturation of nickel-like silver and tin x-ray lasers by use of a tabletop pumping laser system," *Phys. Rev. A* **66**, p.033815 (2002).
- [10] A. Sasaki, T. Utsumi, K. Moribayashi, M. Kado, M. Tanaka, N. Hasegawa, T. Kawachi, H. Daido, "The gain distribution of the transient collisional excited x-ray lasers," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **71**, pp.665-674 (2001).
- [11] J. Nilsen and J. Dunn, "Modeling of short-pulse-driven nickel-like x-ray lasers and recent experiments," *Proc. SPIE* **4505**, pp.100-106 (2001).

- [12] M. Tanaka, M. Nishikino, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Kado, M. Kishimoto, K. Nagashima, Y. Kato, "X-ray laser beam with diffraction-limited divergence generated with two gain media," *Opt. Lett.* **28**, pp.1680-1682 (2003).
- [13] M. Nishikino, M. Tanaka, K. Nagashima, M. Kishimoto, M. Kado, T. Kawachi, K. Sukegawa, Y. Ochi, N. Hasegawa, Y. Kato, "Demonstration of a soft-x-ray laser at 13.9 nm with full spatial coherence," *Phys. Rev. A* **68**, p.061802(R) (2003).
- [14] K. Nagashima, M. Tanaka, M. Nishikino, M. Kishimoto, M. Kado, T. Kawachi, N. Hasegawa, Y. Ochi, K. Sukegawa, R. Tai, Y. Kato, "Development of a full spatial coherent X-ray laser at 13.9 nm," *Appl. Phys. B* **78**, pp.927-932 (2004).
- [15] T. Kawachi, M. Kado, M. Tanaka, N. Hasegawa, K. Nagashima, K. Sukegawa, P. Lu, K. Takahashi, S. Namba, M. Koike, A. Nagashima, Y. Kato, "Development of a pumping laser system for x-ray laser," *Appl. Opt.* **42**, pp.2198-2205 (2003).
- [16] 助川鋼太、岸本牧、加道雅孝、「ダブルターゲットX線レーザー用高安定ターゲット装置の開発」、*JAERI-Tech* **2004-077** (2005).
- [17] M. Koike, T. Namioka, E. Gullikson, Y. Harada, S. Ishikawa, T. Imazono, S. Mrowka, N. Miyata, M. Yanagihara, J. H. Underwood, K. Sano, T. Ogiwara, O. Yoda, S. Nagai, "Varied-line-spacing laminar-type holographic grating for the standard soft x-ray flat-field spectrograph," *Proc. SPIE* **4146**, pp.163-170 (2000).
- [18] B. L. Henke, E. M. Gullikson, J. C. Davis, "X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E = 50$ -30,000 eV, $Z = 1$ -92," *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **54**, pp.181-342 (1993).
- [19] N. Hasegawa, T. Kawachi, T. Utsumi, A. Sasaki, M. Tanaka, M. Kado, K. Sukegawa, P. Lu, M. Kishimoto, R. Tai, K. Nagashima, M. Koike, H. Daido, Y. Kato, "High-precision measurement of the wavelength of a nickel-like silver X-ray laser," *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, pp.2519-2522 (2004).
- [20] G. L. Linfood, E. R. Peressini, W. R. Sooy, M. L. Spaeth, "Very long lasers," *Appl. Opt.* **13**, pp.379-390 (1974).
- [21] Y. Li, J. Dunn, J. Nilsen, T. W. Barbee Jr., L. B. DaSilva, A. Osterheld, V. N. Shlyaptsev, "Near field imaging of a saturated table top x-ray laser," *Proc. SPIE* **3776**, pp.45-51 (1999).
- [22] O. Guilbaud, A. Klisnick, K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, G. Jamelot, D. Joyeux, D. Phalippou, "Origin of microstructures in picosecond x-ray laser beams," *Europhys. Lett.* **74**, pp.823-829 (2006).
- [23] N. Ohnishi, M. Nishikino, A. Sasaki, "Numerical analysis of plasma medium of transient collisional excited x-ray laser," *J. Phys. IV France* **133**, pp.1193-1195 (2006).
- [24] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation Interference and Diffraction of Light* (Pergamon Press, Oxford, ISBN 0-521-642221, 1999).
- [25] J. W. Goodman, *Statistical Optics* (Wiley-Interscience Publication, New York, ISBN 0-471-01502-4, 2000).
- [26] L. Mandel and E. Wolf, *Optical Coherence and Quantum Optics* (Cambridge University Press, New York, ISBN 0-521-41711-2, 1995).
- [27] E. Wolf, "Coherence and radiometry," *J. Opt. Soc. Am.* **68**, pp.6-17 (1978).
- [28] Y. Ochi, T. Kawachi, N. Hasegawa, A. Sasaki, K. Nagashima, K. Sukegawa, M. Kishimoto, M. Tanaka, M. Nishikino, M. Kado, "Measurement of temporal durations of transient collisional excitation x-ray lasers," *Appl. Phys. B* **78**, pp.961-963 (2004).

[29] Ph. Zeitoun, G. Faive, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, C. Valentin, “A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam,” *Nature* **431**, pp.426-429 (2004).

[30] Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, J. J. Rocca, “High-brightness injection-seeded soft-x-ray-laser amplifier using a solid target,” *Phys. Rev. Lett.* **97**, p.123901 (2006).

3. 時間分解分光計測

3.1 EUVシンチレーション物質の概要

シンチレーション物質は、粒子線やX線等、目に見えない放射線を可視光や紫外光に変換するもので、放射線の光軸調整の際にビームの照射点を可視化するのに用いられるほか、ビームの強度や時間変化などを計測するのにも使用される。シンチレーターに求められる要件としては以下のようなものが考えられる。

- ・シンチレーション変換効率が低い。
- ・発光スペクトルがCCDなどの検出器の分光感度特性と一致している。
- ・発光の減衰が速い。
- ・励起波長によって発光特性が変化しない。
- ・温度、湿度などの環境による劣化が少ない。

更に、EUV領域で使用する場合には、真空中で取り扱う必要性や、マシンタイム等の関係上ショット数が制約されることから、市販の可視・紫外レーザーなどを用いて事前にアライメントができることが要求される。従って、調整用に用いる紫外光などとEUVとで、シンチレーション発光のスペクトルや時間減衰などの振る舞いは同じであることが望ましい。

放射線照射により可視光を発する物質は数多く存在するが、放射線励起と直接励起で発光特性が異なる[1]などの問題があることが多く、シンチレーターとして用いる前に使用する放射線で評価を行っておく必要がある。代表的な高速シンチレーション物質としてはサリチル酸ナトリウム、アントラセン、プラスチックシンチレーター、ヨウ化ナトリウム、ヨウ化セシウム、フッ化バリウムなどが挙げられる[2-4]。サリチル酸ナトリウムはEUV領域での評価も成されているが[5, 6]、蛍光寿命が10 ns程度と長い[7]。アントラセンなどの芳香族系有機結晶は昇華性であるために真空中で取り扱う必要のあるEUV領域での使用には不向きである。ヨウ化ナトリウム、ヨウ化セシウムは潮解性があり、フッ化バリウムは発光寿命は短く[8, 9]大型の単結晶も作成されているが[10]、発光波長が真空紫外域で扱いにくい。X線蛍光板など、硬X線のイメージング用に用いられている物質の大部分は発光寿命がマイクロ秒近くで長い[3]。近年、これらに代わる高速シンチレーターの候補として様々な無機材料が試験されており[11-14]、ワイドギャップ半導体である酸化亜鉛(ZnO)は特に有望視されているものの一つである[13, 14]。しかしながら、EUV領域、特にリソグラフィーで有望視されている波長13~14 nm周辺では効率的な光源が得にくいために、シンチレーターの時間特性に関する評価はあまり成されていなかった。第3章では、ZnO単結晶をEUVリソグラフィー用シンチレーターとして用いる可能性について、波長13.9 nmのX線レーザーを用いて評価した結果を示す。

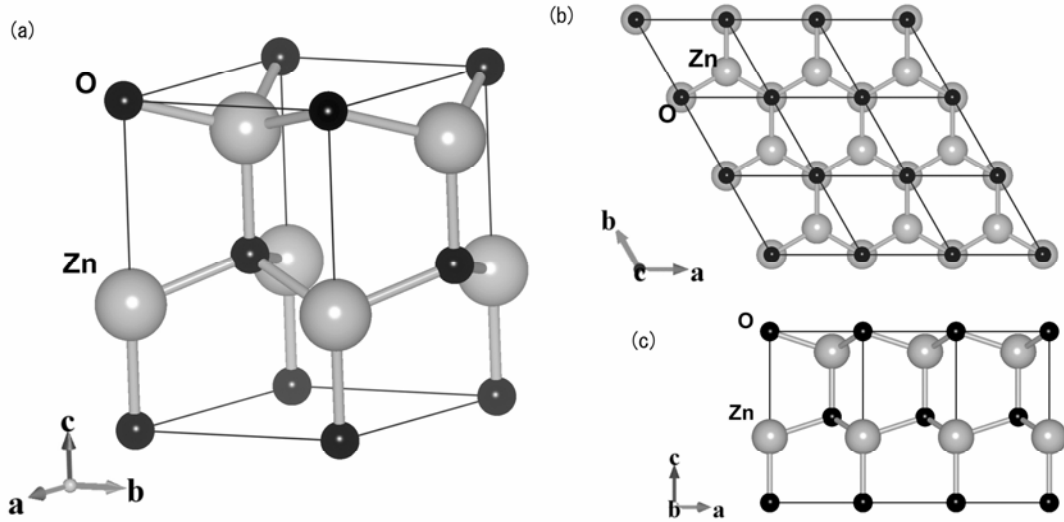


Figure 3-1. ZnOの結晶構造

常圧ではウルツ鉱型の結晶構造をとる。格子定数は $a = 3.25 \text{ \AA}$ 、 $c = 5.2 \text{ \AA}$ である[15]。
 (a) 立体図、(b) 平面図、(c) 側面図。図は三次元可視化ソフトウェア VESTA [16] により描画した。

3.2 酸化亜鉛 (ZnO) の概略

ZnOは無色透明、粉末では白色の物質で、常圧では Figure 3-1 に示したような六方晶系ウルツ鉱型の結晶構造をとる[15]。この物質はII-VI族のワイドギャップ半導体で、紫外領域に吸収を持つ。環境中にありふれた物質であり、人体にも無害であることから、古くより白色顔料や化粧品、ブラウン管などの発光材料に用いられる一方、電気的性質からバリスタや化学センサなど多岐にわたって利用されてきた。近年、高純度の単結晶や薄膜の作成技術の進歩により、原材料の枯渇が問題となっているインジウム-スズ酸化物 (ITO) に代わる透明電極素材や、窒化ガリウム (GaN) に代わる半導体材料として期待され、精力的な研究が進められている[17, 18]。

ZnOは、Figure 3-2 に示した模式図のように価電子帯のピークと伝導帯の底がk空間の Γ 点上に揃ったバンド構造を持っており[18-20]、運動量の変化を伴わない直接遷移を起こす物質として知られている。励起状態において、伝導電子と正孔がクーロン力によって引き合い、対になって結晶中を動き回るエキシトン（励起子）と呼ばれる状態を形成し、380 nm 付近でエキシトン発光が観測される[14, 17-19]。エキシトンは、模式図に示したように、主量子数 $n = \infty$ で伝導帯下端に達するような水素原子様のエネルギー準位を形成する。ZnOの場合、エキシトン準位の束縛エネルギーは 60 meV で、この値は室温の熱エネルギー 26 meV 程度と比べて十分大きく、紫外域での高

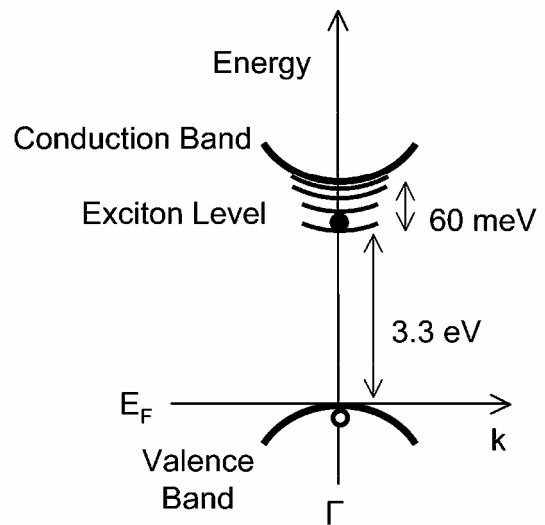


Figure 3-2. ZnOのバンド構造の模式図

い発光効率が見込める。また、発光波長 380 nm に対して合成フューズドシリカが透明であり、汎用に広く用いられている光学ガラス BK 7 でも厚さ 25 mm で内部透過率 98% と高い透過率を有するので、光学系を構成するのに特殊な材質を使用する必要が無く、取り扱いが容易である。このことは、シンチレータとして用いる際に検出対象である EUV が真空中で取り扱う必要性があるにもかかわらず、波長変換後は大気中に取り出して一般的な可視域の光学系により取り扱うことができることを意味しており、検出系の高精度化、低コスト化を考える意味でも重要である。

シンチレータを用いて画像計測をすることを考えた場合、取得する画像領域分の面積で均一な表面が要求される。多結晶体の場合は微結晶の向きなどにより発光強度に空間ムラが生ずることがあり[21]、粒径により空間分解能が左右されるので、単結晶であることが望ましい。ZnO は紫外から青色の発光ダイオード素材として注目を集めており[22-24]、大口徑で高品質の結晶を作成することが可能になった[25-27]。東北大学福田研究室は東京電波株式会社との共同研究で、ソルボサーマル法により 3 インチ径の ZnO の育成に成功している[27]。ソルボサーマル法は溶媒を超臨界流体の状態にして結晶を溶液成長させる手法で、ZnO のように常圧高温で分解してしまうために融液成長の難しい物質の単結晶育成に用いられる。大型のバルク単結晶が作成可能で、工業化にも適している。溶媒を水とした場合を特に水熱合成法と呼び、古くより人工水晶などの量産に用いられてきた。ソルボサーマル法では、オートクレーブ内に原料と溶媒、種結晶を設置し、種結晶側が低温になるように温度勾配をつけて高温高圧を保持することで、超臨界流体となった溶媒の対流により原料物質の輸送が行われ、継続的な結晶成長が行われる。溶媒には、ZnO の結晶作成の場合は水、GaN などではアンモニアが使用される[28]。東北大学では器壁からの不純物の混入を避けるため、オートクレーブ内筒を白金で製作し、高純度の結晶作成を実現している。

3.3 時間分解分光計測

3.3.1 試料

ZnO 試料は、単結晶 (0001) 面を使用した。Figure 3-3 に試料の写真を示す。この試料は、東北大学福田研究室で白金容器を用いた水熱合成法により作成されたもので、母結晶は Figure 3-4 に示したような、大きさ 2 インチ、不純物濃度は最も高いリチウムで 1 ppm 未満、欠陥濃度もきわめて少ない高品質の結晶である[25, 26]。本研究では、物性計測用サンプルとして、東京電波株式会社により 10 mm × 10 mm × 0.5 mm にカットし、研磨されたものを使用した。

3.3.2 計測系

波長 13.9 nm のニッケル様銀 X 線レーザーを試料に照射し、分光器とストリークカメラを用いて試料からの蛍光を時間分解分光計測した[29, 30]。また、紫外光による直接励起の計測も同じ配置で行い、EUV 励起の場合と差異があるかどうかの比較を行った。Figure 3-5 に計測系の配置図、Figure 3-6 に写真を示す。分光器は CHROMEX 製 Imaging Spectrograph 250-is、ストリークカメラは浜松ホトニクス製 C1587 (低速ユニット M1953 使用) を用いた。X 線レーザーは窓材や大気中を透過しないために、照射実験はすべて真空中で行う必要がある。試料からの発光は石英レンズを用いて並行光にしたのち、石英窓を通して真空容器の外に導き、再び石英レンズにより集光して分光器のスリット位置に結像した。励起光との同期は、ストリークカメラのトリガ信号を、X 線レーザードライバ用レーザーのマスタークロックとして使用しているパルスジェネレータ

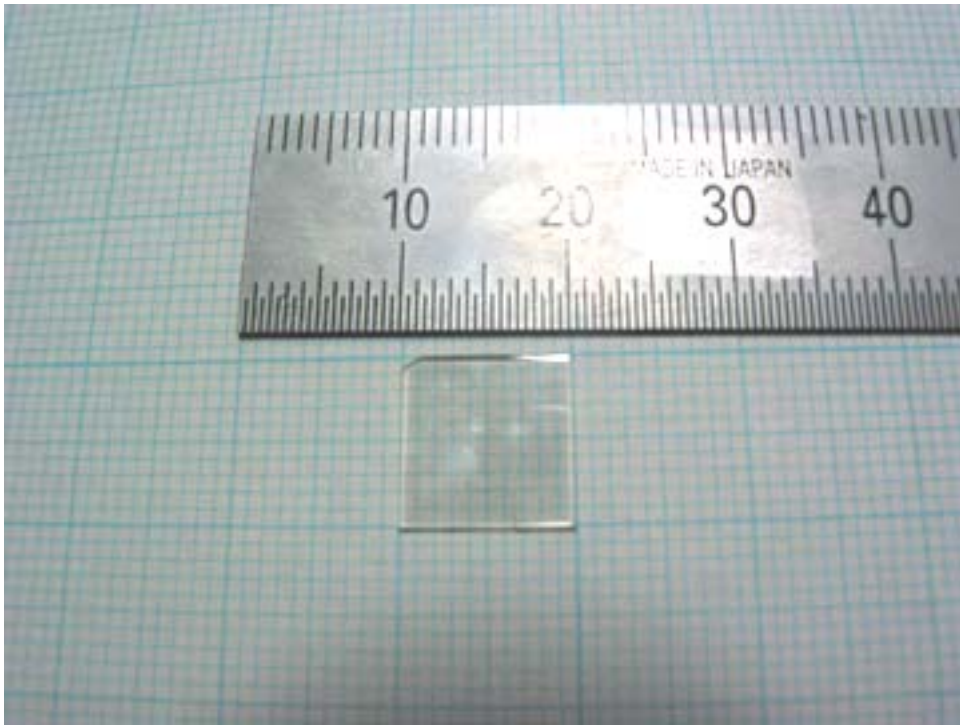


Figure 3-3. ZnO試料

東北大学で作成された単結晶の(0001)面を使用した。直径2インチの母結晶から切り出したもので、試料の大きさは10 mm × 10 mm × 0.5 mmである。

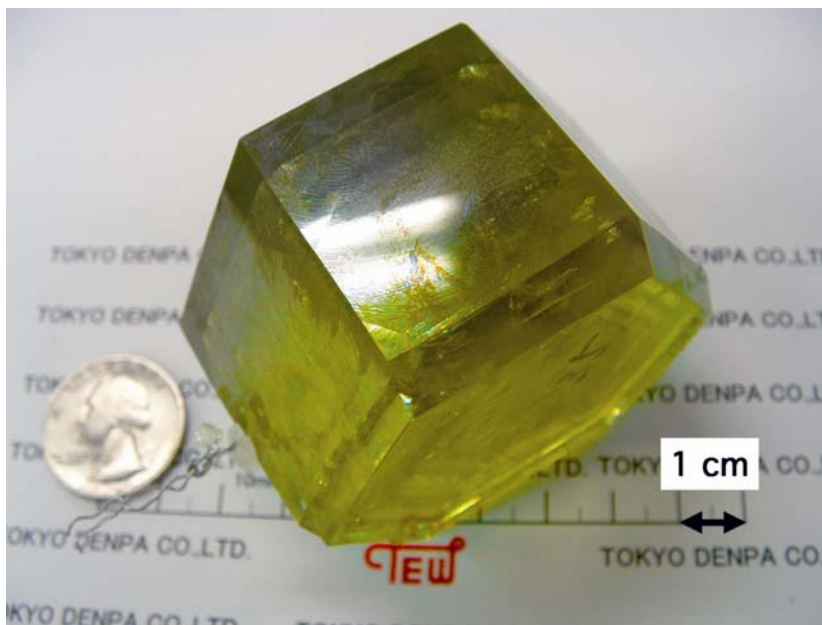


Figure 3-4. ZnO試料母結晶

東北大学で水熱合成法により作成された、直径2インチのZnO単結晶である。

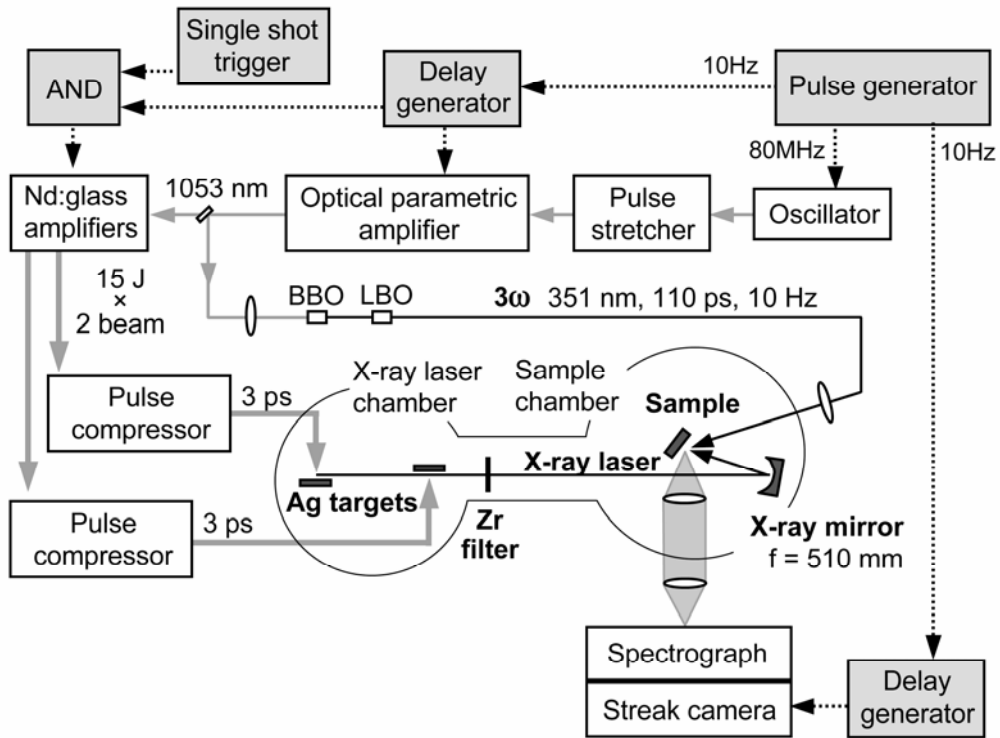


Figure 3-5. X線レーザー励起による時間分解分光計測のセットアップ

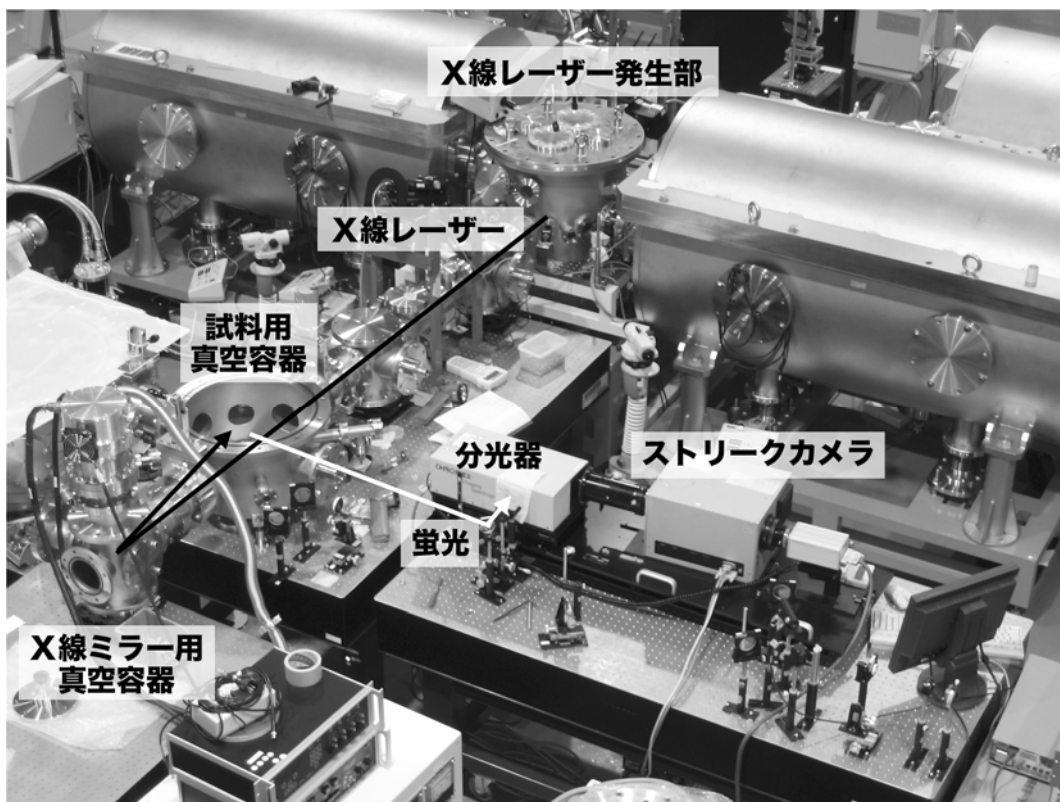


Figure 3-6. 計測系写真

(Tektronix DTG5274) より取ることで、ピコ秒程度のジッターに押さえることができる。これは、ストリークカメラの内部ジッターが 50 ns レンジの場合数ナノ秒であるのに対し、十分小さい値である。

X線レーザーは直径 25 mm、曲率半径 1020 mm の 13.9 nm 用モリブデン・シリコン多層膜球面ミラーを用いて試料上に集光した。アライメントは、ダイオードレーザーを X線レーザーと同軸に通し、利得媒質の末端で一旦フォーカ

スさせたものを用いて行った。集光点でのスポットサイズは、縮小光学系の倍率 1/4 と X線レーザーの利得領域の大きさから、10~20 μm 程度と見積もることができる。試料に X線レーザー媒質プラズマからの自発光が当たることを防ぐために、X線レーザー光路上に厚さ 0.2 μm 、直径 20 mm のフリースタンドのジルコニウム箔を挿入し、可視・紫外光カットのフィルターとした。また、迷光を避けるためにフィルターの外周には遮光板を設置した。Figure 3-7 に Henke のデータテーブル[31]より計算したフィルターの透過スペクトルを示す。フィルター、多層膜ミラーの効率から、試料表面での X線レーザーの光子数は 10^{10} 個程度と見積もられる。X線レーザーのパルス幅は第 2 章で示したように 7 ps 程度である。この強度で 50 ショットの照射では、目視で確認できるような試料の損傷は発生しておらず、発光スペクトルや時間減衰にも変化はなかった。

紫外光励起の実験は、Figure 3-5 に示したように X線レーザー生成用ガラスレーザーのシードレーザー光を BBO と LBO の結晶を用いて 3 倍波に変換し、これを励起光とした。波長は基本波が 1053 nm であるため、3 倍波は 351 nm である。Figure 3-8 に高速ストリークカメラ (浜松ホトニクス FESCA-200) で計測した紫外光の時間波形を示す。基本波がパルスストレッチされているため、パルス幅は長めで 110 ps 程度であるが、この実験での時間分解能としては問題ない。

また、試料用真空容器にクライオスタットを設置し、試料の温度変化による発光の変化を観測した[32]。Figure 3-9 に試料用真空容器内部の写真を示す。試料はセラミックス (マコール) 製のポールで断熱した銅の試料ホルダに固定し、クライオスタットのコールドヘッド等の冷却による縮みの影響で試料位置が変化することを防ぐために、試料ホルダとコールドヘッドの間はフレキシブルな銅メッシュ線で接続した。試料の温度は試料ホルダに取り付けたシリコンダイオードセンサにより計測した。試料の最低到達温度は 25 K であった。

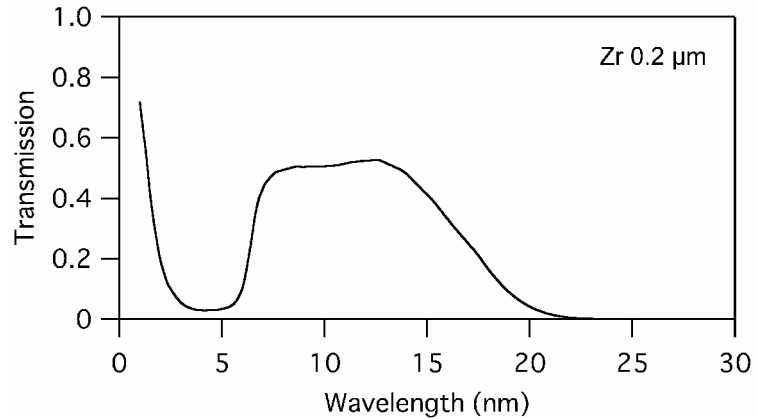


Figure 3-7. ジルコニウムフィルターの透過率曲線
ジルコニウム 0.2 μm の場合、波長 13.9 nm での透過率は 49% である。

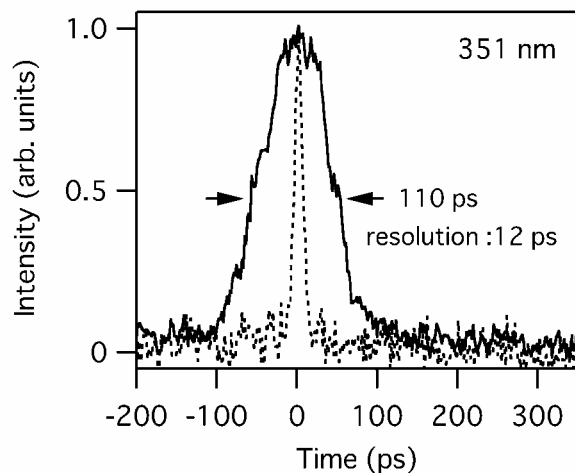


Figure 3-8. 紫外光励起の光源として用いたガラスレーザー 3 倍波の時間波形。

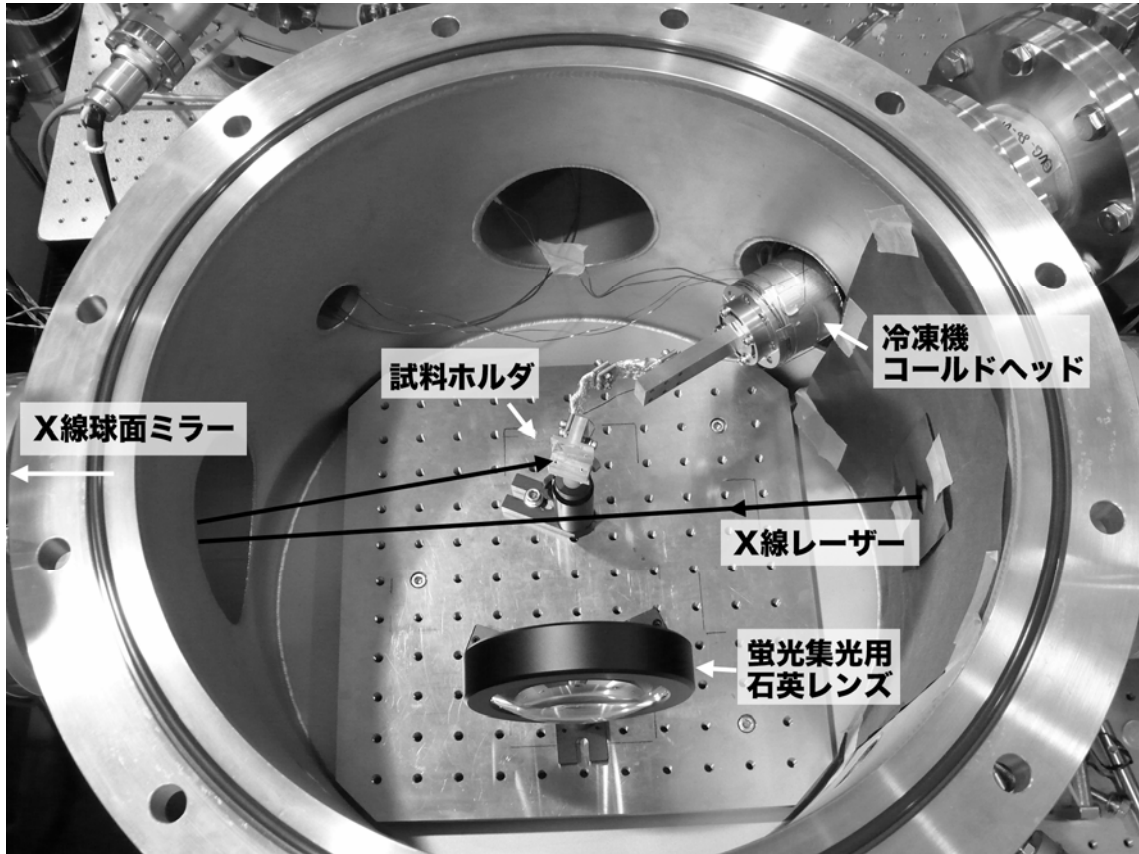


Figure 3-9. 試料用真空容器の内部の様子

セラミックス製のボールで断熱した銅の試料ホルダに試料を固定し、ホルダをフレキシブルな銅メッシュ線でコールドヘッドに接続した。試料からの発光は石英レンズを用いて並行光にしたのち、石英窓を通して真空容器の外に取り出した。

3.3.3 結果と考察

Figure 3-10 (a)にX線レーザー励起の分光ストリーク像を示す[29, 30]。ノイズレベルを減らすために3ショット積算してあるが、1ショットの計測でも解析可能な程度の信号強度が得られている。Figure 3-10 (b)に発光の時間減衰を示す。ストリーク像のピークを波長方向に20ピクセル分積算したものである。図中に実線で示したように、

$$I = A_1 \exp(-t/\tau_1) + A_2 \exp(-t/\tau_2) \quad (3.1)$$

で表されるような2つの指数関数の和でフィッティングすることができる。2つの時定数 τ_1 、 τ_2 はそれぞれ1 ns、3 nsである。ZnOの単結晶で発光寿命が2成分で表されることは紫外線励起の計測で指摘されており、速い寿命成分はフリーエキシトンの寿命、遅い成分はトラップや発光のプロセスを含んだキャリアの寿命を反映しているとされている[14, 33]。Figure 3-10 (c)、(d)に示したのは比較のため紫外光(351 nm)励起で同様の計測を行った結果である。短波長側にある信号は、励起光の試料表面からの散乱であり、これを用いて波長を校正している。発光の時間減衰はX線レーザー励起の場合と同様2つの指数関数の和で現され、時定数や比率も同程度である。

次に発光の温度変化の計測結果を示す。Figure 3-11に示したのは、各温度での発光の時間減衰を重ねたものである[32]。常温から140 K付近までは大きな差異は認められないが、100 K付近から減衰が早くなっている。Figure 3-12に25 Kのときの発光の時間減衰を示す。常温ではFigure 3-10

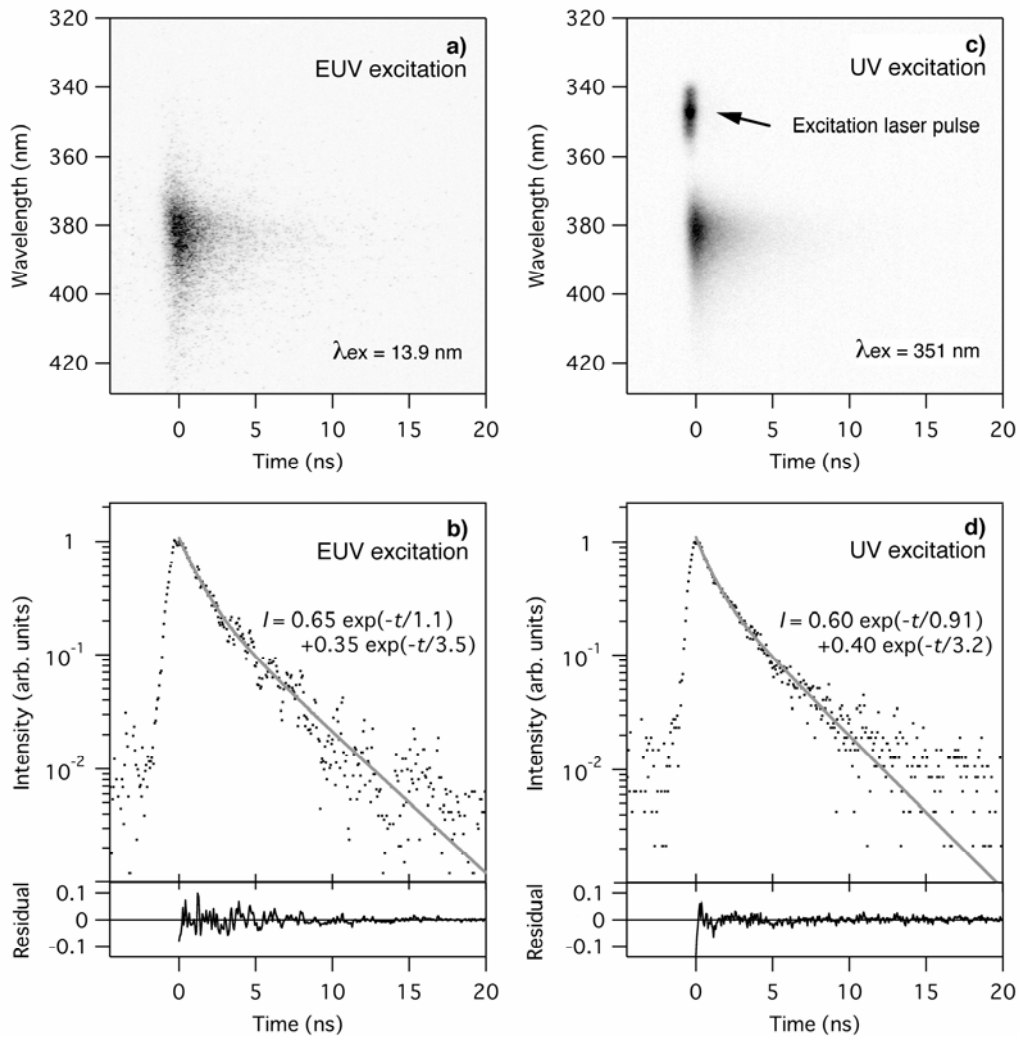


Figure 3-10. ZnO単結晶の発光の分光ストリーク像

a), b) X線レーザー励起 (13.9 nm)、c), d) 紫外レーザー励起 (351 nm)。図 c) の励起光の像より見積もったこの計測の時間分解能は、0.8 ns である。図 b), d) に線で示したのはフィッティング関数で、 $I = A_1 \exp(-t/\tau_1) + A_2 \exp(-t/\tau_2)$ で記述される 2 つの指数関数の和で表すことができる。フィッティングパラメーターは、EUV (X線レーザー) 励起の場合で $A_1 = 0.65$, $A_2 = 0.35$, $\tau_1 = 1.1$ ns, $\tau_2 = 3.5$ ns、紫外励起の場合で $A_1 = 0.60$, $A_2 = 0.40$, $\tau_1 = 0.9$ ns, $\tau_2 = 3.2$ ns であり、2 つの時定数と成分比が両計測においてほぼ一致している。

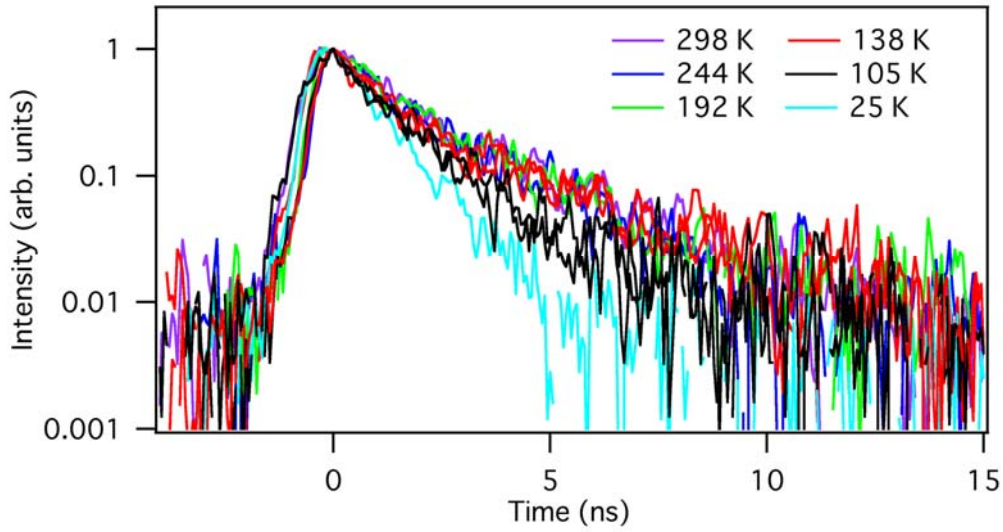


Figure 3-11. 各温度での発光の時間減衰を重ねたもの。100 K 付近から減衰が早くなっている。

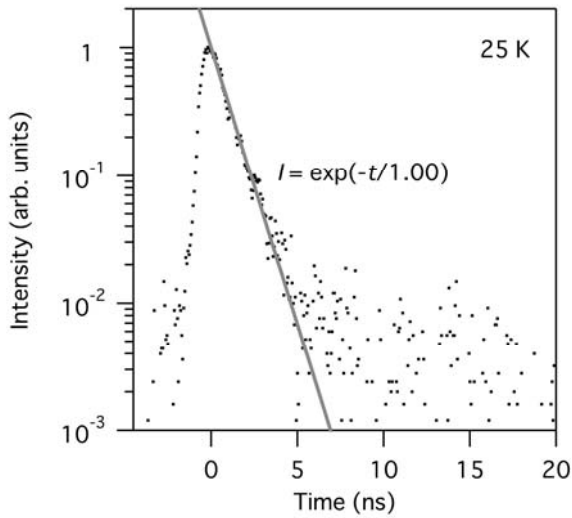


Figure 3-12. 25 K のときの発光の時間減衰

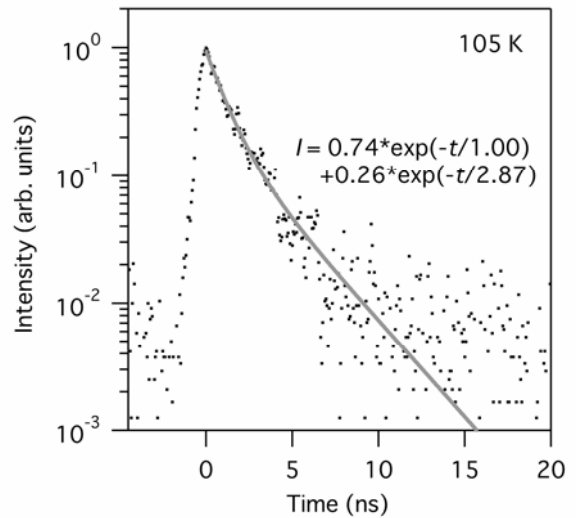


Figure 3-13. 105 K のときの発光の時間減衰

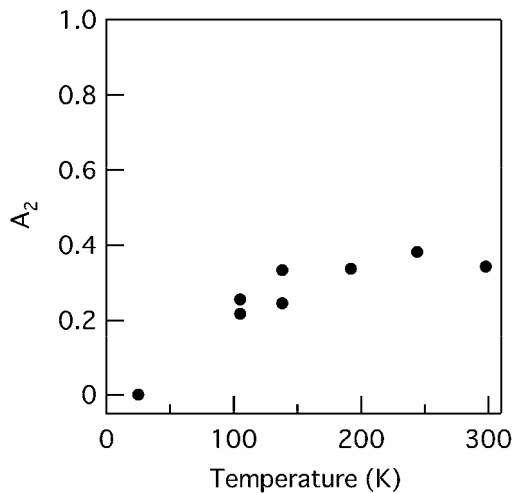


Figure 3-14 長寿命成分のフィッティング係数 A_2 を試料の温度に対してプロットしたものの。100~130 K のあたりから減少していく。

(b)に示したように発光の時間減衰は2成分の和になっていたが、低温では時定数1 nsの単独の指数関数でフィッティングできる。

一方、105 Kのデータ (Figure 3-13) では常温と同様の時定数を持つ2成分で表せるが、時定数の長い成分の比率が常温と比べて少なくなっている。Figure 3-14に長い成分のフィッティング係数 A_2 を試料の温度に対してプロットしたものを示す。発光の長寿命成分が100~130 Kのあたりから減少していく様子がわかる。長寿命成分はトラップの影響を受けたキャリアの寿命を反映していると考えられることから、低温で長寿命成分が消えるのは、熱励起によるキャリア生成が無くなるからであると説明できる。長寿命成分の消失は紫外光励起の場合でも同様の振る舞いが観測されており、EUV励起によりエキシトン発光が特殊なプロセスを踏んでいるわけではない。

Figure 3-15に試料を冷却したときの発光スペクトルの変化を示す[32]。スペクトルはエキシトン発光のピークで強度を規格化してある。紫外光励起の場合の左側のピークは励起光の散乱光で、これを元に波長校正を行った。380 nm付近のエキシトン発光は低温で370 nm付近まで短波長シフトし、スペクトル幅も狭くなっている。このような傾向は紫外光による直接励起の研究では以

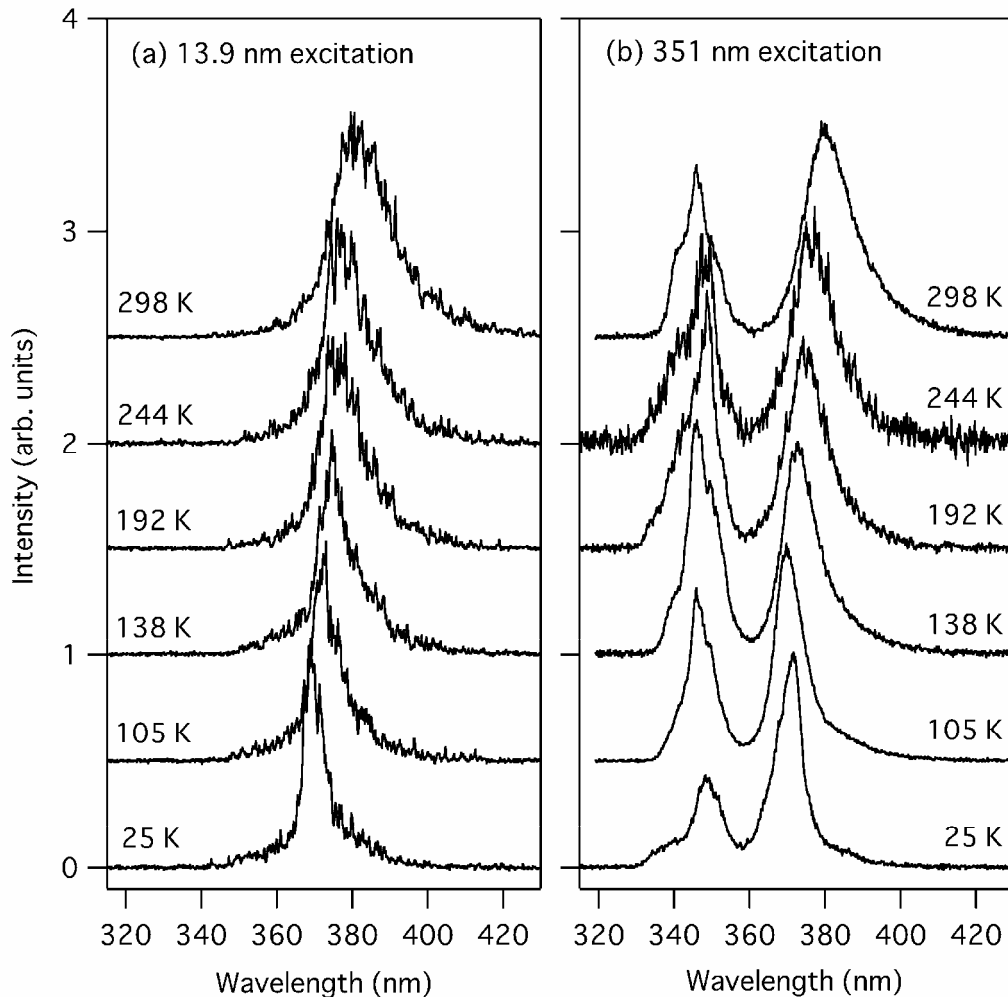


Figure 3-15. ZnO単結晶の発光スペクトルの温度変化

(a) 13.9 nm 励起、(b) 351 nm 励起のエキシトン発光のスペクトル。(b)の左側のピークは励起光である。EUV励起、UV励起共に380 nm 付近のエキシトン発光が低温で370 nm 付近まで短波長シフトし、スペクトル幅も狭くなる。

前より知られており、次のように説明されている。一般に、半導体のバンドギャップは、低温になるとフォノン振幅が減り許容帯幅が狭まるため、スペクトル幅が狭まる[34]。また、許容帯幅が狭まるということは禁制帯幅が広がることを意味するので、スペクトルは短波長シフトする。更にZnOの場合、常温では光学フォノンとカップリングした自由励起子の発光が優勢であるが、低温では束縛励起子優勢になり短波長シフトするとされている[14, 35]。13 nm 付近の励起でも紫外光励起の場合と全く同じ振る舞いを示していることから、同一のバンド間遷移を観測していると言うことができ、スペクトルの振る舞いについても紫外光励起の場合と同様の説明が成り立つ。

EUV励起によるZnOの発光のメカニズムについては次のように考えられる。ZnOの内殻を含んだ状態密度は、Figure 3-16 に示した模式図のように表される[36, 37]。波長 13 nm (~90 eV) 付近ではZnの3p電子の内殻励起が効率よく起こり得る。3p準位に生成したホールは、荷電子帯からの発光又はオージェ過程を伴う遷移により容易に消失し、伝導帯と価電子帯に電子-正孔対が残る。これらの過程は同一サイト上で起こるので、紫外光による直接励起の場合と同様、エキシトン状態が効率的に生成すると考えられる。一方、価電子帯の電子が直接EUV光を吸収して真空準位に励起された後、再結合により伝導帯と価電子帯に電子-正孔対が生成するプロセスも考えられる。詳細な議論を行うには、オージェ電子の計測など更なる研究が必要である。

今回の計測で得られたZnO単結晶の発光寿命は、パルス幅が数ナノ秒程度の励起レーザーを用いて発生させているEUVリソグラフィー用の光源と比べて短く、ZnO単結晶がシンチレーターとして十分な時間分解能を持っていることが示された。また、紫外光による直接励起とEUVによる励起で発光の振る舞いに差異がなく、計測に用いる際に紫外域のダイオードレーザーやパルスレーザーなどによるアライメントが可能である。ZnOは工業的に大型の単結晶が作成可能で、発光スペクトルも一般的な光学ガラスが使用可能な波長領域であり、シンチレーターとしては有望な材料であるといえる。

参考文献

- [1] Y. Suzuki, T. Kozeki, S. Ono, H. Murakami, H. Ohtake, N. Sarukura, T. Nakajyo, F. Sakai, Y. Aoki, "Hybrid time-resolved spectroscopic system for evaluating laser material using a table-top-sized, low-jitter, 3-MeV picosecond electron-beam source with a photocathode," Appl. Phys. Lett. **80**, pp.3280-3281 (2002).

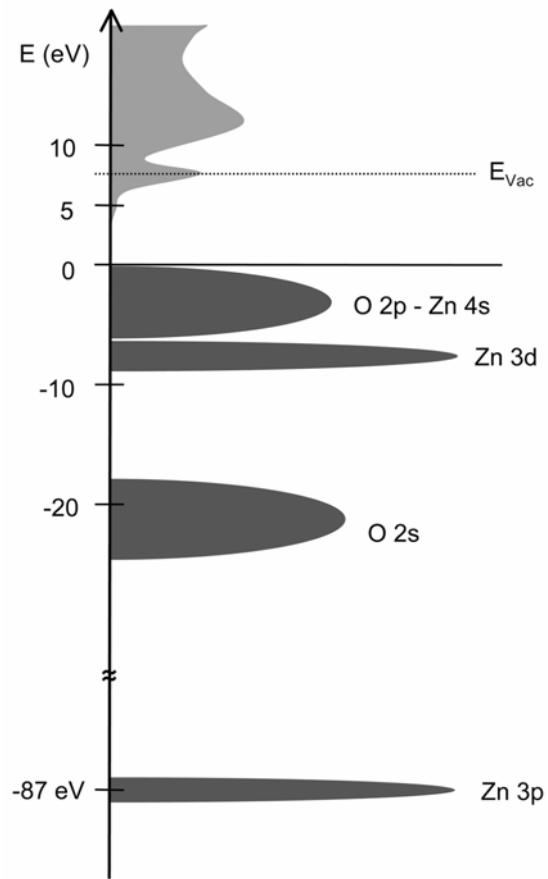


Figure 3-16. ZnOの状態密度の模式図 [36, 37]。簡略化のため、Znの3p、3dの密度は縮小してある。

- [2] J. A. R. Samson, *Techniques of vacuum ultraviolet spectroscopy* (John Wiley & Sons, Inc. New York, 1967).
- [3] 蛍光体同学会編、『蛍光体ハンドブック』 (オーム社、ISBN 4-274-03183-7, 1987)
- [4] S. E. Derenzo, W. W. Moses, J. L. Cahoon, R. C. C. Perera, J. E. Litton, "Prospects for new inorganic scintillators," *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **37**, pp.203-208 (1990).
- [5] G. C. Angel, J. A. R. Samson, G. Williams, "Relative fluorescent efficiency of sodium salicylate between 90 and 800 eV," *Appl. Opt.* **25**, pp.3312-3316 (1986).
- [6] D. E. Husk, C. Tarrío, E. L. Benitez, "Absolute photoluminescent efficiency and photon damage of sodium salicylate in the soft-x-ray regime," *J. Opt. Soc. Am. B* **9**, pp.152-156 (1992).
- [7] G. J. Baker, B. Brocklehurst, I. R. Holton, "Time dependence of sodium salicylate luminescence excited by VUV photons, x-rays and β particles: magnetic field effects," *J. Phys. B* **20**, pp.L305-L310 (1987).
- [8] M. Laval, m. Moszynski, R. Allemand, E. Cormoreche, P. Guinet, R. Odru, J. Vacher, "Barium fluoride - inorganic scintillator for subnanosecond timing," *Nucl. Instr. and Meth.* **206**, pp.169-176 (1983).
- [9] P. A. Rodnyi, M. A. Terekhin, E. N. Mel'chakov, "Radiative core-valence transitions in barium-based fluorides," *J. Lumi.* **47**, pp.281-284 (1991).
- [10] K. Kamada, T. Nawata, Y. Inui, H. Yanagi, H. Sato, A. Yoshikawa, M. Nikl, T. Fukuda, "Czochralski growth of 8 inch size BaF_2 single crystal for a fast scintillator," *Nucl. Instr. Meth. A* **537**, pp.159-162 (2005).
- [11] P. A. Rodnyi, "Progress in fast scintillators," *Rad. Meas.* **33**, pp.605-614 (2001).
- [12] M. Nikl, A. Yoshikawa, A. Vedda, T. Fukuda, "Development of novel scintillator crystals," *J. Cryst. Growth* **292**, pp.416-421 (2006).
- [13] P. J. Simpson, R. Tjossem, A. W. Hunt, K. G. Lynn, V. Munné, "Superfast timing performance from ZnO scintillators," *Nucl. Instr. and Meth. A* **505**, pp.82-84 (2003).
- [14] J. Wilkinson, K. B. Ucer, R. T. Williams, "Picosecond excitonic luminescence in ZnO and other wide-gap semiconductors," *Rad. Meas.* **38**, pp.501-505 (2004).
- [15] H. Karzel, W. Potzel, M. Köfferlein, W. Schiessl, M. Steiner, U. Hiller, G. M. Kalvius, D. W. Mitchell, T. P. Das, P. Blaha, K. Schwarz, M. P. Pasternak, "Lattice dynamics and hyperfine interactions in ZnO and ZnSe at high external pressures," *Phys. Rev. B* **53**, pp.11425-11438 (1996).
- [16] K. Momma, F. Izumi, "An integrated three-dimensional visualization system VESTA using wxWidgets," *Commission on Crystallogr. Comput. IUCr Newslett.* **7**, pp.106-119 (2006).
- [17] 八百隆文監修、『ZnO系の最新技術と応用』 (シーエムシー出版、2007).
- [18] Ü. Özgür, T. I. Alivov, C. Liu, A. Teke, M. A. Reshchikov, S. Doğan, V. Avrutin, S. -J. Cho, H. Morkoç, "A comprehensive review of ZnO materials and devices," *J. Appl. Phys.* **98**, p.041301 (2005).
- [19] D. M. Kolb and H. -J. Schulz, "Optical properties of zinc oxide," *Current Topics in Materials Science, Volume 7* (North-Holland Publishing Co. Amsterdam, 1981) pp.226-268.
- [20] S. Zh. Karazhanov, P. Ravindran, A. Kjekshus, H. Fjellvåg, B. G. Svensson, "Electronic structure and optical properties of ZnX ($X = \text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$): A density functional study," *Phys. Rev. B* **75**, p.155104 (2007).
- [21] P. Xu, X. Wen, Z. Zheng, G. Cox, H. Zhu, "Two-photon optical characteristics of zinc oxide in bulk, low dimensional and nanoforms," *J. Lumin.* **126**, pp.641-643 (2007).
- [22] H. Ohta, K. Kawamura, M. Orita, M. Hirano, N. Sarukura, H. Hosono, "Current injection emission from a transparent p-n junction composed of p- SrCu_2O_2 /n- ZnO ," *Appl. Phys. Lett.* **77**, pp.475-477 (2000).

- [23] A. Tsukazaki, A. Ohtomo, T. Onuma, M. Ohtani, T. Makino, M. Sumiya, K. Ohtani, S. F. Chichibu, S. Fuke, Y. Segawa, H. Ohno, H. Koinuma, M. Kawasaki, "Repeated temperature modulation epitaxy for p-type doping and light-emitting diode based ZnO," *Nat. Mater.* **4**, pp.42-46 (2005).
- [24] A. Tsukazaki, M. Kubota, A. Ohtomo, T. Onuma, K. Ohtani, H. Ohno, S. F. Chichibu, M. Kawasaki, "Blue light-emitting diode based ZnO," *Jpn. J. Appl. Phys.* **44**, pp.L643-L645 (2005).
- [25] E. Ohshima, H. Ogino, I. Niikura, K. Maeda, M. Sato, M. Ito, and T. Fukuda, "Growth of the 2-in-size bulk ZnO single crystals by the hydrothermal method," *J. Cryst. Growth* **260**, pp.166-170 (2004).
- [26] K. Maeda, M. Sato, I. Niikura, T. Fukuda, "Growth of 2 inch ZnO bulk single crystal by the hydrothermal method," *Semicond. Sci. Technol.* **20**, pp.S49-S54 (2005).
- [27] D. Ehrentaut, H. Sato, Y. Kagamitani, H. Sato, A. Yoshikawa, T. Fukuda, "Solvothermal growth of ZnO," *Prog. Cryst. Growth Caract. Mater.* **52**, pp.280-335 (2006).
- [28] T. Fukuda, D. Ehrentaut, "Prospects for the ammonothermal growth of large GaN crystal," *J. Cryst. Growth* **305**, pp.304-310 (2007).
- [29] M. Tanaka, M. Nishikino, H. Yamatani, K. Nagashima, T. Kimura, Y. Furukawa, H. Murakami, S. Saito, N. Sarukura, H. Nishimura, K. Mima, Y. Kagamitani, D. Ehrentaut, T. Fukuda, "Hydrothermal method grown large-sized zinc oxide single crystal as fast scintillator for future extreme ultraviolet," *Appl. Phys. Lett.* **91**, p.231117 (2007).
- [30] M Tanaka, Y Furukawa, H Murakami, S Saito, N Sarukura, M Nishikino, H Yamatani, K Nagashima, Y Kagamitani, D Ehrentaut, T Fukuda, H Nishimura, K Mima, "Evaluation of fast EUV scintillator using 13.9 nm x-ray laser," *Proceedings of 5th international conference on inertial fusion sciences and applications*, Accepted.
- [31] B. L. Henke, E. M. Gullikson, J. C. Davis, "X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E = 50\text{-}30,000$ eV, $Z = 1\text{-}92$," *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **54**, pp.181-342 (1993).
- [32] Y. Furukawa, M. Tanaka, T. Nakazato, T. Tatsumi, M. Nishikino, H. Yamatani, K. Nagashima, T. Kimura, H. Murakami, S. Saito, N. Sarukura, H. Nishimura, K. Mima, Y. Kagamitani, D. Ehrentaut, T. Fukuda, "Temperature dependence of scintillation properties for hydrothermal method grown zinc oxide crystal evaluated by nickel-like silver laser pulses," *J. Opt. Soc. Am. B*, Submitted.
- [33] T. Koida, S.F. Chichibu, A. Uedono, A. Tsukazaki, M. Kawada, T. Sota, Y. Segawa, H. Koinuma, "Correlation between the photoluminescence lifetime and defect density in bulk and epitaxial ZnO," *Appl. Phys. Lett.* **82**, pp.532-534 (2003).
- [34] K. P. O'Donnell and X. Chen, "Temperature dependence of semiconductor band gaps," *Appl. Phys. Lett.* **58**, pp.2924-2926 (1991).
- [35] R. Hauschild, H. Priller, M. Decker, J. Brückner, H. Kalt, C. Klingshirn, "Temperature dependent band gap and homogeneous line broadening of exciton emission in ZnO," *Phys. Stat. Sol. (c)* **3**, pp.976-919 (2006).
- [36] R. Dorn, H. Lüth, M. Büchel, "Electronic surface and bulk transitions on clean ZnO surfaces studied by electron energy-loss spectroscopy," *Phys. Rev. B* **16**, pp.4675 -4683 (1977).
- [37] D. W. Langer and C. J. Vesely, "Electronic core levels of zinc chalcogenides," *Phys. Rev. B* **2**, pp.4885-4892 (1970).

4. 総括

近年のレーザー技術の発達により、レーザー生成プラズマをベースとする高輝度のX線源が注目を集めている。その応用範囲は、EUVリソグラフィ等の次世代半導体加工技術から、生体細胞を始めとする微少な構造の高時間高空間分解観測など広い範囲に広がっており、各々の用途に適した光源開発が精力的に行われている。中でもX線レーザーは、数ピコ秒のパルス幅、狭い波長幅、そして原理的に高い空間コヒーレンスを持ち得るといった性質を持った特徴的な光源である。高効率の多層膜ミラーが使用可能な波長13~14 nm付近でも高輝度の発振を実現しており、EUVリソグラフィ分野を始めとして様々な分野での応用研究が期待されている。しかしながら、X線レーザーの利用研究は、イメージングや干渉計測などへの応用が進められている一方で、発光計測分野の実用例は乏しかった。本研究は、X線レーザー励起による発光計測の実用化を目的とし、従来方式のX線レーザーの問題点であったビーム発散角および空間コヒーレンスの大幅な改善を行ってビームラインの構築を可能とし、これを励起光源として固体の時間分解発光分光を行った。計測の対象としてはEUVシンチレーション物質の候補であるZnO単結晶の波長13.9 nm励起による紫外発光の時間分解分光計測を行い、シンチレーターとしての評価を行った。

X線レーザーのビーム発散角は、2つの利得媒質を用いたダブルターゲット方式により改善させた。この方式では、2つのターゲット上にそれぞれ利得媒質プラズマを作り、1つめの媒質で発生したX線レーザーの一部を、プラズマ密度勾配の低い領域に利得を生成した2つめの媒質で増幅させる。ニッケル様銀(波長13.9 nm)の過渡利得電子衝突励起X線レーザーにおいて、20 cm離れた2つのターゲットを用いることにより、ビーム発散角0.2 mrad、空間的にフルコヒーレントで、パルスあたりコヒーレント光子数が 10^8 個に達する、高輝度、高コヒーレントのEUV光を発生させることに成功した。また、X線レーザーのビーム発散角が改善したことにより、数メートルに渡るビームラインを構築し、1インチ径程度のミラーで取り扱うことが可能となり、利用計測における利便性が大幅に向上した。

X線レーザー励起による発光計測では、水熱合成法により成長させたZnO単結晶のシンチレーション特性の評価を行った。測定は、X線レーザー励起と351 nmの紫外レーザー励起の二つの場合について、ZnOからの発光を時間分解分光計測し、比較を行った。計測の結果、どちらの光源で励起した場合についても380 nm付近のエキシトン発光が明瞭に観測された。発光の時間減衰は寿命1 nsと3 nsの2成分で構成されており、長寿命成分は低温では消失することが確認された。これらの振る舞いは、X線レーザー励起と紫外励起で励起波長による差異が全く無かった。このことは、シンチレーターとして用いる際に既存の紫外光源による事前アライメントが可能であることを意味しており、シンチレーション物質として好適であることを示している。発光の時定数3 nsは、パルス幅が数ナノ秒程度のレーザーを用いて発生されているEUVリソグラフィ用光源を用いた評価を行うのに十分な時間分解能である。また、ニッケル様銀のX線レーザーが、EUVリソグラフィ用光学素子などの評価に有用であることが見いだされた。

このように、X線レーザー研究は発振の実証から利用研究の段階に移行しており、発光計測にも有用なツールであることが見いだされた。特に時間分解計測については、X線レーザーのパルス幅が数ピコ秒程度であることから、高速のストリークカメラと組み合わせることにより高い時間分解能の計測が可能となる。ZnOはEUVリソグラフィ用光源に対しては十分な時間分解能を持つが、自由電子レーザーを用いた高速の計測には不十分である。今後、更に高速のシンチレーション物質の探索や、従来は可視光の多光子励起により行われていた透明材料の発光計測など、様々な応用が期待される。

謝 辞

本研究は、総合研究大学院大学先導科学研究科光科学専攻に在籍中に行われたものであり、本研究の遂行にあたり猿倉信彦教授には固体発光分光研究の専門家として、細かいご指導を賜りました。また、研究技術面では猿倉研究室の古川裕介氏、村上英利氏、斎藤繁喜氏、中里智治氏、巽敏博氏にご協力いただきました。同じく猿倉研究室の古川裕介氏、Malou Cadatal 氏、Elmar Estacio 氏には論文作成時に様々なアドバイスをいただきました。

東北大学多元物質科学研究所の福田承生教授、Dirk Ehrentraut 教授、鏡谷勇二助教には、酸化亜鉛単結晶の試料をご提供いただきました。結晶育成に関する資料などもいただき、大変勉強になりました。

実験は日本原子力研究開発機構関西光科学研究所において行われたものであり、光量子ビーム利用研究ユニットX線レーザー利用研究グループの永島圭介前グループリーダー、河内哲哉グループリーダーにはX線レーザー発生に関する理論や方法など細かいご指導をいただきました。レーザー装置管理担当の助川鋼太氏、山谷寛氏、また、岸本牧氏、錦野将元氏、長谷川登氏、越智義浩氏をはじめとする研究員の皆様には技術面で多岐にわたるご協力をいただきました。

本研究は、大阪大学レーザーエネルギー学研究センターと日本原子力研究開発機構関西光科学研究所の連携融合研究「ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学」及び大阪大学レーザーエネルギー学研究センターの共同研究より一部資金援助をいただいております。

また、本博士論文の内容とは直接の関係はありませんが、先導科学研究科前教授で現在東京理科大学の安藤正海教授、東京学芸大学の並河一道教授には大学院在籍中に物理全般、特にX線計測分野に関連して様々なご教授をいただき、大変感謝しております。

最後になりましたが、先導科学研究科の先生方、大学事務の方々、関西光科学研究所の事務の方々、猿倉研究室の秘書の方々には様々な方面にわたり多大なご支援をいただきました。この場をお借りして厚く御礼申し上げます。

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

Table with 3 columns: 基本量, SI 基本単位 (名称, 記号), and values for length, mass, time, electric current, temperature, amount of substance, and luminous intensity.

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

Table with 3 columns: 組立量, SI 基本単位 (名称, 記号), and examples of derived units like area, volume, speed, acceleration, etc.

表5. SI 接頭語

Table with 6 columns: 乗数, 接頭語, 記号, 乗数, 接頭語, 記号, listing prefixes like yocto, zepto, etc.

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

Table with 5 columns: 組立量, 名称, 記号, 他SI単位による表し方, SI基本単位による表し方, listing units like radian, steradian, hertz, etc.

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なる性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。
(b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
(c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
(d) この単位は、例としてミリセルシウス度mCのようにSI接頭語を併せて用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

Table with 5 columns: 組立量, 名称, 記号, SI 基本単位による表し方, listing units like pascal, newton, joule, etc.

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

Table with 3 columns: 名称, 記号, SI 単位による値, listing units like minute, hour, degree, etc.

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

Table with 3 columns: 名称, 記号, SI 単位であらわされる数値, listing units like electron volt, atomic mass unit, etc.

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

Table with 3 columns: 名称, 記号, SI 単位であらわされる数値, listing units like nautical mile, knot, etc.

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

Table with 3 columns: 名称, 記号, SI 単位であらわされる数値, listing units like erg, dyne, etc.

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

Table with 3 columns: 名称, 記号, SI 単位であらわされる数値, listing units like curie, roentgen, etc.

