

「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」

兵庫県立大学高度産業科学技術研究所

天野 壮

1 研究の背景と目的

「水の窓」とは、酸素と炭素の K 吸収端 2.3 から 4.4nm 間の軟 X 線の事であり、この領域においては水の吸収長がタンパク質より一桁以上大きく、高コントラストの生態細胞像が得られるため軟 X 線顕微鏡用光源として用いられる。ところが現在、「水の窓」軟 X 線を連続的に発生できる光源は放射光施設ぐらいしかない。

一方我々は、放射光光源の代わりとなる小型 X 線源として、レーザープラズマ X 線源の開発を長年進めてきた。我々兵庫県立大学高度産業科学技術研究所は、独自の放射光施設「ニュースバル」を持ち、これを用いた軟 X 線による微細加工（半導体リソグラフィやリガプロセス）や表面改質、或は材料分析などの産業応用研究を進めている。これらの研究成果を企業（工場）に移転し産業実用化するには、放射光に代わるコンパクトで使い易いスタンドアロンの X 線源が必要となるからである。

レーザープラズマ X 線源とは、高ピークレーザーをターゲットに集光して生成される高温高密度プラズマから放射される X 線を利用する高輝度点光源である。我々は、この X 線を発するターゲット材に希ガスを選んだ。希ガスは常温で不活性ガスなため金属ターゲットと違い、その蒸気が光源近傍の光学系に付着せず、いわゆるプラズマデブリ問題が軽減できてプラズマ連続発生に有利である。さらに密度を上げて発光効率・輝度を向上し、真空ポンプへの負荷を低減するために希ガスを固化したクライオジェニックターゲットとする事にした。レーザープラズマ X 線を連続発生させるために、このターゲットをレーザー集光点に連続供給する装置が必要であった。そのため、独自の技術による連続 X 線発生用プラズマターゲット連続供給装置を開発した。現在、市販の Nd:YAG ロッドレーザーの 10Hz までの繰り返しパルスに対応したプラズマ連続生成に成功している[1]。

希ガスのアルゴンをレーザープラズマ X 線源のターゲットとして用いると、その発光スペクトルは、「水の窓」3nm 帯をカバーする[2]。従って本ターゲット装置を用いれば「水の窓」軟 X 線連続発生レーザープラズマ光源が実現できる。そこで、本研究によって動作パラメータの最適化を行ってその光源特性を明らかにした。

2 研究方法・研究内容

我々が今まで開発して来た連続供給プラズマターゲット装置を図 1 に示す。ヘリウムガス密封循環式クライオスタットに銅基板を密着させ、15K まで極低温化された基板表面上にガスを吹き付けて、これを冷凍固体化する。基板の上に形成された固体膜をクライオスタットごと上下動させて、繰り返しレーザーパルスの集光点に対し、常にフレッシュな固体膜を供給して連続的にプラズマ発生する。実際にプラズマ連続発生は確認しているが、レーザープラズマ X 線源としての光源評価はまだである。そこで、本研究においてはプラズマターゲット材としてアルゴンをを用いて「水の窓」3nm 帯連続発生軟 X 線源の評価を行った。

レーザープラズマ X 線源の構成図を図 2 に示す。プラズマ発光は軟 X 線で空気中を透過しないため、真空チャンバーの中にターゲット装置が設置されており、チャンバー外から Nd:YAG レーザー繰り返しパルスを集光して、プラズマ生成して連続的に X 線発光を得る。本研究において、光源特性として明らかにしたい特性は次の 3 点であった。即ち 1) X 線変換効率、2) プラズマデブリ特性、3) 振動特性である。1) X 線変換効率に関しては

光源性能を決める基本的パラメータであり X線出力を決定し、将来のパワースケールアップ則にも必要である。これを出来るだけ最大にする様な動作パラメータの最適化も行った。2) プラズマデブリとは、プラズマから X線と共に放出される粒子群である。アルゴンは希ガス不活性であるため周辺ミラーに蒸着する事は無いが、そのイオンは放出されスパッタリングの恐れがある。このため、この高速イオンの特性を調べた。3) 振動とは、本ターゲット装置で冷却に使われているクライオスタットが発する振動である。現在、この振動が真空チャンバー全体に伝搬されているが、応用で集光ミラー系を配置する時、この振動が問題となる恐れがあり、これについて調べた。

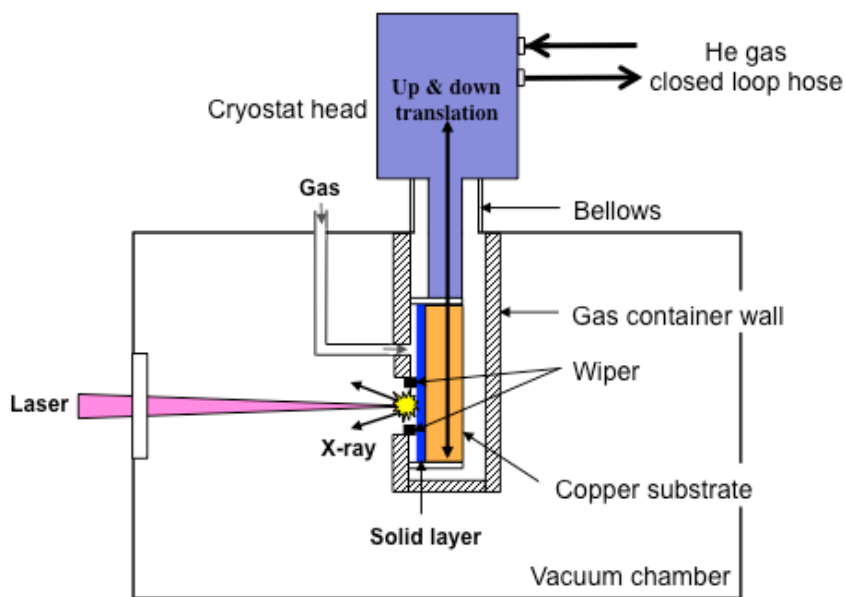


図1 クライオジェニックターゲット連続供給装置

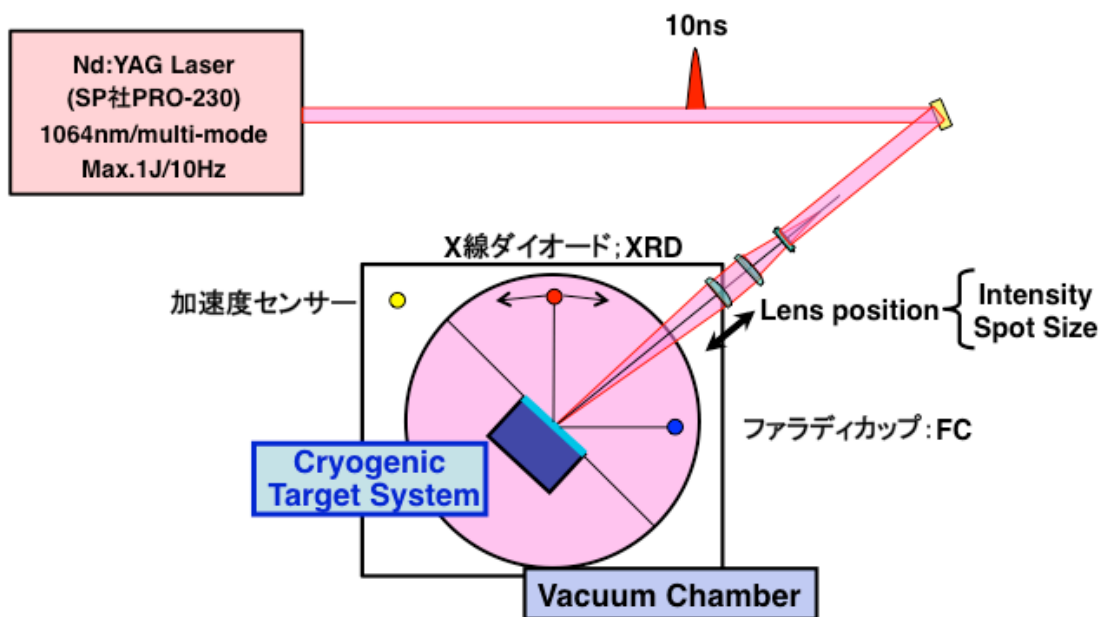


図2 レーザープラズマ X線実験配置図

3 研究成果

1) X線変換効率の最適化

レーザーから「水の窓」軟 X 線への変換効率が最大となるように、レーザー強度、エネルギー、ターゲット速度、アルゴンガス流量の動作最適化を行った。即ち、これらパラメータを変化させながら、真空チャンバー内に設置 (図 2) された絶対校正 X 線ダイオード (XRD) で発生 X 線量を絶対測定して、その依存性を求めた。

まず、レーザー強度依存性であるが、集光レンズ位置 (図 2) を動かしてスポット径を変化させて評価した。レーザーエネルギー 0.5J に固定し、繰り返し数 1Hz、ガス流量 250mL/min、ターゲット移動速度 3mm/s としてレンズ位置を変えながら、レーザー入射軸から 45 度方向に設置した XRD で発生 X 線量を測定した。その結果、ベストフォーカスのレンズ位置からアウトフォーカス側に 7mm ずれた位置で X 線量は最大になった。次にレンズ位置を 7mm に固定して、レーザーエネルギー依存性を調べてみた。その結果、レーザーエネルギー 1J で変換効率は飽和して最大となった。以上より、変換効率が最大になるのは、レンズ位置がアウトフォーカス 7mm でレーザーエネルギー 1J の時であり、この時のレーザー強度は平均強度として $3 \times 10^{10} \text{W/cm}^2$ と見積もられた。

次にレンズ位置 7mm として、XRD を、プラズマ発光点を中心としてスキャンして X 線放射空間分布を求めた。その測定結果は $(\cos \theta)^{0.41}$ の関数で近似できる分布であった。この分布を考慮して空間積分した全最大変換効率は 13% @2.3-4.4nm である。これは、アルゴンガスパフターゲットのレーザープラズマ X 線の変換効率 3.8% と比べて [3]、非常に高効率である事が判る。

尚、ターゲット速度 (0~9mm/s) ・ ガス流量 (0~400mL/min) 依存性については、その測定範囲内では依存性は見られず変換効率は一定であった。

2) プラズマイオンデブリ特性

アルゴンイオンのエネルギー分布を調べるためイオン検出器であるファラディカップ (FC) を真空チャンバー内に設置 (図 2) して、TOF (Time of flight) 法により求めた。レンズ位置 7mm、レーザーエネルギー 0.5J に固定し、繰り返し数 1Hz、ガス流量 250mL/min、ターゲット移動速度 3mm/s としてレーザーエネルギーを変えながら、レーザー入射軸から 45 度方向に設置した FC で発生イオンを測定した。その結果、イオンのピーク運動エネルギーはレーザーエネルギーに比例して、最大 1.2J でも 6keV 程度であった。これは、キセノンプラズマの経験からも [4]、十分、デブリ緩和できるレベルであると言える。

イオンのターゲット速度 (0~9mm/s) ・ ガス流量 (0~400mL/min) 依存性については、特徴的な結果を示した。即ち、ターゲット停止状態或いはガス停止状態に比べ、ターゲット連続供給動作中はイオン量が減少して動作範囲内では依存性は見られず一定になった。これは、ターゲット表面上に局在するアルゴンガスによるカーテン効果と考えられ、連続運転上有利な特性である。

3) チャンバー振動特性

真空チャンバー自体のクライオスタットからの振動を測定するため、チャンバー上に加速度ピックアップセンサーを設置 (図 2) して、その振動波形を測定した。その結果、固有振動は 2.4Hz 周期で、ピーク加速度は 1.6m/s^2 、2 重積分によりその変位は約 $3 \mu \text{m}$ と換算された。しかし、この振動は防振材を入れる事により 1/10 以下、 $1 \mu \text{m}$ 以下に低減する事ができた。これは、集光ミラー系に影響が及ばないレベルであり、応用上問題ない事が明らかとなった。

最後に、求めた最適動作条件（レンズ位置 7mm、レーザーエネルギー1J、繰り返し数 1Hz、ガス流量 250mL/min、ターゲット移動速度 4mm/s）で、「水の窓」3nm 帯プラズマ X 線連続発生実験を行った。45 方向設置の XRD よりモニターした軟 X 線強度を図 3 に示す。ターゲットが 8 往復程度上限移動しているが、上下の折り返しの影響もなく安定した出力が得られた。これは設計通り、レーザーショット毎に修復されたフレッシュな固体アルゴンターゲット面が供給されている事を表している。この時の「水の窓」3nm 帯軟 X 線平均出力は $1\text{J} \times 1\text{Hz} \times 13\% = 130\text{mW}$ であり、その出力安定性は 4% (1σ) という高出力連続 X 線が得られた。ここで、この得られたレーザープラズマ軟 X 線を放射光と比べてみる。我々の研究所が保有している電子蓄積リング「ニュースバル」放射光施設（電子蓄積エネルギー1-1.5GeV、蓄積電流 250mA）において、「水の窓」領域における放射光（バンディングマグネット光）光量は 8mW と計算される。即ち、今回得られたレーザープラズマ軟 X 線の光量は放射光より一桁以上大きいと結論付けられる。

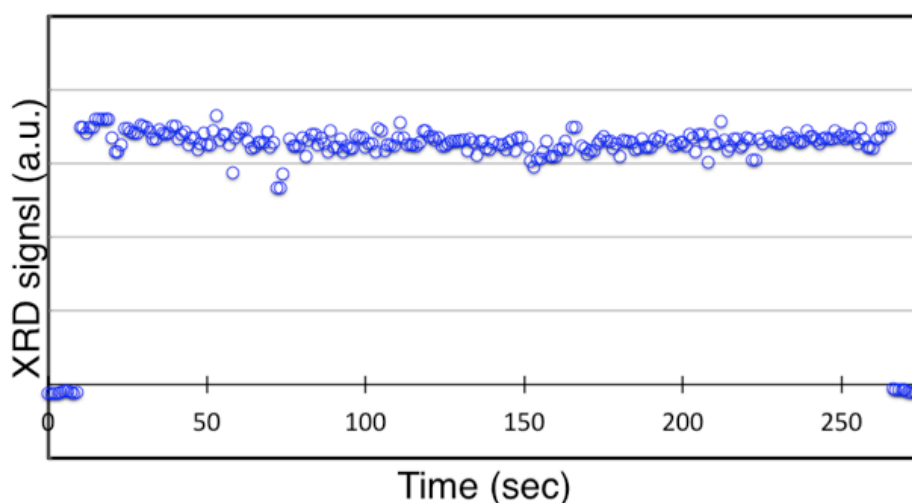


図 3 連続発生レーザープラズマ X 線強度

4 生活や産業への貢献および波及効果

本研究によって、開発されたターゲット連続供給装置を用いた固体アルゴンターゲットによる「水の窓」3nm 帯レーザープラズマ連続発生軟 X 線源の動作最適化が成り、その光源特性が明らかになった。その光量は、従来この「水の窓」帯軟 X 線光源として使われてきた放射光光源に匹敵するものであり、十分、放射光施設の代替えが可能である事が明らかになった。本研究の小型 X 線源を用いれば、この「水の窓」軟 X 線を用いた様々な応用が各工場や小さな研究室でも得られる様になり、産業発展に寄与するものと思われる。本小型 X 線源が発する「水の窓」3nm 帯軟 X 線は、生体細胞への X 線顕微鏡応用への他、炭素の内核励起が可能であるため、これを含む種々の材料（例えばテフロン、アクリル等）の表面改質、微細加工応用にも有望である。即ち、本研究の成果は、その応用研究により医療・バイオ、新素材、ナノテクノロジー分野の産業に貢献し、広い波及効果を及ぼすであろう。

[1] S.Amano, Rev.Sci.Instrum. **85**, 063104 (2014).

[2] A.Shimoura et al., Rev. Laser Eng. **27**, 787 (1999).

[3] P.W. Wachulak et al., Nucl. Instr.Meth.Phys. B **268**, 1692 (2010).

[4] S.Amano et al., Rev.Sci.Instrum. **81**, 023104 (2010).