



EUV-FEL 用高感度・高分解能・広視野な画像検出器の研究開発

福田祐仁^A, Anatoly FAENOV^{A,B}, Tatiana PIKUZ^{A,B}

^A日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 〒619-0215 京都府木津川市梅美台 8-1-7

^Bロシア科学アカデミー 高温科学研究所 13/19 Izhorskaya street, Moscow, 127412 Russia

要旨 極端紫外自由電子レーザー (EUV-FEL) の波長領域における、フッ化リチウム (LiF) 結晶の画像検出器としての性能を評価し、シングルショット高分解能画像計測が可能であることを明らかにした。また、LiF 結晶を用いて、EUV-FEL 集光スポット形状の精密測定をおこない、同時に、LiF 結晶のアブレーションが起こっていることを見いだした。

1. はじめに

X線自由電子レーザー (XFEL) のプロトタイプ機として整備が進められている極端紫外自由電子レーザー (EUV-FEL)¹⁾の波長領域 (51-61 nm) における画像検出器としては、CCD、X線フィルム、イメージングプレート (IP)、ポリメタクリル酸メチル樹脂 (PMMA)、フッ化リチウム (LiF) 結晶などがある。各検出器の特徴を比較したものを **Table 1** に示した。**Table 1** を見ると分かる通り、あまり広く認知されていないが、LiF 結晶には以下のような優れた特徴がある。

- a) 空間分解能は CCD (10 μm) やイメージングプレート (5 μm) と比べ、1~2 桁高い。潜在的に 10 nm を超える高い空間分解能をもつ。
- b) 飽和に至る照射強度の帯域は約 4 桁 (13-14 bit) と広く、低雑音の高品質画像が記録される。

- c) 軟 X 線に関する感度は、約 10^4 光子/ μm^2 で、CCD よりは低いイメージングプレートと同程度である。
- d) バンドギャップは 14 eV で、可視-紫外光では感光しない。形成された色中心は安定で、光で読み出しても消去されない。一方、400°C 以上に加熱すると色中心は消滅し、再使用可能になる。
- e) 多結晶体の蒸着膜も使用できるので、数十センチメートル規模の大画面計測器としても使用できる。

LiF における放射線画像の記録のメカニズムは、以下の通りである (**Fig. 1** 参照)。LiF に放射線を照射すると、格子欠陥に束縛された局在電子状態 (色中心) が生成される。LiF の色中心は青色光照射により F_2 中心による 670 nm と F_3^+ 中心による 540 nm の蛍光を放出する²⁾。蛍光顕微鏡を用いた蛍光の空間分布測定より、放射線画像が再生される。色中心の大きさは 1 nm 以下であり、密度 10^{19} - 10^{20} cm^{-3} まで形成できるので、10 nm を超える分解能で画像を記録することができる。しかし、現在までに得られた画像は、共焦点レーザー蛍光顕微鏡で 250 nm、近接場顕微鏡で 50 nm と、使用された顕微鏡の分解能で制限されており、画像記録の分解能の限界は明らかにされていない。

2001年頃にイタリアの研究グループが、このような LiF 結晶の軟 X 線画像検出器としての長所に着目した^{2,3)}。その後、福田、Faenov らは、日本原子力研究開発機構 (以下、原子力機構) において、レーザープラズマ X 線による画像計測に LiF 結晶を使用し、700 nm を切る空間分解能の画像取得に成功した⁴⁾。その後、原子力機構の Faenov、河内らは、LiF 結晶を用いた画像計測により、原子力機構 X 線レーザー (13.9 nm, 7 ps) の集光スポット径計測⁵⁾、アブレーション実験⁶⁾に成功している。さらに、原子力機構の松林、加藤らは、LiF 結晶による中

Table 1 Comparison of the LiF crystal detector with other conventional detectors

	Resolution (μm)	Dynamic range (bit)	Readout method
CCD	~10 (pixel size)	8~16	Electronic, real time acquisition
X-ray film	~1.5 (grain size)	6-8	Development + Optical readout
Image plate (Fuji HR-S)	~5 (grain size)	16	Optical readout
Photoresist PMMA	~0.01 (molecule size)	5-6	Etching + AFM
LiF crystal	~0.001 (defect size)	13~14	Optical readout

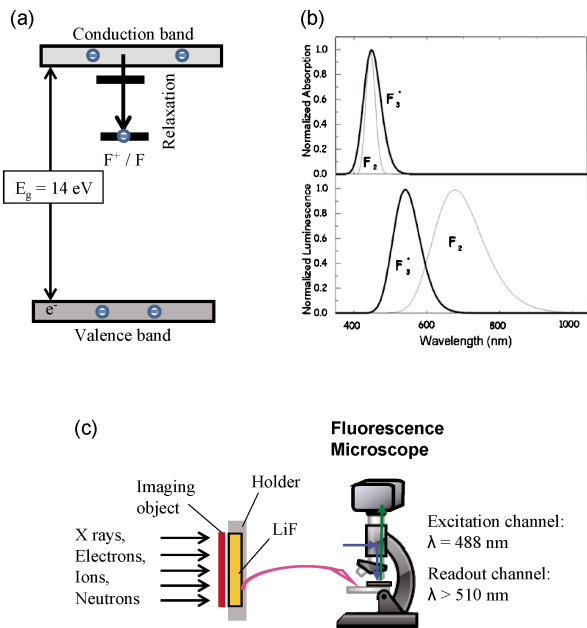


Fig. 1 (a) Energy level diagram for LiF crystal, (b) Absorption (upper) and emission (bottom) spectra for F₂ and F₃ color centers, (c) Photo luminescence patterns from the color centers in LiF were observed using a confocal fluorescence laser microscope. A 488 nm Ar laser has been used in the microscope to excite both CCs, which then emit luminescence in the spectral range of 500–800 nm with the peaks at 530 nm for F₂ and 670 nm for F₃, respectively.

中性子画像計測を実施し、研究炉中性子源を用いて既存の計測器を上回る約 5 μm の空間分解能で、中性子画像の記録に世界で初めて成功した⁷⁾。

上記のことから、LiF 結晶が EUV-FEL に対して十分な感度を持てば、極めて有用な画像計測ツールとなりうることは明らかである。我々は、(1) EUV-FEL を用いたイメージング実験をおこない、LiF 結晶が EUV-FEL のシングルショットに対しても十分な感度を有していることを確認し、さらに、(2) LiF 結晶を用いて、EUV-FEL ビームラインの集光システムによって集光された EUV-FEL の集光スポット形状の測定、および、アブレーション実験を行ったので以下に報告する。

2. 実験結果

2.1 LiF 結晶によるイメージング実験

実験の概略図を Fig. 2 に示す。集光していない状態の EUV-FEL と LiF 結晶とを用いて、金属メッシュや金属薄膜、生体物質のイメージング実験を行った。

2.1.1 EUV-FEL の空間コヒーレンス分布計測

Fig. 3 に、LiF 結晶を用いて取得した金属メッシュ（間隔 344 μm，ワイヤ径 18.5 μm）のシングルショットイメージを示した（EUV-FEL 波長 61 nm）。このイメージの解析から、以下のことが明らかとなった。

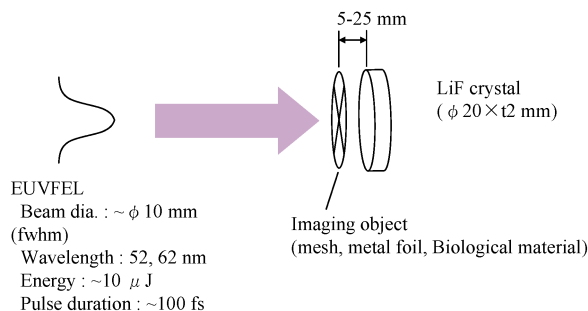


Fig. 2 Experimental setup for recording a sample image of the EUV-FEL on a LiF crystal.

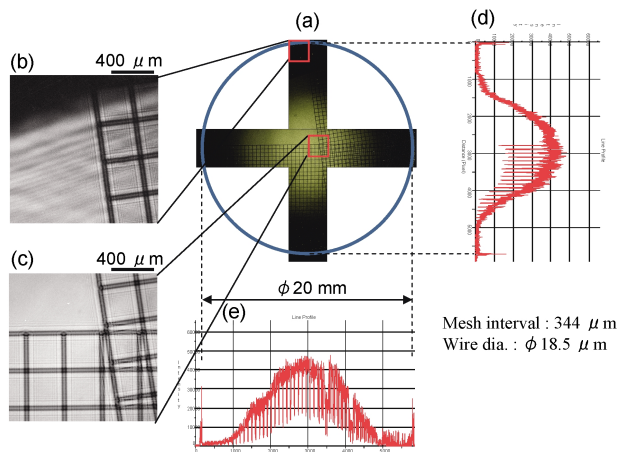


Fig. 3 (a) Readout image of 1500 lpi mesh (Single shot), obtained by using unfocused EUV-FEL and LiF crystal. Detailed readout images of the mesh obtained at the edge (b) and the center (c) of EUV-FEL beam. (d) and (e) Intensity profiles of the mesh images.

- LiF 検出器は、EUV-FEL のシングルショットでも十分な感度を有する。
- EUV-FEL 光の空間コヒーレンスは、極めてよい。ビーム全体 (φ20 mm 程度) に渡って、メッシュのフリッジパターンが観測されている。
- この観測を行った位置での EUV-FEL のビーム径は、9.0 × 8.4 mm (半値全幅) である。

2.1.2 ダイナミックレンジの評価、および、生体物質のイメージング

800 nm 厚の Al フィルターをずらしながら 5 枚重ねたターゲットを透過してきた EUV-FEL を LiF 結晶を用いて検出した。Fig. 4(a) は、EUV-FEL 波長 61 nm の時に取得したイメージ (12,000 ショット積算) である。800 nm 厚の Al フィルター 5 枚の重なりを区別できており、LiF 結晶のダイナミックレンジは、10⁴–10⁵ 程度あることが明らかとなった。また、Fig. 4(b) に示すように、蜘蛛の糸 (φ2–3 μm) の構造をシングルショットで観察し、糸上にある獲物を捕らえるための“ノリ”の観測に成功した。

以上の通り、EUV-FEL と LiF 結晶とを用いた物質の

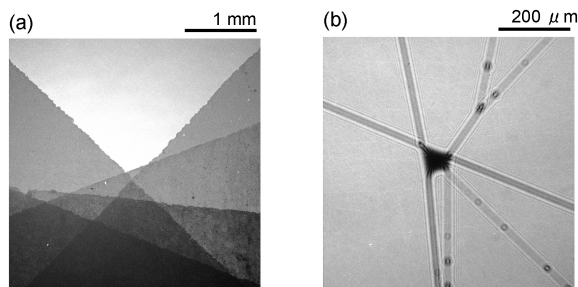


Fig. 4 (a) Readout image of five layers of 800-nm thick Al foil (12,000 shots accumulation), and (b) readout image of spider web (single shot).

イメージング実験を実施し、EUV-FELを集光しない状態でも、LiF結晶によるシングルショット画像計測が可能であることを明らかにした。

2.2 EUVFELの集光スポット形状の精密測定

XFELのような強力なレーザーに対する正確な集光強度の評価は、XFELを用いた様々な応用研究を行う上で有益である。集光強度の評価には、集光スポット径、レーザーエネルギー、パルス幅などの情報が必要である。可視光領域の高強度レーザー利用研究においては、原子力機構の赤羽らが、波面補償光学系を用いた精密な集光強度の光学計測と物理実験から得られた集光強度との比較を行い、両者間によい一致を見だしている⁸⁾。しかし、実際の実験では、レーザー光とプラズマとの非線形相互作用により集光スポット径、レーザーエネルギー、パルス幅とも強度ピーク付近で変化するため、一般的に両者は一致しない。つまり、真空中での集光強度と(物質と相互作用している)プラズマ中での集光強度とは異なってくるのが常であり、実験とシミュレーションとの比較を行う際には、特に、このことに注意を払う必要がある。しかし、XFELと物質との相互作用では、可視光領域ほどの非線形現象は期待できないと考えられており、このような心配は必要ないのかも知れない。このあたりは、XFEL実機による実験が明らかにしてくれるであろう。いずれにしても、真空中でのXFELのスポット径の正確な評価は、XFEL応用研究を展開する上で、欠くことの出来ないパラメータの一つである。我々は、EUV-FELビームラインの集光システムを用いて、LiF結晶による、シングルショットでの集光スポット形状の精密測定をおこない、同時に、LiF結晶のアブレーションが起こっていることを見いだした。

2.2.1 集光スポット形状の精密測定

実験の概略図をFig. 5(a)に示す。LiF放射線検出器を集光点付近に設置し、EUV-FELをシングルショットで照射しながら、LiF放射線検出器をレーザービーム軸に沿って移動させた。集光点は、光軸直交方向に設置したトランシットを基準にして、試料表面を合わせた。レーザー照射

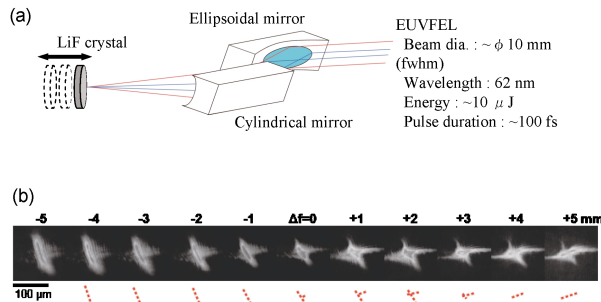


Fig. 5 (a) Experimental setup for recording the beam patterns near the best focus position of the EUV-FEL on a LiF crystal. (b) Beam patterns recorded on LiF at -5 mm to $+5$ mm from the calculated focus position.

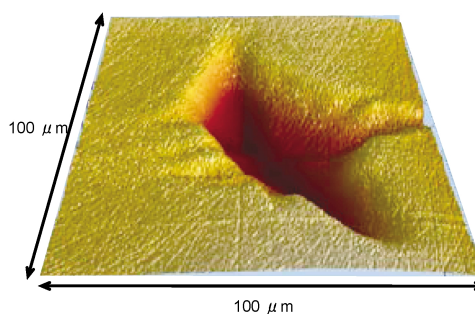


Fig. 6 Image of the best focused spot measured by the AFM.

によりLiF放射線検出器の表面にカラーセンターが生成し、集光スポット形状が記録される。測定されたスポット形状は、レーザー蛍光顕微鏡を用いて、CCDカメラで画像として読み出しをおこなった。

Fig. 5(b)に見られるように、スポット形状には収差による歪みが見られることが明らかになった。また、レーザーが強く集光されている領域の形状が、 $f=0 \sim +3$ mmに渡って90度変化していることから、実際の集光点は、トランシット基準($f=0$)よりも、上流側1~2 mm付近に集光していたと考えられる。これらの結果は、トランシットを用いた測定装置アライメントだけでは十分でなく、実際の集光ビームのパワー密度を計測しながら、集光点への位置合わせが可能な測定装置の調整機構が必要であることを示している。また、Fig. 6に示すように集光スポットの中心付近ではLiF結晶のアブレーションが起こっていることを示唆するシグナルが得られた。

LiF結晶のレーザーによるアブレーションは、これまでいくつかのグループにより研究が行われている^{6,9,10)}。これらによると、レーザー波長、レーザーパルス幅とも短い方が、アブレーションの閾値が低くなる傾向にある。これは、物質中に注入されたエネルギーが緩和するタイムスケールとレーザーパルス幅との大小関係により、アブレーションダイナミクスが異なってくることに原因がある¹¹⁾。EUV-FELによるLiF結晶のアブレーション閾値は、原

子力機構 X 線レーザー (13.9 nm, 7 ps) での実験結果⁵⁾ とほぼ一致している。

EUV-FEL の波長領域では、物質との相互作用において、

- レーザー光による原子・分子の直接イオン化 (トンネルイオン化) とともに、光吸収による多光子イオン化が混在して起こる、
- カットオフ密度の低下により、物質内部にレーザー光が侵入し始める、
- ポンデラモーティブエネルギー (=レーザー電場に揺すられた電子が得る運動エネルギーの平均値) が小さいため、電子衝突によるプラズマの加熱が起こりにくい、

などのため、可視光領域や X 線領域とは異なる独特なプラズマ状態(低温高密度プラズマ)を形成すると考えられ、LiF 結晶のアブレーションは、強い光と物質の相互作用の基礎過程を探る上で興味深い。福田、岸本らは、このような相互作用を研究するためのシミュレーションモデルの構築を進めている¹²⁾。今後、アブレーション閾値を正確に評価することで、EUV-FEL と物質の相互作用に関する

知見が得られると期待している。

謝辞

本研究は、X 線自由電子レーザー計画合同推進本部利用グループとの共同研究で行われました。また、SCSS 試験加速器運転グループとの協力に感謝いたします。

参考文献

- 1) T. Shintake et al.: Nature Photonics **2**, 555 (2008).
- 2) G. Baldacchini et al.: Appl. Phys. Lett. **80**, 4810 (2002).
- 3) G. Baldacchini et al.: Rev. Sci. Instr. **76**, 113104 (2005).
- 4) Y. Fukuda et al.: Appl. Phys. Lett. **92**, 121110 (2008).
- 5) A. Ya. Faenov et al.: Opt. Lett. **34**, 941 (2009).
- 6) A. Ya. Faenov et al.: Appl. Phys. Lett. **94**, 231107 (2008).
- 7) M. Matsubayashi et al.: Nucl. Instr. And Meth. A in press (2010).
- 8) Y. Akahane et al.: Rev. Sci. Instrum **77**, 023102 (2006).
- 9) B. C. Stuart et al.: Phys. Rev. B **53**, 1749 (1996).
- 10) A. Ritucci et al.: Opt. Lett. **31**, 68 (2006).
- 11) N. A. Inogamov et al.: Appl. Phys. A (2010).
- 12) 中村彰浩, 廣池承一郎, 森林健悟, 中村龍史, 福田祐仁, 岸本泰明: 日本物理学会秋季大会, 22pZH-5, (2008).

● 著者紹介 ●



福田祐仁

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 レーザー駆動粒子線研究グループ 研究副主幹

E-mail: fukuda.yuji@jaea.go.jp

専門: レーザープラズマ物理

【略歴】

1993年慶応義塾大学工学部化学専攻卒業, 1998年東京大学大学院理学系研究科化学専攻博士課程修了, 理学博士。科学技術振興事業団博士研究員などを経て, 2001年日本原子力研究所博士研究員, 2009年より, 現職。



Tatiana Pikuz

ロシア科学アカデミー 高温科学研究所 主任研究員

日本原子力研究開発機構 招へい研究員

E-mail: tapikuz@yahoo.com

専門: X 線光学

【略歴】

1979年バウマンモスクワ工科大学修士課程修了, 1993年ロシア国立研究所多価イオンスペクトルデータセンター主任研究員, 2001年バウマンモスクワ工科大学にて博士号取得, 工学博士。2006年より現職, 2007年日本原子力研究開発機構招へい研究員。



Anatoly Faenov

ロシア科学アカデミー 高温科学研究所 主席研究員

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 リサーチフェロー

E-mail: anatolyf@hotmail.com

専門: X 線分光光学

【略歴】

1973年モスクワ大学物理学科修士課程修了, 1977年ソビエト科学アカデミーレベデフ物理学研究所にて博士号取得, 工学博士。1984年ロシア国立研究所多価イオンスペクトルデータセンター長, 2006年より現職, 2007年日本原子力研究開発機構リサーチフェロー。

High-sensitive, high-resolution, and wide-field-of-view image sensor for EUV–FEL

Yuji FUKUDA^A, Anatoly FAENOV^{A,B}, Tatiana PIKUZ^{A,B}

^AKansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency,
8–1–7 Umemidai, Kizugawa, Kyoto, 619–0215 Japan

^BJoint Institute for High Temperatures, Russian Academy of Sciences,
13/19 Izhorskaya street, Moscow, 127412 Russia

Abstract We have characterized the performance of LiF crystal as an imaging sensor for extreme ultraviolet free electron laser (EUV–FEL). We found that the LiF crystal could register a single shot image of various materials in a wide field of view with high spatial resolution and high dynamic range. Detailed structure of focused spot image of single shot EUV–FEL was measured using the LiF crystal. It is found that a crater appears on a surface of LiF in one shot.
