軟X線レーザープローブによる アブレーションダイナミクスのイメージング

富田 卓朗¹, 長谷川 登², 錦野 将元², 河内 哲哉², 末元 徹³

¹徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部 (〒770-8506 徳島県徳島市南常三島町2-1)

²日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門 (〒619-0215 京都府木津川市梅美台8-1-7)

³東京大学物性研究所 (〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5-1-5)

Imaging of Ablation Dynamics by Soft X-Ray Laser

Takuro TOMITA,¹ Noboru HASEGAWA,² Masaharu NISHIKINO,²
Tetsuya KAWACHI,² and Tohru SUEMOTO³

¹Faculty of Engineering, The University of Tokushima, 2-1 Minamijosanjima, Tokushima 770-8506

²Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 8-1-7 Umemi-dai, Kizugawa, Kyoto 619-0215

³Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581

(Received March 30, 2012)

A single-shot soft x-ray laser pulse was used as a probe to investigate the early stage of the laser ablation process on platinum caused by the femtosecond near-infrared pump pulse. From time-resolved interferometry, we observed the dilation of the ablation front on a scale of 10 nm in the picosecond region. In the reflective imaging, we found three distinct types of dynamical responses, depending on the radial position in the pump beam spot. These characteristic behaviors correspond to different laser fluence and were attributed to different ablation schemes: spallation, homogeneous nucleation, and fragmentation/vaporization, which have been predicted from molecular dynamics simulation.

Key Words: Femtosecond laser ablation, Soft x-ray laser, Interferometry, Reflective imaging

1. はじめに

近年、軟X線～硬X線領域における光源開発が急速に進展している。海外では既に加速器ベースのX線自由電子レーザーが利用実験への供給を開始している¹⁾。国内でもSPring-8においてプロトタイプX線自由電子レーザー(SCSS)からの軟X線(30～61 nm)が稼働開始しており²⁾、硬X線(0.1 nm)のX線自由電子レーザー(SACLA)についても平成24年度からの供用開始が予定されている³⁾。一方、レーザーを励起源としたコヒーレント軟X線光源としては、プラズマ軟X線レーザー、高次高調波が挙げられる。非線形媒質を用いた波長変換である高次高調波³⁻⁵⁾に対して、プラズマ軟X線レーザーでは通常のレーザーと同様に特定の準位間で反転分布を生成することでコヒーレント光を発生する。特定の遷移線を利用するため、発振波長が安定しており、かつ線幅が極めて狭い⁶⁾(時間コヒーレンスに優れる)。波長を短くするためには準位間のエネルギー差の大きい遷移を用いるため、必然

的に媒質には多価イオンを利用する事になる。

プラズマ軟X線レーザーは、1985年の最初の発振(波長18.2 nm)⁷⁾が確認されてから精力的に小型化、高品質化が行われてきた。多価イオンを発生させる必要性から、当初はkJ級の大型レーザーを必要としたが、チャープパルス増幅法(CPA)⁸⁾による高強度レーザーの小型化と過渡利得電子衝突励起(Transient Collisional Excitation: TCE)方式⁹⁾の発明により10 J程度の励起強度で発振が可能となった。その後、縦型過渡励起方式¹⁰⁾や斜入射励起方式¹¹⁾等の一般的なチタンサファイアレーザー(150 mJ程度)を用いることが可能な発振手法が考案され、実験室サイズの光源へ近づきつつある。このような開発研究と共に高調波シード光を増幅することによって時間的にも空間的にも高コヒーレンスで高繰り返し発生が可能な軟X線レーザーの開発も進められている¹²⁾。軟X線は可視光よりも高密度プラズマに対する透過力が高い事から、プラズマ研究用のプローブ光源¹³⁾としての利用が主な用途であったが、近年では、可視光よりも波長が短く、か

^{†1} URL: <http://xfel.riken.jp/index.html>

つ硬X線よりも物質に対する浸入深さが小さいという特徴を活かして、物質表面の精密計測(軟X線顕微鏡)の光源として利用されるようになり¹⁴⁾、また軟X線レーザーによる微細加工に関する研究¹⁵⁾も開始されている。

それに伴い、軟X線や硬X線の短波長性を生かしたナノメートルスケールでの超高速イメージング技術の開発も進みつつある。例えば、DESYでは透過型配置でのポンプ・プローブ測定により、窒化シリコン薄膜が15 ps程度でアブレーションされていく過程を軟X線レーザーの回折により観測している¹⁶⁾。また、SLACでは硬X線を用いたアブレーションダイナミクスの広角散乱による観察を行っている¹⁷⁾。これらの研究によって、レーザーアブレーションの初期過程におけるナノ空洞の形成や、ナノメートルスケールでの周期的な形状変化などの興味深い現象が報告されつつあるが、アブレーションメカニズムの完全な理解にほど遠いというのが現状である。また、軟X線レーザーによるモアレ偏向計を用いたレーザープラズマの電子密度計測や¹⁸⁾、時間分解X線吸収によるフェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの研究¹⁹⁾なども報告されてきている。

フェムト秒レーザー加工の分野では近年、加工しきい値近傍の強度でのフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる現象に注目が集まっている。例えば、フェムト秒レーザー照射により、照射光の波長を大きく下回る周期を持つナノ周期凹凸構造が発見され、従来のモデルでは説明がつかないことから、その生成メカニズムについて活発な議論が行われている²⁰⁻²⁶⁾。また、照射フルエンスを変化させると1 shotあたりのアブレーションレート(アブレーションクレーターの深さを照射パルス数で割った値)がしきい値特性を持つ、すなわち照射強度に対して不連続に変化し、最もアブレーションレートが低い領域では1 shotあたりのアブレーションレートが1 nmを下回ることも報告されている²⁷⁾。しかし、このような現象が何故起こるのかについては全く明らかになっていないため、フェムト秒レーザーアブレーションメカニズムの理解が急務となっている。これらのフェムト秒レーザー加工に特有の現象は、フェムトからピコ秒領域での不可逆的なナノメートルスケールでの構造変化であるため、その実態を捉えるにはナノメートルの空間分解能、ピコ秒の時間分解能をもったシングルショットでの時間分解イメージング観察が必要である。これまで、可視光をプローブとして用いたアブレーションダイナミクスの観測例は存在するが、波長による空間分解能の制約のため、ナノメートルスケールでのイメージングは不可能であった²⁸⁻³¹⁾。そこで、X線をプローブとしたポンププローブ計測によるナノメートルスケールダイナミクスの研究が注目を集めており、上述の通り、各国で活発に研究が行われている。

我々は、軟X線レーザーを用いて^{32,33)}、ピコ秒の時間スケールでナノメートルスケールの表面形状をシングルショット計測可能なポンププローブ軟X線干渉イメージング及び、反射率イメージングシステムを開発し、プラチナ膜のアブレーションダイナミクスを観測することに

成功したので、本稿でその内容を解説する。

2. 実験

本研究では日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所で開発されたダブルターゲット方式によるプラズマ軟X線レーザー(波長13.9 nm, パルス時間幅7 ps)をプローブ光として用いた。この光源は、ダブルターゲットを用いた2段階の増幅によって高い空間コヒーレンスと高い単色性を持ち、1パルスあたりのフォトン数は 10^{10} にも及ぶため、シングルショットでのイメージングが可能である。ポンプ光にはチタンサファイアレーザー再生増幅器からの光(波長800 nm, パルス時間幅70 fs)を用い、軟X線レーザープローブによってアブレーション過程の観測を行った。時間分解測定を行うために、軟X線生成用のプラズマ発生用励起光源とチタンサファイアレーザーをマスター同期させた。アブレーション過程の観測には反射率のイメージングと干渉計測の両方を行った。反射率のイメージングでは試料表面における軟X線反射像を得ることが出来るため、アブレーションに伴う試料表面の凹凸や密度勾配に関する情報を得ることが出来る。一方で、干渉計測ではアブレーションに伴う試料表面(アブレーションフロント)の膨張を高感度に捉えられる利点がある。また、イメージングの際には高コヒーレンスの軟X線を用いるとスペックルが生じるため、ダブルターゲットによる2段増幅をシングルターゲットによる1段増幅にすることで、意図的に軟X線の空間コヒーレンスを低下させて実験した。また、ガウス型強度分布を持ったポンプ光を用い、ビームの動径方向にフルエンスが変化することを利用することで、フルエンス依存性の観測やアブレーションしきい値近傍における現象の観察を可能にした。

Fig. 1 (a)にポンププローブ軟X線干渉イメージング光学系の模式図を示す。軟X線は大気吸収されてしまうため、全ての光学素子は真空容器内に設置されている。プラズマ光源からの軟X線はMo/Si多層膜球面鏡Aによ

Fig. 1 (a) The experimental setup of time-resolved interferometry by using femtosecond laser pump and soft x-ray probe beams. (b) The schematic of the interferometry by the Lloyd's mirrors.

て、試料(白金:Pt)に転送され、 $20^{\circ}\sim 24^{\circ}$ の斜入射角で試料に照射される。試料の像はMo/Si多層膜球面鏡Bによって、およそ20倍の倍率で、X線CCDカメラに転送される。干渉計測の場合には多層膜球面鏡BとCCDカメラとの間にダブルロイズ鏡(僅かな角度をつけた2枚のミラー)を設置し、Fig. 1 (b)に示すように擬似的に二つの点光源からの軟X線を重ね合わせることで干渉縞を得た。テストパターンを用いて空間分解能を評価したところ、干渉計測においては面内方向の空間分解能は $1.8\text{ }\mu\text{m}$ 、深さ方向の空間分解能は 1 nm 以下であることが明らかになった。また、反射率イメージングの際にはダブルロイズ鏡を設置せず、多層膜球面鏡Bから直接CCDカメラに軟X線を送り込んだ。この際にはテストパターンを用いての空間分解能評価は行っていないが干渉実験と比較してほぼ同一の光学系で見込み立体角は反射率計測の方が遥かに大きいので干渉計測に劣らない面内方向の分解能が実現されていると考えられる。試料には石英基板上に蒸着したプラチナ膜(厚さ 300 nm)を用い、ポンプ光は試料に対してほぼ垂直に照射した。サンプル上でのポンプ光のスポット径はD²法を用いて評価した³⁴⁾。

3. 実験結果

まず、白金におけるフェムト秒レーザーアブレーションの過程を時間分解軟X線干渉イメージングにより観測を行った結果をFig. 2に示す。ポンプ光のピークフルエンスは約 2.1 J/cm^2 である。Fig. 2の(a)は $t=25\text{ ps}$ 、(b)は $t=50\text{ ps}$ のアブレーション過程における表面変位を観測した干渉像である。干渉縞の右方向へのシフトが膨らみを表し、縞1本分のシフトは 17 nm の表面変位に相当する。時間が経過するに従って、干渉縞の右方向へのシフトが大きくなっていることがわかる。Fig. 2 (c)はガウス型のドーム地形から計算した干渉縞である。 $t=50\text{ ps}$ (b)における観測された干渉縞と(c)の計算された縞の比較から、 $t=50\text{ ps}$ における表面の最大高さは約 35 nm であることがわかった。この結果より表面膨張の速度は最大 700 m/s と見積もられる。この値はLindeらが観測したサブナノ秒からナノ秒領域におけるアブレーションフロントの噴出し速度とよく一致しているので²⁸⁾、観測した表面形状はアブレーション初期過程におけるアブレーションフロントであると考えられる。また、流体動力学計算コードHYADESを用いた計算でも、表面から噴出した自由電子プラズマの影響は極めて小さいことが明らか

Fig. 2 The interference patterns at $t=25\text{ ps}$ (a) and $t=50\text{ ps}$ (b). (c) The calculated interference pattern assuming Gaussian profiled pump beam. (Frame size: $250\text{ }\mu\text{m} \times 250\text{ }\mu\text{m}$)

になったので³⁵⁾、観測した干渉縞のシフトは自由電子プラズマを観測しているのではなく、表面原子の移動(表面膨張)を観測していることが確かめられた。Lindeらの結果はサブマイクロメートル領域における測定であったが、高分解能の軟X線干渉計を用いることで今回初めて、アブレーションの初期過程におけるナノメートルスケールの高さ分解能でのアブレーションフロントの観測に成功した。これはフェムト秒レーザーアブレーション特有の形状変化を理解する上で重要な情報を与えると考えられる³⁶⁾。

Fig. 3の挿入図はポンププローブ計測後に光学顕微鏡で観測したアブレーションクレーター像を示す。グラフは、 $t=50\text{ ps}$ と $t=\infty$ の時刻において測定した干渉縞から復元した表面形状のA-D部分の断面図を示している。この図からC点がアブレーションされた領域とされていない領域の境界に対応することが分かる。 $t=50\text{ ps}$ では、アブレーション外周部C点より外側のB点からアブレーション内部のD点に向かうに従って表面は緩やかに高くなっていき、C点における表面の高さは 8 nm に達する。このとき、点Cにおいて、表面形状が連続であることは注目に値する。つまり、少なくとも $t=50\text{ ps}$ の時点ではアブレーションされている領域とされていない領域の境界では特異なふるまいは見られておらず、アブレーションされていない領域でも過渡的な膨張が観測されている。これにより、アブレーションされる領域とされない領域の違いは $t=50\text{ ps}$ 以降に現れることが明らかになった。さらに、 $t=\infty$ においては、外周部Cにて表面は 20 nm 程度盛り上がり、一方でB点からC点方向に約 $30\text{ }\mu\text{m}$ に渡って最大で 2.5 nm の陥没が生じることが明らかになった。また、 $t=50\text{ ps}$ と $t=\infty$ の両時刻において表面形状の変化の始まる場所はB点で一致していることは興味深い。 $t=\infty$ においてB-C間で表面陥没が生じる原因は明らかではないが、Lindeらの観測により、数〜数 10 ps の時間領域においてB-C領域の表面の反射率は液体のそれと等しいことが報告されているので²⁸⁾、気泡を含む液体が固体へ再結晶化する過程で、もともとのプラチナ膜の欠陥が無くなり完全結晶に近づいたために密度が上がり、体積が減った可能性がある。また、あるいは

Fig. 3 The optical micrograph of the ablation crater (Inset). The cross-section of the morphology along A-D (plot).

液化した段階において、わずかな原子の蒸発が起こった可能性も考えられる。このような知見は、これまでのアブレーションダイナミクスの観測からは得られておらず、表面変位に高感度な軟X線干渉計を用いることで初めて観測できた現象である。

次に、Fig. 4 (a)–(c) に白金における時間分解軟X線反射率イメージングの結果を示す。ポンプ光のピークフルエンスは約 4.1 J/cm^2 である。Fig. 4 (a)のスケールバーはFig. 4 (a)から(d)の図に共通であり、画像のコントラストはそれぞれの図で最適化されている。 $t = +\infty$ におけるアブレーション痕を光学顕微鏡で観察した結果も併せてFig. 4 (d)に示してある。前述した干渉実験の結果から、これらの時間領域におけるアブレーションフロントの膨張量は 100 nm 未満であり、これは、スポットサイズ径と比較すると小さい、そのため面内方向の相関は無視でき、照射領域内部の動径方向にフルエンス依存性を得ることができると考えている。 $t = 10 \text{ ps}$ において(a)、円盤状の黒色部が照射部の中央に観測されており、 $t = 10 \text{ ps}$ における黒色部の直径は $t = 160 \text{ ps}$ (c)におけるものの約75%であった。これは、アブレーションが 10 ps の時点において既に始まっていることを意味している。さらに、円盤状の黒色部は 160 ps において最大となり、この時点での黒色部の直径はアブレーションクレーター(d)の直径に一致する。また、 $t = 10 \text{ ps}$ において黒色部の外部に黒い円環状の反射率低下が観測されており、これはFig. 4 (d)におけるアブレーション痕の端と一致した。

スポット内の位置による反射率の減衰の違いは、観測された反射率変化が強い強度依存性を持っていることを意味している。そこで、以下に示すようにフルエンスを3つの領域に区分して議論を進めていく；

- (i) 強励起領域 ($1.2 \text{ J/cm}^2 \sim 4.1 \text{ J/cm}^2$)
早い($< 7 \text{ ps}$)反射率低下が観測された領域
- (ii) 中励起領域 ($0.5 \text{ J/cm}^2 \sim 1.2 \text{ J/cm}^2$)
比較的遅い($\sim 100 \text{ ps}$)反射率低下が観測された領域
- (iii) 弱励起領域 (0.5 J/cm^2 以下)

Fig. 4 (a)–(c) Soft x-ray reflective images at each delay time. (d) The optical micrograph of ablation crater.

反射率変化が観測されなかった領域

各領域における反射率変化を評価するため、Fig. 4の反射率イメージングの断面をプロットしたものをFig. 5に示す。Fig. 5の上図に示すように、照射レーザー光はガウス型のビームプロファイルを有しており中心から外側に向かってフルエンスが低下している。また、上述した分類に従って、強度によってフルエンスの領域を(i)～(iii)に区分した。下図の反射率の断面プロットは有意義な反射率変化が観測されなかった弱励起領域(iii)の平均反射率に対して規格化してある。強励起領域(i)においては、装置の時間分解能以下で生じていると考えられる急激な反射率変化が観測された。一方、中励起領域(ii)においては強励起領域と比較し、反射率の低下が遅く、 $t = 160 \text{ ps}$ において最小に達した。弱励起領域(iii)においては、レーザー照射による軟X線反射率の変化は観測されなかった。さらに、 $t = 10 \text{ ps}$ と $t = 40 \text{ ps}$ で明瞭に観測されたリング状に反射率低下が起こる位置が、アブレーション痕の端である中励起領域(ii)と弱励起領域

Fig. 5 The cross-sections of soft x-ray reflectivity at each delay times. The upper graph shows the radial fluence distribution of the laser beam.

(iii)の境界に一致していることは興味深い。

4. 考 察

フェムト秒レーザーアブレーションの物理メカニズムについては理論、実験の双方から活発に研究が進められている。特に、Lewisらによって、モンテカルロ法による分子動力学のシミュレーションに基づいた、強度に依存して変化するアブレーション過程のモデルが提案されている^{37,38)}。これはLennard-Jones型の2体ポテンシャルを仮定した2次元モデルではあるが、アブレーション過程を定性的に理解するには有用である。このモデルによるとフェムト秒レーザーアブレーションには強度に依存して弱励起側からspallation(機械的破砕)、homogeneous nucleation(気泡生成)、fragmentation(相分離)、vaporization(蒸発)が起こるとされている。spallationは衝撃波による材料の破砕、homogeneous nucleationは材料内部でのナノバブルの形成と膨張・融合に伴う表面の剥離、fragmentationは超臨界状態での固相・液相分離に伴う材料の破壊、vaporizationは超臨界状態から直接気相に相転移することによって起こる材料の蒸発である³⁷⁾。アブレーションのメカニズムについては様々なモデルが存在するが、今回、我々が得た結果はLewisらのモデルでよく理解できるので、このモデルに従って我々の結果を解釈していく。

軟X線の反射率イメージングの結果では主に軟X線反射率の低下が観測された。軟X線の反射率は材料の密度低下に対してほぼ線形に軟X線の反射率は低下するが¹²⁾、それにも増して、試料表面の粗さや空間的な密度勾配に強く依存することが知られている³⁹⁾。今回得られた結果は強度領域ごとに定性的に異なる振る舞いが見られていることから、それらの領域がLewisらのシミュレーションによる、spallation, homogeneous nucleation, fragmentation, vaporizationの何れかの領域とそれぞれ対応していると考えられる。

まず、強励起領域で観測された急激な軟X線の反射率低下はfragmentationとvaporizationに対応すると考えられる。シミュレーションによればfragmentationとvaporizationに伴い、はっきりした材料表面は瞬時的(< 7 ps)に消滅する(Fig. 6 (i))。これに伴って密度の低下と空間的勾配が生じ、軟X線の反射率も非常に速い減衰を示したと考えられる。

次に、中励起領域で観測された比較的遅い(~ 100 ps)反射率低下はhomogeneous nucleationに対応すると考えられる。特に、中励起領域のフルエンスの下限(0.5 J/cm^2)と上限(1.2 J/cm^2)の比は約2.4であるが、これは参考文献37)に示された、気泡生成が始まる有効エネルギー密度(1.05 eJ/cm^2)と相分離が始まる有効エネルギー密度(2.25 eJ/cm^2)の比、約2.1とよい一致を示し、中励起領域がhomogeneous nucleation領域に対応することを裏付けるものであると考えている。この領域では材料内部にナノメート

Fig. 6 Schematic image of the reflectivity change associated with the femtosecond laser irradiation. The points from “A” to “D” correspond to the positions defined in Fig. 3. (i)-(iii), and (s) schematically show the surface morphological changes based on the calculated result by Lewis, *et al.*

ルスケールのバブル構造が形成されるが、その初期において表面構造は大きく変化しない(Fig. 6 (ii))。また、内部にバブル構造が形成されても参考文献38)のFig. 4のように、表皮部分が5 nm程度の厚みを持っているため、現在の実験条件(13.9 nm, 入射角 $20^\circ \sim 24^\circ$)では軟X線の反射率に大きな変化はないと考えられる。しかし、時間が経過(~ 25 ps)するにつれてバブルが膨張し、表面を吹き飛ばす。この表面の吹き出しに伴う密度遷移領域が軟X線の反射率低下を引き起こすと考えれば、観測された比較的遅い軟X線反射率の減衰を理解することができる。

最後に、 $t = 10$ psで観測されたC点における反射率低下はspallationに対応している可能性がある(Fig. 6 (s))。この領域においては表面近傍の原子の剥離が起こるため、表面粗さが比較的早い時間で大きくなると考えられる。また、数値計算の結果からも、spallationが観測されるフルエンス領域は狭いことが予測されており³⁷⁾、リング状に狭いフルエンス領域で観測された結果ともよく一致する。この領域が最終的に形成されるリム(多孔質の膨らみ)の領域と一致することも興味深い。今のところ対応関係は不明である。

5. 結 論

フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザープローブの時間分解軟X線イメージングシステムを構築した。軟X線の干渉計と反射率イメージングの両者を用いることで、従来の可視光を用いた時間分解計測等では明らかにすることができなかったフェムト秒レーザーアブレーションの初期過程を捉えることに成功した。干渉計測からはアブレーションフロントの膨張速度を求めることに成功するとともに、レーザー照射後50 psの時点においてはアブレーションしきい値強度に相当する場所においてアブレーションフロントに特異的な振る舞いは見られず、それよりも外側の部分から膨張していることを明ら

¹²⁾ The center for X-ray optics: URL: http://henke.lbl.gov/optical_constants/

かにした。また、反射率計測からは、急激な軟X線反射率低下を示す強励起領域、比較的遅い反射率低下を示す中励起領域に加え、アブレーションしきい値近傍でリング状の反射率低下が観測された。これらの観測結果は、シミュレーションによって示された、vaporization, fragmentation, homogeneous nucleation, spallationの各プロセスと良い一致を示した。

謝 辞

本研究は、越智 義浩、石野 雅彦、海堀 岳史、大場 俊幸、山極 満(日本原子力研究開発機構)、寺川 康太、馬場 基芳、武井 亮太、南 康夫(東京大学物性研究所)及び山本 稔、出来 真斗、大西 諒(徳島大学)との共同研究である。これらの方々の尽力に深謝する。また、本研究の一部は、(財)住友財団・基礎科学研究助成の支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) R. F. Service: Science **298** (2002) 1356.
- 2) T. Shintake, H. Tanaka, T. Hara, T. Tanaka, K. Togawa, M. Yabashi, Y. Otake, Y. Asano, T. Bizen, T. Fukui, *et al.*: Nature Photon. **2** (2008) 555.
- 3) E. Takahashi, T. Kanai, K. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 253901.
- 4) D. C. Yost, T. R. Schibli, and J. Ye: Opt. Lett. **33**, (2008) 1099.
- 5) T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai, and S. Watanabe: Nature **432** (2004) 605.
- 6) J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, P. J. Batson, R. W. Lee, R. A. London, and S. Mrowka: Phys. Rev. A **50** (1994) 1877.
- 7) S. Suckewer, C. H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane, and D. Voorhees: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 1753.
- 8) D. Strickland and G. Mourou: Opt. Commun. **56** (1985) 219.
- 9) J. Dunn, A. L. Osterheld, R. Shepherd, W. E. White, V. N. Shlyaptsev, and R. E. Stewart: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 2825.
- 10) T. Ozaki, R. A. Ganev, A. Ishizawa, T. Kanai, and H. Kuroda: Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 253902.
- 11) R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith, V. N. Shlyaptsev, and T. Keenan: Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 103901.
- 12) Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, *et al.*: Nature **431** (2004) 426.
- 13) D. Ress, L. B. DaSilva, R. A. London, J. E. Trebes, S. Mrowka, R. J. Procassini, T. W. Barbee Jr., and D. E. Lehr: Science **265** (1994) 514.
- 14) C. A. Brewer, F. Brizuela, P. Wachulak, D. H. Martz, W. Chao, E. H. Anderson, D. T. Attwood, A. V. Vinogradov, I. A. Artyukov, A. G. Ponomareko, *et al.*: Opt. Lett. **33** (2008) 518.
- 15) M. Ishino, A. Y. Faenov, M. Tanaka, N. Hasegawa, M. Nishikino, S. Tamotsu, T. A. Pikuz, N. A. Inogamov, V. V. Zhakhovsky, I. Y. Skobelev, *et al.*: J. Appl. Phys. **109** (2011) 013504.
- 16) A. Barty, S. Boutet, M. J. Bogan, S. Hau-Riege, S. Marchesini, K. Sokolowski-Tinten, N. Stojanovic, R. Tobey, H. Ehrke, A. Cavalleri, *et al.*: Nature Photon. **2** (2008) 415.
- 17) A. M. Lindenberg, S. Engemann, K. J. Gaffney, K. Sokolowski-Tinten, J. Larsson, P. B. Hillyard, D. A. Reis, D. M. Fritz, J. Arthur, R. A. Akre, *et al.*: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 135502.
- 18) D. Ress, L. B. DaSilva, R. A. London, J. E. Trebes, S. Mrowka, R. J. Procassini, T. W. Barbee Jr., and D. E. Lehr: Science **265** (1994) 514.
- 19) K. Oguri, Y. Okano, T. Nishikawa, and H. Nakano: Phys. Rev. B **79** (2009) 144106.
- 20) J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. Driel: Phys. Rev. B **27** (1983) 1141.
- 21) J. F. Young, J. S. Preston, H. M. Driel, and J. E. Sipe: Phys. Rev. B **27** (1983) 1155.
- 22) J. F. Young, J. E. Sipe, and H. M. Driel: Phys. Rev. B **30** (1984) 2001.
- 23) N. Yasumaru, K. Miyazaki, and J. Kiuchi: Appl. Phys. A **76** (2003) 983.
- 24) A. Borowiec and H. K. Haugen: Appl. Phys. Lett. **82** (2003) 4462.
- 25) T. Tomita, K. Kinoshita, S. Matsuo, and S. Hashimoto: Jpn. J. Appl. Phys. **45** (2006) L444.
- 26) T. Tomita, K. Kinoshita, S. Matsuo, and S. Hashimoto: Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 153115.
- 27) 藤田 雅之, 橋田 昌樹: 応用物理 **73** (2004) 178.
- 28) D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten: Appl. Surf. Sci. **154-155** (2000) 1.
- 29) K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski, A. Cavalleri, D. von der Linde, A. Oparin, J. Meyer-ter-Vehn, and S. I. Anisimov: Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 224.
- 30) V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde: J. Opt. Soc. Am. B **23** (2006) 1954.
- 31) V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, and D. von der Linde: Appl. Phys. A **78** (2004) 483.
- 32) M. Tanaka, M. Nishikino, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Kado, M. Kishimoto, K. Nagashima, and Y. Kato: Opt. Lett. **28** (2003) 1680.
- 33) Y. Ochi, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Nishikino, T. Ohba, M. Tanaka, M. Kishimoto, T. Kaihori, K. Nagashima, and A. Sugiyama: Jpn. J. Appl. Phys. **48** (2009) 120212.
- 34) J. M. Liu: Opt. Lett. **7** (1982) 196.
- 35) J. T. Larsen and S. M. Lane: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **51** (1994) 179.
- 36) T. Suemoto, K. Terakawa, Y. Ochi, T. Tomita, M. Yamamoto, N. Hasegawa, M. Deki, Y. Minami, and T. Kawachi: Opt. Express **18** (2010) 14114.
- 37) D. Perez and L. J. Lewis: Phys. Rev. B **67** (2003) 184102.
- 38) P. Lorazo, L. Lewis, and M. Meunier: Phys. Rev. B **73** (2006) 134108.
- 39) M. Yanagihara, T. Sasaki, M. Furudate, and M. Yamamoto: Opt. Rev. **3** (1996) 65.

レーザーワード

軟X線レーザープローブ(soft x-ray laser probe)

およそ0.2 nmから数10 nm程度の波長をもつ電磁波(軟X線)を用いたプローブ。物質に照射した場合、硬X線領域の電磁波は物質を透過するのに対し、軟X線領域の電磁波は強く吸収される。逆にこの性質を利用し、軟X線を斜入射で物質に照射し、その反射光を観測すること

で、物質の表面近傍(数nm程度)の情報を得ることが出来る。そのため、軟X線レーザープローブを用いた表面計測は干渉計測や反射率計測と組み合わせることで他の電磁波波長領域では不可能な高感度の表面計測を可能にする。(富田 卓朗)