レーザーレター

希ガスクライオターゲットを用いた
レーザープラズマX線源

望月孝晏*・児玉了祐*・山中千代衛*

(1986年11月10日 受理)

Laser Plasma X-Ray Source Using Cryogenic Target
of Inert Atomic Element

Takayasu MOCHIZUKI*, Ryosuke KODAMA* and Chiyoe YAMANAKA*

(Received November 10, 1986)

X-ray spectra from $0.53\mu\text{m}$ wavelength laser-produced plasmas are investigated for the photon energy range of $0.1\sim 3\text{keV}$ as a function of the atomic number Z . Several spectral humps are found to move towards higher energy side as Z increases. These series of the humps are interpreted as the transitions in K, L, M, N, O shells of ions. The square root of the photon energy at the spectral hump is found to be approximately linearly dependent on Z , suggesting that a semi-Moseley's law holds in the plasma x-rays. From this result liquid or solid cryogenic targets using Xenon or Krypton are found to be very useful as a practical x-ray source. A preliminary experimental result of the cryogenic target is presented and a practical system is proposed.

レーザープラズマX線は高輝度、且つ変換効率*の高いことが近年の研究成果¹⁾として知られるようになり、その結果X線リソグラフィ光源やX線顕微鏡光源、その他への応用が試みられている²⁾。特に金属の多くはターゲットとして高いX線変換効率を持つことが知られている。しかしながらレーザープラズマX線の難点としてはX線以外にプラズマ粒子やターゲット材の蒸気が発生することであろう。長時間運転が要求されるX線リソグラフィやX線顕微鏡ではマスクやX線光学系への高速プラズマ粒子による損傷や蒸気の付着が致命的となりうる。プラズマ粒子は磁場によって防ぐことができる

が³⁾、中性の蒸気の付着を防止することは困難である。一方、これらの応用上最適な波長のX線を強く発生するターゲットはレーザープラズマX線スペクトルの原子番号(Z)依存性を知ることにより決定することができる。

本論文ではレーザープラズマX線源を実用化するのに妨げとなりうるターゲット材の蒸着(レーザースパッタリング)を起こさず、且つX線リソグラフィ光源として最適な波長のX線($1\sim 2.5\text{keV}$)²⁾を放射するターゲット材としてKr, Xeガスを低温にて液化又は固化したクライオターゲットを用いることを提案する。実際に上記の不活性ガスを固化してクライオタ

* 大阪大学レーザー核融合研究センター (〒565 大阪府吹田市山田丘2-6)

* Institute of Laser Engineering, Osaka University (2-6, Yamada-oka, Suita, Osaka, 565)

ターゲットとしてパルスレーザーを照射する予備実験の結果と実用的なシステム案を報告する。

既に望月等によりレーザー条件一定（波長 $0.53\mu\text{m}$, 強度 10^{14}W/cm^2 , パルス巾 1 n sec , 入射角 54° ）の時, $0.1\sim 1.5\text{ keV}$ の領域の X 線を発生する X 線変換効率は原子番号の増大と共に増加していくがゆるやかな振動構造を持つことが知られている¹⁾。だが, 今回はレーザー強度 10^{14}W/cm^2 , パルス巾 1 n sec とし, レーザー入射角は 35° に固定した。ビームスポット径は $150\sim 200\mu\text{m}$ とした。上記の X 線波長領域 ($0.1\sim 1.5\text{ keV}$) に対しては Ref. 1 と同じく 10 チャンネルのフィルター付高速応答 X 線ダイオード (XRD) のセットを用いて X 線スペクトル強度を評価した。 $1.0\sim 2.0\text{ keV}$ の領域に対しては TIAP^{***} 結晶と KODAK の Direct Exposure Film (DEF)⁴⁾ とを組み合わせた X 線結晶分光器によるスペクトル分布の評価をおこなった。 $1.5\sim 3\text{ keV}$ に対しては膜厚 $45\mu\text{m}$ の Be フィルターと組合わせた XRD による強度の評価をおこなった。Ref. 1 と同様に X 線スペクトル強度の原子番号依存性が $0.1\sim 3\text{ keV}$ の広範囲に渡り求められた⁵⁾。その結果, レーザー入射角度 54° に比べ変換効率は全体に増加していることがわかった。これはレーザー光がより密度の大きい領域に進入し, そのためプラズマによるレーザーエネルギーの吸収が増加することによると考えられる。各原子番号 (Z) のターゲットからのスペクトルは特有な山を持ち, それらの山の位置の平方根 $\sqrt{h\nu}$ を Z の変化について追跡すると Fig. 1 のように網線で結ぶことができた⁵⁾。太い実線はスペクトル強度の山の部分を X 線光子エネルギー領域で示したものである。但し山の頂上の $\frac{1}{2}$ 以上の強度を持つ領域を基準にして決めた。これらの網線で示す山 (スペクトル強度大の部分) の系列は発生したイオンの電子軌道 K, L, M, N, O 殻での遷移による X 線に対応しており, レーザープラズマでの輻射も古典的なモーゼレーの法則⁶⁾ と同様な関係 $Z \propto \sqrt{h\nu}$ の値で比較的強く輻射が生じていることがわかる。ここで $h\nu$ は光子のエネルギーである。求められた関係は上記のよ

Fig.1 Positions of the X-ray spectral humps as a function of the atomic number Z . Solid lines show the positions of the hump.

うな限られたレーザー条件のもとで得られたものであるが, このような Z 依存性のふるまいは原子構造に基づくものであり, スペクトル強度の山の高さは変化するにしても生成されたプラズマの温度・密度分布によってあまり変化しないと考えられる。また使用したレーザー条件はレーザープラズマ X 線光源を実用化するうえで期待されるパラメーターにほぼなっており²⁾, 応用上かなり一般性があると考えられる。このような擬似モーゼレーの法則から, 逆に欲しい X 線の光子エネルギーを決めればこの光子領域を強く輻射する元素を容易に予想することができる。ここで X 線リソグラフィ用に望まれる $1\sim 3\text{ keV}$ の X 線を比較的効率よく輻射するターゲットとして化学的に不活性な元素を考えると Xe ($Z=54$), Kr ($Z=36$) が Fig. 1 より最も良いことがわかる。Xe は 1 keV に近い X 線を Kr より強く輻射する。希ガスをガスパフとして真

Fig. 2 Schematic View of the experiment set-up for a cryogenic target
 A, B: Holder for a substrate,
 C: Crystal substrate
 D: Cryo-base plate,
 E: Transfer tube for liq. N₂ or liq. He.
 F: Nozzle for inert atomic gas

空中に放出し、そこにレーザーを集光する方法では十分に大きな粒子密度を得ることが困難な為、エネルギー密度が低く充分なX線放射輝度を得られない。またスケール長の長いプラズマが生成されるためレーザー光との非線形相互作用によりプラズマ不安定性が生じやすい。幸いこれらの希ガスは比較的容易に液化、固化が可能であるため*** 固体又は液体のターゲットとして使用可能である。また入手も困難ではない。このようなターゲットを希ガスクライオターゲットと呼ぶことにする。これらのターゲットを用いれば窓材やマスクへのターゲット材の蒸着の問題は解決されよう。

我々はXe ($Z=54$) のX線変換効率とスペクトル形状を調べるためFig. 2のような実験装置を用い予備実験をおこなった。クライオスタットとしては温度可変制御のできる Continuous Flow Cryostatを用いた。**** 結晶基板Cを金メッキした金属板AとBによりインジウムを介して挟み込み、これらは台座Dに固定されている。結晶板としては、原子番号がXeと一つ違い、且つ低温で熱伝導が、比較的好く、可視～赤外光に対して透明なCs' ($Z=55$) I ($Z=53$) 結晶を用いた。台座Dは図中の二重円筒の内部の細管を通して放出、気化される液体ヘリウム又は液体窒素によって冷却される。したがって

Fig. 3 Example of laser-plasma x-ray source using a cryogenic target of inert atomic element.

1: Laser focusing optics, 2: Cryo-target, 2': Nozzle 3: X-ray exit,
 4: Vacuum chamber, 5: Refrigerator
 6: Evacuation and recirculation pump,
 7: X-ray

結晶基板も十分に冷却される。基板の温度は温度センサーによってモニターされ、台座Dに取付けられたヒーターを制御することにより温度を任意の値で一定に保つことができる。十分に冷却された基板に向けて細管Fの先端のノズルよりXeガスをゆっくり真空中に噴出すると、基板には液体又は固体のXe層が形成される。右側より波長 $0.53\mu\text{m}$ のパルスレーザー光がFig. 1のデータ取得と同じ条件で集光照射され、発生したX線は結晶分光器、XRDにより観測された。基板上的Xe層の厚さは容易に数 μm ～数十 μm にすることができる。観測されたスペクトルの位置、X線変換効率の値は予想連りのものであった。詳しくは別の論文で報告する予定である。

Fig. 3はクライオターゲットを用いたレーザ

ザープラズマX線源の一例である。希ガスを液化、又は固化したクライオターゲットはベルト又は同等な機能を持つ手段によりレーザー照射部へ運ばれ照射される。レーザー加熱により気化された希ガスは十分に温度の高いチャンパー壁には付着せずガスとして回収され、再度液化又は固化される。このような循環方式を取ればターゲット材料を外部から常に供給することなく長時間運転可能となろう。また液滴にして噴出、又は落下させ、これをレーザーで照射すれば後続のターゲット材を不要に予備加熱することを防ぐことができよう。

レーザープラズマX線をX線リソグラフィー等へ応用する場合の最適なレーザー条件及びターゲットの選択方法は最近明らかにされつつあるが、今回X線スペクトルのターゲット原子番号依存性が擬似モーズレーの法則に従うことから1～3 keV領域のX線を比較的効率よく(～10%)輻射するターゲット材としてXe, Kr, ガスを液化又は固化したクライオターゲットが有効であることがわかった。予備実験で調べたところ予想通りのX線強度を上記X線領域で与えることがわかった。これらのクライオターゲットの使用によってX線窓材やマスクへのターゲット材の蒸着の問題は解決されよう。クライオターゲットを使用することによる上述の特徴はX線リソグラフィーのみならず他の応用上も有用であろう。

注)

*) 慣習としてレーザーエネルギーからX線エネルギーへのConversion efficiencyの和訳として用いられているが要するに発生効率である。

**) Thallium Acid Phthalate.

***) キセノン; 液化点 -107.1°C , 固化点 -111.9°C
クリプトン; 液化点 -152.9°C , 固化点 -156.6°C

****) The Oxford Instrument Co. Ltd, Type CF 104を改造した。

参 考 文 献

- 1) T. Mohizuki et al: Phys. Rev. A33, 525 (1986) 及びこの論文中に引用されている文献。
- 2) 望月孝晏: 大阪大学レーザー核融合センター, Research Report ILE 8607P. (June, 1986)
- 3) 望月孝晏他: レーザー学会第6回学術講演予稿集 p.143, 1986.
- 4) P. D. Rockett, C. R. Rird, C. J. Hailey, D. Sullivan, D. B. Brown and P. G. Burkhalter: Appl. Optics 24, 2536 (1985).
- 5) T. Mochizuki and C. Yamanaka: (to be published in SPIE 733-05 (1986)).
- 6) H. G. J. Moseley: Phil. Mag. 27, 703 (1914).