



Title	XFEL応用研究のための光計測素子の開発
Author(s)	山ノ井, 航平
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/59180
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	山ノ井 航 平
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 25541 号
学位授与年月日	平成24年3月22日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科環境・エネルギー工学専攻
学位論文名	XFEL 応用研究のための光計測素子の開発
論文審査委員	(主査) 教授 猿倉 信彦 (副査) 教授 乗松 孝好 教授 中井 光男 教授 堀池 寛

論文内容の要旨

次世代リソグラフィへの応用が期待されるEUV光源、たんぱく質1分子での構造解析を可能とするX線自由電子レーザー(XFEL)といった、軟X線～X線領域光源に対する需要は、近年、科学、医療、産業など様々な分野でますます高まっている。光源開発の進展により、この波長領域における機能的な光学素子の開発にも高い関心が集まっている。本研究ではLBD材料として注目されていたワイドギャップ半導体であるZnO結晶を使い、紫外線からX線領域におけるシンチレタ開発及びZnO結晶をターゲットとしたEUV-FELを用いたポンププローブ実験を行った。

ZnO結晶に軟X線レーザー励起と紫外線レーザー励起での発光時間分解、発光スペクトル、温度依存を調べることで、軟X線(EUV)シンチレタとしての特性評価を行った。実験はNi様Agイオンプラズマからの波長13.9 nmの軟X線レーザーを所有する日本原子力研究開発機構関西科学研究所で行った。結果として発光寿命は1 ns程度であり、EUV励起と紫外線励起で発光特性に違いがなく、EUVシンチレタとしての有用性を示した。また、X線に感度を持った画像素子としての応用を視野に入れ、軟X線レーザー励起でのZnO結晶の発光を撮影した。発光は拡大光学系を利用したCCDカメラによって撮影され、その結果、少なくとも10 μm以下の空間分解能を持つことがわかった。これは他の画像素子と比較しても遜色ない結果であった。

次にXFEL用シンチレタ開発を行った。ここでは理化学研究所の所有するXFELのプロトタイプであるSCSS試験加速器(EUV-FEL)を用いて、発光特性評価を行った。これまでのZnO結晶では少なくともピコ秒以下の時間精度が求められるXFELでは時間特性評価用のシンチレタとしては不十分であった。そこでZnO結晶に不純物をドーピングすることにより、発光寿命を短寿命化するを試みた。Inをドーピングすることで、1 nsの発光寿命が3 ps程度の寿命になり、短寿命化に成功した。また、実際に改良型ZnO結晶を用いてSCSS試験加速器と同期レーザーの同期モニターに成功した。これにより限られたXFELのタイミング同期の大幅な時間削減に繋がり、限られたマシンタイムの有効活用に役立つ。

ここまでの結果により、シンチレタ開発及びその特性評価に成功した。しかし、ZnO結晶の不純物ドーピングの効果が励起子の挙動は未だに明らかになっていなかった。そこでSCSS試験加速器と同期レーザーを用いてポンププローブ実験を行い、これらの特定を行った。SASE型FELによる固体のポンププローブ実験は世界初の結果であった。

本論文は、近年注目の集まっている次世代短波長光源である、X線自由電子レーザー(XFEL)への利用を目指した高性能シンチレターの開発についての研究を行ったものである。XFELを使用することでは様々な応用研究が可能となるが、特にタンパク質分子などのダイナミクス解析の様な微細空間かつ超高速度現象の観測に期待が持たれている。その様な背景を踏まえて、空間的及び時間的分解能の両面において、シンチレターの開発研究を行った点に本論文の特徴がある。

まず、最初にシンチレター候補材料としての酸化亜鉛(ZnO)を選択し、課題達成に効果的な材料であること示した。ZnOはその励起子発光が室温でも安定に生成する、発光寿命が短いなど多くの利点を有する。現実的な土台を元に具体的な研究計画が立案できることも重要な点である。実際に使用する試料の作成においては近年開発された結晶作成法を積極的に導入することで高品質かつ大型のものを作成するのに成功している。

次に、作成した試料の空間分解能調査を行なっている。実験には、将来のXFEL等極短波長レーザーへの応用を視野に入れて、現在利用することのできるものなかで最も短い波長域のレーザーの一つである、日本原子力研究開発機構関西科学研究所のプラズマ駆動軟X線レーザーを光源として使用している。その結果、作成したZnOシンチレターは十分な分解能を持っていることを示した。さらにビーム形状の測定を行い、実用性も充分にあることを実証した。また、ここで得られた空間分解能の妥当性についても、モデルを立てることで検討し、従来報告されている他の材料の結果とも比較を行ない、空間分解能が励起子の散乱であることがわかった。

時間分解能の改良の面でも多くの工夫がなされている。従来のZnOの発光寿命は、一般のシンチレターと比べるとかなり短いものではあるが、分子のダイナミクスを実時間計測できるほどの短さではない。本論文の最も特徴的な点として、ZnOに様々な不純物をドーピングし発光寿命調査を行ったことがあげられる。一般的には不純物を混ぜることは発光材料開発では量が低下することからむしろ避ける方向に進むが、本論文では不純物をドーピングした半導体の発光寿命変化例などを参考にすることで、あえてドーピングを行なって発光寿命が従来のものから1～2桁早くなるものを見つけ出すことに成功した。また、様々な種類のドーピングにより発光寿命が色々変化することを観測しており、目的に応じて発光寿命を設定したシンチレターの任意の作成も将来的に期待できる。

そして、この作成した改良ZnOシンチレターを用い、XFELの試験加速器である極端紫外(EUV)FELを光源として使用し、先駆的なポンププローブ実験を行なっている。ダイナミクス観測において一般的な手法としてポンププローブ実験がある。ポンププローブ実験は固体物性の分野においても特に力を発揮する。本論文では固体のポンププローブ実験をEUVFELを用いて初めて実現している。まだ利用され始めてそれほど時間が経っていない新しい光源であるため2つのレーザーの同期や空間の重なりの確認が簡単にはいかないものであるが、本論文では発光の計測から新たに作成したZnOを用いることによって、光源の発光分びにポンプ光とプローブ光との遅延時間を高精度に測定することが可能となり、高い空間的、時間同期精度を実現することが可能となったことで、最終的にZnOのポンププローブ実験を成功させている。本来シンチレターとして開発されたZnOをポンププローブ計測の対象として選んだのは、先の発光高速化のメカニズムを証明するためである。不純物による発光のクエンチングを仮定してモデルを立て、ポンププローブ実験の結果と合わせることで励起子発光と不純物準位の複雑な相関が明らかにされている。この結果として、固体におけるEUVFELでのポンププローブに初めて成功するとともに、発光の高速化メカニズムを示すことができており、今後様々な特性を持ったシンチレターが開発され、様々な次世代光源で利用されていくことが期待できる。実際に本論文で開発されたシンチレターはEUVFELの他の実験で利用が行われている。

以上のように、本論文において、従来使用されるシンチレターよりも高速応答性が大幅に向上したものを作成するとともに、そのメカニズム解明を行った。さらに、それを使用した光源利用実験の実例を示すことで今後のこの分野の研究が大いに発展することが期待できる。特に固体物性の計測手段としてFELのような次世代光

源が利用できることを世界に先駆けて示すことに成功している。これらの先進的な成果から、本論文は高く評価できるとの結論に達した。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。