

## Degradation and restoration of optical cavity mirrors for DUV FEL

H. Ogawa<sup>1</sup>, K. Yamada, N. Sei, T. Ohdaira, R. Suzuki, M. Yasumoto, R. Kuroda

Research Institute of Instrumentation Frontier, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST),

1-1-1 Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8568

### Abstract

At AIST, the DUV/VUV FEL beam line is being improved for the FEL application experiments. Dielectric multilayer mirror is used for FEL cavity mirror and its degradation is one of serious problems in short-wavelength storage ring FELs. In this study, the restoration of degraded  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  mirror around 200nm is investigated by treatment with RF-induced oxygen plasma and thermal annealing.

## DUV FEL光共振器ミラーの劣化特性および再生技術開発

### 1. はじめに

産総研では、小型電子蓄積リングNIJI-IVを用い自由電子レーザー (FEL) 発振の広帯域化 (真空紫外-赤外域) および利用研究を行っている。真空紫外域FELの開発ではFEL発振の短波長化に取り組み、これまで国内で初めて200nmを切る発振 (最短波長198nm) に成功している<sup>[1]</sup>。この遠紫外/真空紫外域 (DUV/VUV) FELの利用研究の一環として、200nm付近のFELを光源とした光電子顕微鏡 (PEEM) によるイメージング等の研究も開始している。利用研究を実施するにあたり、FEL発振の広帯域化や高安定性が求められるが、光共振器ミラーがアンジュレータからの強い放射光にさらされるとミラーの劣化により、発振波長の狭帯域化や発振が不安定になる等の問題が生じている。これまで、紫外-可視域で採用していた3種類の誘電体多層膜ミラー ( $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ ,  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ) で行った研究でも狭帯域化等の共振器ミラー損失の増大が観察されているが、この原因としてミラー表面への微量のカーボンの堆積や誘電体内部の欠陥生成によることが各種計測手法を用いて調べられている<sup>[2,3]</sup>。

本研究では、220nm以下の波長域で採用している  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  誘電体多層膜ミラーに対して、劣化特性の評価と反射率の回復技術開発を行った。全長6.3mの光クライストロンETLOK-IIを挟んで設置している共振器長14.8mの光共振器ミラーに波長200nm付近のアンジュレータ光を照射し、照射量の増加に伴い狭帯域化が進行することを観測した。これらの劣化したミラーの反射率を回復させるため、酸素プラズマによる表面処理によりミラー表面のカーボンの除去を行うとともに、アニール処理を施し損失が回復した結果を述べる。更に陽電子寿命測定法 (PALS) を用いた誘電体内部の欠陥評価結果についても紹介する。

### 2. FEL共振器ミラーの劣化特性

#### 2.1 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ ミラーの反射率低下

図1に波長200nm付近に最適化したFEL共振器ミラーの反射率特性を示す。ミラーは石英基板 (曲率半径 $R_0=10\text{m}$ , 直径30mm) に  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  誘電体多層膜が Ion Beam Sputtering (IBS) により53層コーティングされており、超高真空下の環境で使用している。196-206nmの波長域で損失0.5%以下と低損失であるが、FEL発振実験でアンジュレータ光が照射されると、帯域が狭くなっていることが分かる。また、僅かではあるが反射率が最大の波長 (~202nm付近) でも損失の増大が見られる。当ミラーはETLOK-IIの下流側の光共振器で使用したものであるが、この劣化特性は紫外-可視域のFELミラーと同様にETLOK-IIに対して上流、下流の設置場所に関わらず観察され

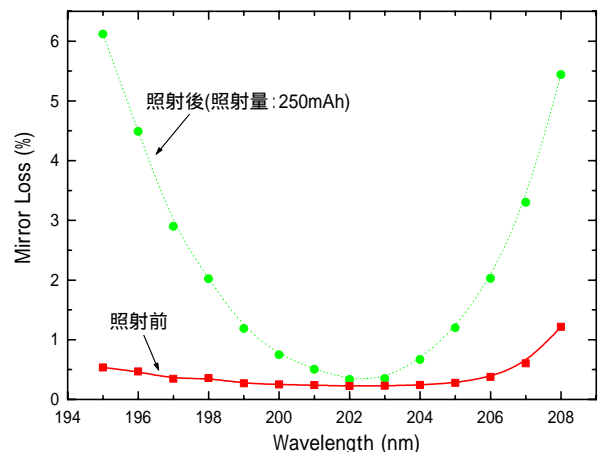


図1: アンジュレータ光照射によるFELミラー損失の増大

<sup>1</sup> E-mail: ogawa.h@aist.go.jp

ている。

## 2.2 FELミラー反射率測定法

上記のミラー損失を計測したシステムについて紹介する。波長200nm付近の低損失ミラーの反射率は、Cavity ring-down (CRD)法<sup>[4]</sup>により計測した。CRD法は反射率測定対象のミラーを用いて構成されたFabry Perot共振器にパルス光を入力し、その共振器に蓄積された光子の寿命を測定することによりミラー損失を計測する方法である。

光子が共振器を1往復した時の損失率をLとし、 $l_c$ を共振器長とすると、単位時間当たりの損失は $cL/2nl_c$ である(ここで、cは光速、nは空気の屈折率)ので、光共振器に蓄積されたパワーは

$$I(t) = I_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \quad (1)$$

$$\tau_c = \frac{2nl_c}{cL} \quad (2)$$

で減衰する。したがって、共振器光子寿命  $\tau_c$  を測定することにより共振器を構成するミラーの反射率を

$$\begin{aligned} R_{eff} &= 1 - L \\ &= 1 - \frac{2nl_c}{c\tau_c} \end{aligned} \quad (3)$$

より求めることができる。本研究で構築したCRD装置<sup>[5]</sup>の概略を図2に示す。FELミラー(M1,M2)で構成した光共振器( $l_c=0.5m$ )にパルスレーザー(繰り返し10Hz)を入射し、共振器で蓄積され透過してきた光を光電子増倍管により検出した。この減衰信号をデジタルオシロスコープでデータ取得し、共振器内の光子寿命  $\tau_c$  をフィッティングより求め共振器ミラー損失を導出した。この段階での損失は、2枚のミラー(M1,M2)のセットの値であるので、ミラー1枚あたりの損失を求めるため、3枚のミラー(M1,M2,M3)の3セットの組み合わせ(M1,M2)、(M1,M3)、(M3,M2)の共振器損失を各々測定し、各セットの共振器損失の積および比をとることにより1枚毎のミラー損失を決定している。

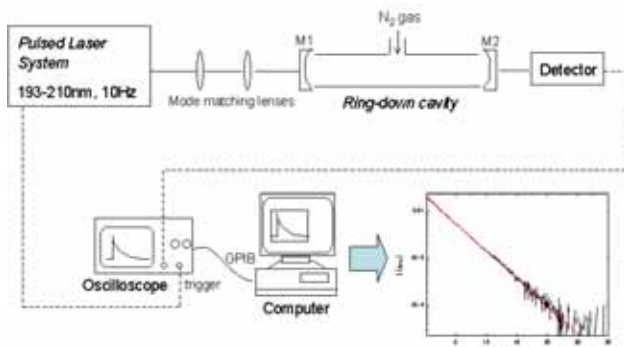


図 2: Cavity ring-down (CRD) 装置の概略

## 3 . FELミラーの回復技術

これまでの紫外-可視域FELミラー劣化の研究<sup>[2,3]</sup>で反射率の狭帯域化はミラー表面へのカーボンの堆積が原因であることが分かっており、その劣化したミラー損失を酸素プラズマ処理により帯域が回復できることが知られている。本研究では、まず、遠紫外領域のミラーに対してもプラズマ処理が有効であるか検証を行う。更にアニール処理も行い、反射率回復の効果を調べる。

### 3.1 酸素プラズマ処理

ETLOK-IIの上流および下流の位置で使用したミラー(照射量:245mAh)のアンジュレタ光照射前後の損失を図3にプロットした。照射により劣化したミラー表面は、肉眼では着色等の汚染が観察されないが微量のカーボンの堆積が原因と考えられるので、プラズマリアクター(ヤマト科学株式会社、PR500)内に設置し(図4参照)、ミラー表面のドライクリーニングを実施した。リアクターチェンバー内を真空排気した後、流量100ml/minの酸素ガスを導入し約60Paの圧力に保ちながら高周波(13.56MHz, 300W)を照射して酸素プラズマを発生させた。300秒間プラズマ処理を行った後のミラー損失を図3の に示す。この処理によりミラー損失が改善され帯域がほぼアンジュレタ光照射前の値に回復することに成功した。しかし、完全に反射率は戻っておらず初期のミラー損失に比べ波長域全体に渡り0.15%程度損失が回復できていないことが分かる。これは誘電体内部に生成された欠陥に起因するものと考えられるので、次にアニール処理を行い、反射率の回復への効果を検証する。

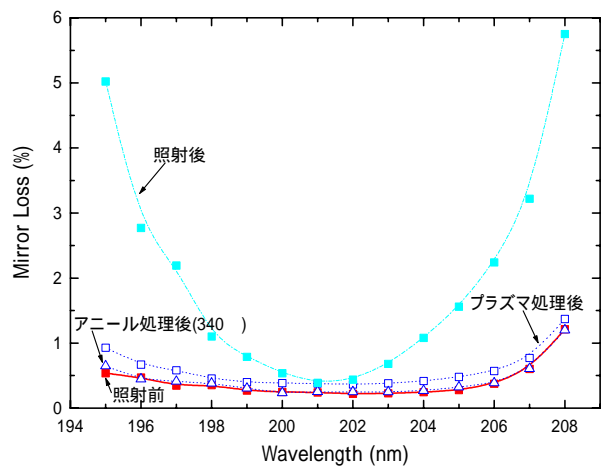


図 3 : 劣化したFELミラーへの酸素プラズマ処理およびアニール処理による反射率回復

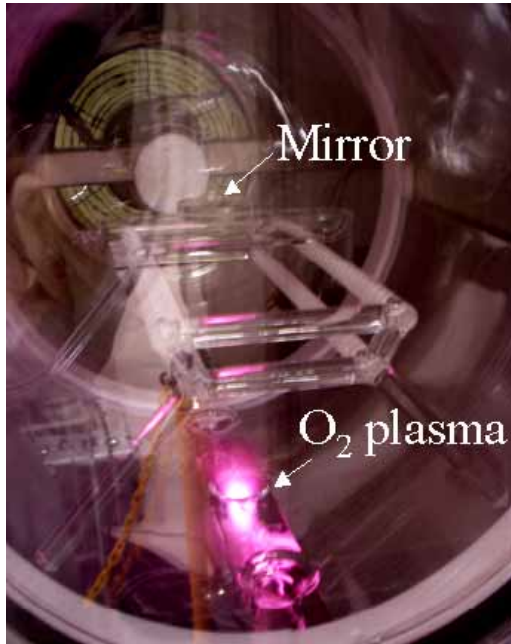


図 4: FELミラーの酸素プラズマ処理の様子

### 3.2 アニール処理

アニールの際にミラー表面に空気中の埃が焼きつくことを防ぐため、クリーンルーム内に設置されているクリーンオープンを用いて大気雰囲気アニールを行った。まず、300 °Cで5時間アニール処理を行った。その結果、反射率をほぼ完全に回復することに成功した<sup>[5]</sup>が、次に説明する誘電体内の欠陥評価を目的に更に340 °C、7時間のアニールを実施した。このアニール処理後のミラー損失を図4の ④に示す。初期のミラー損失とほぼ一致しており、一連のプラズマ処理およびアニール処理を施すことで、劣化した $Al_2O_3/SiO_2$ ミラーを再生できることが分かった。

### 3.3 陽電子寿命測定法による欠陥評価

誘電体内の欠陥の回復に対して上記アニール処理がどれだけ効果があったかを調べるため陽電子寿命測定法 (PALS) <sup>[6]</sup>を用いて評価を行った。オルソポジトロニウムの超寿命成分 $I_L$ が $SiO_2$ 層の欠陥が多いほど減少することを利用し、PALSにより $I_L$ を測定することでアニール処理前後での欠陥の量の変化を観察した。図5に陽電子の入射エネルギー $E_{in}$ に対する $I_L$ をプロットした。入射エネルギー $E_{in}$ は誘電体の表面からの膜厚に対応している。劣化したミラーでは、 $I_L$ が減少し欠陥が生成されていることが分かるが、340 °C、7時間のアニール処理後ではミラー表面から約3層目( $E_{in}=5keV$ )以降の深さでは欠陥が回復しているものの表面近傍では、完全な回復ができていない。このことは300 °Cで行ったのアニールでも同様に観察されている<sup>[5]</sup>。紫外・可視域FELミラーでは、これらより低温のアニール処理でミラー表面までの完全な回復が観察されている<sup>[3,6]</sup>ので、欠陥の完全な修

復のためには遠紫外域より短波長のミラーでは、更に高温のアニール処理の必要性が示唆される。

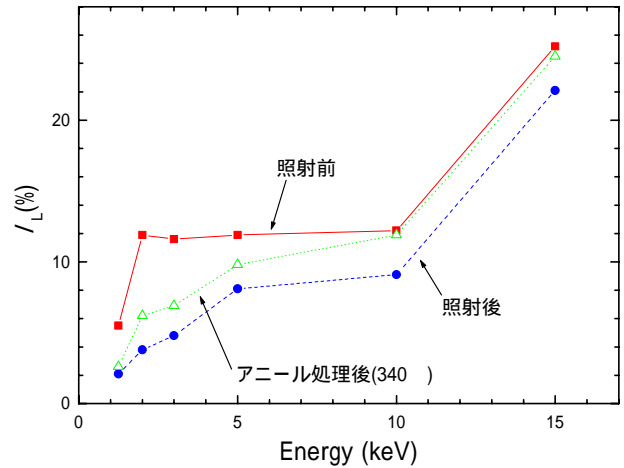


図5: PALSによる誘電体内の欠陥の評価

## 4 . まとめ

200nm付近の波長域のFEL実験で用いている誘電体多層膜ミラーの劣化特性および回復技術の研究を行った。劣化したFELミラーの回復に対して、酸素プラズマ処理およびアニール処理を行うことが紫外・可視域FELミラーと同様、有効であることを実証することができた。現実験では完全な誘電体の欠陥の回復まで至っていないため、今後、アニール処理の温度をさらに上げ、欠陥の回復が行えるか検証する予定である。

本研究は、原子力委員会の評価に基づき、文部科学省原子力試験研究費により実施されたものである。また、ミラーの各種処理は文部科学省のナノテクノロジー・ネットワークプロジェクトの支援を受けて、産業技術総合研究所ナノプロセッシング施設において実施された。

## 参考文献

- [1] K. Yamada, et al., Nucl. Instr. and Meth. A 528 (2004) 268.
- [2] K. Yamada, et al., Appl. Opt. 34 (1995) 4261.
- [3] K. Yamada, et al., Nucl. Instr. and Meth. A 358 (1995) 392.
- [4] D.Z. Anderson, et al., Appl. Opt. 23 (1984) 1238.
- [5] H. Ogawa et al., Nucl. Instr. and Meth A593 (2008) 17.
- [6] R. Suzuki, et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. 211 (1996) 47.