

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 9 日現在

機関番号：82401

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23434

研究課題名（和文）XFELナノメートル集光のための高精度X線波面計測技術の開発

研究課題名（英文）Development of X-ray wavefront metrology for single-nanometer focusing of XFEL

研究代表者

山田 純平（Jumpei, Yamada）

国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：10845027

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：X線自由電子レーザー（XFEL）Sub-10nm集光の実現のためには、XFELナノビーム評価法の確立が切迫した課題である。本研究では、X線波面計測を高精度に行うことで、XFELナノビーム診断法の確立を試みた。SPring-8においてsub-10nm集光光学系に適したシングルグレーチング干渉計を開発し、綿密な系統誤差較正により  $\lambda/20$  rms以下の波面計測精度を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究はXFELのsub-10nm集光と、これによる世界最高強度のX線高密度光子場の生成を実現するための技術開発である。XFEL sub-10nm集光は、X線非線形光学の開拓や蛋白質1分子構造解析を実現しうる技術であり、広範な科学分野からその実現が待たれている。本研究により、ショット毎のビーム特性変化が存在する条件でもsub-10nm集光の評価を実施することは、全ての応用実験の質を保証するために欠かせない。

研究成果の概要（英文）：For the realization of the X-ray free-electron laser (XFEL) sub-10nm focusing, the establishment of an XFEL nano-beam characterization method is necessary. In this study, we developed a single-grating interferometer optimized for the sub-10 nm focusing system at SPring-8 synchrotron radiation facility, and achieved a wavefront measurement accuracy of less than  $\lambda/20$  rms by systematic error calibrations.

研究分野：X線光学

キーワード：X線集光 X線自由電子レーザー 波面計測 X線ミラー

### 1. 研究開始当初の背景

XFEL は 1 レベルの短波長、ほぼ完全な空間可干渉性、高ピーク輝度、極短パルスといった特徴を有する X 線レーザーである。この XFEL を 10 nm 以下まで集光することで、ピーク強度  $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> に到達する世界最高強度の X 線高密度光子場の生成が可能となり、X 線非線形光学分野などの新たな学問分野の開拓が期待されている。

XFEL 集光では強烈な X 線の照明下で安定して光を集める必要がある。ピーク強度の高さによるアブレーション損傷の問題から、従来光源にて汎用的な回折型光学素子を用いることができず、入射光を分散して受け止める斜入射ミラーが利用される。これまでに申請者主体の研究グループ(理研, JASRI, 大阪大学)では日本の XFEL 施設である SACLA において集光技術開発を進め、硬 X 線波長域において 1/4 波長則を満たす高精度楕円ミラー(形状精度 1 nm PV 以下)作製手法の確立、また従来光学系の欠点である安定性や調整難易度の問題を大きく改善する硬 X 線高安定集光光学系の提案および光学設計を既に終えている。現在さらなる開発も進んでおり、世界に先駆けた XFEL Sub-10 nm 集光ビームの達成が目前まで来ている。

しかしながら、「ショット毎の XFEL 特性(光源位置や発散角・光軸傾き)変化が存在する条件下で、如何にして 10nm 以下の XFEL 集光ビームを評価および保証するか」という問題が残されている。入射 XFEL 光の波面変化や光源の振動及び変動は、集光径や集光点位置のふらつきにつながる。過去の放射光 X 線を用いたナノ集光技術開発では、ナイフエッジ法により集光点強度分布を直接計測する手法が採られたが、ショット毎の変動がある XFEL では正確性や再現性に欠けてしまう。また入射 XFEL 光(サイズ約 500×500 μm<sup>2</sup>)に対して、光子密度が 10 億倍以上高まる 10×10 nm<sup>2</sup> 集光点では、検出限界まで X 線を減衰させた条件でも、ナイフエッジ等のアブレーション損傷が起きてしまう。このため、XFEL 光のシングルショット診断、および安定かつ集光点に対して間接的なアプローチの集光評価、のための手法が必須となる。

### 2. 研究の目的

この問題に対して、X 線波面計測(位相計測)の利用が有効といえる。一般の検出器では欠落してしまう X 線の位相情報を取得すれば、X 線波動場のほぼ全てを明らかにすることができ、定量的な集光ビーム評価が可能となる。本研究では、高精度に系統誤差構成(キャリブレーション)した XFEL 波面計測法を開発し、XFEL ナノビームの定量的かつ安定的な評価を目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では Talbot 効果を利用した X 線シングル・グレーチング干渉計(s-GI: single-grating interferometer)を用いて高精度な XFEL 波面計測を試みた。研究計画段階では入射 XFEL と集光 XFEL にそれぞれ異なる波面計測法の適用を考えていたが、XFEL が従来型 X 線光源と異なり、極めて高い空間コヒーレンスを有していることから、s-GI では入射・集光ビーム共に若干のセットアップ変更(干渉の次数を変更)のみで波面計測可能であることに気がつき、採用に至った。s-GI を用いた高精度な波面計測および XFEL ナノビーム診断を達成するために、1: 干渉計パラメータの詳細設計、2: 波面計測実験とキャリブレーション、3: sub-10nm 集光光学系の波面補償への応用、をそれぞれ実施した。また、SACLA への先んじた応用として 4: XFEL 150 nm 集光装置の波面計測に基づく自動集光調整システムの開発を行なった。

### 4. 研究成果

#### (1)干渉計パラメータの詳細設計

s-GI の設計として最適化すべきは、一般に、格子ピッチ  $d$ , 焦点-カメラ長  $L$ , Talbot 次数(干渉次数) $m$  の 3 パラメータのみである。これを、集光光学系としての開口数や検出器のピクセルサイズを考慮して、適切な分解能で波面計測が行えるよう設計する必要がある。本研究で波面計測を目指す XFEL sub-10 nm 集光光学系は NA0.01 と大きく、つまり、これまでにないレベルの大きな発散角( $\approx 20$  mrad)を有しているため、従来とは全く異なるパラメータ設計が求められた。結果として、 $d=3$  μm,  $L=500$  mm,  $m=0.125$  のパラメータを決定した。これにより、焦点から約 8mm 下流にて、アブレーション損傷のない波面計測が可能である。

#### (2)波面計測実験とキャリブレーション

SPring-8 BL29XU の 1km 実験ハッチ(EH4)にて、上記パラメータのもと波面計測実験を行なった。図 1 に取得した 1 次元・2 次元干渉縞、および解析により得られた波面誤差を示す。十分細かな干渉縞を得ていることから、適切な分解能の s-GI が実

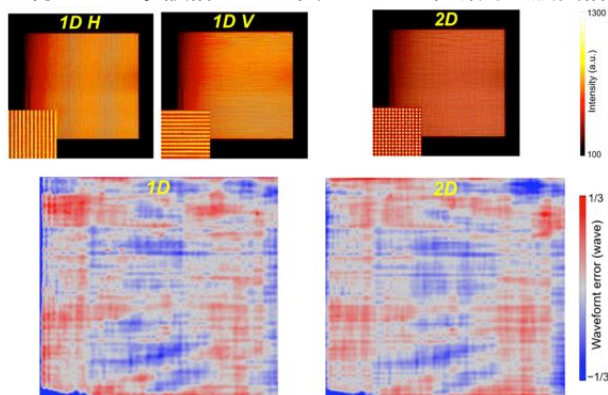


図 1. 1 次元および 2 次元回折格子による s-GI 波面計測結果。

現されていることが分かる。また、2次元回折格子は比較的複雑な構造を有しているにも関わらず、どちらの回折格子による解析結果も約  $\lambda/20$  rms の精度で良い一致を見せ、回折格子の作製精度が十分に高いことが示唆された。2次元回折格子では、1枚の画像のみで波面計測を実施でき、シングルショットによる集光ビーム診断が可能である。さらに、波面の測定精度を精査すべく、系統誤差への寄与が最も疑われる検出器の歪曲収差の影響を調査した。検出器を X 線軸に直交方向へシフトさせながら干渉縞を取得することで、使用する検出器の視野を変化させつつ、波面計測を実施した。結果の例を図 2 に示す。当初使用していた X 線カメラ(Camera setup 1)では、検出器上の視野依存で大きな偏差が生じていることが分かる。これに対し、新たに開発した、低ディストーションレンズを用いた LuAG/Ce 蛍光体-sCMOS 検出器(Camera setup 2)では、視野依存がほぼ抑えられ、 $\lambda/32$  rms を下回る精度での一致を確認した。その他にも、回折格子の位置依存、角度アライメント依存による系統誤差を精査した[1]。

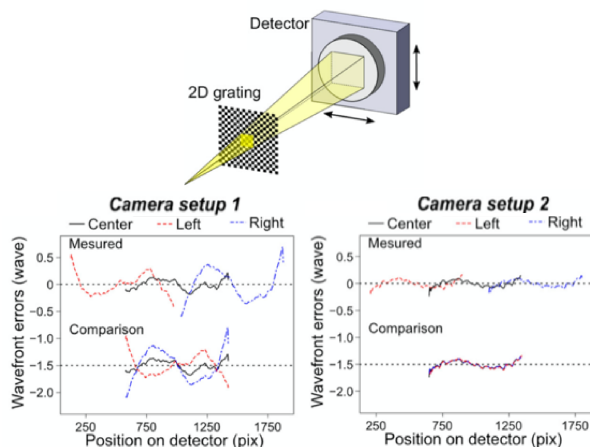


図 2. 検出器の歪曲による影響の低減。

### (3) sub-10nm 集光光学系の波面補償への応用

上記までに開発した、高精度な波面計測法、すなわち優れた「目」を利用して、sub-10 nm 集光光学系の X 線波面補償を実施した。取得した波面誤差からミラー上の形状誤差を算出し、Off-line の高精度形状修正法である差分成膜法を用いて、形状誤差修正を行なった。結果を図 3 に示す。波面誤差は約 2 PV,  $\lambda/3$  rms から  $\lambda/4$  PV,  $\lambda/14$  rms 以下へと大幅に改善した。これらの値は Rayleigh 則および Maréchal 定理を下回るものであり、回折限界集光性能を示すものである。得られた波面精度は、ミラー上の形状誤差になおすと、最も厳しいところで約 0.8 nm PV に相当しており、曲率の大きな本ミラーにおいて既存の可視光形状計測法の計測精度を上回る結果となった。また、これらのデータは独立な 2 回の波面計測に基づきながらも、目的どおりの修正結果が得られており、開発した波面計測法の高い再現性および確からしさを示している。

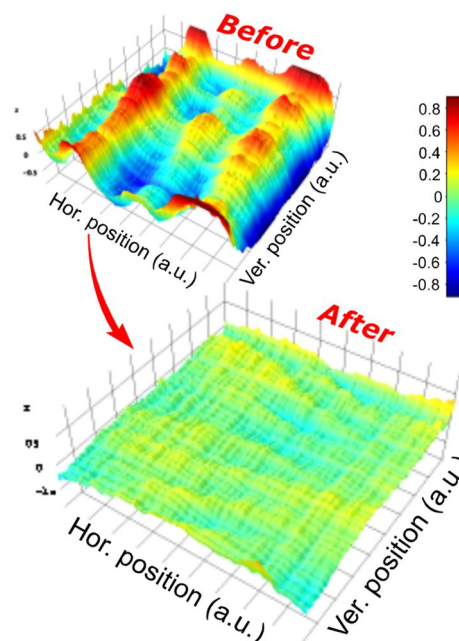


図 3. 波面補償結果。

### (4) XFEL 150 nm 集光装置の波面計測に基づく自動集光調整システムの開発

開発した波面計測法の高い精度、および集光波面誤差により集光ミラーのアライメント誤差を定量化できる点に着目し、SACLA に導入されている Kirkpatrick-Baez (KB)ミラー-150 nm 集光光学系の自動調整システムの開発を実施した。新たに  $d=4.4 \mu\text{m}$  および  $7.0 \mu\text{m}$  の 2次元回折格子を採用し、適用可能光子エネルギー 7~12 keV の汎用性の高い s-GI を設計した。集光波面計測結果に対して Legendre 展開を適用することで、KB ミラーの入射角誤差、直角度誤差および非点収差を定量化し、またそれぞれの駆動軸に対するフィードバック定数を取得した。自動調整システムを構築し、施設内部ユーザー・パイロットユーザーへの共用を開始している。現在までに、実験中に劣化した集光状態の再調整をおよそ 2~5 分で達成し(従来までは 2~3 時間)、ワイヤスキャンによるクロスチェック計測では平均的に 120~170 nm 集光径を確認している。

### <引用文献>

[1] J. Yamada *et al.*, X-Ray Single-Grating Interferometry for Wavefront Measurement and Correction of Hard X-Ray Nanofocusing Mirrors, *Sensors* **20**, 7356 (2020)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Yamada Jumpei, Inoue Takato, Nakamura Nami, Kameshima Takashi, Yamauchi Kazuto, Matsuyama Satoshi, Yabashi Makina	4. 巻 20
2. 論文標題 X-Ray Single-Grating Interferometry for Wavefront Measurement and Correction of Hard X-Ray Nanofocusing Mirrors	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Sensors	6. 最初と最後の頁 7356
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/s20247356	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Inoue Takato, Matsuyama Satoshi, Yamada Jumpei, Nakamura Nami, Osaka Taito, Inoue Ichiro, Inubushi Yuichi, Tono Kensuke, Yumoto Hirokatsu, Koyama Takahisa, Ohashi Haruhiko, Yabashi Makina, Ishikawa Tetsuya, Yamauchi Kazuto	4. 巻 27
2. 論文標題 Generation of an X-ray nanobeam of a free-electron laser using reflective optics with speckle interferometry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 883 ~ 889
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577520006980	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Nakamura Nami, Matsuyama Satoshi, Inoue Takato, Inoue Ichiro, Yamada Jumpei, Osaka Taito, Yabashi Makina, Ishikawa Tetsuya, Yamauchi Kazuto	4. 巻 27
2. 論文標題 Focus characterization of an X-ray free-electron laser by intensity correlation measurement of X-ray fluorescence	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 1366 ~ 1371
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577520009868	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Matsuyama Satoshi, Yamada Jumpei, Kohmura Yoshiki, Yabashi Makina, Ishikawa Tetsuya, Yamauchi Kazuto	4. 巻 27
2. 論文標題 Full-field X-ray fluorescence microscope based on total-reflection advanced Kirkpatrick-Baez mirror optics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 18318
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.27.018318	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 Advanced KB mirror optics and its applications
3. 学会等名 The 12th 3-Way X-ray Optics Workshop (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 J. Yamada
2. 発表標題 XFEL sub-10 nm focusing mirror system based on Wolter III-advanced KB optics
3. 学会等名 The 15th Symposium of Japanese Research Community on X-ray Imaging Optics (XI02019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Yamada, S. Matsuyama, T. Inoue, N. Nakamura, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, K. Tono, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi, and M. Yabashi
2. 発表標題 Development of XFEL sub-10 nm focusing mirrors: wavefront-corrected multilayer KB system and upgrade to advanced KB system
3. 学会等名 RIA0-OPTILAS-MOPM 2019, X-ray optics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田純平, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 松山智至, 山内和人, 矢橋牧名
2. 発表標題 プリズム及びミラー光学素子を用いたマイクロ・ナノ集光X線のビームスキャンニング
3. 学会等名 33回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 J. Yamada, S. Matsuyama, T. Inoue, N. Nakamura, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, K. Tono, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi, and M. Yabashi
2. 発表標題 Development of XFEL sub-10nm focusing system based on Wolter III-advanced KB optics
3. 学会等名 International Conference on X-ray Optics and Applications (XOPT2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Yamada, I. Inoue, T. Osaka, S. Matsuyama, K. Yamauchi, and M. Yabashi
2. 発表標題 X-ray nanofocused beam scan using refractive prism and focusing mirrors
3. 学会等名 International Conference on X-ray Optics and Applications (XOPT2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山田純平, 松山智至, 井上陽登, 中村南美, 田中優人, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 犬伏雄一, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 山内和人, 矢橋牧名
2. 発表標題 Wolter III型advanced KBミラーによるXFEL sub-10 nm集光光学系の開発
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------