

平成 30 年 9 月 4 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13693

研究課題名(和文) サブ100nm集光で非摂動論的な非線形現象を励起するXUV用集光ミラーの開発

研究課題名(英文) Multilayer-mirror objective for diffraction-limited focusing in extreme ultraviolet region

研究代表者

豊田 光紀 (Toyoda, Mitsunori)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：40375168

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：波長10-50nm程度の極紫外(XUV)領域では、先端のレーザー光源技術の発展により、高強度なアト秒パルスが報告され、非線形光学現象の励起が可能になりつつある。本研究では、高次高調波などのアト秒パルス光を回折限界で集光するための、XUV多層膜ミラーによる集光システムを開発した。初めに幾何収差論を用い、大開口数を実現するミラーデザインを得た。さらに、多層膜ミラーの干渉効果による波面の波長分散(色収差)に着目し、この補正法を独自の解析モデルにより見出した。さらに、色収差を補正したアクロマティック多層膜ミラーをマグネトロンスパッタリング法により曲面ミラー基板上に成膜し、集光光学系を構成した。

研究成果の概要(英文)：In the extreme ultraviolet (XUV) region (10-50 nm in wavelength), advanced laser light source technology is yielding high intensity attosecond pulses, and it enables to excite nonlinear optical phenomena in the shorter wavelength region. In this research, we have developed a focusing system with XUV multilayer mirrors, which can focus higher-order harmonics with diffraction-limited spatial resolution. Firstly, we studied to design the focusing optics with large-numerical aperture to bring small focal spot below 100 nm in diameter. Then, we considered the chromatic dispersion of the wave front due to the interference effect on the multilayer mirrors (chromatic aberration), and proposed novel analytical model to correct this chromatic effects. Finally, we fabricated the XUV multilayer mirrors with the achromatic optical design. Magnetron sputtering method was applied to curved-mirror substrates, and the focusing optical system without the chromatic effects was demonstrated.

研究分野：軟X線光学・応用光学

キーワード：極紫外 多層膜ミラー 高次高調波 回折限界 色収差

## 1. 研究開始当初の背景

可視域において光強度が  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> を大きく超えるレーザー場と原子・分子を相互作用させると、トンネルイオン化、高次高調波発生、非逐次二重イオン化、超閾イオン化等の非線形・非摂動論的現象を励起することができる。このような高強度物理学は、可視・赤外域の超短パルスレーザーの進展に支えられ、数多くの研究成果を生み出してきた。一方で近年、10-50nm 程度の XUV (extreme ultraviolet: 極紫外) 域で発振する SASE 型の自由電子レーザー (FEL) や、超短パルスレーザーの高次高調波 (HH) の開発が進み、高強度場と物質の相互作用の研究は、可視・赤外域から、より短波長な XUV 域に展開しつつある。しかし、これまでに開発されたコヒーレント光源により XUV 域で達成された光強度は  $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 程度であり、実現された非線形現象は光子的な記述で理解される数光子イオン化現象であり、電場がイオン化プロセスを支配する、非摂動論的 optical field ionization (OFI) 等の観測には至っていない。

## 2. 研究の目的

研究代表者らは、高強度場物理学の最前線である XUV 域において、トンネルイオン化や高次高調波発生等、光波場が原子・分子に直接作用して生じる、非摂動論的な物理現象の研究を可能とする、 $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> を超える高強度 XUV 場を発生させ、未踏の新分野「XUV 非線形光学」を拓きたいと考えている。研究代表者はこれまで、多層膜ミラー光学系の実用化のため、実用的な光学設計解の探索と結像型の XUV 顕微鏡の開発研究を 10 年にわたり推進し、最近、放射光を用いた結像実験で波長 13.5nm において、世界最高となる、回折限界分解能 30nm を実証した。本研究では、独自の多層膜ミラー技術を XUV 非線形光学に展開し、高強度場発生のキーデバイスとなる集光システムを開発する。目標とする  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> の高強度場を実現するため、具体的には、以下を研究した。

(1) 研究代表者が独自に開発した解析的光学設計法により、大開口数で安定してサブ 100nm 集光が可能なミラー集光系の設計解を得る。

(2) 上で得た光学設計解に基づき、集光ミラーシステムを試作する。

## 3. 研究の方法

(1) 2つの直入射ミラーからなる集光光学系を仮定し、3次収差論を用いて集光面で生じる幾何光学的収差を解析的に導出した。これを基に、高次高調波等の XUV コヒーレント光源の回折限界集光に必要となる大開口数かつ低収差な光学設計を得た。

(2) 集光光学系では、直入射ミラー基板上に、実用的な XUV 反射率を得るために多層膜ミラーをコーティングする必要がある。(2)では、

HH等の XUV コヒーレント光源を回折限界集光するために必要な多層膜ミラーの反射位相制御法を開発した。多層膜ミラーでは、各界面で生じる微弱な反射を設計波長において同位相で重ね合わせ、強め合い干渉を起こすことで高い反射率を得る。一方で、その動作原理から明らかのように、入射光が設計波長と異なる場合には、各界面からの光の干渉条件が変化し、その重ね合わせにより生じる反射光の反射位相に波長分散が生じる。このことは、多層膜ミラーで構成した集光光学系では、反射光学系にもかかわらず、色収差が生じることを意味する。これまで、XUV 領域の多層膜ミラーで生じる色収差が回折限界集光に与える影響は殆ど考慮されてこなかった。本研究では、基板面内に周期長分布をもつ多層膜ミラーを仮定し、発生する色収差を定量的に評価する数値計算ソフトウェアの新たに開発した。次に、XUV 域で成り立つ適切な近似条件を適用し、多層膜ミラーで生じる色収差を記述する解析的モデルを導出した。最後に提案した解析的モデルを用いて、多層膜ミラーで生じる色収差の補正条件 (色消し条件) を明らかにした。

(3) 上述の(1)および(2)で得た、回折限界集光を可能とする色消し多層膜ミラーの光学設計解を基に、集光ミラーシステムを試作した。

## 4. 研究成果

以下では、研究成果の内、特に学術的な意義が大きいと思われる、XUV 用多層膜ミラーの反射位相制御法および集光ミラーの試作結果について述べる。

## (1) 多層膜ミラーの反射位相制御法の開発

XUV 領域でコヒーレント光源を回折限界集光し、サブ 100nm のスポットサイズを得るには、集光光学系で生じる波面収差を動作波長の約 1/14 波長以下に極小化する必要がある (Maréchal 条件)、許容される波面収差は僅かに数 nm rms. となる。多層膜ミラー内部では、界面の微弱反射光が多重干渉するため、反射光の反射位相に波長分散があり、多層膜ミラー結像系では、多重干渉に起因する物理光学的な色収差が発生する。本研究では、集光光学系として 2面球面ミラーを構成した Schwarzschild 対物系を想定し、初めに多層膜ミラーで生じる色収差の数値計算法を開発した。図 1 に典型的な Schwarzschild 対物系 (結像倍率  $m=-50$ , 設計波長  $\lambda=13.5$ nm) 用凸面ミラーで生じる物理光学的な波面収差の数値計算例を示す。波面収差は、多層膜の複素振幅反射率  $R$  から求めることができ、ミラーへの光線の入射角  $\phi$ 、波長  $\lambda$ 、多層膜の周期長  $d$  の関数となる。入射角  $\phi$  と周期長  $d$  は、それぞれ、光学設計および成膜条件に依存してミラー動径座標  $\rho$  の関数となる。スパッタリング成膜で典型的な、周期長が動径の 2 次関数で減少する場合 (図 1: 最外周で-2%) には、設計波長 (13.5nm) におい

て Maréchal 条件を超える大きな収差が発生し、さらに波面収差に大きな波長分散(色収差)があることが分かる。

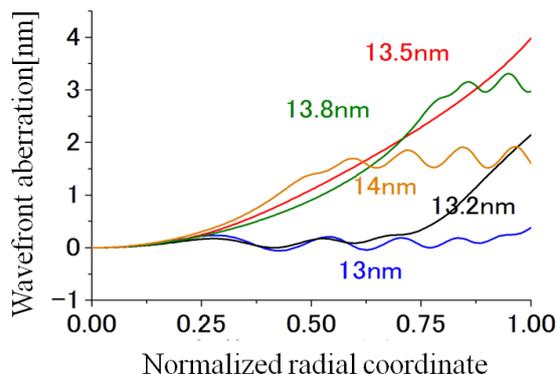


図 1. 典型的な Schwarzschild 対物系で生じる物理光学的な波面収差. 図内の数字は動作波長を示す.

次に、直入射光学系に対する適切な近似を導入し、多層膜ミラーの周期長の基板面内分布を設計パラメータとして、色収差の補正条件(色消し条件)を解析的に導出した。色消し条件を満足するように多層膜ミラーの周期長分布を制御した場合に生じる物理光学的な波面収差の計算例を図 2 に示す

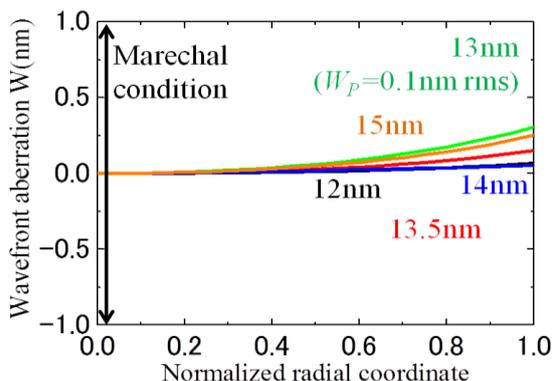


図 2. 色消し条件を適用した Schwarzschild 対物系で生じる物理光学的な波面収差. 図内の数字は動作波長を示す.

ミラー動径  $\rho$  の関数として波長分散がある波面収差が僅かに発生する様子が分かる一方で、色消し条件下で生じる波面収差は最大でも 0.1nm rms.程度であった。これは、回折限界集光に求められる Maréchal 条件より一桁小さい値であり、XUV 集光光学系のスポットサイズを劣化させない程度にまで色収差を十分低減できることが明らかになった。

## (2) 色消し集光ミラーの試作

XUV 多層膜ミラーで構成した集光用 Schwarzschild 対物系では、物理光学的な干渉効果に起因する色収差が発生する。一

方で、上述のように、多層膜ミラーの周期長をミラー基板の動径方向で変調・制御することで色収差を低減できる。本研究では、提案する色消し条件を多層膜ミラー (Schwarzschild 対物系用凸面鏡: 直径 12mm, 曲率半径 24.8mm) の周期長分布制御により実現し、アクロマティック XUV 多層膜ミラーを作製した。

先行例を参考に開発したマグネトロンスパッタ装置用の周期長分布制御機構を図 3 に示す。開発した装置は、ミラー基板の公転速度を真空用サーボモータと PC により自在に制御できる。また、ミラー基板近傍に成膜領域を制限する遮蔽板を設置し、これらを組み合わせることで、ミラー基板動径方向の周期長分布を制御した。

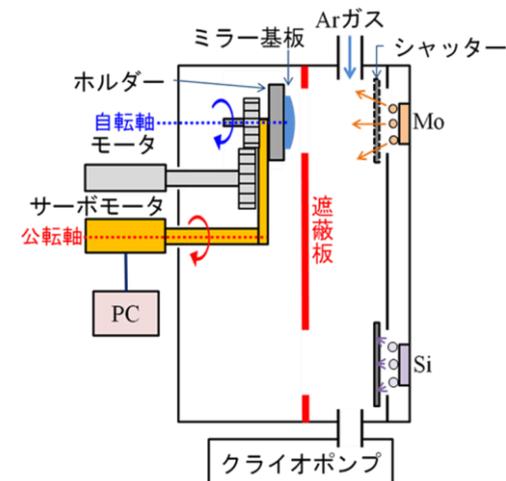


図 3. 周期長分布制御機構の概念図.

周期長分布制御装置では、ミラー基板の公転速度をサーボモータにより制御し、複数回成膜を繰り返すことで、色消し条件を満たす周期長分布(目標値)に近づけた。この様子を図 4 に示す。

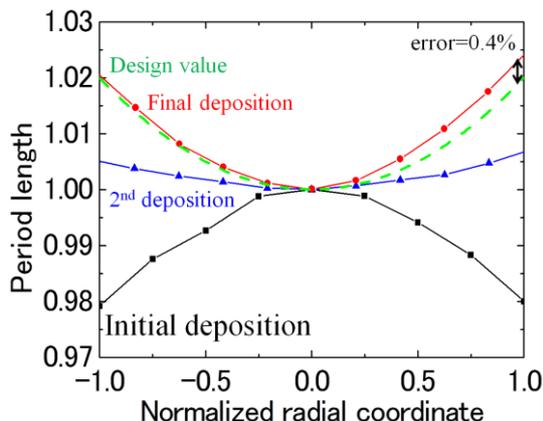


図 4. 公転速度変調による多層膜ミラー周期長分布の精密制御. 参照のため、色消し条件を満たす周期長分布を緑破線で示した。

基板を等速回転した初期成膜試料(黒シンボル)では外周で 2%周期長が減少した。一

方で、公転速度を変調しミラー基板の公転運動を最適化した条件(赤シンボル)では色消し条件に対して、誤差 0.4%で周期長分布を制御することができた。

最後に、作製した多層膜ミラーについて多層膜ミラーの干渉効果により生じる物理光学的波面収差の波長依存性を求めた結果を図 5 に示す。

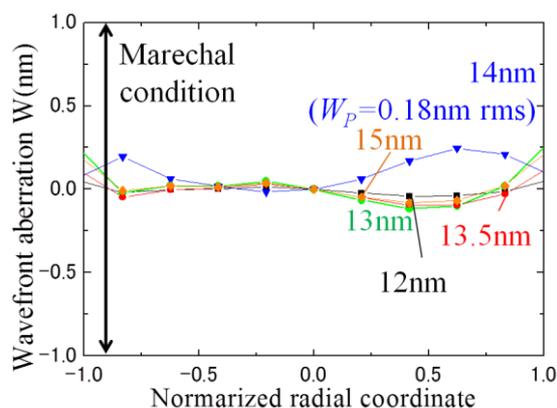


図 5. 作製した集光用多層膜ミラーで生じる物理光学的な波面収差. 図内の数字は動作波長を示す.

ミラー基板の動径座標の関数として波面が変化し、波面収差が発生することが分かる。また、波面収差は動作波長により僅かに変化していて色収差が発生することが見て取れる。しかし、発生する物理光学的波面収差は、最も大きい場合(波長=14nm)でも僅か 0.18nm rms. であり、Marechal 条件の 1/5 以下に著しく低減できた。これは、試作した集光用多層膜ミラーでは、色収差の集光への影響をほぼ完全に無視できることを示唆している。本研究により、十分に色消しした回折限界集光用の XUV 多層膜集光ミラーを作製することができた。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

①M. Toyoda, Y. Tamaru, S. Mori, K. Sawada, Y. Fu, E. Takahashi, A. Suda, F. Kannari, K. Midorikawa, M. Yanagihara, Multilayer Mirrors for Focusing Objective in 40-nm Wavelength Region, Springer Proceedings in Physics **202**, 287-290 (2018). [https://doi.org/10.1007/978-3-319-73025-7\\_42](https://doi.org/10.1007/978-3-319-73025-7_42) (査読有)

②M. Toyoda, K. Kuramitsu, M. Yanagihara, Imaging Properties of an Extreme Ultraviolet Microscope Objective with Reduced Fresnel Number, Opt. Commun. **405**, 312-317 (2017). <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2017.08.031> (査読有)

③M. Toyoda, R. Sunayama, M. Yanagihara, Low-Order Aberrations Correction of Extreme Ultraviolet Imaging Objective with Deformable Multilayer Mirrors, Proc. 9th Edition of the Mechanical Engineering Design of Synchrotron Radiation Equipment and Instrumentation Conf., TUPE22, 213-215 (2016). <https://doi.org/10.18429/JACoW-MEDSI2016-TUPE22> (査読無)

[学会発表] (計 5 件)

①豊田光紀, 回折限界 EUV 顕微鏡の開発とポリマー試料のモルフォロジー解析への応用, 第 14 回 X 線結像光学シンポジウム. (2017)

②Mitsunori Toyoda, Ryo Sunayama, Mihiro Yanagihara, Point Diffraction Interferometer for Inspection of High-Magnification Objective for Extreme Ultraviolet Microscopy, The 61st International Conference on Electron, Ion, and Photon Beam Technology and Nanofabrication. (2017)

③Mitsunori Toyoda, Extreme Ultraviolet Microscope Based on Multilayer Mirror Optics with Diffraction-Limited Spatial Resolution, The 24th General Congress of the International Commission for Optics. (2017)

④金子 明誉, 豊田 光紀, 高田 昌樹, マグネトロンスパッタに適用できる多層膜ミラーの周期長分布制御機構の開発, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会. (2016)

⑤金子 明誉, 豊田 光紀, 高田 昌樹, マグネトロンスパッタに適用できる多層膜ミラーの周期長分布制御機構の開発 (2), 第 71 回応用物理学会東北支部学術講演会. (2016)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

豊田 光紀 (Toyoda Mitsunori)  
東北大学・多元物質科学研究所・助教  
研究者番号: 40375168

### (2) 研究分担者

高橋 栄治 (Takahashi Eiji)  
国立研究開発法人理化学研究所・  
光量子工学研究領域・専任研究員  
研究者番号: 80360577