

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H00736

研究課題名(和文)高精度ウォルターミラー作製による超短パルスX線イメージング法の開発

研究課題名(英文) Development of Ultra-Short Pulse X-ray Imaging Method through High-Precision Wolter Mirror Fabrication

研究代表者

三村 秀和 (Mimura, Hidekazu)

東京大学・先端科学技術研究センター・教授

研究者番号：30362651

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,100,000円

研究成果の概要(和文)：様々な物質の分析に不可欠なX線分析技術の向上には、優れたX線光源に加えてX線光学素子が不可欠である。本研究では、X線の集光・結像可能なウォルターミラーを高精度に作製し、X線自由電子レーザー光源と組み合わせ、超短パルスX線イメージングシステムを開発した。ジェット加工による回転体X線ミラーの形状修正システムを開発し、SACLAの軟X線ビームラインBL1に2枚のウォルターミラーから構成された顕微システムを導入した。その結果、波長3.4 nmのXFELを用いて250 nm空間分解能での超短パルスイメージングに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超高強度、超短波するX線光源であるX線自由電子レーザーは、物質の微視的構造、組成、変化をとらえることができる。X線の物質への照射によって得られるX線吸収やX線散乱などの情報に空間分布情報を加えるためには、X線用のレンズが必要である。本研究で開発したウォルターミラーは、長年理想的なX線用の結像素子と考えられてきたが、その作製の困難性から実現されていなかった。本研究では、ウォルターミラーを含む回転体ミラーの高精度化に成功し、SACLAにおいてその実用性を実証したことから、ナノテラスなど一般的な放射光施設においても今後の普及が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Improvement in X-ray analysis techniques, which are essential for analyzing various substances, requires not only excellent X-ray sources but also indispensable X-ray optical elements. In this study, we have successfully fabricated a highly accurate focusing and imaging Wolter mirror for X-rays, and combined it with an X-ray free-electron laser (XFEL) light source to develop an ultra-short pulse X-ray imaging system. We constructed a shape correction system for an axial symmetric X-ray mirror using jet processing and introduced a microscopic system consisting of two Wolter mirrors into the soft X-ray beamline BL1 at SACLA (Spring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser). As a result, we achieved ultra-short pulse imaging with a spatial resolution of 250 nm using a 3.4 nm wavelength XFEL.

研究分野：超精密加工、X線光学

キーワード：X線ミラー ウォルターミラー X線イメージング

## 1. 研究開始当初の背景

X線自由電子レーザー(XFEL:X-ray free electron laser)は、フェムト秒オーダーの超短パルスで高い強度のX線を発生させる。その特異的な性質は従来不可能であった微小な結晶のX線回折を可能とし、物質内の電子挙動をとらえる。我が国においては、2011年に兵庫県西播磨にあるX線自由電子レーザー施設SACLA(SPring-8 Angstrom Compact Free Electron Laser)が稼働した。当初から現在に至るまで、世界の施設と比較して超安定なXFELを実現しており、医学、生物学、物性物理学から工業分野まで広範な科学技術分野において不可欠な光となっている。SACLAでは、硬X線領域と軟X線領域のXFELが利用可能である。

XFELを用いた分析を行うためには、光源だけでなくXFELを取り扱う光学素子が不可欠である。その中でも、反射光学素子であるミラー光学素子は、高い反射率により高効率でX線を集光、結像することが可能である。しかしながら、XFELの波長が短いため、高い形状精度と良好な表面粗さが必要となる。

2000年頃から長年開発されてきた「硬」X線用ミラー(波長0.1nm程度)に対して、「軟」X線用ミラー(波長が1nm~10nm)は、形状が湾曲しているため作製が困難であり、2018年頃までXFEL施設で利用可能な軟X線用ミラーは存在していなかった。こうした現状から、研究代表者らは、2011年から軟X線のナノ集光を目指し、回転体型のミラーの開発を進めた。この回転体ミラーは、φ5mm~10mmの竹輪型の形状をしており、内面を軟X線が反射する。反転形状を持つマンドレル作製技術および高精度な室温電鍍技術の確立により、高精度な回転体型ミラーを実現し、SACLAの軟X線ビームラインBL1においてXFELの500nm以下の集光を実現した。

集光で用いられたミラーは一回反射型の回転楕円ミラーであり、一般のレンズのようにX線を結像し、X線照射時に起こる現象を観察する顕微鏡システムへ発展させるためには、アッペの正弦定理を満たす2回反射型のウォルターミラーが不可欠である。

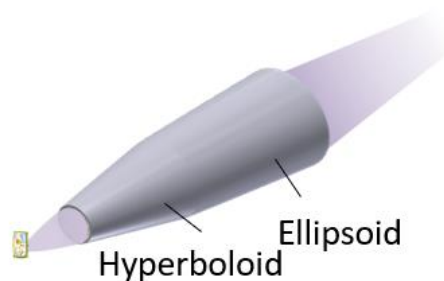


図1 ウォルターミラー

## 2. 研究の目的

XFELを結像することができるウォルターミラーを用いれば、XFEL照射において発生する現象を像としてとらえることができる。例えば、XFELによる結像イメージングは生きた細胞の軟X線観察を可能とする。しかしながら、軟X線を集光する回転楕円ミラーに対して、回転楕円面と回転双極面から構成されるウォルターミラーはより高い精度が要求されるため、それまで確立したマンドレル作製技術と室温電鍍法の向上では、ミラーの高精度化に限界がある。また、ウォルターミラーをXFELビームライン光学系に導入された例はなく、ウォルターミラーを用いた結像光学システムを開発する必要がある。

そこで本研究の目的は、回転体型ミラーの内面をナノ精度で修正を可能とする加工技術の開発を行い、それにより軟X線領域を対象としたウォルターミラーの高精度化を実施し、理想的な軟X線FELの超短パルスイメージングシステムを開発することである。

## 3. 研究の方法

回転体型ミラーの内面修正においては、イオンビームスパッタリングを用いた方法と、特殊な粒子を用いたジェット加工による方法の二種類の方法の検討と装置開発を行った。2種類の方法の中で、ジェット加工法の基礎特性を調べた結果、シリカで表面を覆われたコアシェルウレタン粒子を用いることでNi表面を高精度に加工できることを確認した。装置の簡便性から、ジェット加を選択し、回転体型ミラーの内面修正システムを開発した。

軟X線FELの超短パルスイメージングシステムは、SACLAの軟X線ビームラインBL1で構築を行い、軟X線FELの結像試験およびX線非線形光学現象の一つである可飽和吸収現象の直接イメージングを試みた。

## 4. 研究成果

### 4.1 回転体型ミラー内面修正システムの開発

回転体型ミラーの内面を修正する一つ目の方法として、イオンビームスパッタ法の検討を行った。φ5mm以下の回転体型ミラーの内部に小さなスパッタターゲットを挿入する。収束されたイオンビームを回転体型ミラー内部に照射し、ターゲットをスパッタすることで、ミラー内面の成膜を行う。前もって測定された形状修正量に基づき、ターゲットがθZ方向に速度を変えながら走査させ、成膜分布を制御する。本研究において、回転体内面の修正が可能であることを確認

したが、長時間の成膜レートの安定性と成膜金属内の内部応力による変形があるため、ミラー全体の修正は困難であると判断した。

そこで、二つ目の方法として図2に示すジェット噴流加工による内面修正法の開発を行った。従来のシリカ粒子などを用いたジェット噴流加工では、高速噴流による酸化を伴うため金属表面の表面粗さを良好に維持しながら加工を行うことは困難であった。そこで、 $\phi 30 \mu\text{m}$ のシリカとウレタンのコアシェル粒子を利用することで、ジェット噴流の流速を大幅に抑えて酸化を抑制することで、0.2nm (RMS)レベルの表面粗さを実現した。

コアシェル粒子を用いた回転体型ミラー内面の形状修正装置を開発し、回転体ミラーの真円度プロファイルの大幅な向上を実現した。また、回転体型ミラーの長手方向に関しては、サインカーブの形状加工を内面の実施し、図3のようにX線タイコグラフィにより測定したミラー内面の形状プロファイルと予測した形状プロファイルが一致していることを確認した。

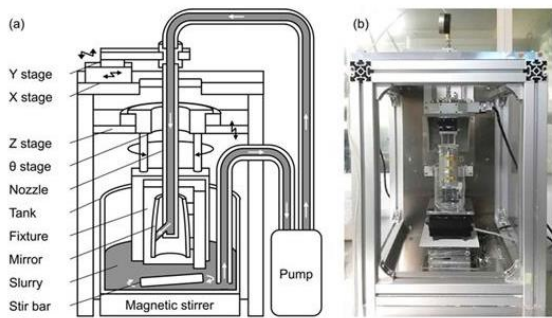


図2 ジェット加工による  
回転体型ミラー形状修正加工装置

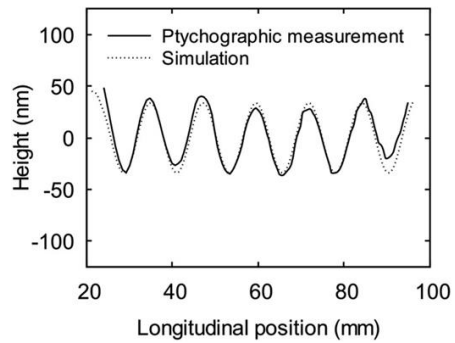


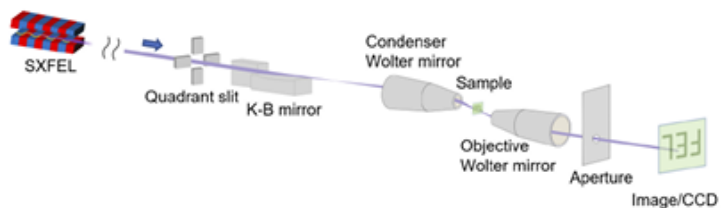
図3 回転体ミラー内に作成した形状プロファイルのタイコグラフィによる評価

#### 4.2 軟X線FEL超短パルスイメージングシステムの開発

SACLAの軟X線ビームラインBL1において、2枚のウォルターミラーを用いたイメージングシステムを構築した。転写による作製プロセスの特徴を活かし、同一のマンドレルから2枚のウォルターミラーを作製した。2枚のウォルターミラーの高精度アライメントを有する真空チャンバーを設計、開発、設置を行った。KBミラー光学系により集光されたXFELビームを照明用ウォルターミラーの一部で受け止め、集光ビームによりサンプルに照射する。サンプルを透過したXFELビームは結像用ウォルターミラーにより受け止め、後段に配置したCCDカメラ上に結像する。



(a) 顕微鏡内部



(b) SACLAに構築した軟X線顕微鏡光学系

図4 2枚のウォルターミラーによる軟X線FEL超短パルスイメージングシステム

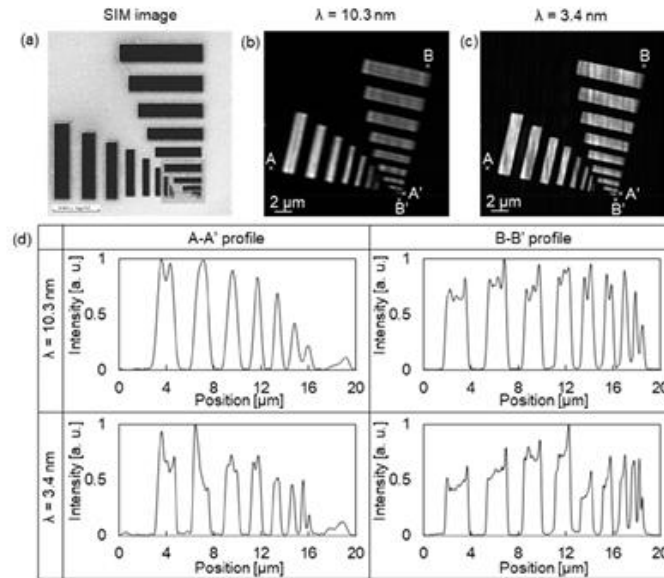


図5 テストチャートによる空間分解能評価

図5にテストチャートを用いた空間分解能の評価を行った結果を示す。波長10.3nm、波長3.4nmの二つの波長で評価を行っている。測定されたイメージから、波長3.4nmにおいて、縦方向、横方向の空間分解能として、それぞれ250nm、500nmであることを確認した。応用として、顕微鏡システムを発展させて、X線非線形光学現象の一つである過飽和吸収現象の観察に成功した。

軟X線の結像型顕微鏡としては、回折型のゾーンプレートを用いた方法が主流である。本研究で開発した2枚のウォルターミラーを用いたイメージングシステムは、X線の照射耐性も高いことから軟X線のFELを結像する手法として最適である。また、反射を利用しているため、高効率、色収差のない特徴を持つことから、次世代放射光施設ナノテラスなどの軟X線ビームラインへの導入も期待できる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Y. Matsuzawa, K. Hiraguri, H. Hashizume, H. Mimura,	4. 巻 93
2. 論文標題 Organic abrasive machining system for optical fabrication with 0.1-mm spatial resolution	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 13101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0068556	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 G. Yamaguchi, H. Motoyama, S. Owada, Y. Kubota, S. Egawa, T. Kume, Y. Takeo, M. Yabashi, H. Mimura	4. 巻 92
2. 論文標題 Copper electroforming replication process for soft x-ray mirrors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 123106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0065684	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Takeo, H. Motoyama, T. Shimamura, T. Kimura, T. Kume, Y. Matsuzawa, T. Saito, Y. Imamura, H. Miyashita, K. Hiraguri, H. Hashizume, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi, and H. Mimura	4. 巻 117
2. 論文標題 A highly efficient nanofocusing system for soft x rays	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 151104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0027118	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gota Yamaguchi, Takehiro Kume, Yoko Takeo, Yusuke Matsuzawa, Kentaro Hiraguri, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita, Keisuke Tamura, Yusuke Takehara, Ayumu Takigawa, Tetsuo Kanoh, Kenji Tachibana, Ikuyuki Mitsuishi, Hirokazu Hashizume, Hidekazu Mimura	4. 巻 11491
2. 論文標題 Development of precise electroformed Wolter mirror for X-ray astronomy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPIE Proceedings	6. 最初と最後の頁 114910K
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2569834	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yoko Takeo, Hiroto Motoyama, Takenori Shimamura, Takashi Kimura, Takehiro Kume, Yusuke Matsuzawa, Takahiro Saito, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita, Kentarou Hiraguri, Hirokazu Hashizume, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, and Hidekazu Mimura	4. 巻 11492
2. 論文標題 Design of two-stage soft-X-ray nano-focusing system with a ring-focusing mirror and quasi-Wolter mirror	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPIE Proceedings	6. 最初と最後の頁 114920N
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2570007	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hidekazu Mimura, Gota Yamaguchi, Takehiro Kume, Yoko Takeo, Akinari Ito, Yusuke Matsuzawa, Takahiro Saito, Kentarou Hiraguri, Yusuke Takehara, Ayumu Takigawa, Keisuke Tamura, Tetsuo Kanoh, Kenji Tachibana, Hirokazu Hashizume, Ikuyuki Mitsuishi	4. 巻 11444
2. 論文標題 Advanced fabrication technologies for ultraprecise replicated mirrors for x-ray telescopes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPIE Proceedings	6. 最初と最後の頁 114441G
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2560892	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takehiro Kume, Hirokazu Hashizume, Kentarou Hiraguri, Yusuke Matsuzawa, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita, Takahiro Saito, Gota Yamaguchi, Yoko Takeo, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimura	4. 巻 11492
2. 論文標題 Development of shape measurement system for high precision Wolter mandrel	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPIE Proceedings	6. 最初と最後の頁 114920M
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1117/12.2568929	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Egawa, H. Motoyama, A. Iwasaki, G. Yamaguchi, T. Kume, K. Yamanouchi, H. Mimura	4. 巻 45(2)
2. 論文標題 Single-shot achromatic imaging for a broadband soft X-ray pulse	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 515-518
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.381538	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Egawa, S. Owada, H. Motoyama, G. Yamaguchi, Y. Matsuzawa, T. Kume, Y. Kubota, K. Tono, M. Yabashi, H. Ohashi, H. Mimura	4. 巻 27(23)
2. 論文標題 Full-field microscope with twin Wolter mirrors for soft X-ray free-electron lasers	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 33889-33897
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.27.033889	査読の有無 無
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14件(うち招待講演 2件/うち国際学会 8件)

1. 発表者名 S. Yokomae, Y. Takeo, T. Shimamura, Y. Matsuzawa, T. Kume, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi and H. Mimura,
2. 発表標題 Development of figure correction system for axisymmetric x-ray mirrors
3. 学会等名 SPIE Optical Engineering + Applications (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 G. Yamaguchi, T. Kume, Y. Takeo, Y. Matsuzawa, K. Hiraguri, Y. Imamura, H. Miyashita, K. Tamura, Y. Takehara, A. Takigawa, T. Kanoh, K. Tachibana, I. Mitsuishi, H. Hashizume, H. Mimura
2. 発表標題 Development of precise electroformed Wolter mirror for X-ray astronomy
3. 学会等名 SPIE Optical Engineering + Applications (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三村秀和
2. 発表標題 X線宇宙望遠鏡用高精度大型ウォルターミラーの開発
3. 学会等名 2021年度日本表面真空学会学術講演会シンポジウム講演(招待講演)
4. 発表年 2021年

1 . 発表者名	Gota Yamaguchi, Takehiro Kume, Yoko Takeo, Yusuke Matsuzawa, Kentaro Hiraguri, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita, Keisuke Tamura, Yusuke Takehara, Ayumu Takigawa, Tetsuo Kanoh, Kenji Tachibana, Ikuyuki Mitsuishi, Hirokazu Hashizume, Hidekazu Mimura
2 . 発表標題	Development of precise electroformed Wolter mirror for X-ray astronomy
3 . 学会等名	Advances in Metrology for X-Ray and EUV Optics IX, Optical Engineering + Applications, SPIE Optics + Photonics 2020 Digital Forum, Online Only ( 国際学会 )
4 . 発表年	2020年

1 . 発表者名	Yoko Takeo, Hiroto Motoyama, Takenori Shimamura, Takashi Kimura, Takehiro Kume, Yusuke Matsuzawa, Takahiro Saito, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita, Kentarou Hiraguri, Hirokazu Hashizume, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimura
2 . 発表標題	Design of two-stage soft-X-ray nano-focusing system with a ring-focusing mirror and quasi-Wolter mirror
3 . 学会等名	Advances in Metrology for X-Ray and EUV Optics IX, Optical Engineering + Applications, SPIE Optics + Photonics 2020 Digital Forum, Online Only ( 国際学会 )
4 . 発表年	2020年

1 . 発表者名	Yoko Takeo, Hiroto Motoyama, Takenori Shimamura, Takashi Kimura , Takehiro Kume, Yusuke Matsuzawa, Takahiro Saito, Yoichi Imamura , Hiroaki Miyashita, Kentaro Hiraguri, Hirokazu Hashizume, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, and Hidekazu Mimura
2 . 発表標題	Two-stage reflective focusing system for soft X-rays at BL25SU of SPring-8
3 . 学会等名	XOPT2-02, XOPT2020 (International Conference on X-ray Optics and Application), OPIC2020 (OPTICS & PHOTONICS International Congress 2020), Online Only ( 国際学会 )
4 . 発表年	2020年

1 . 発表者名	Hidekazu Mimura, Gota Yamaguchi, Takehiro Kume, Yoko Takeo, Akinari Ito, Yusuke Matsuzawa, Takahiro Saito, Kentarou Hiraguri, Yusuke Takehara, Ayumu Takigawa, Keisuke Tamura, Tetsuo Kanoh, Kenji Tachibana, Hirokazu Hashizume, Ikuyuki Mitsuishi
2 . 発表標題	Advanced fabrication technologies for ultraprecise replicated mirrors for x-ray telescopes
3 . 学会等名	SPIE Astronomical Telescopes + Instrumentation, Online Only ( 国際学会 )
4 . 発表年	2020年



1. 発表者名 Takehiro Kume, Hirokazu Hashizume, Kentarou Hiraguri, Yusuke Matsuzawa, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita, Takahiro Saito, Gota Yamaguchi, Yoko Takeo, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimura
2. 発表標題 Development of shape measurement system for high precision Wolter mandrel
3. 学会等名 S Advances in Metrology for X-Ray and EUV Optics IX, Optical Engineering + Applications, SPIE Optics + Photonics 2020 Digital Forum, Online Only (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 三村秀和
2. 発表標題 軟X線用集光ミラーの開発と大学研究の事業化の一例
3. 学会等名 強光子場科学研究懇談会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口 豪太, 本山 央人, 大和田 成起, 久保田 雄也, 江川 悟, 竹尾 陽子, 矢橋 牧名, 三村 秀和
2. 発表標題 銅電鍍製回転楕円ミラーによる軟X線FELのサブミクロン集光
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, オンライン開催
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 郭建麗, 松澤雄介, 三村秀和
2. 発表標題 アクリル定盤と水によるガラス表面の平坦化 - 平坦性と除去レート向上の試み
3. 学会等名 2021年度精密工学会春季大会, 2021年度精密工学会春季大会学術講演会, オンライン開催
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤 旺成, 山口 豪太, 竹尾 陽子, 三村 秀和
2. 発表標題 高分解能なX線望遠鏡実現に向けたウォルターミラーの電鍍プロセスの高精度化 電流密度分布の有限要素解析を通じた最適なめっき条件の探求
3. 学会等名 2021年度精密工学会春季大会, 2021年度精密工学会春季大会学術講演会, オンライン開催
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 清水 冴月, 三村秀和
2. 発表標題 回転体形状を有する光学素子のX線CT による高精度形状評価法
3. 学会等名 第88回精密工学会現物融合型エンジニアリング専門委員会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 . S. Egawa, H. Motoyama, G. Yamaguchi, S. Owada, Y. Kubota, Y. Matsuzawa, T. Kume, M. Yabashi, H. Mimura
2. 発表標題 Fabrication and testing of Wolter type-I mirrors for femtosecond soft x-ray imaging
3. 学会等名 SPIE Optics + Photonics (国際学会)
4. 発表年 2019年~2020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
研究分担者	中川 桂一  (Nakagawa Keiichi)  (00737926)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・講師    (12601)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究 分 担 者	本山 央人  (Motoyama Hiroto)  (00822636)	東京大学・先端科学技術研究センター・特任講師    (12601)	

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