

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 30 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2011～2015

課題番号：23226004

研究課題名(和文) 補償光学系を駆使した多段光学系によるX線自由電子レーザーのナノメートル集光

研究課題名(英文) Adaptively controlled multistage nanofocusing system for x-ray free electron laser

研究代表者

山内 和人 (Yamauchi, Kazuto)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10174575

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 166,100,000円

研究成果の概要(和文)：X線自由電子レーザー(XFEL)のナノ集光を目的に、2段集光光学系(開口数変換・集光系)を提案し、この実現のための要素技術として、高精度ミラー基板の作製法、XFELに対する照射耐性を有するPt/C多層膜の作製法、集光波面のその場面計測のためのグレーチング干渉計を開発した。これらの成果をもとに、日本のXFELであるSACLAに光学系を構築し、X線領域での補償光学にもとづいて波面の計測とその補正を行うことにより、途轍もなく高い精度が求められるXFELのsub-10nm集光が実現可能であることを示した。この成果は、SACLAに極限の強光子場物理学を拓く唯一の基盤を構築することに繋がる。

研究成果の概要(英文)：To realize XFEL (X-ray free electron laser) nanobeam, we have developed a two-stage focusing optical system in which the first and second mirrors have roles of pre-expanding and final focusing XFEL beam, respectively. By comprehensive establishments of high precision mirror fabrication method, high quality multilayer formation method, and at-wavelength and in-situ wavefront analysis method in conjunction with a noble compensation optics in X-ray regime, XFEL condensation into a size less than 10nm has been demonstrated. This result leads to the exploration of new physics for extremely high density photon field.

研究分野：工学

キーワード：精密加工 精密計測 X線光学

1. 研究開始当初の背景

X線自由電子レーザー(X-ray Free Electron Laser: XFEL) SACLA (SPring-8 Angstrom Compact free electron LAsEr) は、波長 1 Å、ビーム径 200 μm、完全な空間コヒーレンスなどの特徴をもち、ピーク強度が SPring-8 光の 10 から 100 億倍の極短パルスレーザーである。従来の X 線の特性を超越した「夢の光」といわれ、これによって、結晶化を必要としない単分子構造解析や、高強度光子場を利用した X 線非線形光学など、新たな学問領域が開拓されるものと期待されている。しかし、これを真に実現するためには、XFEL 集光技術の確立が急務である。

2. 研究の目的

本研究では XFEL のシングルナノメートル(目標 5nm)集光技術の確立を目指す。XFEL のナノ集光には斜入射光学系を用い、光学系の開口数(Numerical Aperture: NA)が 10^{-2} 以上である必要がある。このとき、例えば光軸方向に 200mm サイズの斜入射光学系では、開口が最低でも 2mm 以上必要であり、ビーム径 200 μm の光をそのまま用いても、所定の集光を実現できない。これは、レーザー光源では、光源サイズと発散角に回折限界の関係があり、波長の短い X 線では発散角が極めて小さくなるためである。この特徴を考慮し、全反射ミラーによるビーム径拡大光学系と、大きな NA の多層膜ミラーによる集光系から成る 2 段光学系「NA 変換・集光光学系」を XFEL のナノ集光を可能にする唯一の光学系として提案する(図 1)。そして、At-wavelength 波面評価法によって集光波面を On-site 計測し、このとき求まる波面誤差を補償することによって目標を達成する。すべての要素に途轍もなく高い精度が求められる XFEL のナノ集光を実現する唯一の方法と考えられる。

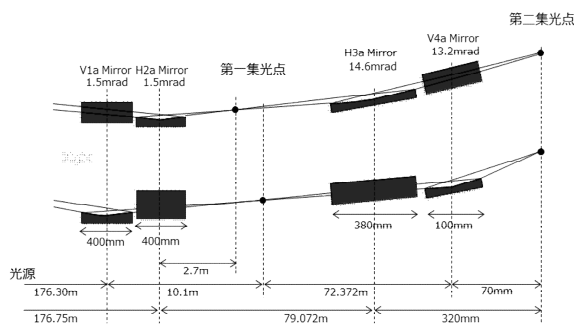


図1 SACLA のシングルナノメートル集光光学系。ビーム拡大と最終集光光学系の 2 段光学系で構成

3. 研究の方法

上記の目標を達成するため、本研究のアプローチは、(1) 高精度ミラー基板の開発、(2) X 線反射多層膜の設計・開発、(3) 光学系の設計・開発、(4) At-wavelength 波面計測法の開発、(5) 補償光学に基づく波面補正とナノビーム形成の 5 項目に加え、(6) 実現された高強度光子場による新規学問領域の開拓から構成されている。上記研究項目を達成する過程で、NA 変換・集光光学系の実証と課題抽出のため、同光学系によ

る 50nm 集光を 3 年目のマイルストーンとした。研究の性格から、成果はその都度 SACLA の利用研究に展開する必要があると考えており、(6) において、非線形光学分野の連携研究者らとともに、様々なフィジビリティ研究を実施した。

4. 研究成果

研究方法の(1)から(5)の項目に沿って、(6)の観点を含めて、その成果を以下に示す。

(1) 高精度集光ミラー基板作製法の確立

低空間周波数領域の形状誤差はビームプロファイルに影響し、Rayleigh 基準によれば、ミラーの形状誤差に起因する波面誤差を $1/4$ 以下に抑える必要がある[16]。形状誤差に換算すると 1nmPV 以下であり、高精度計測が難しい低空間周波数領域では、off-line の作製においてこれを実現することは不可能といえる。本研究では可能な限り高精度に作製したミラーを SACLA に持ち込み、波面誤差をその場で At-wavelength 評価することによって、残存する nm レベルの形状誤差を明らかにし、形状修正を行う ex-situ な補償光学系の構築を目指した。このとき、At-wavelength 評価に繋げるためには、ミラー作製段階で波面誤差を $1/2$ 程度、形状誤差に換算して 5nmPV レベルを実現する必要がある。このために、本研究では、off-line 形状計測に用いる RADSI (Relative Angle Determinable Stitching Interferometry) [Mimura and Yamauchi et al., RSI (2007)]のスティッチング誤差低減のため、ヘテロダイン干渉計による計測ヘッドの姿勢モニター法を新たに考案し、これによって必要精度のミラー作製を可能にした(図 2)[論文作成準備中]。

一方、高空間周波数領域の sub-nm レベルの形状誤差は、完全な空間コヒーレンスを有する XFEL を集光する際に、スペックル発生の原因と

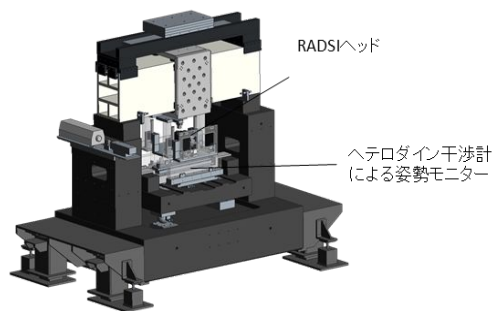


図 2 多層膜基板形状の off-line 測定装置。 1m^{-1} レベル最大曲率を有する Sub-10nm 集光ミラーを 5~10nmPV で off-line 評価可能。

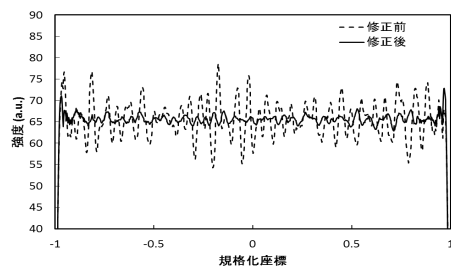


図 3 最終処理前後のスペックルの発生状況 (横軸は発散後のビーム幅で規格化)

なる。この抑制のため、EEM (Elastic Emission Machining) [Yamauchi et al., RSI (2003)]の加工領域微小化に取り組み、ディタミニスティックな形状創成における空間波長域を 50 μm にまで短縮し、スペckルを抑制することにも成功した(図 3)。

(2) X線反射多層膜の作製と評価

Pt/C 系多層膜を検討し、反射率の向上に有効な膜界面粗さの低減には、Pt 層への微量な C 原子の添加が有効であることを見出し、多層膜周期 3nm (必要最小周期) であっても RMS 0.2nm 以下を実現できることを示した[13]。

また、先行して進めた SACL A の 1 μm 集光システム[14]を利用して Pt/C 多層膜の XFEL 照射損傷の閾値を厳密に評価し、反射率の低下が始まるフルエンスは、本光学系のミラー上のフルエンスに対して、数 10 倍の余裕があることを明らかにした(図 4)。さらに、多層膜内の X 線の定在波強度を波動光学的に解析して Pt 層の X 線吸収量を導出し、光電子の膜内での拡散長との関係を詳細に検討した結果、同時に行った XFEL 直入射や全反射条件での実験を含めて、照射損傷の閾値は、X 線による励起領域とその緩和領域の体積比のみに依存することが統一的に示され、非経験的な閾値予測を可能にする極めて有用な知見を獲得した[1,3,4,10]。

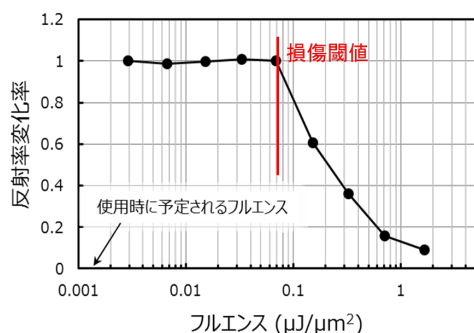


図 4 XFEL 照射フルエンスと損傷による反射率低下の関係(先行して開発した SACL A の 1 μm ビームを使用)

(3) 光学系の提案と 50nm 集光による実証

研究の目的に示したように、XFEL のナノ集光には、ビーム拡大系を含む 2 段の光学系が必要である。このような光学系 (NA 拡大・集光光学系) は、従来の放射光光学系において例が無く、実現可能性の実証と課題の抽出のため、類似の光学系が必要な XFEL の 50nm 集光を先行して進めた(この場合、集光ミラーは多層膜ミラーではなく全反射ミラーであることから先行が可能)。その結果、ミラーマニピュレーターの設計指針、光軸検出、アライメント法など、多くの新知見を獲得するとともに、30nm \times 55nm 集光を実現した [4,6,14] (図 5)。これは、米国の XFEL である LCLS (Linac Coherent Light Source) に先駆けてピークパワー 10^{20} W/cm² オーダーを達成したものであり、非線形光学研究が実施可能な実験環境を世界で唯一 SACL A に実現できたことを意味している。フィジビリティ研究では、連携研究者との共同研究により、Ge の K 殻 2 光子

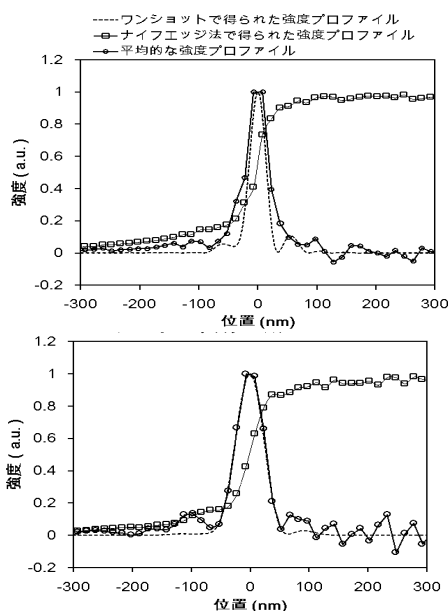


図 5 Sub-50nm 集光結果
(上: 水平方向、下: 垂直方向)

吸収[7]や、Fe の K 端における可飽和吸収[8]、Cu の K 殻励起 X 線レーザーの発振[5]などを観測することに世界で初めて成功している。

(4) At-wavelength 波面計測法の開発

極短パルスレーザーである XFEL は、集光ビームの状態をショット・バイ・ショット評価する必要がある。この目的のため、グレーティング干渉計による At-wavelength 波面計測を提案した。本干渉計では、タルボ干渉条件を満たす位置でグレーティング自己像の強度を高い空間分解能で評価する必要がある。このため、通常は自己像の位置で同周期の吸収格子をスキャンし、背面のモアレ縞の移動を観測する手法がとられる。これに対して、本光学系では大きな NA による像拡大によって、自己像をショットごとに CCD カメラで観測し、波面誤差を解析できる可能性がある。この実証のため、SPring-8 の BL29-XUL に 30nm 集光光学系を構築し、波面誤差を積極的に導入して、検出精度を検討した。その結果、我々が特別推進研究(平成 6 年~10 年)で開発し、実績のある位相回復法による波面測定との差が $1/10$ 以下であり、Rayleigh 基準である $1/4$ を十分に上回る精度でショット・バイ・ショット計測が可能であることを明らかにした[15]。

本手法は 50nm 集光光学系のフィジビリティ研究においても、計測精度が確認され、コマ収差の検出と補正に、極めて有効に機能することが確かめられた。図 3 の破線で示したプロファイルは、本計測によって得られた位相分布から計算によって求めたものであり、プロファイル測定時の振動の影響が含まれていない[6,9]。

(5) 補償光学による波面補正とナノビーム形成

ここでは、成果(1)および(2)をもとに作製したナノ集光ミラーを SACL A に持ち込み、成果(4)によって、集光波面を At-wavelength 評価し、その結果に基づいてミラー基板形状

の修正を行う ex-situ の補償光学を展開した。形状可変ミラーによる in-situ 補償も原理的に可能であるが[2]、本研究では SACLA での応用展開が最終目的であり、光学系性能を完全に保証できるロバストな固定光学系の実現を目指した。

本集光光学系は、SACLA の実験ハッチにインストールされ(図6) 上記の ex-situ 補償を実施した。図7は、構築したグレーチング干渉計である。可能な限り高精度に作製された多層膜ミラーの反射波面を計測し、ミラー基板の形状誤差に変換して、これを補償した。水平方向の集光について、補償前後の波面誤差を測定し、ミラー形状誤差に変換したものが図8である。また、補償後の波面から計算された集光プロファイルが図9である(垂直方向でも同様の結果を得ている)。間接的ながら集光径 6nm が示され、提案した光学系と波面補償が所期の精度で機能し、XFEL の 10nm 以下への極限的な集光が可能であることが示された(論文作成準備中)。

今後は、集光状態の直接確認やミラーアライメントの最適化、簡略化などを経て、未踏の強光子場物理学の開拓へと応用展開する。



図6 SACLA に設置した Sub-10nm 集光システムの外観およびミラー調節機構と試料チャンパー内部

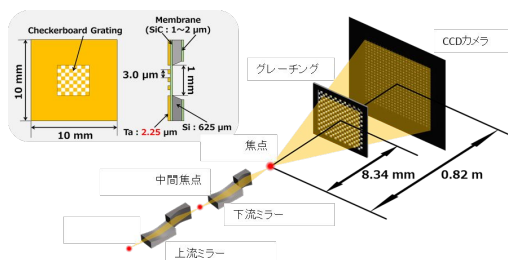


図7 波面計測光学系 (グレーチング干渉計の配置)

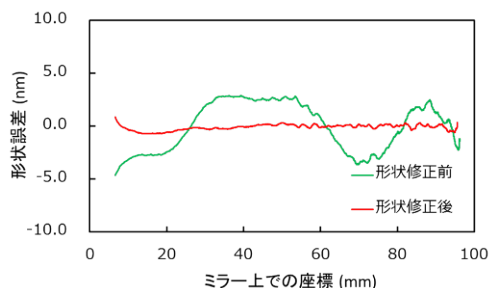


図8 At-wavelength 波面計測により求めた基板形状誤差 (緑: 修正前、赤: 修正後)

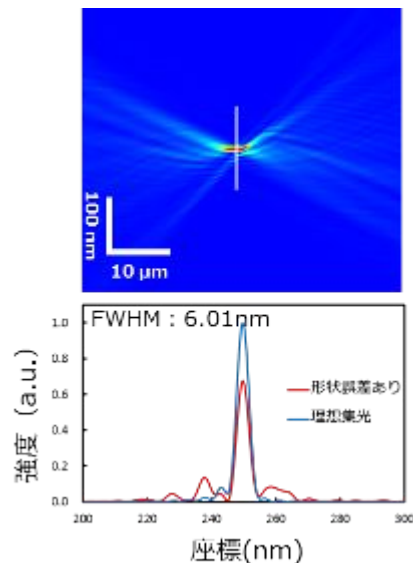


図9 前図の補正後形状をもとに算出されたビームプロファイル。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 39 件)

- [1] T. Koyama, H. Yumoto, T. Miura, K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Katayama, J. Kim, S. Matsuyama, M. Yabashi, K. Yamauchi, and H. Ohashi, Damage threshold of coating materials on x-ray mirror for x-ray free electron laser, Rev. Sci. Instrum. 87, 051801 (2016) 【査読有】.
- [2] S. Matsuyama, H. Nakamori, T. Goto, T. Kimura, K.P. Khakurel, Y. Kohmura, Y. Sano, M. Yabashi, T. Ishikawa, Y. Nishino, and K. Yamauchi, Nearly diffraction-limited X-ray focusing with variable numerical-aperture focusing optical system based on four deformable mirrors, Sci. Rep. 6, 24801 (2016) 【査読有】.
- [3] J. Kim (Ph.D.学生), A. Nagahira, T. Koyama, S. Matsuyama, Y. Sano, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Damage threshold of platinum/carbon multilayers under hard X-ray free-electron laser irradiation, Opt. Express 23, 29032 (2015) 【査読有】.
- [4] K. Yamauchi, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Koyama, and T. Ishikawa, Nanofocusing of X-ray free-electron lasers by grazing-incidence reflective optics, J. Synchrotron Radiat. 22, 592-598 (2015) 【査読有】.
- [5] H. Yoneda, Y. Inubushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, H. Kitamura, T. Katayama, T. Ishikawa and M. Yabashi, Atomic inner-shell laser at 1.5-ångström wavelength pumped by an

- X-ray free-electron laser, *Nature* 524, 446-449 (2015) 【査読有】.
- [6] H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, T. Koyama, K. Tono, Y. Inubushi, T. Togashi, T. Sato, J. Kim (Ph.D.学生), R. Fukui, Y. Sano, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Generation of 1020 W/cm² Hard X-ray Laser Pulses with Two-Stage Reflective Focusing System, *Nature Commun.* 5, 3539 (2014) 【査読有】.
- [7] K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Katayama, K. Sawada, H. Yumoto, H. Ohashi, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi, and T. Ishikawa, X-ray two-photon absorption competing against single and sequential multiphoton processes, *Nature Photon.* 8, 313-316 (2014) 【査読有】.
- [8] H. Yoneda, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Katayama, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, and H. Kitamura, Saturable absorption of intense hard X-rays in iron, *Nature Commun.*, 5, 5080 (2014) 【査読有】.
- [9] R. Fukui (Ph.D.学生), J. Kim (Ph.D.学生), S. Matsuyama, H. Yumoto, Y. Inubushi, K. Tono, T. Koyama, T. Kimura, H. Mimura, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, A Precision Grazing-incidence Angle Error Measurement of a Hard X-ray Condenser Mirror Using Single-grating Interferometry, *Synchrotron Rad. News* 26, 13 (2013) 【査読有】.
- [10] T. Koyama, H. Yumoto, Y. Senba, K. Tono, T. Sato, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Katayama, J. Kim (Ph.D.学生), S. Matsuyama, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi, H. Ohashi, and T. Ishikawa, Investigation of ablation thresholds of optical materials using 1 μ m-focusing beam at hard X-ray free electron laser, *Opt. Express* 21, 15382 (2013) 【査読有】.
- [11] T. Kimura, S. Matsuyama, K. Yamauchi, and Y. Nishino, Coherent x-ray zoom condenser lens for diffractive and scanning microscopy, *Opt. Express* 21, 9267 (2013) 【査読有】.
- [12] H. Yumoto, S. Matsuyama, H. Mimura, K. Yamauchi, and H. Ohashi, Absolute calibration of optical flats using the three-flat test by considering the relative humidity change, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* 710, 2 (2013) 【査読有】.
- [13] J. Kim (Ph.D.学生), H. Yokoyama, S. Matsuyama, Y. Sano, and K. Yamauchi, Improved reflectivity of platinum/carbon multilayers for X-ray mirrors by carbon doping into platinum layer, *Curr. Appl. Phys.* 12, S20 (2012) 【査読有】.
- [14] H. Yumoto, H. Mimura, T. Koyama, S. Matsuyama, K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Sato, T. Tanaka, T. Kimura, H. Yokoyama, J. Kim, Y. Sano, Y. Hachisu, M. Yabashi, H. Ohashi, H. Ohmori, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Focusing of X-ray free-electron laser pulses with reflective optics, *Nature Photon.* 7, 43-47 (2012) 【査読有】.
- [15] S. Matsuyama, H. Yokoyama, R. Fukui, Y. Kohmura, K. Tamasaku, M. Yabashi, W. Yashiro, A. Momose, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Wavefront measurement for a hard-X-ray nanobeam using single-grating interferometry, *Opt. Exp.*, 20, 24977 (2012) 【査読有】.
- [16] K. Yamauchi, H. Mimura, T. Kimura, H. Yumoto, S. Handa, S. Matsuyama, K. Arima, Y. Sano, K. Yamamura, K. Inagaki, H. Nakamori, J. Kim, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, and T. Ishikawa, Single-nanometer focusing of hard x-rays by Kirkpatrick-Baez mirrors, *J. Phys. CONDENSED MATTER*, 23, 394206 (2011) 【査読有】.
- [学会発表](計 124 件)
- [1] K. Yamauchi, Mirror-based optical system for the 3rd and 4th generation synchrotron radiation sources, 23rd International Congress on X-ray Optics and Microanalysis (ICXOM23), Oral Abstracts pp. 19, 14-18 Sep. (2015), NY, USA. 【招待講演】
- [2] K. Yamauchi, X-ray focusing optics at SACLA, HeKKSaGOn University Consortium The 4th Japanese-German University Presidents' Conference, 16-18 Apr. (2015), Tohoku University, Sendai, Miyagi. 【招待講演】
- [3] K. Yamauchi, Recent progress of the K-B nano-focusing system, ALBA-SSRF Bilateral Workshop, 16-18 Dec. (2013), Shanghai, China. 【招待講演】
- [4] K. Yamauchi, Nanofocusing of X-ray free electron laser for coherent X-ray science, X-ray lasers in biology, 14-15 Oct. (2013), The Royal Society, London, UK. 【招待講演】
- [5] S. Matsuyama, Development of full-field hard x-ray microscopy with four aspherical mirrors, SPIE Optics+ Photonics, Technical Program, p190, 8851-6, 26-29 Aug. (2013), San Diego, USA. 【招待講演】

- [6] K. Yamauchi, Progress on mirror-based optical systems for XFEL science, The 25th Synchrotron Radiation User's Workshop, 5-6 Aug. (2013), Pohan, Korea. 【招待講演】
- [7] K. Yamauchi, Nanofocusing and single shot wavefront diagnosis of SACLA, SPIE Optics+ Optoelectronics, Technical Abstracts, p. 105, 8778-14, 17-18 Apr.(2013), Prague, Czech. 【招待講演】
- [8] K. Yamauchi, Mirror optics of beam delivery & spectrometers, European XFEL Users' Meeting, 22-25 Jan. (2013), Humburg, Germany. 【招待講演】
- [9] K. Yamauchi, Nanofocusing optics for hard x-ray free electron laser, SPIE Optics+ Photonics, Technical Program, 12-16 Aug. (2012), San Diego, USA. 【招待講演】
- [10] K. Yamauchi, Hard X-ray nanofocusing and wavefront diagnosis, 4th international workshop on Metrology for X-ray Optics, Mirror Design, and Fabrication Barcelona IXXM, 4-6 July (2012), Barcelona, Spain. 【招待講演】
- [11] K. Yamauchi, Progress of Mirror-based Focusing Optics for X-ray Free Electron Laser, 5th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation (5th AWCXR), 27-29 June (2012), The University of Tokyo, Kashiwa, Chiba. 【招待講演】
- [12] K. Yamauchi, Nanofocusing and wavefront analysis of SACLA, Coherence 2012, 18-21 June (2012), Hilton Fukuoka Sea Hawk, Fukuoka, Fukuoka. 【招待講演】
- [13] K. Yamauchi, Current status of mirror-based optics for coherent x-ray science, Third Ringberg Workshop on Science with FELs, 4-7 March (2012), Bavaria, Germany. 【招待講演】
- [14] K. Yamauchi, 10KeV mirror project, XTS - Breakout Meeting, Sep. (2012), National Astronomical Observatory of Japan, Mitaka, Tokyo. 【招待講演】
- [15] K. Yamauchi, X-ray nanofocusing by mirror optical systems, JSPS-DFG 二国間セミナー, 7-11 Oct. (2012), Kyoto University, Kyoto, Kyoto. 【招待講演】

〔図書〕(計 1 件)

山内和人 他, 大阪大学出版会, 超精密加工と表面科学, 2014, 379

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称: 形状可変 X 線ミラーシステム

発明者: 松山智至、中森紘基、山内和人、岡田浩巳

権利者: 国立大学法人大阪大学、株式会社ジェイテック

種類: 特許

出願日: 2012 年 10 月 23 日

国内外の別: 国内

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ

<http://www-up.prec.eng.osaka-u.ac.jp/>

プレスリリース

http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2012/20121217_1

http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2014/20140430_1

http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2014/20140217_1

http://www.riken.jp/pr/press/2014/20141001_1/

http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2015/20150827_1

http://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2016/20160421_1

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山内 和人 (YAMAUCHI KAZUTO)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 10174575

(2) 研究分担者

松山 智至 (MATSUYAMA SATOSHI)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 10423196

(3) 連携研究者

佐野 泰久 (SANO YASUHISA)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 40252598

玉作 賢治 (TAMASAKU KENJI)

理化学研究所・播磨研究所・専任研究員

研究者番号: 30300883

三村 秀和 (MIMURA HIDEKAZU)

東京大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 30362651

大橋 治彦 (OHASHI HARUHIKO)

高輝度光科学研究センター・光源・光学系

部門・光学系グループ・副主席研究員

研究者番号: 30443550

湯本 博勝 (YUMOTO HIROKATSU)

高輝度光科学研究センター・光源・光学系

部門・光学系グループ・研究員

研究者番号: 20423197

小山 貴久 (KOYAMA TAKAHISA)

高輝度光科学研究センター・光源・光学系

部門・光学系グループ・研究員

研究者番号: 20468276