

回転楕円ミラーによる軟 X 線 FEL のサブミクロン集光と波長スケール集光への展望

本山 央人

東京大学大学院理学系研究科化学専攻 〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1 理学部化学東館0227室

三村 秀和

東京大学大学院工学系研究科精密工学専攻 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1 工学部14号館831室

要旨

軟 X 線非線形光学の開拓を目指して、高強度軟 X 線電場を形成するための軟 X 線 FEL サブミクロン集光システムを SACLA BL1 において開発した。本グループで開発した回転楕円ミラーを、BL1 に設置されている KB ミラーと組み合わせることで、高いビームスルーットとサブミクロン集光性能を両立し、 10^{16} W/cm² を超える高強度軟 X 線電場を形成できる。本稿では、集光システムのコンセプト、開発、SACLA における集光性能評価と非線形現象の観測について紹介する。最後に将来展望として、軟 X 線 FEL の波長スケール集光に向けた取り組みについて述べる。

1. はじめに

X 線自由電子レーザー (XFEL)¹⁻³⁾ で発振する高輝度かつ高コヒーレンスなフェムト秒 X 線パルスは、細胞内電子密度の計測⁴⁾ や反応過程中の化学構造の決定⁵⁾ など、様々な分野における研究開発を大きく推し進めた。特に、高いピーク強度が必要とされる X 線非線形光学の研究⁶⁻¹¹⁾ には、XFEL の存在が必要不可欠であった。XFEL により、sub-mJ から mJ レベルといった可視光フェムト秒レーザーと比較しても遜色のないパルスエネルギーが X 線領域で利用可能になったためである。しかしながら、X 線の光子エネルギーは可視光よりも格段に大きいため、同程度のパルスエネルギーで比較すると、X 線パルスの光子数は可視光よりも遥かに少ない。したがって、例えば原子密度の高い固体サンプルからの非線形光学現象を観測するためには、XFEL を微小領域に集光し、単位面積・単位時間当たりの光子数を増加させる必要があり、X 線集光素子が重要な役割を果たす。

硬 X 線領域では、放射光 X 線光源と同様、KB ミラーと呼ばれる 1 次元楕円ミラーを 2 枚組み合わせた集光システムがデファクトスタンダードとして用いられている¹²⁾。SACLA BL2 (硬 X 線ビームライン) では、全反射楕円ミラーを利用した 50 nm 集光システム¹³⁾ や多層膜楕円ミラーを用いた sub-10 nm 集光システム¹⁴⁾ の開発も精力的に進められている。

一方、軟 X 線の波長は硬 X 線に比べて長いいため、ナノ集光のためには KB ミラーよりも大きな開口数を有する集光素子が必要となる。KB ミラーは鉛直・水平集光用ミラーを光軸方向に並べる光学配置の都合上、上流側ミラー

の開口数が必然的に小さくなってしまふ。ドイツの X 線自由電子レーザー施設 FLASH では、高 NA 集光素子として多層膜放物ミラーが開発されており、波長 13.5 nm の FEL が 1 μ m 程度の領域に集光されているが、多層膜反射を利用するため実用的な反射率が得られる波長は制限される¹⁵⁾。SACLA BL1 (軟 X 線ビームライン)¹⁶⁾ には共用集光素子として KB ミラーが導入されており、波長 8~30 nm の広い波長帯域における軟 X 線 FEL (SXFEL) 集光ビームが実験に供されているが、集光サイズは数 μ m にとどまる。世界的に見ても、この波長帯域において、波長可変性とサブミクロン集光を両立するシステムは開発されていなかった。

本研究グループでは、回転楕円ミラーと呼ばれる反射型の集光素子を利用した、SXFEL の sub-1- μ m 集光システムの開発を SACLA BL1 において推進してきた¹⁷⁾。本稿では、回転楕円ミラーの性能、集光システムのコンセプトと集光性能、集光ビームを利用した応用実験について紹介する。最後に将来展望として、回転体集光ミラーを用いた SXFEL の波長スケール集光への展望と現在の取り組みについて述べる。

2. 回転楕円ミラーによる軟 X 線集光技術の現状

Fig. 1 に示すように、回転楕円ミラーは楕円プロファイルを光軸に関して一回転させた 3 次元楕円曲面を有している。1 枚のミラーで点集光が可能であるため、KB ミラーとは異なり鉛直・水平の両方向において短い焦点距離で集光することができる。また、反射を利用するため、

ゾーンプレートや多層膜ミラーのような色収差の影響を気にする必要がなく、反射率の許す限り広い波長帯域の軟X線集光に利用することができる。さらに、Fig. 1のようにミラーの一部分を照明して集光する場合のアライメント調整の手順はすでに確立されており、比較的短時間で集光調整を行うことができるという利点もある。

回転楕円ミラーはMimuraらによって開発された、高精度3次元形状転写プロセス¹⁸⁻²⁰によって製作される(Fig. 2)。製作したい回転楕円ミラーと同じ楕円プロファイルを有する合成石英製のマンドレルを高精度に加工し、その表面にニッケル蒸着により導電性を付与した後、電鍍法によりマンドレルの周りに肉厚1 mm程度のニッケル層を形成する。その後、ニッケル部分を分離することで、回転楕円ミラーが完成する。

作製された回転楕円ミラーは、すでにいくつかの軟X線光源施設にインストールされている。SPring-8のBL25SUにおいて、300 eVの光が 240×218 nmに集光されている¹⁹。高次高調波光源施設では、光子エネルギー50~100 eVのブロードバンド光を、分光することなく

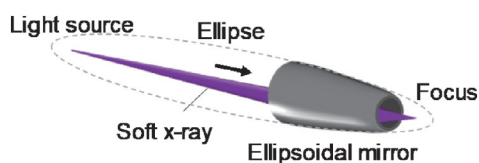


Fig. 1 (Color online) Schematic of the ellipsoidal mirror.

380×350 nmに一括で集光した²¹。それぞれ別の回転楕円ミラーを用いた実験であり、製作した回転楕円ミラーの軟X線集光性能は複数の異なる軟X線光源において実証されている。しかしながら、SXFELのような高強度パルスに対しては、ミラーのFEL照射に対する耐久性や安定性、高いスループットを確保できるかという点において、回転楕円ミラーの適用可能性は未知数であった。

3. KBミラーと回転楕円ミラーのハイブリッド型集光システム

本研究における集光システム開発の目的は、高強度軟X線電場の形成であるため、集光サイズの微小化と高いスループットの両立は必須課題であった。微小集光サイズを達成できたとしてもスループットが低ければ、最終的に達成できる集光強度は低くなってしまいうためである。スループット低下の主な原因は、ミラー入射時のビームの取りこぼしと表面材料と光の波長から決まる反射率によるものである。SACLA BL1の発振波長8~30 nm (40~150 eV)に対して回転楕円ミラーの材質であるニッケルは十分な反射率を有している。しかし、製作プロセスの制限から、SACLA BL1における入射ビームをすべて受光できるほど大きな回転楕円ミラーを製作することは困難であった。

この問題を回避するために、Fig. 3のように、SACLA BL1の共用集光装置として整備されたKBミラーをビー

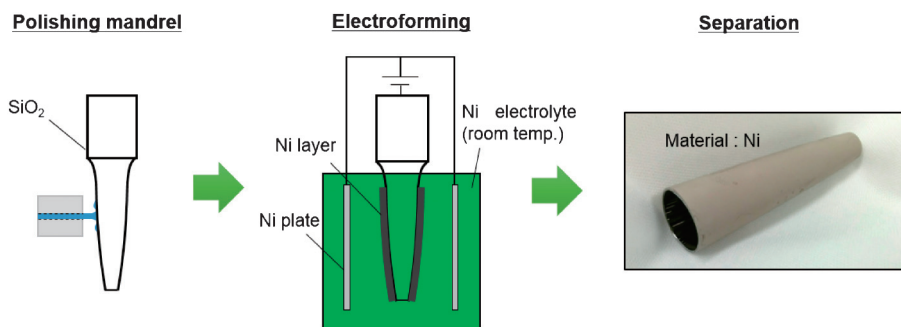


Fig. 2 (Color online) Fabrication process of ellipsoidal mirrors.

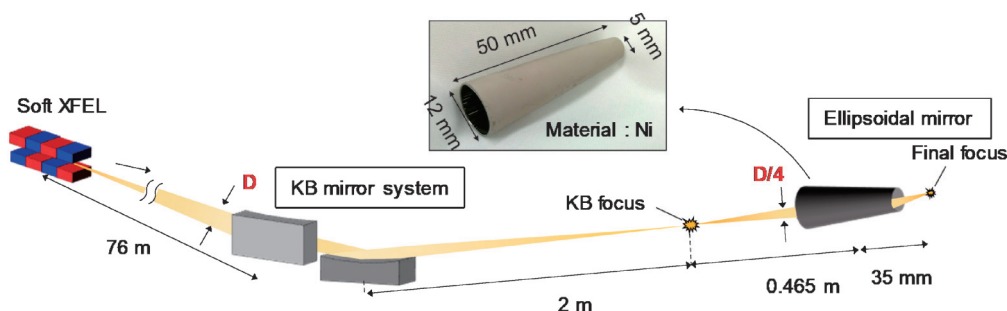


Fig. 3 (Color online) Schematic of the developed SXFEL focusing system. (adapted from Ref 17)

ムリデューサーとして利用している。KB ミラーは、入射 FEL を取りこぼすことなく反射・集光できるように設計されており、約2000 mm の焦点距離で集光し、約5 μm の集光スポットを形成する。回転楕円ミラーは、KB ミラーの集光点が仮想光源点となるように設計されており、KB ミラーの集光点より500 mm 下流に設置される。回転楕円ミラー入射時のビームサイズは KB ミラー入射時に比べて直径比 1/4 に縮小されており、回転楕円ミラーで十分に受光することができる。このように、広い受光面積を有する KB ミラーをビームリデューサーとして用いることで、回転楕円ミラーの受光面積の狭さを補いつつ、高効率な微小集光を実現することができる。いずれも反射を利用する集光素子であり、SACLA BL1 の発振波長である 8~30 nm (40~150 eV) の領域において使用することができる。このように、KB ミラーと回転楕円ミラーを利用したハイブリッド型集光システムとなっている。

4. システム開発と性能評価

反射型集光素子の場合、斜入射角度を大きくし、焦点距離を短くするほど回折限界集光サイズは小さくなる。しかし一般に、ミラー面への斜入射角度が大きくなるほど、

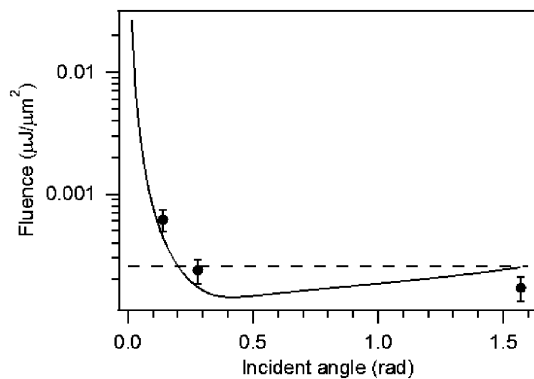


Fig. 4 Measured and calculated damage threshold of the nickel surface. (adapted from Ref 17)

XFEL によるミラーの損傷閾値は低くなる²²⁾。さらに、本集光システムでは、ビームを一度ダウンサイズしてから回転楕円ミラーに照射するため、照射フルエンスは KB ミラーにおける値よりも高くなる。そのため、集光システムの実験での利用を考慮し、ミラー材料の FEL 照射耐性をあらかじめ調査した。

照射サンプルとして、シリコンウエハ上に成膜した Ni 面を用意し、KB ミラーによる集光ビームを複数の照射強度条件で、同一箇所にも10000発照射した。白色干渉計により照射箇所を計測し、その結果からダメージの有無を判断した。サンプルへの斜入射角度は、140 mrad, 280 mrad, 直入射 (90 deg) の3条件とした。

Fig. 4 に計測結果を示す。グラフ中の実線は、シングルショット照射を仮定した場合のダメージ閾値の計算結果を示している²²⁾。また、一点破線は、入射ビームサイズ 1 mm, パルスエネルギー 200 μJ を仮定した場合のフルエンスを示しており、この値をダメージ閾値の基準とした。グラフから、入射角度 140 mrad の場合であれば、ダメージ閾値は基準フルエンス値を超えることがわかる。そのため、回転楕円ミラーへの最大斜入射角度は 140 mrad として、ミラー形状を決定した。この際、回折限界集光サイズが 1 μm を十分下回るようにミラーの焦点距離を決定した。

Fig. 5 に開発した集光システムの外観を示す。図中、左側の立方体形状の真空チャンバー内に回転楕円ミラーが設置され、アライメント調整が行われる。軟 X 線の波長は可視光に比べて短いため、アライメント調整は精密に行われなければならない。本集光システムで使用する回転楕円ミラーの場合の必要アライメント精度を波動光学計算により解析した結果を Fig. 6 に示す。横軸はミラーの角度誤差の大きさを示しており、縦軸はストレール比を示している。点線は回折限界集光の基準とされているストレール比の値 0.8 を示している。このグラフから、回折限界集光のためにはおよそ $\pm 10 \mu\text{rad}$ の精度で角度調整を行わなければならないことがわかる。この精度を満足するために、アライメント装置は SmarAct 社製のピエゾステージで構成されており、およそ 1 μrad の精度で角度調整を行うこと

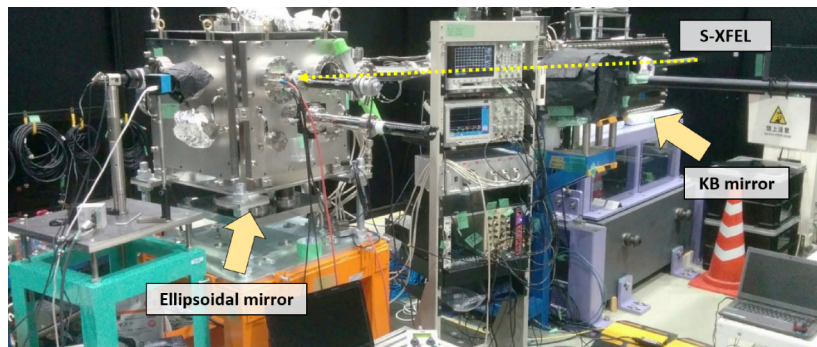


Fig. 5 (Color online) Overview of the developed sub-micron focusing system. Ellipsoidal mirror is equipped in the cubic chamber.

ができる。

集光調整は、鉛直・水平方向スキャン用に取り付けられた2枚のナイフエッジを用いて行われる。角度誤差が存在する場合、主に非点収差の影響により、鉛直・水平両方向の焦点位置は光軸方向に互いに異なる位置に存在する。回転楕円ミラーの場合、真の焦点位置は鉛直・水平それぞれの焦点位置の間に存在する。ナイフエッジを用いたフォーテストでそれぞれの方向の焦点位置がわかれば、真の焦点位置を推定することができる。すなわち、「①フォーテストで鉛直・水平両方向の焦点位置を特定する。」「②それらの中間にナイフエッジを移動して、その点に焦点が来るようにミラーの角度を調整する。」という2つのステップを繰り返すことで、最適なアライメント状態に漸近させることができる。ビームラインに設置されたHeNeガイ

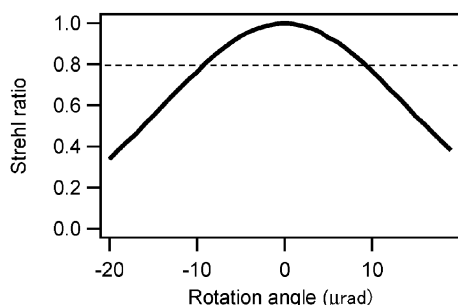


Fig. 6 Simulated strehl ratio as a function of rotation angle error of the ellipsoidal mirror.

ドレーザーを使用してミラーのオフライン調整を行っておけば、上記の角度調整手順を5回ほど繰り返すことで最適なアライメント状態に収束させることができる。

Fig. 7に本集光システムで形成した集光ビームの強度プロファイルの例を示す。強度プロファイルはナイフエッジスキャン法により計測した。光子エネルギー100 eV, 120 eVの2条件で計測し、100 eVの場合500 × 550 nm, 120 eVの場合480 × 680 nmの集光サイズであった。いずれの場合も、1 μmを十分に下回る集光サイズが実現されていることを確認した。また、回転楕円ミラー単体のスループットは約43.0%であり、レイリー長は±5 μm程度であった。パルスエネルギーを10 μJ, パルス幅を100 fs^{23,24}と仮定した場合、集光強度1 × 10¹⁶ W/cm²を超える計算となり、固体中の非線形光学現象を引き起こすのに十分な値である。

本集光システムによる集光実験はすでに複数回実施されており、集光システムのインストール、調整手順はすでに確立されている。集光チャンバーの設置に1時間、HeNeレーザーを使った調整に1時間、真空引きに3~4時間、FELの集光調整に3時間程度を要し、おおよそ1シフト(12時間)以内に集光ビームを形成することができる。

5. 固体試料の可飽和吸収観測

開発した集光システムはすでに応用実験に供されている。本グループでは、Si₃N₄ メンブレンを用いた、固体試

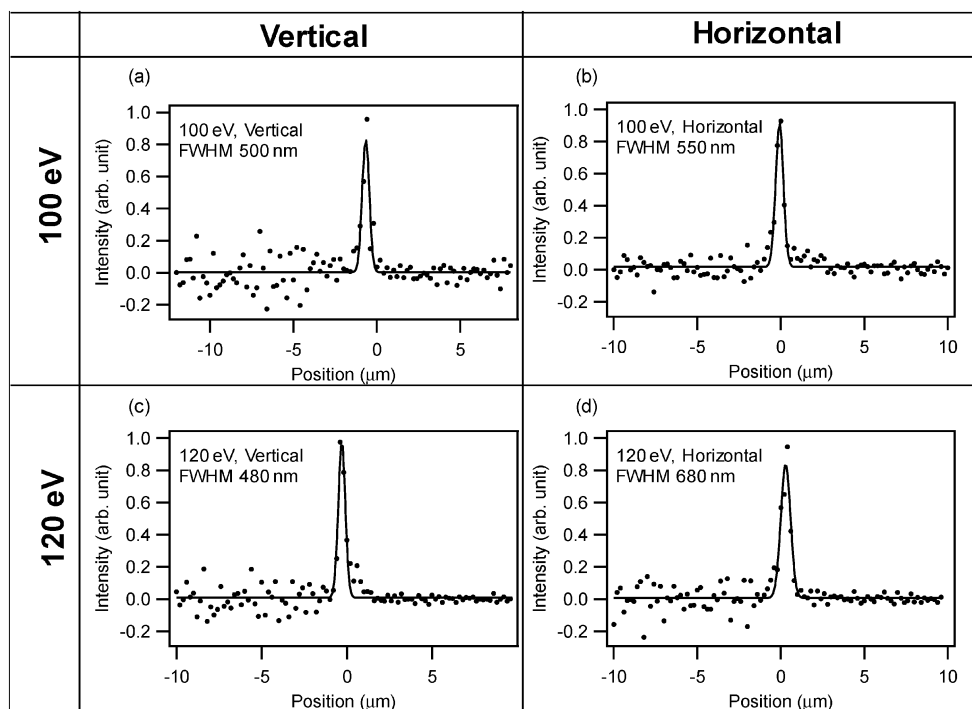


Fig. 7 Intensity profiles measured in vertical and horizontal direction at the photon energies of 100 eV and 120 eV. (adapted from Ref 17)

料中における SXFEL の可飽和吸収観測実験を実施した。

可飽和吸収は、可視光領域では古くからよく知られており、フェムト秒レーザーの発振器の構成要素として可飽和吸収ミラーが使用されるなど、その技術はすでに確立されている。しかしながら、EUV~X線の短波長領域では、可飽和吸収に必要なパルスエネルギーを有するほどのパルス光源が存在しなかったことから、XFELの稼働により初めて観測が可能となった。硬 X 線領域に先駆けて、Nagler らによる Al の可飽和吸収 (FLASH)⁶⁾や、Yoneda らによる Sn の可飽和吸収 (SCSS)⁷⁾が EUV 領域において観測された。硬 X 線領域においては、Yoneda らが、光子エネルギー 10 keV の光を用いた Fe の可飽和吸収⁹⁾の計測に成功している。

本研究で照射対象とした Si_3N_4 は、Si の L 吸収端を 99.8 eV 付近に有しており、照射する FEL の光子エネルギーは 120 eV とした。透過率は Photo diode (PD) で計測し、PD の直前には試料透過後の強度を測定可能領域まで減衰させるための Zr フィルターを挿入した。入射 FEL の強度は Ar が封入されたガスアッテネータの圧力を変化させることで調整した。集光ビームのピーク強度が高く可飽和吸収が起きると、透過率の上昇が起こることになる。

Fig. 8(a)に透過率の集光強度依存性を示す。透過率が集光強度に応じて上昇し、強度の低い領域ではおよそ 8% であった透過率が、最も強度が高い状態では 48% まで上昇していることがわかる。また、Fig. 8(b)は、サンプルをデフォーカスした位置に設置して計測した、透過率のパルスエネルギー依存性を示している。デフォーカス点ではビームサイズが大きく集光強度が低下するため、デフォーカス量が大きくなるにしたがって、透過率上昇が緩やかになっていることが読み取れる。このことから、透過率上昇は単純にパルスエネルギーに依存するのではなく、集光強度に依存しているということがわかる。これは、本集光システムにより、高強度軟 X 線電場が実現されていることの証拠となる。

本集光システムでは、波長可変で高強度軟 X 線集光

ビームを形成可能である。そのため例えば、様々な材料を対象とした可飽和吸収現象の波長依存性を調査することができる。軟 X 線領域における実用的な可飽和吸収体の発見に繋がる可能性もあり、非線形軟 X 線光学には多くの研究の余地が残されていると考えられる。

6. 波長スケール集光への方策：リング照明型二段集光システム

最後に、回転楕円ミラーを利用したさらなる集光サイズの微小化の方策を紹介する。本稿で報告した集光システムでは、Fig. 9(a)のように回転楕円ミラーは一部分しか照明されていないが、Fig. 9(b)のように回転楕円ミラーの全面を照明することで、集光ビームの NA が大きくなる。この場合、後述するように、回折限界集光サイズは 50 nm 以下となり、軟 X 線 FEL の波長スケール集光が実現可能となり、集光軟 X 線電場の強度を極限まで高めることができる。

単純に SXFEL ビームを拡大し回転楕円ミラーの全面を照明することもできるが、本研究グループでは、Fig. 9(c)に示す輪帯照明型二段集光システム²⁵⁾の開発を進めている。この集光システムは、リング集光ミラーと準回転楕円

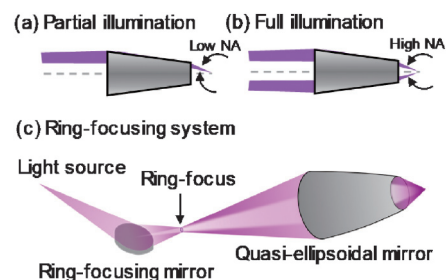


Fig. 9 (Color online) (a), (b) Comparison of the numerical aperture in different illumination conditions. (c) The schematic of the wavelength-scale focusing system consisting of “Ring-focusing mirror” and “Quasi-ellipsoidal mirror”. (adapted from Ref 25)

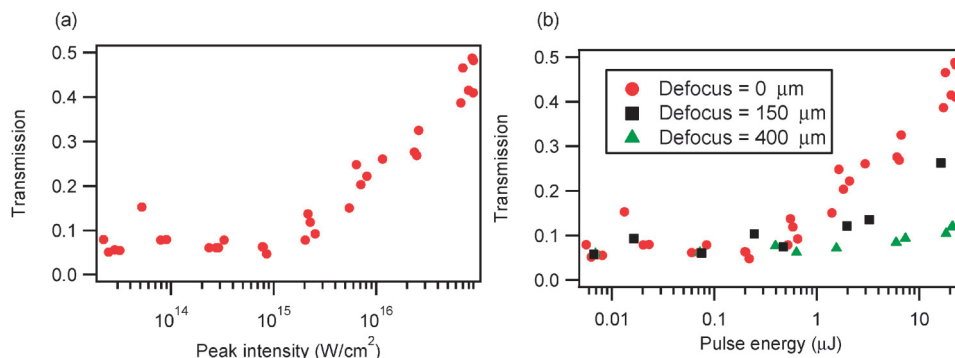


Fig. 8 (Color online) Measured transmittance as a function of (a) the peak intensity and (b) the pulse energy. (adapted from Ref 17)

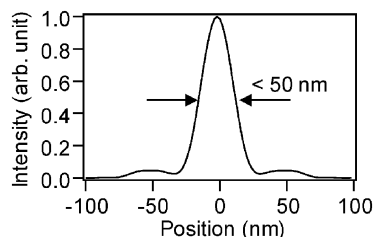


Fig. 10 Calculated intensity profile at the focus in the wavelength-scale focusing system.

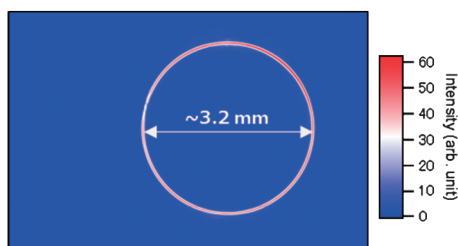


Fig. 11 (Color online) Intensity profile of the ring-focus in the wavelength-scale focusing system.

ミラーと呼ばれる2枚の非球面ミラーから構成される。SXFELビームはまずリング集光ミラーで反射しリング状に集光する。その後、SXFELビームは中空ビームを保ったまま伝播し、準回転楕円ミラーの全面を照明する。リング光源を1点に集光するために、準回転楕円ミラーの楕円プロファイルは光軸に対して傾斜している。Fig. 10に示すように、波動光学計算から予想される回折限界集光サイズは50 nm以下であり、波長スケール集光が可能となる。本研究グループではこの集光システムの開発を、SACLA BL1において進めている。

Fig. 11は実際にSACLA BL1にインストールした輪帯照明型二段集光システムのリング集光点にCe:YAGを設置し、ビープロファイルをCCDで観測した結果である。設計通り、直径約3.2 mmの集光リングが形成されていることがわかる。軟X線FELの波長スケール集光に向けて、ミラーの形状精度改善と集光システムの高度化に取り組んでいる。

7. まとめと将来展望

SACLA BL1において、KBミラーと回転楕円ミラーを組み合わせた、高スループットなsub-1- μm 集光システムを開発した。集光性能評価の結果、光子エネルギー100 eV付近のFELを500 nm程度に集光可能であることを確認した。形成した 10^{16} W/cm^2 を超える高強度軟X線電場に対する、 Si_3N_4 の可飽和吸収現象を観測した。開発した集光システムはすでに複数の応用実験に用いられており、引き続き利用実験の開拓を行っていく。

現在使用している回転楕円ミラーは、100 eV付近の光を集光するために設計されたものであるが、ニッケルの反射率を考慮すると、50~300 eVの光に対応することができる。そのため、SACLA BL1の3次高調波を利用した集光ビーム形成が可能である。さらに高エネルギー側のFELに対しては現状のミラーでは対応できないが、斜入射角度を小さくし、かつ内面をPtでコーティングすることで、理論的には1 keVの光まで対応することができる。回転楕円ミラーのような円筒形状内面へのコーティングは一般的なスパッタ成膜装置では実現できないが、イオンビームスパッタ成膜を利用した独自の内面コーティング技術の開発も進めている。ミラーを交換することで、将来のSACLA BL1のアップグレードに伴う短波長化にも対応することができる。

本稿の最後に紹介した波長スケール集光の実現には、ミラーの高精度化、アライメント手順の構造化、ビームサイズ評価手法の確立など、残された課題は数多くある。しかしながら、波長スケール集光が実現されれば 10^{20} W/cm^2 を超える高強度電場の形成も視野に入り、その中では、物質はこれまでに観測されていない振る舞いを示すはずである。軟X線非線形光学開拓のための基礎技術として、軟X線FELの波長スケール集光システムの研究開発を推進する。

謝辞

本研究を遂行するにあたり多大なサポートをいただいた、東京大学の久米健大博士、江川悟氏、山口豪太氏を始めとした三村研究室のメンバー、高輝度光科学研究センター(JASRI)の大和田成起博士、登野健介博士、犬伏雄一博士、小山貴久博士、大橋治彦博士、理化学研究所の矢橋牧名博士、SACLAエンジニアリングチームの方々に深く感謝いたします。

本研究開発は、SACLA大学院生研究支援プログラム、SACLA基盤開発プログラム(2018年度、2019年度)の支援のもとに行われました。

参考文献

- 1) W. Ackermann *et al.*: Nat. Photonics **1**, 336 (2007).
- 2) T. Ishikawa *et al.*: Nat. Photonics **6**, 540 (2012).
- 3) P. Emma *et al.*: Nat. Photonics **4**, 641 (2010).
- 4) T. Kimura *et al.*: Nat. Commun. **5**, 3052 (2014).
- 5) M. Suga *et al.*: Nature **543**, 131 (2017).
- 6) B. Nagler *et al.*: Nat. Phys. **5**, 693 (2009).
- 7) H. Yoneda *et al.*: Opt. Express **17**, 23443 (2009).
- 8) K. Tamasaku *et al.*: Nat. Photonics **8**, 313 (2014).
- 9) H. Yoneda *et al.*: Nat. Commun. **5**, 1 (2014).
- 10) N. Rohringer *et al.*: Nature **481**, 488 (2012).
- 11) H. Yoneda *et al.*: Nature **524**, 446 (2015).
- 12) H. Yumoto *et al.*: Nat. Photonics **7**, 43 (2012).
- 13) H. Mimura *et al.*: Nat. Commun. **5**, 3539 (2014).
- 14) S. Matsuyama *et al.*: Sci. Rep. **8**, 17440 (2018).
- 15) A. J. Nelson *et al.*: Opt. Express **17**, 18271 (2009).

- 16) S. Owada *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **25**, 282 (2018).
 17) H. Motoyama *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **26**, 1406 (2019).
 18) Y. Takei and H. Mimura: J. Japan Soc. Precis. Eng. **83**, 585 (2017).
 19) H. Mimura *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **89**, 093104 (2018).
 20) T. Kume *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **90**, 021718 (2019).
 21) H. Motoyama *et al.*: Appl. Phys. Lett. **114**, 241102 (2019).
 22) T. Koyama *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **87**, 1 (2016).
 23) S. Owada *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **26**, 887 (2019).
 24) Y. Kubota *et al.*: 2018 16th International Conference on Megagauss Magnetic Field Generation and Related Topics (MEGAGAUSS) (2019).
 25) H. Motoyama and H. Mimura: J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys. **48**, 9 (2015).

著者紹介

**本山 央人**

東京大学大学院理学系研究科化学専攻
助教

E-mail: motoyama@chem.s.u-tokyo.ac.jp

専門：X線光学，精密工学

【略歴】

2018年3月東京大学大学院工学系研究科博士後期課程修了。博士（工学）。2015年4月～2018年3月日本学術振興会特別研究員（DC1）。2018年4月～2020年1月東京大学大学院理学系研究科 特任助教。2020年1月より現職。

**三村 秀和**

東京大学大学院工学系研究科精密工学専攻
准教授

E-mail: mimura@edm.t.u-tokyo.ac.jp

専門：精密加工，精密計測，X線光学

【略歴】

2002年3月大阪大学工学研究科博士後期課程修了。博士（工学）。2002年4月～2003年3月大阪大学大学院工学研究科研究員。2003年4月～2010年12月大阪大学大学院工学研究科 助手/助教。2006年10月～2010年3月JST さきがけ研究員。2011年1月より現職。

Sub-1- μm focusing system based on an ellipsoidal mirror and the perspective on wavelength-scale focusing for soft x-ray free-electron lasers

Hiroto MOTOYAMA Center for Ultrafast Intense Laser Science, Graduate School of Science, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo, Tokyo 113-0033, Japan

Hidekazu MIMURA Department of Precision Engineering, Graduate School of Engineering, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo, Tokyo 113-8656, Japan

Abstract We developed the intense sub-micron focusing system for the soft x-ray free-electron laser of SACLA to explore the nonlinear soft x-ray optics. The system, composed of the K-B mirror system and the ellipsoidal mirror, has both sub-1- μm focusing ability and high photon throughput, which enable us to generate the intense light field beyond 1016 W/cm². In this paper, we introduce the concept, system development, current status of the focusing system and observation of nonlinear optical phenomena. We also describe the perspective on the wavelength-scale focusing based on another focusing scheme.