利用技術

# ミラーによる軟 X 線レーザー集光技術



1 はじめに

光技術の発展には光学素子の存在が欠かせない。 可視光領域では,様々な光学現象に基づいたアイデ アが光学系に実装され,重力波干渉計や超解像顕微 鏡等の先端光計測機器が実用化された。特に,集光 技術は,計測技術における空間分解能の向上や,光 子密度増強等の重要な役割を担い,その重要性は軟 X線領域でも変わらない。

軟 X 線は波長 1~30 nm (光子エネルギー40~ 1,000 eV) 程度の光を指す。この波長領域には,高 い透過率と高い屈折率を有する材料が存在せず,可 視光の集光に用いられるような"レンズ"を作製す ることはできない。そのため、軟 X 線領域では, 反射を利用した集光素子が広く用いられている。

回転楕円ミラーは色収差なく軟 X 線のナノ集光 が可能な円筒状の高 NA 集光素子(開口数)として 古くから知られていた(図1)<sup>1)</sup>。軟 X 線が反射する



**図1**回転楕円ミラーによる軟X線集光の模式図 軟X線はミラーの内面で反射する 内側の反射面を,高精度に加工・計測する技術がな かったことから,実用化には至っていなかったが, 近年,Mimura らにより,ガラス製の回転楕円マン ドレルの高精度製造技術,及び,ニッケルを材料と したナノ精度形状転写プロセスが確立された<sup>2)</sup>。こ れにより,形状精度 50 nm (Peak-to-valley; PV)以 上の高精度な回転楕円ミラーが作製可能となり,軟 X線ナノ集光技術開発がスタートした。

作製された回転楕円ミラーは,高次高調波軟 X 線 ビームライン,大型放射光施設 SPring-8, X 線自由 電子レーザー施設 SACLA 等にインストールされ, ナノ集光ビームが実験に供されている<sup>359</sup>。本稿で は,筆者らが SACLA において開発した,軟 X 線自 由電子レーザー集光システム,及び集光ビームを利 用した応用実験例について紹介する。

## 2 SACLA における軟 X 線レーザー集光技術開発

SACLA の軟 X 線ビームライン BL1 では、光子エ ネルギー50~150 eV, パルス幅 100 fs, パルスエネ ルギー100  $\mu$ J の軟 X 線 レーザーパルス (SXFEL) が発振する。1 次元楕円ミラーを互いに直交するよ うに配置した KB (Kirkpatrick-Baez) ミラーが共用集 光装置として整備されており、3~10  $\mu$ m の集光ビー ムが実験に供されている<sup>6</sup>。

筆者らは, KB ミラーと回転楕円ミラーを組み合わせた集光システムを SACLA BL1 において開発し



図 2 SACLA BL1 において開発した軟 X線 FEL 集光システム KB ミラーで縮小したビームを,回転楕円ミラーで直径 500 nm の領域に集光する

た。回転楕円ミラーの焦点を,KBミラーによる SXFEL 集光点と一致させた,2段集光の構成となっ ている(図 2,3)。KBミラーの焦点距離が2mであ るのに対して,KB集光点から回転楕円ミラーまで の距離を0.5mとすることで,回転楕円ミラー入射 時のビームサイズを1/4に縮小する。これにより, 回転楕円ミラーの全長は60mmと比較的小型であ るが,入射するSXFELは取りこぼすことなく反射・ 集光される。

実験に使用した回転楕円ミラーは、長手方向の形 状精度が 20 nm (PV) で作製されており、ナノ集 光の実現に十分な精度が確保されている。また、ミ ラーの必要設置精度は 10 µrad 程度であるため、姿 勢制御にはピエゾステージを用いた。SACLA BL1 で発振可能な光子エネルギー50~150 eV の帯域に おいて、ミラーの反射率は 50%程度となっている。 開発した集光システムを用いて,光子エネルギー 100 eVのSXFEL集光実験を実施した。集光点近傍 に単結晶ダイヤモンドバイト製のナイフエッジを挿 入することでフーコーテストを行い,フーコー像を 手がかりとしてミラーの設置角度を調整した。集光 サイズはナイフエッジスキャンにより計測した。鉛 直,水平方向それぞれに,500×550 nm (Full-width at half-maximum; FWHM)の集光サイズが得られた (図4)。光子エネルギー120 eVの場合も同様の集光 サイズが得られており,波長によらないナノ集光が 可能であることが示されている。

また,作製したミラーにフルパワーの SXFEL を 照射した場合でも反射率の低下は確認されず,目視 による表面状態の劣化も見られないことから,回転 楕円ミラーの SXFEL に対する照射耐性が十分高い ことも示された。フルパワーの SXFEL を照射した



図3 開発した集光装置の外観写真 写真右側から SXFEL が入射し, KB ミラーで反射した後,回転楕円ミラーで集光される



図4 ナイフエッジスキャン法で計測した、(a)鉛直方向、(b)水平方向における集光強度プロファイル

場合,典型的な光源性能と集光サイズから計算され る集光点における瞬時ピーク強度は,最大で2× 10<sup>17</sup>W/cm<sup>2</sup>となり,固体サンプルからの非線形応答 を誘起するのに十分な強度が得られることが示され た。また,レイリー長はおよそ±5 µm 程度であった。

### 3 集光ビーム利用実験

開発した集光装置は,既にいくつかの利用実験に 供されている。筆者らは,形成した高強度集光ビー ムを用いて,固体試料の軟 X 線に対する可飽和吸 収観測実験を実施した。

可飽和吸収とは、固体試料に高い光子密度で光を 照射した際、大量の光子により試料内の多くの原子 が励起され、電子状態が緩和するよりも早く残りの 光子が通過することにより、光の吸収率が低下する 現象のことを指す。可飽和吸収は可視光領域では古 くから知られていたが、軟 X線、硬 X線領域におい ては、可飽和吸収を誘起するのに十分な光子密度を 生成するほどの高強度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。 Nagler らによる Al に対する軟 X線の可飽和吸収<sup>ッ</sup>, Yoneda らによる Sn に対する極端紫外光<sup>®</sup>, Fe に対 する硬 X線の可飽和吸収<sup>®</sup>が報告されている。

本研究では、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>を照射対象とした。Siは 99.8 eVにL吸収端を有しており、光子エネルギー 100~150 eVの光に対する吸収率が高い。本実験で は、照射する SXFELの光子エネルギーを 120 eV と した。入射する SXFELの強度はAr が封入された ガスアッテネータの圧力を調整することで制御し た。試料の下流にはフォトダイオードを設置し、 SXFEL の透過率を計測した。SXFEL 透過率の集光 強度依存性を計測することにより, 軟 X 線可飽和 吸収の観測を試みた。

図5にSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>メンブレンに対する光子エネルギー 120 eVのSXFEL 透過率の計測結果を示す。集光強 度が10<sup>15</sup>W/cm<sup>2</sup>以下の領域での透過率はおよそ8% 程度であった。集光強度が10<sup>15</sup>W/cm<sup>2</sup>を超える場合, 集光強度の大きさに応じて徐々に透過率が高くなる 傾向が見られ、8×10<sup>16</sup>W/cm<sup>2</sup>付近では、透過率は 48%程度にまで上昇した。集光強度に応じた透過率 の急激な上昇という特徴から、可飽和吸収が観測さ れたと結論づけることができる。この結果は、開発 した集光システムにより高強度軟X線電場が生成 されていることの証拠となる。

筆者らが実施した実験以外にも, Magneto-optical Kerr effect を利用した磁性分布の走査型顕微計測<sup>10)</sup> や,集光 SXFEL を利用した軟 X 線レーザー加工の 研究等に用いられている。ナノ集光された SXFEL





ビームを利用した応用研究は、今後ますます広がり を見せると考えている。

## 4 今後の展望

本稿では、筆者らが SACLA において開発した、 回転楕円ミラーを利用した SXFEL 集光システム開 発について報告した。光子エネルギー100 eV 付近 の SXFEL を $\phi$  500 nm 程度の領域まで集光可能で あることを示し、生成した高強度軟 X 線電場を利 用した、固体試料の可飽和吸収観測に成功した。

SACLA における SXFEL 集光システム開発は現在 でも続けられている。1つは、Wolter ミラーを集光 素子として利用する、汎用型ナノ集光システムの開 発である<sup>111</sup>。結像条件を満たす Wolter ミラーを利 用することにより、必要アライメント精度が 100 倍 緩和される。アライメントフリーな集光システムを 開発し、より多くの研究者の方が簡便に使用できる ナノ集光システム開発を行っている。

並行して,輪帯照明型のナノ集光システムを開発 している<sup>12,13</sup>。本稿で紹介した回転楕円ミラーは, 開口の一部分を照明した状態で使われている。これ に対して,輪帯照明型ナノ集光システムでは,非球 面ミラーを用いて入射ビームを輪帯状に整形し,回 転楕円ミラーの全面を照明することにより,集光 ビームの NA を高めることができる。理論的な最小 ビームサイズは 50 nm 以下となる。空間分解能と集 光強度の更なる向上が可能となり,SACLA の軟 X 線 レーザーパルスを利用した新たなサイエンスが拓か れる可能性がある。

SACLA では軟 X 線領域の超短パルスレーザーを 発振することができる。その光源性能を最大限に引 き出した光学実験を行うための基盤技術として,軟 X 線光学系の開発と高度化を推進していく。

#### 謝辞

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から多大な支援 を受け、また、多くの研究者の方との共同研究とし て推進されてきたものです。理化学研究所の、江川 悟博士、大和田成起博士、登野健介博士、大伏雄一 博士、小山貴久博士、矢橋牧名博士、大橋治彦博士、 夏目光学株式会社の久米健大博士、東京大学の山口 豪太氏に深く感謝申し上げます。

#### 参考文献

- J. Voss, et al., Rev. Sci. Instrum., 63, No. 1,569-573 (1992)
- H. Mimura, et al., Rev. Sci. Instrum., 89, No. 9,093104 (2018)
- H. Motoyama, et al., Appl. Phys. Lett., 114, No. 24, 241102 (2019)
- H. Motoyama, et al., J. Synchrotron Radiat., 26, 1406-1411 (2019)
- 5) Y. Takeo, et al., Appl. Phys. Lett., 116, No.12 (2020)
- S. Owada et al., J. Synchrotron Radiat., 25, No.1, 282-288 (2018)
- 7) B. Nagler, et al., Nat. Phys., 5, No.9, 693-696 (2009)
- 8) H. Yonda, et al., **7501**, 75010H (2009)
- 9) H. Yoneda, et al., Nat. Commun., 5, 1-5 (2014)
- 10) Y. Kubota, et al., Appl. Phys. Lett., 117, No. 4 (2020)
- 11) S. Egawa, et al., **1110804**, No. September 2019,3 (2019)
- H. Motoyama and H. Mimura, J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., 48, No. 244002, 9 (2015)
- 13) Y. Takeo, et al., Appl. Phys. Lett., 117, No. 15 (2020)

(\*1 東京大学大学院理学系研究科,\*2 東京大学大 学院工学系研究科)