

X線自由電子レーザーのナノ集光と X線非線形光学の探索



技術解説

山内和人*

Nanofocusing of X-ray free electron laser and
its application to explore X-ray nonlinear optics

Key Words : X線自由電子レーザー, 非線形光学, 2光子吸収,
X線ナノ集光, X線ミラー, 超精密加工, 形状計測

*X-ray free electron laser, nonlinear optics, two photon absorption,
X-ray nanofocusing, X-ray mirror, ultraprecision machining, shape metrology*

1. はじめに

「生産と技術」から技術解説の原稿依頼をいただいた。せっかくの機会なので、色々含めると15年はかかっているX線のナノ集光の話題を書かせていただこうと思う。

X線は、1895年にRöntgenがその存在を発見して以来、基礎科学、医学、工学など幅広い分野において重要な役割を果たしている。特に物質科学、生命科学の分野では、その高い物質透過性や結晶・原子との相互作用が有効に利用され、他の方法では代替できない分析法を提供している。近年では、1990年代に運用が始まったSPring-8などの第3世代放射光源の高輝度・低エミッタンス性を利用した先端的分析技術の開拓が進み、直近では、X線自由電子レーザーによって完全空間コヒーレント極短パルスX線が実現し、X線利用技術は新たな時代を迎えている。これらの高輝度X線源は、集光したとき、集光点での光子密度の増大に非常に有利である。このため、2000年以降、集光サイズ微小化の競争が激化し、ゾーンプレートやレンズ、ミラーなどの様々な光学素子によって100 nm以下の集光が実現した。これらの光学素子の中で、ミラーには、集光効率の高さ、大きなワーキングディスタンス、色収差の少

なさなどにおいて、他の光学素子を大きく凌ぐ優位性がある。ただし、作製は他と比較にならぬほど難しい。

我々のグループは、精密加工・計測学の立場から、X線ミラー集光光学系の開発に取り組み、反射X線からのスペックルノイズの除去 [1]、高精度非球面ミラーの設計と製作による世界初の sub-50 nm, sub-30 nm 集光 [2-4]、また、位相回復法にもとづく波面誤差計測法とその場補償法 [5-7] の開発による世界最小の sub-10 nm 集光 [8] などを達成した。ここでは、コヒーレントX線を回折限界の条件で集光するために必要なミラーの精度や、その精度を実現する加工・計測技術に触れながら、日本のX線自由電子レーザー (XFEL: X-ray free electron laser) であるSACLA (SPring-8 angstrom compact free electron laser) のナノ集光とX線非線形光学への応用の一端を紹介したい。

2. X線ミラーに求められる精度

コヒーレントX線を波動光学的な回折限界の条件で集光するためには、集光素子の開口に入る全てのX線が集光点において強め合いの干渉条件を満たす必要がある。このための精度は厳しく、レーラーの条件によれば、X線の波長を λ とすると集光ミラーで反射したX線の波面誤差をPV (Peak-to-valley) $\lambda/4$ 以下にする必要がある [9]。硬X線領域で用いる斜入射ミラーにおいて、この条件を満たすためには、斜入射角を θ とし、ミラーの形状誤差を d とすると、

$$d < \lambda / 8 \sin \theta$$

となる。ここで、10 keVのX線 (波長1.2 Å) を考え、反射面が白金などの重元素である場合の斜入射角と



* Kazuto YAMAUCHI

1958年12月生
学位取得 (大阪大学工学博士) (1991年)
現在、大阪大学 大学院工学研究科 精密科学・応用物理学専攻 精密科学講座
教授 工学博士 超精密加工
TEL : 06-6879-7285
FAX : 06-6879-7285
E-mail : yamauchi@prec.eng.osaka-u.ac.jp

して5mradを想定すると、許容される d 、すなわちミラー表面の許容形状誤差はPV 3nmとなる。ミラーの長さは数10mmから数100mmであり、このような大面積において、この精度を実現することは途轍もなく大変である。この形状精度は、メインの集光ピーク以外の不要なサイドローブの高さを如何に下げるかに関係しており、比較的長い周期をもつ形状誤差が対象である。具体的には、メインピーク幅の N 倍の領域に入るサイドローブを問題にするのであれば、ミラー長さの $1/N$ の周期の形状誤差までが問題になると考えればよい。

次に考えなければならないのが、スペckルノイズの除去である。スペckルノイズとは、集光点から比較的離れた場所を通るX線に対応しており、例えばラジオグラフィーのようにミラーによって集光されるX線を集光点から離れたファーストフィールドで観察する場合に、ミラーの形状誤差が原因で発生する非常に激しい強度むらのことを言う。周期の短い形状誤差が原因であり、これまでの検討から、周期0.1mmから数mm程度の形状誤差が関与していることが分かっている。スペckルノイズのコントラストを十分に下げするためには、この形状誤差がPV 1nmを下回る必要がある。さらに短い周期の形状誤差は粗さと称され、より広角領域への散乱に関係している。この抑制のためには、ミラー表面において、原子レベルの平滑性が求められる。

3. X線ミラーの製作方法

我々は、加工法としてEEM (Elastic Emission Machining) [10,11]、また、X線ミラーに特化した形状計測法としてRADSI (Relative angle determinable stitching interferometry) [12][13]を独自に開発し、これをディタミニスティックな加工システムへと展開し、X線集光ミラーの加工システムとして完成させた。

まず、加工法について紹介する。EEM法は微細粉末粒子と加工物表面が接触した際の界面原子間の化学反応を利用した加工法である。具体的には、加工物表面との間に反応性のある微細粉末粒子を超純水の流れによって加工物表面に供給し、加工物表面に吸着した微細粉末粒子を同じく超純水の流れによって取り除く際に、原子単位の除去加工が生じる。Si(001)表面をEEM加工した表面を超純水でリン

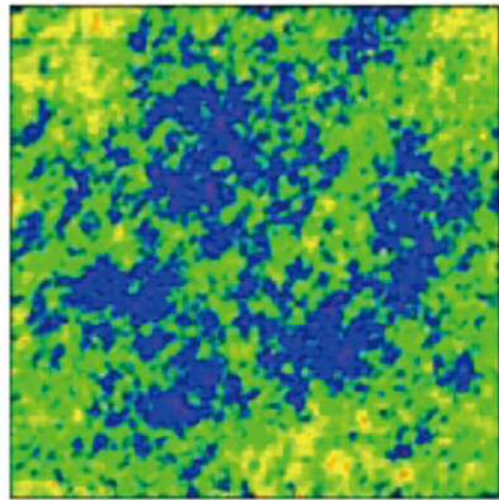


図1. EEMによって加工されたSi(001)面のSTM像。走査範囲 $100 \times 100 \text{nm}^2$ を1原子高ごとに色分けしたもの。全体の95%が3原子層(青, 緑, 黄)以内に平滑化されている。

スし、超高真空チャンバーに導入した後、非加熱のままSTM観察した結果を図1に示す。観察領域は $100 \text{nm} \times 100 \text{nm}$ であり、1原子層の高さごとに色分けして示している。この場合、観察領域の95%が、青、緑、黄色で示される±1原子層の範囲に入っており、極めて平滑な表面が得られていることが分かる [11]。EEM法では、ノズル流れなどを用い、微細粉末粒子の供給領域を限定することによって、 $50 \mu\text{m}^2$ 程度の領域のみを加工することができる。このため、加工前のミラー形状を正確に計測できれば、その凸部を選択的に加工することが可能であり、先に述べた回折限界条件の実現やスペckルノイズの抑制に必要な精度の表面をディタミニスティックに作製できる。さらに短い周期の粗さは、加工原理から、自動的に0.1nm (RMS) レベルに低減される [10]。

次に、X線ミラーの形状計測について述べる。ここではRADSIと称するレーザー干渉にもとづくステッチング干渉計を用いている。ステッチング干渉計の場合、計測精度を決めるのは、サブアパーチャー間の相対角度である。通常、この相対角度は、システムエラーやランダムエラーを含んだ計測データをもとに、ステッチングの際の糊代に相当するコモンエリアでの重なり度の不一致度を最小にするように決定される。これに対して、我々が開発したRADSIでは、サブアパーチャーの形状計測の際に、同時に相対角度を 10^{-8}rad レベルの精度で実測することを可能にしており、長さ数100mmのX線ミラ

一の形状を PV 1nm の精度で評価することができる [12]. 具体的には, 図2に示すように, 被検ミラー上のサブアパーチャー内 (縞密度の低い領域) と平面ミラーの形状を同時に計測し, 次に, 両ミラーを同じ角度だけ傾斜させ, 被検ミラー上の隣接するサブアパーチャー内と平面ミラーの形状を再度同時に計測する. 平面ミラーの2回の計測値の差から, サブアパーチャー間の相対角度を知ることができ, これを繰り返すことによって, 隣接する全てのサブアパーチャー間の相対角度を知ることができる. 平面ミラーは単独でも傾きを変えることができ, 干涉縞の密度が適正になるように適宜調整が行われる. RADSI によって測定された形状データには, レーザ顕微干涉計によって得られる局所領域の形状データがパッチングされ, 10 μm 以下の周期の形状誤差からミラー全長に対応する長周期の形状誤差までのすべての形状誤差がミラー全面に亘ってマッピングされる [13]. そして, RADSI の測定座標と EEM の加工機の座標を一致させることによって, ディタ

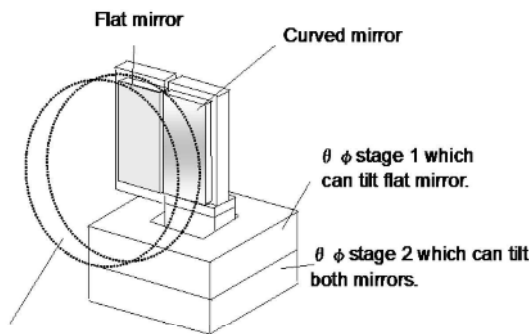


図2. RADSI の模式図

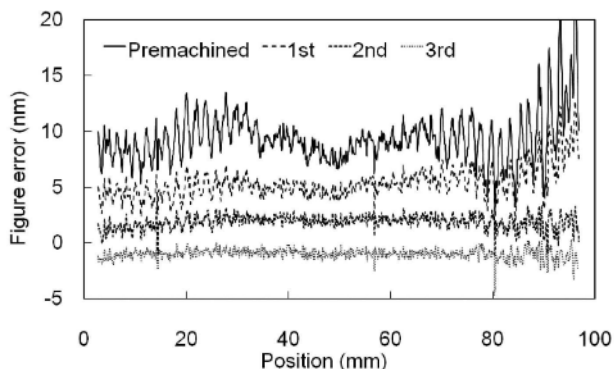
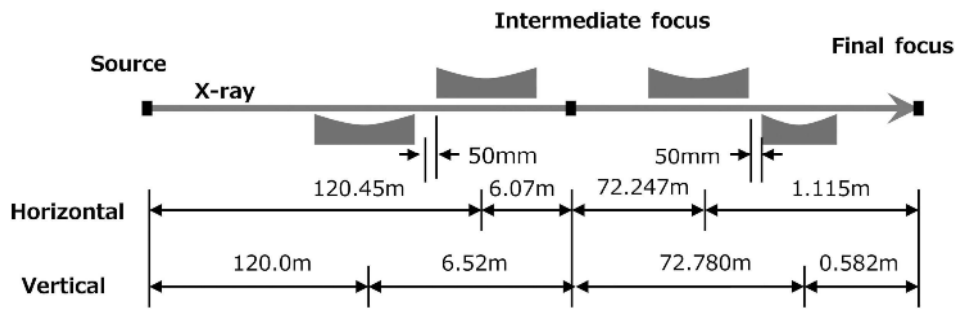


図3. RADSI と EEM によって構成されたディタミニスティックな表面創成システムによる形状修正の例. 3回の修正加工によって $\pm 1\text{nm}$ の高精度表面が得られている.

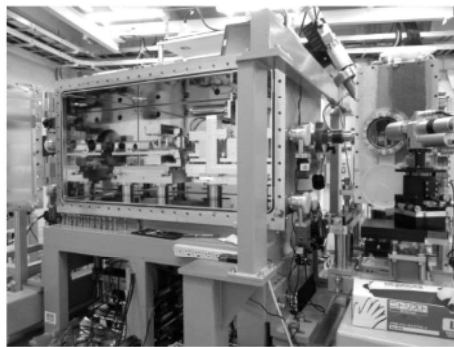
ミニスティックな加工システムを構成している. 図3に RADSI と EEM による形状誤差の修正過程を示す. ここでは, 3回の修正加工によって, PV 数 10nm あった形状誤差が, PV 1nm レベルに改善されていることが分かる [14].

4. XFEL のナノ集光と SACLA への導入

SACLA の 50nm 集光光学系を図4に示す. 2枚の楕円ミラーが, それぞれ水平および垂直方向の集光を担う KB (Kirkpatrick-Baez) 配置の光学系が2段構成になっている. SACLA は, 日本のオリジナル技術である Cバンド加速管と真空封止型アンジュレーターを採用することによって, 非常にコンパクトな構成になっている. 光学ハッチもコンパクトであり, ここに集光光学系を収める必要がある. X線の集光を行う際, 通常は1段の集光光学系が採用されるが, SACLA の場合, 十分なワーキングディスタンスを確保することができない. このため, 敢えて2段の光学系の構築に挑戦した. 1段でも大変だが, より複雑な2段の集光系を採用したのである. この理由をもう少し詳しく説明する. 繰り返しになるが, ここで目指しているのは回折限界での集光である. このため, 最終段の開口数 (NA: Numerical Aperture) に理論的な制限が加わる. NA は光学系の開口を焦点距離で割ったもので, 集光の際の収束角に対応する. 実現可能な集光サイズは理論的に NA に反比例するため, 目的である 50nm 集光に対応する NA を満たす必要がある. 一方, SACLA は極めて発散角の小さい光源である. このため, 1段の集光では開口 (ミラー位置でのビームサイズ) が非常に小さくなる. その結果, 所定の NA を得るためには焦点距離を短くせざるを得ず, 必然的にワーキングディスタンスが短くなり, 集光はできても非常に使いにくい光学系になってしまう. このため, 我々は, 1段目の光学系で XFEL を拡大し, 2段目の光学系で必要な NA を十分なワーキングディスタンスのもとに実現することを目指したのである. その結果, 350mm のワーキングディスタンスを確保し, 使い勝手の良い集光光学系が完成した. 図5に集光プロファイルを示す. 水平, 垂直方向がそれぞれ半値幅 55nm, 45nm のナノ集光を実現し, ピークパワー $10^{20}\text{W}/\text{cm}^2$ の超高強度光子場の形成に成功した [15-17].

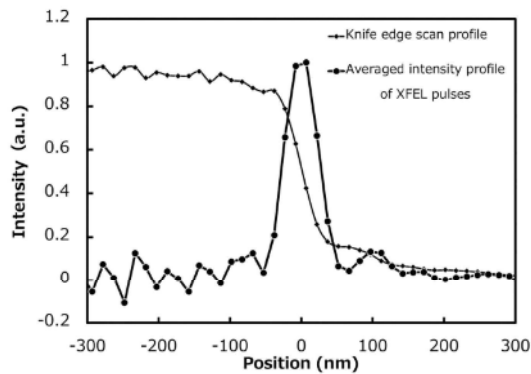


(a)

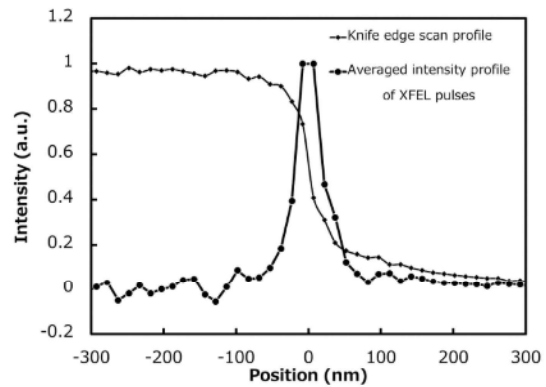


(b)

図4. SACLAにおける50nm集光光学系の構成 (a) と下流集光システムの外観 (b). 各ミラーの長さは約500mm



(a)



(b)

図5. 50nm集光光学系のビームプロファイル. 水平 (a), 垂直 (b) 方向の集光サイズは, 半値幅で55nmと45nm.

5. 硬X線領域での非線形光学現象の観察

X線が原子に当たると内殻に空孔ができ, 光イオン化される. この空孔に上位の電子が落ち込み, エネルギー差が蛍光X線やオージェ電子となって観察される. 物性科学で広く利用されている現象である. この過程はフェムト秒程度の時間内で生じるため, 通常は, 内殻の空孔は存在しないものと考えれば現象が理解できる. つまり, これらの現象は励起X線の強度に完全に比例して起こる. ところが,

パルス幅がフェムト秒の強いXFELを照射すると何が起こるのか? 内殻の空孔が消滅する前に, もう1つの光子による励起を観察することができる. その結果, 内殻に2つの空孔が形成される. この現象は, 1つの空孔が存在する中間状態を介した逐次的な2光子励起と呼ばれる. クリプトンを用いた実験がSACLAで行われ, 世界で初めて, K殻においてこの現象が観察された [18]. 我々の光学系によって, SACLAを50nmレベルに集光すれば何が起こるの

だろうか？ゲルマニウムに5.6keVの集光ビームを照射することによって、ゲルマニウムの K_{α} 線が観察された[19]。 K_{α} 線の強度は、基本的に励起X線強度の2乗に比例していた。GeのK殻の励起には11.1 keVのエネルギーが必要であり、2段階の励起をするための中間状態もない。まさに、2つの5.6 keVの光子が中間状態を介さず同時に吸収され、11.1 keVのエネルギーをK殻電子に与えたことになる。この現象は、1つ目の光子が吸収された細波が消えない数100zeptosecondの時間内に2つ目の光子が作用したことを表す。X線領域で始めての実証となった。XFELからのパルスは、SPring-8の100万倍の光子が1万分の1の時間に集中しているので100億倍明るい。この光を集光して、光の密度をさらに数100万倍までに高めている。ざっと計算すると、フェムト秒の時間内に空間密度20,000光子/ \AA^2 程度詰め込まれた光のかたまりのなせる業である。その他、鉄のK殻吸収端における可飽和吸収[20]や、銅のK殻励起レーザーの発振[21]など、様々な非線形現象の観察にも成功している。XFELは人類にとって夢の光であり、極限の強光子場物理学が拓かれようとしている。

6. おわりに

SACLAの50nm集光を実現し、すでに多くの研究者によって集光ビームの利用が開始されている。我々のグループでは、補償光学を駆使してSACLAをさらにSub-10nmまで集光し、ピーク強度を $10^{22}\text{W}/\text{cm}^2$ まで高めようとしている。どのような現象が観察できるか明快に予測はできないが、XFELによって、まだまだ新しいサイエンスが展開されることだけは確かである。

謝辞

本研究は、理化学研究所播磨研究所の石川哲也氏、矢橋牧名氏、玉作賢治氏、香村芳樹氏、登野健介氏、犬伏雄一氏、高輝度光科学研究センターの後藤俊治氏、大橋治彦氏、湯本博勝氏、小山貴久氏、富樫格氏、東京大学の三村秀和氏、佐藤堯洋氏、北海道大学の西野吉則氏、木村隆志氏、大阪大学の佐野泰久氏、松山智至氏らとの共同で行われたもので、共同研究者の皆様へ深く感謝いたします。ミラーによるX線集光の高度化研究は、研究開始より、SPring-8

のBL29-XULを利用して行われ、研究の一部は文部科学省「X線自由電子レーザー利用推進研究課題」、科学研究費補助金（基盤研究S(23226004)）、JST CRESTおよび、理化学研究所「SACLA利用装置提案課題」の下に実施された。これらの支援に深く感謝する。最後になったが、「生産と技術」編集委員会の皆様には、貴重な紙面をいただいたことに心から感謝する次第である。

参考文献

- [1] K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, Y. Mori: *Appl. Opt.* **44**, 6927 (2005).
- [2] K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, Yuzo Mori: *J. Synchrotron Rad.* **9**, 313 (2002).
- [3] H. Yumoto, H. Mimura, S. Matsuyama, H. Hara, K. Yamamura, Y. Sano, K. Ueno, K. Endo, Y. Mori, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Rev. Sci. Instrum.* **76** (2005) 063708.
- [4] H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Yamamura, Y. Mori, M. Yabashi, Y. Nishino, K. Tamasaku, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Appl. Phys. Lett.* **90**, 051903 (2007).
- [5] K. Yumoto, H. Mimura, S. Matsuyama, S. Handa, Y. Sano, M. Yabashi, Y. Nishino, K. Tamasaku, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Rev. Sci. Instrum.* **77**, 063712 (2006).
- [6] H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, S. Handa, T. Kimura, Y. Sano, M. Yabashi, Y. Nishino, K. Tamasaku, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Phys. Rev. A* **77**, 015812 (2008).
- [7] T. Kimura, S. Handa, H. Mimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, S. Matsuyama, K. Inagaki, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Jpn. J. Appl. Phys.* **48**, 072503 (2009).
- [8] H. Mimura, S. Handa, T. Kimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, H. Yokoyama, S. Matsuyama, K. Inagaki, K. Yamamura, Y. Sano, K. Tamasaku,

- Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Nat. Phys.* 6, 122 (2010).
- [9] M. Born, E. Wolf: *Principle of optics*, 4, 459 (1970).
- [10] K. Yamauchi, H. Mimura, K. Inagaki, and Y. Mori: *Rev. Sci. Instrum.* 73, 4028 (2002).
- [11] Kenta Arima, Akihisa Kubota, Hidekazu Mimura, Kouji Inagaki, Katsuyoshi Endo, Yuza Mori and Kazuto Yamauchi: *Surf. Sci. Lett.* 600, L185 (2006).
- [12] H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, K. Yamamura, Y. Sano, K. Ueno, K. Endo, Y. Mori, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Rev. Sci. Instrum.* 76, 045102 (2005).
- [13] K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Ueno, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, T. Mori: *Rev. Sci. Instrum.* 74, 2894 (2003).
- [14] T. Kimura, H. Ohashi, H. Mimura, D. Yamakawa, H. Yumoto, S. Matsuyama, T. Tsumura, H. Okada, T. Masunaga, Y. Senba, S. Goto, T. Ishikawa, K. Yamauchi: *Nucl. Instrum Meth. Phys. Res. A* 618, 229 (2010).
- [15] 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, K. Yamauchi: *Nat. Photonics*, 7 43 (2012).
- [16] H. Mimura*, H. Yumoto, S. Matsuyama, T. Koyama, K. Tono, Y. Inubushi, T. Togashi, T. Sato, J. Kim, R. Fukui, Y. Sano, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi: *Nat. Commun.* 5, 3539 (2014).
- [17] K. Yamauchi, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Koyama, and T. Ishikawa: *J. Synchrotron Rad.* 22, 592 (2015).
- [18] K. Tamasaku, M. Nagasono, H. Iwayama, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Tanaka, K. Tono, T. Togashi, T. Sato, T. Katayama, T. Kameshima, T. Hatsui, M. Yabashi, T. Ishikawa: *Phys. Rev. Lett.* 111, 043001 (2013).
- [19] K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Katayama, K. Sawada, H. Yumoto, H. Ohashi, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi, and T. Ishikawa: *Nat. Photon.* 8, 313 (2014).
- [20] H. Yoneda, Y. Inubushi, M. Yabashi*, T. Katayama, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, and H. Kitamura: *Nat. Commun.* 5, 5080 (2014).
- [21] Yoneda, Y. Inubushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, H. Kitamura, T. Katayama, T. Ishikawa and M. Yabashi: *Nat.* 524, 446 (2015).

