

# [14th SpRUC Young Scientist Award受賞 研究報告] 硬X線結像ミラーによるXFELの極限的集光

大阪大学 大学院工学研究科 山田純平

## Abstract

X線自由電子レーザー(XFEL)の高ピーク輝度特性を最大限に引き出すためには、ナノメートル領域へのX線微小集光が不可欠である。我々は、結像特性を備えた硬X線ミラー光学系とX線波面補正技術、ならびに高精度集光評価法を組み合わせることで、集光径 $7 \times 7 \text{ nm}$ およびピーク強度 $10^{22} \text{ W/cm}^2$ を達成するXFELの極限的集光システムの開発を実施してきた。本稿では、これらの研究開発結果および超高強度XFELの初めての応用実験結果について紹介する。

## 1. はじめに

高ピーク輝度を有するX線自由電子レーザー(XFEL)は、マイクロ～ナノメートルスケールの微小領域への集光を行うことで、その強度を飛躍的に高めることが可能となる。SACLAにおいても、XFELを10ナノメートル以下(sub-10 nm)の極限的なサイズまで集光することにより、集光ピーク強度は $10^{22} \text{ W/cm}^2$ を超えると予想される。このX線強度は、単分子からのX線回折測定や、ポンデロモティブ力を介した新たな電子励起といった、多くの分野における革新的応用につながるものとして、長年にわたり実現が待ち望まれてきた。しかしながら、従来XFELで広く用いられてきたKirkpatrick-Baez(KB)配置に基づく集光ミラーは、いわゆるアッペルの正弦条件を満たさず、強いコマ収差(軸外収差)を有するという課題を抱えていた。このため、10 nm集光を目指す場合、入射角の僅かなずれにも極

めて敏感となり、光源や光学素子の微小な振動によってパルスごとの集光状態が大きく変化してしまう上、長期間にわたり安定した集光条件を維持することが困難であった。

我々は、独自に開発してきた結像特性を有するadvanced KBミラー<sup>[1,2]</sup>を応用することで、高い安定性と実用性を両立させたXFELの $7 \times 7 \text{ nm}$ 集光を実現した<sup>[3]</sup>。その結果、 $1.4 \times 10^{22} \text{ W/cm}^2$ に達するピーク強度を達成し、固体密度金属の完全電離などの応用にも成功している。本稿では、著者らが行ったこれらの硬X線結像ミラーによるXFELの極限的集光に関する研究について紹介する。

## 2. XFEL sub-10 nm 集光光学系

XFELのナノ集光では、強度の増大が至上命題であるので、集光効率(スループット)および開口幅(アクセプタンス)の大きさの観点から、反射型

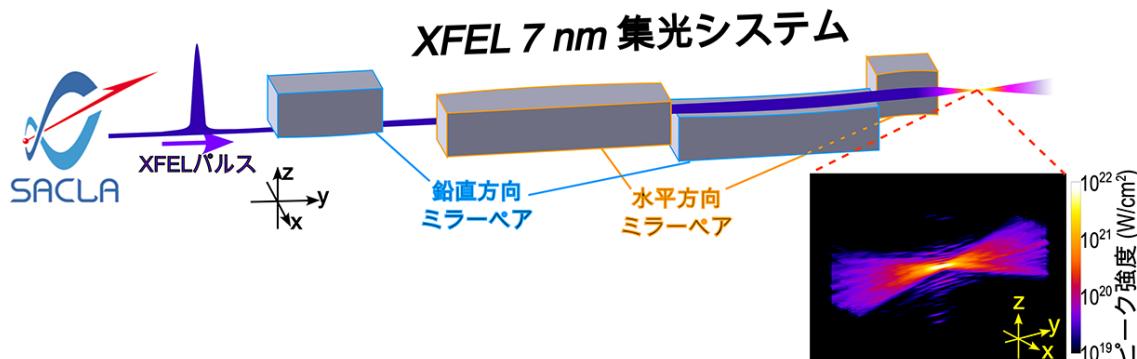


図1 開発したWolter III型配置に基づくadvanced KBミラー光学系の概略図

X線ミラー光学素子<sup>[4-6]</sup>が用いられる。しかしながら、従来XFELで一般に使用されてきたKBミラー光学系は、冒頭で述べたように軸外コマ収差の影響により、安定した集光を実現することが難しい。そこで本研究では、楕円凹面と双曲凸面を組み合わせた、Wolter III型配置に基づくadvanced KBミラー(図1)を採用した。

本光学系は、二回反射によりアッペル正弦条件を満たし、コマ収差を大幅に抑制することで、従来比で1000倍以上の入射角誤差許容度を実現している。また、一次元方向に二枚のミラーを対向配置する構成をとることで、光学系の主面を焦点方向へシフトでき、実用的な作動距離とsub-10 nm集光に十分な縮小倍率の両立を可能としている。

SACLAにおける光源サイズおよびビームサイズを実測に基づいて考慮し、光子エネルギー9.1 keVにて7×7 nmの集光径を達成可能なXFEL sub-10 nm集光システムの設計を行なった。結果として、水平・鉛直両方向ともに開口数0.01、縮小倍率6000倍以上、アクセプタンス500 μm、入射角許容誤差200 μrad以上、といった設計パラメータが得られた。設計上の作動距離は43 mmであり、実際のXFEL実験に対して十分汎用的である。また、楕円凹ミラーには多層膜プラグ反射を用い、予想されるスループットは約38% (4回反射率50 %、入射光受けこぼし比75%)、到達可能なピーク強度は10<sup>22</sup> W/cm<sup>2</sup>に達する見込みである。

### 3. X線波面補正によるミラー形状修正

X線ミラーに求められる形状誤差精度  $d$  (peak-to-valley: PV値) は、Rayleighの1/4波長則に基づき、次式で表される。

$$d = \frac{\lambda}{8 \sin \theta}$$

ここで、 $\lambda$ は波長(m)、 $\theta$ は斜入射角(rad)を表す。最大値で約27.6 mradの斜入射角を有するXFEL sub-10 nm集光光学系では、最も厳しい条件下でおよそ0.6 nm PVの形状精度が求められる。この精度はSi原子間距離のわずか2~3個分に相当し、その達成には加工精度はもとより計測精度の確保が重要である。測定できないものを正確に加工するこ

とはできないためである。しかし、対象とするミラーは曲率半径が80 m~3 mの急峻な湾曲面であり、可視光を用いた最新の形状計測技術でも0.6 nm PV精度での計測は実質的に困難である。そこで本研究では、X線格子干渉計を用いた波面計測に基づく形状修正(波面補正)技術<sup>[7,8]</sup>を導入した。

X線格子干渉計は、回折格子によって生じるTalbot効果を利用した計測手法である。短波長のX線をプローブとして、実際の光学配置下でミラー表面の形状を高精度に評価でき、曲率依存性の影響を受けにくいという特徴をもつ。さらに、本研究では系統誤差補正を綿密に行い、特に検出器系には低歪レンズを備えた独自設計のX線カメラを採用了。その結果、波面精度として $\lambda/72$  rmsに達する高精度な波面計測を実現した<sup>[8]</sup>。得られた波面誤差データは、光線追跡および波動伝搬計算によってミラー形状誤差に変換される。形状修正には、制御性と再現性に優れ、X線反射膜形成との親和性も高い差分成膜法<sup>[7,9]</sup>を用いた。マグネットロンスパッタによる成膜時にスリットを用いたスポット生成とステージ走査速度の制御を組み合わせることで、成膜後の表面形状を任意に制御することが可能である。

SPring-8 BL29XUでの波面計測に基づき実施し

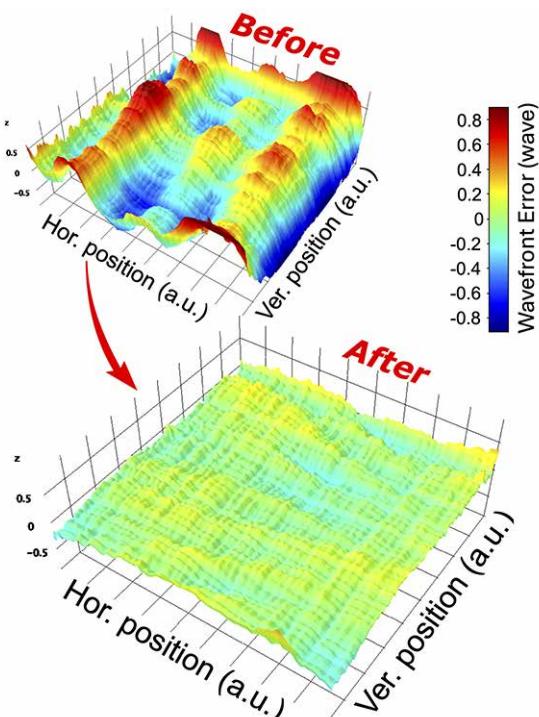


図2 形状修正前後の波面誤差プロファイル

た波面補正結果を図2に示す。修正前に $2\lambda$  PV以上にあった波面誤差は、わずか2回の修正加工で約 $\lambda/6$  PVまで改善された。波面精度も $\lambda/15$  rmsに達し、Maréchal基準を満たす回折限界集光性能が得られた。これをミラー形状誤差に換算すると、最も厳しい箇所で約0.5 nm PVに相当し、従来の可視光計測法を上回る精度を達成した。本波面計測は、実験効率および光源安定性の観点からXFELではなく放射光X線を用いて実施した。2つの最先端X線光源が隣接するSPring-8/SACLAの環境と、結像ミラーの導入によって高いロバスト性を備えた集光システム設計が相まって、初めて実現した成果といえる。

#### 4. XFELナノ集光の高精度計測

パルス毎のXFEL特性変化が存在する条件下で、10 nm以下のXFEL集光径を正確に評価および保証することも難しい課題であった。従来用いられてきたフーコーテストやナイフエッジスキャン法では、集光点の位置変動（ジッター）や、高強度XFELによるアブレーションダメージの観点から、10 nm以下の測定精度を得ることは難しい。このため本研究では、X線波面計測法・X線イメージング法を応用した高精度な集光評価法を開発した。

まず、前述の格子干渉計による波面計測結果を基に、波動逆伝搬計算を適用した。X線波動場の波面（位相）情報と、通常の検出器で取得可能な強度（振幅）情報を組み合わせることで、Fresnel-Kirchhoff回折積分に基づく逆伝搬計算により焦点上の強度分布を求めることができる。結果の詳細は次段落にて示すが、波面計測の範囲内では $6.9 \times 7.0$  nmの集光サイズが見積もられた。一方で、当初の結果にはアライメント誤差、特に非点収差や直角度誤差に起因する低次収差成分に対する絶対精度の不足が確認された。X線格子干渉計で高い絶対精度を実現するためには、用いる回折格子および検出器のディストーション、すなわち正方格子がわずかに縦・横・斜め方向への歪む効果、に対する精度が0.02 %以下でなければならない。これは、回折格子において約0.5 nm、検出器において2~3 nmの精度でピクセルサイズの一様性が求められることに相当し、現実的な達成は困難である。他手法によるキャリブレーションの導入が不可欠であると言える。

そこで次に、近年急速に発展しているX線イメージング手法の一つであるタイコグラフィ<sup>[10,11]</sup>を適用した。コーヒーレント回折パターンからの反復的位相再構成に基づくタイコグラフィ計測では、高解像度

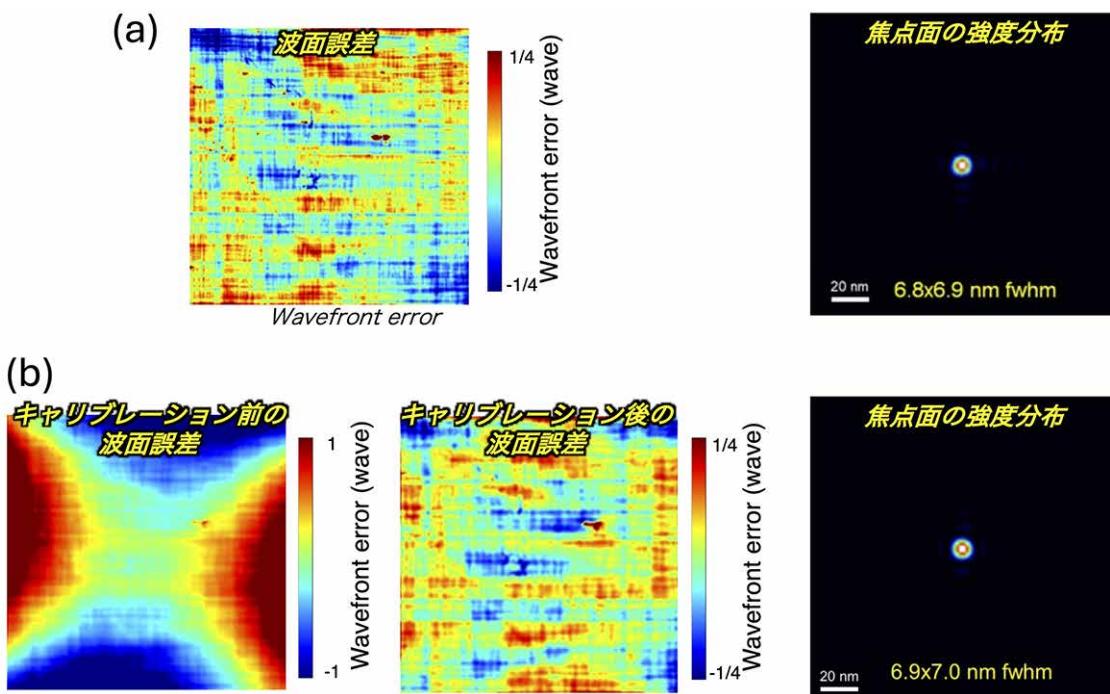


図3 集光波動場の評価結果 (a) タイコグラフィにより評価した波面誤差および集光強度分布 (b) X線格子干渉計により評価した波面誤差および集光強度分布

の試料像に加えて、プローブ関数と呼ばれる試料を照明した光の複素波動場が得られる。この照明波動場は位相と振幅の情報を正確に含むため、焦点上の強度分布の評価に応用できる。高強度焦点におけるアブレーション損傷に留意しつつ、80~100 μm デフォーカスした位置にて実施したタイコグラフィによる集光評価結果を図3 (a) に示す。6.8 × 6.9 nm の集光サイズが得られ、目標集光径の達成が確認された。また、X線格子干渉計による評価結果との比較を図3 (a,b) に示す。予期していたとおり、X線格子干渉計の結果には約8 μm程度の非点収差に相当する低次収差成分が残存していた。一方、タイコグラフィの結果を基にキャリブレーションを行ったところ、両者の結果は良好に一致し、高精度に XFEL の 7 × 7 nm 集光径が計測されたと結論づけた。

## 5. 固体密度金属の完全電離

最終的に得られた集光強度は、実測されたミラー反射率および焦点外へ散乱した強度成分を考慮しても、パルス幅 7 fs の XFEL において  $1.45 \times 10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> に達した。この値は、従来の XFEL で得られていた強度を約 2 衍上回り、可視光レーザーの最先端技術<sup>[12]</sup>にも匹敵する超高光子密度を実現したこと意味する。また、波面計測による評価の結果、10 時間を超える安定した集光性能が確認され、長時間安定性にも優れていることが示された。

達成された 7 nm 集光 XFEL の応用例として、固体密度金属 Cr (クロム) 試料の完全電離実験を実施した。非晶質熱分解グラファイト (HAPG) (001) 結晶と MPCCD 検出器から構成される分光器を用い、

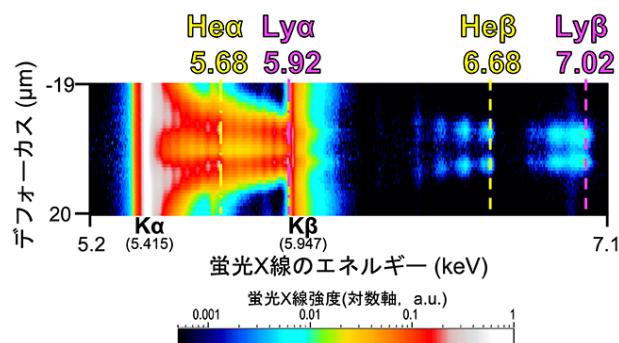


図4 試料位置をデフォーカス方向に変化させながら取得したCr薄膜からの発光スペクトル

焦点近傍に配置した厚さ 2 μm の Cr 薄膜からの発光スペクトルを計測した結果を図4に示す。通常の蛍光発光である K $\alpha$  線および K $\beta$  線に加え、He 線および Ly 線と呼ばれる原子線スペクトルの観測に成功した。特に Ly 線の存在は、電子が 1 つのみ残存した水素様金属イオンが生成されたことを示している。さらに、より高強度の焦点条件では Ly 線のスペクトル強度が減衰することが確認された。これは、全ての電子が励起され、発光に関与する緩和過程が消滅したことを示しており、電子が完全に剥ぎ取られた「完全電離状態」が生成されたことを強く示唆している。これにより、従来は高エネルギー粒子ビームによって生成してきた高度電離状態のイオンを、X 線によって生成・観測できる可能性が示された。内殻電子と支配的に相互作用を示す X 線独自の特性から、原子・分子物理学や高強度場科学における新たなツールとしての展開につながるものと期待される。

## 6. おわりに

本稿では、著者らが SACL A BL3 にて開発した 7 nm 集光径・ $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> 強度を実現する X 線集光システムに関して紹介した。今後の展開としては、未踏の X 線非線形光学現象の観察や、結晶化を必要としないタンパク質の単分子構造解析への応用が期待される。後者に関しては、SACL A での技術確立が目前に迫るアト秒 XFEL<sup>[13,14]</sup>との組み合わせにより、超高強度 FEL を用いながらも電子系ダメージを抑制した精密構造解析が可能となる見通しである。光学システムの発展としては、著者らのグループにて、時間分解測定に必須となる二色 / ダブルパルス FEL へ対応するための新奇 X 線多層膜ミラーの開発を進めている。

より広い視野で見れば、本研究で培われた X 線ミラー技術を、放射光 X 線源へと還元・展開することも今後の重要な課題である。とりわけ、大幅な高輝度化が期待されている第四世代放射光源へのアップグレード<sup>[15]</sup>後には、光源性能を余すことなく引き出す高フランクス・ナノ集光技術として多岐に渡る X 線科学に貢献していくことを目指している。

**謝辞**

本稿で紹介した研究は、大阪大学の山内和人教授、佐野泰久教授、藤大雪氏、伊藤篤輝氏、塩井康太氏、理化学研究所の矢橋牧名氏、井上伊知郎氏（現東京大学）、大坂泰斗氏、山口豪太氏、玉作賢治氏、JASRIの登野健介氏、簗内俊毅氏、犬伏雄一氏、大橋治彦氏、小山貴久氏、湯本博勝氏、名古屋大学の松山智至教授、井上陽登氏らを始めとする多くの研究者との共同研究によるものである。数多くのご指導およびご支援に深甚の謝意を表す。

**参考文献**

- [1] J. Yamada *et al.*: *Appl. Opt.* **56** (2017) 967-974.
- [2] J. Yamada *et al.*: *Opt. Express* **27** (2019) 3429-3438..
- [3] J. Yamada *et al.*: *Nat. Photon.* **18** (2024) 685-690.
- [4] H. Yumoto *et al.*: *Nat. Photon.* **7** (2013) 43-47.
- [5] H. Mimura *et al.*: *Nat. Commun.* **5** (2014) 3539.
- [6] H. Yumoto *et al.*: *Nat. Commun.* **13** (2022) 5300.
- [7] S. Matsuyama *et al.*: *Sci. Rep.* **8** (2018) 17440.
- [8] J. Yamada *et al.*: *Sensors* **20** (2020) 7356.
- [9] S. Handa *et al.*: *Surf. Interface Anal.* **40** (2008) 1019.
- [10] J. M. Rodenburg *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007) 034801.
- [11] A. M. Maiden, and J. M. Rodenburg: *Ultramicroscopy* **109** (2009) 1256-1262.
- [12] J. W. Yoon *et al.*: *Optica* **8** (2021) 630-635.
- [13] S. Huang. *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **119** (2017) 154801.
- [14] J. Yan. *et al.*: *Nat. Photon.* **18** (2024) 1293-1298.
- [15] H. Tanaka *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **31** (2024) 1420-1437.

**山田 純平 YAMADA Jumpei**

大阪大学 大学院工学研究科  
附属精密工学研究センター  
〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1  
TEL : 06-6879-7285  
e-mail : yamada@prec.eng.osaka-u.ac.jp