

## 論文の内容の要旨

論文題目 波面計測に基づく反射型軟X線集光システムの開発

氏名 竹尾 陽子

X線の中でも0.6 nmから12 nmという比較的長い波長を持つ電磁波を軟X線と呼ぶ。軟X線のエネルギー帯域は軽元素のK吸収端及び遷移金属のL吸収端を多数含み、これらと元素特異的な反応を示すことから、材料科学、触媒化学、生命科学の発展に貢献してきた。軟X線計測には、X線吸収微細構造、光電子分光、X線磁気円二色性、共鳴非弾性X線散乱などが存在するが、これら手法は軟X線ビームに対して優れたエネルギー分解能や波長可変性、小さなビームサイズ、高輝度を要求する。

軟X線解析の光源に対するこれらの要求を同時に満たすのが放射光である。放射光とは、光速近くまで加速された電子の軌道を曲げたときに接線方向に放射される電磁波である。放射光光源は、1990年代の第三世代放射光施設の建設、2000年代の3 GeV蓄積リングの普及、2010年代後半の回折限界蓄積リングの実用化と、近年目覚ましい発展を遂げてきた。その間に、軟X線ビームの輝度、光源サイズ、指向性、空間コヒーレンスがいずれも改良され、幅広い分野での利用を促進してきた。

軟X線解析の性能向上には、光源のみならず、分光器や集光システムからなる光学系と検出器の高度化が不可欠である。特に集光システムは、その集光効率が信号強度を、集光サイズが計測の空間分解能を、色収差がエネルギー変更の容易さを決定づける、重

要な要素である。しかしながら、軟X線光源の著しい発展と比較して、集光技術には、いまだ改善の余地が残されている。

現在一般に使用されている軟X線集光素子は、Fresnel Zone Plate (FZP)と平板型ミラーに大別される。回折現象に基づく集光素子であるFresnel Zone Plateは最小で10 nm程度の集光サイズを達成可能であるが、利用効率が10%以下にとどまり、色収差も大きい。平板型凹ミラーは反射を用いて集光を行うため、色収差がなく利用効率も80%以上を維持できるが、開口数が小さいためナノメートル集光は困難である。ナノメートル集光と高い利用効率を兼ね備えた軟X線集光素子は現状実用化されていない。

ミラーによる軟X線集光の課題、すなわち小さな開口数を克服し、高い利用効率、色収差なし、10 nm集光を同時に実現することができる光学素子として、中空型形状内面を反射面として利用する回転楕円ミラーが提案され、その作製及び計測手法が開発されてきた。さらに、その集光性能は波長10 nm以上のEUV領域において評価され、1  $\mu$ m以下の集光ビームを形成可能であることが示されてきた。しかしながら、既存の回転楕円ミラーの計測手法は、ミラーの形状誤差に関する限定的な情報の取得にとどまり、ミラー全体の3次元形状を評価することが困難である。このことは作製プロセスの改善と理想的な集光性能を持つミラーの実現の障害となっている。また、波長10 nm以下の軟X線領域における回転楕円ミラーの実際の集光性能や、現状の形状誤差が与える影響は未評価である。

本研究の目的は、波面計測に基づき高NA集光ミラーを用いた軟X線集光システムを高度化するとともに、放射光光源に合わせた次世代の集光システムを提案することである。

第1章では、本研究の既存研究に対する位置づけ及び方針決めを行った。まず軟X線集光の重要性を述べた後に、既存の集光システムを俯瞰し、大開口中空型回転楕円ミラーがその中でも優れた特質を持つことを示した。その上で、回転楕円ミラーの作製・計測プロセスの開発過程と集光実験の結果を紹介し、今後の発展には波面誤差計測による光学系の適切な評価が不可欠であると結論付けた。X線領域の各種波面計測法の中で、回転楕円ミラーが作り出す高NA輪帯集光ビームと相性が良く、可視光・軟X線双方に適用可能であることから、タイコグラフィを用いた波面計測法を選択した。タイコグラフィ波面計測を通じて、回転楕円ミラー光学系を適切に評価し、そこから得た知見を活用して軟X線集光技術をさらに発展させることを、本研究全体の目的に据えた。

第2章では、回転楕円ミラーの集光性能が、誤差要因によってどれほど悪化するのかを数値シミュレーションにより定量的に見積もった。まず誤差の存在しない理想的な光学系の性能を評価し、300 eVにおけるFWHMが30 nm以下であり、Fresnel zone plateの代替として十二分に機能することを示した。13種の誤差とその影響を比較し、波面誤差の空間波長によって波長変化に対する応答が大きく異なることを明らかにした。HPD100 nm以下という目標値の実現のためには、作製プロセス・計測プロセス・設置調整すべてにおいて改善が必要であることが判明した。特に既存手法で計測が不可能な項目として、

設置角度誤差，直径誤差，テーパ角誤差，中心軸のたわみの4項目を挙げ，これらを波面計測の対象として決定した。

第3章では，可視光レーザーを光源として用いて，タイコグラフィ波面計測を回転楕円ミラー光学系に適用した。まず，タイコグラフィによって回復された波動場から設置位置誤差及び形状誤差を抽出するための解析手順を確立した。続いて，折り返し用平面ミラーを用いた簡易光学系を立ち上げ，全長120 mmの回転楕円ミラーを用いた波面計測を実施し，設置位置誤差を1.7 mm，設置角度誤差を0.25  $\mu$  rad，中心軸の2次関数状たわみを21 nmの再現性で計測した。設置位置誤差にはミラーの直径誤差の情報が含まれている。また，長周期形状誤差を8 nmの再現性で計測した。

第4章では，SPring-8のBL25SU-Aにおいて，300 eVから1000 eVの軟X線を用いて回転楕円ミラーの全周を照明した上で，集光性能を評価した。まずタイコグラフィを用いて波面誤差を計測し，現状の回転楕円ミラー内面がRMS10 nmの形状誤差を持つことを示した。異なる波長を用いて確認した形状計測精度はRMS1 nmであり，目標値RMS2 nmを上回った。設置角度は十分な精度で調整できたことが明らかになった一方で，現状の作製技術には，長手方向・周方向双方の中周期形状誤差，中心軸のたわみ，直径誤差またはテーパ角誤差という，複数の課題が存在することが改めて示された。全長40 mmのミラーを用いて，400 eVで約200 nm  $\times$  200 nmの集光サイズを達成した。

第5章では，前述のBL25SU-Aにおいて空間コヒーレンス度の実測を行った。Fresnelミラー光学系を適用し，軟X線の広がりを持つビームの計測に有用であることを示した。測定結果を検証するために，光源のcoherent mode decomposition (CMD)データを用いてシミュレータを開発し，その結果は実験結果と概ね一致する傾向を示した。

第6章では，回転楕円ミラー光学系の2種の課題，設置角度誤差に対する許容範囲の狭さとミラー中央部をビームがすり抜けることに起因する効率の低さを解決するために，既存の二段集光システムを発展させたWolter型二段集光システムを提案した。設計式を構築し，実際にBL25SU-Aにおいて集光実験を実施した。得られた集光サイズは140 nm  $\times$  190 nmであり，回転楕円ミラーによる集光サイズとほぼ同等であった。波面誤差計測により，現状の課題は中空型ミラーの長手方向・周方向双方の中・短周期形状誤差であることが明らかになった。また，空間コヒーレンスがタイコグラフィ観察の像質に与える影響が示され，CMDを用いたシミュレーションと傾向が一致した。

第7章では，鉛直方向と水平方向で異なる焦点距離を設定することが可能な新しいミラー設計手法を提案した。中空型，平板型一回反射，平板型二回反射の3種類の設計方式を示し，それぞれの性能を数値シミュレーションにより予測した。平板型一回反射ミラーを用いて，既存のトロイダルミラー及びastigmatic off-axis mirrorに対する軟X線集光における優位性を示した。

第8章では，第7章で提案した非点収差制御ミラーを活用し，SPring-8-IIを想定したビームライン設計を行い，その性能をCMDシミュレーションに基づいて予想した。

本論文の成果を以下に述べる.

第一に, 回転楕円ミラーに代表される中空型ミラーを用いた集光システムの状態を非接触で定量的に評価することが可能となった. このことにより, ミラーの作製プロセスの改善に必要な知見を得た. また, 軟X線領域で初めて回転楕円ミラー全周を利用した集光実験を実施し, sub- $\mu\text{m}$ レベルの集光性能を現状のミラーが持つことを確認した.

第二に, 放射光施設軟X線光源に対して空間コヒーレンス計測を実施し, 発散位置におけるビームのコヒーレンスを定量的に評価した. 本研究の特徴は光源位置におけるCMDを用いたシミュレーション結果と実験結果を比較した点にある. これにより, 例えばタイコグラフィ顕微観察のような, コヒーレンスを必要とする計測における光学系条件を事前に予測することが可能となった.

第三に, Wolter型二段集光システムを提案し, 従来の回転楕円ミラー光学系の設計上の課題を克服した. 集光サイズは回転楕円ミラーと同等の200 nm程度であり, 集光効率は40%以上であった. 本光学系は中空型ミラーの幅広い応用を目指す上で重要である.

第四に, 放射光軟X線光源の特質に合わせて, 鉛直方向と水平方向で異なる焦点距離を設定可能な新規ミラーの設計方式を考案した. これにより, 分光器を含むビームライン上流光学系の設計の自由度が大幅に増すと考えられる.

本研究の全体は, 軟X線集光技術の発展に資するものである.

## 書誌情報

本論文は以下の内容を包含する

- (1)2019. 5. 1. Journal of Synchrotron Radiation, 26, 756-761  
“Probing the spatial coherence of wide X-ray beams with Fresnel mirrors at BL25SU of SPring-8”  
(Hiroto Motoyama, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimuraと共著)
- (2)2020. 3. 23. Applied Physics Letters, 116, 121102  
“Soft x-ray nanobeam formed by an ellipsoidal mirror”  
(Akihiro Suzuki, Hiroto Motoyama, Yoshinori Takei, Takehiro Kume, Yusuke Matsuzawa, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimuraと共著)
- (3)2020. 10. 12. Applied Physics Letters, 117, 151104  
“A highly efficient nanofocusing system for soft x rays”  
(Hiroto Motoyama, Takenori Shimamura, Takashi Kimura, Takehiro Kume,

Yusuke Matsuzawa, Takahiro Saito, Yoichi Imamura, Hiroaki Miyashita,  
Kentarō Hiraguri, Hirokazu Hashizume, Yasunori Senba,  
Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimuraと共著)

## 特許

- [1] 竹尾陽子, 三村秀和, “ミラーの設計方法、および該設計方法における設計式が成り立つ反射面を備えた非点収差制御ミラー”, 特願 2021-3117.
- [2] 竹尾陽子, 三村秀和, “ミラーの設計方法、および該設計方法における設計式が成り立つ反射面を備えた非点収差制御ミラー”, 特願 2021-3118.
- [3] 竹尾陽子, 三村秀和, “ミラーの設計方法、および該設計方法における設計式が成り立つ反射面を備えた非点収差制御ミラー”, 特願 2021-3119.