

平成 29 年度 博士論文



回轉楕円ミラーによる  
軟 X 線レーザー集光システムの開発

指導教員 三村 秀和 准教授

東京大学大学院 工学系研究科 精密工学専攻

本山 央人

学生証番号 37-157044



# 目次

第1章 序論.....	1
1.1 緒言.....	2
1.2 背景.....	3
1.2.1 軟 X 線集光の重要性.....	3
1.2.2 軟 X 線集光素子開発の現状.....	4
1.2.3 回転楕円ミラーによる軟 X 線集光の理論的背景.....	5
1.3 回転楕円ミラーの設計手順.....	7
1.4 ミラー製作プロセス.....	9
1.4.1 回転楕円マンドレル加工.....	10
1.4.2 電鋳法による形状転写.....	10
1.5 本論文の概略.....	12
1.5.1 本論文の目的.....	12
1.5.2 本論文の構成.....	12
第2章 集光性能の波動光学的解析.....	13
2.1 緒言.....	14
2.2 背景.....	16
2.3 波動光学シミュレータの開発.....	17
2.4 光学設計と誤差解析の手順.....	19
2.5 形状誤差解析.....	21
2.5.1 直径誤差.....	21
2.5.2 プロファイルの傾斜誤差.....	23
2.5.3 ランダム成分の誤差.....	25
2.5.4 加工・計測精度の現状.....	28
2.6 ミラーの実利用に関する理論的検討.....	31
2.6.1 アライメント精度の検討.....	31
2.6.2 全面照明における必要アライメント精度の見積もり.....	31
2.6.3 部分照明時の必要アライメント精度の見積もり.....	33
2.6.4 ミラー姿勢制御方法.....	33
2.7 結言.....	34

---

第3章 高次高調波軟 X 線レーザー集光システムの開発.....	35
3.1 緒言.....	36
3.2 背景.....	37
3.3 高次高調波軟 X 線ビームラインの整備 .....	38
3.3.1 ビームライン概観.....	39
3.3.2 高次高調波発生セル.....	40
3.3.3 軟 X 線分光器.....	41
3.3.4 集光実験チャンバー .....	44
3.3.5 回転楕円ミラー .....	46
3.4 回転楕円ミラー調整手順.....	49
3.5 集光実験.....	52
3.5.1 集光プロフィール.....	52
3.5.2 考察.....	53
3.5.3 高強度高次高調波光源への適用可能性 .....	54
3.6 結言.....	55
第4章 軟 X 線自由電子レーザー集光システムの開発 .....	56
4.1 緒言.....	57
4.2 背景.....	58
4.3 SACLA 軟 X 線 FEL ビームライン(SACLA BL1).....	59
4.4 集光システムのコンセプト .....	60
4.5 軟 X 線 FEL パルス照射耐性調査 .....	61
4.5.1 材料の選定.....	61
4.5.2 実験セットアップ .....	62
4.5.3 直入射条件.....	63
4.5.4 斜入射条件(140 mrad) .....	67
4.5.5 斜入射条件(280 mrad) .....	68
4.5.6 計算値との比較.....	70
4.5.7 ダメージ試験まとめ.....	72
4.6 光学設計.....	73
4.7 集光システムの構築.....	76
4.7.1 マニピュレータ .....	76
4.7.2 光検出器.....	77
4.8 集光実験.....	78
4.8.1 集光プロフィール.....	78
4.8.2 フルパワー照射耐性.....	79
4.8.3 集光実験のまとめ.....	80

4.9 Si の軟 X 線可飽和吸収 .....	81
4.9.1 Si の物性と可飽和吸収 .....	82
4.9.2 実験セットアップ .....	82
4.9.3 透過率計測 .....	83
4.9.4 透過光強度分布の計測 .....	85
4.9.5 軟 X 線非線形光学の展開 .....	88
4.10 結言 .....	90
第 5 章 軟 X 線極限集光システムの提案と光学設計 .....	91
5.1 緒言 .....	92
5.2 コンセプト .....	93
5.3 光学設計手法 .....	94
5.3.1 準回転楕円ミラーの設計 .....	94
5.3.2 光源位置の決定 .....	96
5.3.3 リング集光ミラー .....	97
5.4 光学設計とシミュレーション .....	99
5.4.1 光学設計パラメータ .....	99
5.4.2 SACLA-BL1 における光学素子配置 .....	100
5.4.3 光学素子の形状 .....	101
5.4.4 光線追跡 1(点光源) .....	102
5.4.5 光線追跡 2(有限サイズ光源) .....	105
5.4.6 波動光学シミュレーション .....	107
5.4.7 SACLA-BL1 に導入した場合の理論性能 .....	108
5.5 結言 .....	109
第 6 章 回転体ミラーの高精度化に関する研究 .....	110
6.1 緒言 .....	111
6.2 背景 .....	112
6.3 内面成膜のコンセプト .....	114
6.4 イオンビームの原理 .....	115
6.5 イオンビームスパッタ成膜の基本性能の評価 .....	116
6.6 ピンホールマスクを利用した高分解能差分成膜手法の開発 .....	118
6.6.1 装置構成 .....	118
6.6.2 スポット成膜 .....	119
6.6.3 1次元差分成膜 .....	123
6.6.4 2次元差分成膜 .....	124
6.6.5 ピンホール成膜のまとめ .....	124
6.7 内面成膜装置の開発 .....	125

---

6.8 内面成膜実験 .....	126
6.8.1 成膜後表面の AFM 表面粗さ調査.....	126
6.8.2 スポット成膜痕の形成 .....	126
6.8.3 円周方向形状修正テスト .....	128
6.9 ミラー内面のルテニウムコーティングと評価 .....	130
6.9.1 全面コーティング .....	130
6.9.2 軟 X 線 FEL 照射時のスループット調査 .....	130
6.9.3 軟 X 線 FEL 集光性能調査 .....	133
6.10 結言 .....	134
第 7 章 総括 .....	135
7.1 総括 .....	136
7.2 展望 .....	137
参考文献 .....	139
業績リスト .....	144
謝辞 .....	150

# 第1章 序論

---

1.1 緒言 .....	2
1.2 背景 .....	3
1.2.1 軟 X 線集光の重要性 .....	3
1.2.2 軟 X 線集光素子開発の現状 .....	4
1.2.3 回転楕円ミラーによる軟 X 線集光の理論的背景 .....	5
1.3 回転楕円ミラーの設計手順 .....	7
1.4 ミラー製作プロセス .....	9
1.4.1 回転楕円マンドレル加工 .....	10
1.4.2 電鋳法による形状転写 .....	10
1.5 本論文の概略 .....	12
1.5.1 本論文の目的 .....	12
1.5.2 本論文の構成 .....	12

---

## 1.1 緒言

X線は1905年にレントゲンにより発見され、未知の光としてその特性が詳細に調べられた。1911年、ラウエによって結晶からのX線回折が発見され、X線は電磁波の一種であることが確かめられた。その後、X線の短波長性と高い光子エネルギーを利用した様々なX線分析技術が開発され、物質の内部構造や構成元素、化学結合状態の解析が可能となった。現在では、基礎科学、医療、産業を始めとした多岐にわたる分野で必要不可欠な分析技術として認識されている。

これまでに様々なX線光源が開発されてきたが、中でもX線のレーザー化は大きな進展であった。1985年、固体ターゲットに高強度レーザーを照射して生成した反転分布プラズマを利用して、初めてX線のレーザー増幅が観測された<sup>[1]</sup>。1987年には、赤外フェムト秒レーザーを希ガス媒質中で高次の高調波に変換する、高次高調波発生が初めて観測された<sup>[2]</sup>。空間・時間コヒーレンスに優れた極短パルスレーザー光源であり、短波長化に関する精力的な研究開発の末に軟X線レーザー光源へと成熟した<sup>[3]-[5]</sup>。2000年代に入ると、自己増幅変調(SASE)原理に基づいたX線自由電子レーザー施設の建設が世界各地で始まった。2007年、FLASH(ドイツ)とSCSS(日本)で軟X線レーザーが発振し、2009年にはLCLS(米国)で、2011年にはSACLA(日本)で硬X線自由電子レーザーが発振した<sup>[6]-[9]</sup>。極めて高いピーク輝度を有するフェムト秒X線レーザーの利用が可能となった。X線の可干渉性を利用することができるようになり、X線光学の幅は大きく広がった。

光を使う実験において、集光技術は極めて重要な役割を担う<sup>[10]-[12]</sup>。光の集光サイズの下限値は回折限界の式で示されているが、X線の波長は可視光に比べて極端に短いためナノメートルオーダーの集光ビームを形成することができる。集光ビームの微小化は、例えば走査型X線顕微鏡の空間分解能の向上に大きく寄与する<sup>[13]-[15]</sup>。また、微小領域に集光されたパルス光は高強度光電場を形成し、物質との相互作用は非線形的なものとして観測される。X線レーザーパルスの高出力化と短パルス化、およびX線集光技術の高度化により、X線非線形光学の研究が可能となった。

本論文は、X線集光技術の開発に関連した一連の研究をまとめたものである。X線の中でも波長10~30 nmの軟X線を集光対象としている。多くの元素は、軟X線のエネルギー領域に吸収端を有しており、燃料電池や光触媒のメカニズム解明など、次世代機能性材料の研究に欠かせない光である。近年では、フェムト秒軟X線レーザーパルスを利用した超高速スピントロニクスの研究も開拓されつつあり、その研究領域はますます拡大しつつある<sup>[16]</sup>。軟X線集光技術の高度化がこれらの分野にもたらす影響は非常に大きいと考えられる。

本論文では、回転楕円型軟X線集光ミラーの理論性能を解析し、高次高調波軟X線レーザー施設と軟X線自由電子レーザー施設において実際に集光システムを構築する。また、集光性能を理論限界まで引き上げる新規集光システムを提案し、その実現に必要な不可欠なミラー形状の高精度加工プロセスを開発する。



## 1.2 背景

### 1.2.1 軟 X 線集光の重要性

軟 X 線をサンプルに照射して相互作用の結果(シグナル)を検出することで、物質の化学結合状態や内部構造あるいは原子内電子の振る舞い等を解析できる。計測するシグナルは、透過光や発光、光電子など様々であるが、いずれの X 線分析技術においても集光素子が重要な役割を果たしている。軟 X 線集光素子の役割は次に示す 3 つの特性の高度化であると考えられる。

#### (1) 集光サイズ

多くの軟 X 線分析技術では、軟 X 線の集光点にサンプルを配置し、サンプルをラスタースキャンしながらシグナルを計測することで、物性の二次元マッピングを得る。ビームの照射領域のみからシグナルが発生するため、空間分解能は軟 X 線の集光サイズで決まる。集光サイズを微小化することで、分析技術の空間分解能を向上させることができる<sup>[17], [18]</sup>。

また、光電場の強度がクーロン電場を超えるほど高くなると、物質との相互作用からの応答は非線形的になる。発振する X 線レーザーのパルスエネルギーは光源施設の性能により制限されるが、光を集光することで瞬間ピーク強度を激増させることができる。高性能、高精度な集光素子を利用することで、X 線領域の非線形現象を観測することができる<sup>[19], [20]</sup>。

#### (2) 使用可能な波長帯域

例えば XAFS イメージングでは、入射する X 線の波長をスキャンしながらシグナルを計測する。また、軟 X 線の光子エネルギーと物質の吸収端エネルギーの値が近いと、シグナルが増幅される共鳴効果が知られている。いずれの場合も X 線の波長をスキャンする必要があるため、集光素子の性能は波長に依存しないことが望ましい<sup>[21]</sup>。

#### (3) ビーム利用効率

多くの光量がサンプルに照射されると、その分多くのシグナルが発生する。一般に、シグナルが多くなると S/N 比が向上し、実験データの確からしさの向上や計測時間の短縮といった効果が得られる。より多くの光量をサンプルまで届けるために、集光素子は入射した軟 X 線を効率よく集光する性質を有していなければならない。

上記 3 特性の高度化を目的として様々な軟 X 線集光素子が開発されている。次節で軟 X 線集光素子開発の現状について概観する。

## 1.2.2 軟 X 線集光素子開発の現状

可視光と違い、軟 X 線はレンズで集光することができない。軟 X 線に対して高い透過率と高い屈折率を示す適切なレンズ材料が存在しないためである。今日では、反射や回折を利用した集光素子が広く利用されている。

現在、X 線集光素子としてもっとも広く普及している光学系は、Kirkpatrick と Baez によって提案された、2 枚の一次元集光ミラーを縦横タンデムに配置する 2 回反射光学系である<sup>[22]</sup>。この光学系は KB ミラーと呼ばれている。Elastic Emission Machining や Ion Beam Figuring といった高精度加工技術によって製作された KB ミラーにより、硬 X 線領域においてナノ集光技術が開発された<sup>[10], [23]-[25]</sup>。軟 X 線領域においても、KB ミラーによるマイクロ集光が報告されている<sup>[26], [27]</sup>。その他、反射を利用した素子による集光例として、一枚の部分回転楕円ミラーによる軟 X 線マイクロ集光 ( $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ ) や、トロイダルミラーを複数枚使用した、収差補正型集光システム ( $12 \times 13 \mu\text{m}^2$ ) なども報告されている<sup>[28], [29]</sup>。

ゾーンプレートは、同心円状に配置された透過領域からの回折光を利用する集光素子であり、結像条件を満たす<sup>[30]-[32]</sup>。電子ビーム加工や ALD 等の先端技術を利用して製作され、軟 X 線顕微鏡の高空間分解能化に欠かせない光学素子として認識されている<sup>[33], [34]</sup>。ゾーンプレートによる集光スポットを利用した、軟 X 線走査型顕微鏡も開発されている<sup>[17], [18], [35]</sup>。

反射型と回折型のハイブリッド型とも言える多層膜ミラーによる軟 X 線集光も多数報告されている。使用する光の波長と入射角度に合わせて設計した多層膜構造をミラー表面に形成することで、直入射に近い条件でも実用的な軟 X 線反射率 ( $\sim 60\%$ ) が得られる。次世代リソグラフィ光源の波長 13.5 nm に最適化された Mo/Si ミラーは、その代表例であるといえる<sup>[36]</sup>。Mo/Si 放物ミラーによる軟 X 線 FEL 集光 ( $0.3 \times 0.3 \mu\text{m}^2 @ 13.5 \text{ nm}$ ) や、SiC/Mg 放物ミラーによる高次高調波集光 ( $1 \times 1 \mu\text{m}^2 @ 30 \text{ nm}$ ) 等が報告されている<sup>[37], [38]</sup>。

以上のように、様々なタイプの集光素子が、軟 X 線領域において開発されてきた。しかしながら、いずれの集光素子も前節で示した(1)~(3)の特性をすべて高度化することはできない。例えば、KB ミラーは縦横両方向の集光ミラーを光軸方向に並べる必要があるため、上流側集光素子の焦点距離が長くなり、微小集光が難しい(1)。ゾーンプレートは回折効率が低いためビーム利用効率が極端に低い(3)。多層膜構造を利用した集光素子は、設計波長以外の光に対する反射率が極めて低く、広い波長帯域の光を反射することができない(2)。部分楕円ミラーの場合、短波長の光を微小領域に集光するためには曲率半径が数 mm の回転楕円面を製作する必要がある。既存の加工技術ではこのような回転楕円面を高精度に加工することはできず、集光サイズの微小化には限界がある(1)。以上のように、軟 X 線を(2)波長依存性なく(3)高効率に(1)微小集光する集光素子は、未だ開発段階にある。

本研究では、軟 X 線集光技術の高度化を目的として、回転楕円型軟 X 線集光ミラーに着目した。回転楕円ミラーとは、図 1.1 に示すような、楕円プロファイルを光軸に関して一回転させた軸対称ミラーである。微小集光性能と高いビーム利用効率の両方

を兼ね備え、さらに反射を利用するため色収差が発生せず、反射率の許す限り広い波長帯域で使用できる。軟 X 線集光用の回転楕円ミラーは、1985 年に Voss らによってはじめて製作されたが、当時の加工技術では全長 6 mm、表面粗さ 2 nm (RMS)、形状精度 106 nm が限界であった<sup>[39]</sup>。波長 50 nm の軟 X 線への適用は報告されているが、それ以降の発展は見られなかった。しかしながら、適切に光学設計された回転楕円ミラーの理論的な集光サイズは 100 nm を下回り、さらにビームの利用効率が高く波長依存性もない。理論的な集光性能は既存のどの集光素子よりも高く、回転楕円ミラーの実用化は軟 X 線分析技術の高度化に大きく寄与すると考えられる<sup>[40]</sup>。このような背景のもと、回転楕円ミラーの理論研究やミラーの高精度加工プロセス開発が発展し、極めて精度の高い回転楕円ミラーの製作が可能となりつつある<sup>[40]-[44]</sup>。

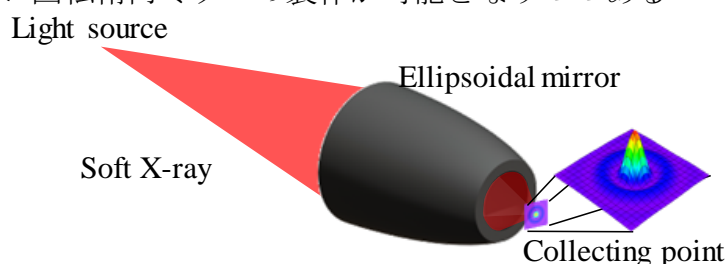


図 1.1 回転楕円ミラーの概略図。光源点から発散する軟 X 線を集光点に収束させる。

### 1.2.3 回転楕円ミラーによる軟 X 線集光の理論的背景

図 1.2 のように直交座標系上に 2 つの定点を定め、その 2 点からの距離の和が一定となるような点の集合が楕円となる。2 つの定点は焦点と呼ばれ、焦点を始点として出射した光線は、楕円で反射後、方向ベクトルの向きを変え、必ずもう片方の焦点に到達する。これは、始点が焦点であれば楕円のどの領域で反射しても成り立つ楕円関数の法則である。2 つの焦点を通過する直線を軸として楕円曲線を一回転させた際の包絡面は回転楕円体となり、前述の法則は 3 次元空間における法則へと拡張される。回転楕円体の焦点を始点とするすべての光線は、回転楕円体の表面で反射後、必ずもう片方の焦点に到達する。この際、すべての光線の光路長は同一となる。

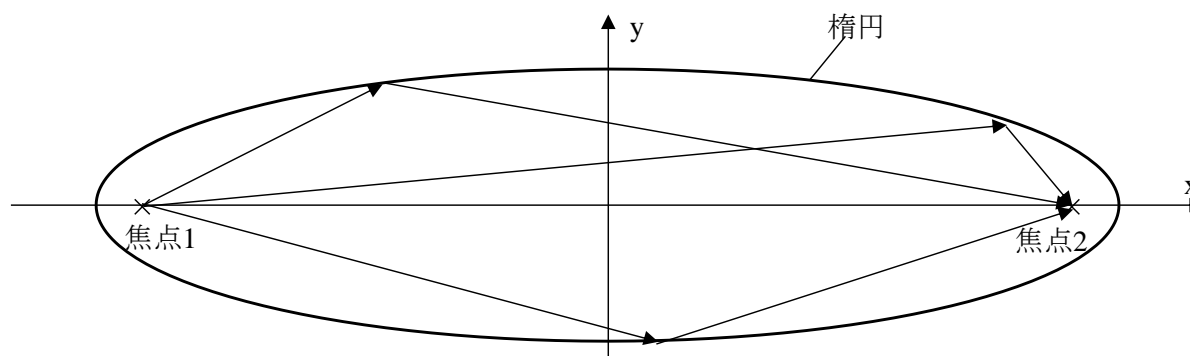


図 1.2 楕円の性質を表した図。焦点を始点とするすべてのベクトルは、楕円で反射した後、同一経路長でもう片方の焦点に収束する。

この楕円関数の特性を利用した集光素子が回転楕円ミラーである。回転楕円体の1部を切り出した中空形状をとる。X線光源を回転楕円体の焦点に一致させることで、光源から発したX線をもう片方の焦点に集光させることができる。すべての光線の光路長は一定であるため、X線は焦点において等位相で集光する。そのため、軟X線が可干渉性を有していれば、軟X線を回折限界領域に集光することが可能となる。

また、回転楕円ミラーには、可視光領域で使用されるレンズと同様、縮小倍率の法則を適用することができる。図1.3のような1次元楕円ミラーを仮定し、光源から出射した光が楕円ミラーの中心に入射したとする。この時、光源サイズと集光サイズをそれぞれ  $d_1, d_2$  とする。ミラー中心から光源を見込む角度を  $2\alpha$  としたとき、反射の性質から、ミラー中心から集光スポットを見込む角度も  $2\alpha$  となる。光源-ミラー間、ミラー-集光スポット間距離をそれぞれ、 $L_1, L_2$  とすると、光源と集光点のサイズはそれぞれ、

$$d_1 = 2\alpha L_1 \tag{1.1}$$

$$d_2 = 2\alpha L_2 \tag{1.2}$$

と近似的に計算できる。2式から  $\alpha$  を消去すれば、

$$d_2 = \frac{L_2}{L_1} d_1 \tag{1.3}$$

という、よく知られたレンズ光学系の縮小倍率の関係と同じ式が導かれる。

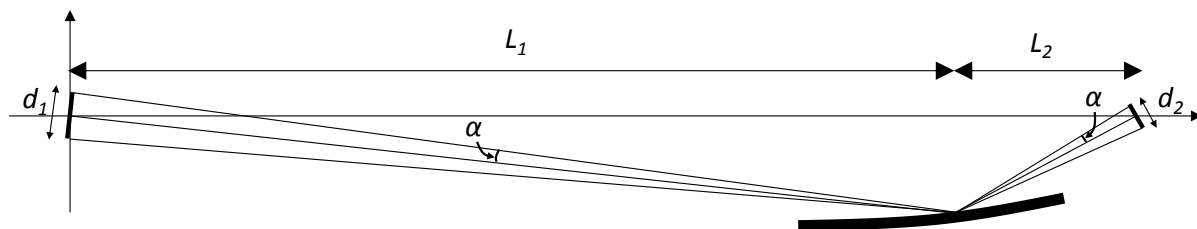


図 1.3 光が楕円面により集光される様子。簡単な計算モデルから、レンズの近軸近似と同じ縮小倍率の式を導出することができる。

### 1.3 回転楕円ミラーの設計手順

これまで様々な特性を持つ軟 X 線光源が開発されてきた。波長やビームサイズ、可干渉性だけでなく、光源が整備されている実験室の空間的制約も光源の特性に含まれると言える。集光素子の設計はこれらの光源特性を考慮したものでなければならない。

本節では、軟 X 線集光回転楕円ミラーの設計手順を述べる。楕円関数の決定に必要なパラメータは、光源から集光点までの距離  $L$ 、ミラー下流端から集光点までの距離  $f$ 、ミラー下流端への光線の斜入射角度  $\theta$  の 3 つである。これとは別に、ミラーの存在領域を定義するためにミラーの長さを表す変数  $ML$  を導入する。また、図 1.4 に示すように、補助変数として光源からミラー下流端までの光路長を  $L_1$ 、ミラー下流端から集光点までの距離を  $L_2$  とする。

図 1.4 に示す計算モデルの下、楕円関数の性質、余弦定理、三平方の定理を用いることで、式(1.4)~(1.6)を得る。

$$L_1 + L_2 = 2a \quad (1.4)$$

$$L^2 = L_1^2 + L_2^2 - 2L_1L_2 \cos(\pi - 2\theta) \quad (1.5)$$

$$L_1^2 - (L - f)^2 = L_2^2 - f^2 \quad (1.6)$$

ここで、 $a$  は楕円の長軸である。これらの式を連立して  $a$  に関して整理すると、

$$a = \frac{L_1}{2} \sqrt{\frac{1 + \sqrt{1 - \left(1 - \frac{2f}{L}\right)^2 \sin^2 2\theta}}{1 + \cos 2\theta}} \quad (1.7)$$

を得る。ここで、楕円の中心を原点とした直交座標系を考える。2 つの焦点を通る直線を  $x$  軸とすると、集光点と光源点の  $x$  座標は  $L/2$ 、 $-L/2$  となる。回転楕円ミラーの光源点と集光点は楕円関数の焦点に一致させる必要があるため、楕円関数の性質から短軸  $b$  の値は、

$$\begin{aligned} \frac{L}{2} &= \sqrt{a^2 - b^2} \\ b &= \sqrt{a^2 - \frac{L^2}{4}} \end{aligned} \quad (1.8)$$

と計算される。また、ミラーの存在領域は次式で定義される。

$$\frac{L}{2} - f - ML \leq x \leq \frac{L}{2} - f \quad (1.9)$$

存在領域に含まれる楕円プロファイルを光軸に関して一回転させた場合の包絡面が、回転楕円ミラーの形状となる。

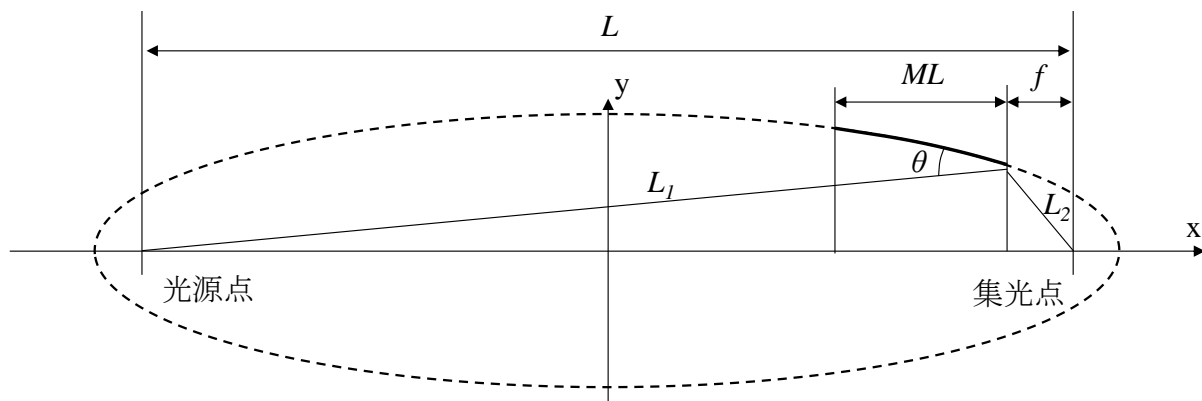


図 1.4 回転楕円ミラーの設計時に用いる各種変数の幾何学的な意味を示した図. 楕円形状決定に  $L, f, \theta$  が必要であり,  $ML$  はミラーの存在領域を規定するために使われる.  $L_1, L_2$  は計算の都合上導入した補助変数である.

4変数( $L, f, \theta, ML$ )は, 次の指針にしたがって決定する.  $L$  は, 回転楕円ミラーをインストールするビームラインの光源からミラー設置位置までの距離に合わせて決める.  $f$  は, 回転楕円ミラーの縮小倍率を考慮して決める.  $\theta$  は, 対象とする軟 X 線のミラー材料に対する反射率に応じて決める. 一般に, 斜入射角度  $\theta$  の値が大きくなると反射率は低下するため, 許容できる反射率を満たすように  $\theta$  の値を決定する.  $ML$  は, ミラー製作プロセスで対応可能かどうかを判断して決める.

## 1.4 ミラー製作プロセス

波長の短い軟 X 線を回転楕円ミラーで反射し集光するためには、その表面に原子レベルの表面粗さとナノメートルレベルの形状精度が求められる。金属表面の鏡面加工技術としては、単結晶ダイヤモンドバイトをツールとしたダイヤモンド切削や、ELID 研削等が知られているが、内径が 10 mm 程度の軟 X 線集光用回転楕円ミラーの内面に加工ツールを挿入することができない。また、比較的加工レートの高い加工手法であるため、ナノメートルレベルの形状制御は困難である。

X 線用の回転体ミラーは、ミラーと反転形状を有する母型を製作し、その形状をミラー材料へと転写することで製作される。回転体ミラーの一つである Wolter ミラーの製作が数例報告されている。Nanba らは無電解ニッケル製のマンドレルで製作した高精度な母型を使用することで、形状精度 140 nm の Wolter ミラーを製作をした<sup>[45]</sup>。また、Ramsey らは、アルミニウムで製作した母型を利用し、天体望遠鏡用の比較的大型の Wolter ミラーを形状精度 500 nm で製作した<sup>[46]</sup>。Aoki らは、タングステンカーバイド性の母型を利用して製作した Wolter ミラーを利用して、軟 X 線顕微鏡を構築した<sup>[47],[48]</sup>。しかしながら、いずれの手法もプロセスの途中で長時間加熱する必要があるため、同手法による形状の高精度化は困難であると考えられる。

ナノ精度回転楕円ミラーの製作を目的として、Mimura らにより高精度転写法をベースとしたミラー製作プロセスが開発されてきた<sup>[41]</sup>。図 1.5 に製作の流れを図示する。回転楕円ミラーと同一の回転楕円面をもつ合成石英マンドレルを高精度に加工し、その形状をミラー材料へと転写することでミラーを形成する。最後にミラー部分をマンドレルから分離し、軟 X 線集光回転楕円ミラーが完成する。マンドレルの材料を化学的に極めて安定な合成石英とし、ミラー材料への形状転写を室温中で行う。本プロセスを採用することで、曲率半径数 mm の高精度な回転楕円面の製作が可能となる。

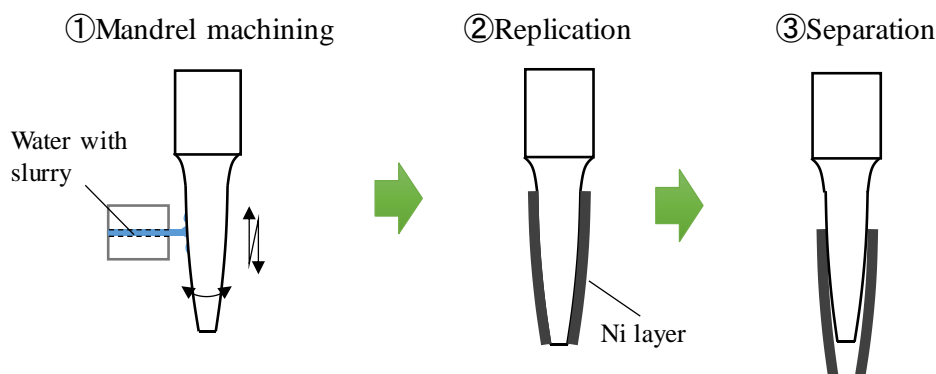


図 1.5 ミラー製作プロセスのイメージ図。回転楕円ミラーと同一の楕円面を有するガラスマンドレルを高精度に加工し、その後マンドレルの周りに電鍍法を用いてニッケルを析出させる。最後に、ミラー部分をガラスマンドレルから剥離する。

### 1.4.1 回転楕円マンドレル加工

形状転写プロセスでは，母型(ここでは合成石英マンドレル)の表面状態が，転写後のミラー形状に強く影響する．高精度回転楕円ミラーを製作するためには，合成石英マンドレルに高い形状精度と RMS 0.3 nm レベルの表面粗さが要求される．

両要求を満たすことを目的とし，Takei らにより Elastic Emission Machining (EEM)法を用いたマンドレルの高精度加工プロセスが開発された<sup>[42]</sup>．EEM 法とは，加工物表面に微粒子を含む粘性流体を供給し，微粒子と加工物表面で起こる化学反応を利用して表面原子を除去するプロセスである．合成石英やシリコンの表面を，表面粗さを悪化させることなく加工することができる．また，長期に渡って極めて安定した加工レートが得られるため，高精度な形状創成加工に適している．本ミラー製作プロセスでは，微細ノズルから粒子を含む流体を加工物表面に噴射する EEM が開発され，マンドレル表面上の任意の位置を選択的に加工できる．

加工後のマンドレル形状は，レーザー変位計を用いて計測される<sup>[44]</sup>．回転テーブルにマンドレルを設置し，マンドレル表面に近接してレーザー変位計を設置する．マンドレルを一回転させながら変位を計測することで，マンドレルの周方向形状を計測する．さらに，レーザー変位計をマンドレルの長手方向に駆動させることで，長手方向の形状を計測する．多断面周方向形状データをコンピュータ上で処理することで，回転楕円マンドレル全体の形状を再構成できる．

形状計測と EEM 加工法を組み合わせた，ガラスマンドレルの高精度加工プロセスが開発され，形状精度 10 nm 程度のマンドレル製作が報告されている<sup>[49]</sup>．

### 1.4.2 電鍍法による形状転写

電鍍法とは，導電性をもつ母型(陰極)と転写先の材料(陽極)をイオン電解液に浸し，両極間に電位差を与えることで金属イオンを母型に析出させるプロセスである．自己の形状を保持できる厚みまで金属層を成長させた後，金属層を母型から分離することで製品となる．電鍍時，転写材料は母型表面と密着しているため，分離した製品の形状は母型の形状を反転した形状となる．

回転楕円ミラー製作プロセスにおいて，母型(陰極)は合成石英製の回転楕円マンドレルであり，転写先の材料(陽極)はニッケルである．ニッケルは軟 X 線領域で比較的高い反射率を示すだけでなく，表面が酸化されにくいという性質を持っており軟 X 線ミラー用材料として適している．

まず，導電性をもたない合成石英マンドレル表面に電子ビーム蒸着装置を用いて厚さ 300 nm 程度のニッケル層を形成する．この際，ガラスとニッケルの間には，バインダーとして数 nm の Cr 層をあらかじめ蒸着しておく．導電処理を施した合成石英マン



ドリルはニッケル電解液に浸され、周囲には3枚のニッケル陽極板が等間隔で配置される。通常のニッケル電鍍では、陰極からの気泡の発生を避けるために電解液を40~60度程度まで加熱するが、電鍍時の温度とミラー使用時の温度(室温)の違いによる分離後の熱変形を避けるために、本プロセスでは室温の電解液を使用している。室温下の電鍍プロセス中に発生する気泡は、プロセス中の周期的な脱気処理等で除去される。また、電鍍速度と電鍍後の製品の内部応力は正の相関をもつことが明らかにされており、電鍍速度は1~2 mA/cm<sup>2</sup>付近に設定される。厚さ1 mm程度のミラーを製作する場合、およそ20日でミラーが完成する。

電鍍後のミラーは、ガラスとの熱膨張係数の違いを利用して分離される。ニッケルの熱膨張係数はガラスよりも高いため、温水で加熱すると回転楕円ミラー内面はガラスマンドレル表面から剥離する。これにより、ミラー自身に荷重を加えることなく、ミラーをマンドレルから分離することができる。以上のような転写プロセスにより、50 nmを上回る形状転写精度が報告されている<sup>[43]</sup>。

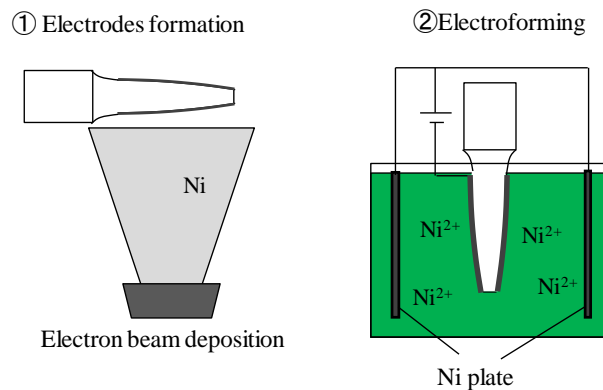


図 1.6 電鍍法によるミラー形成プロセスの概略図。マンドレル表面にNi層を蒸着し、電鍍時の電極層を形成する。その後、Niイオン溶液中で厚み1 mm程度までNi層を電析させる。

## 1.5 本論文の概略

### 1.5.1 本論文の目的

本論文の目的は、高精度回転楕円ミラーを用いた軟 X 線集光技術を確立することである。

まず、回転楕円ミラーの集光性能を理論的に明らかにし、ついで軟 X 線レーザー光源において集光システムを構築する。さらに、回転楕円ミラーの集光性能を理論限界まで引き上げるための軟 X 線極限集光システムを新たに提案する。最後に、新規集光システムの実現に必要な、ミラー形状の高精度化プロセスを開発する。

### 1.5.2 本論文の構成

本論文は、全7章から構成される。

第1章「序論」では、軟 X 線光源、および軟 X 線集光素子の現状を述べ、回転楕円ミラーの特徴や、その加工方法について述べた。

第2章「集光性能の波動光学的解析」では、波動光学シミュレータを開発し、回転楕円ミラーの形状精度と集光性能の関係を定量的に解析する。現状の回転楕円ミラーの形状精度を照らし合わせ、回転楕円ミラーによる軟 X 線集光の実現可能性について述べる。

第3章「高次高調波軟 X 線レーザー集光システムの開発」では、高次高調波軟 X 線レーザー光源を整備し、回転楕円ミラーを用いた軟 X 線集光システムを開発する。集光実験の結果を踏まえて、アト秒パルス集光への適用可能性について議論する。

第4章「軟 X 線自由電子レーザー集光システムの開発」では、X 線自由電子レーザー施設 SACLA の軟 X 線ビームラインにおいて、回転楕円ミラーを用いた軟 X 線集光システムを開発する。高強度 FEL パルスがミラー表面に与える影響を調査し、その結果にもとづいたコンパクトな集光システムを設計、構築する。軟 X 線 FEL を集光することで高強度光電場を生成し、非線形現象の一種である Si の可飽和吸収を観測する。

第5章「軟 X 線極限集光システムの提案と光学設計」では、軟 X 線を波長レベルの領域に集光するための新規軟 X 線集光システムを提案する。光学設計手法を示した後 SACLA の軟 X 線ビームラインを想定した光学設計を示し、光線追跡と波動光学計算により集光性能を示す。

第6章「回転体ミラーの高精度化に関する研究」では、第5章で示した集光システムを実現するために、回転体ミラーの高精度化プロセスを開発する。イオンビームを利用した回転楕円ミラー内面への成膜手法を提案し、実験装置を構築する。基礎実験と形状修正実験を行い、提案手法の有効性を示す。

第7章「総括」では、本論文全体の流れを概観し、今後の展望について述べる。

# 第2章 集光性能の波動光学的解析

---

2.1 緒言 .....	14
2.2 背景 .....	16
2.3 波動光学シミュレータの開発 .....	17
2.4 光学設計と誤差解析の手順 .....	19
2.5 形状誤差解析 .....	21
2.5.1 直径誤差 .....	21
2.5.2 プロファイルの傾斜誤差 .....	23
2.5.3 ランダム成分の誤差 .....	25
2.5.4 加工・計測精度の現状 .....	28
2.6 ミラーの実利用に関する理論的検討 .....	31
2.6.1 アライメント精度の検討 .....	31
2.6.2 全面照明時の必要アライメント精度の見積もり .....	31
2.6.3 部分照明時の必要アライメント精度の見積もり .....	33
2.6.4 ミラー姿勢制御方法 .....	33
2.7 結言 .....	34

---

## 2.1 緒言

集光素子の役割は、発散球面波を収束球面波に変換し1点に集めることである。集光サイズの下限値は回折限界と呼ばれ、光の波動性を考慮した干渉効果を考えることにより導かれる。簡単なモデルとして、図 2.1(a)のような角度  $\theta$  で交わる平面波の干渉を考える。二光束の交わる領域において、干渉縞が発生する。干渉縞の間隔は、 $\lambda/(2n\sin\theta)$  となり、この値よりも小さい干渉縞は生成されない。ここで、 $n$  は媒質の屈折率である。このモデルを収束球面波の集光点における干渉へと拡張すると回折限界の式が導かれ、集光点における最小集光サイズを計算することができる<sup>[50]</sup>。

$$D = 0.61 \times \frac{\lambda}{n\sin\theta} \quad (2.1)$$

回折限界を実現するための必要条件は、収束球面波の位相が集光点において完全に揃っていることである。回転楕円ミラーの場合、楕円関数の性質から、1つの焦点から発した光はミラー面で反射し、もう一つの焦点に集光する。この時、各光線の光路長は同一となる。

しかしながら、ミラー表面に凹凸が存在すると、その大きさに応じて波面が乱れる。例えば図 2.2 のように、ミラー表面に高さ  $h$  のバンプ形状がある場合、斜入射角度  $\varphi$  で入射した光の位相は、バンプがない場合と比較して、次式で計算される量  $A$  だけ変化する。

$$A = 2h\sin\varphi \quad (2.2)$$

等位相面からの波面の変化を、波面収差と呼ぶ。回折限界集光性能の基準として、Reyleigh 基準が知られている<sup>[50]</sup>。Reyleigh 基準によると、波面収差の大きさが  $1/4 \lambda$  以下である時、光学素子の集光サイズや結像における空間分解能のが維持される。

$$A \leq \frac{1}{4}\lambda \quad (2.3)$$

式(2.2)、(2.3)から、X線ミラーに求められる形状誤差の閾値を見積もることができる。例えば、軟X線の波長  $\lambda$  を 10 nm、斜入射角度  $\varphi$  を 140 mrad とすると、Reyleigh 基準を満たすためにはバンプ高さ  $h$  は約 10 nm 以下でなければならない。X線ミラーの必要形状精度はシングルナノメートルレベルと、非常に高いことが示唆される。

回転楕円ミラーはこれまでに実用化されていない新規軟X線集光素子である。形状誤差が集光性能に与える影響について詳細に調査された例は少ない。“ミラーの形状精度をどのレベルまで高めればいいのか”，または“加工・計測プロセスはどのレベルまで高度化する必要があるのか”という情報は、回転楕円ミラーの実用化を目指すにあたり、重要である。

本章の目的は、回転楕円ミラーの形状誤差が集光性能に与える影響を定量的に明らかにし集光システムの開発方針を示すことである。本章では下記の流れに沿って議論を進める。

①形状誤差の集光性能への影響を定量的に解析するために、回転楕円ミラーに特化した波動光学シミュレータを開発する。

②回転楕円ミラーに生じうる形状誤差を系統的に分類し、各誤差の影響を解析する。得られる結果から、誤差に対して定量的な基準を設定する。

④得られた結果と現状のミラーの形状精度を考慮し、回転楕円ミラーを利用した軟X線集光の実現可能性について議論する。

⑤ミラーの実利用を想定し、ミラーの姿勢制御における必要な回転精度を波動光学シミュレータにより解析する。

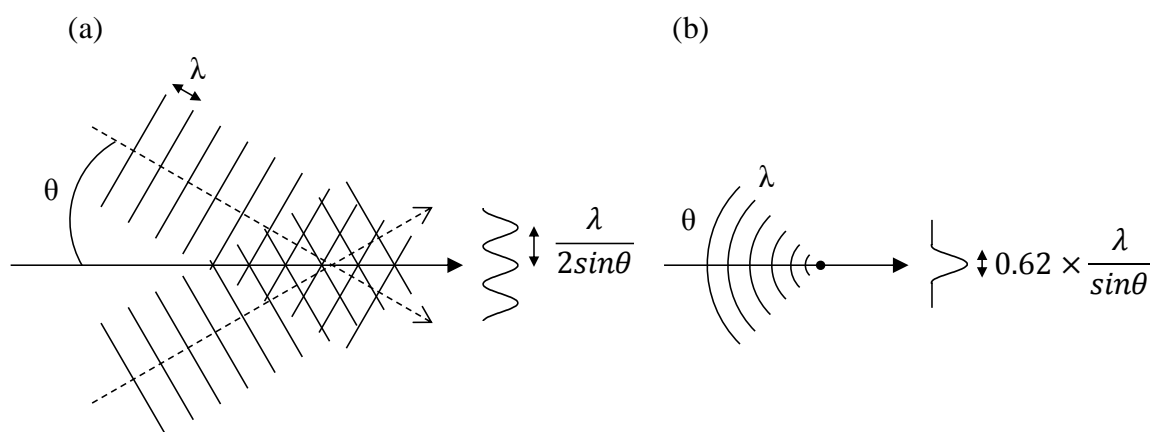


図 2.1(a)二光束干渉と(b)収束球面波の干渉のイメージ図。二光束干渉の干渉縞ピッチは、計算モデルから計算できる。二光束干渉を収束球面波の干渉へと拡張し、詳細な解析を行うと、干渉縞ピッチよりもわずかに大きな値として、回折限界の式が導かれる。

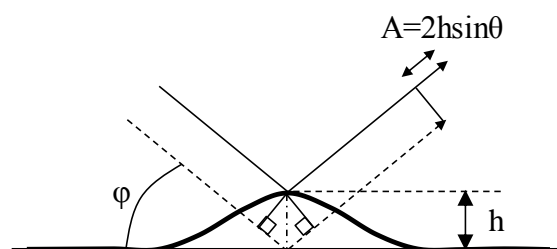


図 2.2 ミラー表面にバンプ形状がある場合の光線の反射のイメージ図。高さ  $h$  のバンプで反射した光は、 $2h\sin\theta$  分だけ位相が変化する。この位相差が波面収差の原因となる。

## 2.2 背景

形状誤差の影響を定量的に見積もるために、形状誤差を有する回転楕円ミラーを仮定してシミュレーションを行い、与えた形状誤差の大きさと集光プロファイルの関係をもとめる。その結果にもとづいて形状精度の影響を判断する必要がある。

光の伝播シミュレーションは、幾何光学的アプローチと波動光学的アプローチに大別される。図 2.3(a)幾何光学的アプローチでは、反射・屈折を考慮して光線の伝播方向を計算し、集光点における光線の散らばりを評価する<sup>[51]</sup>。回転体ミラーの一つである Wolter ミラーの結像特性評価を、光線追跡によって行った例が報告されている<sup>[52], [53]</sup>。比較的短い計算時間で光学素子の性能を理論的に明らかにできるが、回折の影響を考慮することができない。

一方、波動光学的アプローチでは、回折や干渉現象を考慮できる。硬 X 線領域では、波動光学計算による KB ミラーの集光性能評価が報告されている<sup>[54], [55]</sup>。繰り返し計算が多く計算時間が長くなるが、集光プロファイルを正確に予測できる。特に、軟 X 線レーザーを想定する場合、回折現象を考慮する必要がある。

以上の背景から、本研究では波動光学的アプローチに則った計算手法を採用した。

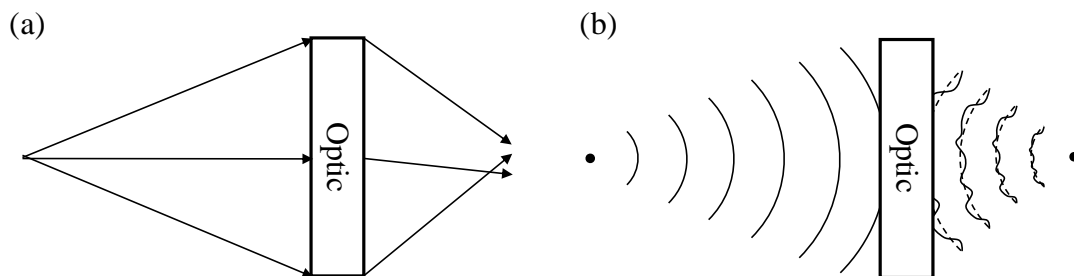


図 2.3(a)幾何光学的アプローチと(b)波動光学的アプローチのイメージ図。幾何光学の場合は、光学素子の形状誤差は、光線の向きのズレとして現れる。素子の性能は、焦点面での光線分布の散らばりとして評価される。波動光学の場合、形状誤差は波面収差として現れる。収差を含む波面が形成する回折像を計算することで、回折の影響を考慮した計算が可能となる。

## 2.3 波動光学シミュレータの開発

本章では、形状誤差を含んだミラーの集光性能を予測するために、独自に波動光学シミュレータを開発した。

計算の流れを述べる。まず、光源から伝播したミラー表面の波動場分布  $u(P_s)$  を回折積分により計算する。図 2.4 に示すようにミラー表面は円周方向に  $M$  分割、長手方向に  $N$  分割されており、 $P_s (0 < s < M \times N)$  はミラー面上で分割された各セクションの位置を表す。円周方向には等角度ピッチ、長手方向には等距離ピッチで分割されている。振幅  $U_0$  を有する光源が、距離  $r_1(s)$  離れたミラー面上の位置に形成する波動場は、式 (2.4) により計算される。

$$u(P_s) = U_0 \frac{\exp[ikr_1(s)]}{r_1(s)} \quad (2.4)$$

ここで、 $k$  と  $i$  はそれぞれ光の波数と虚数を表す。

次に、ミラー面上の波動場を焦点面に伝播させる。幾何光学的には、ミラー面上のある 1 点で反射した光は焦点面内で 1 点の交点をもつ。波動計算ではミラー各点の波動場が、焦点面全体に伝播すると仮定する。焦点面上の座標はマトリクス状に分割されており、焦点面座標  $F_t$  における波動場分布は、次式で計算される。

$$u(F_t) = \sum_s C(P_s) u(P_s) \frac{\exp[ikr_2(s, t)]}{r_2(s, t)} \quad (2.5)$$

ここで、 $F_t$  は焦点面上の位置、 $r_2(s, t)$  は  $P_s$  から  $F_t$  までの距離、 $C(P_s)$  はミラー上の各点における面積比・反射率を規格化するために導入する係数である。各点の円周方向半径に応じて面積が変化するため、 $C(P_s)$  内で面積の違いによる影響を規格化している。最終的に算出された波動場の実部と虚部の二乗和を計算することで、焦点面上の強度分布を計算できる。

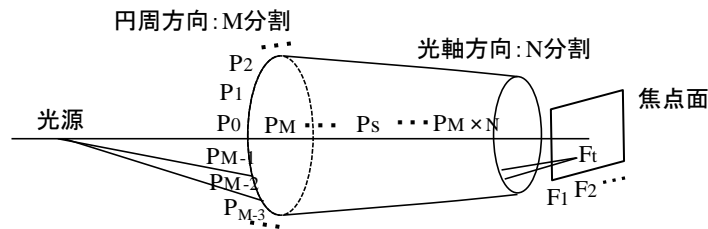


図 2.4 波動光学シミュレータにおける計算モデル。回転楕円ミラーは周方向・長手方向にそれぞれ等角度・等距離ピッチで分割され、焦点面もマトリクス状に分割されている。光源からミラー面上、ミラー面上から焦点面上の順に波動場を伝播させる。

本シミュレータにおいて形状誤差は半径方向に入力する。直交座標系  $xyz$  空間上で  $z$  軸を光軸とした場合、楕円パラメータである長軸  $a$  と短軸  $b$  を用いることで、ある  $z$  座標における  $xy$  平面内のミラー断面半径  $R(z)$  が計算される。動径方向の回転角度

$\theta$  ( $0 \leq \theta < 2\pi$ )を定めることで回転楕円ミラーの形状を表すことができる. この際半径方向のミラー誤差を  $R_{error}(z, \theta)$ とし, ミラー形状計算時の半径を  $R(z) \rightarrow R(z) + R_{error}(z, \theta)$ とすることで, 任意の誤差をミラー面上に与えることができる.

$$R(z) = b \sqrt{1 - \frac{z^2}{a^2}} \quad (2.6)$$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \{R(z) + R_{error}(z, \theta)\} \cos \theta \\ \{R(z) + R_{error}(z, \theta)\} \sin \theta \\ z \end{pmatrix} \quad (0 \leq \theta < 2\pi) \quad (2.7)$$



## 2.4 光学設計と誤差解析の手順

開発した波動光学シミュレータを用いて軟 X 線集光プロファイルを計算する。本論文では、波長 10 nm 前後の軟 X 線を想定しているため、シミュレーションに使用する波長も 10 nm とした。図 2.5 に、波長 10 nm の光に対する Ni, Ru 表面からの反射率の斜入射角度依存性を示す。現状の製作プロセスでは回転楕円ミラーの表面材質は Ni に限られているため、本章では Ni 表面を仮定してシミュレーションを行っている。Ni の反射率は斜入射角度の増大に応じてなだらかに低下していくが、140 mrad 付近で反射率は 50% を下回る。十分なスループットを確保するために、最大斜入射角度は 140 mrad とした。ミラーのワークディスタンスは 10 mm とした。回転楕円ミラーの直径は 5~10 mm であり、マンドレルの加工が十分可能な形状である。

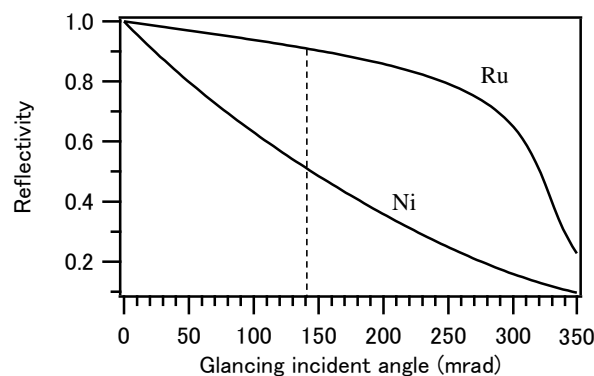


図 2.5 Ni と Ru 表面に波長 10 nm の光が入射した場合の、斜入射角度と反射率の関係を示したグラフ。現状の回転楕円ミラー製作プロセスではミラー材料は Ni に限られているが、軟 X 線領域における高反射率材料として Ru が知られている。

ミラーパラメータを表 2.1 にまとめる。ワークディスタンスと回転楕円ミラーの下流直径から、回折限界集光サイズは 22.1 nm と計算される。一方で、図 2.6 に示すように、波動光学シミュレータにより計算された集光サイズは 19.4 nm であり、回折限界サイズと概ね一致している。

本節において形状誤差解析は次の流れに沿って行う。

- ① 回転楕円ミラーに誤差を入力する。
- ② 誤差を変化させながら波動光学シミュレータで集光性能を計算する。
- ③ 集光プロファイルのピーク値を理想値と比較し、誤差の許容値を決定する。

ここで、必要形状精度の評価のために **Strehl ratio** を導入する。これは、図 2.7 に示すように、“理想ミラーが形成する集光プロファイルのピーク強度”に対する、“形状誤差を含むミラーが形成する集光プロファイルのピーク強度”の割合である。この定義から、**Strehl ratio** は 0~1 の間の値を取りうる。**Strehl ratio** が 1 の場合、そのミラーは理想集光ミラーである。**Reyleigh** は、波面収差が波長の 1/4 以下である場合、**Strehl ratio**

の低下は 20%程度であることを示した. すなわち, **Strehl ratio** が 0.8 を超えている場合, 波面収差による光学素子の性能の低下は無視できると判断する. 本章ではこの基準を採用し, **Strehl ratio** が 0.8 となる場合の誤差の値を, その形状誤差の許容値とする. **Strehl ratio** の低下は入射した光エネルギーの散乱を意味するため, 集光サイズだけではなくビーム利用効率も考慮している. そのため, 集光サイズを基準とした評価よりも, **Strehl ratio** を基準とした評価の方が, より適切である.

表 2.1 シミュレータに入力した回転楕円ミラーの光学パラメータ

パラメータ	値
長軸 (mm)	250.2
短軸 (mm)	9.95
ワークディスタンス (mm)	10
最大斜入射角度 (mrad)	140
ミラー長さ (mm)	50
上流開口直径 (mm)	12.95
下流開口直径 (mm)	5.62

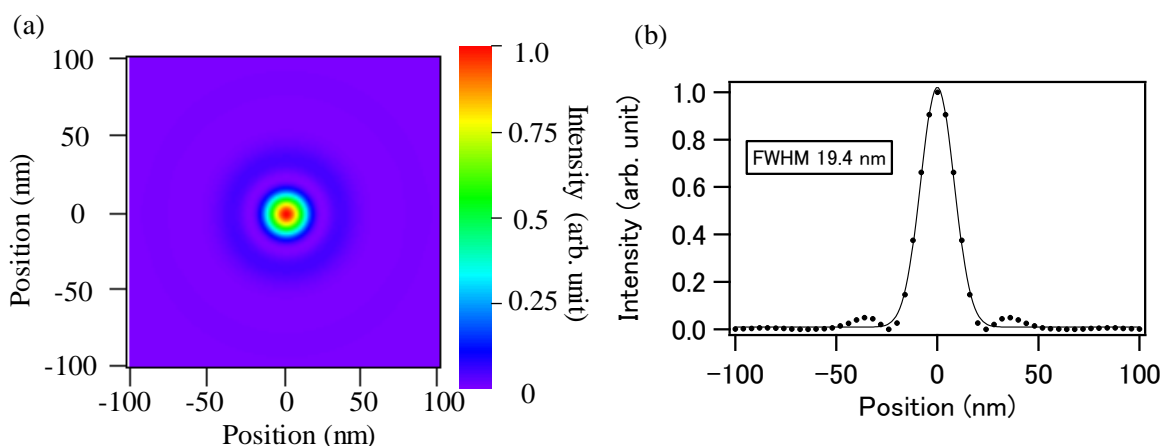


図 2.6 設計した回転楕円ミラーの集光シミュレーションの結果. (a)は 2次元強度プロファイル, (b)は集光点における強度プロファイルの断面グラフを示している. 集光サイズは半値幅で 19.4 nm となる.

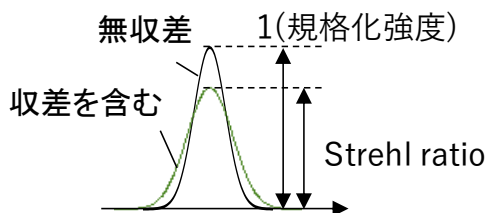


図 2.7 Strehl ratio の定義を示した図.

## 2.5 形状誤差解析

回転楕円ミラーの形状は、長手・円周・半径方向成分によって特徴づけられる。このうち、長手方向の形状誤差プロファイルは設計楕円からの偏差として、円周方向の形状誤差プロファイルは真円からの偏差として計測される。半径方向の成分が、直径誤差となる。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軸対称ミラーであるため、長手方向・円周方向の形状は、直径の寸法精度に依存しない。例えば、ミラー直径の値が半径方向に一様に変化したとしても、楕円プロファイルの形は設計値から変化せず、円周方向の形状も真円のままである。

以上の特徴を踏まえて、回転楕円ミラーに生じうる形状誤差を、「半径方向の誤差(長手・円周方向の形状は変化しない)」と「長手方向・円周方向の形状誤差」に大別して誤差解析を行う。半径方向の誤差はさらに「①直径誤差」、「②プロファイル傾斜誤差」の2種類に小別する。長手方向・円周方向の形状誤差は、表面に現れる凹凸構造「③ランダム誤差」と定義する。それぞれの誤差を波動光学シミュレータに入力して集光プロファイルを計算した後、**Strehl ratio** を基準として各誤差の許容値を決定する。

### 2.5.1 直径誤差

図 2.8 に示すようなミラーの半径方向に一様なオフセットが生じる誤差を、直径誤差と定義する。オフセット量を  $\delta$  と表し、径が太くなる方向を正、細くなる方向を負と定義する。ミラー製作プロセスにおいて直径の測定精度に起因する誤差である。

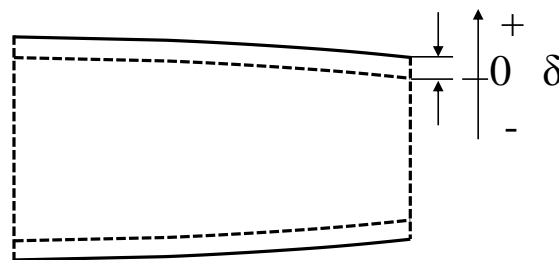


図 2.8 直径誤差の定義を表した図。図中破線部分が理想的な楕円プロファイルを表しており、実線部分が直径誤差を含むプロファイルを示す。オフセットはミラー全体に一様に加えられ、オフセット量は変数  $\delta$  として取り扱う。

波動光学シミュレーションを行う際、形状誤差以外の影響を取り除く必要がある。図 2.9 に回転楕円ミラーの断面プロファイルを示す。破線が元の楕円プロファイル・実線が直径誤差を含むプロファイルを示している。

直径誤差を含むプロファイルの場合、誤差の量に応じて最も集光サイズが小さくな

る光源，焦点，ミラー間の位置関係が変化する．最適な光源位置と焦点位置は，直径誤差を含むプロファイルに，偏差が最小となるような別の楕円プロファイルをフィッティングすることで計算できる．フィッティングされた楕円プロファイルの2焦点が，直径誤差を含むミラーの最適な光源位置と焦点位置となる．図 2.10 に直径誤差を含む楕円( $\delta=375$  nm)とフィッティングした楕円との偏差を示す．楕円からの偏差は Peak-to-Valley (PV) 20 nm 程度となっている．入力した直径誤差  $\delta=375$  nm に対して，直径誤差を含むミラーのプロファイルの楕円からの偏差は 10 分の 1 以下となる．



図 2.9 楕円フィッティング操作の概念図．破線が直径誤差のない( $\delta=0$ )の場合のミラーのプロファイル，実線が直径誤差の存在する( $\delta>0$ )場合のミラーのプロファイル，1点破線が  $\delta \neq 0$  の場合のミラープロファイルにフィッティングした楕円関数を示す．波動光学シミュレーションでは，フィッティングした楕円の2焦点を光源点と集光点とする．

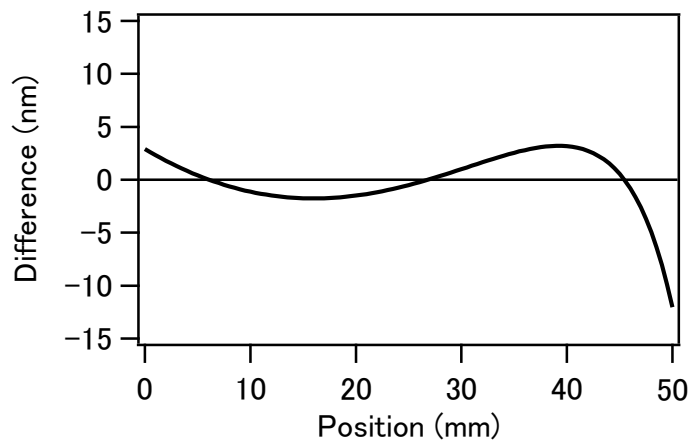


図 2.10 直径誤差を含むミラーのプロファイルとフィッティングした楕円プロファイルとの偏差の例． $\delta=375$  nm 時のデータを掲載している．フィッティング操作により，実質的な形状誤差(楕円形状からの偏差)が，入力した誤算の 1/10 以下にまで低減されていることがわかる．

$\delta$  の値を  $-2500$  nm  $\sim$   $2500$  nm まで段階的に変化させながら，シミュレーションを実施した．この範囲の直径誤差はミラー半径  $5\sim 10$  mm に対して十分小さい．フィッティングした楕円の焦点に集光点を一致させたとしても，焦点距離の変化は  $100$   $\mu$ m 以下である．そのため，焦点距離の変化により回折限界集光サイズは大きく変化しない．図 2.11 に代表的な集光プロファイルの計算結果を示す．ピーク強度は  $\delta$  の値に応じて低下している．これは，直径誤差の存在により，等位相で収束するはずだった光の波面が乱れたためである．

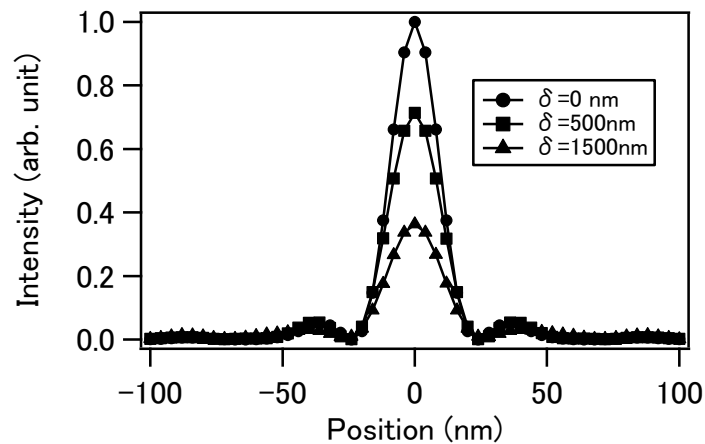


図 2.11  $\delta=0 \mu\text{m}$ ,  $\delta=1.5 \mu\text{m}$  の場合の集光プロファイル, および断面プロファイルを示す.  $\delta$  の増加量に応じてピーク強度が低下する.

横軸に  $\delta$  と Strehl ratio, 楕円からの偏差をプロットしたグラフをそれぞれ図 2.12 に示す. このグラフからわかる通り,  $\delta$  の絶対値が等しければ,  $\delta$  の正負に関わらず同程度のピーク強度の低下が見られる. また,  $\delta=\pm 375 \text{ nm}$  付近で Strehl ratio が 0.8 程度となった. そのため, 直径誤差の許容値は  $\delta=\pm 375 \text{ nm}$  とした.

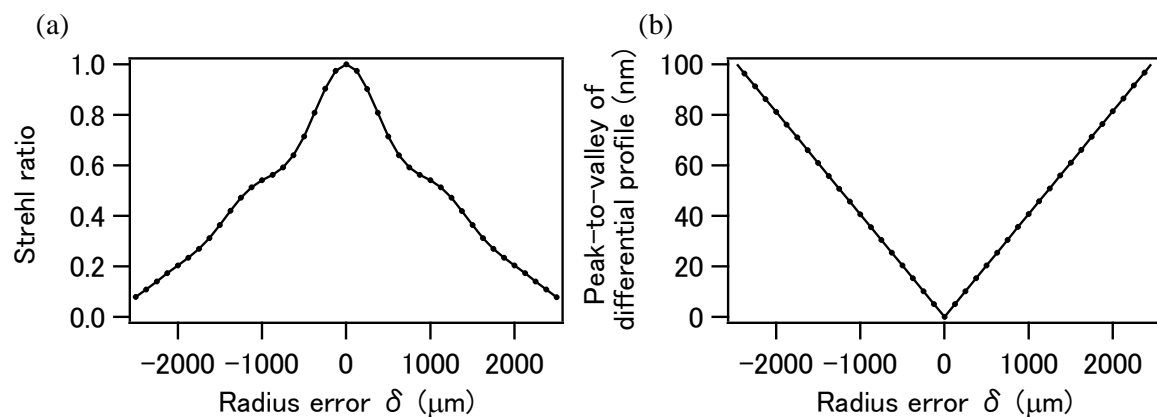


図 2.12  $\delta$  に対する (a) Strehl ratio, (b) 楕円からの偏差をプロットしたグラフ. ピーク強度は  $\delta$  の正負にかかわらず, 増加量に応じて同様の低下傾向を示す.  $\delta=\pm 375 \text{ nm}$  付近で Strehl ratio は 0.8 まで低下する.

## 2.5.2 プロファイルの傾斜誤差

ミラーの半径プロファイルの中心を回転軸として, 図 2.13 に示すようなプロファイル全体が傾斜した誤差を, 傾斜誤差と定義する. 本節では傾斜角度を  $\theta$  と定義し, 傾斜誤差を含む半径プロファイルを光軸に関して一回転させたものが, 傾斜誤差を含む回転楕円ミラーの形状となる.

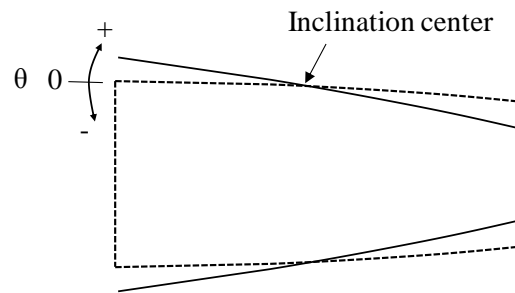


図 2.13 プロファイル傾斜誤差の定義を示す図. 半径プロファイルをプロファイル中心周りにして回転させたものとして定義する. 上流開口サイズが大きくなる方向を正, 小さくなる方向を負と定義する.

直径誤差と同様, プロファイルの傾斜誤差を含む形状も別のパラメータを持つ楕円関数へのフィッティングを行う. 傾斜誤差  $5 \mu\text{rad}$  を含むミラーの半径プロファイルを考える. 傾斜誤差が存在する場合, ミラーの最下流, 最上流にける半径方向成分は,  $\theta \times ML/2$  分だけ変化する. 今, ミラー長さは  $50 \text{ mm}$  としたため, 上流, 下流開口の半径成分の差は,  $250 \text{ nm}$  となる. 図 2.14 のフィッティングされた楕円からの偏差グラフでは, 偏差は  $14 \text{ nm}$  程度となっている. 直径誤差と同様, 傾斜誤差の場合もフィッティング操作により楕円からの偏差が大きく抑えられていることがわかる. 傾斜誤差に関しても, フィッティング後の楕円の2焦点に光源点と集光点を一致させた状態でシミュレーションを行う.

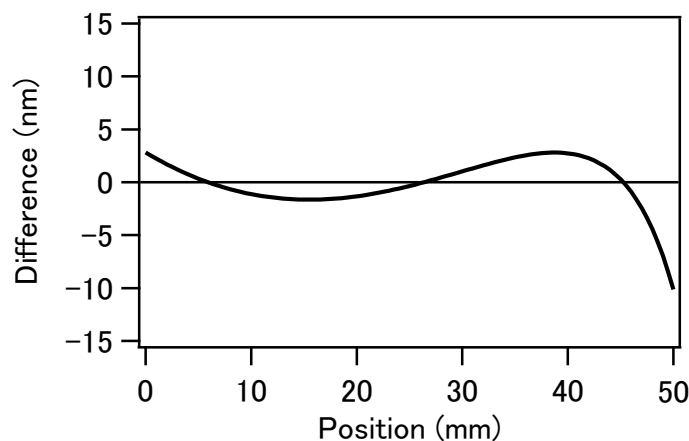


図 2.14 傾斜誤差  $5 \mu\text{rad}$  が存在する場合のミラーの形状にフィッティングした楕円からの偏差グラフ. 元の楕円からは半径方向に  $250 \text{ nm}$  形状が変化しているが, フィッティングした楕円からは  $14 \text{ nm}$  程度しか偏差が存在しない.

傾斜誤差  $\theta$  を,  $-25 \sim 25 \mu\text{rad}$  まで段階的に変化させながらシミュレーションを実施した. 図 2.15 に傾斜誤差が存在する場合の強度プロファイルを示す. グラフからは, 波面収差の影響により集光強度のが低下している. 図 2.16 に, 横軸を  $\theta$ , 主軸を Strehl

ratio, 副軸をフィッティングした楕円からの偏差をプロットしたグラフを示す. 直径誤差と同様,  $\theta$  の絶対値が等しければ, 正負に関わらず同程度の集光性能となっている. グラフから  $\theta = \pm 5 \mu\text{rad}$  のときに Strehl ratio が 0.8 まで低下しているため,  $\theta = \pm 5 \mu\text{rad}$  をプロファイル傾斜誤差の許容値とした.

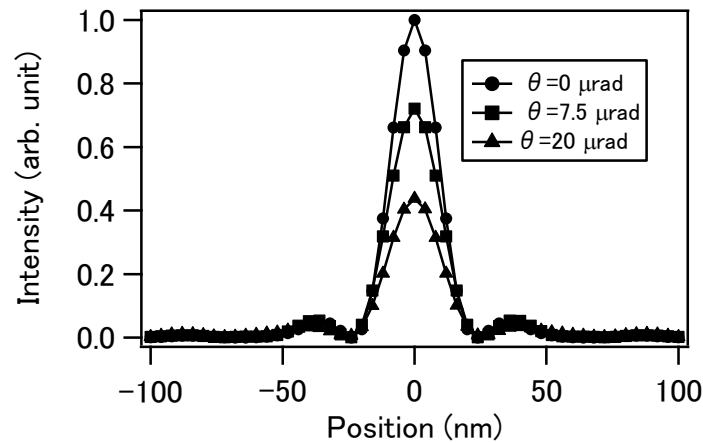


図 2.15  $\theta = 0, 7.5, 20 \mu\text{rad}$  の場合の集光プロファイル.  $\theta$  の増加に伴い, ピーク強度が低下する.

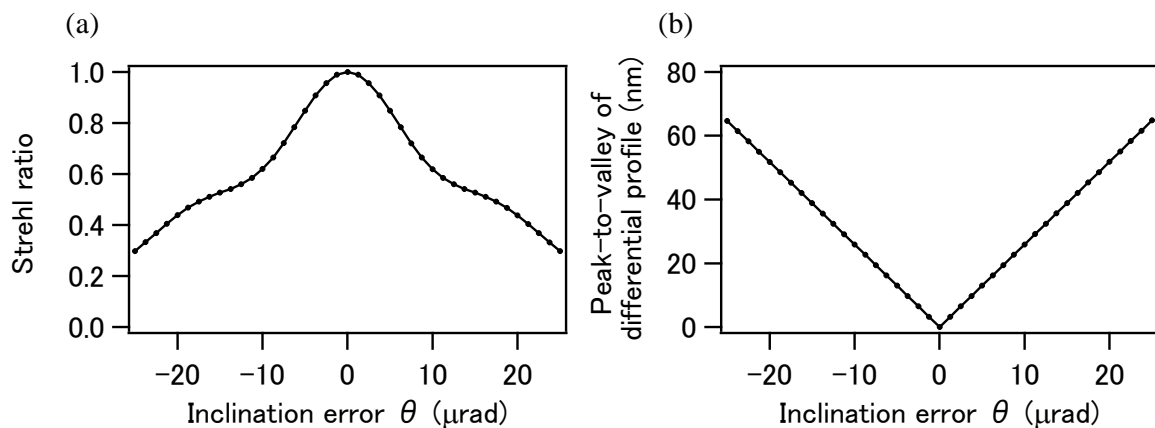


図 2.16  $\theta$  に対する (a) Strehl ratio, (b) 楕円からの偏差をプロットしたグラフ直径誤差と同様,  $\theta$  の正負に関わらず誤差の絶対値に応じて, 同様のピーク強度低下が見られる.  $\theta = \pm 5 \mu\text{rad}$  で, Strehl ratio は 0.8 まで低下する.

### 2.5.3 ランダム成分の誤差

直径誤差, 傾斜誤差は, 長手方向・円周方向形状が変化しない一様な誤差であった. 次に, 長手方向・円周方向の形状が変化するランダム誤差の影響を解析する. ミラー表面に生じる凹凸形状の誤差をランダム誤差として定義する.

ランダム誤差は空間波長成分 (凹凸の細かさ) で分類することができる. 短い空間波長成分の誤差は, 反射した光の局所的な激しい位相変化を招くが, 長波長成分の波

面形状には影響しない．一方で，長い空間波長成分の誤差は，反射光の波面全体をゆるやかに変化させる．このため，空間波長成分毎にランダム誤差が集光性能に与える影響は異なる．ここでは，ランダム誤差を空間波長成分の長さに関して3種類に分類し，それぞれについて誤差解析を行った．

図 2.17 に示すようにガウシアン関数を利用してランダム誤差を生成する．ガウシアン関数は，標準偏差  $\sigma$  を指定することで，バンプの幅（空間波長成分に相当）を制御することが可能であり，中心から離れるに従って値は0に漸近する．この特徴を活かし，ランダムな幅と高さをもつガウシアン分布をランダムな位置に入力することで，ランダム誤差を生成する．具体的には，次式をランダム関数として入力する．

$$\text{error}(x,y) = \sum_n p_h(n) \exp \left\{ -\frac{(x - p_x(n))^2}{p_{xs}(n)^2} - \frac{(\theta - p_\theta(n))^2}{p_{\theta s}(n)^2} \right\} \quad (2.8)$$

ここで， $p_h(n)$ は入力するガウシアン関数のピーク値， $p_x(n), p_\theta(n)$ は，ガウシアン関数の中心座標， $p_{xs}(n), p_{\theta s}(n)$ は，それぞれ  $x$  方向， $\theta$  方向における標準偏差を意味する．

上記パラメータのうち，異なる空間波長成分のランダム誤差による影響を独立に調査するため，標準偏差は表 2.2 に示すように3種類に分類して入力した．なお，本節の解析では，計算毎に新たに乱数を生成している．

図 2.18 に，生成したランダム誤差の例を示す．入力するガウシアン関数の標準偏差の違いにより，生成されるランダム誤差の凹凸の細かさに違いが生じている．

表 2.2 ランダム誤差解析において入力したガウシアン関数の標準偏差の範囲

空間波長成分	標準偏差の範囲
短波長成分	0.4 ~ 0.7 mm
中波長成分	0.8 ~ 1.5 mm
長波長成分	3.0 ~ 4.0 mm

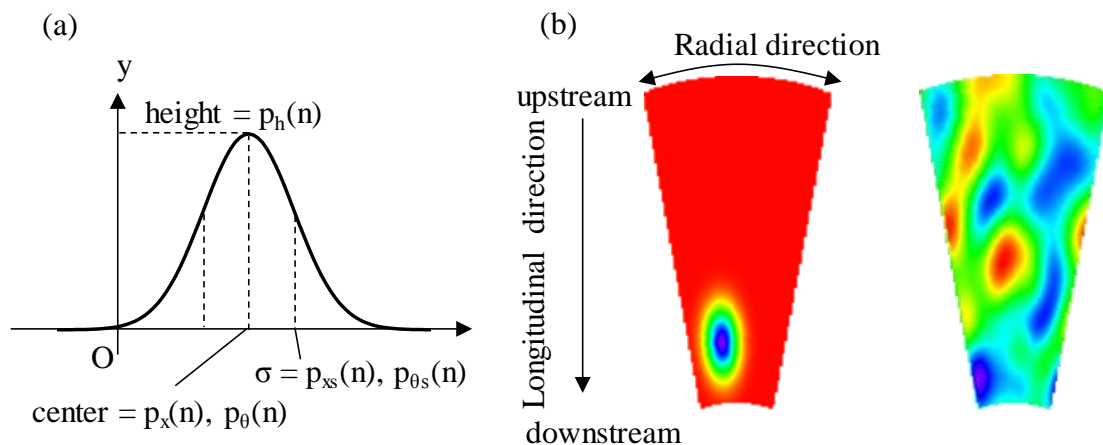


図 2.17(a)ランダム誤差を生成するために入力する5変数を表した図と(b)ガウシアン分布を多数入力することでランダム誤差が生成される様子．



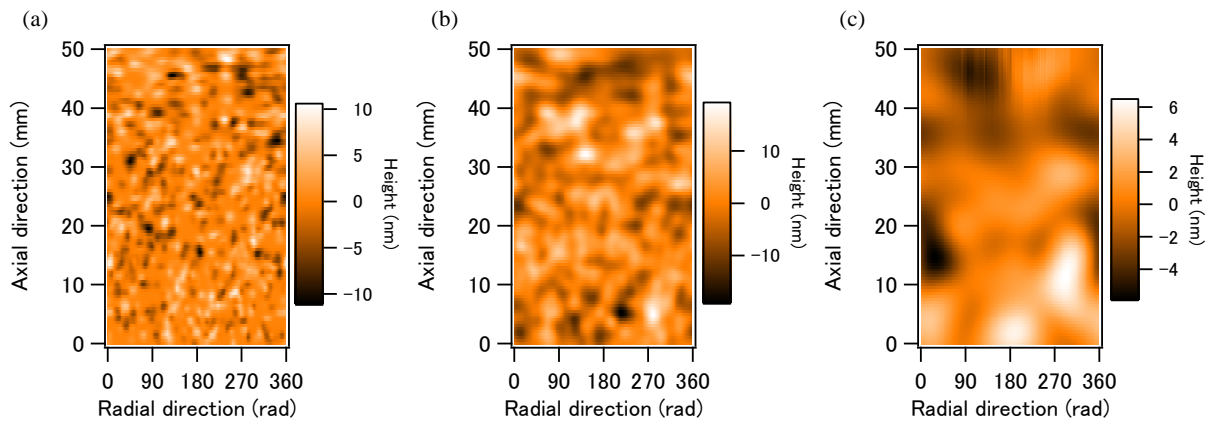


図 2.18 (a)短波長成分, (b)中波長成分, (c)長波長成分のランダム誤差の例. 入力するガウシアン形状の幅を変えることで, 生成されたランダムプロファイルの空間波長成分を制御できる.

図 2.19 に異なる空間波長成分のランダム誤差が集光性能に与える影響の違いを示す. 短波長成分と長波長成分のランダム誤差を入力した場合の, シミュレーション結果を示す. 短い空間波長成分の場合, 集光プロファイルの回転対称性が壊れて保存され, 集光位置は元の位置から変化していない. 一方で, 長い空間波長成分の場合にはサブピークの強度が相対的に強くなり, さらに集光点位置も元の位置から移動している.

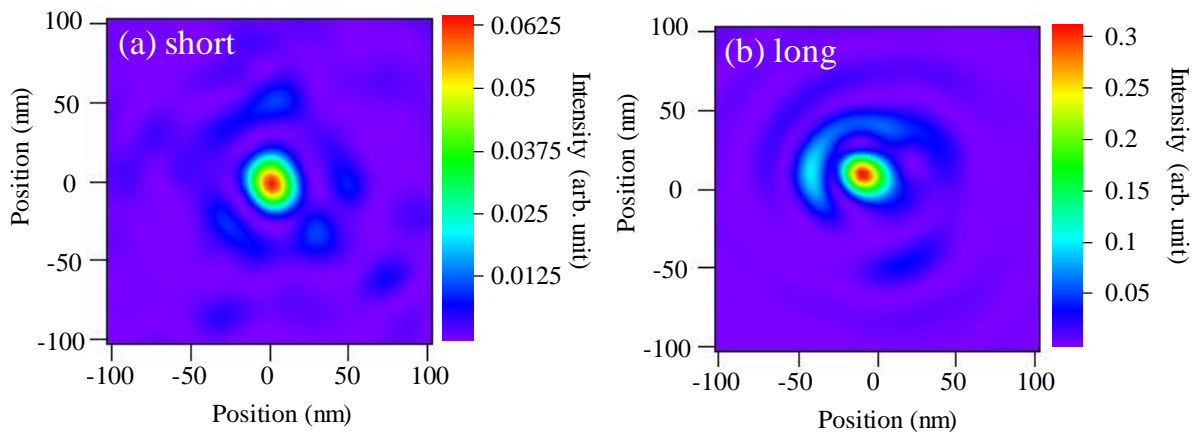


図 2.19 (a)短波調成分と(b)長波長成分のランダム誤差を入力した場合の集光プロファイル計算例. 短波長成分では全体の強度が低下しているのに対して, 長波長成分の場合, ゆるやかな波面誤差に起因する集光位置の変化が顕著である.

図 2. 20 に、Strehl ratio とランダム誤差の PV 値の関係を表したグラフを示す。誤差の大きさに対する Strehl ratio の低下率は、空間波長成分が長いほど大きいことがわかる。しかしながら、Strehl ratio が 0.8 以下となるのは、いずれの空間波長成分の場合も 25 nm 付近であるため、ランダム誤差の許容値は 25 nm とした。

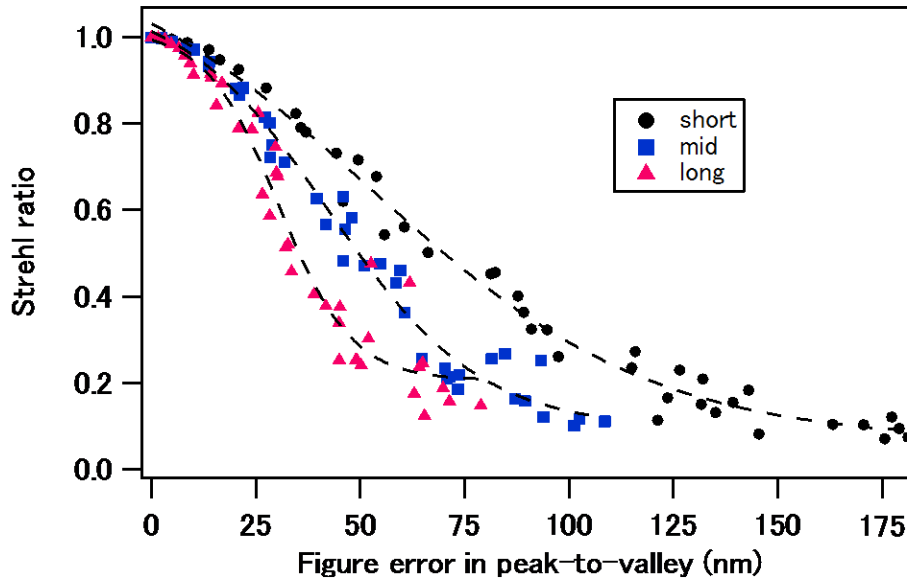


図 2. 20 Strehl ratio を，入力したランダム誤差の PV 値に対してプロットしたグラフ。長波長成分の方が Strehl ratio が低下する割合が大きい。

### 2.5.4 加工・計測精度の現状

本節で行った誤差解析の結果を表 2.3 にまとめる。直径誤差・プロファイル傾斜誤差の許容値はそれぞれ、 $\pm 375$  nm,  $\pm 5\mu\text{rad}$ (半径方向成分に換算すると $\pm 250$  nm)であった。回転楕円マンドレルおよび回転楕円ミラーの直径を 100 nm の精度で計測する必要があるが、現状そのような計測プロセスは開発されておらず、ミラーの寸法精度については未評価である。

ランダム誤差の許容限界値は、PV 25 nm であった。第 1 章で述べたように、マンドレル加工に特化した、高精度加工・計測法が開発された。円周方向・光軸方向プロファイルともに、シングルナノメートルの精度で加工できる。しかしながら、ミラー材料への形状転写時に生じるたわみの影響で、全体形状精度は 100 nm レベルにとどまっている。

これらの現状をふまえ、回転楕円ミラーの部分照明利用について検討した。図 2.21 に示すように、ミラーの全面ではなく長手方向 1 ラインを部分的に照明する場合、照明領域の形状のみが必要精度を満足していればよい。現状の回転楕円ミラーの長手方向 1 ラインに注目した場合の形状精度は 20 nm であり、必要精度を満足している。また、部分照明条件ではミラーの実質的な形状は回転体ではなくなるため、半径方向成

分の誤差もほとんど無視することができる。以上の考察のもと、現状の回転楕円ミラーを使用する場合、部分照明条件下での軟 X 線集光が現実的であると判断した。

開口数が小さくなるため回折限界サイズは大きくなるが、既存の斜入射集光素子よりも小さな集光サイズを実現することができる。これは、回転楕円ミラーの焦点距離が既存の斜入射集光素子と比較して極端に短く設計されているからである。斜入射集光素子の場合、焦点距離が短いと曲率半径が小さくなり加工が困難となるが、第一章で示した回転体ミラー製作プロセスを採用することで曲率半径が数 mm の高精度な回転楕円面を加工することができる。以上の理由から、回転楕円ミラーの集光素子としての優位性は失われない。例えば、本章における回転楕円ミラーを直径 2mm の軟 X 線で部分照明した場合、図 2.22 に示すように、波長 10 nm の軟 X 線を 200 nm に集光することができる。

本論文第 3 章, 第 4 章では, 回転楕円ミラーを利用した集光システムを開発するが, いずれも部分照明条件によるものである。

表 2.3 形状誤差解析の結果

誤差の種類	許容限界値
直径誤差	$\pm 375 \mu\text{m}$
プロファイル傾斜誤差	$\pm 5 \mu\text{rad}$
ランダム誤差	PV 25 nm

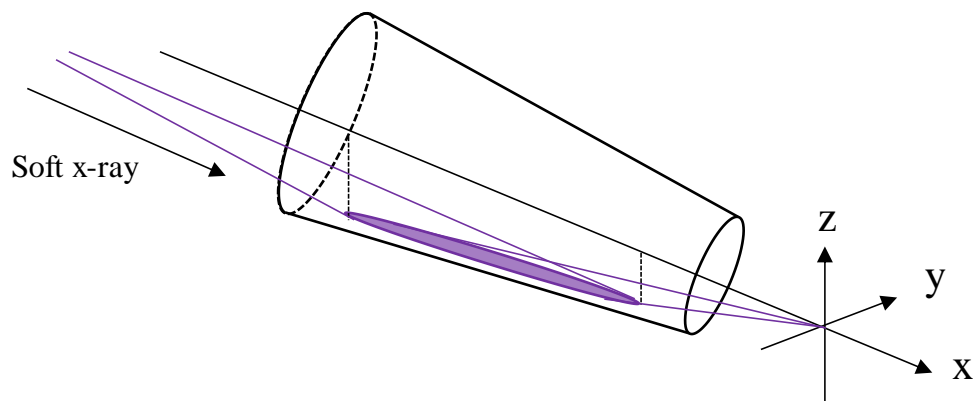


図 2.21 回転楕円ミラーを部分照明条件下で使用する場合の照射方法を表した図。ミラー面でのビームフットプリントは、長手方向に細長いものとなる。この場合、集高性能に影響するのは、照明領域の長手方向における形状精度のみであり、径方向の絶対精度は影響しない。

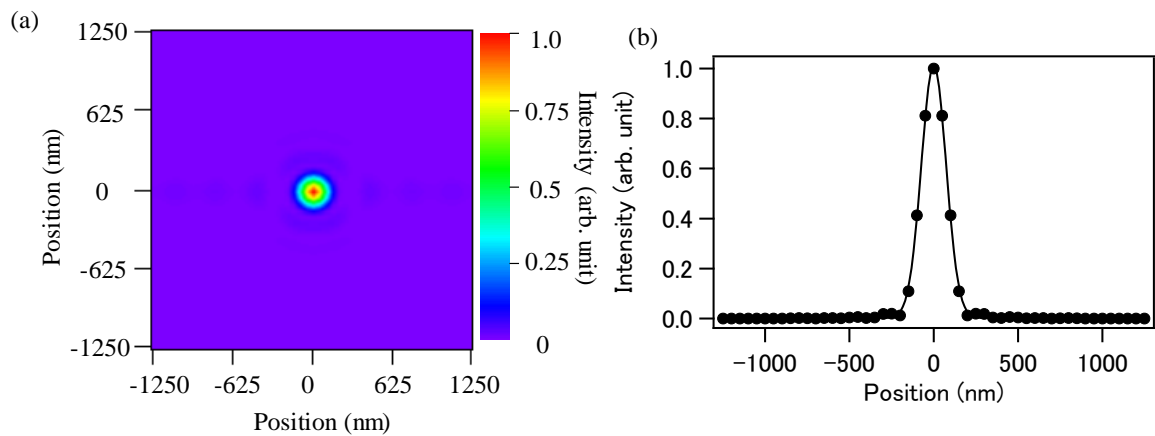


図 2.22 波長 10nm, 直径 2mm の軟 X 線を回転楕円ミラーの 1 ラインに部分照明した場合の (a)二次元集光プロファイルと(b)その断面プロファイル. 全面に照射した場合と同様, 円形に集光する. ミラーで反射後の収束球面波の収束角度が小さくなるため, 集光プロファイルの半値幅は全面照明時よりも大きくなり, 約 200 nm となる.

## 2.6 ミラーの実利用に関する理論的検討

前節では，ミラーの形状誤差が軟 X 線集光性能に与える影響を，波動光学シミュレータで解析した．得られた結果と現状のミラー形状精度を考慮し，部分照明条件下における軟 X 線集光が現実的であると結論づけた．

回転楕円ミラーで軟 X 線を集光するためには，ミラーを高精度に加工するだけでなく，ミラーを適切にアライメントし楕円の 2 焦点に正確に光源点と集光点を一致させる必要がある．軟 X 線の短波長性を考えるとアライメントにも高い精度が求められると予想される．本節では，実際の軟 X 線集光システム開発を想定して，ミラーのアライメント誤差が軟 X 線集光性能に与える影響を解析する．

### 2.6.1 アライメント精度の検討

必要アライメント精度を定量的に計算するために，アライメント誤差が集光性能に与える影響を，波動光学シミュレータを用いて解析する．ミラーの回転中心は，ミラー中心を通り，かつ光軸に関して垂直な直線とする．また，本節でも **Strehl ratio** が 0.8 を下回る時の値を，アライメント精度の許容値とする．全面照明と部分照明の両条件に関してアライメント誤差の影響を解析する．

### 2.6.2 全面照明時の必要アライメント精度の見積もり

ミラーの軸対称性を考慮すると集光性能への影響は回転角度の正負に依存しないため，図 2.23 のように 1 方向のアライメント誤差の影響のみ考える．

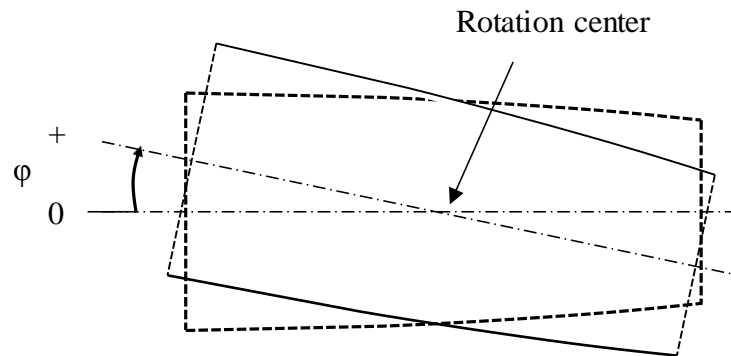


図 2.23 アライメント誤差の定義を示す図．ミラー中心を軸とした理想配置からのミラーの回転として定義する

図 2.24 にアライメント誤差が存在する場合の集光プロファイルの計算例を示す．2 次元グラフからわかる通り，アライメント誤差が大きくなるにつれて集光プロファイルのピーク位置も回転方向に移動する．図 2.25 にピーク強度と回転角度の影響をグラフとして示す．およそ  $0.4 \mu\text{rad}$  回転したあたりで **Strehl ratio** は 0.8 まで低下する．そのため，全面照明時のアライメント誤差の許容値は， $\pm 0.4 \mu\text{rad}$  と定める．

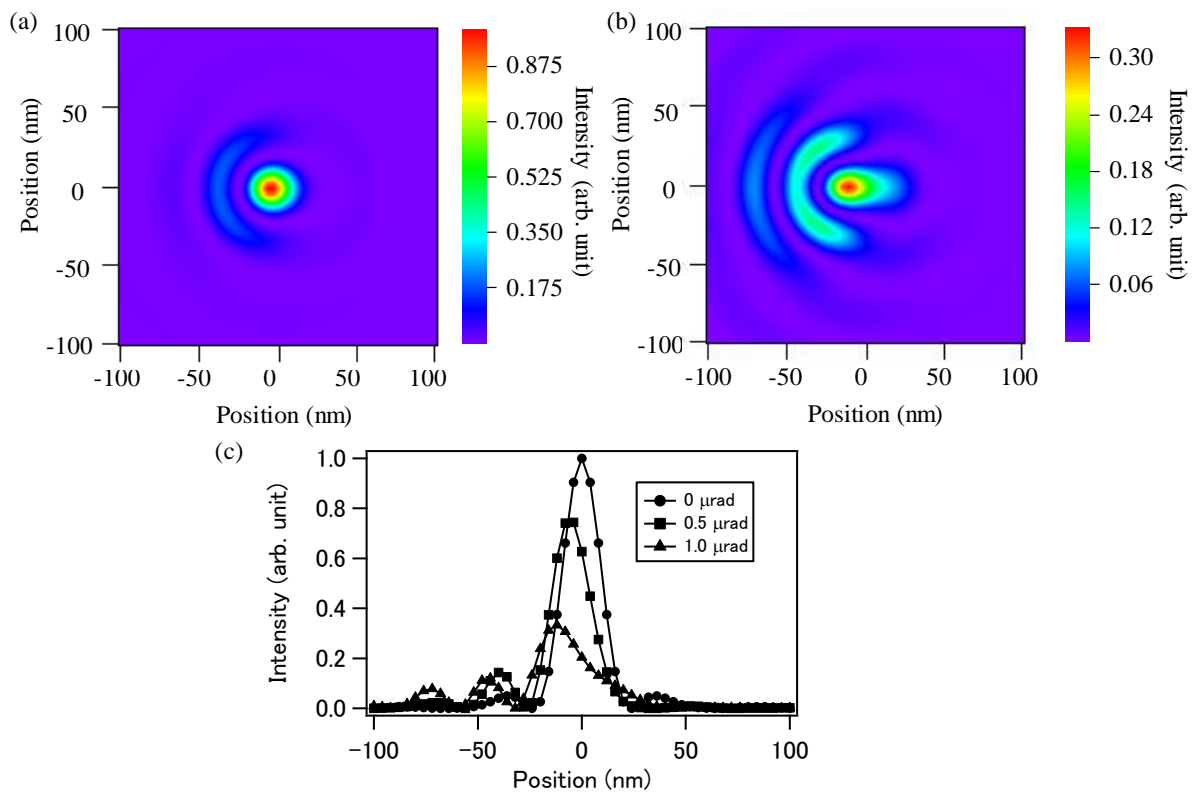


図 2.24 回転角度(a)0.5  $\mu\text{rad}$ , (b)1.0  $\mu\text{rad}$  の場合の二次元集光プロファイル. (c)は複数の  $\delta$  の値に対する断面プロファイル. 1 方向に集光プロファイル全体が傾いている様子がわかる.

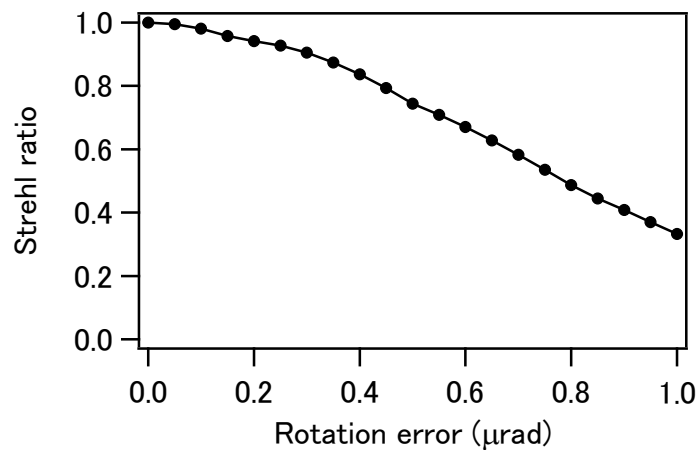


図 2.25 回転角度と Strehl ratio の関係を表したグラフ. 回転角度 0.2  $\mu\text{rad}$  で, Strehl ratio は 0.8 まで低下する.

### 2.6.3 部分照明時の必要アライメント精度の見積もり

部分照明の場合，実質的な形状は部分楕円ミラーと同等であり，回転対称性が失われる．そのため，ミラーの回転軸は2軸考えられる．図 2.21 のように，光軸方向を  $x$  軸とし， $xz$  平面上と照明領域が交差する場合， $y$  軸回りの回転を *pitching* 方向， $z$  軸回りの回転を *yawing* 方向と定義する．

図 2.26 に *Strehl ratio* と回転角度の関係をグラフとして示す．*Yawing*，*pitching* 方向ともに，およそ  $\pm 10 \mu\text{rad}$  回転したあたりで，*Strehl ratio* が 0.8 まで低下する．そのため，部分照明時のアライメント誤差の許容値は， $\pm 10 \mu\text{rad}$  と定める．

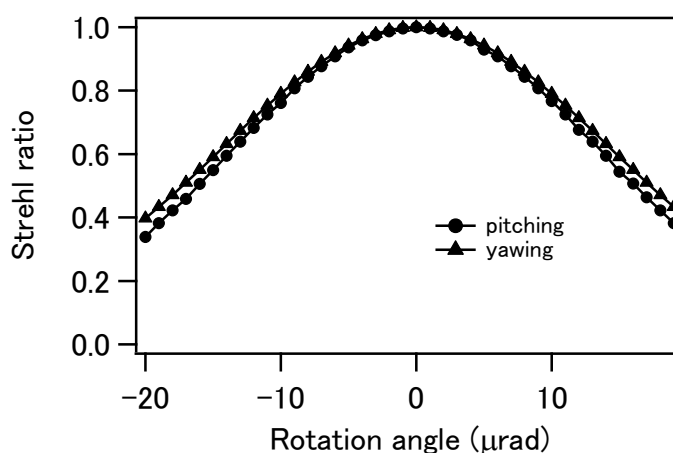


図 2.26 回転角度と *Strehl ratio* の関係を表したグラフ．回転角度  $\pm 10 \mu\text{rad}$  で，*Strehl ratio* は 0.8 まで低下する．

### 2.6.4 ミラー姿勢制御方法

本節では，回転楕円ミラーの必要アライメント精度を解析した．表 2.4 に示すように，誤差の許容値は全面照明条件で  $\pm 0.4 \mu\text{rad}$ ，部分照明条件で  $\pm 10 \mu\text{rad}$  であった．

軟 X 線は大気中で伝播しないため，ミラーの姿勢制御を行うためのステージ類は真空中に設置される．代表的な真空ステージに，パルスモータ駆動ステージとピエゾステージが存在する．パルスモータ駆動ステージは位置再現性，静止安定性にすぐれ，耐荷重も比較的大きい．角度分解能は  $\sim 20 \mu\text{rad}$  程度である．ピエゾステージは角度分解能を  $0.1 \mu\text{rad}$  で制御することができ，耐荷重は比較的小さいものが多い．第 3 章ではパルスモータ駆動ステージを，第 4 章ではピエゾステージを採用するが，どちらも部分照明条件での必要アライメント精度を満たすことができる．

表 2.4 必要アライメント精度の解析結果

照明方法	必要アライメント精度
全面照明	$\pm 0.4 \mu\text{rad}$
部分照明	$\pm 10 \mu\text{rad}$

## 2.7 結言

本章では，回転楕円ミラーの形状誤差が集光性能に与える影響を，波動光学的アプローチにより評価した．波動光学シミュレータを開発し，回転楕円ミラーによる軟 X 線集光を実現するために必要な形状精度とアライメント精度を定量的に調査した．シミュレーション結果と現状のミラー製作プロセス，ミラー形状精度を照らし合わせ，部分照明条件であれば現状の回転楕円ミラーで軟 X 線集光が実現可能であることを明らかにした．本章の結果をまとめる

- (1) 回転楕円ミラーに特化した波動光学シミュレータを開発した．任意の形状誤差とアライメント誤差を入力した状態で，集光性能を計算できる．
- (2) 半径方向に生じる一様な形状誤差，直径誤差，傾斜誤差の全面照明における許容値が，それぞれ $\pm 375\text{ nm}$ ， $\pm 5\text{ }\mu\text{rad}$ であることを明らかにした．
- (3) ミラー表面に生じるランダム誤差の許容限界値が，**PV 25 nm**であることを明らかにした．現状のミラー製作精度および必要アライメント精度を考慮し，部分照明を前提とした軟 X 線集光システムの構築が可能であると結論づけた．
- (4) アライメント誤差が集光性能に与える影響を，全面照明・部分照明の両条件下で評価し，それぞれの許容誤差の値が $\pm 0.5\text{ }\mu\text{rad}$ ， $\pm 10\text{ }\mu\text{rad}$ であることを明らかにした．



# 第3章 高次高調波軟 X 線レーザー集光システムの開発

---

3.1 緒言 .....	36
3.2 背景 .....	37
3.3 高次高調波軟 X 線ビームラインの整備 .....	38
3.3.1 ビームライン概観 .....	39
3.3.2 高次高調波発生セル .....	40
3.3.3 軟 X 線分光器 .....	41
3.3.4 集光実験チャンバー .....	44
3.3.5 回転楕円ミラー .....	46
3.4 回転楕円ミラー調整手順 .....	49
3.5 集光実験 .....	52
3.5.1 集光プロファイル .....	52
3.5.2 考察 .....	53
3.5.3 高強度高次高調波光源への適用可能性 .....	54
3.6 結言 .....	55

---

### 3.1 緒言

複雑な物理化学現象の解明には、そのメカニズムの動的観測が極めて重要な手段である。加工現象や生細胞の経時変化を観測することで、そのメカニズムを解明することができる<sup>[56]-[58]</sup>。様々な分野への応用を目的として 1  $\mu\text{sec}$  に迫る時間分解能で撮影可能なハイスピードカメラも市販されている。

観測対象のスケールを原子・分子レベルまでマイクロ化すると、ダイナミクスが起きる時間スケールはフェムト秒 ( $10^{-15}\text{sec}$ ) オーダーとなる。この時間領域では、ポンプ-プローブ法が大きな威力を発揮する<sup>[59]</sup>。ポンプ光に対して時間遅延をつけたプローブ光を観測対象に入射し、プローブ光からのシグナルの時間遅延量に対する変化が観測対象の経時変化として観測される。この手法の理論的な時間分解能は、使用する光のパルス幅で決まる。可視光領域では $\sim 5\text{fs}$  に迫る短パルスレーザーを発振する技術が確立され、ポンプ-プローブ法の時間分解能は劇的に向上した<sup>[60]-[62]</sup>。しかしながら、レーザーシステムに使用される光学素子の反射率やレーザー媒質の制限から、可視光レーザーのさらなる短パルス化は困難である。

現在実用化されているレーザーのうち、最もパルス幅の短い光を発振できるのは、軟 X 線領域の高次高調波光源である<sup>[2], [3], [63], [64]</sup>。希ガスを媒質として発生するフェムト秒レーザーの高次の高調波で、フェムト秒レーザー技術の進歩により発生する光の波長は軟 X 線領域に及ぶ(図 3. 1)。典型的なパルス幅は 500 as を下回る。高次高調波の高エネルギー化、高出力化、短パルス化に関する多種多様な研究が行われた結果、アト秒軟 X 線レーザー光源技術として確立され、アト秒科学という新しい科学分野が誕生した<sup>[4], [5]</sup>。主に原子・分子に関連した研究領域で、高次高調波を利用した光電子分光等の時間分解実験が行われている<sup>[65]-[69]</sup>。

本章の目的は、回転楕円ミラーをベースとした高次高調波軟 X 線レーザー集光システムの開発と、その集光性能評価である。本章は次の流れに沿って展開する。

- ①高次高調波軟 X 線レーザービームラインを整備する。
- ②高次高調波軟 X 線レーザービームラインの設計に合わせて回転楕円ミラーを設計し、長手方向 1 ラインを高精度に加工したミラーを製作する。
- ③高次高調波軟 X 線ビームラインにおいて回転楕円ミラーをベースとした集光システムを開発し集光性能評価実験を行う。実験結果を踏まえ、高次高調波軟 X 線レーザー用集光素子としての特性について考察する。

高強度フェムト秒レーザー

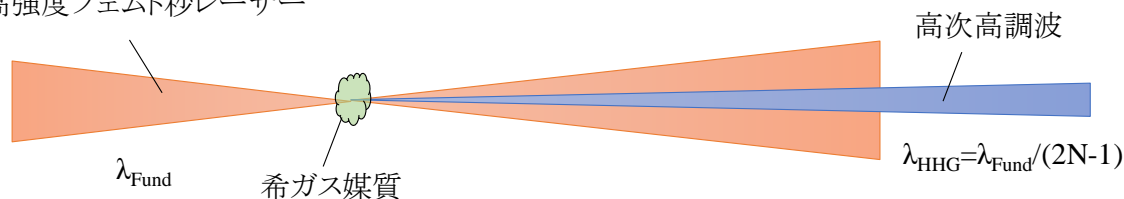


図 3. 1 高次高調波発生概念図。高強度フェムト秒レーザーを希ガス媒質に集光した際に起きる非線形効果の結果、入射レーザーの奇数次の高調波が発生する。

## 3.2 背景

光のパルス幅( $\Delta t$ )とスペクトル幅( $\Delta \nu$ )の間には、フーリエ限界の式で表される関係がある。

$$\Delta t \cdot \Delta \nu \geq k \text{ (constant)} \quad (3.1)$$

この式からわかるように、光のスペクトル幅が広いほどパルス幅は短くなる。高次高調波を利用した実験システムにおいて、高い時間分解能を実現するためには、スペクトル幅を保存したままアト秒パルスをサンプルに照射する必要がある。高次高調波の集光には、集光サイズだけではなく素子通過後のスペクトル幅も重要な要素となり、両方の要素を考慮して集光素子が選択される。

高次高調波用の軟 X 線集光素子は、斜入射ミラーと多層膜ミラーに大別される。斜入射部分楕円ミラーの製作(波長 $\sim 30$  nm, 集光サイズ  $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ )や、複数枚のトロイダルミラーを組み合わせた集光システムの構築(波長 $\sim 40$  nm,  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ )が報告されている<sup>[28], [29]</sup>。広い波長帯域で使用できるためスペクトル幅を保存したまま集光することができるが、集光サイズは数  $\mu\text{m}$ にとどまっている。

一方で、ミラー表面を多層膜構造にすることで、単一の波長を有する光の集光に特化した集光素子も存在する。波長に合わせて設計された多層膜構造により、直入射条件でも数 10 %の反射率を実現することができる。波長 13.5 nm では Mo/Si 多層膜が、波長 30 nm では SiC/Mg 多層膜が利用されることが多い。表面を多層膜化した放物面ミラーで高次高調波を集光した例が報告されている(波長 30 nm, 集光サイズ  $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ )<sup>[38]</sup>。しかしながら、多層膜を利用しているため素子通過後のスペクトルは狭帯域化し、パルス幅は長くなってしまう。

このような現状の下、本章では 10~30 nm の波長帯域で使用可能で、1.0  $\mu\text{m}$  以下の微小集光スポットを形成可能な集光システムを開発する。上記の数値目標を理論的に達成可能な回転楕円ミラーを設計・製作し、高次高調波軟 X 線レーザー集光システムを構築する。

### 3.3 高次高調波軟 X 線ビームラインの整備

1993 年に Corkum により高次高調波発生メカニズムを説明する 3step 理論が提唱された<sup>[70]</sup>。フェムト秒レーザーの高強度電界中における希ガス電子の振る舞いを半古典論的に取り扱うことで高次高調波発生特性を説明している。図 3.2 に 3step 理論の概略を示す。(Step 1) まず、フェムト秒レーザーの高強度電場により希ガス内電子のクーロンポテンシャルが歪められ、トンネル効果により電子がイオン化する。イオン化した電子はレーザー電場から電界力を受けて加速される。(Step 2) 次に、反転したレーザー電場によって電子は元の原子核に向かって再加速される。ここまでの過程で、電子はイオン化エネルギーとレーザー電場からの運動エネルギーを得る。(Step 3) 最後に、電子が原子核に再結合する際、電子のもつエネルギーが軟 X 線として放出される。この過程は、希ガス内電子がトンネルイオン化した瞬間を始状態として、レーザー電場中の初速度 0 の電子に関する運動方程式を解くことで解析できる。3 step 理論によると、発生する光の最大光子エネルギー  $E_{max}$  は次式で表される。

$$E_{max} = I_p + 3.17U_p = I_p + 3.17 \times \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega} = I_p + 3.17 \times 9.3 \times 10^{-14} I \lambda^2 \quad (3.2)$$

ここで、 $I_p$  は希ガスのイオン化エネルギーであり、 $U_p$ 、 $E_0$ 、 $\omega$ 、 $I$ 、 $\lambda$  はレーザーのポンデロモティブエネルギー、光電場、角周波数、強度[W/cm<sup>2</sup>]、波長[μm]を表す。 $e$  と  $m$  は電子の素電荷と質量である。フェムト秒レーザーの波長と集光強度、希ガス媒質のイオン化エネルギーにより、発生する高次高調波の最大光子エネルギーが決まる。

本研究では、中心波長 800 nm、パルス幅~40 fs、パルスエネルギー~5 mJ、繰り返し周波数 1 kHz のチタンサファイアレーザーを使用している。このフェムト秒レーザーをヘリウム雰囲気中に集光し高次高調波を発生させる。レーザーの集光サイズが~100 μm の場合、式 3.2 で計算される最大光子エネルギー  $E_{max}$  は~120 eV となり、波長 10 nm の軟 X 線発生が予測される。

本節では、整備した高次高調波軟 X 線ビームラインの概略を述べた後、ビームラインを構成する各種装置の詳細を説明する。

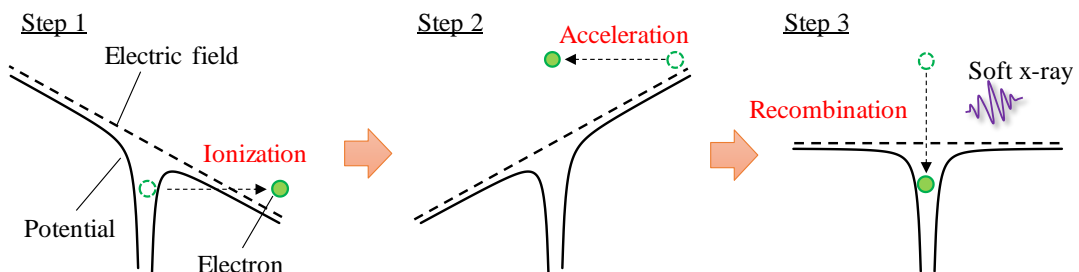


図 3.2 3step 理論を説明するための概略図。

### 3.3.1 ビームライン概観

高次高調波軟 X 線レーザービームラインの全体図を図 3.3 に示す。軟 X 線は大気中で吸収されるため、ビームライン全体は真空チャンバーで構成される。本ビームラインにおいて、フェムト秒レーザーは大気中に配置された集光レンズを通過した後、合成石英窓を介して真空チャンバー内へ入射する。合成石英窓から約 1.2 m 下流には  $\phi 500 \mu\text{m}$  のピンホールが配置されている。ピンホールより上流側の空間にはヘリウムが供給されており、ピンホールを境にしてヘリウム雰囲気と真空雰囲気が分離した構造となっている。ピンホールより下流側に流入したヘリウムはターボ分子ポンプで排気される。フェムト秒レーザーをピンホール付近に集光することで、ヘリウムを媒質とした高次高調波が発生する。発生した高次高調波は集光チャンバーに向かって伝播する。図 3.4 に高次高調波発生装置の写真を示す。

ビームラインの最下流には集光チャンバーが配置されており、中には回転楕円ミラーによる集光装置が設置されている。集光チャンバー直前には、4 象限スリットと薄膜金属フィルター(Zr)が備え付けられている。また、ビームラインの途中には平面ミラーが配置されており、ミラーを光軸上に挿入することで高次高調波の光路を軟 X 線分光器側に切り替えることができる。

ビームライン最上流には、ガイドレーザーとして HeNe レーザーが設置されており、各真空装置はガイドレーザーを基準として設置される。フェムト秒レーザーの光軸をガイドレーザーと一致させておくことで、同軸上に発生する高次高調波を集光チャンバー、軟 X 線分光器まで確実に導くことができる。

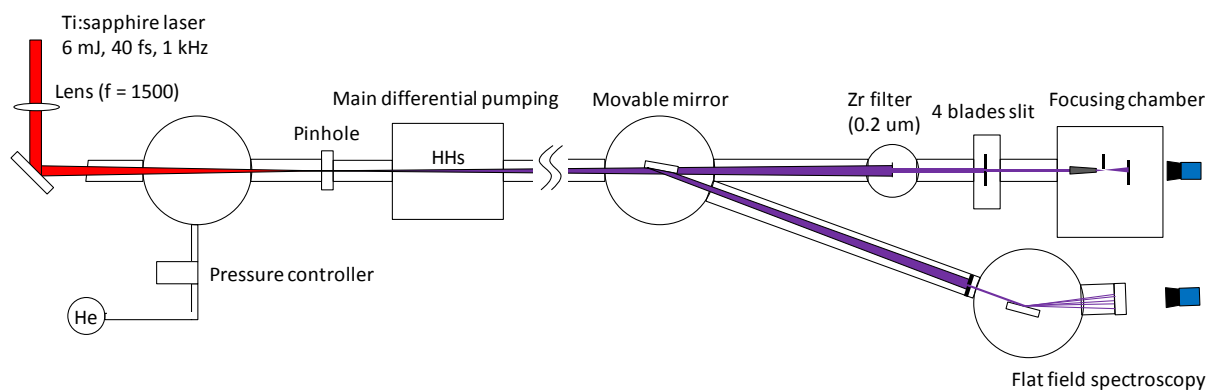


図 3.3 高次高調波ビームラインの全体図。フェムト秒レーザーは集光レンズを通過後、サファイア窓を介してヘリウム雰囲気中に集光する。発生した高次高調波は真空雰囲気中を伝播し、軟 X 線分光器・集光チャンバーへと送られる。

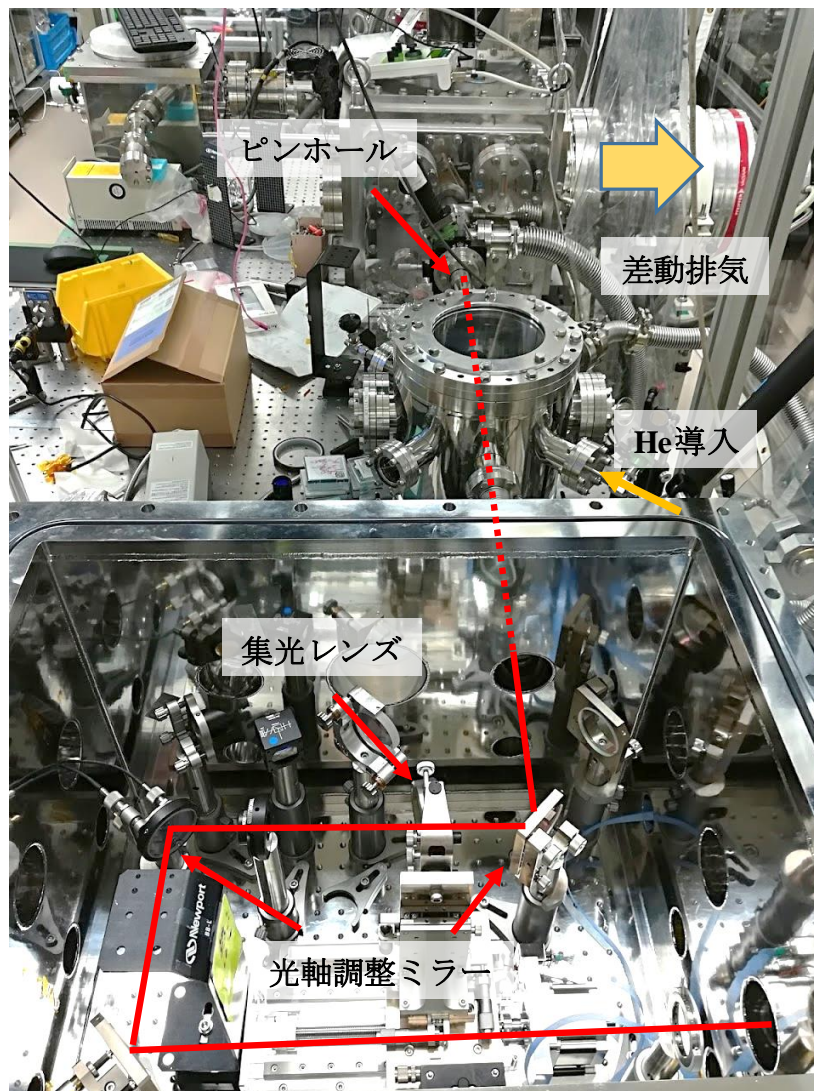


図 3.4 高次高調波発生装置の周辺を撮影した写真.

### 3.3.2 高次高調波発生セル

本ビームラインでは、Semi-infinite gas cell 方式と呼ばれる高次高調波発生機構を採用している<sup>[71]-[73]</sup>. 図 3.5 に示すように、真空容器を  $\phi 500 \mu\text{m}$  のピンホールで分離し、上流側にヘリウムを供給する. 真空側に流入したヘリウムはピンホール直後に取り付けられた大容量ターボ分子ポンプで速やかに排気される. ヘリウムの背圧は PID ガス圧制御機(Bronkhost 製)で 20 kPa 程度に調整する.

あらかじめ、大気中におけるフェムト秒レーザーの集光点をピンホールより 10 mm 程度上流に来るように調整し、高次高調波を発生させる. その後、高次高調波の発生量をモニターしながらフェムト秒レーザーの集光位置を微調整する. 集光レンズを光軸方向に自動ステージで駆動することで集光点の位置を調整する.

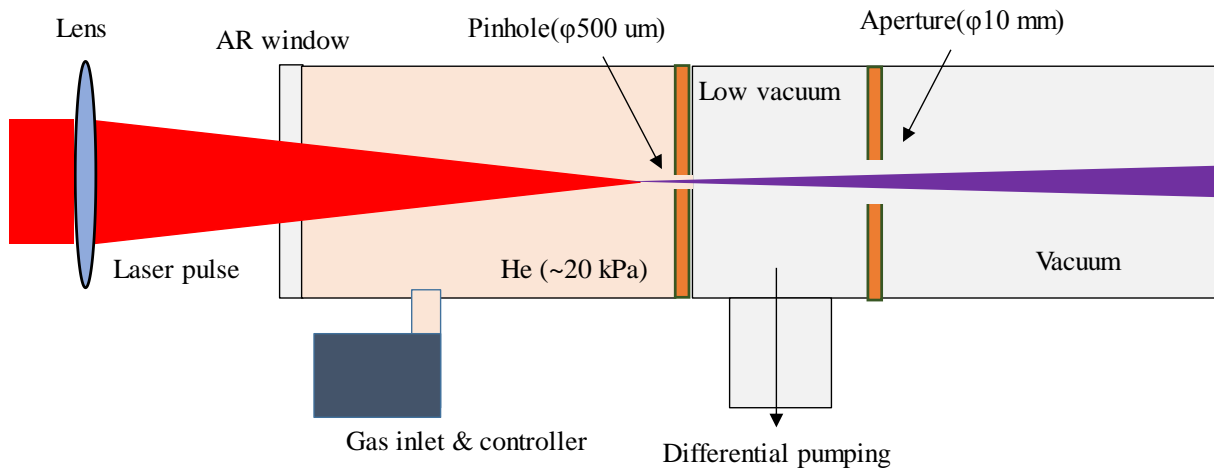


図 3.5 Semi-infinite gas cell 方式の模式図. ピンホールより上流側にはヘリウムが供給され~20 kPa 程度に保たれている.

### 3.3.3 軟 X 線分光器

ビームラインに設置した，高次高調波の光路を切り替えるための平面ミラーへの入射角度は 3deg であるため，反射光の光軸は元の光軸に対して 6 deg 傾斜する．表面はニッケルでコーティングされており，図 3.6 のような反射率特性を示す<sup>[74]</sup>．100eV 付近でフラットな反射率を示しており，光路切り替え用平面ミラーの反射率特性は軟 X 線分光計測に影響しない．

軟 X 線分光器には，1200, 2400 grooves/mm の刻線が刻まれた 2 種類の平面結像型グレーティングが取り付けられており，手動マニピュレータにより使用するグレーティングを切り替える．波長 10nm 以上の光を分光計測する場合は 1200 grooves/mm のグレーティングを使用する．グレーティングで色分散した光は Phosphor スクリーン付き Micro Channel Plate (MCP) 面上に結像する．MCP 面に軟 X 線が入射すると光電子を発生し，光電子は MCP キャピラリを通過中にアバランシェ増幅される．増幅された電子が後段の Phosphor スクリーンに入射すると蛍光イメージが映し出される．Phosphor スクリーン上の蛍光イメージを市販の CCD カメラで撮像することで波長スペクトルを取得する．

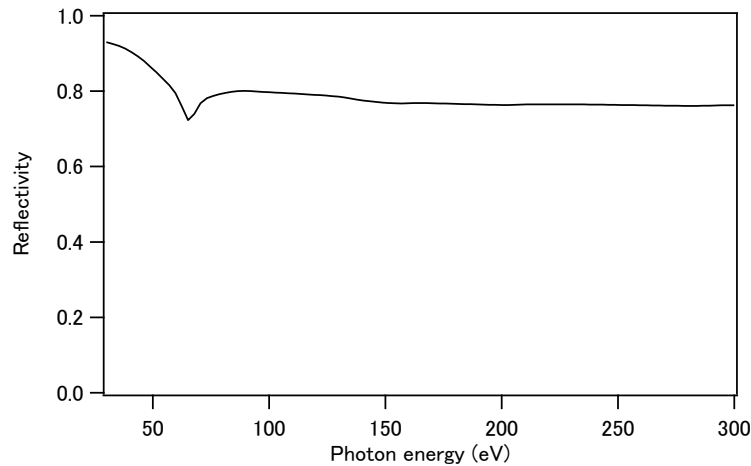


図 3. 6 ニッケルに斜入射角度 3deg で入射した軟 X 線の反射率特性. 100 eV 付近の軟 X 線はフラットな反射率特性を示す.

図 3. 7 に軟 X 線分光器で計測した, 高次高調波の典型的な波長スペクトルを示す. 実線はフィルター等を使用していない状態で取得した高次高調波スペクトルであり, 式 3.2 で計算したように 120 eV 付近の光が発生している. 中破線は Zr フィルターの透過率分布, 破線が Zr フィルターを透過させた場合の波長スペクトルである. Zr フィルターは 10~20 nm の波長の光のみを透過するバンドパスフィルターとして機能する.

また, 図 3. 7 に示した波長スペクトルグラフには, 高次高調波の特徴であるブロードバンドかつ離散的な波長スペクトル構造が現れている. 図 3. 8 に示すように, 高次高調波はフェムト秒レーザー電場の半周期に一度発生する. 高次高調波の初期位相はフェムト秒レーザーの電界方向に依存するため, 半周期ごとに発生した高次高調波が強め合う条件は, 次式で記述することができる.

$$\left(N + \frac{1}{2}\right)\lambda_{HH} = \frac{\lambda_F}{2} \quad (3.3)$$

ここで,  $\lambda_{HH}$  は高次高調波の波長,  $\lambda_F$  はフェムト秒レーザーの波長を表している. 左辺は, 高次高調波の位相が初期位相から反転する伝播距離を表しており, 右辺は, レーザー電場が半周期進む距離を表している.  $\lambda_{HH}$  に関して整理すると次式が得られる.

$$\lambda_{HH} = \frac{\lambda_F}{2N + 1} \quad (3.4)$$

発生する高次高調波のうち, 式(3.4)を満たす成分は, フェムト秒レーザーの奇数次の高調波となる. 同様の計算で, 偶数次の高次高調波は干渉の結果弱め合うこともわかる. 結果として, 出力される高次高調波の波長スペクトルは, 奇数次にピークを持つブロードバンドかつ離散的な構造となる.



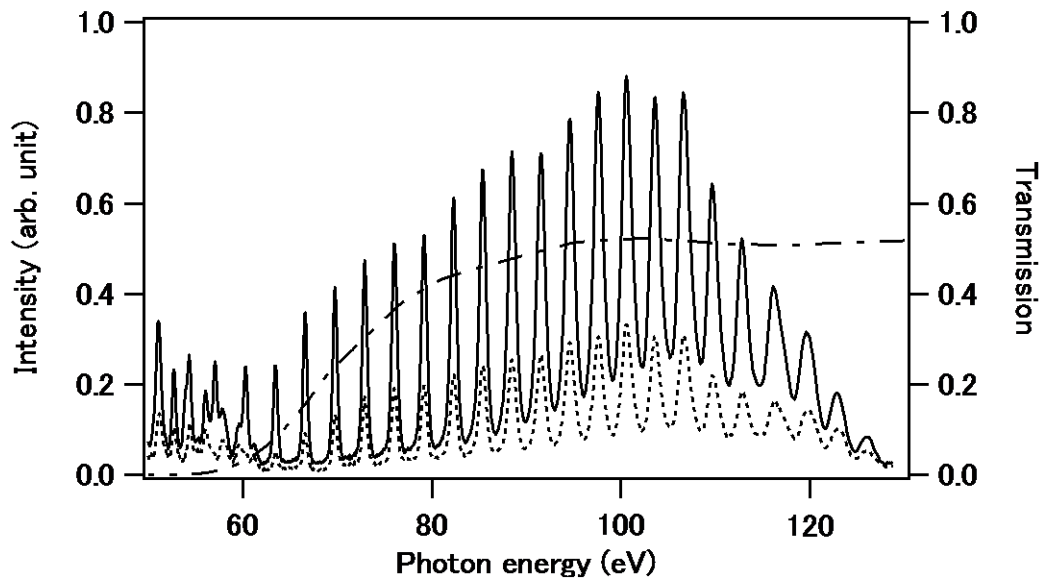


図 3.7 軟 X 線分光器で計測した典型的な波長スペクトル。実線がフィルター等を入っていない状態で計測した高次高調波の波長スペクトル，中破線が Zr フィルターの透過率分布，破線が Zr フィルターを通過した高次高調波の波長スペクトルを示す。Zr フィルターは 10~20 nm の波長の光を透過するバンドパスフィルターとして機能する。

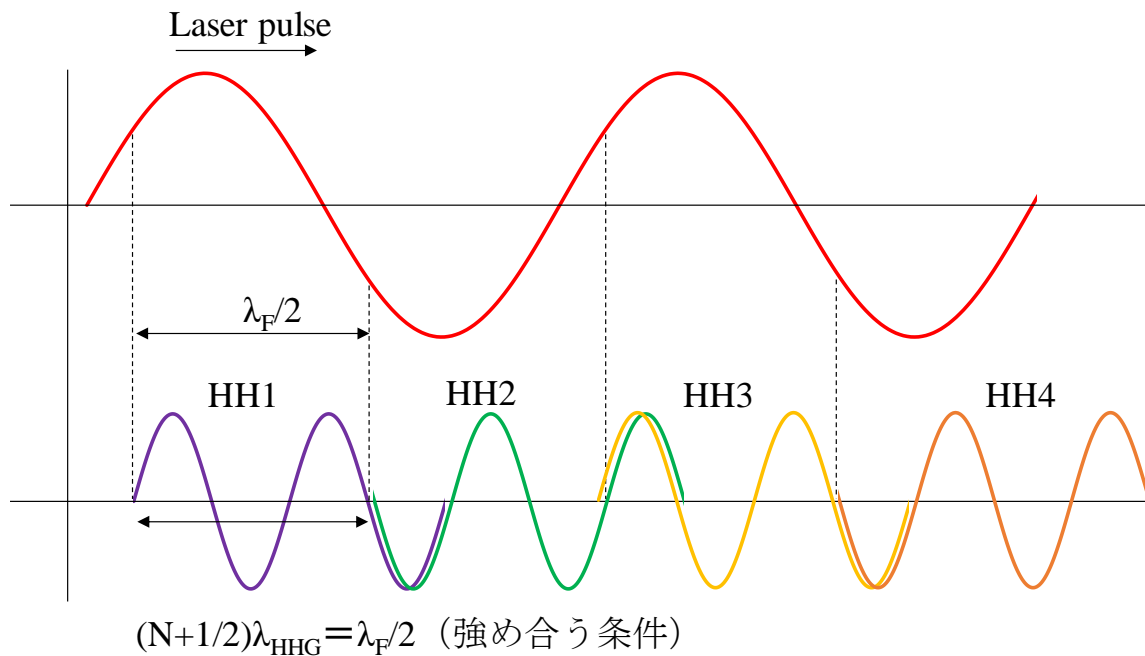


図 3.8 強め合う高次高調波の発生タイミングを示した図。赤線はフェムト秒レーザーの電場を表している。レーザーが半周期進むたびに、初期位相が反転した高次高調波が発生する。フェムト秒レーザー波長の奇数次の高調波が強め合い干渉の条件を満たす。

### 3.3.4 集光実験チャンバー

光路切り替え用の平面ミラーを退避した状態では、高次高調波は実験チャンバーに向かって伝播する。実験チャンバー内には図 3.9 に示すミラーの姿勢を制御するための 5 軸マニピュレータが設置されている。マニピュレータは真空対応パルスモータ駆動ステージで構成される。回転楕円ミラーは V 字ブロック上に静置され、ミラー中心とマニピュレータの回転中心は一致している。

集光サイズは、ナイフエッジスキャン法によって計測する。集光点付近にナイフエッジを一定のピッチで挿入しながら反射光強度を計測する。各点における強度の変化率グラフが集光プロファイルに相当する。ナノ切削加工にも用いられる単結晶ダイヤモンドをナイフエッジとして使用した。ナイフエッジは、光軸に垂直な面内における 2 方向と、光軸方向に駆動させることができる。パルスモータ駆動ステージを使用しているが、特に面内方向の駆動には 5 nm 分解能の 2 軸フィードバックステージを使用している。

図 3.10 に示すように、回転楕円ミラーで反射した光は、Phosphor スクリーン付き MCP で計測する。MCP で増幅された電子はカップラー回路を介して信号増幅器に送られる。その後、ゲート積分器で DC 電圧信号へと変換した後、データロガーで 1 shot 毎の電圧値を記録する。計測した電圧値が入射軟 X 線の相対強度に相当する。図 3.11 に 1 shot 毎に記録した光強度の変動グラフを示す。ヒストグラムから、ショットノイズの影響がガウシアン分布として現れている。また、10000 shot 計測した場合の強度変動は半値幅で 5.6% 程度であり、集光実験の実施に問題が無いレベルまで安定化されている。

また、Phosphor スクリーン上の蛍光を CCD カメラで計測することで反射光の強度分布を 2 次元イメージとして取得できる。

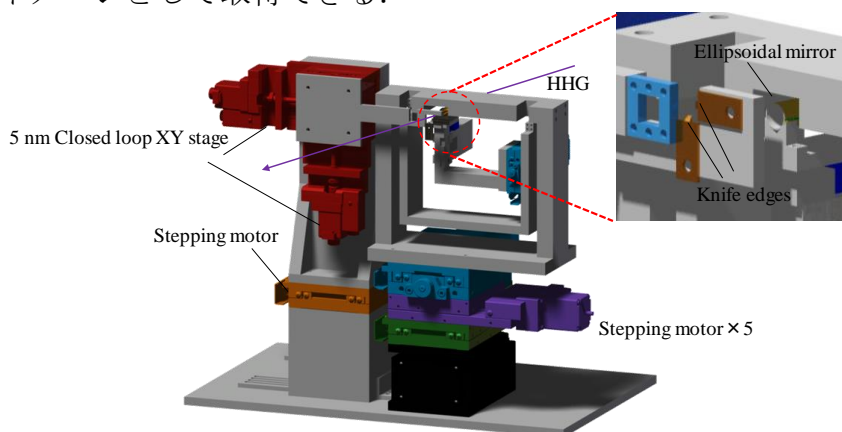


図 3.9 集光ユニットの図。右側のユニットで回転楕円ミラーの姿勢を制御し、左側のユニットで集光サイズを計測するためのナイフエッジを駆動する。

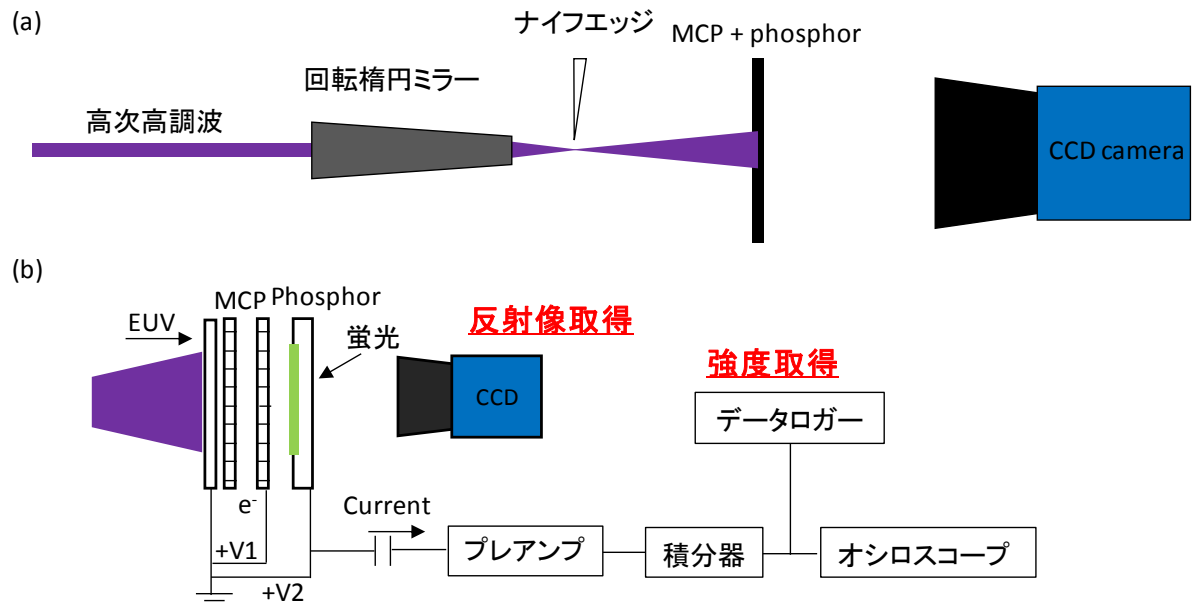


図 3.10 (a) ナイフエッジスキャンのイメージ図. ナイフエッジを集光点近傍に挿入しながら反射光の強度を計測し、その変化率を計算することで集光プロファイルを得る. (b) 反射光のデータを取得する装置の関係図. 反射光の強度分布イメージは、Phosphor スクリーン上の蛍光を CCD で計測することで取得する. 反射光強度は、MCP に流れる電流をカップラー回路で抽出し、積分器で DC 信号に変換した後、データロガーで計測する.

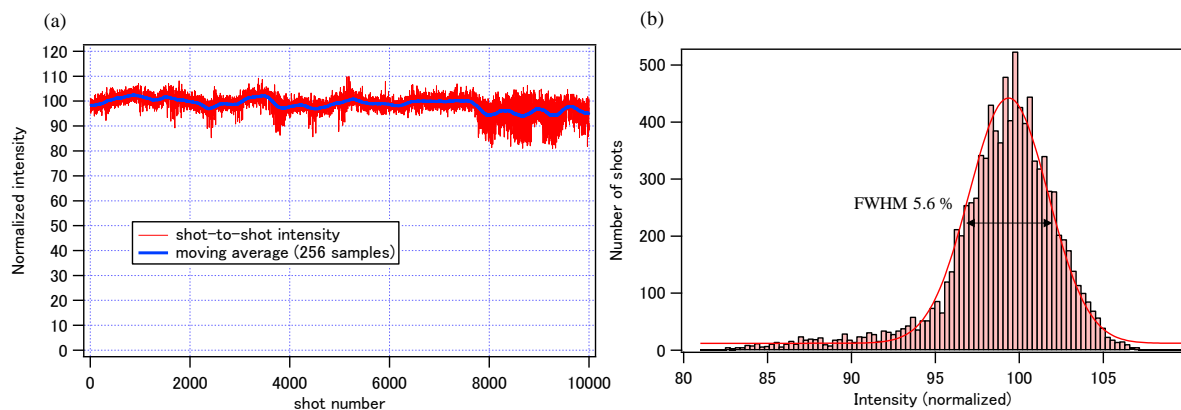


図 3.11 (a) 集光実験チャンバーに設置した MCP で計測した 1shot 毎の強度変動グラフと (b) そのヒストグラム. 10000 shot 計測した場合の強度変動は、半値幅で 5.6% 程度となっている.

集光装置の直前には、4 象限スリットが設置されている. 第 2 章で述べたように、本章では部分照明条件で集光実験を行う. 図 3.12 に示すように、光軸に対して垂直に取り付けた 4 枚のステンレスプレートの位置を調整することでビームの照射位置を制御し、回転楕円ミラーの高精度加工領域のみに高次高調波を照射する.

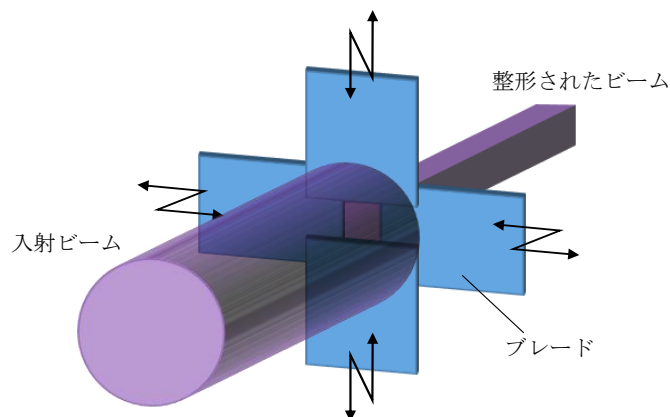


図 3. 12 4 象限スリットのイメージ図. 4 枚のステンレスプレートは光軸に対して垂直に取り付けられており、それぞれ独立に駆動させることができる.

### 3.3.5 回転楕円ミラー

まず、製作する回転楕円ミラーのパラメータを定める. 第1章で述べたように、回転楕円ミラーには、可視光域で使われるレンズのように縮小倍率の法則が適用できる. 本ビームラインにおいて、フェムト秒レーザーの集光サイズは  $100\ \mu\text{m}$  程度であるため、高次高調波の光源サイズは高々  $100\ \mu\text{m}$  であると考えられる. 光源から集光チャンバーまでの距離は  $8.6\ \text{m}$  であるため、集光サイズを  $1\ \mu\text{m}$  以下にするためには、焦点距離は  $86\ \text{mm}$  以下であればよい. 本章で使用する回転楕円ミラーの焦点距離は  $40\ \text{mm}$  とした.

表 3.1 に回転楕円ミラーの各種光学パラメータを列挙する. ミラーの概形は、長さ  $40\ \text{mm}$ 、上流開口  $10\ \text{mm}$ 、下流開口  $5\ \text{mm}$  である. 回転楕円ミラーの焦点距離はミラー中心から焦点までの距離であるため、ワークディスタンスは  $20\ \text{mm}$  とした. また、ミラー材料はニッケルであり、最大斜入射角度は  $70\ \text{mrad}$  とした. 図 3. 13 に示すように、 $100\ \text{eV}$  付近の軟 X 線はニッケルに対して十分高い反射率を示す.

表 3.1 実験に使用した回転楕円ミラーのパラメータ

パラメータ	値
長軸 (mm)	4300.1
短軸 (mm)	29.06
ワークディスタンス (mm)	20
最大斜入射角度 (mrad)	70
ミラー長さ (mm)	40

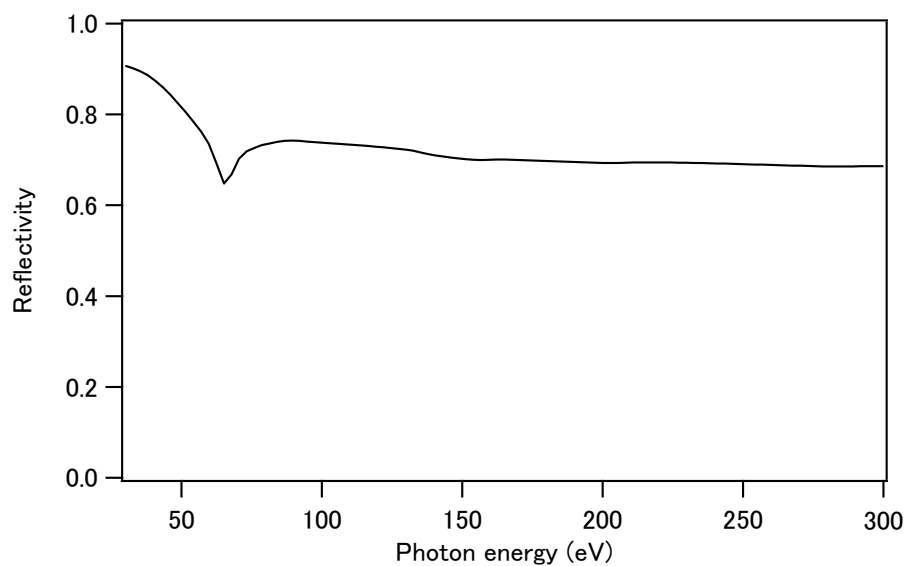


図 3.13 斜入射角度 70 mrad でニッケルに入射する軟 X 線の反射率

上記の光学設計の下、回転楕円マンドレルを製作した。武井らによって開発された EEM をベースとした加工システムにより、 $\pm 5 \text{ deg}$  の範囲における長手方向形状が高精度に加工されている<sup>[49],[75]</sup>。図 3.14 にマンドレルの長手方向における形状誤差グラフを示す。照明領域全域に渡って 20 nm 以上の形状精度が達成されている。加工されたマンドレルに電子ビーム蒸着で導電性を付与した後、電鍍法でマンドレル形状をミラー材料に転写することで、ミラーが完成する。図 3.15 に製作したミラーの写真に掲載する。

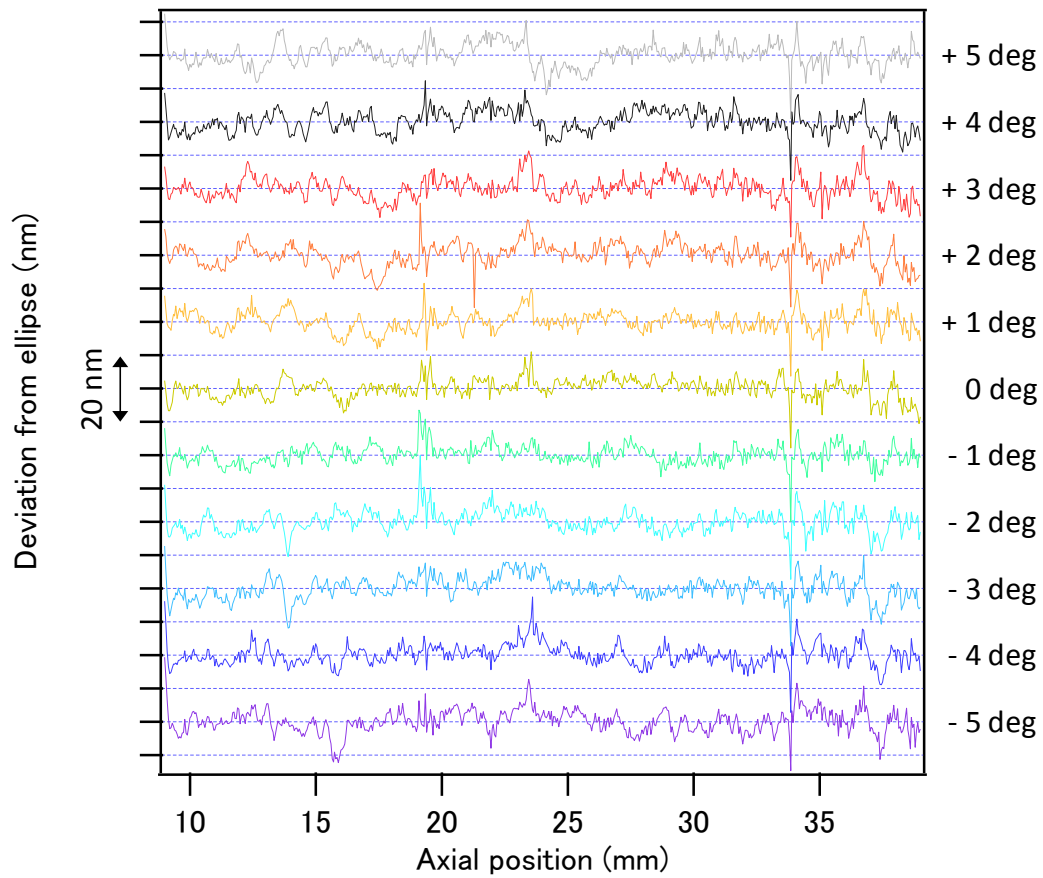


図 3. 14 製作された回転楕円マンドレルの長手方向形状誤差を示したグラフ。円周方向 $\pm 5$  deg の領域にわたって、長手方向の形状精度は PV 20 nm に達している。

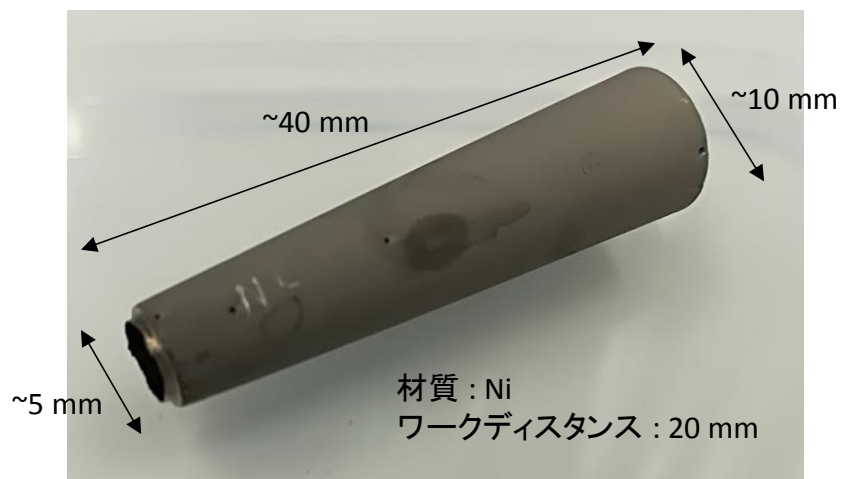


図 3. 15 製作された回転楕円ミラーの写真

### 3.4 回転楕円ミラー調整手順

第2章におけるアライメント誤差解析の結果、回転楕円ミラーを用いた軟X線集光に必要なアライメント精度は  $10 \mu\text{rad}$  であることを明らかにした。ガイドレーザーを基準として回転楕円ミラーを設置したとしても、回折限界集光に必要なアライメント精度を満足することはできない。高次高調波をミラーに照射して集光状態を確認しながらアライメント状態を微調整する必要がある。“集光状態の確認”と“ミラーの角度調整”を繰り返すことで最適なアライメント状態を実現する。

焦点における軟X線の集光状態を確認するためには、フォーコーテストと呼ばれる手法を用いてナイフエッジを焦点位置に移動する必要がある。図3.16に示すように、焦点近傍にナイフエッジの先端を挿入すると、焦点とナイフエッジの位置関係に応じて、反射光の強度分布が変化する。例えば、ナイフエッジの挿入位置が焦点よりも上流にある場合、ナイフエッジが光の進路を遮り反射光はナイフエッジの挿入方向と反対側から消光していく。焦点よりも下流に挿入した場合は、ナイフエッジの挿入方向と同方向から消光していく。焦点深度内にナイフエッジを挿入すると、反射像全体が同時に消光する。この性質を利用するとナイフエッジの位置が焦点位置よりも上流にあるか下流にあるかを判断できるため、ナイフエッジを焦点位置に移動させることができる。鉛直・水平それぞれの方向に対してフォーコーテストを行ってから集光プロファイルを計測する。

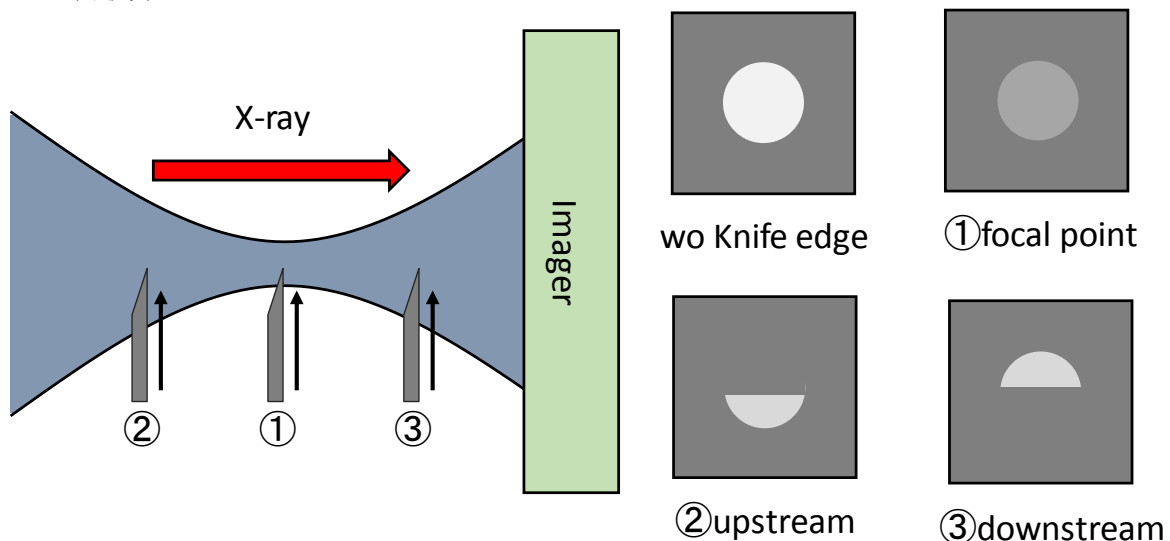


図 3.16 ナイフエッジスキャンのイメージ図。ナイフエッジと焦点の位置関係によって、反射光強度分布の消光の様子が異なる。ナイフエッジを焦点深度内に挿入した場合のみ反射光全体が同時に消光する。

回転楕円ミラーの角度調整は集光状態の情報にもとづいて行う。角度調整の手順をシミュレーション結果にもとづき考察する。図 3.17 に、複数のアライメント状態について、鉛直・水平両方向のビームウェストを計算した結果を示す。横軸が光軸方向を表しており、縦軸は集光サイズを表している。Defocus=0 の点が回転楕円ミラーの設計上の焦点である。回転方向の yawing, pitching の定義は 2.6.3 節と同様である。

(a)アライメント誤差がない状態の計算結果

両方向の集光点は焦点に一致している。

(b)yawing 方向に+100  $\mu$ rad 回転した状態の計算結果

両方向の集光点は焦点から移動しないが、鉛直方向の集光サイズが大きくなる。

(c)pitching 方向に+100  $\mu$ rad 回転した状態の計算結果

鉛直方向の集光点は焦点より“上流”に、水平方向の集光点は“下流”に移動する。

(d)pitching 方向に-100  $\mu$ rad, yawing 方向に+100  $\mu$ rad 回転した状態の計算結果

鉛直方向の集光点は焦点より“下流”に、水平方向の集光点は“上流”に移動する。

これらの結果から、回転楕円ミラーのアライメントに関して、次の 2 つの法則が見いだせる。

(法則 1)yawing 方向に回転している場合、両方向における集光点の位置は変わらず、鉛直方向集光サイズが大きくなる。

(法則 2)pitching 方向に回転している場合、鉛直・水平両方向の集光点は、焦点を境に逆方向に移動する。焦点は、鉛直・水平方向の集光点の間に存在する。

これらの法則にもとづき、下記のアライメント手順が導かれる。

- ① 鉛直方向の集光位置にナイフエッジを移動する。
- ② 水平方向の集光位置にナイフエッジを移動する。
- ③ ナイフエッジを両方向の集光位置の中間に移動する。
- ④ ミラーの pitching 角度を調整し、水平方向の集光点をナイフエッジ位置に移動させる。
- ⑤ 鉛直方向の集光位置にナイフエッジを移動する。
- ⑥ 両方向の集光位置が一致していなければ、②に戻る。
- ⑦ 鉛直方向の集光サイズが小さくなるように yawing 方向の角度調整を行う。
- ⑧ 両方向の集光位置が一致していなければ、①に戻る。

このアライメント手順に則って角度調整を行うことで、回転楕円ミラーのアライメント状態を最適な状態に漸近させることができる。



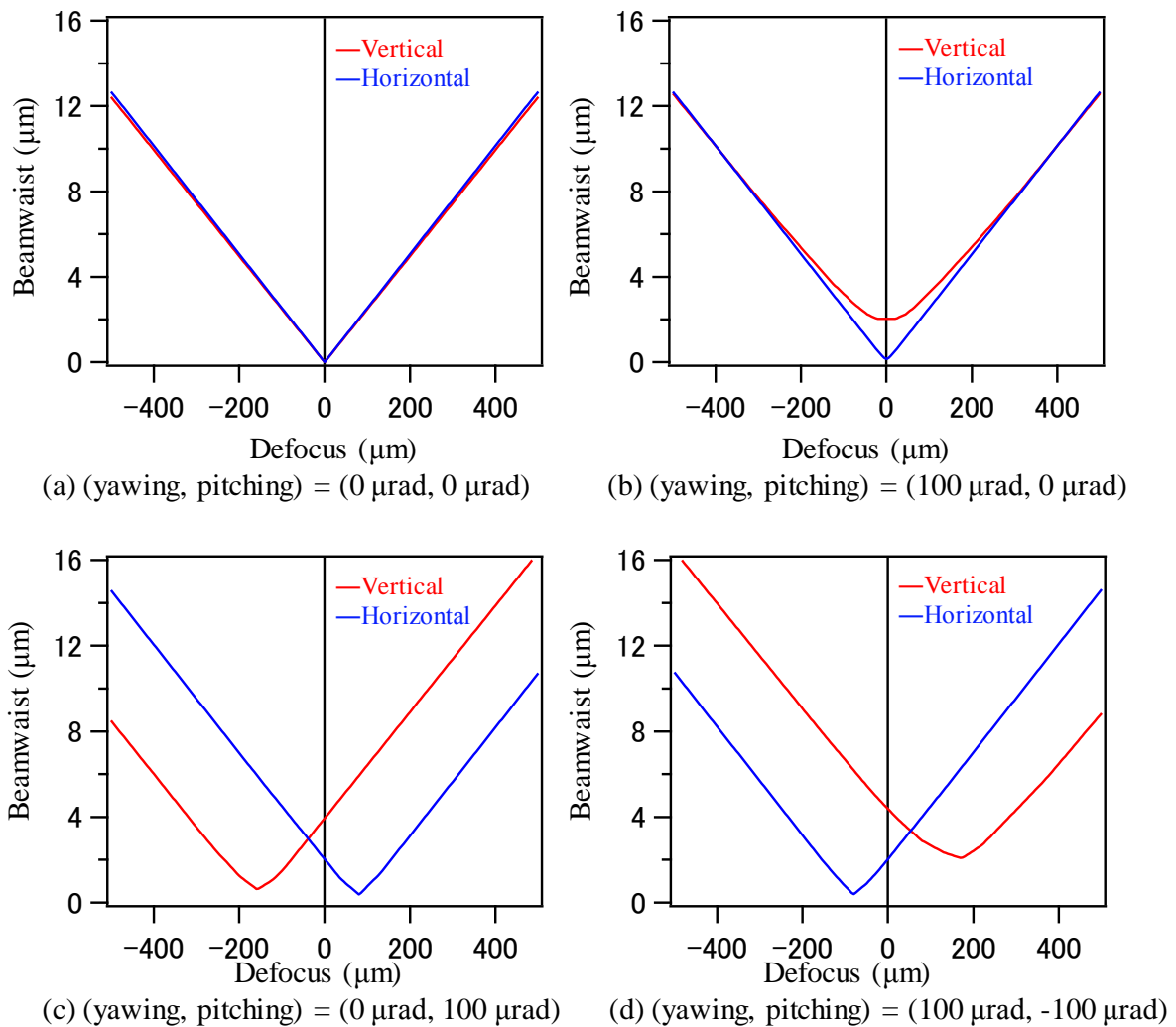


図 3.17 回転楕円ミラーが理想的なアライメント状態から回転している場合のビームウェストを光線追跡により計算した結果。回転量は、(yawing, pitching) = (a) (0  $\mu\text{rad}$ , 0  $\mu\text{rad}$ ), (b) (+100  $\mu\text{rad}$ , 0  $\mu\text{rad}$ ), (c) (0  $\mu\text{rad}$ , +100  $\mu\text{rad}$ ), (d) (+100  $\mu\text{rad}$ , -100  $\mu\text{rad}$ )である。特に、ミラーが pitching 方向に回転している場合、鉛直・水平方向の集光点が、焦点を境に逆方向に移動することは、アライメント手順を考案するための重要な性質である。

### 3.5 集光実験

高次高調波軟 X 線ビームラインにおいて、回転楕円ミラーを用いた集光実験を実施した。まず、ガイドレーザーを基準として回転楕円ミラーを設置した後、高次高調波の波長スペクトルを確認する。10 nm の光が発生していることを確認した後、光路切り替え用の平面ミラーを退避して集光チャンバーに光を導く。集光チャンバー直前の Zr フィルターを挿入して 10~20 nm の光を抽出し、4 象限スリットで 1×1 mm 程度のビームサイズに整形する。高次高調波は回転楕円ミラー面上の高精度に加工された領域に照射し、3.4 節で述べたアライメント手順に従って集光調整を行った。

#### 3.5.1 集光プロファイル

集光調整後ナイフエッジスキャン計測を行った。図 3.18 にナイフエッジの挿入長に対する反射光強度の値をプロットしたグラフを示す。ナイフエッジの送りピッチを 50, 100, 200 nm として同一箇所でも 3 回計測した結果、鉛直・水平方向ともに、送りピッチに依らない強度変化が得られた。このことから、ナイフエッジスキャン計測は確からしく行えていると言える。

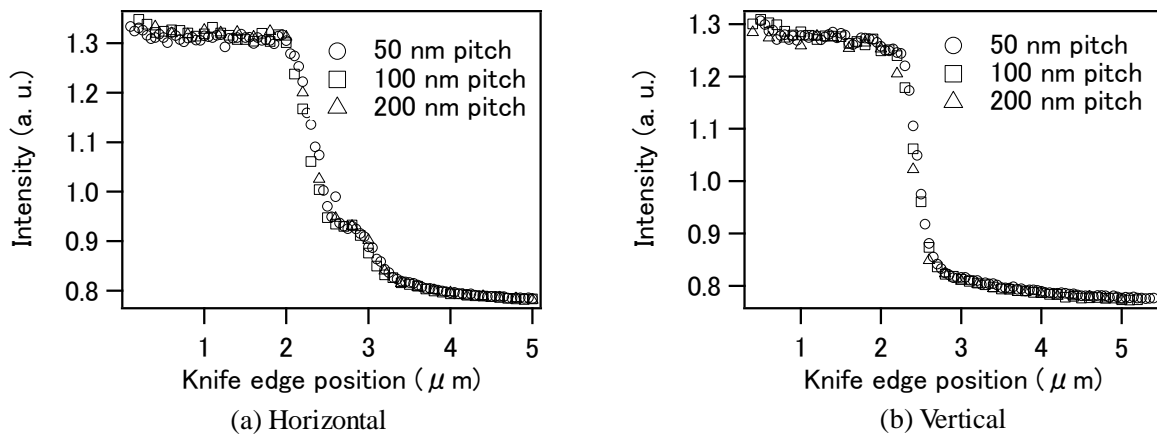


図 3.18 鉛直・水平方向におけるナイフエッジの挿入長に対する強度変化をプロットしたグラフ。計測ピッチを 50, 100, 200 nm と変化させて同一箇所でも 3 回計測した。計測結果はいずれも類似の強度変化を示しており、集光プロファイルの計測方法は確からしいと言える。

各点における強度の変化率を計算し、集光プロファイルに変換したグラフを図 3.19 に示す。集光プロファイルの計算には、ナイフエッジの送りピッチ 100 nm で計測したデータを使用した。計測データに最小自乗近似したガウシアンプロファイルを実線で示している。集光プロファイルの半値幅は、鉛直方向に 420 nm、水平方向に 400 nm であった。水平方向の集光プロファイルにおいて、メインピークの近くにサブピークが現れているが、これは 4 象限スリットの水平方向スリットからの回折光による影響が現れたものであり、ミラーの形状やアライメント誤差に起因するものではない。

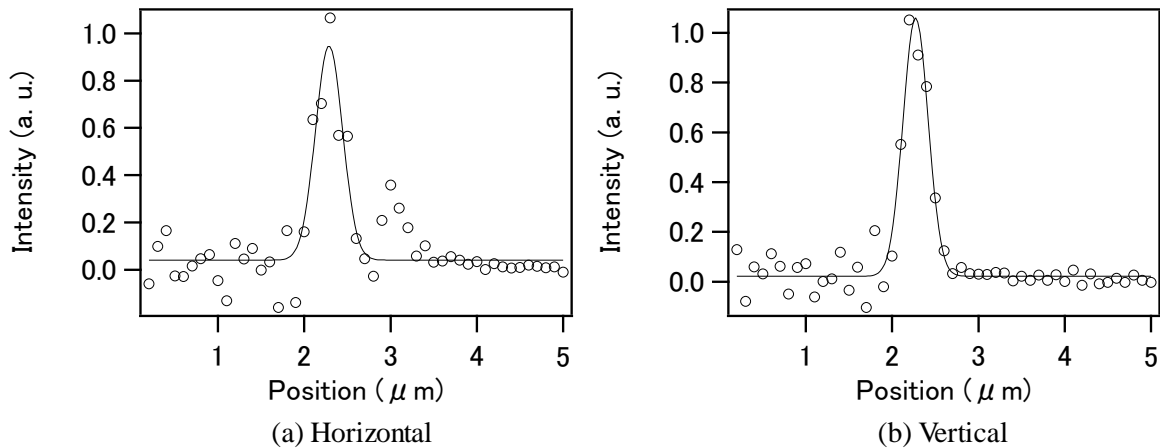


図 3.19 ナイフエッジスキャンの強度変化データの変化率から算出した(a)水平方向と(b)鉛直方向の集光プロファイル. 鉛直方向に 420 nm, 水平方向に 400 nm の集光サイズを得た.

### 3.5.2 考察

集光実験の結果, 420 × 400 nm の集光スポットを形成することに成功した. 集光実験の結果に関して考察する.

4 象限スリットの幅は 1 mm 程度に調整したが, 4 象限スリットから回転楕円ミラーまで伝播する間にわずかにビームサイズが大きくなる. 4 象限スリットと回転楕円ミラーの間の距離を考慮すると, ミラー入射時のビームサイズは約 1.1 mm と推定される. ここで, 回転楕円ミラーの焦点距離を 40 mm として回折限界集光サイズを計算すると,

$$D = 0.5 \times \frac{\lambda}{N.A.} = 0.5 \times \frac{12.3}{0.55/40} = 447 \text{ nm}$$

となる. ここで, 強度が最も強い 12.3 nm を  $\lambda$  の値として仮定した. また, 矩形開口のため係数は 0.5 としている. 実験により得られた集光サイズと概ね一致しており, 高次高調波は回折限界集光されていると言える.

ここで, 第 2 章の形状誤差解析の基準として採用した **Reyleigh** 基準を考えると, 回折限界近くまで集光されているビームの波面誤差は波長の 1/4 以下であると見積もられる. 波長を 20 nm と仮定した場合, 収束球面波の波面誤差は 5 nm 以下であると計算される. 光は 1 fs で約 300 nm 伝播するため, 収束球面波の各点の光が焦点に到達するまでの時間差により発生するパルス幅の伸張量は, 次のように計算される.

$$5 \text{ (nm)} \times \frac{1 \text{ (fs)}}{300 \text{ (nm)}} = 16 \text{ as}$$

この値は, 高次高調波の典型的なパルス幅~500 as と比較して十分小さな値であり, 回転楕円ミラーがアト秒パルス集光に適していることを示している. また, 先端的なレー

レーザー技術を用いることによるパルス幅 50 as の高次高調波発生も報告されている<sup>[76]-[78]</sup>. 球面ミラーやトロイダルミラーでは球面収差に起因するチャープ量を避けることはできず, アト秒の時間分解能を要する実験には, 高精度に加工された回転楕円ミラーが必要不可欠となる<sup>[79]</sup>.

### 3.5.3 高強度高次高調波光源への適用可能性

本章では, 高精度に加工した回転楕円ミラーによる高次高調波集光システムを開発し, 実験により集光性能を評価した. 本実験で入射したビームサイズは 1 mm 程度であったが, 高精度加工領域の大面积化が進めば部分照明条件であっても  $\phi 4$  mm のビームを反射することができる.

ここで, 回転楕円ミラーを先端高次高調波光源に適用した場合の到達集光強度について計算する. 2014 年 Takahashi らにより, 2 色レーザー(800 nm+1300 nm)技術と位相整合技術を組み合わせた, 高強度高次高調波光源が開発された<sup>[80]</sup>. 光子エネルギー 29eV において, 出力 1.3  $\mu$ J, パルス幅 500 as, 発散角度 0.5 mrad の, GW クラスのアト秒レーザー光源である. このアト秒光源を想定して回転楕円ミラーを設計し, 1  $\mu$ m 以下の領域に集光した場合,  $5 \times 10^{17} \text{W/cm}^2$  を超える極めて強い集光ピーク強度が得られる計算となる. この値は軟 X 線自由電子レーザーをもってしても達成が難しく, 高強度アト秒パルスを集光することで初めて到達できる領域であると考えられる. また, 大型実験施設に高強度レーザーおよび高次高調波発生システムを複数整備し, 利用実験に供する計画も進められている<sup>[81]</sup>. 先端アト秒レーザーの利用機会は, 今後増加していくことが予想され, 回転楕円ミラーによる高次高調波軟 X 線レーザーの微小集光技術が重要になると考えられる.

回転楕円ミラーで微小集光することで, 高次高調波は高い集光強度と極短パルス性の両方を兼ね備えることになり, 軟 X 線非線形効果の時間分解計測への展開が期待される.

## 3.6 結言

本章では，高次高調波軟 X 線レーザービームラインを整備し，回転楕円ミラーによる集光実験を行うことで集光性能を評価した．本章の結果をまとめる．

- (1) 波長 10 nm の高次高調波を発生させる軟 X 線レーザービームラインを整備した．
- (2) 回転楕円ミラーアライメント装置をパルスモータ駆動ステージで構成し，ビームラインにインストールした．
- (3) 光線追跡シミュレーションをもとに，回転楕円ミラーの最適なアライメント手順を考案した．
- (4) 波長 10~20 nm の高次高調波軟 X 線を  $420 \times 400 \text{ nm}^2$  の領域に集光し，製作した回転楕円ミラーが回折限界集光性能を有していることを示した．
- (5) 回転楕円ミラーでの反射に起因するチャープ量は 13 as 程度と推定され，アト秒軟 X 線光源の集光素子として優れた性能を有することを示した．

# 第4章 軟 X 線自由電子レーザー集光 システムの開発

---

4.1 緒言.....	57
4.2 背景.....	58
4.3 SACLA 軟 X 線 FEL ビームライン(SACLA BL1).....	59
4.4 集光システムのコンセプト.....	60
4.5 軟 X 線 FEL パルス照射耐性調査.....	61
4.5.1 材料の選定.....	61
4.5.2 実験セットアップ.....	62
4.5.3 直入射条件.....	63
4.5.4 斜入射条件(140 mrad).....	67
4.5.5 斜入射条件(280 mrad).....	68
4.5.6 計算値との比較.....	70
4.5.7 ダメージ試験まとめ.....	72
4.6 光学設計.....	73
4.7 集光システムの構築.....	76
4.7.1 マニピュレータ.....	76
4.7.2 光検出器.....	77
4.8 集光実験.....	78
4.8.1 集光プロファイル.....	78
4.8.2 フルパワー照射耐性.....	79
4.8.3 集光実験のまとめ.....	80
4.9 Si の軟 X 線可飽和吸収.....	81
4.9.1 Si の物性と可飽和吸収.....	82
4.9.2 実験セットアップ.....	82
4.9.3 透過率計測.....	83
4.9.4 透過光強度分布の計測.....	85
4.9.5 軟 X 線非線形光学の展開.....	88
4.10 結言.....	90

---

## 4.1 緒言

光速近くまで加速された電子が蛇行すると電子の進行方向に X 線が発生する。これを制動放射と呼ぶ。1990 年代、電子を円形に周回させながら加速する、第三世代シンクロトロン放射光施設の建設が相次いだ。放射光 X 線は、可干渉性は低いものの極めて高い輝度を有している。

1984 年に、制動放射を利用した X 線をレーザー化する Self-Amplified Spontaneous Emission 方式が提唱された<sup>[82]</sup>。共振器ミラーの存在しない X 線をレーザー増幅するために従来よりも長いアンジュレータで電子バンチを蛇行させる。バンチ内の電子は最初不規則に並んでいるが、アンジュレータ中で自ら放射した X 線電場と相互作用し、やがて X 線の波長と同じ間隔で整列し始める。X 線の波長単位で整列した電子バンチから発生した光が重なり合い X 線自由電子レーザー(X-ray free electron laser; XFEL)となる。

2007 年に FLASH(ドイツ)と SCSS 試験加速器(日本)において軟 X 線領域の FEL が発振した。その後、LCLS(アメリカ)と SACLA(日本)において硬 X 線領域の FEL が発振した。SACLA における硬 X 線 FEL の供用開始から 4 年後、SCSS 試験加速器が SACLA 施設内 Beamline 1(BL1)に移設され、加速器のアップグレード後軟 X 線 FEL ビームラインの稼働が開始した。現在も世界各地で X 線自由電子レーザー施設が建設されている<sup>[83]-[87]</sup>。

XFEL は極めて高い瞬時輝度をもつ X 線レーザーパルス光源である。近年の X 線集光技術の高度化により、高強度 X 線パルスを極微領域に集光することが可能となり、その集光強度密度の値は X 線領域の非線形現象を誘起するほど高くなった。集光 XFEL を利用して、X 線二光子吸収や可飽和吸収、内殻電子励起 X 線レーザーなど、多くの非線形 X 線光学の観測が可能となった<sup>[19], [88]-[90]</sup>。

集光技術は XFEL 利用研究にとって欠かせないものである。本章では、回転楕円ミラーによる軟 X 線 FEL 集光システムの開発を目的としている。研究開発は、SACLA の軟 X 線 FEL ビームライン(BL1)において実施した。

本章は次の流れに沿って展開する。

- ① ミラー材料の高強度軟 X 線パルスに対する照射耐性を調査する。
- ② SACLA BL1 に適した軟 X 線 FEL 集光システムを設計、構築する。
- ③ 構築した集光システムの軟 X 線 FEL 集光性能を評価する。
- ④ 集光軟 X 線 FEL を利用した非線形現象の観測実験を実施する。

## 4.2 背景

軟 X 線領域の FEL 集光には KB ミラーが広く使用されている。KB ミラーの高精度製作技術および集光技術はすでに確立されており、 $10\ \mu\text{m}$  程度に集光された軟 X 線 FEL が利用実験に供されている<sup>[26],[27],[91]-[93]</sup>。しかしながら、KB ミラーは光軸方向に 1 次元楕円ミラーをタンデムに 2 枚並べる光学配置のため、上流側楕円ミラーの焦点距離は下流側楕円ミラーの長さにより制限される。KB ミラーで  $1\ \mu\text{m}$  以下の微小領域に軟 X 線 FEL を集光するのは物理的に困難である。

軟 X 線 FEL をはじめて  $1\ \mu\text{m}$  以下の微小領域に集光したのは、FLASH において開発された多層膜放物ミラーによる集光システムである。ミラー表面は波長  $13.5\text{nm}$  に合わせて設計された Mo/Si 多層膜構造であり、集光サイズ $\sim 300\ \text{nm}$ 、集光強度密度  $10^{16}\text{W}/\text{cm}^2$  が報告されている<sup>[37]</sup>。

いずれの集光素子も一長一短の性質を備えている。KB ミラーは、集光サイズは大きいものの波長によらず集光することが可能であるため、汎用的な集光素子として普及している。多層膜放物面ミラーは使用できる波長が限られるものの、高強度光電場の形成が必要な特殊な実験に使用される。

本章では、高精度な回転楕円ミラーを用いた波長選択性のない軟 X 線 FEL 集光システムを構築する。広い波長帯域の軟 X 線を  $\text{sub-}1\text{-}\mu\text{m}$  の微小領域に集光可能な光学設計とすることで、KB ミラーと多層膜放物面ミラーの両方の利点を兼ね備えた集光システムを開発する。



### 4.3 SACLA 軟 X 線 FEL ビームライン(SACLA BL1)

X線自由電子レーザー施設 SACLA は兵庫県の SPring-8 サイト内に位置する。SACLA にはビームラインが 3 本整備されており、Beamline 1 では軟 X 線、Beamline 2, Beamline 3 では硬 X 線 FEL が発振する。

図 4.1 に示すように、軟 X 線ビームライン(BL1)は大きく分けて熱電子銃（電子バンチを発生させる）、加速器（電子を加速する）、アンジュレータ（電子を蛇行させ、放出された軟 X 線を SASE 増幅する）、光学ハッチ（軟 X 線 FEL の光特性をモニター、調整する）、実験ハッチ（軟 X 線 FEL を集光しサンプルに照射する）から構成される [94], [95]。

熱電子銃から発生した電子バンチは加速器で 800 MeV まで加速され、その後周期長 18 mm のアンジュレータで蛇行しながら X 線を放射する。この際、バンチ内の電子は自ら発した光電場から相互作用を受け光の波長と同じ間隔で並び始める。波長間隔で並んだ電子から発生する光が重なり合いレーザー増幅される。

軟 X 線レーザーパルスはまず光学ハッチに入射する。光学ハッチ内には、強度モニター(FEL パルスの強度計測)、各種薄膜金属フィルター(強度の減衰や波長選択)、ガスアッテネータ(強度の調整)、光軸調整用平面ミラーなどが備え付けられている。光学ハッチ内のコンポーネントを操作することで所望の特性を持った FEL パルスに整形する。光学ハッチの下流には軟 X 線分光器が配置されており波長スペクトルを計測できる。

実験ハッチ内には、共用装置として KB ミラーによる軟 X 線 FEL 集光システムが設置されている。アンジュレータ内で発振した軟 X 線 FEL は実験ハッチ入射時に直径 10 mm 程度まで広がるが、KB ミラーで反射することで直径 $\sim 10\mu\text{m}$ の領域に集光される。集光点は KB ミラーから約 2 m 下流に形成され、集光点付近にサンプル照射用の実験装置が設置される。BL1 では、光子エネルギー 50~150 eV の光が利用できる。

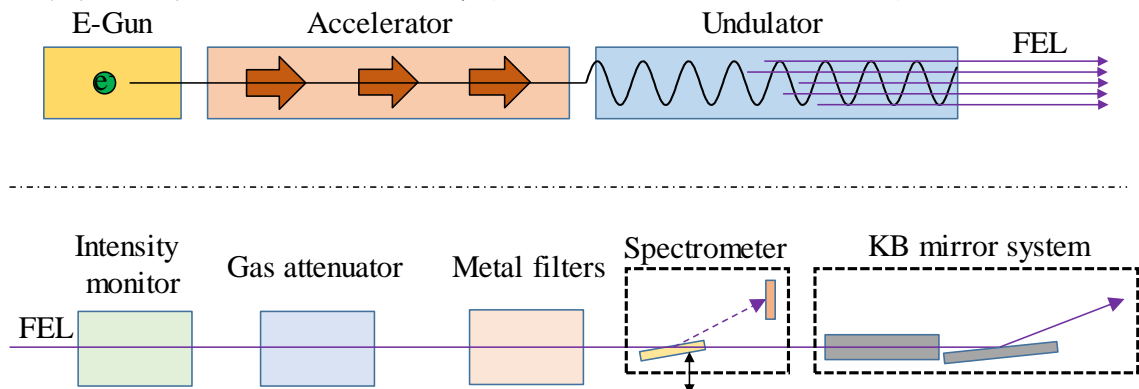


図 4.1 軟 X 線 FEL ビームラインの模式図. 加速器で加速された電子バンチがアンジュレータ中で蛇行し FEL が発振する. FEL は光学ハッチに入射し光特性のモニターと調整が行われる. 実験ハッチ入射した FEL は KB ミラーにより  $10\mu\text{m}$  に集光される。

## 4.4 集光システムのコンセプト

本章で構築する集光システムは、図4.2のようにSACLA BL1の共用集光装置であるKBミラーと回転楕円ミラーを組み合わせた構成となっている。直径10mmで実験ハッチに入射する軟X線FELパルスは、KBミラーで反射後2m下流に集光し、その後再び発散する。KBミラーの集光点よりも下流側に回転楕円ミラーを設置し、軟X線FELを再び反射、集光する。すなわち、KBミラーと回転楕円ミラーによる二段集光システムを構成する<sup>[24],[96]</sup>。この際、回転楕円ミラーの焦点はKBミラーの集光点に一致するように設計する。

KBミラー、回転楕円ミラーともに、50~150 eVの軟X線FELに対して十分な反射率を持つ設計のため、全体として波長選択性のない集光システムとなる。回折限界集光サイズは回転楕円ミラーの光学設計で決まるため、KBミラー単体の場合よりも集光サイズを小さくすることができる。また、回転楕円ミラー入射時のビームサイズはKBミラーの集光点から回転楕円ミラーまでの距離で決まる。そのため、適切な位置に回転楕円ミラーを設置することで、小型の回転楕円ミラーを使用しながらすべての軟X線FELを受光できる。このように既存のKBミラーシステムの機能を最大限に利用し、コンパクトで高性能な軟X線FEL集光システムを構築する。

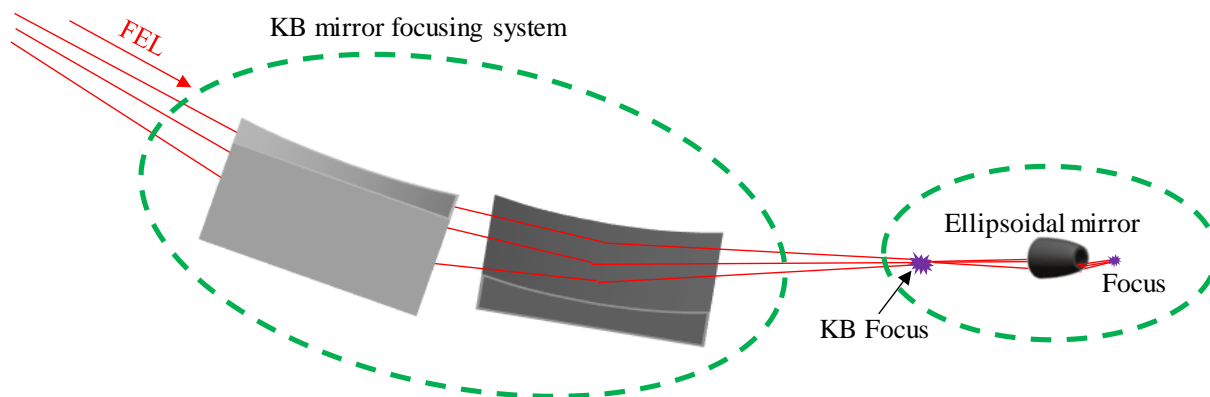


図4.2 KBミラーと回転楕円ミラーから構成される二段集光システムのイメージ図。小型の回転楕円ミラーで全ビームを反射できるように、KBミラーでビームを集光し、再び発散する光のサイズが大きくなる前に回転楕円ミラーで受光する。

## 4.5 軟 X 線 FEL パルス照射耐性調査

本集光システムにおいて、回転楕円ミラー入射時のビームサイズは、KB ミラーの集光点から回転楕円ミラーまでの距離で決まる。例えば、KB ミラーの集光点よりも 0.5 m 下流ではビームサイズは~2.5 mm となる。ビームサイズが小さいほど回転楕円ミラーの小型化が可能となり、高精度加工も容易となる。

ところが、ビームサイズが小さくなると単位面積あたりの FEL 強度が上昇し、ミラー表面の損傷を引き起こす可能性がある。FEL 用の X 線集光素子を設計する場合、ミラーを損傷することなく受光できる最小ビームサイズを知る必要がある<sup>[97]-[101]</sup>。

本節では、回転楕円ミラーの光学設計に先立ちミラー材料の軟 X 線 FEL パルスに対する照射耐性を調査する。

### 4.5.1 材料の選定

現状の回転楕円ミラー製作プロセスで使用されているニッケルと、軟 X 線領域において高い反射率を示すルテニウムを調査対象とした<sup>[102]</sup>。図 4.3 に、軟 X 線が斜入射角度 140 mrad でニッケル、ルテニウムに入射した場合の反射率グラフを示す<sup>[74]</sup>。光子エネルギー 50~150 eV の領域においてルテニウムの反射率がニッケルを上回っている。ルテニウムを使用した電鍍は現実的ではないが、ニッケルで製作したミラーの内面にルテニウムをコーティングすることは不可能ではない。以上の観点から、ニッケルとルテニウムを調査対象とした。

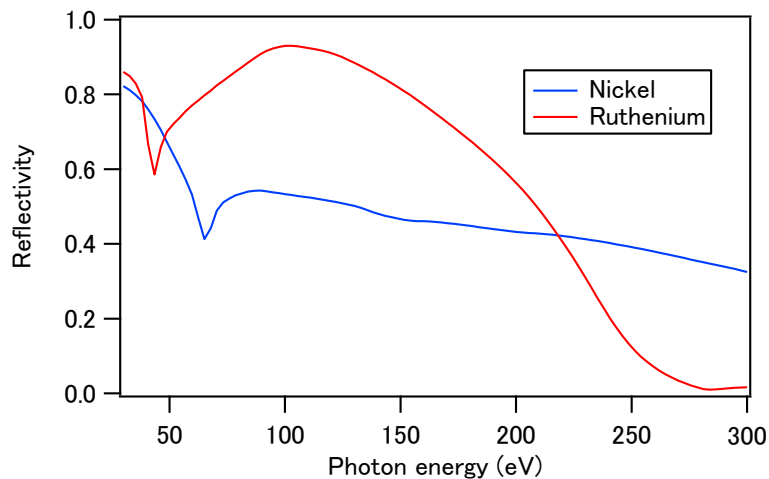


図 4.3 光子エネルギー 100 eV の軟 X 線が斜入射角度 140 mrad でニッケル、ルテニウムに入射したときの反射率曲線を示したグラフ。

### 4.5.2 実験セットアップ

軟X線FELをミラー材料に入射させ、ダメージが起きるFEL強度密度の閾値を決定する。実験の流れは次の通りである。

- ① FELの強度と斜入射角度を変えながら照射試験片にFELを照射する。
- ② 実験終了後に照射痕を白色干渉計で計測する。
- ③ 照射痕の計測結果からミラー材料にダメージが生じる閾値を決定する。

図4.4に照射耐性調査の実験セットアップを示す。照射試験片は、光軸に対して直入射、斜入射(140 mrad)、斜入射(280 mrad)の3条件で設置する。入射FEL強度はガスアッテネータ内の窒素圧力を変化させることで制御する。照射基板は真空対応自動ステージに取り付け、照射痕を形成する毎に基板の位置を移動する。この際、照射痕の位置がマトリクスになるように基板の位置を移動する。

白色干渉計による計測時、サンプルは自動ステージ上に配置し、照射痕の配置にしたがってサンプル位置を移動しながら各点を計測する。こうすることで、ダメージが生じない条件で照射した位置を含めてすべての照射位置を確実に計測できる。

FELの光子エネルギーは100 eVとし、サンプル入射時のビームサイズは図4.5に示すようにKBミラーで半値幅 $34 \times 37 \mu\text{m}^2$ に調整した。照射試験片として、シリコンウエハ上に成膜した膜厚50 nmのニッケル膜とルテニウム膜を用意した。また、SACLA BL1では、アンジュレータ放射による3次光の割合は0.3%程度であると見積もられている<sup>[95]</sup>。本実験ではアッテネーションガスに窒素を用いており、3次光である300 eVの光に対する減衰率が低い。そのため、光学ハッチ内の膜厚0.5  $\mu\text{m}$ 、0.1  $\mu\text{m}$ のZrフィルターを挿入し、あらかじめ3次光の強度を無視できるレベルまで減衰させた状態で実験を行った。

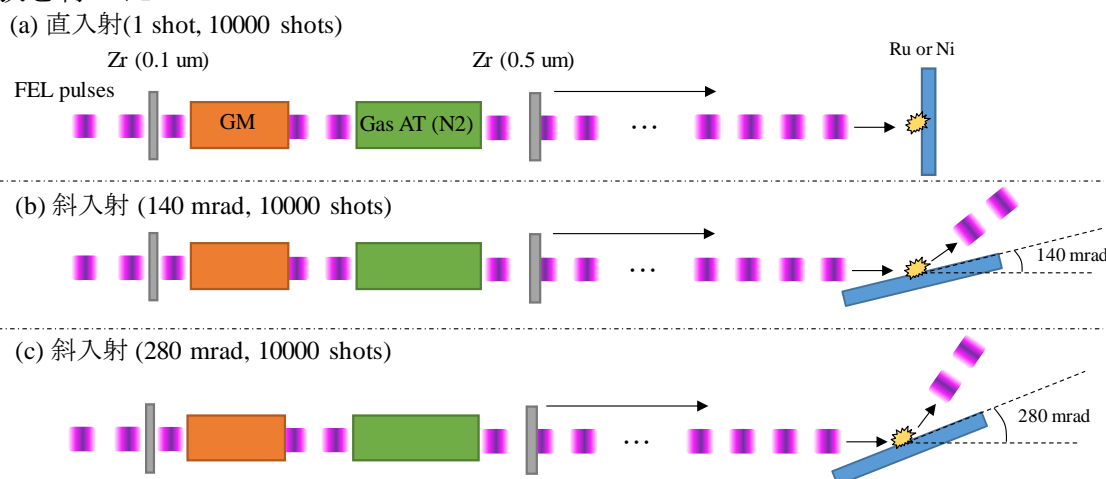


図 4.4 ミラー材料照射試験の実験セットアップ。入射角度は、(a) 直入射 (b) 斜入射(140 mrad) (c) 斜入射(280 mrad)の3条件とし、直入射条件ではさらに1 shotと10000 shotの2条件で照射耐性を調査した。

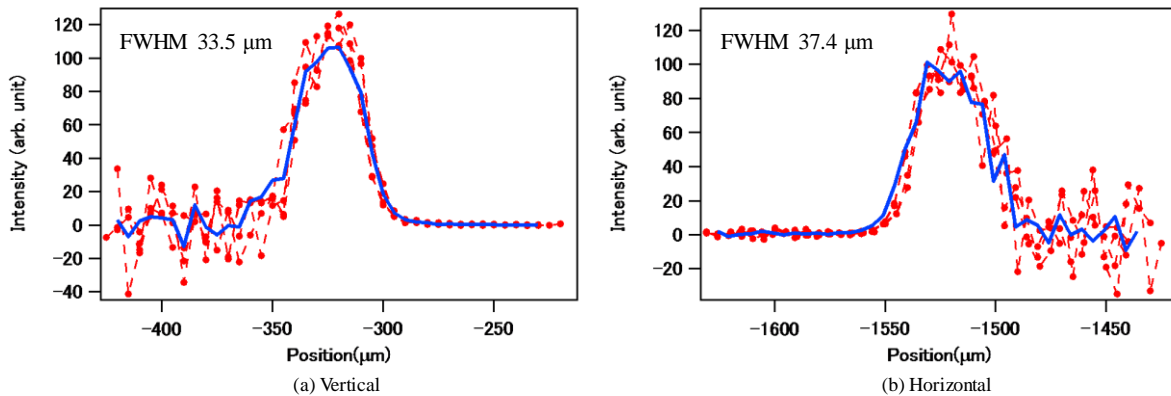


図 4.5 (a)鉛直方向, (b)水平方向に関してナイフエッジスキャン法で計測した集光プロファイル. 鉛直・水平両方向のビームサイズはそれぞれ FWHM 33.5  $\mu\text{m}$ , 37.4  $\mu\text{m}$  であった.

### 4.5.3 直入射条件

直入射条件で行った実験結果を示す. 1 箇所当たりのショット数は, 1 ショット, 10000 ショットの 2 条件とした. 1 ショット照射試験では, ガスアッテネータの圧力は 0~70 Pa の間で段階的に変化させ, 各圧力値に対して 19 箇所の照射痕を形成した. 図 4.6 に 1 ショット照射による照射痕の計測例とその断面プロファイルを示す. このように, 照射痕は白色干渉計で計測することが可能であり, ダメージの度合いはショット痕の深さで定量化できる.

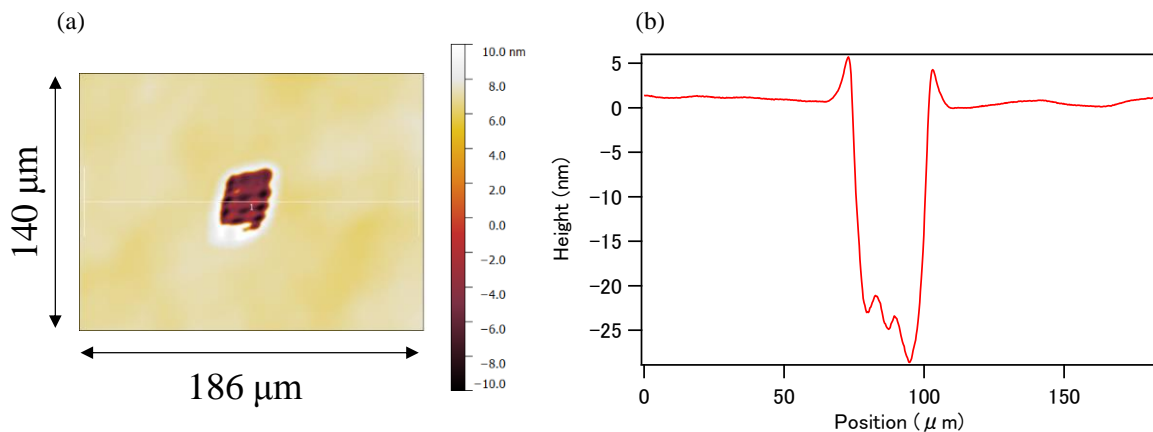


図 4.6 (a)直入射条件で 1 ショット照射時に形成された照射痕の白色干渉計による計測例と, (b)断面プロファイル.

入射 FEL 強度と照射痕深さの関係をプロットしたグラフを図 4.7 に示す. 横軸がサンプル到達時点の FEL 強度, 縦軸が照射により生じたクレーターの深さを示している. クレーターの深さは, 計測された高さデータの最大値と最小値の差として定義した. また, ホコリや傷によるノイズを含んだ計測データは目視で判断して取り除いた.

グラフからわかる通り、ルテニウムとニッケルの両材料において、ある強度を超えた辺りからクレーター深さが急激に上昇している。ルテニウムの場合は、 $1\mu\text{J}$ 、ニッケルの場合は  $0.3\mu\text{J}$  付近に閾値が存在する。

各入射強度で形成した照射痕の代表的な干渉計計測結果を図 4.8 に示す。上段がルテニウム、下段がニッケルの結果である。ルテニウムの場合、 $1\mu\text{J}$  時点ではわずかに照射のあとが見られるが、 $0.8\mu\text{J}$ 、 $0.6\mu\text{J}$  では見られないため、ルテニウムの1ショットダメージ閾値は  $0.8\mu\text{J}$  とした。ニッケルの場合、 $0.4\mu\text{J}$  ではわずかにダメージの痕が見られ、 $0.2\mu\text{J}$  の場合ダメージは見られないため、ダメージ閾値は  $0.2\mu\text{J}$  とした。

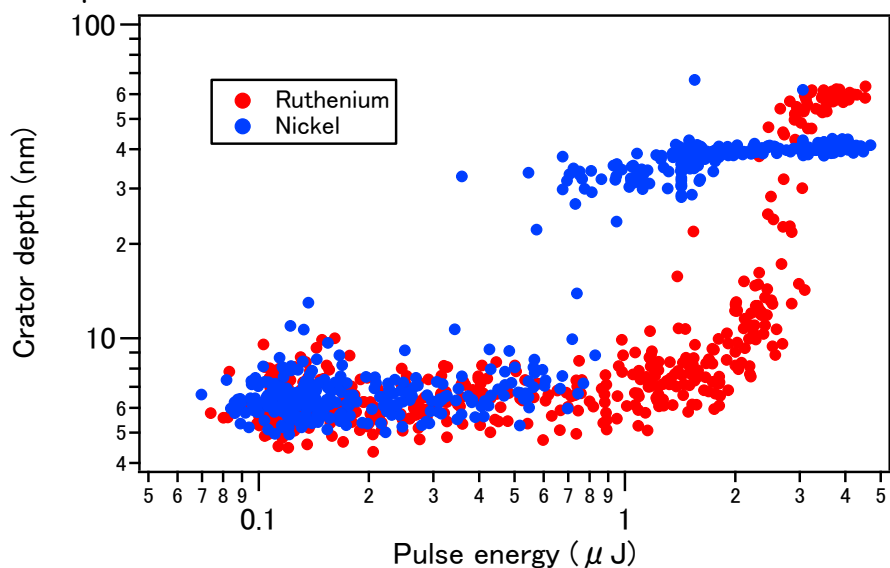


図 4.7 パルスエネルギーの大きさに対するショット痕の深さを両対数グラフ上にプロットしたグラフ。ルテニウムとニッケルでは照射耐性に違いがある。

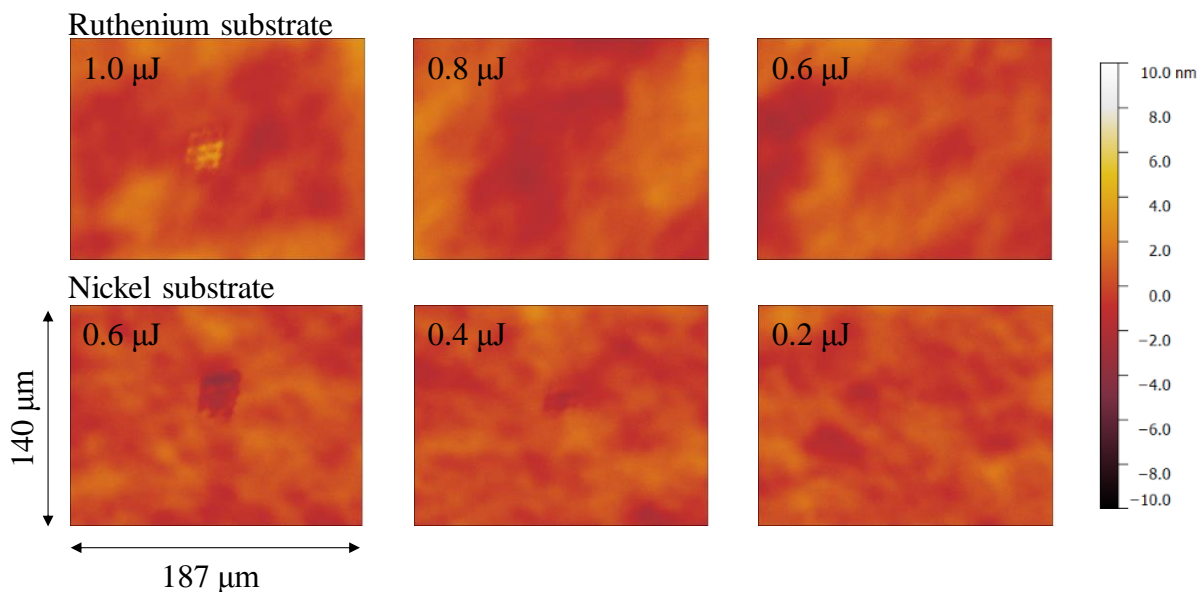


図 4.8 1 shot 照射で形成された照射痕を白色干渉計で計測した結果。

次に、10000 ショット照射時の実験結果を示す。各ガス圧に対して 1 箇所のショット痕を形成した。ニッケルの照射痕計測結果を図 4.9 に示す。ガスアッテネータ内の窒素圧力が 10~25 Pa の場合は照射の痕が見られるが、30 Pa、40 Pa では見られない。そのため、10000 ショット時のニッケルのダメージ閾値はガスアッテネータの圧力が 30 Pa の場合の平均強度とした。

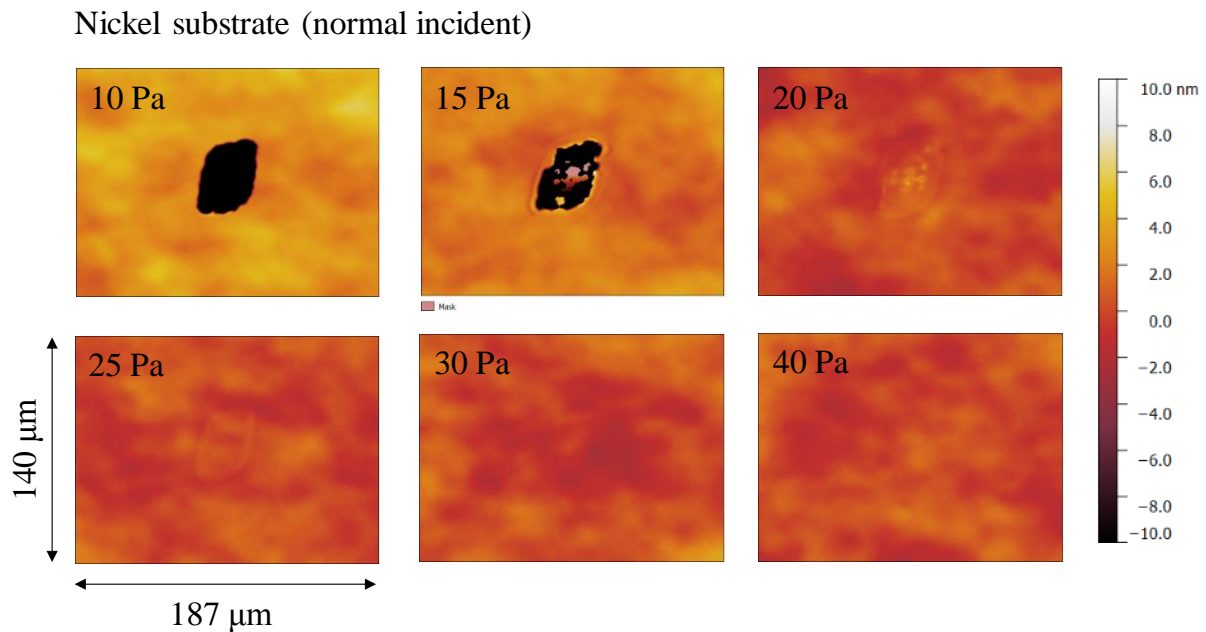


図 4.9 直入射条件でニッケルに 10000 shot 入射させて形成した照射痕を白色干渉計で計測した結果。各グラフ左上の値は、照射中のガスアッテネータの圧力値を示す。30 Pa を境に照射痕は形成されていないことがわかる。

同様にルテニウムの照射痕計測結果を図 4.10 に示す。10~25 Pa の場合は照射の痕が見られるが、30 Pa、40 Pa では見られない。そのため、10000 ショット時のルテニウムのダメージ閾値は、ガスアッテネータの圧力が 30 Pa の場合の平均強度とした。

また、図 4.11 に、各ガスアッテネータ圧力における照射位置付近の断面プロファイルを示す。例えば、ガスアッテネータ圧力 20 Pa で Ni に照射した場合の結果に着目すると、断面グラフではダメージは確認できないが、図 4.9 の干渉計イメージからはビーム形状を反映した明らかな照射の跡が見られる。これは、FEL 照射時にミラー面上に発生したコンタミネーションの影響であると考えられる。形状変化は干渉計で計測できないレベルであるが、反射率の低下などを引き起こす可能性がある。そのため、断面グラフの結果ではなく、干渉計イメージ上のビーム痕の有無によりダメージ閾値を判定した。次節以降の斜入射条件におけるダメージ試験においても、同様の理由からビーム痕の有無でダメージ閾値を決定している。

1 ショット照射時はニッケルとルテニウムのダメージ閾値に大きな開きがあったが、

10000 ショット照射では大差のない値となった。なお、本節ではダメージの閾値をガスアッテネータの圧力として示したが、単位面積あたりの入射強度(フルエンス値)に換算した値は、4.5.7 節で全実験データに関してまとめて示す。

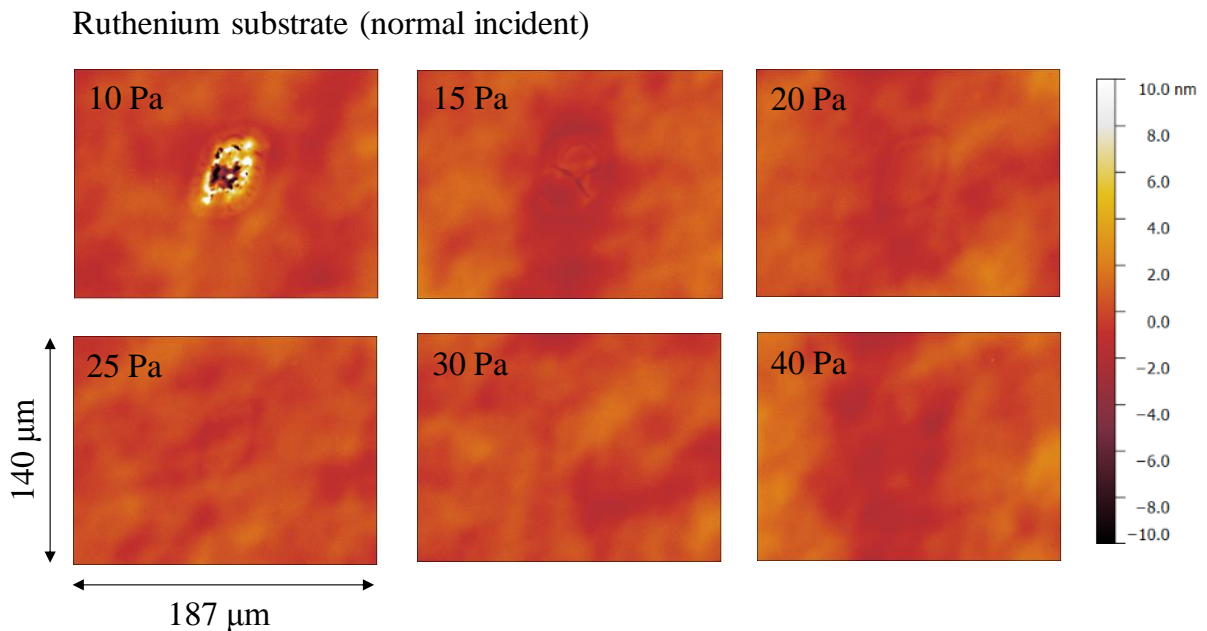


図 4. 10 ルテニウムに軟 X 線 FEL を 10000 shot 入射させて形成した照射痕を白色干渉計で計測した結果。ルテニウムの場合も 30 Pa を境に照射痕が見られなくなった。

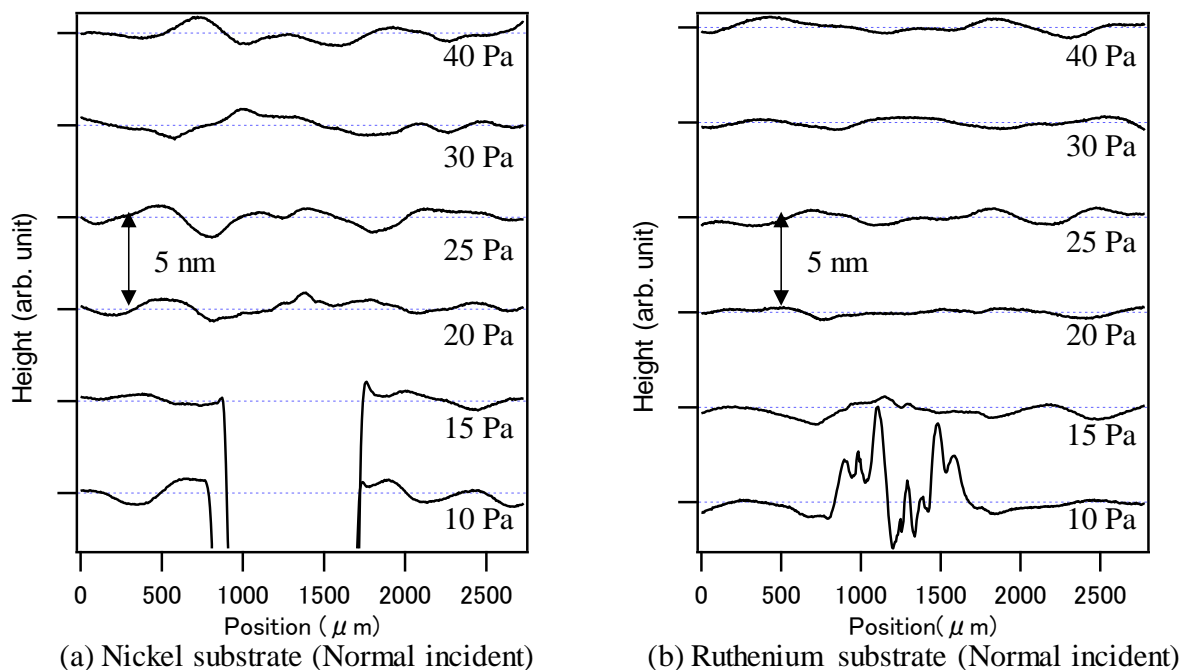


図 4. 11 (a)ニッケルと(b)ルテニウムに直入射条件で形成した照射痕の断面プロファイル。



## 4.5.4 斜入射条件(140 mrad)

基板に対する FEL の斜入射角度を 140 mrad とした場合の照射耐性調査の結果を示す。ニッケルの結果を図 4.12, ルテニウムの結果を図 4.13, 照射位置付近の断面プロフィールを図 4.14 に示す。一枚の画像に最大 3 箇所の照射痕が見られるが, 中央に位置するものが, 注目している照射痕であり, 上下の照射痕は, 別の圧力条件で形成したものである。ニッケルの場合は 15Pa, ルテニウムの場合は 1Pa の時点で照射痕は確認できなくなる。斜入射条件では, ルテニウムの照射耐性がニッケルを上回る結果となった。

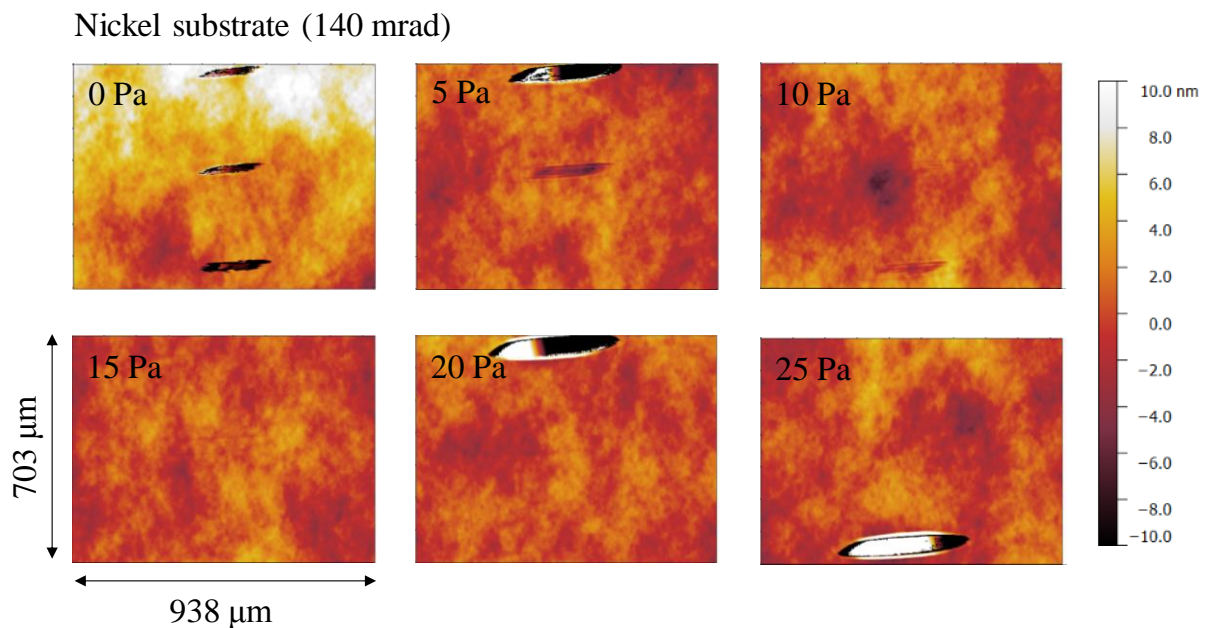


図 4.12 ニッケルに斜入射角度 140 mrad で 10000 shot 照射した場合の照射痕計測結果.

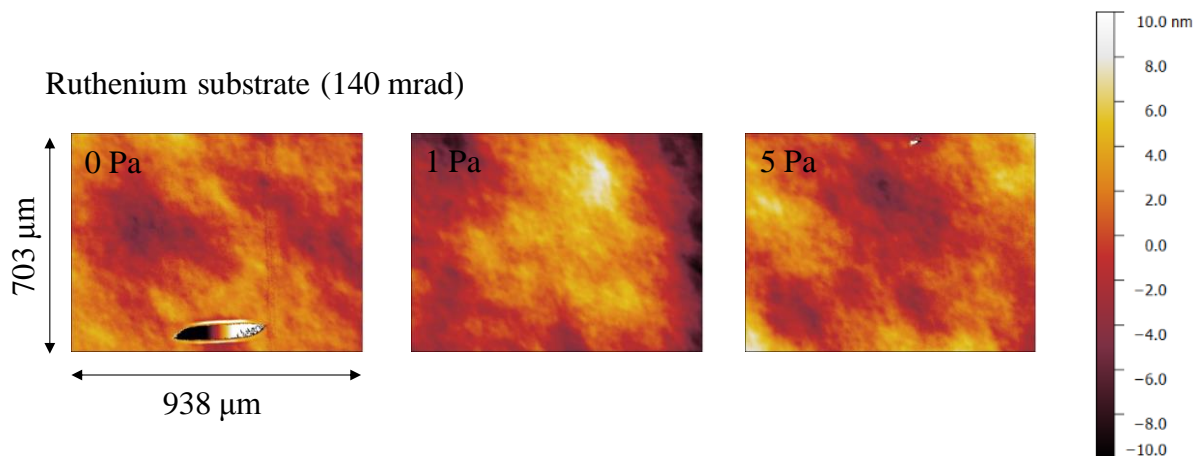


図 4.13 ルテニウムに斜入射角度 140 mrad で 10000 shot 照射した場合の照射痕計測結果.

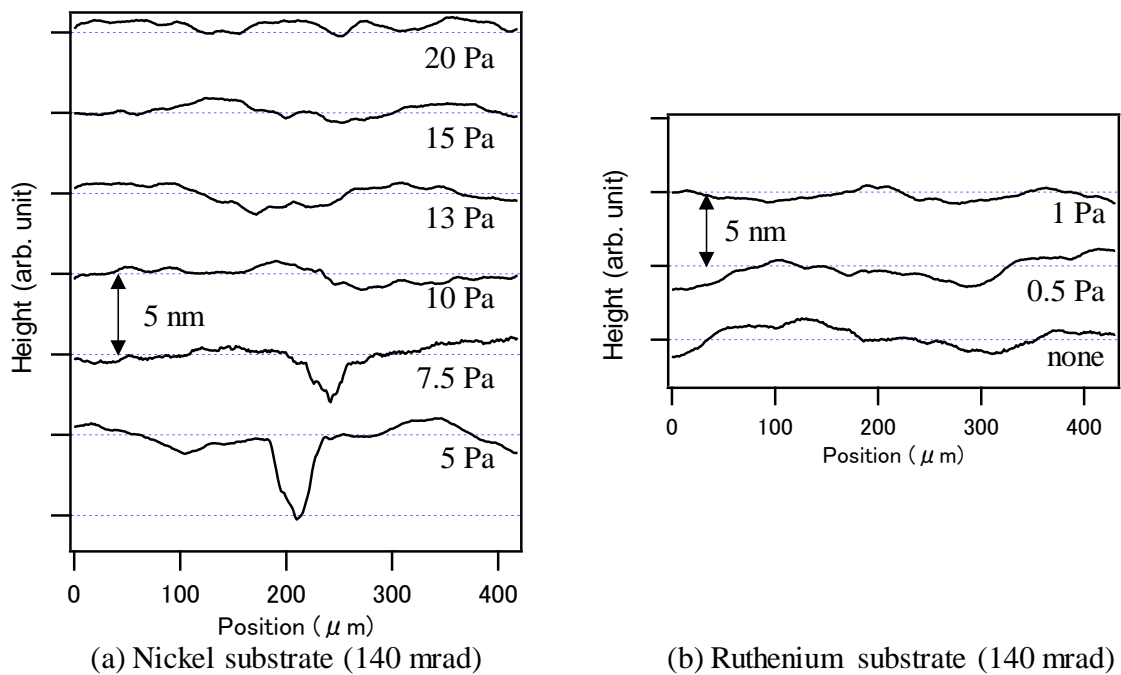


図 4. 14 (a)ニッケルと(b)ルテニウムに斜入射角度(140 mrad)で形成した照射痕の断面プロフィール.

#### 4.5.5 斜入射条件(280 mrad)

基板に対する FEL の斜入射角度を 280 mrad に調整した場合の照射耐性調査の結果を示す. ニッケルの結果を図 4. 15, ルテニウムの結果を図 4. 16, 照射位置付近の断面プロフィールを図 4. 17 に示す. ニッケルの場合は 25 Pa, ルテニウムの場合は 15 Pa の時点で照射痕が確認されなくなった. 斜入射角度 280 mrad の場合も, ルテニウムの照射耐性がニッケルを上回る結果となった.

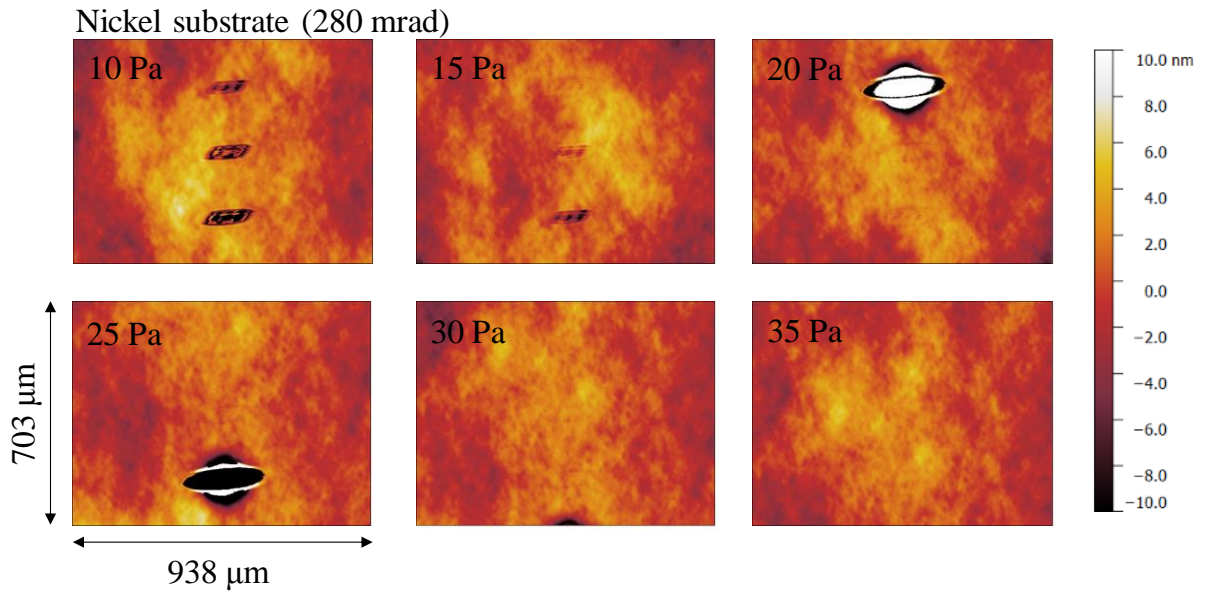


図 4.15 ニッケルに斜入射角度 280 mrad で 10000 shot 照射した場合の照射痕計測結果.

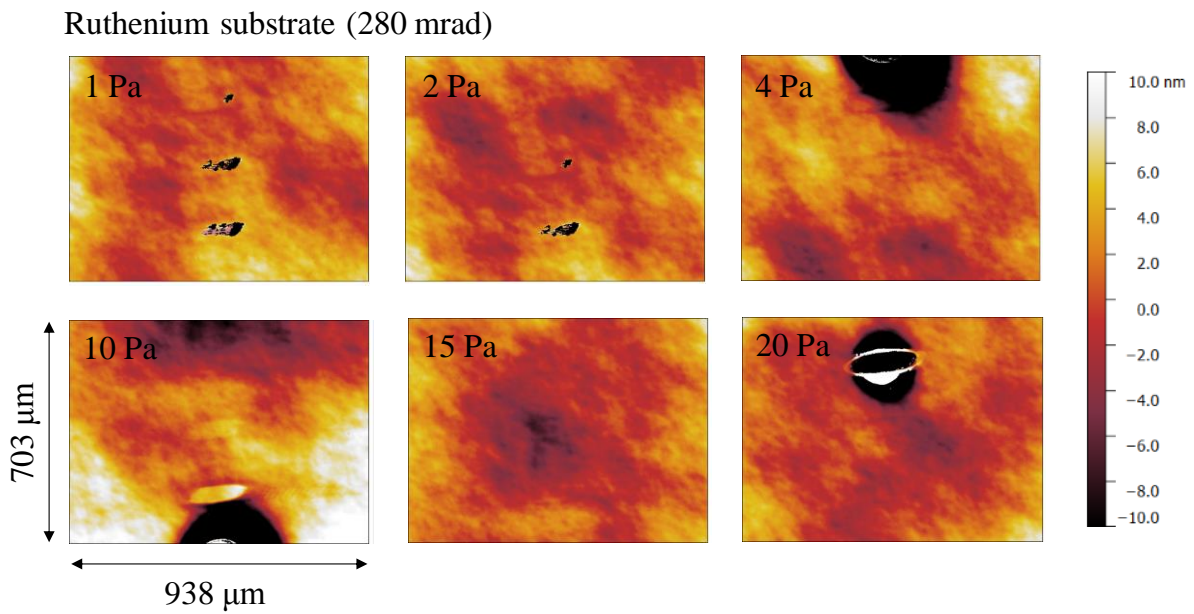


図 4.16 ルテニウムに斜入射角度 280 mrad で 10000 shot 照射した場合の照射痕計測結果.

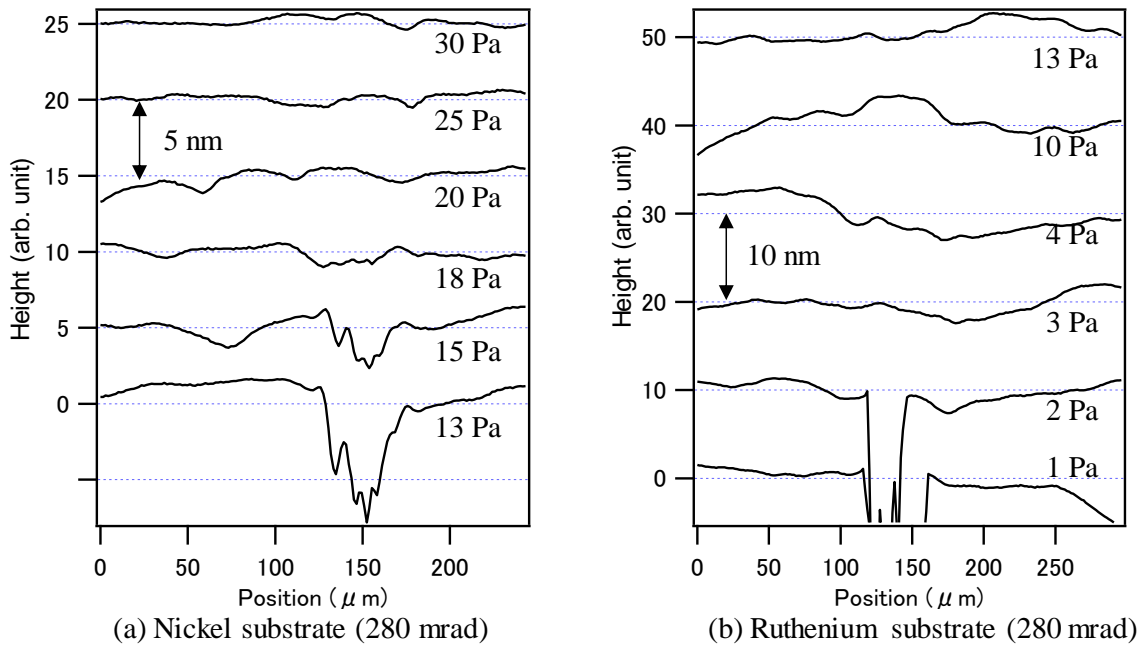


図 4. 17 (a)ニッケルと(b)ルテニウムに斜入射角度(280 mrad)で形成した照射痕の断面プロフィール.

#### 4.5.6 計算値との比較

実験で得られたダメージ閾値の妥当性を検討するために、ダメージ閾値の理論値を計算する。先行研究を参考にして、熱力学的な見地に基づいて計算する<sup>[97]</sup>。軟 X 線 FEL パルスが基板に入射した際、パルスの持つエネルギーが熱量として基板に注入され基板材料の温度が上昇すると仮定する。基板の到達温度が材料の融点を超える時、ダメージが生じると仮定する。

まず、照射材料（ニッケルとルテニウム）の融点や熱容量等のデータから、材料の温度を常温(25 °C)から融点まで高めるのに必要な熱量を計算する。1 原子当たりの熱量に換算した値  $D_{th}$  (J) は、次式から計算される。

$$D_{th} = \left\{ C_L + \int_{T_S}^{T_M} C_V(T) dT \right\} \times \frac{M}{N_A} \quad (4.1)$$

ここで、 $C_L$ は潜熱、 $C_V$ は比熱、 $T_M$ は融解温度、 $T_S$ は常温(25°C)、 $N_A$ はアボガドロ定数、 $M$ は原子量とした。

光軸に垂直な平面内における単位面積あたりの熱量をフルエンス  $F$  (J/μm<sup>2</sup>)として定義する。FEL が角度  $\theta$  で基板に入射する時、基板で消費される実効的なフルエンスは反射率  $R$  を用いて  $(1-R)F$  と表される。ここで、反射率は斜入射角度に依存して変化する。一方で、単位面積サイズのビームが斜入射角度  $\theta$  で基板に入射した際の基板上的

受光面積は  $l/\sin\theta$  である。基板内部への軟 X 線侵入深さを  $d$  とすると、FEL 熱量が消費される空間の体積は  $d/\sin\theta$  となる。  $d/\sin\theta$  内に含まれる基板材料の原子数は、密度  $\rho$  を用いて、  $(\rho d/\sin\theta) \times (N_A/M)$  として表されるため、角度  $\theta$  で入射した際の基板のダメージ閾値は、  $D_{th} \times (\rho d/\sin\theta) \times (N_A/M)$  と表される。フルエンス閾値を  $F_{th}$  とすると、  $D_{th}$  との関係が次式で表される。

$$(1 - R)F_{th} = \frac{D_{th}\rho N_A d}{M \sin\theta}$$

$$F_{th} = \frac{D_{th}\rho N_A d}{M(1 - R)\sin\theta} \quad (4.2)$$

ここで、  $n=1-\delta+i\beta$  を X 線の複素屈折率とすると X 線侵入深さ  $d$  は次式で計算される。

$$d = \frac{\lambda}{2\sqrt{2}\pi \sqrt{\sqrt{(2\delta - \theta^2)^2 + 4\beta^2} + 2\delta - \theta^2}} \quad (4.3)$$

硬 X 線 FEL を仮定している先行研究では、  $d$  を計算する際に補正項として electron collision length の影響を考慮しているが、軟 X 線領域においてこの影響は無視できるほど小さいため今回は考慮していない<sup>[97]</sup>。

式(4.2), (4.3)を用いることで、物性定数のみから材料のダメージ閾値を計算することができる。ニッケルとルテニウムのフルエンス閾値の計算結果を、前節までに得られた実験結果と合わせて図 4.18 に示す。実験結果は、フルエンス値に換算してある。実験結果は、計算結果と完全には一致していないが、斜入射角度 140 mrad でフルエンス閾値が上昇する点や、斜入射角度 280 mrad と直入射条件で閾値の値が大きく変化しない点など、概ねの傾向は一致している。直入射条件における 10000 ショット照射時の結果のみ、理論値から大きく外れているが、これは 10000 ショット中に含まれる FEL のうち特異的に高強度パルスが発生したためと考えられる。

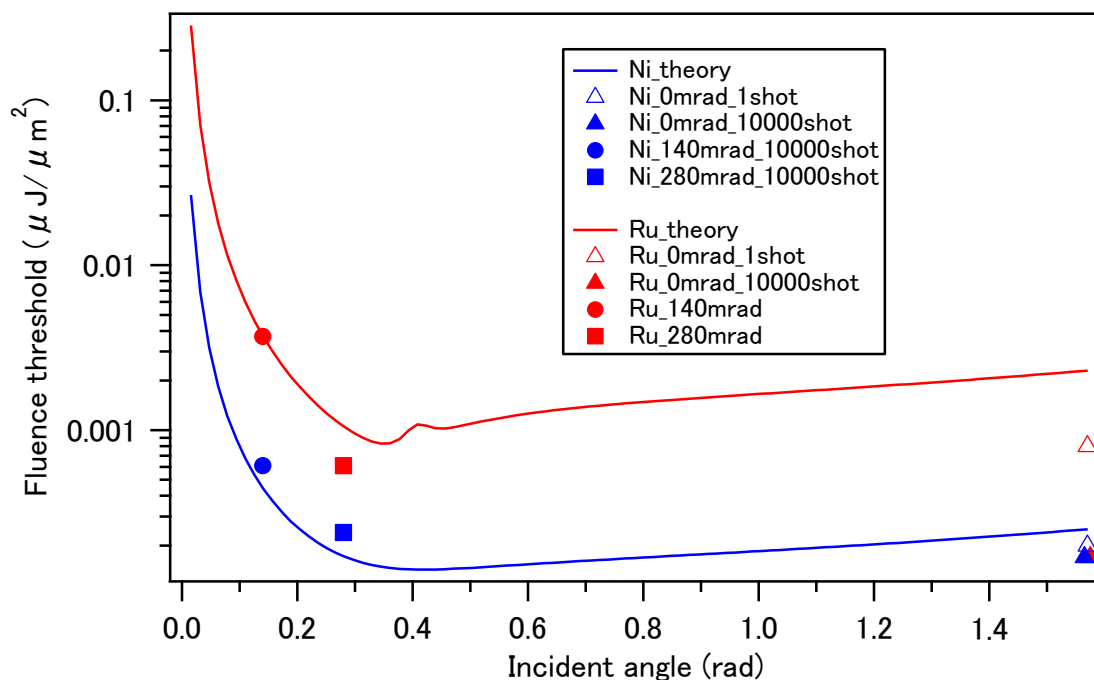


図 4.18 ミラー表面にダメージが生じるフルエンス閾値の計算結果(実線)と実験値をプロットしたグラフ。計算結果と実験から得られた値は、概ね傾向が一致している。

#### 4.5.7 ダメージ試験まとめ

本節では、軟 X 線 FEL 用集光素子の設計に先立ち、ミラー材料の照射耐性を調査した。照射耐性試験の結果から、各条件におけるダメージ閾値を見積もることができた。また、得られた結果は熱力学的見地にもとづいて計算した値と整合性があることを示していた。表 4.1 に各実験の結果と計算値をまとめる。これらの結果をもとに、軟 X 線 FEL 用回転楕円ミラーの光学設計を行う。

表 4.1 照射耐性試験における照射条件

斜入射角度	ショット数	Ni (nJ/μm <sup>2</sup> )		Ru (nJ/μm <sup>2</sup> )	
		実験値	計算値	実験値	計算値
1.57 rad (直入射)	1	0.2	0.22	0.8	2.0
1.57 rad (直入射)	10000	0.17		0.17	
140 mrad	10000	0.61	0.44	3.7	3.74
280 mrad	10000	0.24	0.17	0.61	1.05

## 4.6 光学設計

図 4.2 で示したコンセプトのもと、KB ミラーと回転楕円ミラーを組み合わせた二段集光システムを設計する。入射する FEL の光特性は、光子エネルギー 100 eV、パルスエネルギー 200  $\mu\text{J}$  と仮定した。パルスエネルギーを実際より高く見積もったのは、特異的に高強度な FEL パルスが発生した場合に備えるためである。ミラーへの斜入射角度は 140 mrad とした。前節の FEL 照射耐性試験の結果から、斜入射角度 140 mrad におけるフルエンス閾値は  $0.6 \text{ nJ}/\mu\text{m}^2 = 0.0006 \mu\text{J}/\mu\text{m}^2$  であった。ミラー表面にダメージを生じさせることなく照射するためには、軟 X 線 FEL のビーム直径  $D$  が次の条件を満たす必要がある。

$$\frac{200 (\mu\text{J})}{\pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 (\mu\text{m}^2)} \leq 0.0006 \left(\frac{\mu\text{J}}{\mu\text{m}^2}\right) \Leftrightarrow D \geq 651.3 (\mu\text{m}) \quad (4.4)$$

例えば KB ミラー入射時のビームサイズが 10 mm の場合、KB ミラーの集光点から 500 mm 下流ではビームサイズは 2.5 mm 程度に広がる。この位置に回転楕円ミラーを配置すればミラー表面にダメージが生じることはない。

回転楕円ミラーの光学設計パラメータを図 4.19 と表 4.2 に示す。第 3 章と同様、部分照明条件での利用を想定している。回転楕円ミラーの設計上の光源点は、KB ミラーの集光点となる。光源点から集光点までの距離は 500 mm とし、最大斜入射角度は 140 mrad とした。回転楕円ミラーの長さは、直径 2.5 mm のビームを受光できるように 50 mm とした。ワークディスタンスは 10 mm とし、実効的な焦点距離は  $10+50/2 = 35 \text{ mm}$  となる。KB ミラーによる集光サイズを半値幅 10  $\mu\text{m}$  と仮定した場合、縮小倍率から計算される予想集光サイズは  $10 \mu\text{m} \times 35/465 = 750 \text{ nm}$  となる。

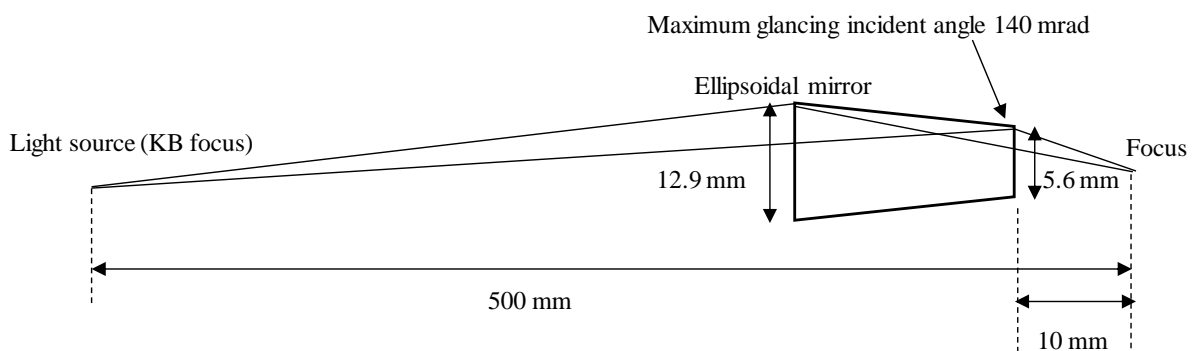


図 4.19 KB ミラーによる軟 X 線 FEL 集光点を仮想光源として回転楕円ミラーを設計した場合の光学設計を示した図。入射するすべてのビームを反射できるように設計されている。

表 4.2 実験に使用した回転楕円ミラーのパラメータ

パラメータ	値
長軸 (mm)	250.2
短軸 (mm)	9.95
焦点間距離 (mm)	500
最大斜入射角度 (mrad)	140
ワークディスタンス (mm)	10

製作した回転楕円ミラーマンドレルの長手方向の形状を、円周方向に 30 deg のピッチで計測したデータを図 4.20 に示す。いずれのラインにおいても、有効領域の大部分において形状精度 PV 20 nm が達成されている。電鋳法により形成したミラーの写真を図 4.21 に示す。



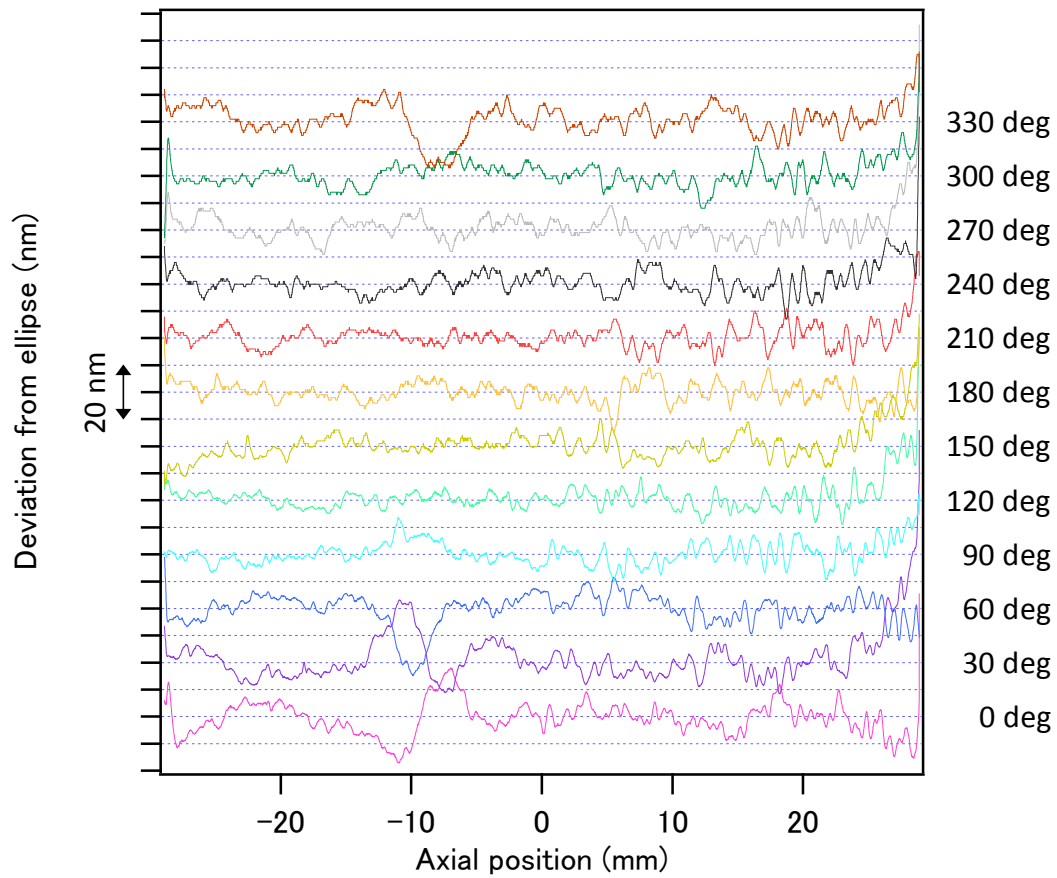


図 4.20 回転楕円マンドレルの長手方向形状計測データ.

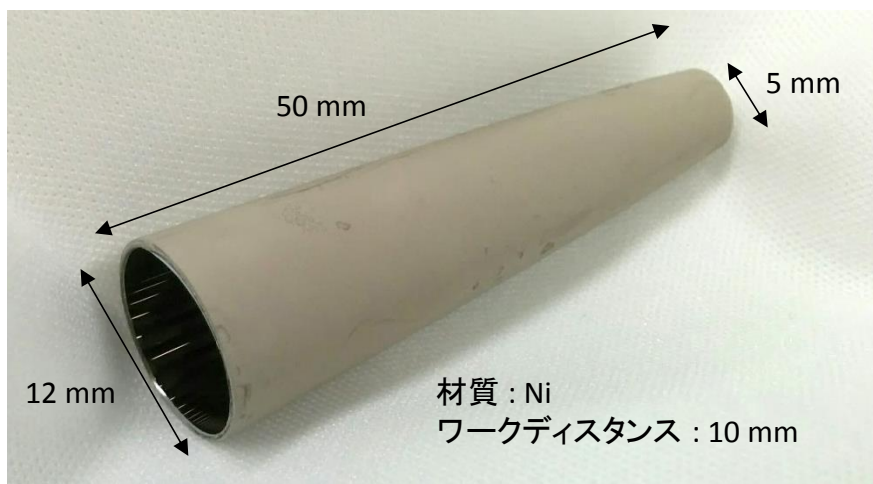


図 4.21 製作した回転楕円ミラーの写真.

## 4.7 集光システムの構築

SACLA BL1 において構築した集光システム全体の様子を図 4.22 に示す。実験チャンパー内には、回転楕円ミラーマニピュレータと光検出器から構成される集光システムが配置されている。

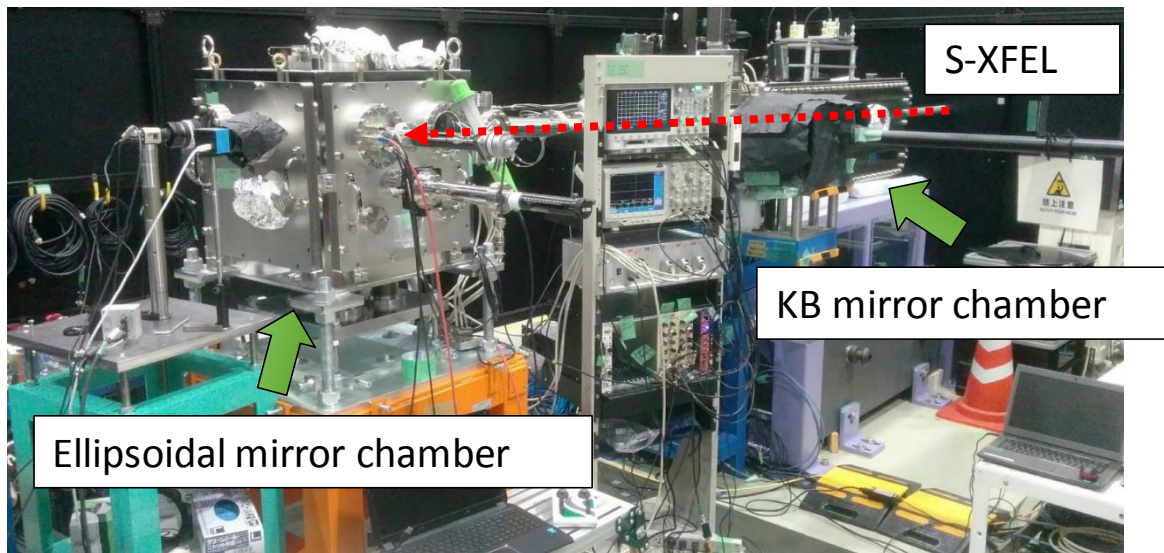


図 4.22 SACLA Beamline 1 に構築した軟 X 線 FEL 集光システムの写真。

### 4.7.1 マニピュレータ

図 4.23 に示すようにミラーの駆動機構はピエゾステージとパルスモータ駆動ステージから構成される。Z 方向をパルスステージで駆動し、他の 5 軸方向はピエゾステージで駆動する。ピエゾステージの耐荷重は数 100 g と比較的低いが、重さ 10 g 程度の回転楕円ミラーをマニピュレーションするには十分である。また、最小回転分解能は  $0.1 \mu\text{rad}$  であり必要アライメント精度を満足している。

また、仮想光源(KB ミラー集光点)のサイズと、回転楕円ミラー反射後の集光サイズを計測するために、それぞれの位置にナイフエッジを取り付けたピエゾステージを設置している。

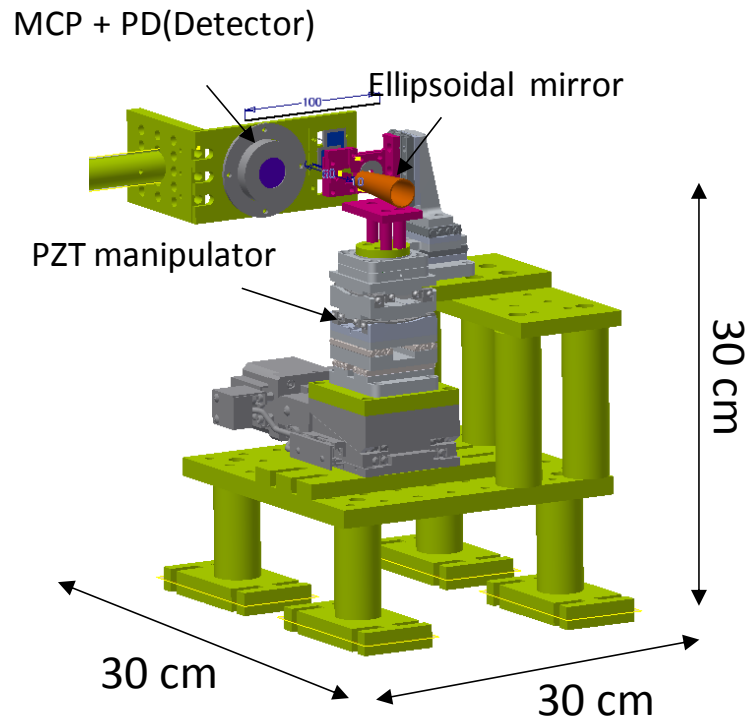


図 4.23 実験チャンバー内に設置した回転楕円ミラーマニピュレータの CAD 図. 5 軸の Piezostage とパルスモータ駆動ステージから構成される. ナイフエッジは面内方向の 2 軸と光軸方向の 3 軸駆動が可能な Piezostage に取り付け, ナイフエッジの下流には MCP とフォトダイオードが取り付けられている.

#### 4.7.2 光検出器

ナイフエッジスキャンで集光プロファイルを計測する際, ダイヤモンドバイトの先端が FEL によりアブレーションする可能性がある. そのため, FEL 強度を十分減衰させたいうえで集光実験を行う必要がある. 微弱な光を検出するため, 反射光の検出には第 3 章で構築した集光システムと同様 MCP を使用した. 反射光の強度分布は Phosphor スクリーンを介して CCD カメラで取得し, 反射光の相対強度はカップラー回路を介して取り出した MCP 電流を電圧に変換し, データロガーで計測する. MCP の横には Photo diode(PD)が取り付けられており, 実験実施時の FEL の光特性の計測に使用する.

## 4.8 集光実験

構築した集光システムを利用して軟 X 線 FEL 集光実験を実施した。FEL の光子エネルギーは 100 eV とした。FEL の発振周波数は 60 Hz, ミラー到達時点でのパルスエネルギーは約 20  $\mu\text{J}$  であるため, 平均出力は 1.2 mW 程度である。ミラーは真空雰囲気中に配置され放熱速度は遅いものの, FEL 照射によるミラー全体の温度上昇は無視できると考えられる。第3章で示した集光調整手順に従って回転楕円ミラーのアライメント調整を行った後, ナイフエッジスキャンにより集光プロファイルを計測した。

### 4.8.1 集光プロファイル

図 4.24 に, 鉛直, 水平方向における, 集光プロファイル計測結果を示す。グラフ中の実線は実験値に最小自乗近似したガウシアンプロファイルである。集光サイズは半値幅で, 鉛直方向に 500 nm, 水平方向に 550 nm であり sub-1- $\mu\text{m}$  集光を実現した。全反射型集光素子で軟 X 線 FEL を集光したものの中では最小の集光サイズである。

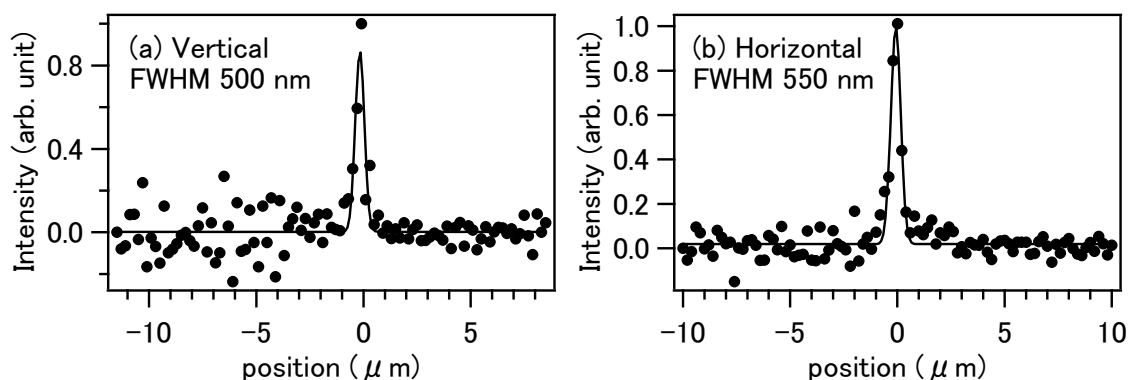


図 4.24 (a)鉛直方向, (b)水平方向における集光プロファイルの計測結果と最小自乗近似したガウシアンカーブ(実線)を示した図。鉛直方向に 500 nm, 水平方向に 550 nm の集光サイズが得られた。

次に, ナイフエッジをデフォーカス方向に移動させ, 各デフォーカス位置で集光プロファイル計測を行った。鉛直, 水平両方向に計測した結果をビームウェストに変換したグラフを図 4.25 に示す。それぞれのグラフは, 鉛直, 水平方向における光軸方向の強度分布を表している。ナイフエッジのデフォーカス方向の送りピッチは 5  $\mu\text{m}$  である。水平方向の集光位置が光軸に対して傾斜しているのは, 回転楕円ミラーを部分照明しており反射光が光軸に対して傾斜しているためである。鉛直, 水平方向の光軸方向焦点位置は, エンコーダレベルで一致している。

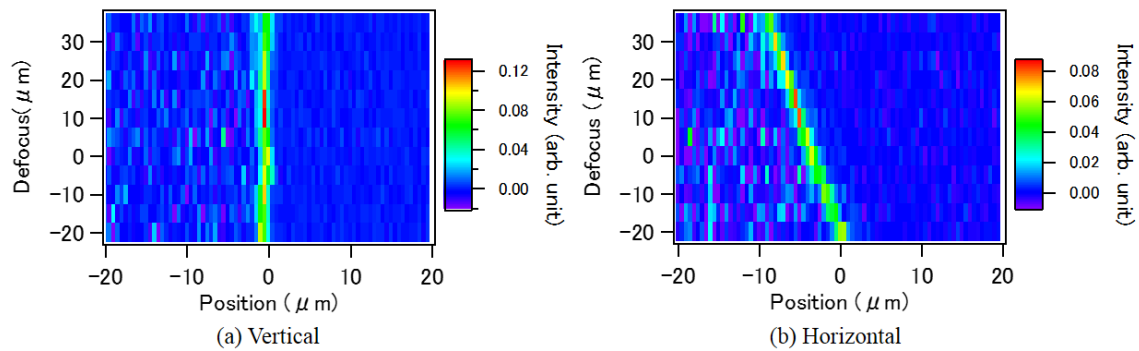


図 4.25 (a)鉛直方向, (b)水平方向におけるビームウェスト計測結果. 鉛直, 水平方向の集光点がエンコーダレベルで一致している.

#### 4.8.2 フルパワー照射耐性

ここまでの集光特性評価は, ガスアッテネータ圧力を 100 Pa 以上にして, FEL 強度を十分減衰させた状態で行った. 次に, フルパワーの FEL を 3 時間以上ミラーに照射し, 照射前後の集光プロファイルと比較した. 図 4.26 に, フルパワー照射直前, 直後に計測した集光プロファイルを示す. グラフからわかる通り, フルパワー照射による顕著な集光性能の劣化は見られなかった. また, 実験終了後目視でミラー表面を確認したが, ダメージの痕は見られなかった. 以上のことから, 回転楕円ミラーの表面はフルパワーの FEL 照射に対して十分な耐性を持つことがわかった.

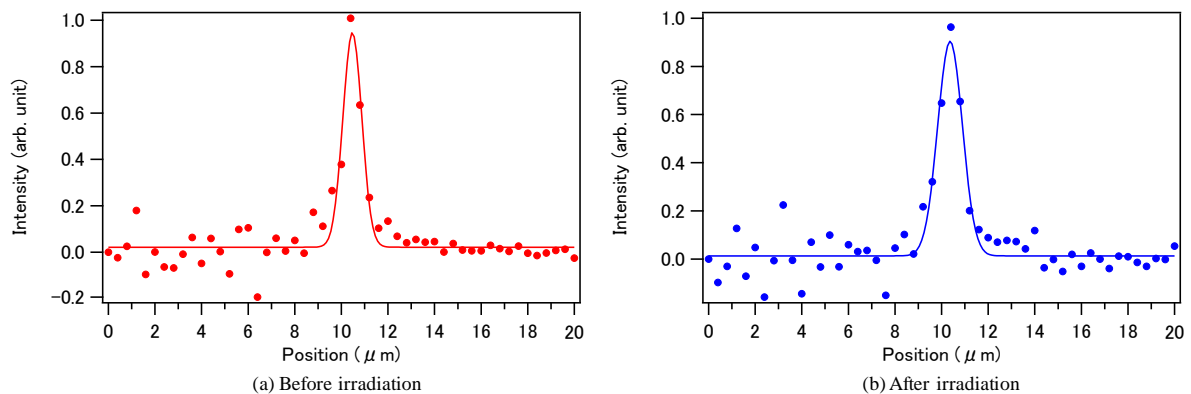


図 4.26 フルパワー-FEL を(a)照射する前と(b)照射した後に計測した集光プロファイル. 照射前後に計測した集光プロファイルの間に顕著な違いは確認されなかった.

### 4.8.3 集光実験のまとめ

開発した集光システムを利用して、軟X線FELをsub-1- $\mu\text{m}$ の微小領域に集光した。FEL強度100  $\mu\text{J}$ 、パルス幅100 fs、ミラー反射率40%、ビームライン全体のスループット80%と仮定すると、集光強度は $10^{16}\text{W}/\text{cm}^2$ を超え、多層膜放物ミラーによって達成された値と同等である。加えて、本集光システムは波長依存性がないという利点も兼ね備えている。そのため、広い波長帯域においてこの集光強度を実現することができ、高強度軟X線電場と物質の相互作用を、波長スキャンしながら計測することも可能である。このような特性をもつ軟X線FEL集光システムは他に報告例がなく、回転楕円ミラーを用いることで初めて実現したものである。

## 4.9 Si の軟 X 線可飽和吸収

前節で構築した集光システムにおいて、軟 X 線領域の非線形現象のひとつである、軟 X 線可飽和吸収を観測する。

物質に光が入射すると、光エネルギーは物質内の電子を励起するために使われる。励起された電子は fs オーダーの時間内に緩和され、次の光子が入射する頃には元の電子状態に戻っている。この過程が光の通過中に繰り返し発生する。入射した光子のうち、電子を励起しなかった光子は物質を透過する。全光子数に対する透過した光子数の割合が光の物質に対する透過率となる。

集光 XFEL の場合について考える。XFEL の光子エネルギーが物質の内殻電子の吸収端を超えている場合、1つの光子からの寄与で電子が励起される。さらに、図 4.27 に示すように、XFEL を集光すると単位面積、単位時間あたりの光子数が激増する。一つの原子に対して“ほぼ同時に”複数の光子が入射すると、1光子により励起された内殻電子が緩和する前に、2つ目の光子が原子内に入射する。この際、電子はすでに励起状態にあるので2つ目以降の光子は吸収されない。結果として、集光 XFEL パルスの透過率が上昇する。

この現象は、可飽和吸収と呼ばれている。可飽和吸収は可視光領域ではよく知られた現象であるが、短波長領域では XFEL を利用してはじめて観測された。2000 年台には、Al, Sn の可飽和吸収が軟 X 線 FEL を利用して観測された<sup>[19], [20]</sup>。2014 年には硬 X 線を利用した Fe の可飽和吸収が観測された<sup>[103]</sup>。さらには、Cu の X 線可飽和吸収を利用した XFEL 励起 X 線レーザーも報告されている<sup>[89]</sup>。

本節では、構築した sub-1- $\mu\text{m}$  集光システムの最初のアプリケーションとしてこれまでに報告されていない Si の可飽和吸収観測を実施した。

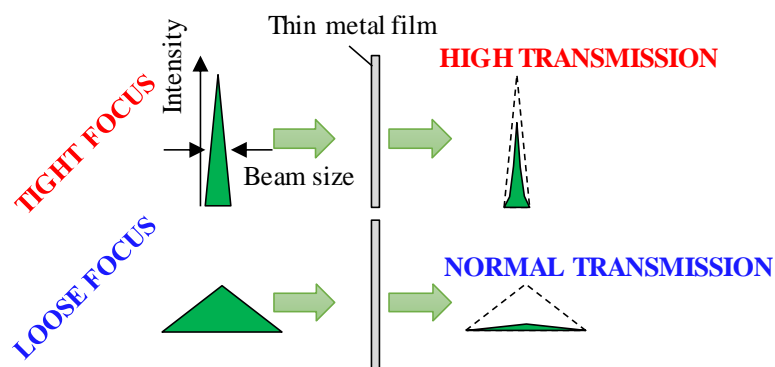


図 4.27 可飽和吸収の概念図。集光軟 X 線 FEL が物質に入射すると単位面積・単位時間あたりの入射光子数が増加する。励起された電子が緩和される前に別の光子が入射するため、結果として全体の透過率が上昇する。

### 4.9.1 Si の物性と可飽和吸収

Si は元素番号 14 の半導体である。フラットな Si 層を用意するために、本実験では Si 薄膜の代わりに Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> メンブレンを照射サンプルとして用意した。L 吸収端(99.8 eV) を超えるエネルギーをもつ光子は L 殻電子を励起することにより吸収される。集光強度の増大により単位時間当たりの入射光子数が増えると、励起された L 殻電子が緩和されるよりも前に次の光子が入射し、L 殻電子による吸収は起きない。結果として、可飽和吸収が起きることになる。

### 4.9.2 実験セットアップ

集光システムは前節までに述べたものと同一である。L 殻電子を励起するためには、光子エネルギーは 99.8 eV 以上でなければならない。本実験では、FEL の光子エネルギーを 120 eV とした。照射サンプルは前述のように、Si 原子を含む厚さ 150 nm の Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> メンブレンである。本実験では、1 枚の基板上に開口 200 μm のメンブレン領域が 36×37 個並んだものを使用した。Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> には Si の他に N が含まれるが、N の吸収端は 120 eV から大きく離れた 400 eV 近傍にあり、本実験における可飽和吸収の透過率計測実験に影響しない。なお、3 次光の光子エネルギー(360 eV)も 400 eV を下回っているため、3 次光も可飽和吸収には影響しないと考えられる。

図 4.28 に実験セットアップを示す。照射試験と同様、1 ショット毎に照射位置を変えて透過率計測を行う。入射強度の依存性を調べるために、ガスアッテネータの圧力を段階的に変化させて透過率を計測した。本実験では、アッテネーションガスとしてアルゴンを用いた。アルゴンは 3 次光(360 eV)の光に対してより高い減衰率を示すため、本実験において 3 次光の影響は無視できる。また、サンプルを焦点からデフォーカスした位置でも同様の計測を行った。透過光の強度は Photo diode で計測する。可視光の影響をカットするために受光面直前に密着させる形で厚さ 1 μm の Zr フィルターを取り付けた。また、PD と分離した位置に、挿入、退避が可能な厚さ 0.5 μm の Zr フィルターを取り付けた。ガスアッテネータ圧力を変更するたびに、フィルターの有無と PD 増幅器のゲインの組み合わせを調整し、入射 FEL 強度と PD 信号の間に線形性があることを確認したうえで透過率計測を行った。



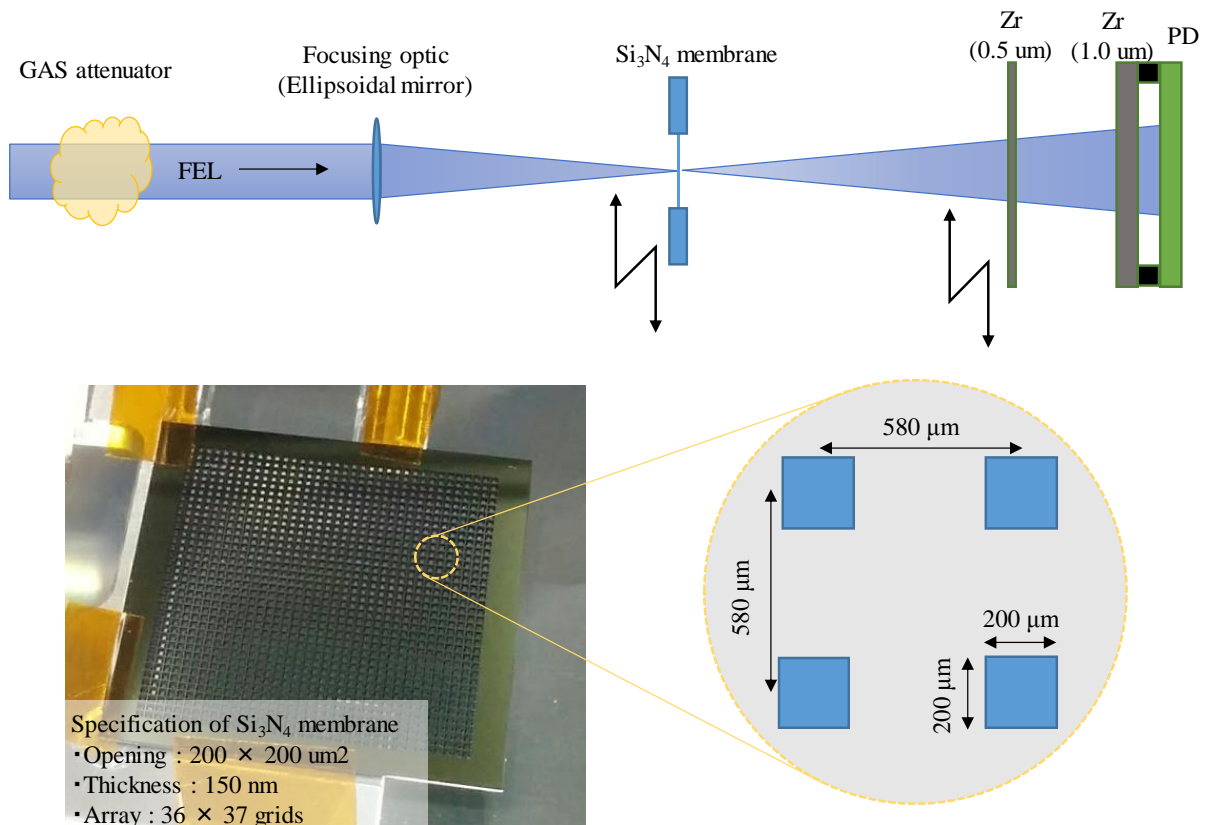


図 4.28 可飽和吸収計測の実験セットアップ。サンプルは 1 shot 毎に移動し、常にフレッシュ面からの信号を取得する。フォトダイオードの直前には迷光カットを目的として膜厚  $1.0 \mu\text{m}$  の Zr フィルターを配置した。サンプル基板には、開口  $200 \times 200 \mu\text{m}^2$  の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  メンブレンが  $36 \times 37$  個配置されている。

### 4.9.3 透過率計測

透過率計測時の焦点における集光プロファイルを図 4.29 に示す。軟 X 線 FEL は  $0.69 \times 0.50 \mu\text{m}^2$  の領域に集光されている。焦点位置におけるデフォーカス量を  $0 \mu\text{m}$  とし、デフォーカス量が  $0, 150, 200, 400 \mu\text{m}$  の位置で透過率を計測した。

計測結果を図 4.30 に示す。図 4.30(a)は横軸を入射 FEL 強度、縦軸を透過率としてプロットしている。また、集光点からデフォーカスした位置で計測した透過率データも合わせて示す。グラフから次の 2 つの特性がわかる。

- ① 焦点位置において計測した透過率は、入射強度  $1 \mu\text{J}$  を境に急激に増加している。
- ② デフォーカス量に応じて透過率の変化は小さくなっている。

上記の特性から、透過率の上昇は”入射光強度”ではなく、”集光強度密度”に依存していると言える。

図4.30(b)は、サンプルを焦点に設置して計測した透過率変化を、横軸を集光強度密度としてプロットしたグラフである。集光強度密度は、パルス幅を100 fsと仮定し、集光プロファイルの半値幅内に50%の光量が集中していると仮定して算出した。このグラフから、透過率上昇の閾値は、 $10^{15} \text{W/cm}^2$  付近であることが読み取れる。また、 $2 \times 10^{16} \text{W/cm}^2$  付近で、透過率は50%近くまで上昇した。

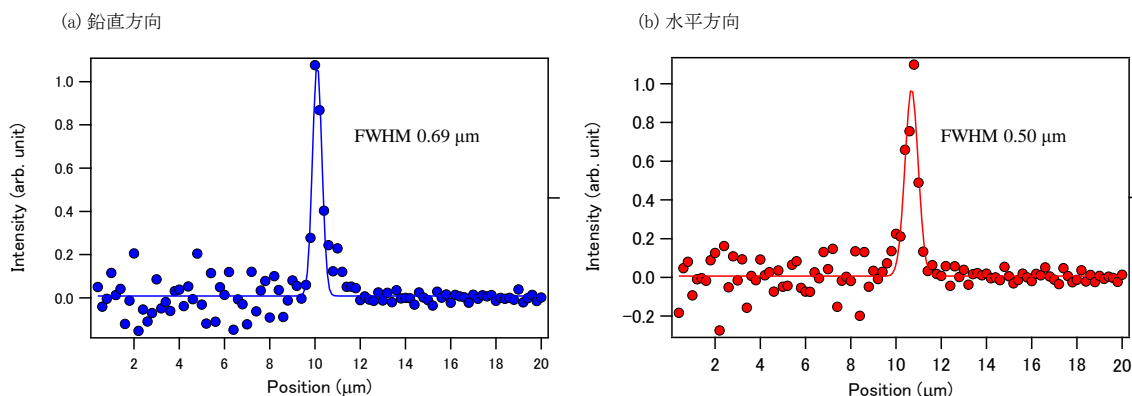


図4.29 可飽和吸収計測実験時の焦点における集光プロファイル。(a)鉛直方向に690 nm, (b)水平方向に500 nmの集光ビームを用いて実験を実施した。

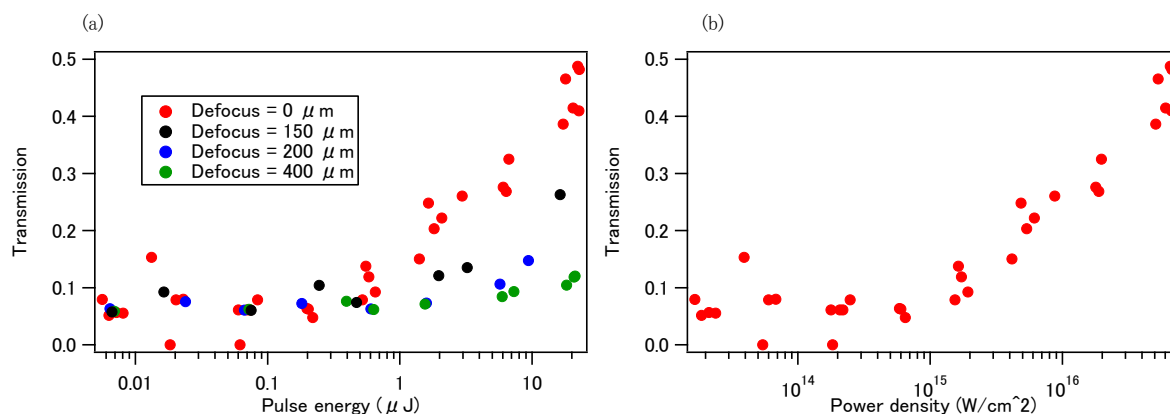


図4.30 (a)横軸をパルスエネルギー、縦軸を透過率としてプロットしたグラフ。デフォーカス量0, 150, 200, 400 μmの4点で計測した。パルスエネルギーと集光サイズに応じて透過率が上昇している。(b)集光点における透過率を、横軸を集光強度密度としてプロットしたグラフ。 $10^{15} \text{W/cm}^2$  を境に透過率が急激に上昇し、最終的に透過率は50%近くまで上昇した。

ここで、仮想的にL殻電子がまったくない状況を考えてみる。集光強度が低い状態で計測した透過率は8~9%程度であった。実験で使用した $\text{Si}_3\text{N}_4$ メンブレンの厚みは150 nmであったが、120 eVの軟X線透過率が8~9%となるメンブレンの厚みは100 nm

と計算された。これは、使用した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  メンブレンが薄膜構造であることに起因する膜密度の違いが原因であると考えられる。ここでは、厚み 100 nm の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  メンブレンの透過率データを使って、実験結果を考察する。図 4.31 に厚み 100 nm のメンブレンの透過率グラフを示す。99.8 eV を境に透過率が急激に低下しているが、これは光子エネルギーが L 吸収端を超え、吸収の影響が顕著に現れるためである。そこで、光子エネルギー 90~98 eV におけるまでの透過率データに二次関数をフィッティングし、L 殻電子が存在しない場合の透過率として外挿した。外挿したグラフによると 120 eV における透過率は約 52% となり、実験で得られた最大透過率と同程度の値が得られた。

以上、実験結果と透過率データを使用した考察から、Si の軟 X 線に対する可飽和吸収を観測することに成功したと言える。

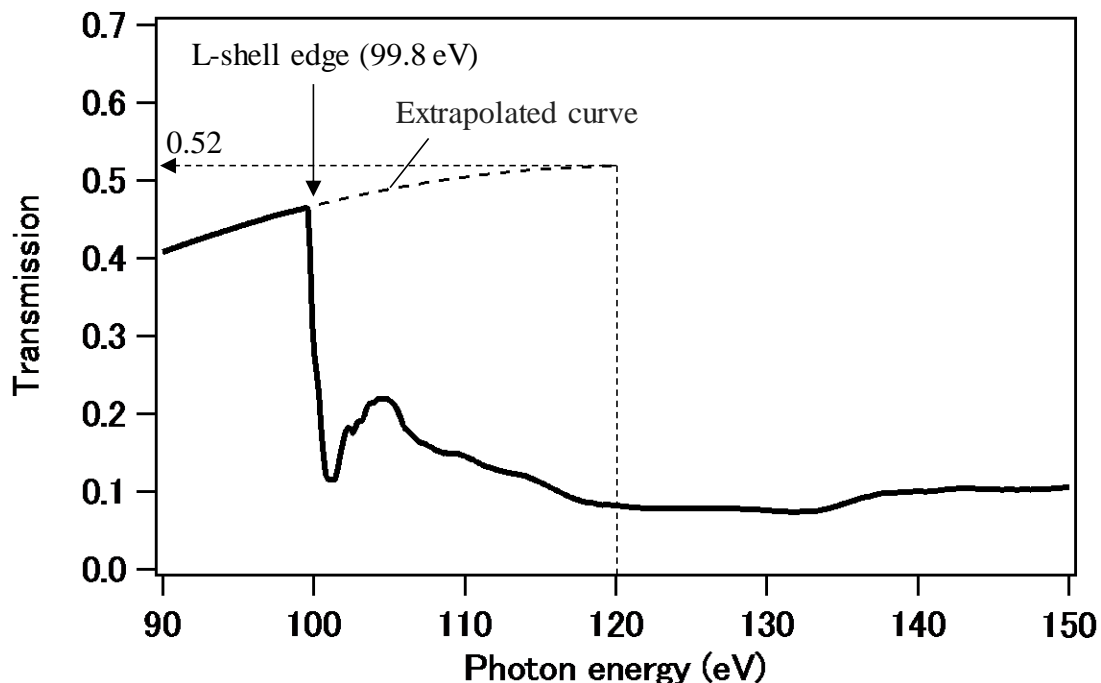


図 4.31 膜厚 100 nm のシリコンに対する軟 X 線の透過率グラフ(実線)。L 殻吸収端のため、99.8 eV を境に高エネルギー側の軟 X 線透過率が急激に低下する。点線は、99.8 eV 以下の軟 X 線透過率に二次関数をフィッティングすることで外挿して得られる、L 殻電子が存在しない場合の予想透過率グラフ。

#### 4.9.4 透過光強度分布の計測

次に、可飽和吸収時の透過光強度分布計測実験を実施した。図 4.32 に実験セットアップを示す。本実験では、厚み 200 nm の  $\text{Si}_3\text{N}_4$  メンブレンを使用した。 $\text{Si}_3\text{N}_4$  は前節で用いたものと同様、1 枚の基板上において  $36 \times 37$  個のマトリクス状に配置されてい

る. Ce:YAG スクリーンに投影される透過光の強度分布を CCD カメラで計測する. 光学ハッチ内の Zr フィルター(0.5 $\mu\text{m}$ , 1.0  $\mu\text{m}$ )で入射 FEL の強度調整を行った.

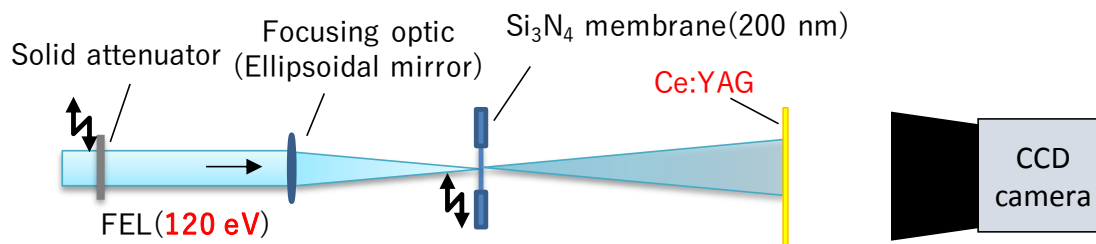


図 4.32 透過光強度分布計測時のセットアップ. FEL の強度分布を Ce:YAG の発光強度分布に変換し, CCD カメラで計測する.

サンプルの同一箇所に連続で 50 ショットの FEL を入射して, 各パルス光の強度分布を計測した. 1 ショット目の照射が終了した時点でサンプル位置にはダメージが生じており, その後数発入射するとサンプルは完全に喪失する. ここでは, 1 ショット目の強度分布が可飽和吸収時の透過光のものとし, 11~50 ショット目の強度分布を平均化したものをリファレンスとした. 図 4.33 に 1 ショット目の強度分布とリファレンス強度分布の例を示す. ビーム形状を比較するために, それぞれの強度分布のピークに合わせてカラーレンジを調整してある. 1 ショット目の強度分布の幅がリファレンス強度分布の幅よりも狭くなっている様子がわかる. 図 4.34 に, 入射 FEL 強度が異なる条件で取得した強度分布の断面プロファイルを示す. グラフ中, 赤色の実線で示したのは, 可飽和吸収時の断面プロファイルのピークがリファレンス強度分布のピークと一致するように, 強度方向に拡大したグラフである. 拡大していない元の断面プロファイルは, 破線で示している. 断面プロファイルから, 透過光の強度分布が狭まっていることがわかる.

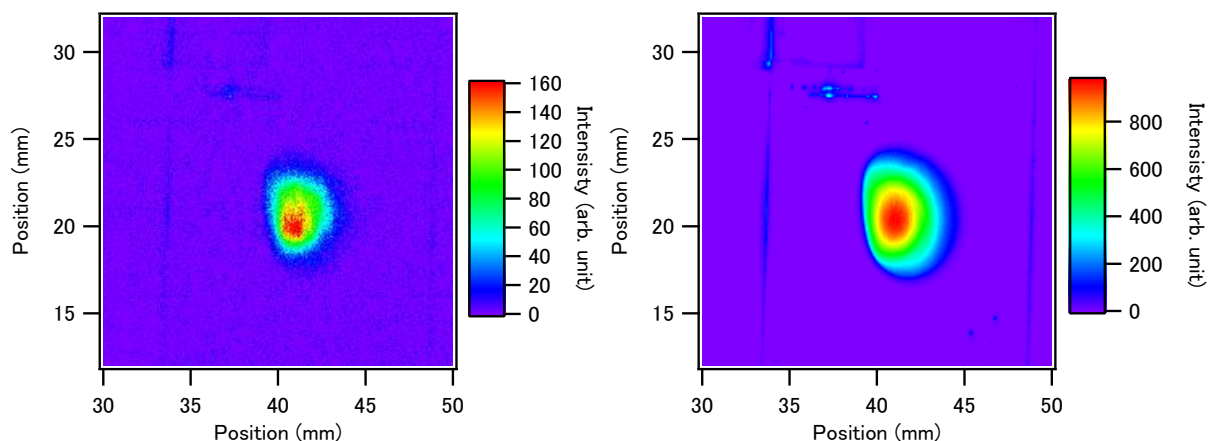


図 4.33 Ce:YAG に入射した FEL の(a) 1 ショット目の透過光強度分布と(b)11~50 ショット目の透過光強度分布の平均. 1 ショット目の透過光強度分布を 11~50 ショット目の強度分布の平均と比較するとビームサイズが縮小している.

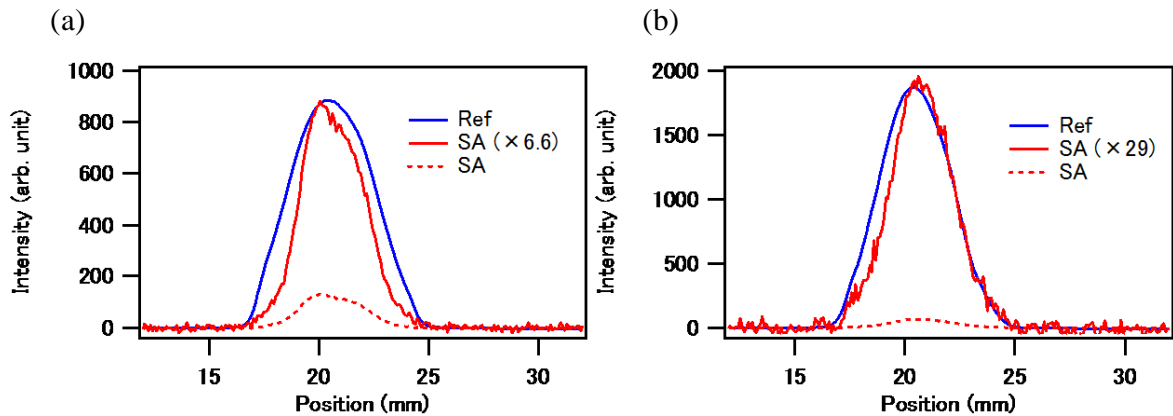


図 4. 34 入射した FEL の FEL 強度が(a)26.64  $\mu\text{J}$  と(b)9.2  $\mu\text{J}$  の場合の可飽和吸収時の透過光の強度プロファイル(赤線)。リファレンス強度分布の断面プロファイルは青線で示している。

複数のサンプル位置で計測した透過光強度分布に関して、断面プロファイルの“高さ”と“幅”について解析した。それぞれの情報は、断面プロファイルにガウシアンカーブをフィッティングした際のフィッティングパラメータから抽出した。図 4. 35 に、リファレンスに対する 1 ショット目の断面プロファイルのピーク値と幅の比率を示す。それぞれのグラフにおいて、破線は実験データにフィッティングした二次関数曲線である。可飽和吸収時の強度プロファイルの高さと幅は、入射 FEL の強度に依存して変化していることがわかる。これらのグラフから、次の 2 つの性質が読み取れる。

- (1) 入射 FEL 強度が高いほうが、1 ショット目のサンプル透過率が高い。
- (2) 入射 FEL 強度が高いほうが、1 ショット目のプロファイル幅が狭い。

(1) は、サンプル上で可飽和吸収が起こるといふ、前節の実験で得られた結果と同様のことを意味している。(2)は前節の透過率計測だけでは得られなかった情報である。

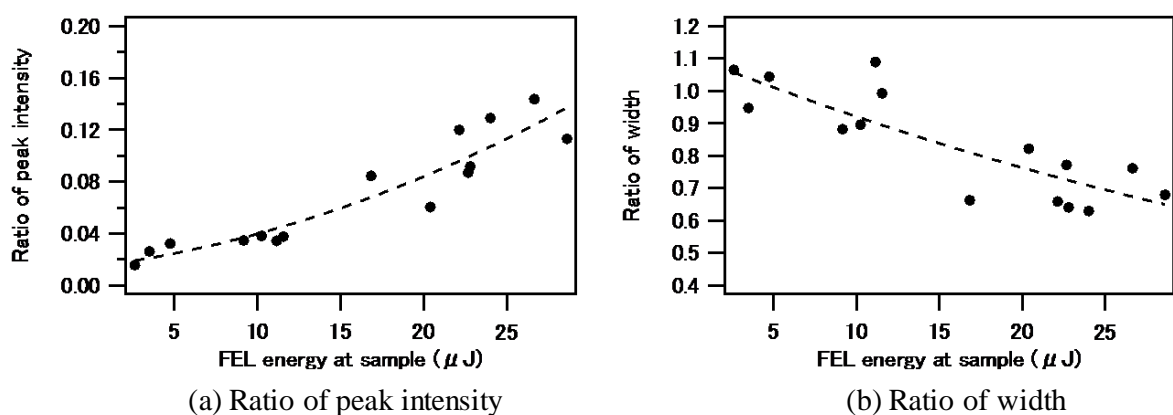


図 4. 35 可飽和吸収時の(a) ビームプロファイルのピーク値、(b) サイズをリファレンス強度分布のものと比較した場合の比率をプロットしたグラフ。それぞれのグラフにおける破線は、計測データにフィッティングした二次関数曲線を示す。

可飽和吸収時，集光ビームの中心ほどサンプルに対する透過率が高くなる．そのため，入射 FEL 強度が強くなり可飽和吸収が強くと起きると，サンプル位置を仮想光源と仮定した場合の光源サイズが小さくなる．光源サイズが小さくなるとビームの広がり角度は大きくなるが，今回の実験では，入射 FEL の強度が高いほどビームの広がり角度が狭くなるという，逆の傾向が観測された．これは，サンプルの光軸方向位置が最適集光点からずれていたためであると予想される．この場合，図 4.36 に示すように，可飽和吸収時の仮想光源サイズで決まる広がり角度が，本来のビーム広がり角度よりも大きくなるという状況が起こりうる．すなわち本実験の結果から，可飽和吸収を利用してサンプル位置のデフォーカス情報を抽出可能であるといえる．

X 線照射実験においては， $\text{Si}_3\text{N}_4$  メンブレン上に照射サンプルを配置するといった手法がとられる．このような場合， $\text{Si}_3\text{N}_4$  からの可飽和吸収情報を利用して，照射サンプル位置のデフォーカス調整が可能となる．

また，本実験で照射した  $\text{Si}_3\text{N}_4$  は単純構造サンプルであるが，透過光強度分布には明確な強度依存性が見られた．ナノ粒子や微細構造など，複雑構造サンプルからの透過光強度分布にも強度に依存した変化が見られると予想される．様々な照射実験において，透過光強度分布の強度依存性という，新しい情報の計測が期待される．

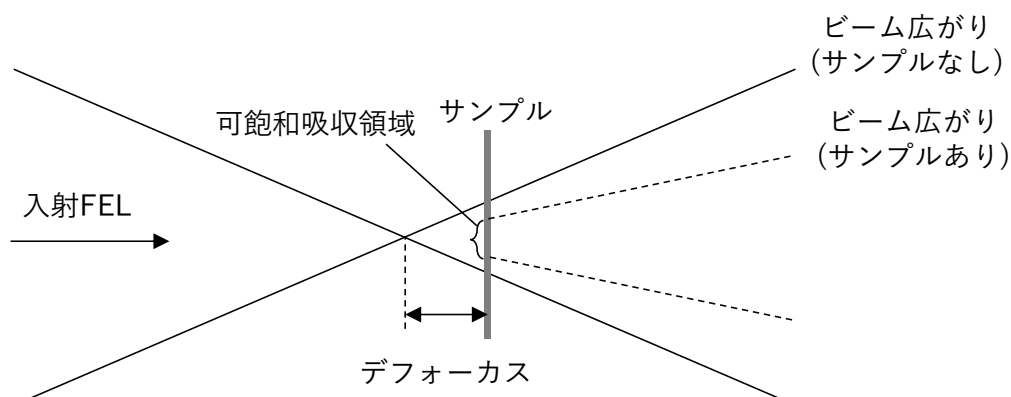


図 4.36 可飽和吸収発生時のビーム広がり角度の抑制を説明した図.

#### 4.9.5 軟 X 線非線形光学の展開

構築した集光システムにより生成された集光軟 X 線 FEL ビームを利用して，Si の可飽和吸収を初めて観測した．従来の KB ミラー集光光学系で到達できる集光強度は  $10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$  台であり，Si の可飽和吸収は回転楕円ミラーによる集光ビームをもってして初めて観測できた実験事例であると言える．本実験により，本章で構築した sub-1- $\mu\text{m}$  集光システムが，高強度軟 X 線 FEL と物質の相互作用に関する研究に利用可能であることが示された．

また，今回使用した光子エネルギーは 120 eV であるが，本集光システムに波長依存

性はないため、他の波長帯域の光でも極微集光が可能である。SACLA BL1 における軟 X 線 FEL は光子エネルギー 50~150 eV をカバーするが、図 4.37 に示すように多くの元素はこの領域に吸収端を持つ。例えば M 吸収端に着目すると、Fe, Co, Ni と呼ばれた磁性材料研究において重要な元素が吸収端を有する。吸収端近くの光子エネルギーを物質に照射すると、相互作用の大きさが増幅されて観測される共鳴効果が知られており、材料科学分野における高空間分解能、時間分解計測の高度化が期待できる<sup>[16]</sup>。さらに、最近では C の K 吸収端を利用した FEL の二次高調波発生も報告されており、軟 X 線領域に吸収端をもつ材料の物性を利用した研究がますます拡大することが予想される<sup>[104]</sup>。

また、すでに報告例がある Al は 72.5 eV に L 吸収端を有するが、調査された光子エネルギーは 92 eV に限られている<sup>[19]</sup>。このような原子に関しても、本集光システムを用いて別の光子エネルギーで可飽和吸収を調査することで、新たな知見が得られる可能性がある。非線形効果の波長依存性を軟 X 線領域で調査した研究は報告例が少なく、軟 X 線非線形光学の発展への寄与が期待できる。

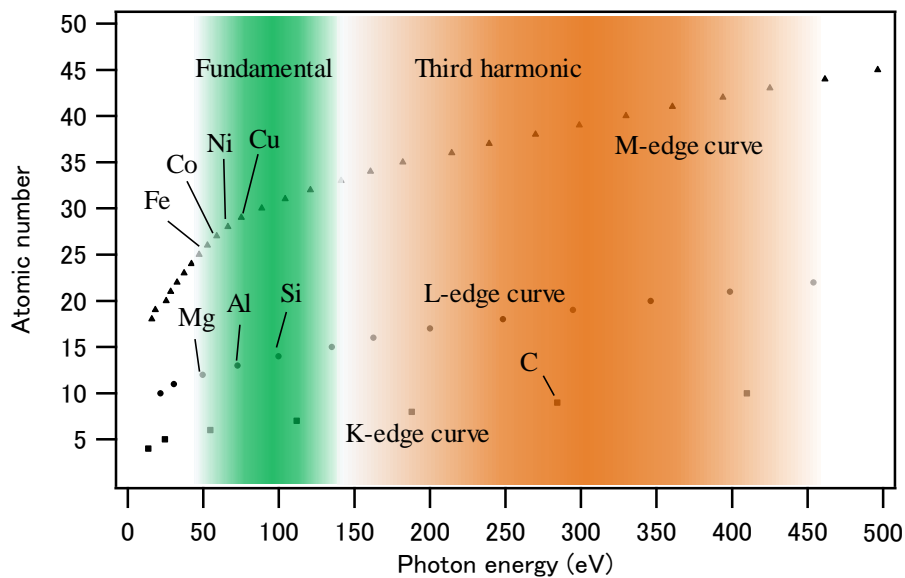


図 4.37 SACLA BL1 がカバーする光子エネルギーの範囲と各元素の K, L, M 吸収端分布を示したグラフ。緑がけの領域は FEL の基本波の光子エネルギー、オレンジがけの領域は 3 次高調波のカバーする領域を表す。

## 4.10 結言

本章では、回転楕円ミラーをベースとした軟 X 線 FELsub-1- $\mu\text{m}$  集光システムを設計、構築した。また、集光した軟 X 線 FEL を利用し、Si の可飽和吸収を観測した。本章の結果をまとめる。

- (1) ニッケルとルテニウムの軟 X 線 FEL 照射 耐性を調査した。
- (2) KB ミラーと回転楕円ミラーから構成される二段集光システムを設計・構築した。
- (3) 光子エネルギー100 eV の軟 X 線 FEL を  $500 \times 550 \text{ nm}^2$  に集光し、 $10^{16} \text{ W/cm}^2$  を超える集光強度密度を実現した。
- (4) 集光軟 X 線 FEL を  $\text{Si}_3\text{N}_4$  に照射することで、Si の可飽和吸収を観測することに成功した。



# 第5章 軟 X 線極限集光システムの提案と光学設計

---

5.1 緒言 .....	92
5.2 コンセプト .....	93
5.3 光学設計手法 .....	94
5.3.1 準回転楕円ミラーの設計 .....	94
5.3.2 光源位置の決定 .....	96
5.3.3 リング集光ミラーの設計 .....	97
5.4 光学設計とシミュレーション .....	99
5.4.1 光学設計パラメータ .....	99
5.4.2 SACLA-BL1 における光学素子配置 .....	100
5.4.3 光学素子の形状 .....	101
5.4.4 光線追跡 1(点光源) .....	102
5.4.5 光線追跡 2(有限サイズ光源) .....	105
5.4.6 波動光学シミュレーション .....	107
5.4.7 SACLA-BL1 に導入した場合の理論性能 .....	108
5.5 結言 .....	109

---

## 5.1 緒言

第3章と第4章において、回転楕円ミラーを用いた軟X線レーザーの sub-1- $\mu\text{m}$  集光システムを開発した。高次高調波軟X線レーザー、軟X線自由電子レーザー施設において、全反射型集光素子による最小集光スポットを形成することに成功し、高精度回転楕円ミラーの集光性能の高さを実験的に示した。ところが、回折限界の式によれば光は波長と同レベルのサイズまで集光することができる<sup>[50]</sup>。回転楕円ミラーによる軟X線集光サイズを波長レベルまで微小化するためには、“部分照明”から“全面照明”へ移行し、集光ビームの開口数を大きくすることが必須条件となる。第2章で示したように、回転楕円ミラーを波長 10 nm の光で全面照明すると 20 nm 程度の集光スポットを形成できる。

第2章で、回転楕円ミラーの波長レベル集光を実現するためには、ミラー形状の高精度化が必要であると結論づけた。回転楕円ミラー製作プロセスにおいて、加工・計測プロセスの改善がなされており、第6章におけるミラー形状の高精度化プロセスを併用することで形状精度の課題はクリアできる<sup>[42]-[44]</sup>。

しかしながら、回転楕円ミラーの全面照明のためには、形状精度以外に回転体形状に起因する課題をクリアしなければならない。回転楕円ミラーの全面を照明するための最も単純な方法は、図 5.1(b)の様に前段の集光素子で拡大したビームの照射であるが、この場合回転楕円ミラーは光軸付近を伝播する光を反射することができない。ミラーで反射しない光は実験時のノイズ源となるため、通常はビームストップを用いて遮断される。完璧なミラーの製作に成功したとしても、ミラーの照明方法に関する課題をクリアしなければビーム利用効率の大幅な低下につながり、理想的な軟X線集光システムとはなりえない。

本章では、高いビーム利用効率と回転楕円ミラーの高い集光性能を両立させることを目的とした、非球面ミラーと回転体ミラーから構成される軟X線極限集光システムを新たに提案、設計する。本章は、以下に示す流れで展開する。

- ① 回転体ミラーを用いた軟X線極限集光システムのコンセプトを示す。
- ② 集光システムの光学設計手法を示す。
- ③ X線自由電子レーザー施設 SACLA の軟X線ビームラインを想定した、集光システムの具体的な設計を示す。
- ④ 設計した集光システムに関して、幾何光学と波動光学の両面からシミュレーションを行い、理論集光性能を示す。

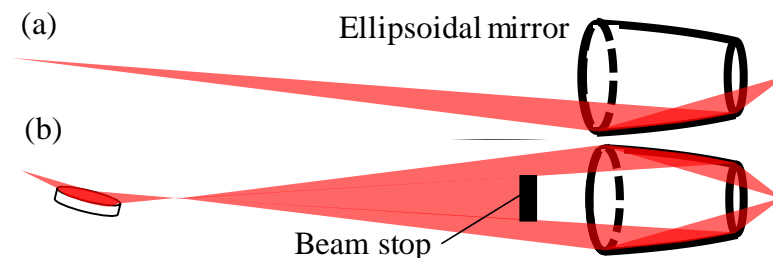


図 5.1(a)部分照明条件, (b)全面照明条件での回転楕円ミラーによる軟X線集光セットアップ。

## 5.2 コンセプト

回転楕円ミラーを用いた高効率ナノ集光を実現するためには、入射する軟 X 線ビームをロスすることなくミラー全面に照明しなければならない。これを実現するためには、リング状の強度分布をもつ軟 X 線ビームを回転楕円ミラーに入射させればよい。入射ビームが光軸付近に強度をもたなければ、回転楕円ミラー入射時に強度のロスが生じることはない。

上記の照明方法を実現するためには、リング状の強度分布をもつ軟 X 線ビームを形成する必要がある。一般的な X 線光学素子では実現できないため、非球面ミラーを新たに設計する。この非球面ミラーを“リング集光ミラー”と呼ぶことにする。リング集光ミラーは、反射した軟 X 線をリング状に集光し、その後リング状に拡大する機能を持つ。リング状強度分布の軟 X 線を集光するために、回転楕円ミラーの形状にも修正を加えなければならない。回転楕円ミラーの半径プロファイルに修正を加えたミラーを“準回転楕円ミラー”と呼ぶ。リング集光ミラーと準回転楕円ミラーを組み合わせて、波面収差が発生しない集光システムを構成する。この集光システムを“リング照明型二段集光システム”と呼ぶ<sup>[105]</sup>。図 5.2 に、リング照明型二段集光システムのコンセプト図を示す。この光学系では、リング集光ミラーに入射したすべての軟 X 線は最終集光点まで到達し、回折限界集光サイズは準回転楕円ミラーの開口数で決まる。

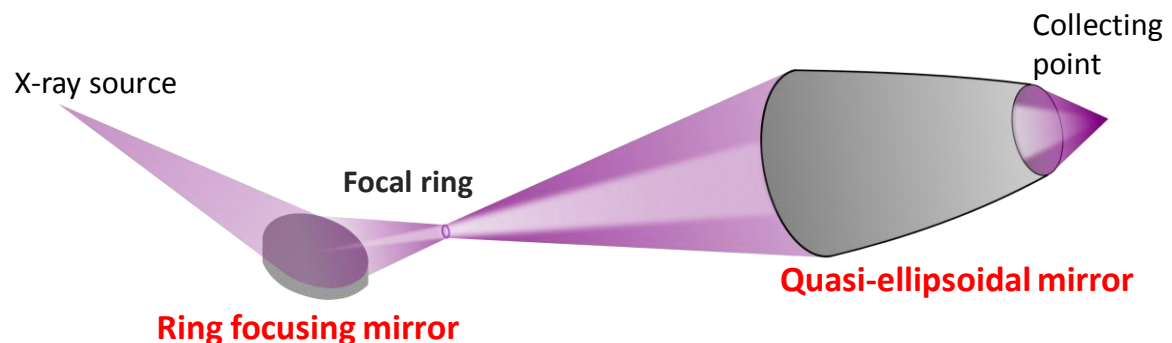


図 5.2 リング照明型二段集光システムのコンセプト図。リング状に軟 X 線ビームを拡大して照射することで、ビームをロスすることなく回転楕円ミラーの全面を照明できる。上流の非球面ミラーを“リング集光ミラー”，下流の回転体ミラーを“準回転楕円ミラー”と呼称する。

### 5.3 光学設計手法

本節では、リング照明型二段集光システムの光学設計手法を示す。一般的な光学設計手順では光源位置が定まっている前提のもとで設計を進めるが、本集光システムの場合は、準回転楕円ミラー、光源点、リング集光ミラー、という順序で設計を進める。集光システム設計時の条件は、“光源から発したすべての光線が等しい光路長で1点に集光する”ことである。設計手順の随所で、この境界条件を満たすことを確認する。

#### 5.3.1 準回転楕円ミラーの設計

準回転楕円ミラーは、集光リングから発散したリング状ビームを1点に集光する機能を有する。ここで、逆に集光点から発した光の光線追跡を考えると、“集光点から発した光は準回転楕円ミラーで反射した後リング状に集光する”と言い換えることができる。この性質を利用して、準回転楕円ミラーの形状を導出する。

準回転楕円ミラーは、回転楕円ミラーと類似の形状をとる。図5.3のように光軸方向をx軸と定義し、X-Z平面上で楕円パラメータを決定する。ここで、原点を集光点とする。第1章で示したように、焦点間距離 $L_1$ 、最大斜入射角度 $\theta$ 、ワークディスタンス $f$ の3変数から、楕円の長軸 $a$ 、短軸 $b$ は次式で計算される。

$$a = \frac{L_1}{2} \sqrt{\frac{1 + \sqrt{1 - \left(1 - \frac{2f}{L_1}\right)^2 \sin^2 2\theta_1}}{1 + \cos 2\theta_1}} \quad (5.1)$$

$$b = \sqrt{a^2 - \frac{L_1^2}{4}} \quad (5.2)$$

楕円の焦点（集光点）を原点に一致させ、ミラー長さを $ML$ とすると、楕円ミラーの半径プロファイルは次式で表される。

$$\frac{\left(X + \frac{L_1}{2}\right)^2}{a^2} + \frac{Z^2}{b^2} = 1 \quad (-ML - f \leq X \leq -f) \quad (5.3)$$

この時点で楕円の2焦点はX軸上に存在する。集光点ではない方の焦点を $S_1(-L_1, 0, 0)$ とする。次に、この楕円プロファイルにy軸周りの回転操作を加える。回転前の座標を $(X, Y)$ 、回転後の座標を $(x, y)$ 、回転角度を $\varphi$ とすると、以下の関係式が成り立つ。

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} x \\ z \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} \cos\varphi & \sin\varphi \\ -\sin\varphi & \cos\varphi \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X \\ Z \end{pmatrix} \\ \begin{pmatrix} X \\ Z \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} \cos\varphi & -\sin\varphi \\ \sin\varphi & \cos\varphi \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ z \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (5.4)$$

式(5.4)を式(5.3)に代入して整理すると、次式を得る.

$$z(x) = \frac{1}{A_0} \left[ -B_1 x - B_0 + \sqrt{(B_1^2 - A_0 C_2)x^2 + (2B_1 B_0 - A_0 C_1)x - A_0 C_0} \right] \quad (5.5)$$

ここで,  $A_0, B_0, B_1, C_0, C_1, C_2$  は式(5.5)を簡素化するために導入した補助変数であり, それぞれ以下の式で表される.

$$A_0 = a^2 \cos^2 \varphi + b^2 \sin^2 \varphi \quad (5.6)$$

$$B_0 = -\frac{L_1 b^2 \sin \varphi}{2} \quad (5.7)$$

$$B_1 = (a^2 - b^2) \sin \varphi \cos \varphi \quad (5.8)$$

$$C_0 = b^2 \left( \frac{L_1^2}{4} - a^2 \right) \quad (5.9)$$

$$C_1 = b^2 L_1 \cos \varphi \quad (5.10)$$

$$C_2 = a^2 \sin^2 \varphi + b^2 \cos^2 \varphi \quad (5.11)$$

$S_1$ はこの回転操作により,  $S_2(-L_1 \cos \varphi, L_1 \sin \varphi)$ へと移動する. また, ワークディスタンスは, 次式に従って  $f$  から  $f'$  へと変化する.

$$f' = f \cos \varphi - b \sin \varphi \sqrt{1 - \frac{\left(\frac{L_1}{2} - f\right)^2}{a^2}} \quad (5.12)$$

半径プロファイルの式(5.5)を  $x$  軸に関して一回転させた際の包絡面が準回転楕円ミラーの形状( $x_{qe}, y_{qe}, z_{qe}$ )となる.

$$\begin{pmatrix} x_{qe} \\ y_{qe} \\ z_{qe} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x \\ z(x) \cos \delta \\ z(x) \sin \delta \end{pmatrix}, (-ML - f' \leq x \leq -f', 0 \leq \delta < 2\pi) \quad (5.13)$$

また,  $x$  軸周りの回転操作により  $S_2$  は  $x$  軸周りに円形の軌跡  $S_3(x_3, y_3, z_3)$  を描く.

$$\begin{pmatrix} x_3 \\ y_3 \\ z_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -L_1 \cos \varphi \\ L_1 \sin \varphi \cos \delta \\ L_1 \sin \varphi \sin \delta \end{pmatrix}, (0 \leq \delta < 2\pi) \quad (5.14)$$

ここで,  $\delta$  は  $S_3$  を含む面内における動径角度を表す. この円形の軌跡  $S_3$  は, リング集光ミラーで反射した軟  $X$  線が形成する集光リングに相当する. 原点(集光点)の位置が変化しないように楕円プロファイルを回転させたため, 集光点側から発した光は  $S_3$  上に集光することになり, 本節冒頭で示した条件を満たす. さらに, 楕円関数の性質から, “集光点から集光リングまでの光路長が一定である”ことは自明である.

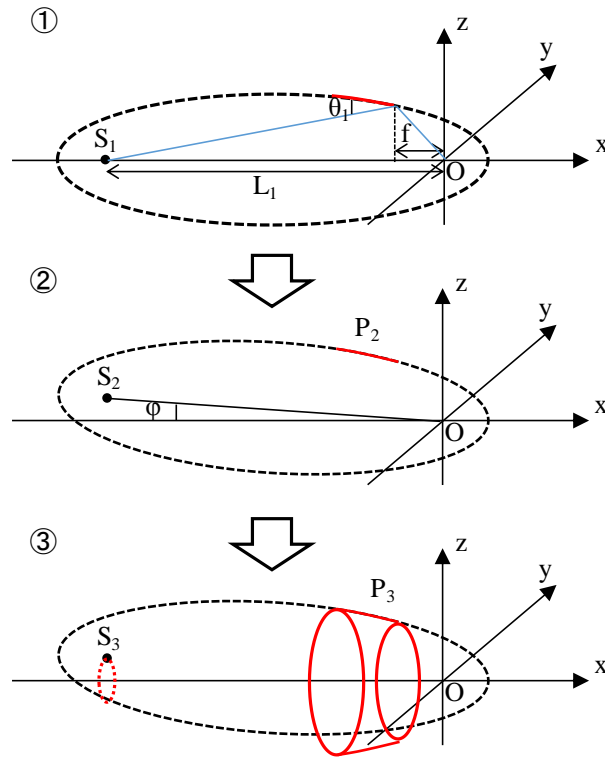


図 5.3 準回転楕円ミラーの設計フローを示す図. まず, 楕円プロファイルを  $y$  軸周りに傾斜させる. 傾斜した楕円プロファイルを  $x$  軸回りに 1 回転させた際の包絡面が, 準回転楕円ミラーの形状となる.

### 5.3.2 光源位置の決定

次に, 光源位置を定める. ここで, 式(5.5)で表される準回転楕円ミラーの半径プロファイルを想定し, 図 5.4 に示すように集光点から楕円プロファイルの最下流点に向けて出射した光線を考える. 楕円で反射した光線は点  $S_2$  にむけて伝播し, その後  $x$  軸と交点  $B$  を持つ.  $B$  の  $x$  座標を  $B_x$ ,  $B$  に入射する光線と  $x$  軸のなす角を  $B_\theta$  とすると, それぞれ式(5.5)を利用して次式で計算できる.

$$B_x = \frac{L_1\{f'\sin\varphi - z(-f')\cos\varphi\}}{z(-f') - L_1\sin\varphi} \quad (5.15)$$

$$B_\theta = \tan^{-1}\left(\frac{z(-f')}{-f' - x'}\right) \quad (5.16)$$

次に, 点  $B$  を通り光線とのなす角が  $\theta_2$  となるような  $y$  軸と平行な平面  $R$  を定義する. 平面  $R$  で反射後の光線と  $x$  軸とのなす角は,  $2\theta_2 - B_\theta$  であるため, 反射後の光線は, 始点を  $B$ , 媒介変数を  $t$  として式(5.17)で表される.

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = t \begin{pmatrix} -\cos(2\theta_2 - \theta') \\ 0 \\ \sin(2\theta_2 - \theta') \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} B_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.17)$$

集光システムの光源点はこの光線上に存在するものとする．ここで，光源点から集光リング  $S_3$  までの距離(A-B- $S_2$ 間の距離)を  $L_2$  と定めることで，光線上に存在する光源位置  $A(x_s, y_s, z_s)$ を一意に定めることができる．

$$\begin{pmatrix} x_s \\ y_s \\ z_s \end{pmatrix} = \left( L_2 - \sqrt{(-L_1 \cos \varphi - B_x)^2 + (L_1 \sin \varphi)^2} \right) \times \begin{pmatrix} -\cos(2\theta_2 - \theta') \\ 0 \\ \sin(2\theta_2 - \theta') \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} B_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.18)$$

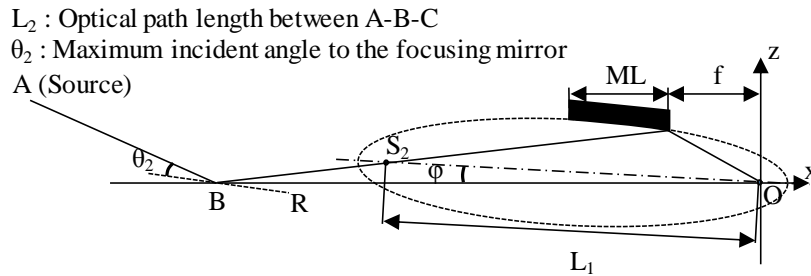


図 5.4 リング照明型二段集光システムにおいて光源位置を定めるための計算に用いる図．光源(原点)から出射し，準回転楕円ミラープロファイルの最下流点で反射した光線は  $S_2$  を通り，光軸と交点 B を持つ．B において角度  $\theta_2$  で反射した光線上に光源が存在すると仮定する．

### 5.3.3 リング集光ミラーの設計

集光点から発した光の光線追跡を考えると，準回転楕円ミラーで反射した光線  $l$  は必ず集光リング  $S_3$  と  $x$  軸の両方と交点を持つ (図 5.5)． $S_3$  を含む平面と光線  $l$  とのなす角を  $\alpha$ ， $S_3$  と光線  $l$  の交点に対する動径角度を  $\beta$  とすると，光線  $l$  の方向ベクトルは次式で表される．

$$\begin{pmatrix} \sin \alpha \\ \cos \beta \cos \alpha \\ \sin \beta \cos \alpha \end{pmatrix} \quad (5.19)$$

$S_3$  と光線  $l$  の交点座標は，式(5.14)において  $\delta = \beta$  とすることで得られる．そのため，光線  $l$  は， $S_3$  との交点を始点， $t$  を媒介変数として次式で表現することができる．

$$\begin{pmatrix} x_1 \\ y_1 \\ z_1 \end{pmatrix} = t \begin{pmatrix} \sin \alpha \\ \cos \beta \cos \alpha \\ \sin \beta \cos \alpha \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -L_1 \cos \varphi \\ L_1 \sin \varphi \cos \beta \\ L_1 \sin \varphi \sin \beta \end{pmatrix} \quad (5.20)$$

光線  $l$  と  $x$  軸のなす角を考えると， $\alpha$  の定義域は式(5.21)で表される範囲となる．

$$\frac{\pi}{2} - \tan^{-1} \left( \frac{z(-f') - ML - L_1 \sin \varphi}{-f' - ML + L_1 \cos \varphi} \right) \leq \alpha \leq \frac{\pi}{2} - \tan^{-1} \left( \frac{z(-f') - L_1 \sin \varphi}{-f' + L_1 \cos \varphi} \right) \quad (5.21)$$

準回転楕円ミラーは回転体であるため， $\beta$  の定義域は次式で表される範囲となる．

$$0 \leq \beta < 2\pi \quad (5.22)$$

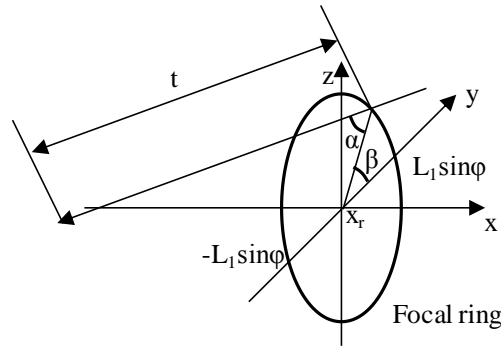


図 5.5 光源から出射し準回転楕円ミラーで反射した後，リング  $S_3$  と交わる光線を示した図．光線は必ず  $S_3$  を通った後  $x$  軸と交点を持つ． $S_3$  との交点において，光線と  $yz$  平面とのなす角度を  $\alpha$ ， $S_3$  内動径角度を  $\beta$  と定義する．

次に，リング集光ミラーの機能を考える．光源位置  $A$  から出射した光線はリング集光ミラーで反射し，集光リング  $S_3$  を形成する．その後，光線は準回転楕円ミラーで反射し焦点に集光する．ここで，光線  $l$  が集光点から発して準回転楕円ミラーで反射した光線であることを考えると，リング集光ミラーで反射後の光線が光線  $l$  に一致すれば，リング集光ミラーは所望の機能をもっていると言える．つまり，リング集光ミラーは光線  $l$  上に存在すると言える．

ここで，リング集光ミラーの形状を特徴づける関数  $p(\alpha, \beta)$  を導入し，式(5.20)において  $t=p(\alpha, \beta)$  とすることで，リング集光ミラーの関数を表す．

$$\begin{pmatrix} x_R \\ y_R \\ z_R \end{pmatrix} = p(\alpha, \beta) \begin{pmatrix} \sin\alpha \\ \cos\beta\cos\alpha \\ \sin\beta\cos\alpha \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} -x_r \\ d\cos\beta \\ d\sin\beta \end{pmatrix} \quad (5.23)$$

ここで， $d (= L_1 \sin\phi)$  は集光リング  $S_3$  の半径， $x_r (= L_1 \cos\phi)$  は集光リングの  $x$  座標である． $p(\alpha, \beta)$  の式を導出するために，光路長一定の境界条件を利用する．集光リング  $S_3$  から集光点までの光路長は，準回転楕円ミラーの光学設計から  $2a$  と定まっている．また，点  $B$  はリング集光ミラーの一部となるため，光源から集光リングまでの光路長は  $L_2$  でなければならない．光源から集光リングまでの光路長一定の条件は式(5.24)で表される．

$$\sqrt{(x_R - x_r)^2 + (y_R - d\cos\beta)^2 + (z_R - d\sin\beta)^2} + \sqrt{(x_R - x_s)^2 + (y_R - y_s)^2 + (z_R - z_s)^2} = L_2 \quad (5.24)$$

左辺第一項が集光リングからリング集光ミラー上の反射点までの距離，第二項が反射点から光源点までの距離を表す．式(5.23)を式(5.24)に代入して， $p(\alpha, \beta)$  に関して整理すると，次式を得る．

$$p(\alpha, \beta) = \frac{d^2 + (x_s - x_r)^2 + z_s^2 - 2dz_2\sin\beta - L_2^2}{2\{L_2 + (x_s - x_r)\sin\alpha + z_s\sin\beta\cos\alpha - d\cos\alpha\}} \quad (5.25)$$

式(5.25)を式(5.23)に代入したものが，リング集光ミラーの形状となる，



## 5.4 光学設計とシミュレーション

前節で、リング照明型二段集光システム的设计手法を示した。各種パラメータを各式に代入することで光学素子の形状と位置関係を計算できる。

本節では、SACLA の軟 X 線ビームラインを想定した集光システムの光学設計を示し、その集光性能を幾何光学と波動光学の両面からシミュレーションする。

### 5.4.1 光学設計パラメータ

光学設計に必要なパラメータを表 5.1 と図 5.6 に示す。

表 5.1 各変数と物理的な意味の対応

変数	物理的な意味
$L_2$	光源点から集光リングまでの光路長
$\theta_2$	集光リングへの斜入射角度
$\varphi$	準回転楕円ミラーの楕円プロファイル回転角度
$\theta_1$	準回転楕円ミラーへの最大斜入射角度
$f$	準回転楕円ミラーのワークディスタンス
$L_1$	集光リングから焦点までの距離
$ML$	準回転楕円ミラーの長さ

各変数は、次の指針にしたがって定める。

- ・  $L_1, L_2$  はビームラインの空間的制約を境界条件として定める。  $L_1 + L_2$  の値は、光源から集光点までの距離に概ね一致する。
- ・  $\theta_1, \theta_2$  は、ミラー材料の X 線反射率を考慮して定める。
- ・  $f$  は、回折限界集光サイズを考慮して定める。回転操作により焦点距離は  $f$  へと変化するが、回転角度  $\varphi$  は微小であるため変化量は無視できる。
- ・  $ML$  は、出力される準回転楕円ミラーの形状が製作可能かどうかを判断して定める。
- ・  $\varphi$  は、出力されるリング集光ミラーの形状が製作可能かどうかを判断して定める。

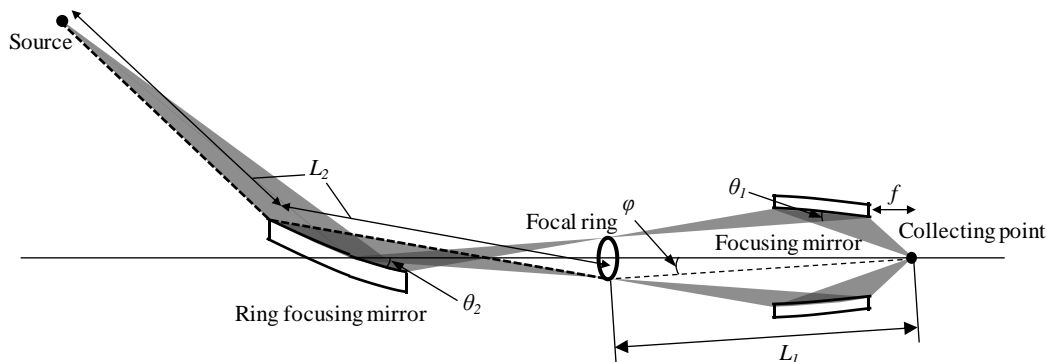


図 5.6 光学素子の位置関係と光学設計に必要なパラメータを示した図。

### 5.4.2 SACLA-BL1 における光学素子配置

SACLA Beamline 1 の実験ハッチ周辺の様子を図 5.7 に示す。第 4 章で使用した KB ミラーよりも上流側にリング集光ミラーを配置する。光源からリング集光ミラーまでの距離は約 76.4 m である。リング集光ミラーで反射した先には Beamline 2 の実験ハッチがあるため、途中で平面ミラーを配置して反射方向を調整する。平面ミラーで反射した先に準回転楕円ミラーを配置する。リング集光ミラーから準回転楕円ミラーまでの距離は約 15.16 m である。ここで、平面ミラーとは表面形状に曲率が存在しないミラーのことを指し、軟 X 線 FEL の反射方向の調整以外の機能は持たない。

ミラー配置箇所を境界条件として二段集光システムを設計した。各パラメータの値を表 5.2 に示す。リング集光ミラーのビームアクセプタンスが 14 mm となるように設計した。準回転楕円ミラーは、回折限界サイズが 20 nm となるように設計した。途中の平面ミラーは、リング集光ミラー反射後のビームを十分受光できるサイズであるものとする。リング集光ミラー、準回転楕円ミラーへの斜入射角度は、それぞれ 100 mrad, 140 mrad とした。

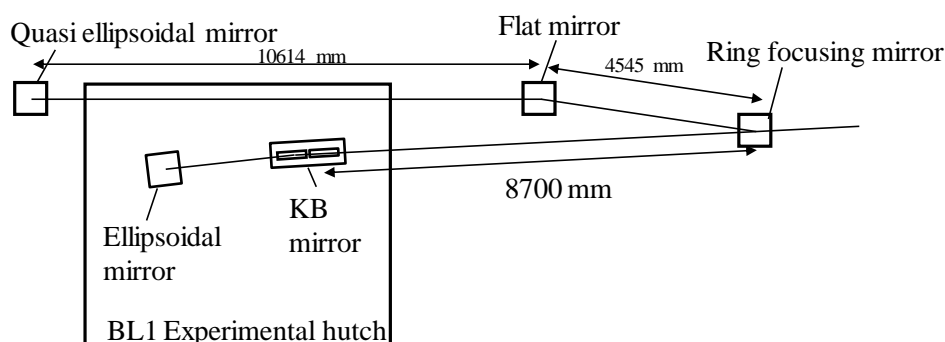


図 5.7 SACLA BL 1 の実験ハッチ周辺図とリング照明型二段集光システムを構成する光学素子の想定配置箇所。

表 5.2 SACLA BL 1 を想定したリング照明型二段集光システムの光学パラメータ

変数	値
$L_2$ (mm)	85170
$\theta_2$ (mrad)	100
$\varphi$ (mrad)	0.259705
$\theta_1$ (mrad)	140
$f$ (mm)	10
$L_1$ (mm)	6400
$ML$ (mm)	70

### 5.4.3 光学素子の形状

準回転楕円ミラーの半径プロファイルを図 5.8 に示す。下流開口サイズが 5.74 mm, 上流開口サイズが 16.05 mm であり, これまでに製作された回転楕円ミラーと類似形状である。回転楕円ミラー用に開発された製作プロセスで高精度に加工できる。

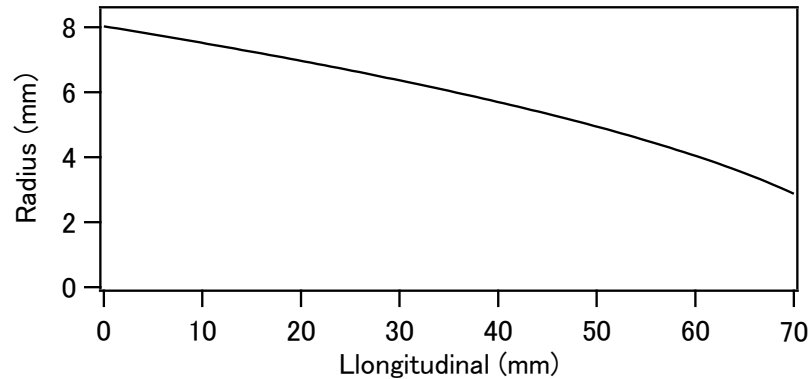


図 5.8 準回転楕円ミラーの半径プロファイル。

リング集光ミラーの形状とサジタル方向の断面グラフを図 5.9 に示す。斜入射角度 100 mrad で入射するため, 幅 14 mm, 長さ 140 mm の細長いミラーとなる。図 5.9 (b)~(e) は, 4 ラインにおけるサジタル方向の断面プロファイルを示している。中心の断面プロファイルに着目すると, 横幅 14.3 mm, 深さ 23.2  $\mu\text{m}$ , 曲率半径は 1.1 m となる。既存の加工技術で高精度加工が可能な形状である。

以上のように, SACLA Beamline 1 を想定したリング照明型二段集光システムの光学設計を示した。各ミラー形状は, 高精度加工が可能な形状である。

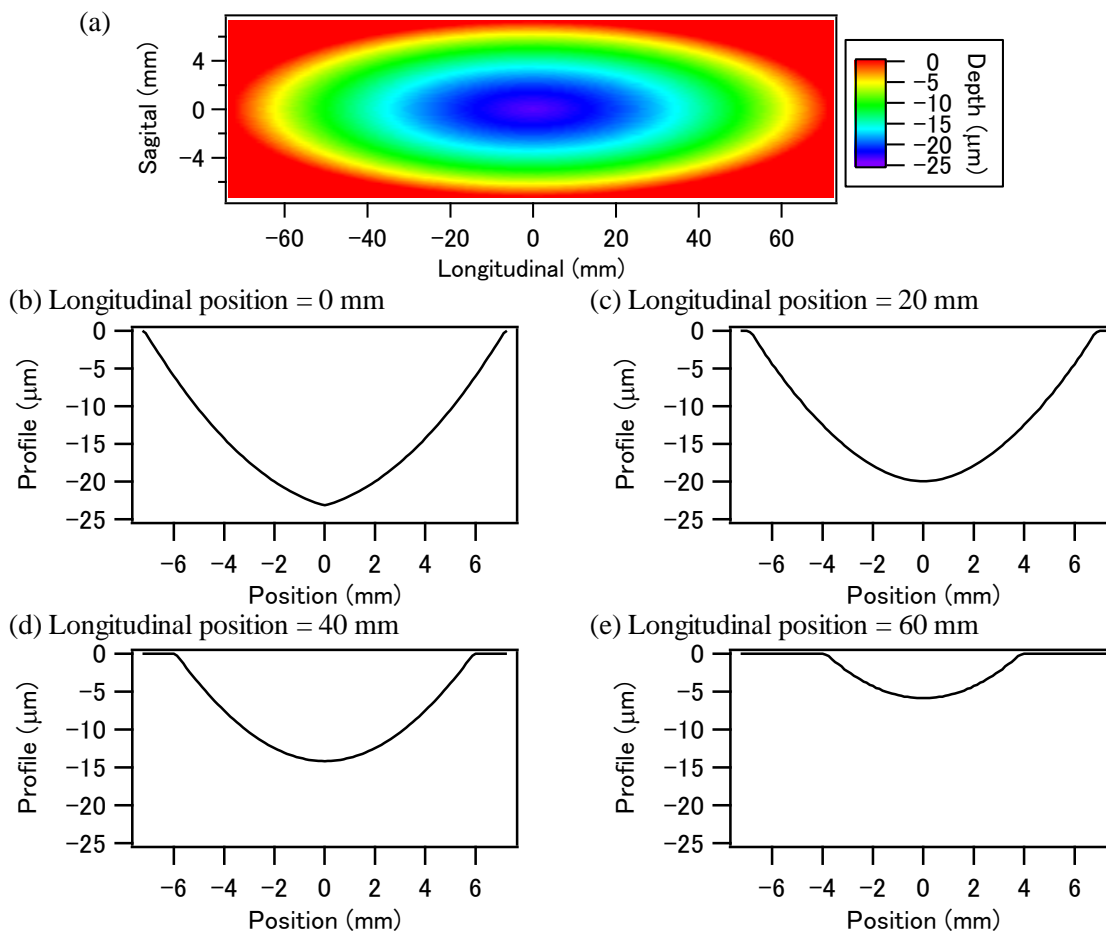


図 5.9 (a)リング集光ミラー形状と(b)~(e)サジタル方向の断面プロフィールグラフ。

#### 5.4.4 光線追跡 1(点光源)

リング照明型二段集光システムの集光性能を、光学シミュレーションを用いて解析する。集光システムの光学パラメータは、前節の SACLA BL1 用の設計値を用いる。本節では、点光源を仮定した光線追跡を行った。

図 5.10 に集光リング位置における光線分布をプロットしたグラフを示す。設計通りの直径を有する円上に光線が分布している。また、図 5.11 に集光リング近傍における光線の伝播の様子を 3 次元散布図としてプロットしている。同色で示した点は x 軸に対して垂直な同一平面上に存在する点群を示している。集光リングより下流側でビームがリング状に拡大しながら伝播している様子がわかる。

以上の結果から、リング集光ミラーが軟 X 線の強度分布をリング状に整形する機能を有することが示された。

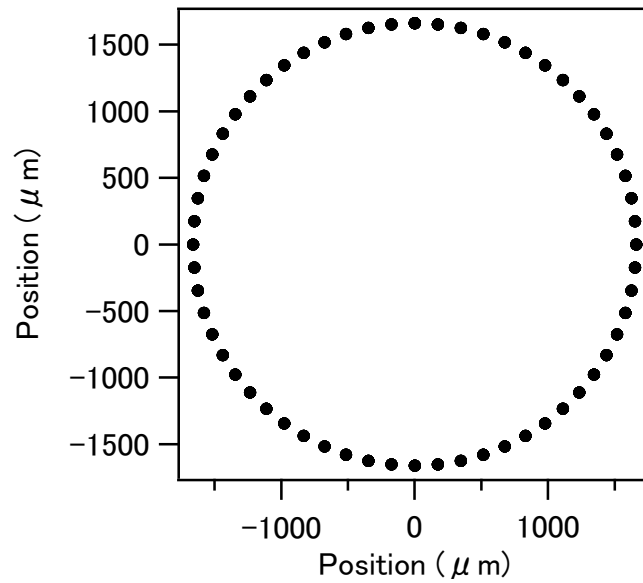


図 5.10 光源から出射した光線と  $S_3$  平面との交点を散布図としてプロットしたグラフ。設計値通りの円上に光線が分布している。

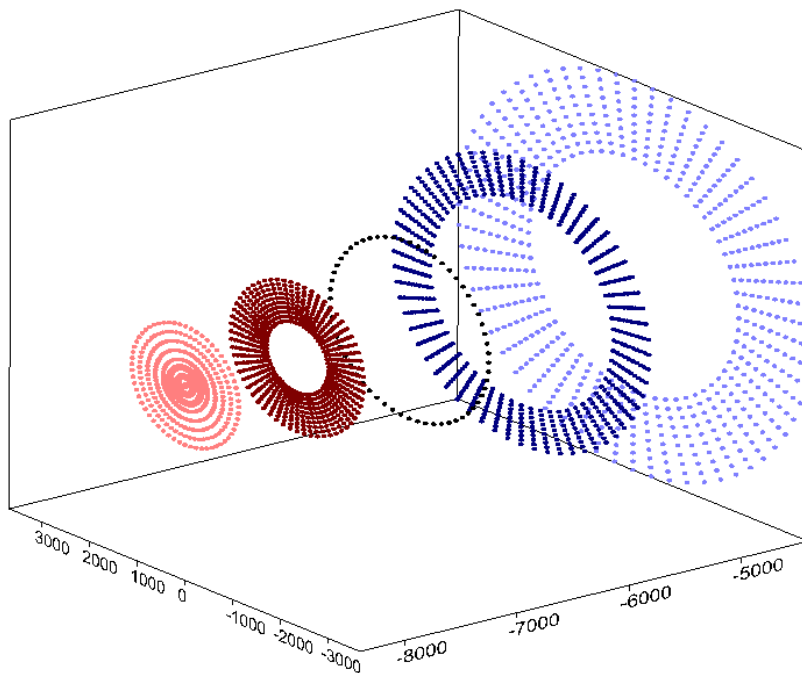


図 5.11 集光リング付近の光線の伝播を示した 3 次元散布図。光軸に対して垂直な 1 枚の平面との交点を同一色で示している。上流で円形だったビームが徐々にリング状に収束し、その後リング状に発散していく。

次に、準回転楕円ミラーで反射した後の最終集光点位置における光線分布を図 5.12 に示す。すべての光線が集光点に集まっていることがわかる。集光点のばらつきは  $1 \times 10^{-6} \text{ nm}$  程度であるが、計算時の桁落ち、丸め誤差によるものである。

続いて、図 5.13 に集光点近傍における光の伝播を 3 次元散布図として示す。図 5.11 と同様、同色の点は同一平面上に存在することを意味している。集光点より上流側でリング状だったビームが徐々に収束し、1 点に集光していく様子がわかる。

以上、点光源から発した光の光線追跡シミュレーションを行った。リング集光ミラーが円形ビームをリング状ビームに変換し、準回転楕円ミラーがリング状ビームを 1 点に集光する機能を有することが示された。これによりリング照明型二段集光システムの光学設計手法が正しいことが証明された。

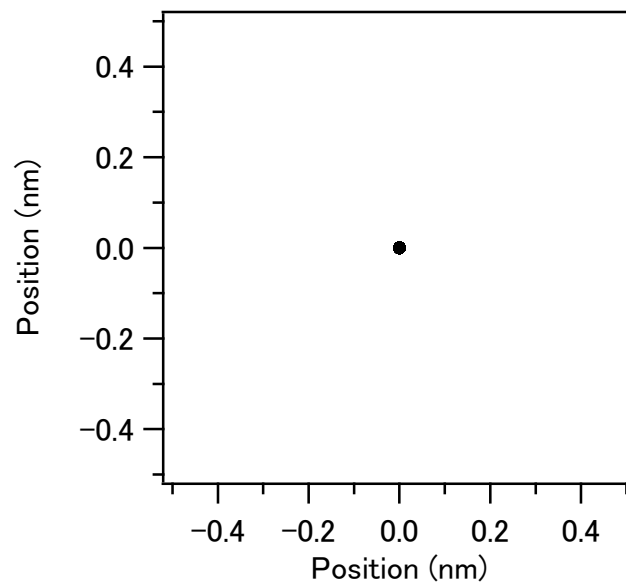


図 5.12 光線から出射した光線と焦点面の交点をプロットしたグラフ。1 点に集光している。

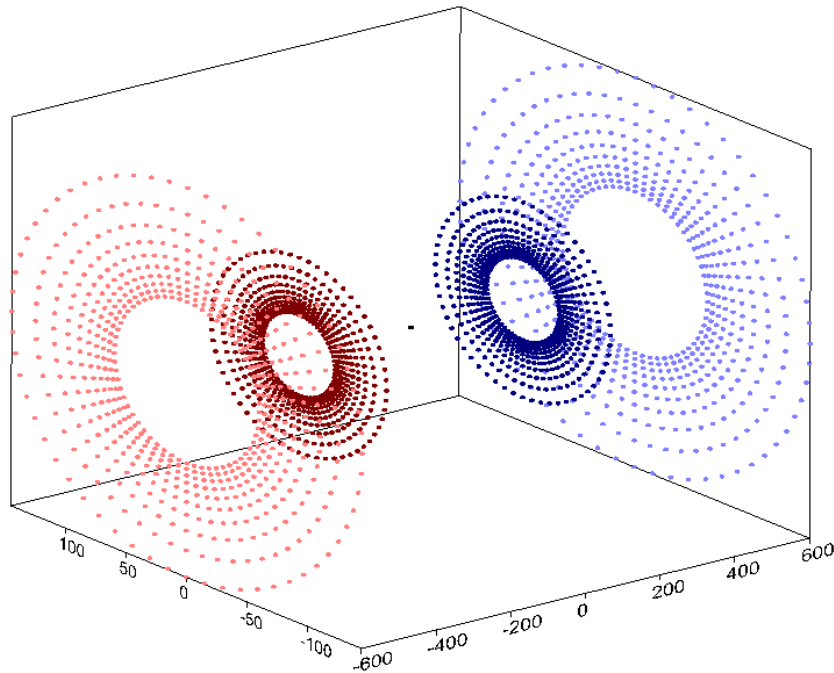


図 5.13 焦点面付近の光線の伝播の様子を 3 次元散布図として表示したグラフ。リング状の収束ビームが徐々に 1 点に収束し、その後再びリング状に発散している。

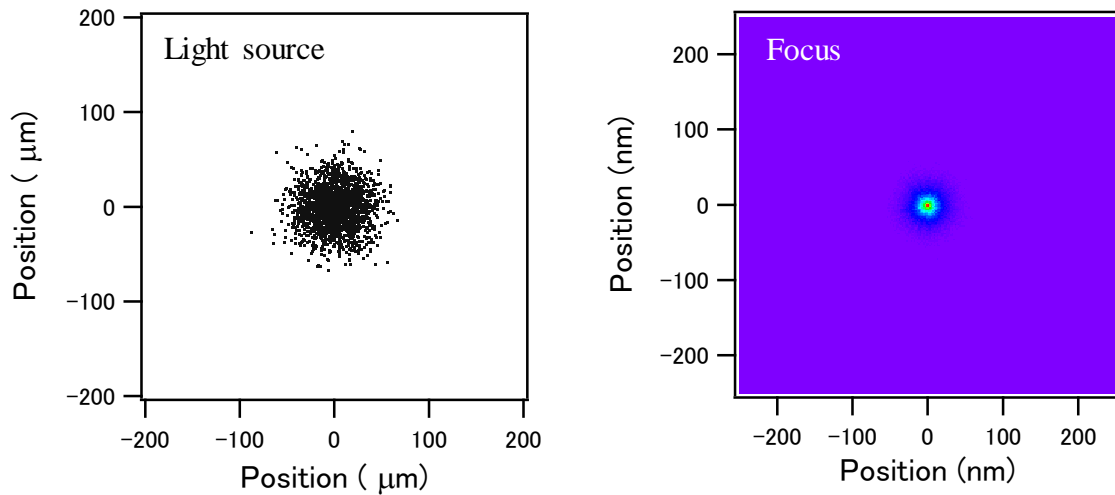
#### 5.4.5 光線追跡 2(有限サイズ光源)

本節では、有限のサイズをもつ光源を仮定した光線追跡を行う。有限サイズの光源を再現するために、設計上の光源点の周囲に複数の点光源が存在すると仮定する。各点光源からの光線追跡を実施し、焦点面における光線の散らばりから集光性能を評価する。点光源の分布は、図 5.14 のように、本来の光源位置を中心とした標準偏差  $\sigma$  の正規分布に従うものとする。光源サイズは正規分布の半値幅として定義する。各点から発した光線のもつ強度を 1 とし、リング集光ミラー、準回転楕円ミラーにおける反射率とリング集光ミラーの反射点における単位面積で、強度を規格化する。光線と最終集光面との交点を計算し、図 5.14 に示すように集光面上の各領域に到達した光線の積分強度を二次元ヒストグラムとして出力する。ヒストグラムが集光プロファイルに対応するものとみなして集光性能を評価する。また、各光源から発する光線は指向性のない完全なインコヒーレント光とみなし、リング集光ミラーの全面に向けて出射すると仮定する。

計算されたヒストグラムに二次元正規分布をフィッティングし、その半値幅を集光サイズとする。光源サイズと集光サイズの関係を図 5.15 にプロットする。光源サイズ、集光サイズともに半値幅で評価している。グラフからわかる通り、集光サイズは、光源サイズに線形に比例して大きくなっており、縮小倍率の法則に従っていることが

わかる。縮小倍率はおよそ 1/1250 である。以上、有限サイズ光源を仮定した光線追跡の結果から、リング照明型二段集光システムが光源サイズを縮小して焦点に集光する光学系であることを示した。

(a) Source size = 50  $\mu\text{m}$



(b) Source size = 100  $\mu\text{m}$

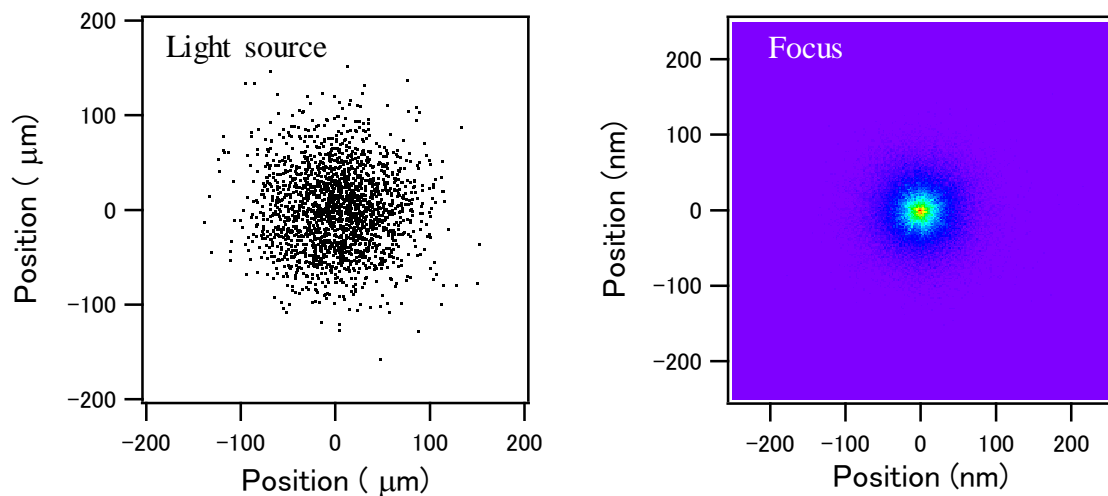


図 5. 14 光源サイズを(a) 50  $\mu\text{m}$ , (b) 100  $\mu\text{m}$  としたときの光線追跡の例。光源は左図のように焦点を中心として正規分布にしたがって広がっており、正規分布の半値幅を光源サイズとして定義している。焦点面における交点を 2 次元ヒストグラムとして算出したもの(右図)が集光プロフィールに相当すると仮定している。



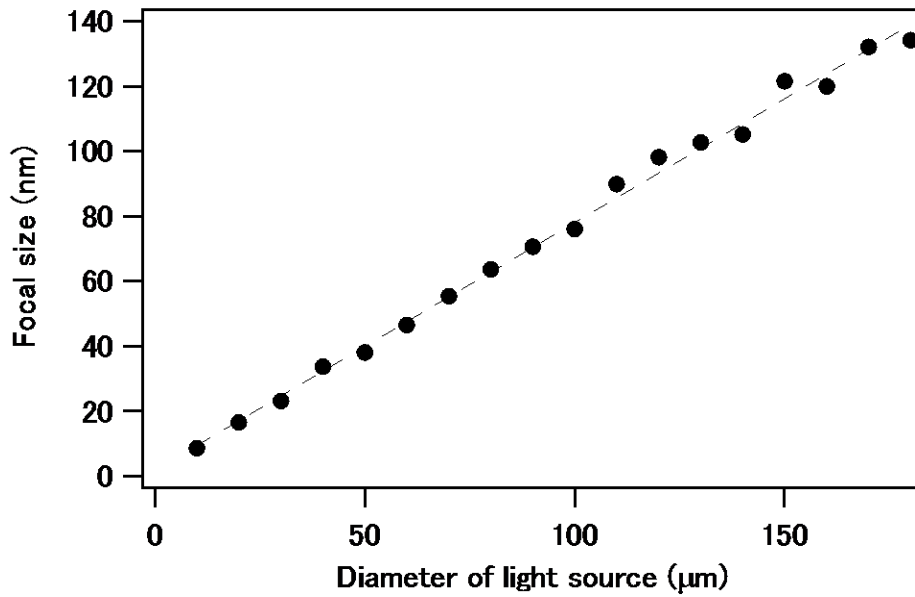


図 5.15 有限の光源サイズを仮定して光線追跡を行った際の、光源サイズと集光サイズの関係プロットしたグラフ。集光サイズは光源サイズに対して線形に比例している。

#### 5.4.6 波動光学シミュレーション

本節では、波動光学計算により集光性能を評価する。波動光学計算の手法は第2章と同様である。

まず、集光リング位置での強度分布を図 5.16 に示す。光線追跡の結果と同様、計算されたリング状強度分布の直径は式(5.14)から計算される値と一致している。

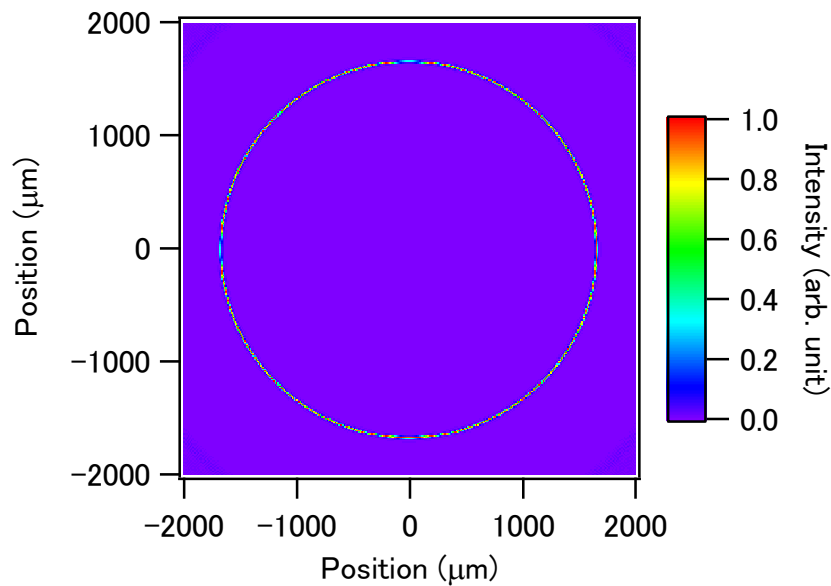


図 5.16  $S_3$  上における強度分布の計算結果。リングの直径は設計値に一致している。

次に、集光点位置における強度分布を図 5.17 に示す。断面グラフからわかるように、集光サイズは、半値幅 20 nm 程度となっている。この値は、準回転楕円ミラーの下流側直径とワークディスタンスから計算される回折限界サイズと概ね一致している。

以上の結果から、リング照明型二段集光システムを用いることで軟X線を波長レベルの領域に集光可能であることが示された。

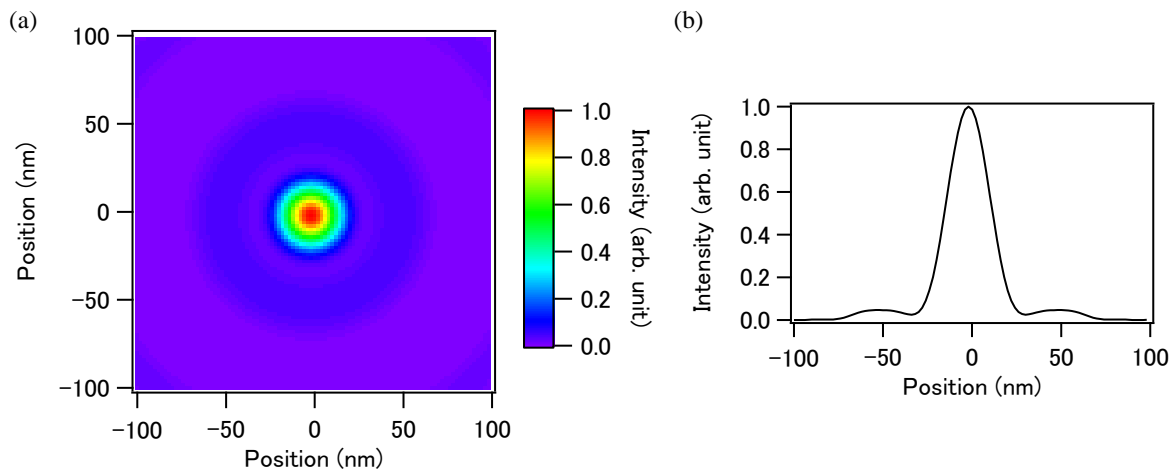


図 5.17 (a)集光点における強度分布を波動光学にもとづいて計算した結果と(b)その断面グラフ。集光サイズはおよぼ 20 nm となっている。

#### 5.4.7 SACLA-BL1 に導入した場合の理論性能

本節で設計した集光システムを実際に SACLA BL1 に導入した際の集光強度を計算する。パルスエネルギー100  $\mu\text{J}$ 、パルス幅 100 fs、トータルスルーput 50 %とすると、予想集光強度密度は  $1.6 \times 10^{20} \text{ W/cm}^2$  と計算される。第4章で達成した  $10^{16} \text{ W/cm}^2$  よりも4桁高い値を実現することができる。軟X線領域でここまで高強度な光電場を生成した例はなく、本集光システムの実現は軟X線非線形光学における研究領域の拡大に大きく寄与することが予想される。

## 5.5 結言

本章では，回転楕円ミラーの中空形状に起因した全面照明手法に関する問題点を取り上げ，これを解決するためにリング照明型二段集光システムを提案した．集光システムの光学設計手法を示し，光線追跡と波動光学計算により理論集光性能を示した．本章の結果をまとめる．

- (1) リング集光ミラーと準回転楕円ミラーから構成されるリング照明型二段集光システムを提案した．
- (2) リング照明型二段集光システムの光学設計手法を示した．
- (3) SACLA Beamline 1 へのインストールを想定し，波長 10 nm の光を 20 nm に集光する集光光学系を示した．
- (4) 光線追跡，波動光学計算により，リング照明型二段集光システムの理論集光性能を示した．

# 第6章 回転体ミラーの高精度化に関する研究

---

6.1 緒言.....	111
6.2 背景.....	112
6.3 内面成膜のコンセプト.....	114
6.4 イオンビームの原理.....	115
6.5 イオンビームスパッタ成膜の基本性能の評価.....	116
6.6 ピンホールマスクを利用した高分解能差分成膜手法の開発.....	118
6.6.1 装置構成.....	118
6.6.2 スポット成膜.....	119
6.6.3 1次元差分成膜.....	123
6.6.4 2次元差分成膜.....	124
6.6.5 ピンホール成膜のまとめ.....	124
6.7 内面成膜装置の開発.....	125
6.8 内面成膜実験.....	126
6.8.1 成膜後表面の AFM 計測.....	126
6.8.2 スポット成膜痕の形成.....	126
6.8.3 円周方向形状修正テスト.....	128
6.9 ミラー内面のルテニウムコーティングと評価.....	130
6.9.1 全面コーティング.....	130
6.9.2 軟 X 線 FEL 照射時のスループット調査.....	130
6.9.3 軟 X 線 FEL 集光性能調査.....	133
6.10 結言.....	134

---

## 6.1 緒言

第5章でリング照明型二段集光システムを提案した。回転体ミラーの全面を効率的に照明し、波長レベルの集光スポットを形成可能であることを示した。しかしながら、第2章で明らかにした通り、現状の回転楕円ミラーが軟X線の回折限界集光に必要な形状精度 PV 20 nm を満足していない、という課題は依然として残っている。

回転楕円ミラーの形状精度は、マンドレルの形状精度と電鋳の転写精度で決まる。マンドレルの形状を PV 10 nm 以上まで高精度化する技術はすでに確立されている一方で、電鋳によるミラー形状の転写精度は~50 nm にとどまっている。これは、電鋳時に発生するミラーの内部応力により全体形状にたわみが生じるためである。内部応力を低減する電鋳プロセスの開発が進められているが、完全に0にすることはできない。そのため、完成したミラーに追加工を施し、応力により生じる形状誤差を修正する必要がある。

本章では、回転楕円ミラーの形状を高精度化するための形状修正プロセスを開発する。イオンビームスパッタ成膜をベースとした形状修正装置を構築し、ミラー内面への成膜加工の実証実験を行う。本章は下記の流れに沿って展開する。

- ① イオンビームスパッタ成膜を利用した回転体ミラー内面への成膜手法を提案する。
- ② イオンビームスパッタ成膜装置を構築し、平面基板を使った基本性能の調査を行う。
- ③ 回転体ミラー内面の円周方向形状を改善する実験を行う。
- ④ ミラー内面を軟X線領域における高反射率材料でコーティングし、SACLAにおいて軟X線レーザーの反射特性を評価する。

## 6.2 背景

高精度加工は、被加工物表面の加工と形状計測を繰り返し、残存する誤差を段階的に除去することで達成される。回転体ミラーの形状計測に関しては、真円度計測器を駆使した三次元計測器や、可視光やX線をミラーで反射させ、反射光の情報から形状を逆算する計測手法が開発されている<sup>[106]</sup>。一方で、回転楕円ミラーの内面に追加工を施すプロセスは開発されていない。

X線ミラー加工プロセスの要件は、“ミラーの表面状態を悪化させないこと”と“ナノメートルレベルの形状制御が可能であること”の2つである。これらを満たす加工法として、スパッタ成膜法がX線ミラーの追加工法として広く利用されている。高エネルギー粒子をミラー材料であるスパッタターゲットに衝突させ、飛散したターゲット粒子を被加工物表面に堆積させて薄膜を形成する手法である。成膜後表面の空間波長1  $\mu\text{m}$  以下の領域の表面粗さを維持することができ、さらに成膜レートが数  $\text{nm}/\text{min}$  と非常に遅いためナノメートルレベルの形状制御が実現できる。

スパッタ成膜を利用してX線ミラーの形状を修正する手法は、差分成膜法と呼ばれる。図6.1に示すように、基板形状と目標形状の誤差プロファイルを算出し、誤差が低減するように成膜領域を走査する。スパッタ成膜がX線ミラーの追加工に利用されたのは、2009年のG. E. Iceらによる研究が最初である<sup>[107]</sup>。1次元球面ミラーの形状を楕円形状へと修正し、X線集光性能を向上させた。その後、Handaらが成膜法でシングルナノメートルレベルの形状制御が可能であることを実証し、平面基板上に作り込まれたX線ミラーの高精度化に広く適用されるようになった<sup>[108]-[111]</sup>。

1989年、AokiらはWolterミラーの内側に配置した金ターゲットをRFスパッタすることで、ミラー内面を金でコーティングした<sup>[47]</sup>。Aokiらの目的は内面コーティングによる反射率の向上であったが、2013年にはKilaruらによりWolterミラー内面の形状修正を目的とした成膜装置が開発された<sup>[112]</sup>。ミラー内側に配置した金属ターゲットをRFスパッタする点は同じであるが、ミラー面上で成膜領域を走査することができ、天体望遠鏡用の大開口Wolterミラーの形状修正加工例が報告されている。

本研究では、内径が5~10 mmの軟X線集光用回転楕円ミラーの形状修正を目的としている。小型回転体ミラーの内面を成膜するために、Kilaruらとは別のアプローチをとる。

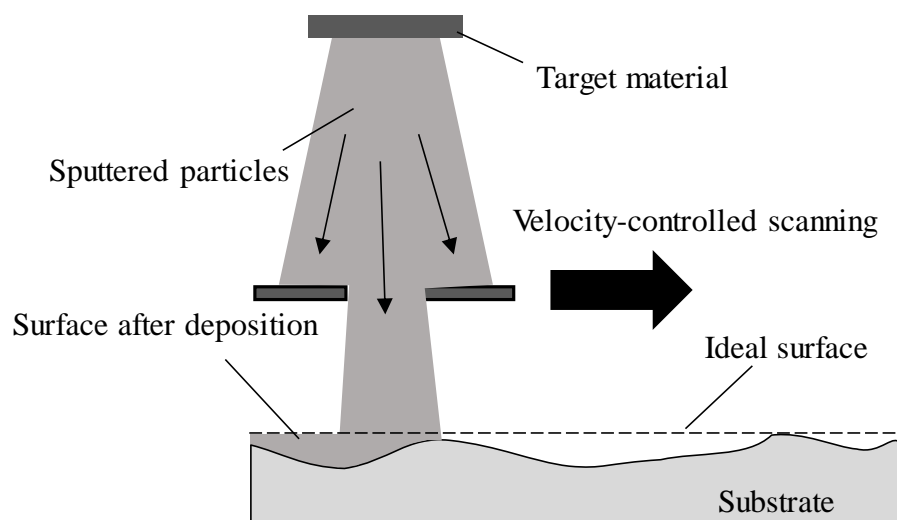


図 6.1 差分成膜のイメージ図. スパッタ材料から飛散した粒子の広がりをスリットで制限し、基板上に成膜する. 基板形状の目標形状からのずれに応じて、各領域における成膜時間を数値制御しながら成膜領域を走査する.

### 6.3 内面成膜のコンセプト

図 6.2 に、本研究で提案する形状修正装置のコンセプト図を示す。Kilaru らの手法と同様ミラーの内側に金属ターゲットを配置するが、ターゲット形状とスパッタ方法が異なる。

先端を 45 度の角度でカットしたロッド状のスパッタターゲットを回転楕円ミラーの上流開口から挿入する。カットされた面がスパッタ面となる。ターゲットは、開口付きのシリンダーマスクで覆われており、スパッタ面に近接する位置に直径 1 mm 程度の開口が空いている。ミラーの下流側から照射したイオンビームは、シリンダーマスク内を通りターゲット材料をスパッタする。飛散した材料原子がシリンダーマスクの開口を通りミラー面上に堆積する。

回転体ミラーとスパッタターゲットは、それぞれ Z ステージと回転ステージに取り付ける。回転体ミラーを上下に駆動することで成膜領域をミラー長手方向に制御できる。スパッタターゲットを回転させることで成膜領域をミラー円周方向に制御できる。2 方向の駆動を組み合わせることで、ミラー内面の任意の位置を選択的に成膜できる。また、回転楕円ミラーはニッケルで製作されるが、反射率の高い材料でミラー内面を一律にコーティングすることも可能である。軟 X 線領域では Ru が高反射率材料として知られている。

本章で開発する形状修正装置では、ミラーの内側に配置するのはターゲット材料のみであり、材料に高電圧を印加する必要がない。ターゲット直径を小型化することで小型の回転楕円ミラーに適用できる。また、RF スパッタのように装置全体を Ar で充填させる必要がないため、 $10^{-3}$ Pa 程度の高真空状態を保ったまま成膜を施すことができる。

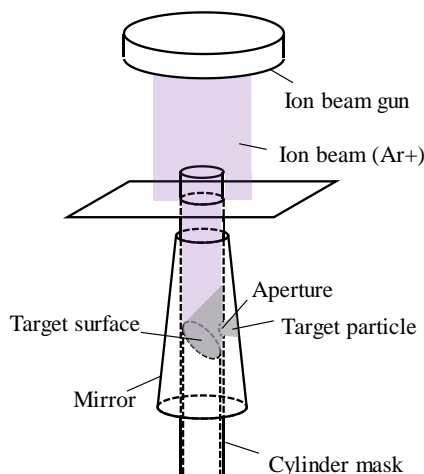


図 6.2 内面成膜装置のコンセプト図。回転体ミラーの内面に成膜するために、スパッタターゲットをミラーの内側に配置する。ミラーの外側からイオンビームを照射して材料をスパッタし、飛散した粒子がシリンダーマスクの開口を通過してミラー面上に堆積する。



## 6.4 イオンビームの原理

本研究で使用するイオンビームは大きく分けて、放電チャンバー、高周波電圧コイル、加速グリッドから構成される。放電チャンバー内に Ar ガスを導入し、その周りに巻かれたコイルに高周波電圧を印加すると、放電チャンバー内に発生した誘導電界により Ar は  $\text{Ar}^+$ へとイオン化する。印加された電圧が DC の場合、 $\text{Ar}^+$ は速やかにグラウンドに流れ込むが、RF 電圧の場合、電界の向きは RF 周波数で振動する。 $\text{Ar}^+$ は RF 電界により放電チャンバー内にトラップされ、プラズマとして存在することになる。

イオンビーム銃には、図 6.3 に示すように 3 箇所から VRS, VA, VEX の 3 つの高電圧を印加する。VRS 電圧の役割はプラズマ位置の調整である。 $\text{Ar}^+$ は正の値を持つ VRS から反発力を受けてイオンビーム銃先端側に押し出される。イオンビーム銃先端には 3 枚のカーボン製加速グリッドが取り付けられている。1 枚目には加速電圧 VA を印加する。放電チャンバー内の  $\text{Ar}^+$ は互いに反発し合い加速電圧 VA のポテンシャルを超えて、加速グリッドからイオンビーム銃の外側に漏れ出す。漏れ出した  $\text{Ar}^+$ は加速電圧 VA によって急速に加速され、イオンビーム銃の先端から出射する。真ん中のカーボングリッドには  $\text{Ar}^+$ の漏れ出し量を微調整するための VEX 電圧が印加されている。

$\text{Ar}^+$ がターゲット材料と衝突する際、運動エネルギーの授受が発生し、スパッタされた粒子は高エネルギー状態で基板に向けて飛散する。

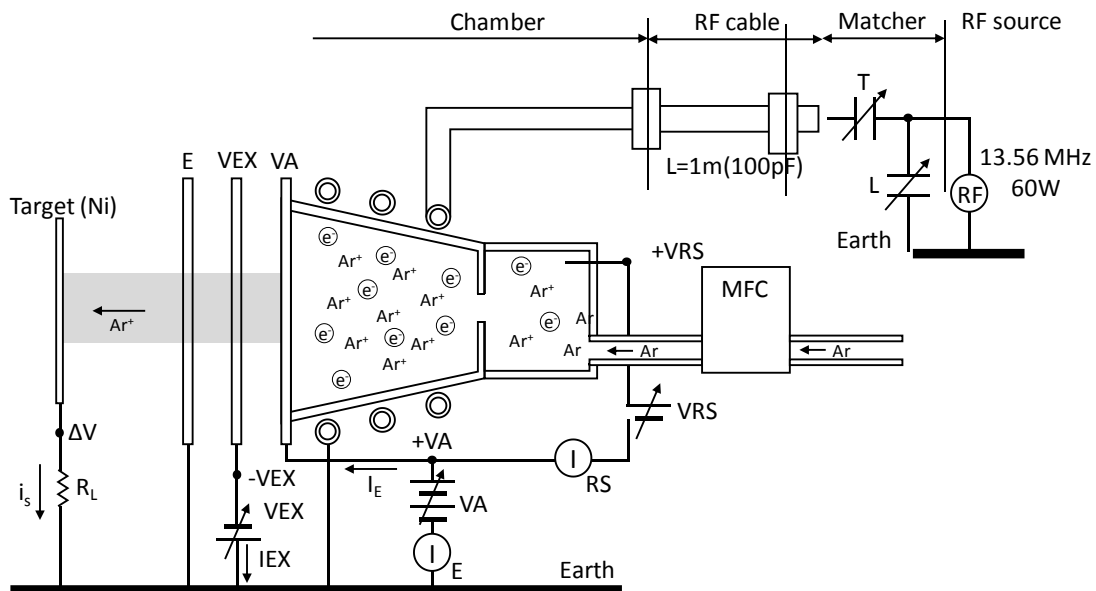


図 6.3 イオンビーム銃の構成図。ガラス製放電チャンバーに流入した Ar を RF 電圧でプラズマ化する。チャンバー底面の VRS 電圧で  $\text{Ar}^+$ を放電チャンバー内の前方に移動させ、漏れ出した  $\text{Ar}^+$ を、VA 電圧と VEX 電圧でイオンビーム銃前方に向かって出射する。

## 6.5 イオンビームスパッタ成膜の基本性能の評価

X線ミラーを高精度に加工するためには、成膜レートが安定していることと、成膜後の表面粗さが悪化しないことが重要である。そこで、まず平面基板へのイオンビームスパッタ成膜を行い基本性能の評価を行った。

イオンビームの下流にニッケルターゲットを配置し、ターゲットと対向する位置にガラス基板を設置して成膜を行う。基板は予めニッケルで全面をコーティングしたものを使用した。基板の一部はカプトンテープで覆われており、その領域は成膜が行われない。成膜終了後カプトンテープを剥がし、テープでマスクされた領域と成膜領域の境目を白色干渉計で計測することで、成膜された膜の厚さを知ることができる。

図6.4に成膜を施した後のガラス基板の写真と干渉計計測の例を示す。写真中、白点線で囲った部分が成膜領域である。加速電圧を段階的に変化させて4箇所に成膜を施した。表6.1に、実験から得られた加速電圧と成膜レートの関係を列挙する。成膜レートは加速電圧に応じて大きく変化せず、4.3~4.9 nm/min で安定していた。加速電圧は±5V以下の精度で安定しているため加速電圧の変動による成膜レートへの影響は無視できる。また、成膜レートは十分遅いためX線ミラーの高精度加工に適している。

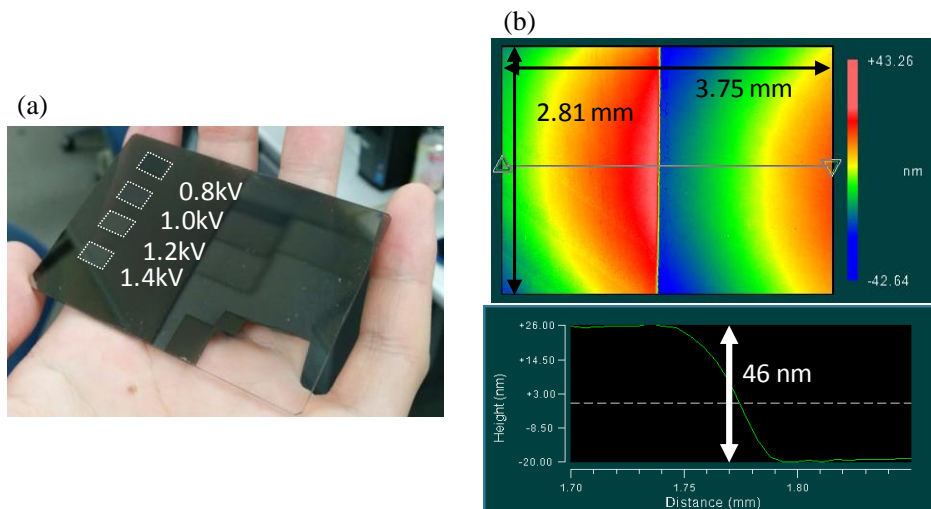


図 6.4 (a)ニッケルを成膜したガラス基板の写真と(b)非成膜領域との境目を白色干渉計で計測した例.

表 6.1 印加した加速電圧に対する成膜レートの平均値

加速電圧 (kV)	成膜レート (nm / min)
0.8	4.8
1.0	4.3
1.2	4.6
1.4	4.9

次に、成膜プロセスが表面状態に与える影響を調べるため、シリコンウエハ上にニッケルを成膜し、成膜領域を AFM で計測した。図 6.5 に成膜前後のシリコンウエハの写真に掲載する。加速電圧 VA は 1.0 ~1.4 kV まで段階的に変化させて成膜した。

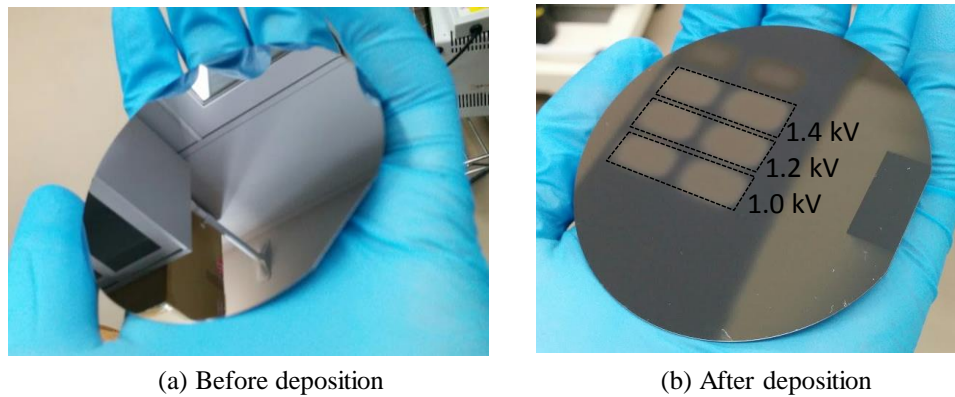


図 6.5 (a)成膜前のシリコンウエハと(b)ニッケルで成膜後のシリコンウエハの写真。

図 6.6 に  $500 \times 500 \text{ nm}^2$  の領域を AFM で計測した結果を示す。比較のため、成膜を施していない領域を計測した結果も合わせて示す。いずれの成膜領域も、元の Si ウエハと比較して、表面状態の顕著な悪化は見られなかった。

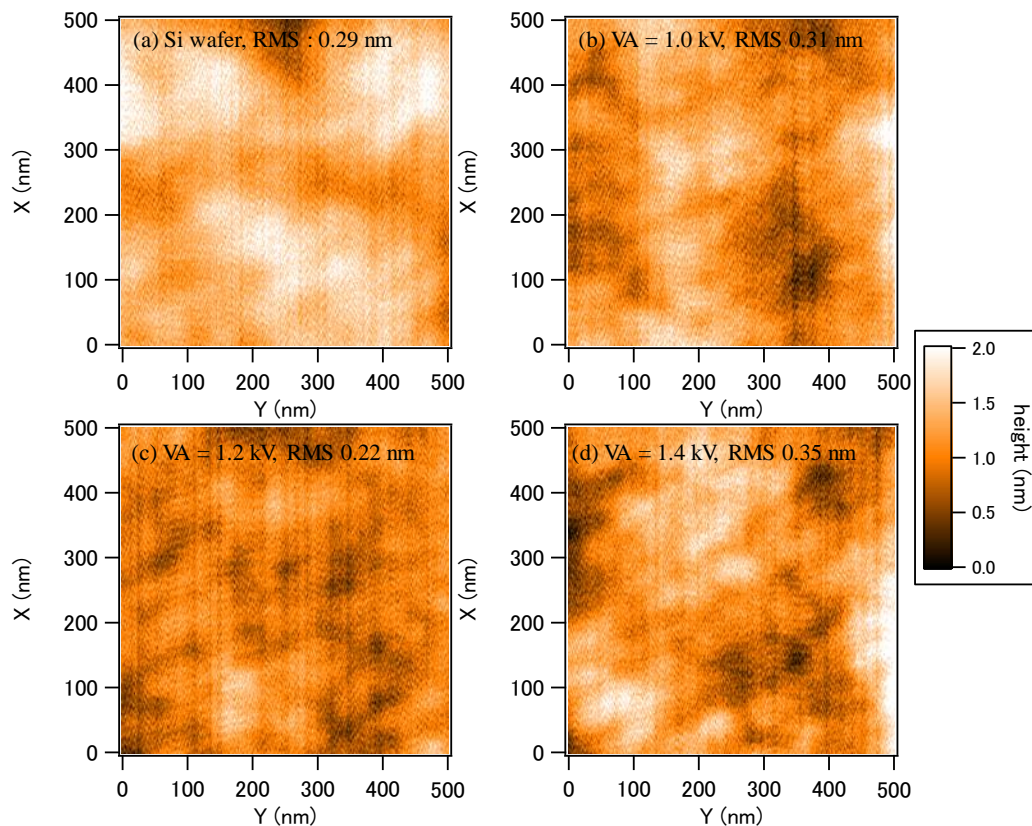


図 6.6 シリコンウエハ表面をニッケルで成膜した領域を AFM で計測した結果。成膜前後で AFM 領域における表面粗さの顕著な劣化は見られなかった。

## 6.6 ピンホールマスクを利用した高分解能差分成膜手法の開発

前節で構築したイオンビームスパッタ成膜装置を利用して、平面基板上への差分成膜実験を行う。自動ステージに取り付けた基板を駆動させて成膜領域を走査することで任意の形状を創成する。

スポット成膜痕形状と目標プロファイルの情報から、最適な滞在時間分布を逆算できる。スポット成膜痕形状  $S(u, v)$ 、目標プロファイル  $P(x, y)$ 、滞在時間分布  $T(x, y)$ の間には、次式で示すようにコンボリューションの関係が成り立つ。

$$P(x, y) = (T * S)(x, y) = \iint_{(u, v)} S(u, v) \times T(x - u, y - v) du dv \quad (6.1)$$

式(6.1)をデコンボリューションすることで滞在時間分を逆算できる。デコンボリューションの手法はいくつか提案されているが、本研究では、反復計算を行う手法を採用する。まず、式(6.1)において計測したスポット成膜痕形状  $S$  と仮の滞在時間分布  $T'$  を入力し、仮の成膜分布  $P'$  をコンボリューション計算する。目標成膜分布と仮の成膜分布との偏差  $(P - P')$  に係数を乗じたものを仮の滞在時間分布にフィードバックする ( $T' \rightarrow T' + C(P - P')$ )。この計算を繰り返すことで、滞在時間分布を最適な分布に漸近させる。下記に擬似言語で記述した繰り返し計算によるデコンボリューション計算のフローを示す。

```

Input S, P, T' //単位成膜痕 S, 目標形状 P, 仮の滞在時間分布 T' を入力
While (E > threshold){
    P' = S ⊗ T' //S, T' から仮の成膜分布 P' を算出
    E = (P - P')² //P と P' を比較
    T' = T' + C(P - P') //滞在時間分布をアップデート
}

```

### 6.6.1 装置構成

差分成膜装置のセットアップの概要を図 6.7 に示す。スパッタされた粒子は等方的に飛散するため、成膜基板直前に開口付きマスクを配置することで成膜領域を制限する。成膜基板は面内の 2 方向に駆動する自動ステージに取り付けられており、基板上の任意の位置に成膜領域を移動させることができる。前節と同様、ニッケルをスパッタターゲットとした。

上記のようなセットアップによる差分成膜は多数報告されているが、いずれも開口のサイズは mm オーダーである<sup>[107], [108]</sup>。一方で、マイクロパターニングを目的として、直径 10  $\mu\text{m}$  の開口マスクを用いた成膜例も報告されているが、マスクは基板に密着させているため成膜領域は移動できない<sup>[113]</sup>。

本節では、直径 50, 100, 200  $\mu\text{m}$  の開口マスクを用いて差分成膜を行う。単位成膜痕のサイズが先行研究のものよりも小さいため、高い空間分解能で差分成膜を行うこと

ができる。従来の差分成膜とマイクロパターニング成膜の中間の特徴をもつ加工手法となる<sup>[114]</sup>。

ステンレス製のプレート上に直径 50, 100, 200  $\mu\text{m}$  のピンホールを 2mm ピッチで配置した。マスクの厚さは 100 $\mu\text{m}$  であり、マイクロ放電加工機 AE05(Sodick 製)により製作した。

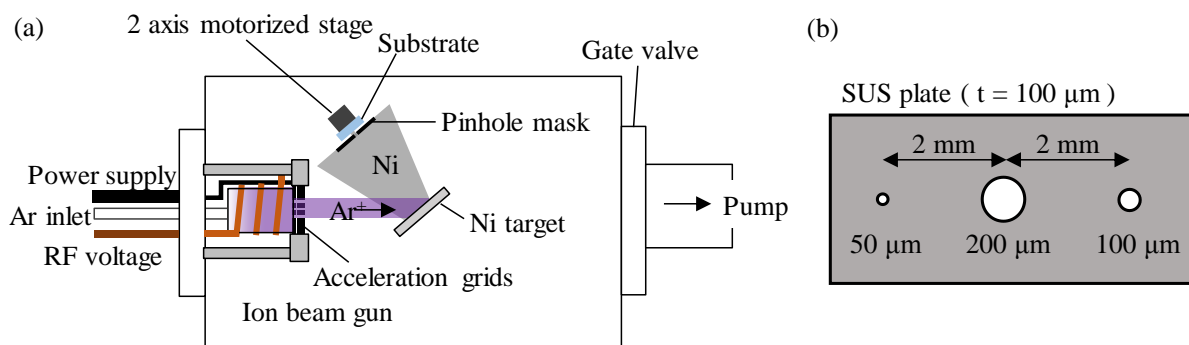


図 6.7 (a)イオンビームスパッタ成膜をベースとした差分成膜システムの構成図と(b)ステンレスプレート上のピンホールの配置図。

### 6.6.2 スポット成膜

まず、単位成膜痕形状を知るために、スポット成膜を実施した。マスクには、3つのピンホールが並んでいるため、一度の成膜でサイズの異なる3つのスポット成膜痕が形成される。一定時間ごとに基盤を移動し、各ピンホールに対して6個のスポット成膜痕を形成した。スポット成膜後、白色干渉計 NewView700 にて形状を計測した。なお、屈折率の違いに寄る白色干渉計の計測誤差を避けるため、あらかじめ全体をニッケルでコーティングした基板を使用した。

図 6.8 に白色干渉計による計測例とその断面プロファイルを示す。グラフからわかる通り、ピンホール径に応じてスポット成膜痕のサイズが変化している。直径 50, 100, 200 $\mu\text{m}$  のピンホールで形成されたスポット成膜痕サイズは、それぞれ 87, 113, 176  $\mu\text{m}$  であった。いずれも、半値幅は 200  $\mu\text{m}$  以下であり高い空間分解能で差分成膜が可能であることを示唆している。

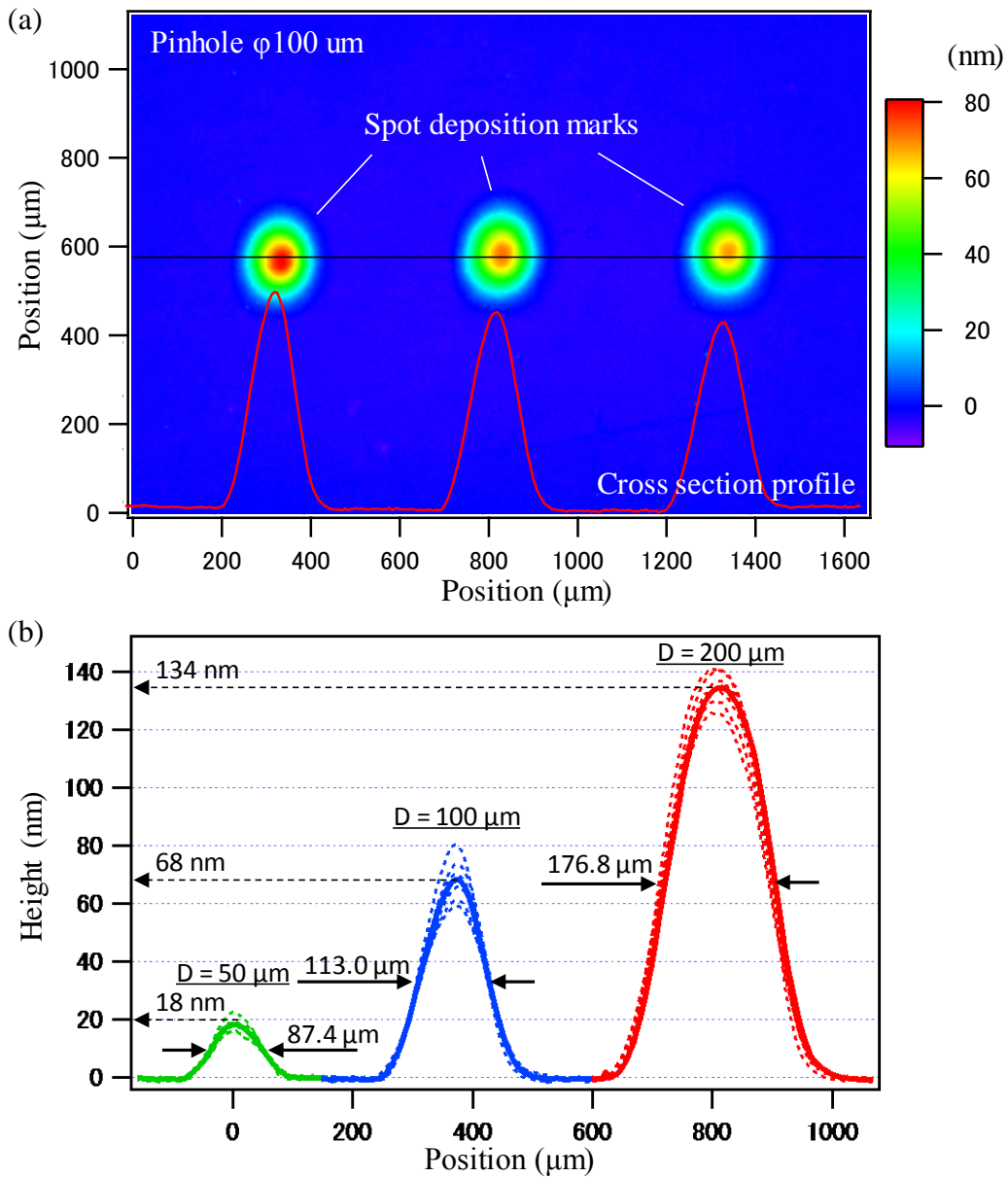


図 6. 8 (a)形成したスポット成膜痕の白色干渉計による計測例と(b)各スポット成膜痕の断面プロファイル。

各ピンホールによるスポット成膜の成膜レートの違いは、ピンホール間のアスペクト比の違いによるものだと考えられる。そこで、図 6.9 に示すような計算モデルを仮定し成膜分布のシミュレーションを行った。イオンビームの強度はガウシアン分布であるとし、ターゲットのスputタ率は各点におけるイオンビームの強度に比例すると仮定する。また、sputタされた粒子は全方向に様に飛散するものとする。この際、粒子が飛散する軌跡を計算し、ピンホールを通り抜けた粒子のみが基板に堆積するものとする。この計算では、ピンホールと基板間の距離とピンホールマスクの厚さも考

慮する．基板表面は計算機上で一定ピッチのセグメントに分割し，各セグメントに到達した粒子の数を足し合わせていく．最後に，基板に到達した粒子のヒストグラムを計算することで，基板上でのスポット成膜痕プロファイルを得る．

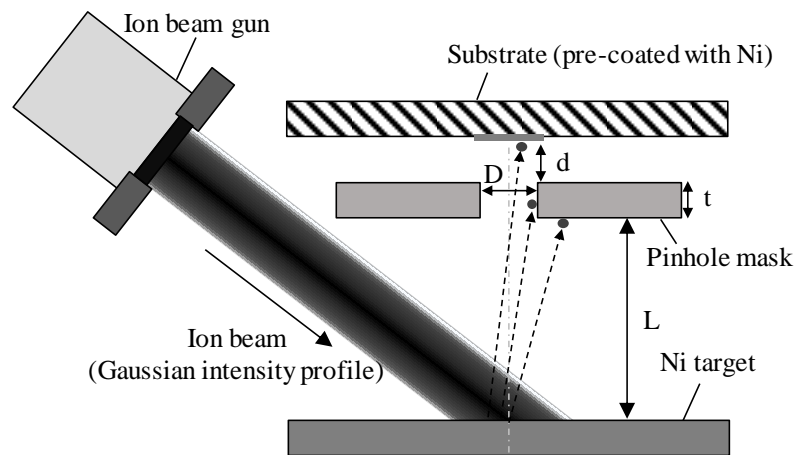


図 6.9 ピンホール成膜の成膜特性をシミュレーションするための計算モデル．イオンビームをニッケルターゲット表面に照射し，スパッタされた粒子がピンホールに向けて飛散する．ピンホールの厚みを  $t$ ，直径を  $D$ ，ピンホールと基板のギャップを  $d$  として，幾何学的にピンホールを通り抜けた粒子のみが基板上に堆積すると仮定する．

ピンホール-マスク間距離を  $0\sim 300\ \mu\text{m}$  まで  $100\ \mu\text{m}$  ピッチで変化させてシミュレーションを行った結果を図 6.10 に示す．横軸がピンホールサイズ，縦軸が成膜レートを示している．ピンホール径が小さくなるにつれて徐々に成膜レートが低下している．これは，ピンホール直径に対するマスク厚さ(アスペクト比)が大きくなり，粒子がピンホールを通り抜けにくくなったためである．ピンホールの径が大きくなると成膜レートは一定値に漸近する．

また，ピンホール-マスク間距離が成膜レートに大きく影響を与えていることがわかる．特に，ピンホール径が小さい場合にその影響が顕著にあらわれている．これは，ピンホールの実効的なアスペクト比がマスクの厚みだけではなくピンホール-マスク間距離によっても変化するためである．実験により得られた  $50, 100, 200\ \mu\text{m}$  のピンホールによる成膜レートの比率を，シミュレーション結果と照らし合わせると，ピンホール-マスク間距離が  $450\ \mu\text{m}$  の場合の計算結果とよく一致した．ピンホール-マスク間距離を  $450\ \mu\text{m}$  として，各ピンホール径に対するスポット成膜痕プロファイルを計算した結果を図 6.11 に示す．グラフには，実験により得られたスポット成膜痕プロファイルの平均データを合わせて示している．成膜レートはもちろんのこと，成膜痕の幅もよく再現されていることがわかる．

以上のように，シンプルなモデルを仮定したシミュレーションでピンホール成膜の特性を説明できることを示した．

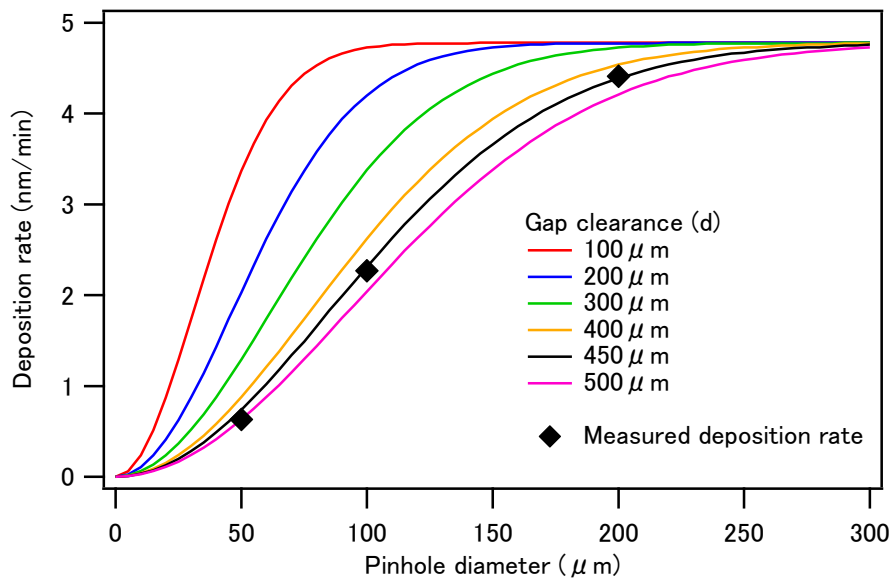


図 6.10 前述の計算モデルで、ギャップ  $d$  を変化させながら成膜レートのピンホール直径依存性を計算した結果。グラフ中の 3 つの黒点は、実験により得られた成膜レートデータ。実験値は、ギャップ  $d$  を  $450\ \mu\text{m}$  とした時の成膜レート曲線上に乗る。

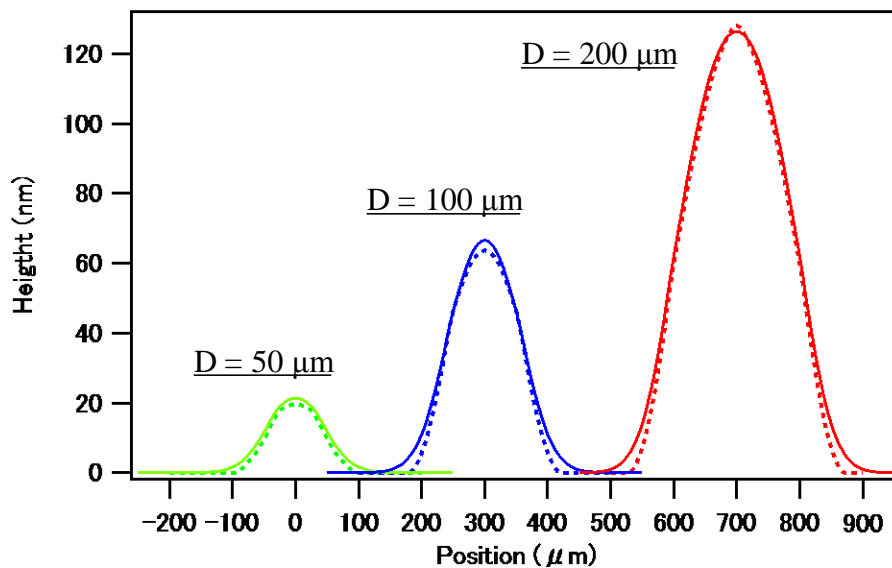


図 6.11 ギャップ  $d$  を  $450\ \mu\text{m}$  として単位成膜痕プロファイルの断面グラフを計算した結果(実線)と実験により得られた成膜痕形状の断面プロファイル(点線)。シミュレーション結果は実験で得られた成膜プロファイルをよく再現している。



## 6.6.3 1次元差分成膜

構築した差分成膜装置を利用して、1次元方向の差分成膜を行った。複数のバンプを有する構造を目標形状とした。滞在時間分布は、直径  $100\ \mu\text{m}$  のピンホールで形成した単位成膜痕データと目標形状から算出した。

図 6.12 に実験後に計測した形状プロファイルを示す。なお、比較のためにピーク値が 100 となるように規格化した目標形状も合わせて示している。いずれのピンホールで形成した形状も目標形状に近いものとなった。

作製した形状のうち、グラフ中でもっとも右に位置するバンプ構造に着目すると、ピンホール径の違いによる加工可能な最小空間分解能の違いが見て取れる。このバンプは2つのバンプが重なり合った構造である。直径  $50\ \mu\text{m}$  のピンホールで作製された形状では、目標形状のバンプよりも、シャープなバンプが重なり合っている。一方で、直径  $200\ \mu\text{m}$  のピンホールで作製された形状では2つのバンプの構造を識別することはできず、一つのバンプとして形成されている。これは、各直径のピンホールで加工可能な最小空間分解能がスポット成膜痕サイズに依存するためである。また、直径  $50\ \mu\text{m}$  のピンホールで得られた結果に着目すると、シングルナノメートルレベルの形状制御が行えていることがわかる。

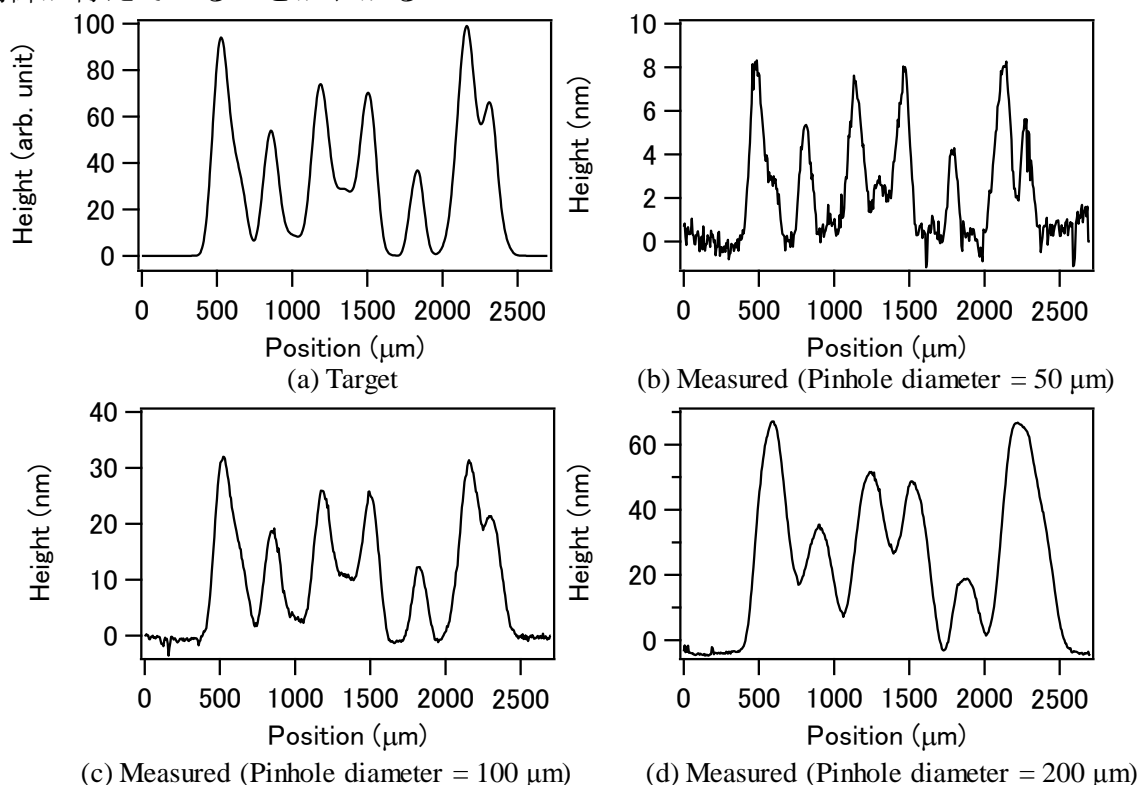


図 6.12 1次元差分成膜実験における(a)目標形状と(b)-(d)各ピンホールにより形成された1次元成膜形状。各形状は目標形状に概ね一致しているが、一番右のバンプに着目すると、ピンホール直径が小さい方が細かい形状が形成されていることがわかる。

### 6.6.4 2次元差分成膜

続いて、基板駆動方向を面内の2方向に拡張し、二次元走査成膜を行った。1×1mm<sup>2</sup>の領域に、ローマ字の”R”がフリップした形状“Я”を製作する。1次元差分成膜の場合と同様、単位成膜痕形状と目標形状から滞在時間分布を算出した。

直径 100 μm、200 μm のピンホールで形成した形状を白色干渉計で計測した結果を図 6.13 に示す。1×1 mm<sup>2</sup>以下と狭い領域にもかかわらず、いずれの成膜結果においても Я という文字を明瞭に読み取ることができる。また、直径 100 μm で作製した形状よりも、直径 200 μm のピンホールで作製した形状の方が全体的にぼやけている。これは、1次元差分成膜の場合と同様、加工可能な最小空間分解能がスポット成膜痕サイズに依存するためである。

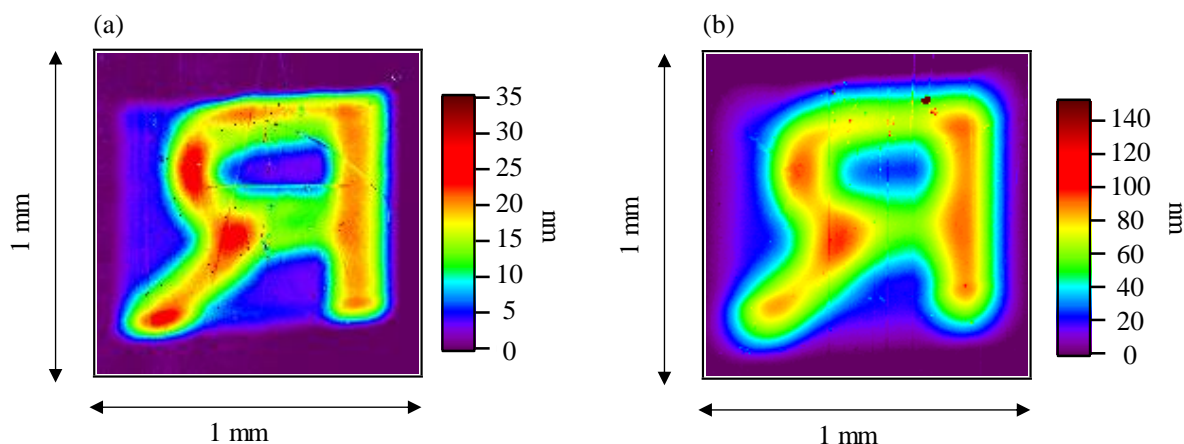


図 6.13 2次元差分成膜実験で形成した成膜形状の等高線グラフ。(a) 直径 100 μm、(b) 直径 200 μm のピンホールで形成した結果を示している。直径が大きい分、(b)の方が Я という文字がぼやけていることがわかる。

### 6.6.5 ピンホール成膜のまとめ

本節では、イオンビームスパッタ成膜装置をベースとした、差分成膜装置を開発した。単純な滞在時間分制御を行うことで、1次元、2次元方向に任意の形状をナノメートルレベルで制御できることを確認した。また、ピンホールで成膜領域を制限することで、これまでに報告されていない高い空間分解能での差分成膜を実現した。

## 6.7 内面成膜装置の開発

本節では、回転体ミラー内面への成膜手法に関して述べる。

回転体ミラーの内面に成膜を施すために、ミラーの内側に挿入したロッドターゲットにミラー外側からイオンビームを照射して、材料原子をスパッタする。図 6.14(a)に装置構成の概略図を示す。本構成を実現するために新たに真空チャンバーを製作し、上面にイオンビーム銃を鉛直下向きに取り付けた。ミラーを Z ステージに、ロッドターゲットを回転ステージに取り付け、イオンビーム直下に配置する。2 つのステージを駆動することでミラー面上の任意の領域に成膜加工を施すことができる。

図 6.14(b)に示すように、ロッドターゲットは直径 5 mm のシリンダーマスクで覆われており、スパッタ面に対向する位置には直径 1 mm の開口が空けられている。この開口により、スパッタ粒子の飛散方向を制限する。また、ミラーの直上にシリンダーマスクの外形と同程度のサイズの開口を持つステンレスマスクを取り付け、ミラーの外周部分にイオンビームが照射されるのを防いでいる。

ここで、ターゲット内部の圧力上昇について考える。スパッタ源付近の圧力が高いとスパッタ粒子の平均自由行程が短くなりミラー面上への成膜状態が悪化する。イオンビーム銃で発生するプラズマ電流量は 4~5 mA である。また、ビーム径が半値幅 20 mm 程度であるため、直径 5 mm のシリンダーマスク内部に侵入する  $\text{Ar}^+$  粒子の割合は 10 %程度であると見積もられる。この条件のもと、1 min 当たりにシリンダーマスク内に侵入する  $\text{Ar}^+$  粒子数を見積もると、 $1.8 \times 10^{17}$  程度であると計算される。一方で、大気圧化におけるシリンダーマスク内の粒子数は、 $5.8 \times 10^{20}$  程度と計算される。イオンビームによりシリンダーマスク内に流入する  $\text{Ar}^+$  原子数は、1 min 当たりでも大気圧下における粒子数よりも 3 桁低い値と見積もられる。さらに、チャンバー全体は高真空に保たれており、流入した  $\text{Ar}^+$  は順次排気されていくことを考えると、シリンダーマスク内部の圧力上昇は、回転楕円ミラー内面への成膜に影響しないレベルであると考えられる。

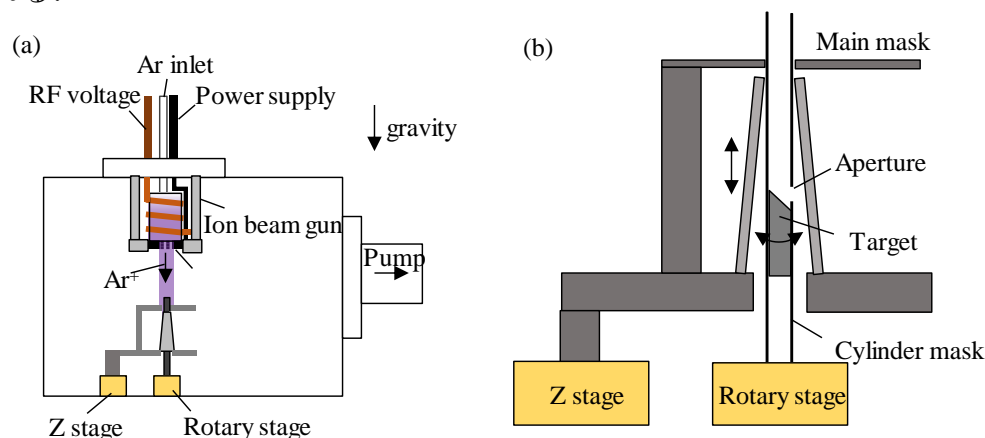


図 6.14 (a)回転楕円ミラー内面用の差分成膜装置構成図と(b)ミラー付近の拡大図。

## 6.8 内面成膜実験

本節では、構築したミラー内面スパッタ成膜装置を使用して、回転体ミラー内面への成膜に関する基礎実験を行う。成膜実験用のサンプルとして、回転楕円ミラーと類似形状を有する円錐ミラーを用意した。

### 6.8.1 成膜後表面の AFM 計測

構築したスパッタ成膜装置は、金属ターゲットの周りがシリンダーマスクで覆われており、さらに金属ターゲットから成膜基板までの距離が数 mm と極端に短い。これらの点において通常のイオンビームスパッタ成膜とは成膜特性が異なる可能性がある。

構築した成膜装置を用いてニッケルとルテニウムをシリコンウエハ上に成膜し、成膜後の表面を AFM で計測した。図 6.15 に成膜前後の表面を計測した結果を示す。計測範囲は  $500 \times 500 \text{ nm}^2$  とした。シリコンウエハ表面(非成膜面), Ni 成膜表面, Ru 成膜表面の表面粗さはそれぞれ, RMS 0.246 nm, RMS 0.180 nm, RMS 0.172 nm と計測され、元のシリコンウエハの表面粗さを悪化させる傾向は見られなかった。

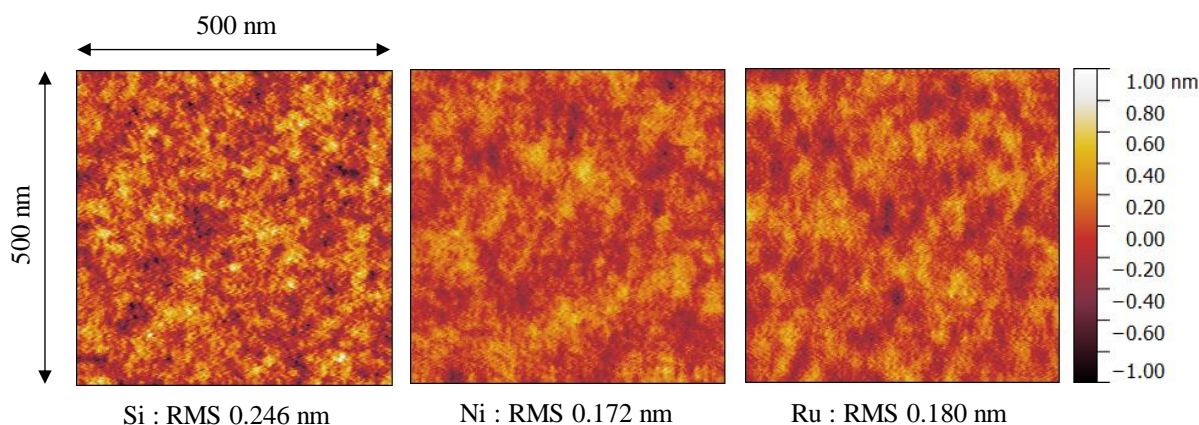


図 6.15 成膜後表面を AFM で計測した結果。シリコンウエハ上で成膜されていない領域の表面粗さが RMS 0.246 nm であるのに対して、Ni, Ru による成膜後表面粗さは、それぞれ RMS 0.180 nm, 0.172 nm であり、元の基板表面粗さを悪化させる傾向は見られなかった。

### 6.8.2 スポット成膜痕の形成

次に、円錐ミラー内面へのスポット成膜実験を実施した。シリンダーマスクの効果を確かめるために、マスクを装着していない状態でも成膜を実施した。ここでは、ニッケル製のロッドターゲットを用いている。

スポット成膜実験前にあらかじめミラーの円周方向形状を計測しておき、成膜後の形状との差分からスポット成膜痕の形状を算出する。円周方向形状は、真円度計測器

(小坂研究所, EC1550)で計測した. ミラー内面に挿入した差動トランス式変位プローブの先端をミラー面に接触させた状態でミラーを一回転させることで, ミラーの円周方向形状を計測できる. 円周形状の計測再現性は 10 nm 程度であり, 本節における成膜プロファイル計測に問題がないレベルである.

図 6.16 に, 成膜痕の計測結果を示す. 横軸はミラーの円周方向角度を示している. (a)がシリンダーマスクを装着していない状態, (b)がシリンダーマスクを装着した状態で成膜を行った場合の結果を示しており, 円周方向における成膜痕の広がり角度(半値幅)はそれぞれ, 82 deg, 33 deg となった. シリンダーマスクの開口で飛散する粒子の角度広がりが制限され, 成膜領域が狭くなっていることがわかる.

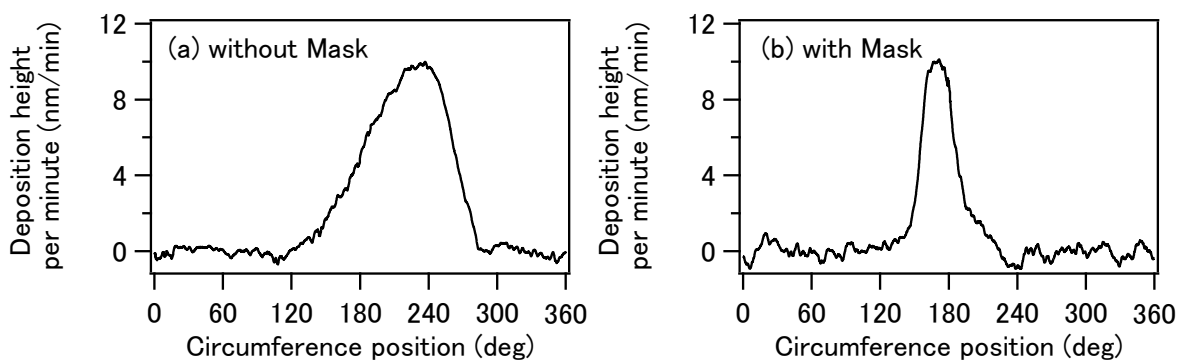


図 6.16 (a)マスクが無い状態と(b)マスクがある状態でミラー内面にスポット成膜痕を形成し, 円周方向形状プロファイルを計測した結果. マスクにより粒子の飛散角度が制限され, ミラー面上の成膜痕サイズが小さくなっている.

第2章で, 回転楕円ミラーによる軟 X 線回折限界集光のためには PV 25 nm 以上の形状精度が必要であることを明らかにした. 実際に製作された回転楕円ミラーの形状計測結果と, 前述の単位成膜痕データをもとに, 円周方向の形状修正シミュレーションを実施した. ミラーの目標形状は真円であり, 回転ステージの各角度における滞在時間分布はデコンボリューション計算により算出する.

形状修正シミュレーションの結果を図 6.17 に示す. 実線が実際の回転楕円ミラーの円周方向プロファイル, 破線はシミュレーションから予想される形状修正後の円周プロファイルを示している. 形状修正後の予想形状精度はマスクを装着していない状態では PV 40 nm 程度であったが, マスクを装着した状態では PV 12 nm まで改善可能であることがわかった. この違いは, 前節の平面基板上への差分成膜の実験結果と同様, 単位成膜痕が小さくなったことにより加工可能な最小空間分解能が向上したためである. 本成膜システムを用いて回転楕円ミラーの形状を必要精度以上まで改善することが可能であることが示された.

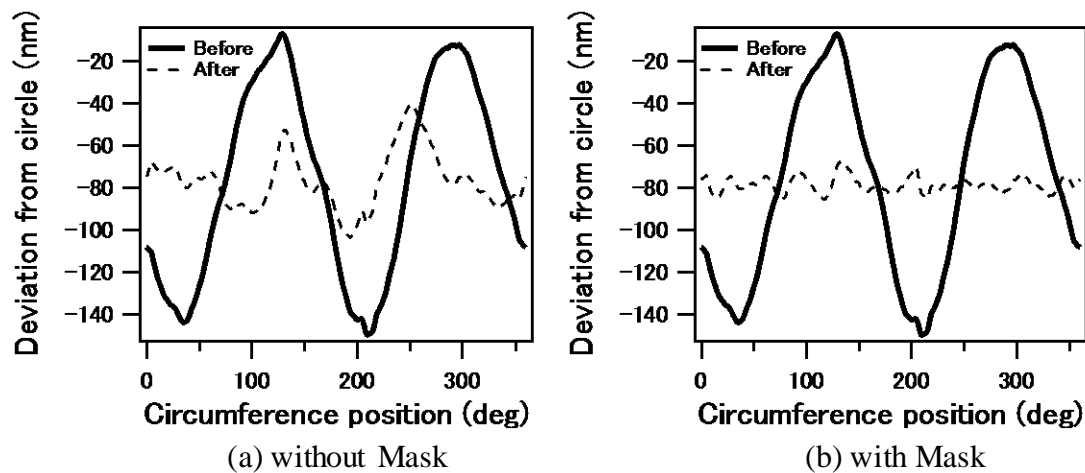


図 6.17 (a) マスクがある状態, (b) マスクが無い状態の成膜痕データを使用して, 円周方向形状修正シミュレーションを行った結果. 実線が円周方向の元のミラー形状プロファイル, 破線は形状修正シミュレーション後のミラー形状プロファイルを表している.

### 6.8.3 円周方向形状修正テスト

前節までの結果をふまえ, マスクを装着した状態のニッケルターゲットを使用して円錐ミラー内面の円周方向形状修正テストを実施した. 成膜時間は2時間57分であった. 図 6.18(a)に成膜前後の真円度計測結果を示す. 円錐ミラーの形状精度はPV 160 nm程度からPV 80 nm程度まで改善した. また, 図 6.18(b)に, 形状修正シミュレーションから得られた予想成膜量分布(点線)と実際の成膜量分布(実線)を示す. 両グラフは完全には一致していないが, 概ね予想通りの成膜量分布が形成されている. 完全に一致しない原因は, 長時間成膜プロセス中の成膜レートの不安定性によるものであると考えられる. しかしながら, 円周方向全域において形状誤差は50%低減された. 実際の回転楕円ミラーを用いた形状修正実験においても, 50%ずつ形状精度を改善していくことで, 最終的に必要形状精度を達成可能であると考えられる.

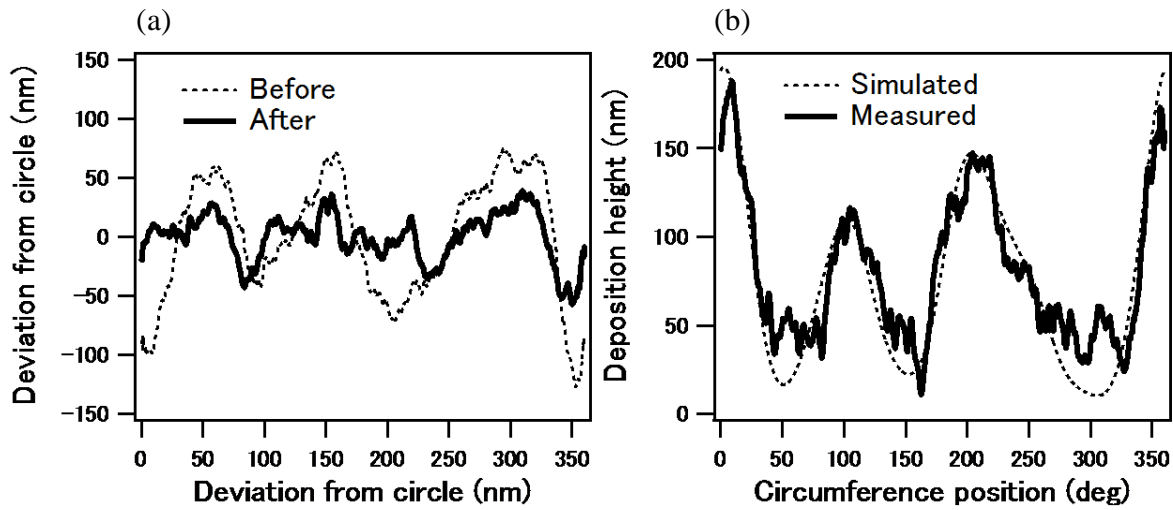


図 6.18 円周方向差分成膜における, (a) 成膜前後の円周方向形状を計測した結果と, (b) 予想成膜プロファイルと計測された成膜プロファイルを示したグラフ.

また, 図 6.19 に他の 3 ラインにおいて行った円周方向差分成膜実験の結果を示す. 破線が予想成膜量分布, 実線が計測された成膜量分布を表している. いずれにおいても, 成膜プロファイルは予想プロファイルと概ね一致しており, 本手法の有効性を補強する結果が得られた.

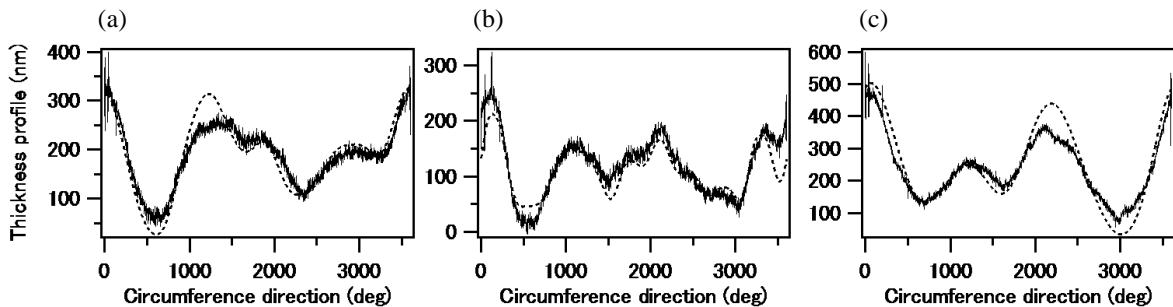


図 6.19 (a)~(c)の 3 ラインにおいて円周方向形状修正加工を施した際の, 予想成膜プロファイルと実際の成膜プロファイル.

## 6.9 ミラー内面のルテニウムコーティングと評価

最後に、回転楕円ミラーの内面を軟 X 線領域における高反射率材料である Ru でコーティングする実験を行った。SACLA BL1 用に製作した回転楕円ミラーを成膜サンプルとして使用し、SACLA BL1 においてコーティングしたミラーの軟 X 線 FEL 反射特性を調査した。

### 6.9.1 全面コーティング

本節の目的は、回転楕円ミラー内面の Ru コーティングによる反射特性の向上を確かめることである。軟 X 線の照明領域に成膜を施すため、シリンダーマスクを取り外した状態で成膜した。ターゲットを 24  $\mu\text{m}/\text{sec}$  のスピードでミラーの長手方向にスキャンしながら成膜し、約 100 nm の Ru 膜をミラー内面に形成した。

### 6.9.2 軟 X 線 FEL 照射時のスループット調査

表面が Ru, Ni のミラーを使用した場合の、軟 X 線 FEL に対するスループットを比較調査した。まず、回転楕円ミラーで反射しない状態の FEL 強度を計測し、その後 Ni, Ru 表面の回転楕円ミラーで反射した軟 X 線 FEL の強度を計測した。強度計測には Photo diode を使用した。図 6.20 に、計測した FEL 強度を入射 FEL 強度に対する相関グラフとしてプロットした。Ni, Ru いずれのミラー表面で反射した場合も、反射 FEL 強度は入射 FEL 強度に対して線形の応答を示していることがわかる。また、ミラーで反射しない状態で計測した結果と比較すると、Ru, Ni ミラーのスループットは、それぞれ 77%, 46% となった。ミラー表面を高反射率材料である Ru でコーティングすることで、スループットを向上させることに成功した。

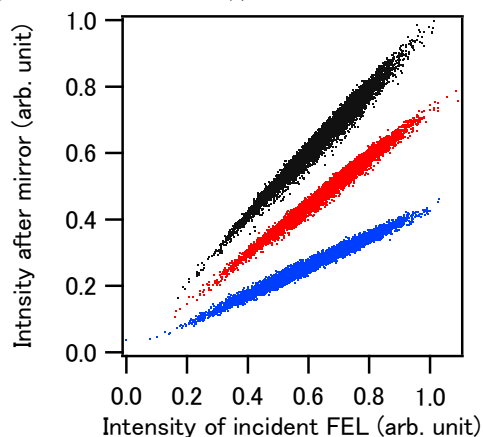


図 6.20 赤点、青点は、Ru, Ni 表面ミラーからの反射光強度、黒点はミラーで反射していない状態で計測した強度を示している。横軸は、強度モニターで計測した入射 FEL 強度を表す。

また、Ni 表面ミラーと Ru 表面ミラーからの反射像に違いが見られた。図 6.21 に、それぞれのミラーからの反射像を示す。カラーレンジを調整した 2 つの画像を比較す



ると、Ni 表面ミラーではコアの周りに明らかな光散乱が見られるのに対し、Ru 表面ミラーではほとんど見られない。本実験で得られた反射像から予想される散乱の影響はほとんど無視できるレベルであるが、今後の更なる集光サイズの微小化、あるいは短波長 FEL への回転楕円ミラーの適用を考えると、散乱の抑制は重要である。

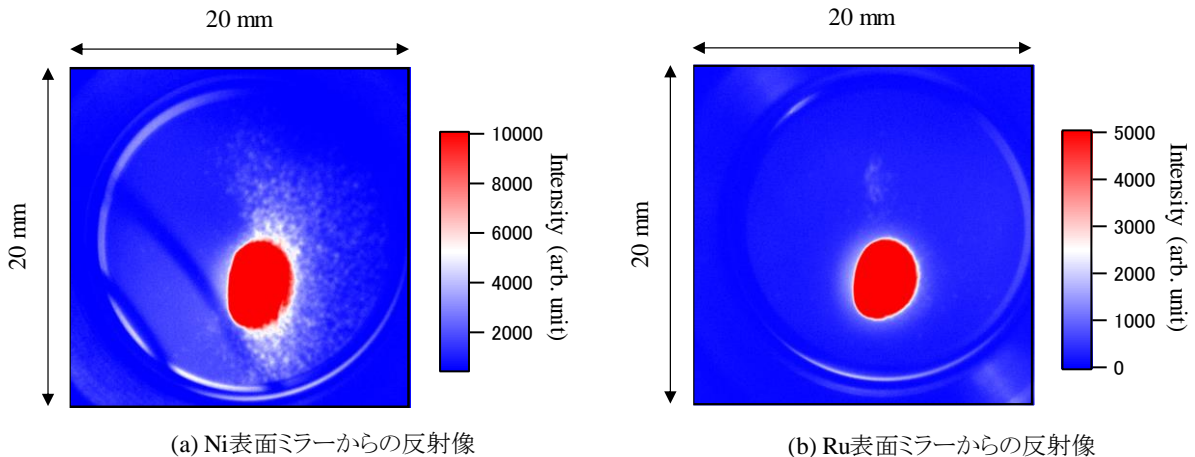


図 6.21 (a)Ni 表面ミラーおよび(b)Ru 表面ミラーからの FEL 反射像。散乱の影響が強調されるようにカラースケールを調整してある。Ni 表面の場合は、ビームコアの周りに明らかに光が散乱した様子が見て取れる。

ミラーの表面特性のうち、光散乱に寄与するのは表面粗さである。回転楕円面ミラー内面に Ru コーティングを施した表面は、コーティング前の Ni 表面に比べて表面粗さが良好であったと推測される。そこで、Ni 表面平面基板を使用して、Ru コーティングの表面粗さ改善効果を調査した。

回転楕円ミラー製作プロセスでは、転写プロセスの前にマンドレル表面に Ni を電子ビーム蒸着する。その後、厚み 1mm 程度まで Ni 層を電気析出させた後、ミラーをマンドレルから分離するため、X 線反射面は Ni 蒸着層となる。また、回転楕円ミラーは、ミラーとマンドレルを 80°C 程度の熱湯に浸し、熱膨張係数の違いを利用して分離される。すなわち、分離時に軟 X 線反射面は熱湯にさらされることになる。そこで本実験では、次の 3 種類のサンプルを準備した。

(サンプル A) シリコンウエハ上に電子ビーム蒸着で Ni をコーティングした表面。

(サンプル B-1) シリコンウエハに Ni を蒸着した後、80°C の熱湯に 10 秒浸した表面。

(サンプル B-2) サンプル B の一部分に Ru 成膜を施した表面。

なお Ni を蒸着する際、バインダーとしてアークプラズマガンにより Cr を蒸着した。Ru コーティング時、成膜領域は走査せず、同一箇所にて 20 分間成膜した。回転楕円ミラーの表面と完全に同一条件の表面ではないが、材質や製作プロセスの状況はなるべく再現した。3 サンプルの表面粗さを AFM で計測した結果を表 6.2 に示す。各サンプ

ルで複数回計測しているが、いずれも異なる位置で計測している。これらの計測結果から、サンプル A, B-1 の間には表面粗さの変化は見受けられず、サンプル B-2 の表面粗さは明らかに改善されていることがわかる。また、図 6.22 に AFM で計測した各サンプルの代表的な形状像を掲載する。これらの形状像からも、サンプル A, B-1 では同様に分布していた凹凸が、サンプル B-2 では小さくなっていることがわかる。

以上の結果から、本章で構成したイオンビームスパッタ成膜装置には、ミラー表面における AFM 領域の表面粗さを改善する効果があることが示された。これは、スパッタ面からミラー面までの距離が近く、スパッタされた粒子が高エネルギー状態のままミラー面に入射したためと考えられる。ミラー面上の凸構造部分に入射した高エネルギー粒子の一部は即座に表面に付着せず、凹部分に転がった後に付着すると予想される。結果として、表面構造の凹部分がスパッタ粒子で埋まっていくため、最終的な成膜面の表面粗さが改善されたと考えられる。

表 6.23 サンプルの AFM 計測結果

	サンプル A	サンプル B-1	サンプル B-2
表面材料	Ni (蒸着)	Ni (蒸着)	Ru (スパッタ成膜)
熱湯浸漬	なし	80°C, 10 秒	80°C, 10 秒
表面粗さ	#1 : RMS 0.71 nm #2 : RMS 0.83 nm	#1 : RMS 0.77 nm #2 : RMS 0.67 nm #3 : RMS 0.74 nm	#1 : RMS 0.45 nm #2 : RMS 0.42 nm #3 : RMS 0.38 nm #4 : RMS 0.41 nm

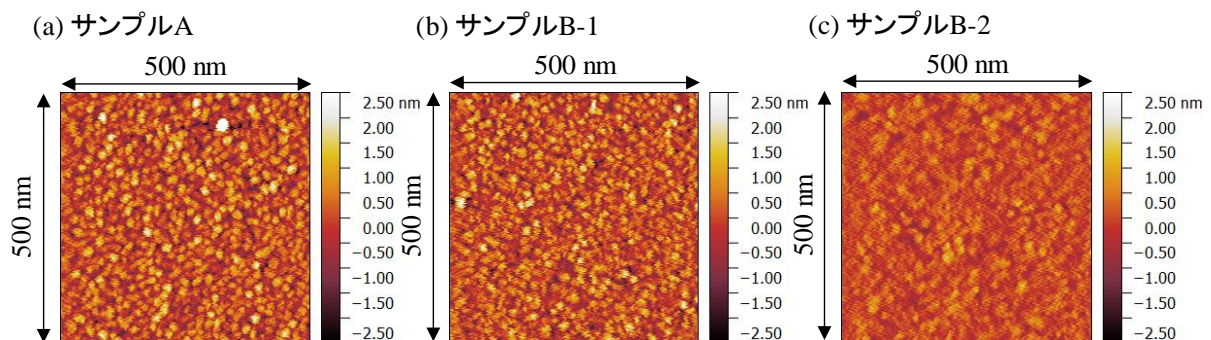


図 6.22 AFM で計測した各サンプルの形状像。サンプル A, B-1 に比べて、サンプル B-2 の形状像では明らかに表面の凹凸構造が小さくなっている様子がわかる。

### 6.9.3 軟 X 線 FEL 集光性能調査

最後に、Ru コーティングした回転楕円ミラーを用いた軟 X 線 FEL の集光特性を調査した。軟 X 線 FEL の光子エネルギーは 120 eV とした。集光システムおよび手順は第 4 章と同様である。ビームサイズは 4 象限スリットで制限しており、図 6.23 のように反射像サイズが変化する。スリット制限による入射光強度の低下は 50% 程度である。このように、入射ビームサイズを制限した状態で、集光調整および集光プロファイル計測を実施した。

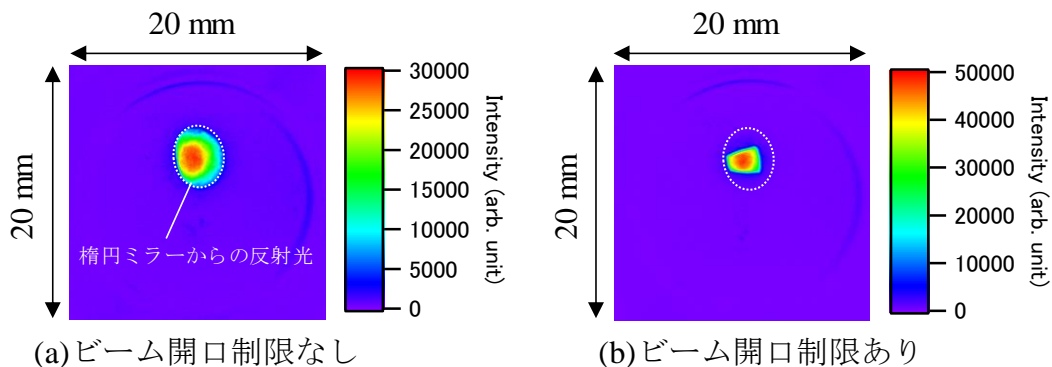


図 6.23 ビームサイズを 4 象限スリットで(a)制限していない場合と(b)制限した場合の、回転楕円ミラーからの反射像。本節ではビームの照射領域を狭めた状態で集光実験を行った。

集光プロファイル計測の結果を図 6.24 に示す。鉛直方向に 400 nm、水平方向に 450 nm の集光サイズが得られた。これらの結果から、提案手法で回転楕円ミラー内面に Ru をコーティングした場合でも、回転楕円ミラーの集光性能は劣化しないことが確認された。

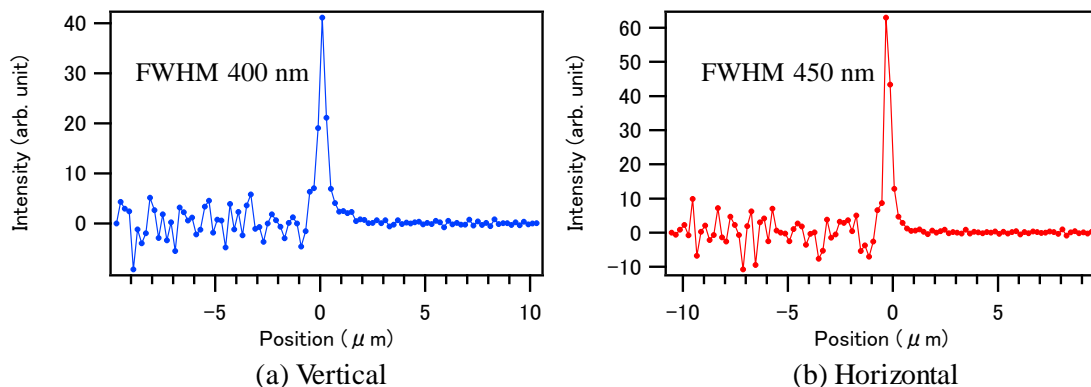


図 6.24 入射 FEL を 4 象限スリットで制限した状態で集光調整を行った後に計測した、(a) 鉛直方向、(b) 水平両方向における集光プロファイル計測結果。

前節の結果を合わせると、ミラー内面を高反射率材料である Ru でコーティングすることによって、集光性能を劣化させることなくビーム利用効率を向上させることに成功したといえる。

## 6.10 結言

本章では，回転楕円ミラーの内面を高精度化することを目的として，イオンビームスパッタ成膜法をベースとした内面成膜プロセスを開発した．実験とシミュレーションから，第2章で見出された回転楕円ミラーに求められる要求精度を，開発した装置で達成可能であることが明らかとなった．また，高反射率材料である Ru で内面をコーティングすることで，軟 X 線 FEL の反射特性が改善されることを見出した．本章の結果を次にまとめる．

- (1) イオンビームスパッタ成膜装置を構築し，表面粗さと成膜レートに関する基礎データを取得した．
- (2) ピンホールマスクを利用した高分解能差分成膜装置を開発し，平面基板上に高い空間分解能，ナノメートルレベルの精度で，複雑形状を形成可能であることを示した．
- (3) ミラー内側に配置したロッドターゲットをイオンビームでスパッタするというコンセプトにもとづく回転体ミラー内面成膜装置を開発した．
- (4) 内面成膜テストの結果，開発した装置でミラー内面を必要形状精度 PV 20 nm 以上のレベルまで高精度化可能であることを示した．
- (5) ミラー内面を高反射率材料である Ru でコーティングすることで，集光性能を劣化させることなくビーム利用効率を向上させることに成功した．

# 第7章 総括

---

7.1 総括.....	136
7.2 展望.....	137

---

## 7.1 総括

本論文は、回転楕円ミラーによる軟 X 線集光技術開発に関連して行った一連の研究をまとめたものである。各章の内容と得られた結果をまとめる。

第1章では、波長 10~30 nm の軟 X 線領域において使用されている集光素子について説明し、その中での回転楕円ミラーの位置づけを述べた。転写プロセスをベースとした高精度回転体ミラー製作プロセスについて説明し、現状の回転楕円ミラーの精度を紹介した。最後に本論文全体の構成を説明し、回転楕円ミラーによる軟 X 線集光システム開発を目的として定めた。

第2章では、波動光学シミュレータを開発し、回転楕円ミラーの形状誤差が集光性能に与える影響を調査した。ミラー形状のうち、直径方向の許容寸法誤差は 1  $\mu\text{m}$ 、楕円プロファイルからの許容編差量は PV 20 nm 程度であることを明らかにした。また、ミラーのアライメントには、全面照明条件で 0.5  $\mu\text{rad}$ 、部分照明条件で 10  $\mu\text{rad}$  レベルの角度制御が必要であることを明らかにした。解析結果と現状の回転楕円ミラーの製作精度を照らし合わせ、部分照明条件であれば回転楕円ミラーによる軟 X 線集光が実現可能であると結論づけた。

第3章では、回転楕円ミラーの集光性能評価を目的として、高次高調波発生を利用した軟 X 線レーザービームラインを構築した。フェムト秒レーザーをヘリウム媒質中に集光することで、波長 10 nm までの光を発生可能とした。ビームラインにおいて、回転楕円ミラーをベースとした軟 X 線集光システムを開発した。軟 X 線集光実験の結果、波長 10~20 nm のブロードバンド軟 X 線ビームを、反射型によるものとしては世界最小の 420  $\times$  400  $\text{nm}^2$  の領域に集光することに成功した。

第4章では、SACLA の軟 X 線自由電子レーザービームラインにおいて、回転楕円ミラーによる軟 X 線集光システムを開発した。長焦点 KB ミラーと回転楕円ミラーを組み合わせることで、コンパクトかつスループットの高い光学系を構成した。集光実験を実施し、光子エネルギー 100 eV の軟 X 線を 500  $\times$  550  $\text{nm}^2$  の領域に集光した。形成した集光ビームを利用し、Si の軟 X 線可飽和吸収を観測することに成功した。

第5章では、回転体ミラーの全面を照明しすることで、軟 X 線の波長レベル集光が可能な、極限軟 X 線集光システムを提案、設計した。準回転楕円ミラーとリング集光ミラーの2枚のミラーで構成されるコンセプトを示し、それぞれのミラーの設計手法を示した。また、SACLA の軟 X 線自由電子レーザービームラインを想定した光学設計例を示し、シミュレーションにより、集光サイズ 20 nm、集光強度密度  $10^{20}$   $\text{W}/\text{cm}^2$  を達成可能であることを示した。

第6章では、全面照明条件での必要形状精度 PV 20 nm をクリアするために、スパッタ成膜をベースとしたミラー形状の高精度化プロセスを開発した。ミラー内側に挿入したロッド状金属ターゲットをイオンビームでスパッタすることで、ミラー内面に成膜を施すことができる。成膜装置を構築し、回転体ミラー内面の形状修正実験を実施した結果、形状誤差を PV 160 nm から PV 80 nm まで低減することに成功した。

## 7.2 展望

本研究で開発した回転楕円ミラーによる軟 X 線集光技術を利用して、様々な応用研究への展開が考えられる。

第 3 章で開発した高次高調波軟 X 線レーザー集光システムは、フェムト秒オーダーの時間スケールで起こる原子、分子のダイナミクスの研究に応用できる。例えば、パルス幅 50 as 程度の高次高調波レーザーパルスを集光し、光電子分光や飛行時間型質量分析を行うことで、極限の時間分解能で経時変化を捉えることができる。一般にアト秒パルスは出力が低いのが難点であるが、回転楕円ミラーで集光しサンプル上でのピーク強度を高めることで、非線形現象等の興味深い現象を誘起することも可能になると考えられる。

一方で、短パルス化ではなく高強度化に特化した高次高調波軟 X 線レーザー光源開発も行われている。このような軟 X 線レーザーパルスを集光することで、軟 X 線自由電子レーザーに匹敵する集光ピーク強度を実現することが理論的に可能となる。これは、高次高調波のパルス幅が極端に短いからこそ実現しうるものである。ラボベースの高強度軟 X 線集光ビームの形成は非線形光学実験の実施機会を増やし、研究領域の拡大に大きく寄与することが期待される。

第 4 章で開発した軟 X 線自由電子レーザー集光システムは、波長に依らず  $10^{16} \text{W/cm}^2$  レベルのピーク強度を有する集光ビームを形成できる。多くの物質は軟 X 線領域に吸収端を有しているため、高強度軟 X 線集光ビームと吸収端における共鳴効果を利用して、高次の非線形効果の観測が期待できる。あるいは、集光システムが広い波長帯域に対応していることを利用して、高強度ビームを使った XFAS 解析なども考えられる。非線形現象が誘起される状態での吸収端近傍における吸収スペクトル構造からは、従来の XFAS 解析からは得られない情報を抽出できる可能性がある。

このように、特に X 線非線形光学への寄与が大きいと考えられる。集光ピーク強度が高ければ高いほど、高次の非線形現象が誘起されるため、研究領域の拡大につながる。高強度集光ビームの形成を突き詰めるためには、集光サイズをさらに微小化しなければならない。

軟 X 線の波長レベル集光を目的として、第 5 章でリング照明型二段集光システムを提案し、第 6 章では回転楕円ミラー内面への成膜プロセスを開発した。しかし、ミラー形状の高精度化のためには加工プロセスだけではなく計測プロセスも必要となる。光学素子の形状計測には光を用いるのが一般的であり、使用する光の波長が短いほど計測精度は高くなる。そこで、第 3 章で整備した高次高調波ビームラインで発振される短波長領域のコヒーレント光を利用した高精度形状計測法への展開が考えられる。位相回復法を駆使した集光波面の高精度計測、および形状計測が可能であり、内面成膜プロセスを組み合わせた形状修正プロセスの完成が期待できる。

第2章で明らかにした必要形状精度を満足する回転楕円ミラーが製作されると、軟X線の波長レベル集光が実現可能となる。すでに SACLA へのリング照明型二段集光システムのインストール計画が進んでいる。集光ピーク強度は  $10^{20} \text{ W/cm}^2$  に到達すると予想され、リング照明型二段集光システムを用いることで初めて到達可能な領域である。

ここで、全面照明して形成した軟X線集光ビームとサンプルの相互作用の計測を考えてみる。集光ビームはサンプルを通過後中空ビームとして発散するが、波面の揃った集光点から発する非線形現象の信号は光軸上に発生すると予想される。すなわち、入射光によるバックグラウンドの影響を受けることなく信号を計測できる可能性がある。一般に、高次の非線形現象ほどシグナル量は低下するため、この特徴は微弱信号の計測という観点から極めて重要である。 $10^{20} \text{ W/cm}^2$  を超えるピーク強度を有する集光ビームをサンプルに照射し、低ノイズなシステムで信号を検出することで、従来の集光システムでは不可能な高次の非線形現象の観測が期待できる。

その他、光学系のデザインにも応用展開の余地がある。例えば、リング照明型二段集光システムの回転体ミラーの設計において、楕円プロファイルの代わりに Wolter ミラーのプロファイルを採用することができる。Wolter ミラーは回転楕円ミラーと比較すると必要アライメント精度が緩和されるため、集光調整の難易度を低下させることができる。また、回転楕円ミラーを“集光素子”としてではなく“コリメータ”として使用することもできる。回転楕円ミラーの集光点に発光点がくるような光学配置とすることで、軟X線発光などの微弱信号を効率よくコリメートすることができる。

軟X線集光技術は多くの実験システムの根幹である。回転楕円ミラーの実利用は始まったばかりであり、今後様々な実験システムに導入しその高度化を図ることが今後の課題になると考えられる。同時に、回転楕円ミラーの高精度化や集光以外の利用用途の開拓などによる研究領域の拡大も重要である。軟X線集光に関連して行った回転楕円ミラーに関する一連の研究は、軟X線光学の発展に大きく貢献するものである。



## 参考文献

- [1] D. L. Matthews *et al.*, “Demonstration of a soft x-ray amplifier,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 54, no. 2, pp. 110–113, 1985
- [2] A. McPherson *et al.*, “Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 4, no. 4, p. 595, 1987
- [3] C. Spielmann *et al.*, “Generation of Coherent X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses,” *Science*, vol. 278, no. 5338, pp. 661–664, 1997
- [4] M. Hentschel *et al.*, “Attosecond metrology,” *Nature*, vol. 414, no. 6863, pp. 509–513, 2001
- [5] P. M. Paul *et al.*, “Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation,” *Science*, vol. 292, no. 5522, pp. 1689–1692, 2001
- [6] W. Ackermann *et al.*, “Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window,” *Nat. Photonics*, vol. 1, no. 6, pp. 336–342, 2007
- [7] P. Emma *et al.*, “First lasing and operation of an ångström-wavelength free-electron laser,” *Nat. Photonics*, vol. 4, no. 9, pp. 641–647, 2010
- [8] T. Ishikawa *et al.*, “A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångström region,” *Nat. Photonics*, vol. 6, no. 8, pp. 540–544, 2012
- [9] T. Shintake *et al.*, “A compact free-electron laser for generating coherent radiation in the extreme ultraviolet region,” pp. 555–559, 2008
- [10] H. Mimura *et al.*, “Breaking the 10 nm barrier in hard-X-ray focusing,” *Nat. Phys.*, vol. 6, no. 2, pp. 122–125, 2010
- [11] F. M. Huang and N. I. Zheludev, “Super-resolution without evanescent waves,” *Nano Lett.*, vol. 9, no. 3, pp. 1249–1254, 2009
- [12] S. Quabis, R. Dorn, M. Eberler, O. Glöckl, and G. Leuchs, “Focusing light to a tighter spot,” *Opt. Commun.*, vol. 179, no. 1, pp. 1–7, 2000
- [13] C. Jacobsen *et al.*, “Diffraction-Limited Imaging in a Scanning-Transmission X-Ray Microscope,” *Opt. Commun.*, vol. 86, no. 3–4, pp. 351–364, 1991
- [14] S. Matsuyama *et al.*, “Development of scanning x-ray fluorescence microscope with spatial resolution of 30 nm using Kirkpatrick-Baez mirror optics,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 77, no. 10, pp. 1–6, 2006
- [15] S. Matsuyama *et al.*, “Elemental mapping of frozen-hydrated cells with cryo-scanning X-ray fluorescence microscopy,” *X-Ray Spectrom.*, vol. 39, no. 4, pp. 260–266, 2010
- [16] S. Yamamoto and I. Matsuda, “Measurement of the Resonant Magneto-Optical Kerr Effect Using a Free Electron Laser,” *Appl. Sci.*, vol. 7, no. 7, p. 662, 2017
- [17] H. Bluhm *et al.*, “Soft X-ray microscopy and spectroscopy at the molecular environmental science beamline at the Advanced Light Source,” *J. Electron Spectros. Relat. Phenomena*, vol. 150, no. 2–3, pp. 86–104, 2006
- [18] T. Ohgashi *et al.*, “Construction of the Scanning Transmission X-ray Microscope Beamline at UVSOR,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 463, p. 12006, 2013
- [19] B. Nagler *et al.*, “Turning solid aluminium transparent by intense soft X-ray photoionization,” *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 9, pp. 693–696, 2009
- [20] H. Yoneda *et al.*, “Ultra-fast switching of light by absorption saturation in vacuum ultra-violet region,” *Opt. Express*, vol. 17, no. 26, pp. 23443–8, 2009
- [21] M. Abbate, F. C. Vicentin, V. Compagnon-Cailhol, M. C. Rocha, and H. Tolentino, “The soft X-ray spectroscopy beamline at the LNLS: technical description and commissioning results,” *J. Synchrotron Radiat.*, vol. 6, no. 5, pp. 964–972, 1999
- [22] P. Kirkpatrick and A. V. Baez, “Formation of Optical Images by X-Rays,” *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 38, no. 9, p. 766, 1948
- [23] H. Mimura *et al.*, “Efficient focusing of hard x rays to 25 nm by a total reflection mirror,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 90, no. 51903, pp. 1–3, 2007
- [24] H. Mimura *et al.*, “Generation of  $10^{20}$ W/cm<sup>2</sup> hard X-ray laser pulses with two-stage reflective focusing system,” pp. 1–5, 2014

- [25] H. Yumoto *et al.*, “Focusing of X-ray free-electron laser pulses with reflective optics,” *Nat. Photonics*, vol. 7, no. 1, pp. 43–47, 2012
- [26] H. Ohashi, Y. Senba, M. Nagasono, M. Yabashi, and K. Tono, “Performance of focusing mirror device in EUV beamline of SPring-8 Compact SASE Source ( SCSS ),” *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A*, vol. 649, no. 1, pp. 163–165, 2011
- [27] S. Dziarzhytski *et al.*, “Microfocusing at the PG1 beamline at FLASH,” *J. Synchrotron Rad.*, vol. 23, pp. 123–131, 2016
- [28] H. Mashiko, A. Suda, and K. Midorikawa, “Focusing multiple high-order harmonics in the extreme-ultraviolet and soft-x-ray regions by a platinum-coated ellipsoidal mirror,” *Appl. Opt.*, vol. 45, no. 3, pp. 573–577, 2006
- [29] F. Frassetto *et al.*, “High-throughput beamline for attosecond pulses based on toroidal mirrors with microfocusing capabilities,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 85, no. 103115, pp. 1–5, 2014
- [30] E. H. Anderson *et al.*, “Nanofabrication and diffractive optics for high-resolution x-ray applications,” *J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct.*, vol. 18, no. 6, p. 2970, 2000
- [31] C. Chang and A. Sakdinawat, “Ultra-high aspect ratio high-resolution nanofabrication for hard X-ray diffractive optics,” *Nat. Commun.*, vol. 5, no. 4243, pp. 1–7, Jun. 2014
- [32] M. Mayer *et al.*, “Multilayer Fresnel zone plate for soft X-ray microscopy resolves sub-39nm structures,” *Ultramicroscopy*, vol. 111, no. 12, pp. 1706–1711, 2011
- [33] W. Chao, B. D. Harteneck, J. A. Liddle, E. H. Anderson, and D. T. Attwood, “Soft X-ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm,” *Nature*, vol. 435, no. 7046, pp. 1210–1213, 2005
- [34] D. A. Shapiro *et al.*, “Chemical composition mapping with nanometre resolution by soft X-ray microscopy,” *Nat. Photonics*, vol. 8, no. 10, pp. 765–769, 2014
- [35] K. Horiba *et al.*, “Scanning photoelectron microscope for nanoscale three-dimensional spatial-resolved electron spectroscopy for chemical analysis,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 82, no. 11, 2011
- [36] S. Bajt *et al.*, “Improved reflectance and stability of Mo-Si multilayers,” *Opt. Eng.*, vol. 41, no. 8, p. 1797, 2002
- [37] A. J. Nelson, S. Toleikis, H. Chapman, S. Bajt, J. Krzywinski, and J. Chalupsky, “Soft x-ray free electron laser microfocus for exploring matter under extreme conditions,” vol. 17, no. 20, pp. 18271–18278, 2009
- [38] H. Mashiko, S. Akira, and M. Katsumi, “Focusing coherent soft-x-ray radiation to a micrometer spot size with an intensity of  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>,” vol. 29, no. 16, pp. 1927–1929, 2004
- [39] J. Voss, C. Kunz, A. Moewes, and I. Storzjohann, “Grazing incidence optics for soft x-ray microscopy,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 63, no. 1, pp. 569–573, 1992
- [40] H. Motoyama, T. Saito, and H. Mimura, “Error analysis of ellipsoidal mirrors for soft X-ray focusing by wave-optical simulation,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 53, no. 2 PART 1, 2014
- [41] H. Mimura *et al.*, “Development of ellipsoidal focusing mirror for soft X-ray and extreme ultraviolet light,” in *Proc. of SPIE*, 2015, vol. 9588
- [42] Y. Takei and H. Mimura, “System Development for Fabricating Mandrel of Soft X-ray Rotating-Body Mirror (2nd Report) -Development of Measurement Machine for Free-Form Shape Using Multiple Displacement Sensors-,” *J. Japan Soc. Precis. Eng.*, vol. 83, no. 6, pp. 585–592, 2017
- [43] T. Kume, S. Egawa, and H. Mimura, “Development of Nanometer-level Accurate Replication Process Using Electroforming -Optimization of Room Temperature Nickel Electrodeposition Conditions and Precise Figure Replication of Mandrel-,” *J. Japan Soc. Precis. Eng.*, vol. 80, no. 10, pp. 956–960, 2014
- [44] Y. Takei and H. Mimura, “Development of surface profiler for master mandrel of x-ray ellipsoidal mirror,” *Proc. SPIE*, vol. 9962, p. 99620C, 2016
- [45] K. S. Chon, Y. Namba, and K.-H. Yoon, “Precision Machining of Electroless Nickel Mandrel and Fabrication of Replicated Mirrors for a Soft X-Ray Microscope,” *JSME Int. J. Ser. C*, vol. 49, no. 1, pp. 56–62, 2006
- [46] B. D. Ramsey, “Replicated nickel optics for the hard-X-ray region,” *Focus. Telesc. Nucl. Astrophys.*, no. January, pp. 85–92, 2006
- [47] K. Nomiya, K. Honda, S. Aoki, S. Nishimatsu, and K. Suzuki, “Fabrication of an axisymmetric wolter type i mirror with a gold deposited reflecting surface,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 28, no. 11, pp. 2303–2308, 1989

- [48] M. Hoshino and S. Aoki, "Laser plasma soft x-ray microscope with wolter mirrors for observation of biological specimens in air," *Japanese J. Appl. Physics, Part 1 Regul. Pap. Short Notes Rev. Pap.*, vol. 45, no. 2 A, pp. 989–994, 2006
- [49] 武井良憲, "軟X線回転楕円ミラー用マスターマンドレルの超精密加工計測プロセスの開発," 学位論文, 東京大学, 2017
- [50] B. Max and W. Emil, *Principles of Optics 7th edition* 草川 徹(訳), 光学の原理第7版II, 東海大学出版会(2006), 7th ed.
- [51] T. B. Andersen, "Evaluating rms spot radii by ray tracing," *Appl. Opt.*, vol. 21, no. 7, pp. 1241–1248, 1982
- [52] K. Sugisaki *et al.*, "Influence of fabrication errors on wölter mirror imaging performance.," *Appl. Opt.*, vol. 37, no. 34, pp. 8057–66, 1998
- [53] K. S. Chon, Y. Namba, and K.-H. Yoon, "Figure tolerance of a Wolter type I mirror for a soft-x-ray microscope.," *Appl. Opt.*, vol. 46, no. 14, pp. 2663–2669, 2007
- [54] C. M. Kewish, L. Assoufid, A. T. Macrander, and J. Qian, "Wave-optical simulation of hard-x-ray nanofocusing by precisely figured elliptical mirrors.," *Appl. Opt.*, vol. 46, no. 11, pp. 2010–2021, 2007
- [55] M. Osterhoff, "Wave optical simulations of x-ray nano-focusing optics," *Göttingen Ser. x-ray Phys.*, vol. 9, 2012
- [56] T. Kitamura, M. Kunieda, and K. Abe, "High-speed imaging of EDM gap phenomena using transparent electrodes," *Procedia CIRP*, vol. 6, pp. 314–319, 2013
- [57] D. Stephens and V. Allan, "Light Microscopy Techniques for Live Cell Imaging," *Science*, vol. 300, no. April, pp. 82–86, 2003
- [58] K. Nakagawa *et al.*, "Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP)," *Nat. Photonics*, vol. 8, no. 9, pp. 695–700, 2014
- [59] S. Woutersen, U. Emmerichs, and H. J. Bakker, "Femtosecond Mid-IR Pump-Probe Spectroscopy of Liquid Water: Evidence for a Two-Component Structure," *Science*, vol. 278, no. 5338, pp. 658–660, 1997
- [60] M. Nisoli *et al.*, "A novel-high energy pulse compression system: generation of multigigawatt sub-5-fs pulses," *Appl. Phys. B Lasers Opt.*, vol. 65, no. 2, pp. 189–196, 1997
- [61] K. Yamane, Z. Zhang, K. Oka, R. Morita, M. Yamashita, and A. Suguro, "Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation.," *Opt. Lett.*, vol. 28, no. 22, pp. 2258–2260, 2003
- [62] B. Schenkel, J. Biegert, and U. Keller, "Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum," *Opt. Lett.*, vol. 28, no. 20, pp. 1987–1989, 2003
- [63] X. F. Li, A. Lhuillier, M. Ferray, L. A. Lompré, and G. Mainfray, "Multiple-harmonic generation in rare gases at high laser intensity," *Phys. Rev. A*, vol. 39, no. 11, pp. 5751–5761, 1989
- [64] E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Low-divergence coherent soft x-ray source at 13 nm by high-order harmonics," *Cit. Appl. Phys. Lett.*, vol. 84, no. 4, 2004
- [65] Y. Nabekawa *et al.*, "Sub-10-fs control of dissociation pathways in the hydrogen molecular ion with a few-pulse attosecond pulse train," *Nat. Commun.*, vol. 7, p. 12835, 2016
- [66] T. Okino *et al.*, "Direct Observation of Attosecond Electron Wavepacket in a Nitrogen Molecule," *Sci. Adv.*, vol. 1, no. 8, pp. 1–7, 2015
- [67] B. Manschwetus *et al.*, "Two-photon double ionization of neon using an intense attosecond pulse train," *Phys. Rev. A*, vol. 93, no. 6, pp. 1–5, 2016
- [68] K. Yamada, A. Iwasaki, T. Sato, K. Midorikawa, and K. Yamanouchi, "State-selective preparation of Ar<sup>2+</sup> and Kr<sup>2+</sup> by resonantly enhanced two-photon double ionization via intermediate Rydberg states using high-order harmonics," *Phys. Rev. A*, vol. 94, no. 5, p. 53414, 2016
- [69] M. Wieland, C. Spielmann, U. Kleineberg, T. Westerwalbesloh, U. Heinzmann, and T. Wilhein, "Toward time-resolved soft X-ray microscopy using pulsed fs-high-harmonic radiation," *Ultramicroscopy*, vol. 102, no. 2, pp. 93–100, 2005
- [70] P. B. Corkum, "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 71, no. 13, pp. 1994–1997, 1993
- [71] J. Sutherland, E. Christensen, N. Powers, S. Rhynard, J. Painter, and J. Peatross, "High harmonic generation in a semi-infinite gas cell.," *Opt. Express*, vol. 12, no. 19, pp. 4430–4436, 2004
- [72] Y. Nagata, T. Harada, M. Nakasuji, H. Kinoshita, and K. Midorikawa, "Development of highly spatial-coherent, 13.5-nm high-order harmonics for EUVL mask inspection using coherent EUV scatterometry microscope," *2012 IEEE Photonics Conf. IPC 2012*, vol. 8849, pp. 935–936, 2012

- [73] G. J. Stein *et al.*, “Water-window soft x-ray high-harmonic generation up to the nitrogen K-edge driven by a kHz, 2.1  $\mu\text{m}$  OPCPA source,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 49, no. 15, p. 155601, 2016
- [74] B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, “X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at  $E=50\text{--}30000\text{ eV}$ ,  $Z=1\text{--}92$ ,” *At. Data Nucl. Data Tables*, vol. 54, no. 2, pp. 181–342, 1993
- [75] Y. Takei and H. Mimura, “System Development for Fabricating Mandrel of Soft X-ray Rotating-Body Mirror (1st Report),” *J. Japan Soc. Precis. Eng.*, vol. 83, no. 3, pp. 245–250, 2017
- [76] Y. Xiang, J. Miao, Y. Niu, S. Gong, R. Li, and Z. Xu, “Isolated sub-100 attosecond pulse generation driven by a multi-cycle chirped laser pulse and a polarization gating,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 45, no. 11, p. 115601, 2012
- [77] T. Gaumnitz *et al.*, “Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver,” *Opt. Express*, vol. 25, no. 22, pp. 27506–27518, 2017
- [78] J. Li *et al.*, “53-attosecond X-ray pulses reach the carbon K-edge,” *Nat. Commun.*, vol. 8, no. 1, p. 186, 2017
- [79] L. Poletto, F. Frassetto, F. Calegari, A. Trabattoni, and M. Nisoli, “Micro-focusing of XUV attosecond pulses by grazing-incidence toroidal mirrors,” *2013 Conf. Lasers Electro-Optics Eur. Int. Quantum Electron. Conf. CLEO/Europe-IQEC 2013*, vol. 21, no. 11, pp. 13040–13051, 2013
- [80] E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Mücke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, “Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses,” *Nat. Commun.*, vol. 4, pp. 1–9, 2013
- [81] F. Calegari *et al.*, “The ELI-ALPS facility : the next generation of attosecond sources”
- [82] R. Bonifacio, C. Pellegrini, and L. M. Narducci, “Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser,” *Opt. Commun.*, vol. 50, no. 6, pp. 373–378, 1984
- [83] E. Allaria *et al.*, “Highly coherent and stable pulses from the FERMI seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet,” *Nat. Photonics*, vol. 6, no. 10, pp. 699–704, 2012
- [84] Z. Zhao *et al.*, “Status of the SXFEL Facility,” *Appl. Sci.*, vol. 7, 2017
- [85] C. Milne *et al.*, “SwissFEL: The Swiss X-ray Free Electron Laser,” *Appl. Sci.*, vol. 7, no. 7, p. 720, 2017
- [86] I. Ko *et al.*, “Construction and Commissioning of PAL-XFEL Facility,” *Appl. Sci.*, vol. 7, no. 6, p. 479, 2017
- [87] T. Tschentscher *et al.*, “Photon Beam Transport and Scientific Instruments at the European XFEL,” *Appl. Sci.*, vol. 7, no. 6, p. 592, 2017
- [88] K. Tamasaku *et al.*, “X-ray two-photon absorption competing against single and sequential multiphoton processes,” *Nat. Photonics*, vol. 8, no. 4, pp. 313–316, 2014
- [89] H. Yoneda *et al.*, “Atomic inner-shell laser at 1.5- $\mu\text{m}$  pumped by an X-ray free-electron laser,” pp. 1–6, 2015
- [90] B. I. Cho *et al.*, “Observation of Reverse Saturable Absorption of an X-ray Laser,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 119, no. 7, 2017
- [91] “ビームライン - 独立行政法人 理化学研究所 放射光科学総合研究センター X線自由電子レーザー施設 SACLA.” [Online]. Available: <http://xfel.riken.jp/users/bml04-1.html>
- [92] L. Raimondi *et al.*, “K-B bendable system optimization at FERMI@Elettra FEL: impact of different spatial wavelengths on the spot size,” p. 88480B, 2013
- [93] W. F. Schlotter *et al.*, “The soft x-ray instrument for materials studies at the linac coherent light source x-ray free-electron laser,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 83, no. 4, 2012
- [94] K. Togawa *et al.*, “A soft x-ray free-electron laser beamline of SACLA,” pp. 1209–1212, 2017
- [95] S. Owada *et al.*, “A soft X-ray free-electron laser beamline at SACLA: the light source, photon beamline and experimental station,” *J. Synchrotron Radiat.*, vol. 25, no. 1, pp. 1–7, 2018
- [96] K. Amemiya, E. O. Sako, J. Miyawaki, and H. Abe, “Two-step Kirkpatrick-Baez system: Compact optics for X-ray microfocusing,” *Japanese J. Appl. Physics, Part 1 Regul. Pap. Short Notes Rev. Pap.*, vol. 46, no. 6 A, pp. 3640–3643, 2007
- [97] T. Koyama *et al.*, “Damage threshold of coating materials on x-ray mirror for x-ray free electron laser,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 87, no. 51801, pp. 1–7, 2016
- [98] A. R. Khorsand, R. Sobierajski, E. Louis, S. Bruijn, and E. D. Van Hattum, “Single shot damage mechanism of Mo / Si multilayer optics under intense pulsed,” vol. 18, no. 2, pp. 700–712, 2009
- [99] T. Koyama *et al.*, “Damage study of optical substrates using 1- $\mu\text{m}$ -focusing beam of hard X-ray free-electron laser,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 463, no. 12043, p. 12043, Oct. 2013

- 
- [100] Y. P. Pershyn *et al.*, “Mechanisms of radiation damage to Sc/Si multilayer mirrors under EUV laser irradiation,” *J. Phys. D. Appl. Phys.*, vol. 42, no. 12, p. 125407, Jun. 2009
- [101] M. Müller, F. Barkusky, T. Feigl, and K. Mann, “EUV damage threshold measurements of Mo/Si multilayer mirrors,” *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.*, vol. 108, no. 2, pp. 263–267, 2012
- [102] S. Ichimaru, M. Hatayama, T. Ohchi, E. M. Gullikson, and S. Oku, “Performance of a ruthenium beam separator used to separate soft x rays from light generated by a high-order harmonic light source,” *Appl. Opt.*, vol. 55, no. 5, pp. 984–988, 2016
- [103] H. Yoneda *et al.*, “Saturable absorption of intense hard X-rays in iron,” *Nat. Commun.*, vol. 5, pp. 1–5, 2014
- [104] R. K. Lam *et al.*, “Soft X-Ray Second Harmonic Generation as an Interfacial Probe,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 120, no. 2, pp. 1–6, 2018
- [105] H. Motoyama and H. Mimura, “Two-stage reflective optical system for achromatic 10 nm x-ray focusing,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 48, no. 24, 2015
- [106] Y. Takeo, T. Saito, and H. Mimura, “Evaluation of surface figure error profile of ellipsoidal mirror for soft x-ray focusing,” *Proc. SPIE*, vol. 9588, p. 95880A, 2015
- [107] G. E. Ice, J.-S. Chung, J. Z. Tischler, A. Lunt, and L. Assoufid, “Elliptical x-ray microprobe mirrors by differential deposition,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 71, no. 7, pp. 2635–2639, 2000
- [108] S. Handa *et al.*, “Highly accurate differential deposition for X-ray reflective optics,” *Surf. Interface Anal.*, vol. 40, no. 6–7, pp. 1019–1022, 2008
- [109] H. Yumoto *et al.*, “Fabrication of elliptically figured mirror for focusing hard x rays to size less than 50 nm,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 76, no. 6, 2005
- [110] C. Liu *et al.*, “Fabrication of nested elliptical KB mirrors using profile coating for synchrotron radiation X-ray focusing,” *Appl. Surf. Sci.*, vol. 258, no. 6, pp. 2182–2186, 2012
- [111] W. Liu *et al.*, “Short focal length Kirkpatrick-Baez mirrors for a hard x-ray nanoprobe Short focal length Kirkpatrick-Baez mirrors for a hard x-ray nanoprobe,” vol. 113701, 2005
- [112] K. Kiranmayee, B. D. Ramsey, G. Mikhail V., and D. A. Grefory, “Differential deposition technique for figure corrections in grazing-incidence x-ray optics,” *Opt. Eng.*, vol. 50, no. 10, p. 106501, 2011
- [113] R. M. Tiggelaar, J. W. Berenschot, M. C. Elwenspoek, J. G. E. Gardeniers, R. Dorsman, and C. R. Kleijn, “Spreading of thin-film metal patterns deposited on nonplanar surfaces using a shadow mask micromachined in Si (110),” *J. Vac. Sci. Technol. B Microelectron. Nanom. Struct.*, vol. 25, no. 4, p. 1207, 2007
- [114] H. Motoyama, M. Nagayama, and H. Mimura, “Development of an Ion Beam Sputter Deposition System for Producing Complex-Shaped X-ray Mirrors,” *Procedia CIRP*, vol. 42, no. Isem Xviii, pp. 512–515, 2016

## 業績リスト

本研究に関して発表した業績リスト

### 学術論文

- [1] H. Motoyama, T. Saito, and H. Mimura, "Error Analysis of Ellipsoidal Mirror for Soft X-ray Focusing by Wave-Optical Simulation", Jpn. J. Appl. Phys. **53**, 22503 (2014)
- [2] H. Motoyama, and H. Mimura, "Two-stage reflective optical system for achromatic 10 nm x-ray focusing", J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **48**, 244002 (2015)
- [3] H. Motoyama, T. Sato, A. Iwasaki, S. Egawa, K. Yamanouchi, and H. Mimura, "Development of high-order harmonic focusing system based on ellipsoidal mirror", Rev. Sci. Instrum., **87**, 51803 (2016)
- [4] H. Motoyama, M. Nagayama, and H. Mimura, "Differential deposition for producing microstructure" Prec. Eng. (accepted)
- [5] S. Yokomae, H. Motoyama, and H. Mimura, "Development of figure correction system for inner surface of ellipsoidal mirrors" (submitted)

### 国際会議論文

- [1] H. Motoyama, T. Saito, and H. Mimura, "Optical design of soft x-ray focusing system with ellipsoidal mirror for laboratory-based sources", Proc. SPIE 8848, 88480E (2013)
- [2] H. Motoyama, M. Nagayama, and H. Mimura, "Development of an Ion Beam Sputter Deposition System for Producing Complex-Shaped X-ray Mirror", Precedia CIRP **42**, 512-515 (2016)
- [3] H. Motoyama, S. Owada, K. Tono, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, and H. Mimura, "Optical design of a sub-1- $\mu\text{m}$  focusing system for soft x-ray free electron lasers", Proc. SPIE 10386, 1038609 (2017)
- [4] H. Mimura, Y. Takei, T. Saito, T. Kume, H. Motoyama, S. Egawa, Y. Takeo, and T. Higashi, "Development of ellipsoidal focusing mirror for soft x-ray and extreme ultraviolet light", Proc. SPIE 9588, 95880L (2015)

### 国際会議発表

- [1] H. Motoyama, and H. Mimura, "Optical Design of Two-step Soft X-ray Focusing system with Rotationally Symmetric Mirrors", 2013 SPIE Optics + Photonics, San Diego, USA, 25-19 August (2013)
- [2] H. Motoyama, T. Sato, A. Iwasaki, S. Egawa, K. Yamanouchi, and H. Mimura, "High-order Harmonics Focusing with Ellipsoidal Mirror in Soft X-ray Region", International Workshop on X-ray Optics and Metrology (IWXM 2015), Berkeley, CA, USA, 13-16 July (2015)
- [3] H. Motoyama, M. Nagayama, and H. Mimura, "Development of an Ion Beam Sputter Deposition System for Producing Complex-Shaped X-ray Mirrors", 18th CIRP Conference on Electro Physical and Chemical Machining (ISEM XVIII), Tokyo, Japan, 19-21 April, (2016)
- [4] H. Motoyama, T. Sato, A. Iwasaki, Y. Takeo, Y. Senba, H. Ohashi, K. Yamanouchi, and H. Mimura, "Current status of the development of two-staged focusing system for soft X-ray lasers", International Conference on X-ray Optics, Detectors, Sources, and their Applications 2016 (XOPT2016), Yokohama, Japan, 18-20, May (2016)

- 
- [5] H. Motoyama, and H. Mimura, "Focusing EUV light with ellipsoidal mirror", International Conference on X-ray Optics, Detectors, Sources, and their Applications 2017 (XOPT2017), Yokohama, Japan, 19-21, April (2017)
- [6] H. Motoyama, and H. Mimura, "Development of EUV focusing system based on ellipsoidal mirror", 2017 SPIE Optics + Photonics, San Diego, USA, 6-10, August (2017)
- [7] H. Motoyama, A. Iwasaki, T. Sato, H. Mimura, and K. Yamanouchi, "Focusing EUV high-order harmonics at the diffraction limit", 14th International conference on multiphoton processes, Budapest, Hungary, 24-27 September, (2017)
- [8] H. Mimura, Y. Takei, T. Saito, T. Kume, H. Motoyama, S. Egawa, Y. Takeo, and T. Higashi, "Development of ellipsoidal focusing mirror for soft x-ray and extreme ultraviolet light", 2015 Optics + Photonics, San Diego USA, 9-13 August 2015
- [9] S. Yokomae, H. Motoyama, and H. Mimura, "Development of differential deposition method for inner surfaces of ellipsoidal x-ray mirrors", The 7th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN 2017), COEX, Seoul, Korea, 14-17 November, 2017.

#### 国内会議発表

- [1] 本山央人, 斎藤貴宏, 三村秀和: 回転楕円軟 X 線集光ミラーにおける形状誤差とアライメント誤差の集光特性への影響, 2012 年精密工学会秋季大会, 九州工業大学, 北九州市, 2012 年 9 月 13 日~9 月 17 日.
- [2] 本山央人, 斎藤貴宏, 三村秀和: 回転楕円ミラーを用いた X 線集光システムの光学設計, 第 26 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 名古屋大学, 名古屋市, 2013 年 1 月 12 日~1 月 14 日.
- [3] 本山央人, 斎藤貴宏, 三村秀和: 大開口・回転体ミラーによる軟 X 線集光システムの光学設計, 2013 年精密工学会春季大会, 東京工業大学, 2013 年 3 月 13 日~3 月 15 日.
- [4] 本山央人, 斎藤貴宏, 三村秀和: 回転体ミラーを用いた二段 X 線集光システムの集光特性, 2013 年精密工学会秋季大会, 関西大学, 2013 年 9 月 12 日~9 月 14 日.
- [5] 本山央人, 三村秀和: 回転体ミラーを用いた 2 段集光光学系による X 線ナノビーム形成法, 第 12 回 X 線結像光学シンポジウムサテライトミーティング X 線ナノ集光技術研究会「多次元イメージングへの展開」, 大阪大学中之島センター, 2013 年 11 月 17 日.(招待講演)
- [6] 本山央人, 佐藤堯洋, 岩崎純史, 江川悟, 山内薫, 三村秀和: 回転楕円ミラーによる高次高調波軟 X 線の集光特性評価, 2015 年精密工学会春季大会, 東洋大学, 2015 年 3 月 17 日~3 月 19 日.
- [7] 本山央人, 佐藤堯洋, 岩崎純史, 江川悟, 山内薫, 三村秀和: 回転楕円ミラーによる高次高調波軟 X 線集光, 第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 立命館大学, 草津市, 2015 年 1 月 10 日~1 月 12 日.
- [8] 本山央人, 長山光, 三村秀和: イオンビームスパッタ成膜法による回転楕円ミラーの内面形状修正装置の開発, 2015 年精密工学会秋季大会, 東北大学, 2015 年 9 月 4 日~9 月 6 日.
- [9] 本山央人, 長山光, 三村秀和: イオンビームスパッタ成膜法による回転楕円ミラーの内面形状修正装置の開発, 2015 年精密工学会秋季大会, 東北大学, 2015 年 9 月 4 日~9 月 6 日.

- [10] 本山央人, 佐藤堯洋, 岩崎純史, 江川悟, 山内薫, 三村秀和: 回転楕円ミラーによる軟 X 線集光システムの開発, 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2015, 筑波大学, 2015 年 10 月 28 日~10 月 30 日.
- [11] 本山央人, 佐藤堯洋, 岩崎純史, 江川悟, 山内薫, 三村秀和: 回転楕円ミラーによる高次高調波集光システムの開発と自由電子レーザーへの展開, 第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 東京大学, 柏市, 2016 年 1 月 9 日~1 月 11 日.
- [12] 本山央人, 岩崎純史, 佐藤堯洋, 武井良憲, 久米健大, 江川悟, 山内薫, 三村秀和: 回転楕円ミラーによる高次高調波集光システムの開発, 2017 年度精密工学会春季大会学術講演会, 慶應義塾大学, 2017 年 3 月 13 日~3 月 15 日.
- [13] 本山央人, 大和田成起, 久米健大, 山口豪太, 犬伏雄一, 登野健介, 小山貴久, 江川悟, 大橋治彦, 矢橋牧名, 三村秀和: 回転楕円ミラーを用いた軟 X 線自由電子レーザー集光システムの開発, 第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 筑波大学, 2018 年 1 月 8 日~10 日.
- [14] 三村秀和, 本山央人, 竹尾陽子, 武井良憲, 松澤雄介, 久米健大, 仙波泰徳, 岸本輝, 大橋治彦: 回転楕円ミラーによる軟 X 線集光, 第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 神戸芸術センター, 神戸市, 2017 年 1 月 7 日~1 月 9 日.
- [15] 長山光, 本山央人, 三村秀和: ピンホールマスクを用いた高分解能形状修正成膜手法の開発修正装置の開発, 2015 年精密工学会秋季大会, 東北大学, 2015 年 9 月 4 日~9 月 6 日.
- [16] 長山光, 本山央人, 三村秀和: 複雑な形状を有する X 線ミラー作製のための高分解能形状修正成膜法の開発, 第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 東京大学, 柏市, 2016 年 1 月 9 日~1 月 11 日.
- [17] 長山光, 本山央人, 三村秀和: ピンホールマスクを用いた高分解能形状修正成膜法の開発 第 2 報-数値制御システムによる任意形状創成-, 2016 年精密工学会春季大会, 東京理科大学, 2015 年 3 月 15 日~3 月 17 日.
- [18] 横前俊也, 本山央人, 三村秀和: イオンビームスパッタ成膜による回転体ミラーの内面形状修正, 2017 年度精密工学会秋季大会, 大阪大学豊中キャンパス, 2017 年 9 月 20~22 日
- [19] 横前俊也, 本山央人, 三村秀和, 軟 X 線集光用回転楕円ミラーの高精度化 -直接的形状修正法の開発と実証-, 第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, つくば国際会議場, つくば市, 2018 年 1 月 8 日~1 月 10 日
- [20] 横前俊也, 本山央人, 三村秀和: 回転体 X 線ミラー内面への追加成膜プロセスの開発, 第 14 回 X 線結像光学シンポジウム, 筑波大学つくばキャンパス, つくば市, 2017 年, 11 月 29 日~11 月 30 日

#### 特許

- [1] 本山央人, 三村秀和: 回転体ミラーを用いた X 線集光システムの光学設計方法及び X 線集光システム, 出願番号: 特開 2015-017957

#### 受賞・表彰等

- [1] 本山央人, 2012 年度東京大学工学部長賞
- [2] 本山央人, 2014 年度日本設計工学会設計工学賞
- [3] 本山央人, 2015 年精密工学会秋季大会学術講演会ベストプレゼンテーション賞



本研究以外に関して発表した業績リスト

#### 国際会議論文

- [1] T. Kume, Y. Takei, S. Egawa, G. Yamaguchi, H. Motoyama, and H. Mimura, “Three-dimensional shape measurement for x-ray ellipsoidal mirror” Proc. SPIE 10385, 103850O

#### 国際会議発表

- [1] S. Egawa, T. Kume, Y. Takeo, Y. Takei, H. Motoyama and H. Mimura, “Replication result of Wolter mirror for soft x-ray microscopy by electroforming”, The 8th International Symposium on Advanced Optical Manufacturing and Testing Technologies, Suzhou China, 27-29 April, 2016.
- [2] S. Egawa, T. Kume, Y. Takei, Y. Takeo, H. Motoyama and H. Mimura, “Current status of development of ultraprecise Wolter mirror for soft X-ray microscopy”, International Conference on X-ray Optics, Detectors, Sources, and their Applications 2016 (XOPT2016), Yokohama, Japan, 18-20 May, 2016
- [3] Y. Takeo, H. Motoyama, Y. Senba, H. Kisimoto, H. Ohashi and H. Mimura, “Evaluation of degree of spatial coherence at a soft X-ray beamline of SPring-8”, International Conference on X-ray Optics, Detectors, Sources, and their Applications 2016 (XOPT2016), Yokohama, Japan, 18-20 May, 2016
- [4] T. Kume, Y. Takei, T. Saito, H. Motoyama, S. Egawa, and H. Mimura, “Fabrication of Soft X-ray Ellipsoidal Focusing Mirror by Highly Accurate Electroforming Process”, ICPE2014 (The 15th International Conference on Precision Engineering), Kanazawa, Japan, 22-25 July, 2014.
- [5] T. Saito, Y. Takeo, T. Kume, H. Motoyama, and H. Mimura, “A ptychographic phase retrieval method for measuring figure error profile of soft x-ray focusing mirror”, 2014 Optics + Photonics, San Diego USA, 17-21 August, 2014
- [6] T. Kume, Y. Takei, S. Egawa, G. Yamaguchi, H. Motoyama, and H. Mimura, “Three-dimensional shape measurement for x-ray ellipsoidal mirror”, 2017 SPIE Optics + Photonics, San Diego, USA, 6-10 August, 2017.
- [7] Y. Kamata, H. Ogimoto, H. Motoyama, K. Nakagawa and H. Mimura, “Development of soft X-ray Lamellar-type grating with varied-line-spacing based on holographic exposure”, The 7th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN 2017), COEX, Seoul, Korea, 14-17 November, 2017.
- [8] T. Shimamura, H. Motoyama, H. Nishioka and H. Mimura, “Proposal for Mini-KB mirrors and Their Fabrication Processes”, The 7th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN 2017), COEX, Seoul, Korea, 14-17 November, 2017.
- [9] Y. Takeo, H. Motoyama, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi and H. Mimura, “Development of soft x-ray focusing system with ellipsoidal mirror”, International Conference on X-ray Optics, Detectors, Sources, and their Applications 2017 (XOPT2017), Yokohama, Japan, 18-21 April, 2017.
- [10] Y. Takeo, H. Motoyama, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi and H. Mimura, Wavefront measuring system using ptychography for soft X-ray focusing beam with ellipsoidal mirror, The 24th Congress of the International Commission for Optics, Tokyo, Japan, 21-25 August, 2017.

### 国内会議発表

- [1] 西岡勇人, 本山央人, 三村秀和: ピンホール成膜による高分解能形状修正成膜法の開発, 2017年度精密工学会春季大会学術講演会, 慶應義塾大学, 2017年3月13日~3月15日
- [2] 江川悟, 竹尾陽子, 本山央人, 久米健大, 武井良憲, 三村秀和: 軟 X 線結像のためのウォルターミラーの開発, 第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 東京大学, 柏市, 2016年1月9日~1月11日,
- [3] 竹尾陽子, 本山央人, 仙波泰徳, 岸本 輝, 大橋治彦, 三村秀和: フレネルミラー光学系による軟 X 線ビームの空間コヒーレンス評価, 第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 東京大学, 柏市, 2016年1月9日~1月11日
- [4] 竹尾陽子, 斎藤貴宏, 久米健大, 本山央人, 三村秀和: 位相回復法による回転楕円ミラーの形状計測における測定精度の評価, 2014年度精密工学会秋季大会, 鳥取大学, 2014年9月16日~9月18日
- [5] 竹尾陽子, 斎藤貴宏, 久米健大, 本山央人, 三村秀和: タイコグラフィー位相回復法による高精度波面計測の開発と軟 X 線集光ミラーの評価, 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2014, 筑波大学東京キャンパス文京校舎, 2014年11月5日~11月7日
- [6] 江川悟, 本山央人, 三村秀和: ウォルターミラーを用いた軟 X 線結像光学システムの理論的検証, 第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 立命館大学びわこ・くさつキャンパス, 2015年1月10日~12日
- [7] 竹尾陽子, 斎藤貴宏, 久米健大, 本山央人: 三村秀和, 軟 X 線集光ミラーの形状誤差・アライメント誤差オフライン評価法の開発, 第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 立命館大学びわこ・くさつキャンパス, 2015年1月10日~12日
- [8] 竹尾陽子, 本山央人, 仙波泰徳, 大橋治彦, 三村秀和: 回転体ミラーとリング集光ミラーを用いた 2 段集光システムの SPring-8 軟 X 線ビームライン導入に向けた光学シミュレーション, 2015年度精密工学会春季大会, 東洋大学, 2015年3月17日~3月19日
- [9] 三村秀和, 斎藤貴宏, 竹尾陽子, 久米健大, 本山央人: 回転楕円軟 X 線集光ミラーの形状アライメント誤差計測のためのタイコグラフィー波面センシング, 光計測シンポジウム, 機械振興会館, 2014年11月14日
- [10] 斎藤貴宏, 久米健大, 本山央人, 三村秀和: 位相回復による回転楕円軟 X 線ミラーの形状計測における高精度化, 第 27 回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 広島国際会議場, 広島, 2014年1月11日~1月13日
- [11] 斎藤貴宏, 本山央人, 三村秀和: 回転楕円 X 線集光ミラーのための位相回復による波面計測法の開発, 2012年精密工学会春季大会, 東京工業大学, 2013年3月13日~3月15日
- [12] 斎藤貴宏, 本山央人, 三村秀和: 回転楕円 X 線集光ミラーの形状計測法の開発, 第 26 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 名古屋大学, 名古屋市, 2013年1月12日~1月14日
- [13] 鎌田悠, 荻本浩人, 本山央人, 中川桂一, 三村秀和: 2 光束干渉露光による軟 X 線反射型回折格子の開発 - 基板エッチング方法の検討 -, 2017年精密工学会秋季大会, 大阪大学豊中キャンパス, 2017年9月20日~22日

- 
- [14] 鎌田悠, 荻本浩人, 本山央人, 中川桂一, 三村秀和: 2 光束干渉とイオンビームエッチングを用いたデューティ比の制御された回折格子の作製, 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2017, 筑波大学東京キャンパス文京校舎, 2017 年 10 月 30 日~11 月 2 日
- [15] 鎌田悠, 荻本浩人, 本山央人, 中川桂一, 三村秀和: 2 光束干渉露光による軟 X 線反射型回折格子の開発, 第十四回 X 線結像光学シンポジウム, 筑波大学大学会館 国際会議室, 2017 年 11 月 29 日~30 日
- [16] 鎌田悠, 荻本浩人, 郭建麗, 本山央人, 中川桂一, 三村秀和: 2 光束干渉露光とイオンビームエッチングによる軟 X 線反射型回折格子の作製, 第 31 回日本放射光学会年会, つくば国際会議場, 2018 年 1 月 8 日(日)~10 日(水)
- [17] 竹尾陽子, 本山央人, 久米健大, 山口豪太, 松澤雄介, 横前俊也, 仙波泰徳, 岸本輝, 大橋治彦, 三村秀和: 軟 X 線集光用高精度回転楕円ミラーの開発, 第 14 回 X 線結像光学シンポジウム, 筑波大学つくばキャンパス, つくば市, 2017 年, 11 月 29 日~11 月 30 日
- [18] 竹尾陽子, 本山央人, 岸本輝, 仙波泰徳, 大橋治彦, 三村秀和: 放射光軟 X 線による回転楕円ミラーの集光特性評価, 第 31 回日本放射光学会年会, 放射光科学シンポジウム, つくば国際会議場, つくば市, 2018 年, 1 月 8 日~1 月 10 日
- [19] 島村勇徳, 本山央人, 西岡勇人, 三村秀和: X 線集光用超小型 KB ミラーの提案と作製プロセスの開発: 2017 年精密工学会秋季大会, 大阪大学豊中キャンパス, 2017 年 9 月 20 日~22 日

## 謝辞

東京大学 大学院工学系研究科 精密工学専攻 三村秀和准教授には，研究室配属当初より多くの成長のチャンスをいただき，研究スキルだけではなく研究者としての心構えを教わりました．この先，研究者として生きていく自信を身につけることができました．深く感謝いたします．

東京大学 大学院工学系研究科 精密工学専攻 国枝正典教授には，研究に対する誠実さと正直さを教わりました．また，本研究を推進するにあたり，加工手法に関する多くのご助言をいただきました．厚くお礼申し上げます．

東京大学 大学院理学系研究科 化学専攻 山内薫教授には，高次高調波集光の研究を推進するにあたり，多大なサポートと有益なご助言をいただきました．また，本論文の執筆にあたって多くのアドバイスを賜りました．心より感謝いたします．

東京大学 先端科学技術研究センター 高橋哲教授，東京大学 物性研究所 松田巖准教授には，本論文の執筆にあたり多くの有益なご助言を頂きました．厚くお礼申し上げます．

東京大学 大学院理学系研究科 化学専攻 岩崎純史准教授，佐藤堯洋博士(現 SLAC National Accelerator Laboratory)からは，高次高調波に関するノウハウや実験スキル，理論的背景など実践的なスキルを数多く賜るとともに，研究面，私生活面ともに多くの励ましを受けました．心より感謝いたします．

高輝度光科学研究センター 大橋治彦博士，仙波泰典博士，岸本輝氏，小山貴久博士には，SACLA Beamline 1 における実験遂行に関して多くのご協力を賜りました．深く感謝いたします．

理化学研究所 SACLA ビームライン研究開発グループ 矢橋牧名博士，大和田成起博士，登野健介博士，犬伏雄一博士，井上伊知郎博士，大坂泰斗博士，久保田雄也博士，藪内俊毅博士，片山哲夫博士，富樫格博士，今亮博士には，SACLA での実験実施にあたり多くのご助言・ご協力をいただきました．厚くお礼申し上げます．

SACLA エンジニアリングチーム 金徹坤氏，山本勉氏，伊達貴博氏，岡本国弘氏をはじめとした多くの方には，SACLA での実験の遂行に関して多大なご協力をいただきました．

夏目光学株式会社 橋爪寛和氏，平栗健太郎氏，宮下洋明氏には，回転楕円マンドレルの製作に関して多大なご協力をいただきました．

真空光学株式会社 明角淳志氏には，本論文における研究を行うために必要な多くの真空関連装置を設計・製作していただきました．厚くお礼申し上げます．

本学位論文第 4 章の研究は、SACLA 大学院生研究支援プログラムの多大な支援のもと行われました。独立行政法人 日本学術振興会・東京大学光イノベーション基金・リーディング大学院 GPLLI からは、学術的・経済的支援を受けました。厚くお礼申し上げます。

技術専門職員 齋治男氏には、研究遂行に欠かせない治具の加工に関して多くのアドバイスとご協力をいただきました。趙永華 助教には、研究室生活の中で多くのご助言とご協力をいただきました。研究室卒業生の小谷野智広博士(現 金沢大学助教)、北村朋生博士(現 株式会社ニコン)からは、研究に取り組む博士課程学生としての姿勢を学びました。研究室秘書 田辺寿美子氏、金成知子氏には、事務手続きにおいて多大なサポートをいただきました。心より感謝いたします。

研究室の同輩である久米健大氏には、6 年間研究だけでなく精神的な面でも支えられました。川中琢磨氏には、その前向きな性格に何度も励まされました。厚くお礼申し上げます。

武井良憲博士には、第 3 章で使用した回転楕円ミラーのマンドレルを高精度に加工していただきました。斎藤貴宏氏には、第 2 章の理論解析において、計算手法をご教示いただきました。江川悟氏には、第 3 章、第 4 章で行った実験に関して、多くのサポートをしていただきました。山口豪太氏には、第 4 章で使用した回転楕円ミラーを製作していただきました。長山光氏、横前俊也氏には、第 6 章における実験の遂行に関して、多くのご協力をいただきました。松澤雄介氏、平田貴大氏、竹尾陽子氏、東隆裕氏、荻本浩人氏、鎌田悠氏、郭建麗氏、西岡勇人氏、大川慎治氏、島村勇徳氏には、研究の推進に関して多くのご協力いただきました。厚くお礼申し上げます。

私がここまで歩んでこれたのは、私の選んだ道に反対せず、いつも応援してくれた両親の支えがあったからです。心より感謝いたします。

本研究を途中でくじけることなく最後までやり通せたのは、妻 知の温かい励ましのおかげです。心より感謝します。

平成 30 年 2 月 14 日 本山央人