



Title	精密X線波面制御に基づくX線自由電子レーザー集光光学系の開発
Author(s)	井上, 陽登
Citation	大阪大学, 2022, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/88081
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

博士学位論文

精密 X 線波面制御に基づく
X 線自由電子レーザー集光光学系の開発

井上 陽登

2022 年 1 月

大阪大学 大学院工学研究科
精密科学・応用物理学専攻

謝辞

本研究を遂行するにあたり、ご指導ならびにご鞭撻を賜りました、大阪大学大学院工学研究科 山内和人教授、名古屋大学大学院工学研究科 松山智至准教授に深甚の謝意を表します。本研究に関して日頃から数々のご指導を賜り、本論文をご精読頂き有益なご助言を賜りました大阪大学大学院工学研究科 桑原裕司教授、佐野泰久准教授に心より謝意を申し上げます。また、日頃のご指導ならびに有益なご助言を賜りました、大阪大学大学院工学研究科 藤大雪助教、東北大学多元物質科学研究所 高橋幸生教授、理化学研究所放射線科学研究センター 矢橋牧名グループディレクター、井上伊知郎博士、大坂泰斗博士、山田純平博士に深く感謝申し上げます。また、ご指導ならびにご鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科 安武潔教授、山村和也教授、荻博次教授、森川良忠教授、渡部平司教授、遠藤勝義教授をはじめとする大阪大学大学院工学研究科精密科学教室の諸先生方に深く感謝いたします。

本研究の遂行にあたり、SPring-8、及び SACLA を利用した全ての研究及び実験において適切なご指導とご助力を賜りました理化学研究所放射光科学研究センター 石川哲也センター長、放射光イメージング利用システム開発ユニット 香村芳樹ユニットリーダーに厚く御礼申し上げます。また、X 線ミラー集光光学系を構築するにあたり、数々のご助言とご助力を頂きました、東京大学大学院工学研究科 三村秀和准教授、東京大学物性研究所 木村隆志准教授、竹尾陽子助教、理化学研究所放射線科学研究センター 初井宇記チームリーダー、玉作賢治チームリーダー、高輝度光科学研究センター 大橋治彦博士、湯本博勝博士、小山貴久博士、亀島敬博士、登野健介博士、犬伏雄一博士、Pohang Accelerator Laboratory 金章雨博士、Argonne National Laboratory Dr. Lahsen Assoufid, Dr. Xianbo Shi に深く御礼申し上げます。また、試料作製にあたり、適切なご指導とご助力を賜りました大阪大学大学院工学研究科 竹内昭博氏、機械工学専攻 高谷裕浩教授、上野原努助教に心より感謝いたします。

X 線ミラーの作製において数々のご協力を頂きました株式会社ジェイテックコーポレーション 津村尚史氏、岡田浩巳氏、一井愛雄氏、中森紘基氏、Bui Van Pho 氏に深く感謝いたします。ミラーベンダーの設計・開発にあたりまして多大なご協力を頂きました株式会社トヤマ 遠藤克己氏、竹中久貴氏、園山純生氏、秋山和輝氏に厚く御礼申し上げます。また、集光光学系のマニピュレータ、及び多層膜成膜装置の開発に多くのご協力を賜りました株式会社明昌機工 足立真士氏、小野弘司氏に心より感謝申し上げます。各種システム開発・改良の際に多大なるご尽力を頂いた株式会社田中製作所 田中真史氏に深く感謝いたします。

また、日頃のご指導、ご助言を頂きました大阪大学産業科学研究所 大坂藍特任助教 大阪

大学大学院工学研究科物理学系専攻精密工学コース山内研究室 卒業生 武居弘泰博士，後藤拓実博士，下村啓博士，平野嵩博士，広瀬真博士をはじめとする諸兄の皆様方に心より感謝いたします。また，日ごろの事務的なご支援を頂きました，山内研究室秘書 久保英里子氏，寺井嘉奈子氏に心からの御礼申し上げます。また，日頃の実験及び放射光実験において昼夜を問わず共に研究に取り組んだ，川合蕉吾氏，林宏樹氏，波多健太郎氏，松本昂輝氏，山口浩之氏，中村南美氏，萩原拓氏，西岡柚香氏，田中優人氏，二村浩平氏，伊藤篤輝氏に心から感謝の意を表します。そして共に研究室生活を過ごした，岡山晨哉氏，木田英香氏，久保莉紗氏，森岡祐貴氏，山田郁美氏をはじめ，松村正太郎氏ら山内研究室の諸氏に深く感謝申し上げます。

最後に，本研究の遂行にあたって常日頃より温かく励ましてくれた友人と家族，特に約 20 年間 1 人で私を育ててくれた母に感謝の意を表します。

2022 年 1 月

井上陽登

博士論文目次

謝辞	...III
第1章 序論	...1
1.1 研究の背景と目的	...1
1.2 本論文の構成	...3
第2章 X線ミラーを用いたX線自由電子レーザーsub-10 nm 集光光学系	...7
2.1 緒言	...7
2.2 X線ミラー	...7
2.2.1 Kirkpatrick-Baez ミラー	...7
2.2.2 X線の反射原理	...11
2.2.2.1 全反射ミラー	...11
2.2.2.2 多層膜ミラー	...14
2.3 sub-10 nm 集光光学系の概要	...18
2.4 sub-10 nm 集光光学系の形状精度及びアライメント精度	...20
2.4.1 形状精度に関する問題点	...20
2.4.2 許容アライメント精度の考察	...25
2.5 sub-10 nm 集光達成のための戦略	...27
2.5.1 精密なX線波面計測手法を導入した補償光学システムの構築	...27
2.5.2 シングルショットビーム診断法の開発	...29
2.6 結言	...31
第3章 グレーチング干渉計に基づく精密波面計測手法の開発	...33
3.1 緒言	...33
3.2 Talbot 効果を利用したグレーチング干渉計	...33
3.2.1 Talbot 効果	...34
3.2.2 縞解析法	...39
3.2.2.1 縞走査法	...39
3.2.2.2 フーリエ変換法	...40
3.2.3 2次元積分法	...42

3.2.3.1	Traditional Finite-difference-based Least-Squares Integration (TFLI)	...42
3.2.3.2	Cosine Transform Integration (CTI)	...44
3.3	実験セットアップ	...45
3.4	波面計測法の正当性の確認	...50
3.4.1	波面計測の再現性	...50
3.4.2	入射角誤差を利用した波面計測の正当性の検証	...50
3.5	干渉計の絶対計測精度の評価	...52
3.5.1	システムエラーの抽出	...52
3.5.1.1	構成要素のミスアライメント	...52
3.5.1.1.1	幾何学的考察	...52
3.5.1.1.2	波動光学計算に基づく考察	...55
3.5.1.1.3	実験値との比較	...55
3.5.1.2	回折格子の作製精度	...55
3.5.1.3	X線カメラの作製精度	...58
3.5.2	精密波面計測手法の開発	...58
3.5.2.1	概念と計算機シミュレーションによる評価	...58
3.5.2.2	SPring-8, および SACLA における実証実験	...62
3.6	結言	...64
第4章	差分成膜法による多層膜ミラーの形状修正	...65
4.1	緒言	...65
4.2	成膜装置	...65
4.3	差分成膜法	...67
4.3.1	成膜準備	...67
4.3.1.1	幾何光学に基づいた目標成膜形状の決定方法	...67
4.3.1.2	単位成膜痕の評価	...69
4.3.2	差分成膜の精度検討	...71
4.4	多層膜作製手順	...74
4.4.1	単位成膜痕の評価	...76
4.4.2	XRD を用いた多層膜周期長の精密調整	...76
4.5	SACLA における形状修正された多層膜ミラーの性能評価	...80
4.6	結言	...88
第5章	スペックルを利用したビーム診断法の提案と実証	...89
5.1	緒言	...89

5.2	スペckルと入射光の関係	...89
5.3	波動光学に基づく計算機シミュレーション	...92
5.3.1	ビームサイズとスペckルサイズ	...94
5.3.2	KB ミラーのミスアライメントの抽出	...94
5.3.2.1	ミスアライメントとビームプロファイルの関係	...94
5.3.2.2	ミスアライメントとスペckルプロファイルの関係	...99
5.4	SACLA sub-10 nm 集光光学系における実証実験	...103
5.4.1	実験セットアップとスペckルデータの取得	...103
5.4.2	実験データの補正	...105
5.4.2.1	寄生散乱の除去	...105
5.4.2.2	散乱体の構造に起因した散乱強度分布の規格化	...105
5.4.3	試料準備	...108
5.4.3.1	試料の厚みの検討	...108
5.4.3.1.1	投影近似の破綻	...108
5.4.3.1.2	マルチスライス法の導入による投影近似破綻時の 散乱強度分布の再現	...110
5.4.3.2	試料保持基板の検討	...112
5.4.4	実験結果	...114
5.4.4.1	スペckル干渉計によるミスアライメントの実測	...114
5.4.4.2	アライメントの最適化と集光状態の評価	...117
5.5	結言	...120
第6章	Wolter III 型配置に基づく新型 sub-10 nm 集光光学系	...121
6.1	緒言	...121
6.2	X 線ミラー結像光学素子	...121
6.2.1	Wolter ミラー	...121
6.2.2	Advanced KB ミラー	...123
6.3	新型 sub-10 nm 集光光学系の概要	...125
6.3.1	光学系の設計	...125
6.3.2	ミラーのアライメント精度	...131
6.4	高反射率多層膜の設計	...134
6.4.1	計算機シミュレーションによる高反射率化の検討	...134
6.4.2	実証実験に基づく重元素膜の薄化閾値の探索	...134
6.5	新型 sub-10 nm 集光光学系の実証実験	...136
6.5.1	実験セットアップ	...136
6.5.2	波面計測に基づくミラーの性能評価	...139

6.5.2.1	カメラ由来のシステムエラーの再検討	...139
6.5.2.2	波面計測に基づくミラーアライメント	...142
6.5.2.3	波面収差を元にした差分成膜による形状修正	...145
6.5.3	AKB ミラー光学系の性能評価	...145
6.6	結言	...151
第7章	形状可変多層膜ミラーを用いた sub-5 nm 集光光学系の開発	...153
7.1	緒言	...153
7.2	圧電素子駆動型形状可変ミラー	...154
7.2.1	逆圧電効果により発生する応力の算出	...154
7.2.2	圧電素子によるミラー基板の変形	...157
7.3	sub-5 nm 集光光学系の設計	...160
7.4	水平集光ミラーペアの基礎検討	...164
7.4.1	波動光学計算に基づくミラーアライメント精度の検討	...164
7.4.2	有限要素法に基づく形状修正精度の評価	...164
7.4.3	W/C 多層膜ミラーの検討	...167
7.5	SPring-8 における水平方向の 1 次元集光実験	...171
7.5.1	実験セットアップ	...171
7.5.2	形状可変ミラーとグレーチング干渉計に基づく リアルタイム補償光学	...171
7.5.3	光学系の性能評価	...175
7.5.3.1	入射角特性	...175
7.5.3.2	安定性の評価	...178
7.5.3.3	2 次元の波面収差	...178
7.6	高次光反射多層膜集光ミラーの開発	...180
7.6.1	反射次数の選定	...180
7.6.2	3 次光反射多層膜ミラーの作製	...180
7.6.3	3 次光反射多層膜ミラーを用いた実証実験	...181
7.6.3.1	実験セットアップ	...181
7.6.3.2	1 次光反射の波面計測によるミラーアライメント	...184
7.6.3.3	放射光を利用した 3 次光反射多層膜ミラーの反射率計測	...184
7.7	結言	...188
第8章	機械曲げ機構と圧電素子駆動を組み合わせたハイブリッド型形状可変ミラー の開発	...191
8.1	緒言	...191

8.2	ハイブリット型形状可変ミラー	...192
8.2.1	機械曲げ機構	...192
8.2.2	ハイブリット型形状可変ミラーの構造	...192
8.3	FEM シミュレーションに基づく変形手順の考察	...194
8.3.1	応答関数	...194
8.3.2	最適な形状変形手順の考案	...198
8.4	SPring-8 における実証実験	...198
8.4.1	実験セットアップ	...198
8.4.2	ペンシルビームスキャン法	...202
8.4.3	提案手法に基づいた形状修正の実証	...204
8.5	結言	...208
第9章 総括		...209
参考文献		...219
研究業績		...229

第 1 章

序論

1.1 研究の背景と目的

1895 年に Röntgen が発見した X 線[1] (1901 年 (第 1 回) ノーベル物理学賞) は, ナノメートルオーダー($10 \sim 0.03 \text{ nm}$)の短い波長を有する電磁波である. 高い透過性を示すことから, 様々な対象物の非破壊内部構造観察のためのプローブ光として用いられており, 医学や半導体産業をはじめとした様々な分野における検査技術の基盤を担っている. また, 原子配列由来の回折パターンを実測できるため, 電子顕微鏡では困難な厚みのある材料の結晶構造解析が行える[2, 3] (1914 年, 1915 年ノーベル物理学賞). さらに, 光子エネルギーの高さを利用して, 原子の内殻電子を励起し (光電効果[4], 1921 年ノーベル物理学賞), 元素固有の光 (特性 X 線[5, 6], 1917 年ノーベル物理学賞) を放射させることで, 化学物質等の構成元素分析が可能となる. このように X 線が発見されて以降, 理論・実験技術に関する知見は着々と発展したが, X 線源の進展は 50 年近くほとんどなく, 実証可能な実験が制限されていた.

転機は, 荷電粒子からのシンクロトロン放射光に着目した 1960 年代に訪れた. 本光源の利用により X 線強度は数桁向上し, 多くの用途に X 線が使用可能であることが認識された. 放射光施設のニーズは高まり, 新たに磁石が周期的に配列した挿入光源 (アンジュレータ) を搭載した第三世代放射光施設が建築された. 初期の封入 X 線管と比較して約 10^{12} 倍明るい (高輝度) 光源であり, 様々な X 線分析技術を発展させたことは言うまでもない. 中でも, 最も大きなメリットは強度の高いコヒーレント X 線を利用できる点にあるだろう. これにより, コヒーレント X 線回折イメージングが実証され[7], X 線イメージング法の空間分解能は飛躍的に向上した. 従来卓抜した顕微技術が開発されてきた可視光線や電子線に対して不透過なバルク材料の内部構造を, 高空間分解能かつ非破壊で観察できる唯一無二の手法となり, 今日も精力的な開発が続いている. しかしながら, 第三世代放射光施設であっても, 真に X 線の短波長性を活かした応用実験は実現できずにいる. 例えば, 単一分子の構造を解像できるほど高強度な X 線を供給することはできない. また, 光のパルス幅がピコ(10^{-12})秒オーダーであるため, 非破壊を謳いつつも吸収の過程で試料をわずかながらに損傷させることや, 照射中に原子や分子が高速で動くことから, 真の構造, 及びダイナミク

スを観察することが不可能である。

これらの難題を解決するために、近年 X 線自由電子レーザー (X-ray free-electron laser : XFEL) 施設が建築された[8-11]。直線型の加速器と長距離のアンジュレータを組み合わせることで、第三世代放射光施設の 10^9 倍のピーク輝度と、フェムト(10^{-15})秒のパルス幅を有する、ほとんど空間的にフルコヒーレントな X 線光源が登場した。フェムト秒という極短時間領域において、物質中の原子がほとんど動かないことが分子動力学計算により予測されており[12]、放射線損傷による空間分解能の制限を打破したタンパク質結晶の構造決定が達成された[13, 14]。さらに X 線強度を高めることで、究極的にはタンパク質一分子の構造解析が目されている。また極短パルス性は、計算機上で予想のみされてきた超高速の物理・化学現象のストロボ撮影にも貢献しており[15, 16]、真のダイナミクスの解明が劇的に進んでいる。そして、XFEL が拓くもう一つの重要な分野は、X 線非線形光学である。先んじて高強度レーザー光源が開発された可視光線領域において[17]、顕微鏡や光学デバイスなどアプリケーションの開発まで着手されてきた分野だが、X 線領域においては光源強度の問題でほとんど手つかずであった[18]。そのため、新たな高ピーク輝度光源の登場による開拓への期待は膨らむばかりである。X 線非線形光学は、イメージング技術や分光器、光学素子など産業応用への期待もさることながら、XFEL を照射された原子内の電子構造や分子・結晶構造の崩壊過程の理解など、基礎物理における予想外の発見にもつながる遍在的な分野である。中でも、真空の非線形光学は興味深いテーマの一つである。ヒッグス粒子発見の最も重要な意義は、真空は空っぽではなく不思議なものに満たされていることを示したことにある (2013 年ノーベル物理学賞)。真空に潜む場を知ることは、宇宙の創生と発展を理解するために極めて重要であり、近代物理の目標の一つとされている。その探索手段の一つとして、非線形光学現象である光子—光子散乱がある。古典電磁気学では光子同士の衝突による相互作用はないと考えられてきたが、量子電磁力学(Quantum-electro-dynamical: QED)予測では、光子によって真空が励起され、生じた電子・陽電子対を介して光子同士が弾性散乱するとされている[19]。本現象は可視光線でも実現しうるが、散乱断面積が光子エネルギーの 6 乗に比例するため[20]、X 線の利用により 24 桁もの利得がある。しかしながら、XFEL であってもこれらを実測できる強度には至っていない[21]。

つまり、いずれの分野においても、X 線照射領域のパワー密度を更に引き上げることは必要不可欠であり、X 線集光光学素子が担う役割は非常に大きい。中でも X 線ミラーは、スループットが高く、色収差が小さく、そして全ビームを受け止められるほど十分大きなアクセプタンスを持つため、高強度 X 線を創生することに最も適している。また、斜入射光学系であることからフットプリントが他の素子より数百～千倍程度大きいため、放射線耐性が非常に優れている。これは XFEL 用集光素子を開発する上で重要な要素である。しかしながら、X 線の短波長性は素子に求められる形状精度を厳しくするため、X 線強度を高めるに際して大きな障壁となっている。特に X 線ミラーにおいて、反射表面の形状だけでなく、粗さも集光強度の悪化につながってしまう。これらの問題に対して、積極的な平滑化作用を

有する決定論的形狀創成法[22]と、多様な空間周波数を計測できるスティッチング干渉計を開発[23,24]することで、高い効率の下 XFEL をサイズ $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下に集光するミラーの作製に成功した[25]. これにより焦点におけるパワー密度は 4×10^4 倍向上され、生きた細胞の観察に成功するなど試料観察の幅が広がったことはもちろん[26], K 殻に電子が無い中空原子の生成といった X 線非線形光学現象が発現した[27]. さらに翌年には二段集光配置に基づく光学系の構築により、大きな縮小倍率を獲得することで、サイズ 50 nm 以下の集光が達成された[28]. 形成されたパワー密度は 10^{20} W/cm^2 に上り、直接 2 光子吸収（中空原子を逐次的な 2 光子吸収と言うならば）[29]や可飽和吸収[30], 内殻準位レーザー[31]など、X 線領域における高次の非線形光学過程が次々と起こり、本格的な開拓が始まった. 特に日本の XFEL である SPring-8 Angstrom free-electron LAser (SACLA)は、比較的施設全長が短いため光源が安定しており、また、先駆けて高精度な X 線ミラー集光光学系を取り入れたことから、本分野において世界をリードしている.

本研究は、XFEL を極限的なサイズ 10 nm 以下に集光する X 線ミラー光学系の開発を目的としている. 予想されるパワー密度は 10^{22} W/cm^2 であり、様々な分野の発展は想像に容易いが、再びミラー作製に関する障壁が立ちふさがる. まず、回折限界条件を満たすために必要な形状精度が 1 nm PV 程度と計算されることから、僅かな形状誤差が集光効率を大きく悪化させることは明らかである. それに加えて、ミラー形状自体が非常に急峻となる. 曲率半径は 10 m を下回り、これまでに利用してきた可視光干渉計では対応できないことから、実験室ベースで事前にミラー性能を予測して作製することは不可能である. もう一つの障壁はミラーのアライメントにある. 軸によって、 mrad オーダーの僅かなミスアライメントが集光状態を致命的に悪化させてしまい、これは準備段階で達成できる精度ではない. そこで本論文では、これら X 線ミラー由来の誤差が X 線集光波面に収差を与えることに着目し、精密波面計測手法の開発に取り組む. 構築された光学系における各種の必要精度を計算により見積もり、開発する手法がその精度を満たすことを計算機シミュレーション、及び実証実験により確認し、形状・アライメントの修正を試みる. また、今後の応用実験に向けて光学系の安定性の向上を目指し、Wolter ミラーに基づく新規光学系の検討と実証を行う. さらに、形状可変ミラーを導入することで、形状計測、修正共に X 線実験中に完了できる、新規リアルタイム波面制御システムに関しても検討、及び実証をする. そして、更なる極限集光を目指し、多層膜の高次光反射を利用した光学系の基礎検討を行う. 最後に、形状可変ミラーに基づくビーム径可変型アダプティブ集光光学系の開発へと展開する.

1.2 本論文の構成

本論文では高密度 X 線場を形成することを目的として、XFEL をスポットサイズ 10 nm 以下に集光する X 線ミラー光学系を開発するにあたり、遂行した一連の研究成果についてまとめたものである. 以下に本論文の構成をまとめる.

第2章では、X線ミラーを用いたXFEL用 sub-10 nm 集光光学系を紹介している。まずX線ミラーの基礎概念について述べている。次に、開発を進める sub-10 nm 集光光学系の構成と各種パラメータを述べ、理想的な集光に必要な形状、アライメント精度について検討している。そして、sub-10 nm 集光を実現するための戦略について解説している。

第3章では、ミラー形状評価手法として導入した、グレーチング干渉計に基づく波面計測法について述べている。Talbot 効果に基づき、グレーチング干渉計の原理、画像解析手順、及び実験セットアップを述べている。次に、SACLA にて実証実験を行い、本手法の測定精度、及びシステムエラーを検証している。そして、システムエラー除去手順を提案し、計算機シミュレーション、及び実証実験を元に有用性を検討している。

第4章では、ミラーの形状修正手法として導入する差分成膜法と、多層膜作製について述べている。まず、これらの成膜過程で用いる装置を紹介した後に、波面計測結果を元に差分成膜法で形状修正を行う手順を述べ、その精度を検証している。次に、多層膜作製手順と成膜精度についてまとめている。そして、形状修正したミラーを用いて再び SACLA にて波面計測を行った結果を述べている。

第5章では、XFEL のシングルショットでナノビームの診断を完了するスペックル干渉計を開発している。まず、光のコヒーレント散乱により生じるスペックルを用いた本手法の原理を説明している。次に、ビーム形状とスペックル形状の関係を、計算機シミュレーション結果を元に検討している。また、実験を行うにあたり重要である、装置構成、データ補正方法、及び試料準備について検討している。そして、計算機シミュレーション結果を元に、SACLA にてミラーアライメントの実証実験を行い、ベストアライメント時のスペックルにおいて達成されたビームサイズを評価している。

第6章では、Wolter ミラーに基づく新規 sub-10 nm 集光光学系を開発している。まず、X線ミラー光学系において広い視野を実現した、Wolter ミラー、及び Advanced Kirkpatrick-Baez ミラーについて紹介する。次に新たに設計された新規 sub-10 nm 集光光学系の各種パラメータを述べ、計算機シミュレーションに基づき光学系の特性を評価している。そして、SPRING-8 での実証実験において、計測された波面収差を2次元多項式フィットすることで、各軸アライメント調整を試みた結果について述べている。最後に従来と同様に形状修正を行い、再び SPRING-8、及び SACLA にて計測された波面収差、及び光学系の特性評価結果についてまとめている。

第7章では、形状可変ミラーを用いた sub-5 nm 集光光学系について述べている。まず、新しくミラー形状修正機構として導入する、圧電素子駆動型形状可変ミラーについて紹介している。次に、新たに設計した sub-5 nm 集光光学系の各種パラメータを述べ、光学特性や形状修正性能を、計算機シミュレーション、及び SPRING-8 における実証実験に基づき検証している。そして、更なる集光サイズの微小化に向けて、多層膜における作製可能周期長の限界を回避するために、高次光反射の利用について、実験室及び SPRING-8 にて初期検討した結果についてまとめている。

第 8 章では、ハイブリッド型形状可変ミラーを用いたアダプティブ集光光学系について述べている。まず、形状可変ミラーの長尺化のメリット・デメリットを紹介し、機械曲げ機構の必要性を述べている。次に、計算機シミュレーションに基づき、目標変形形状に対して各曲げ機構が担うべき最適な変形量を考察している。そして SPring-8 における実証実験結果をまとめている。

第 9 章では本論文を総括し、将来展望について述べている。

第 2 章

XFEL における sub-10 nm 集光光学系の開発

2.1 緒言

XFEL は、第三世代大型放射光施設より 10 億倍高いピーク輝度と、フェムト秒 (10^{-15} s) オーダーの短いパルス幅を有する、ほとんど空間的にフルコヒーレントな X 線レーザーである。XFEL を集光し光子密度を増大させることで、生きた細胞の観察や、高次の X 線非線形光学現象の発現に世界に先駆けて成功しており、更に小さく集光する X 線ミラー光学系を開発することで、これらの分野がより発展すると期待される。

本章では、まず我々が用いる集光光学素子である X 線ミラーについて述べた後に、新たに開発する XFEL 用 sub-10 nm 集光光学系の概要を詳述する。そして、回折限界条件を満足しつつ集光サイズ 10 nm の達成を目指すにあたり、光学素子に求められる形状精度、及びアライメント精度について検討し、それらの対応策を記述する。

2.2 X 線ミラー

X 線ミラーは反射を利用した斜入射光学系であることから、他の光学素子と比較して、フットプリント (照射面積)、スループット、アクセプタンス (開口サイズ)、及び色収差の観点で優れていることから、高ピーク輝度な XFEL を高効率で極小サイズに集光することに適している。本項では、主に集光で用いられている Kirkpatrick-Baez ミラーについて述べる中で、集光サイズを決めるいくつかのパラメータについて言及する。そして、その 1 つである斜入射角を制限する X 線反射の原理について述べ、多層膜ミラーの導入へと展開する。

2.2.1 Kirkpatrick-Baez ミラー

X 線ミラーを用いて 2 次元集光を行うために一般的に用いられるのが Kirkpatrick-Baez (KB)ミラーである[32]。図 2.2.1.1 のように、1 次元に楕円 (放物) 形状の反射面を有するミラーを、直交直列に 2 枚配置した集光光学系である。楕円形状は一方の焦点から出た光線が楕円に反射すると、もう一方の焦点に集まるという性質を持つ (図 2.2.1.2) ため、KB 配置は 2 次元集光を可能にする。KB ミラーでは入射 X 線から見た開口の形は矩形となる。矩形

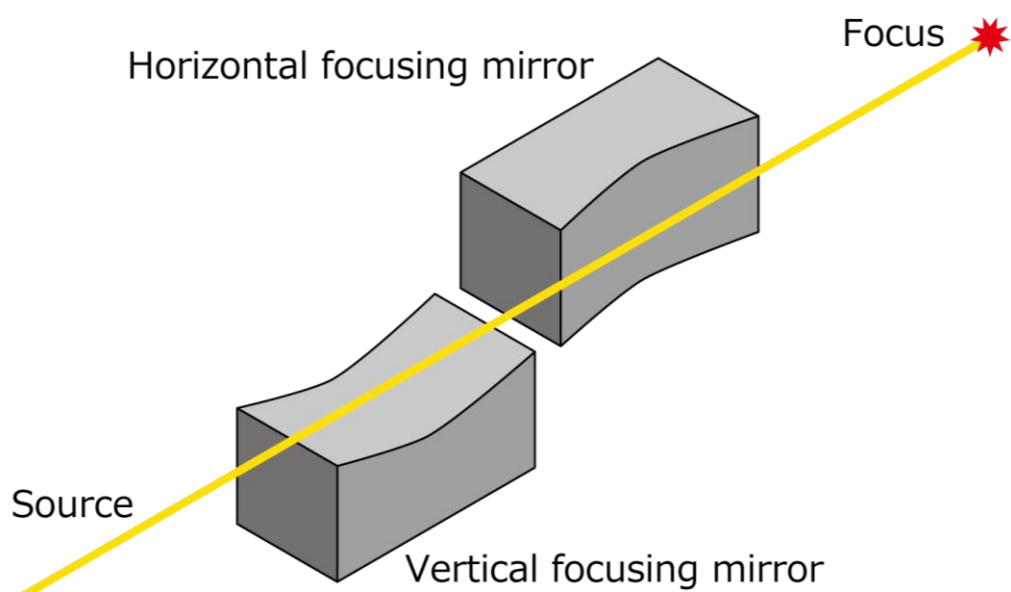


図 2.2.1.1 Kirkpatrick-Baez ミラー光学系.

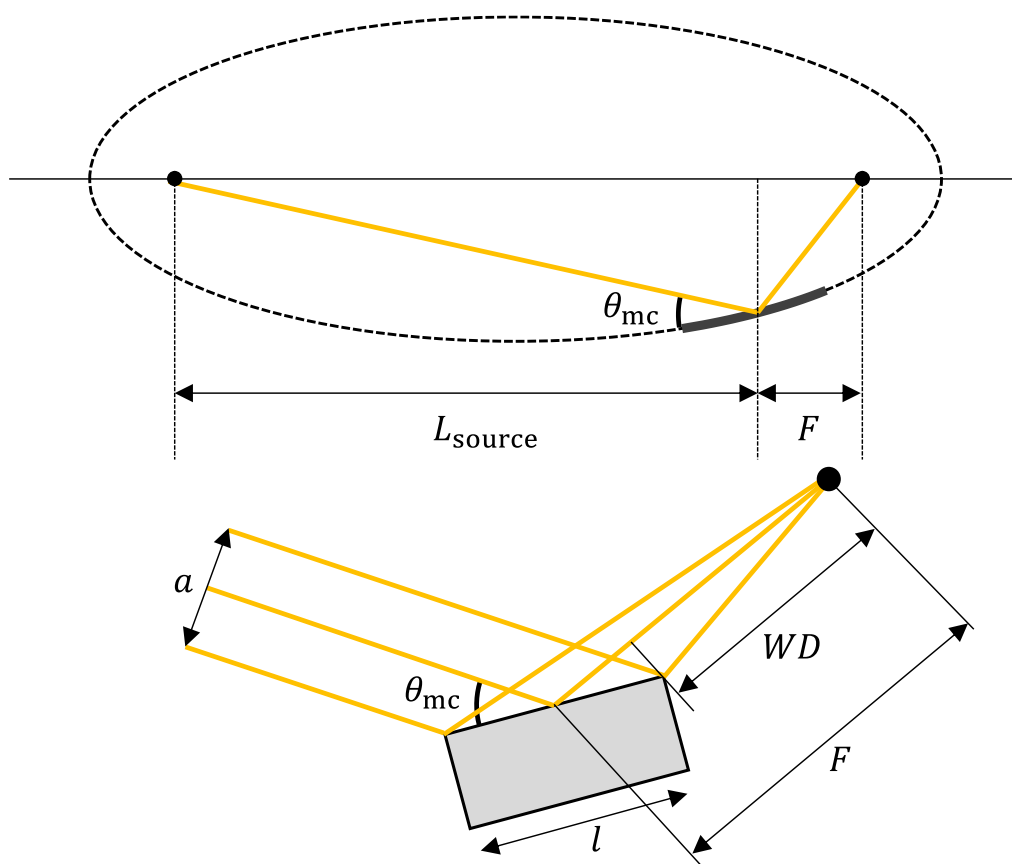


図 2.2.1.2 楕円ミラーにおける全体, 及び焦点周りの光線図.

開口を有する光学系の設計開口数（NA: (numerical aperture) 焦点から光学素子を見込んだ際の光の広がり角の半分）と X 線の波長 λ に対して、回折限界集光サイズ（半値全幅, Full width at half maximum: FWHM） D はフラウンホーファー回折の計算より次の式で与えられる。

$$D = 0.44 \frac{\lambda}{NA}. \quad (2.2.1.1)$$

X 線の波長が一定である場合、開口数と集光サイズが反比例の関係であるとわかる。X 線集光素子のように開口数が比較的小さい場合、焦点距離 F と開口サイズ a を用いて下記の通り近似的に表せる。

$$NA \approx \frac{a}{2F}. \quad (2.2.1.2)$$

斜入射光学系であるミラーにおいて開口サイズと焦点距離は、ミラー中心での斜入射角 θ_{mc} 、ミラーの長さ l 、及びミラー下流端－焦点間距離を意味するワーキングディスタンス WD を導入することで、近似的に式(2.2.1.3)のように表せる。

$$\begin{aligned} a &\approx l \sin \theta_{mc}. \\ F &\approx WD + \frac{l}{2}. \end{aligned} \quad (2.2.1.3)$$

よって、ミラー光学系の開口数、及び回折限界集光サイズは最終的に式(2.2.1.4)で書き表せる。

$$\begin{aligned} NA &\approx \frac{\sin \theta_{mc}}{1 + 2 \frac{WD}{l}}. \\ D &\approx 0.44\lambda \frac{1 + 2 \frac{WD}{l}}{\sin \theta_{mc}}. \end{aligned} \quad (2.2.1.4)$$

X 線を回折限界集光するためには、①ミラー形状誤差、及び②光学系の縮小倍率の問題をクリアしなければならない。まず①について、レイリーの 4 分の 1 波長則に基づくと、ミラーの表面形状誤差 h により生じる光路差 ΔL が少なくとも波長の 4 分の 1 以下でなければならない（図 2.2.1.3 及び式 (2.2.1.5)）。

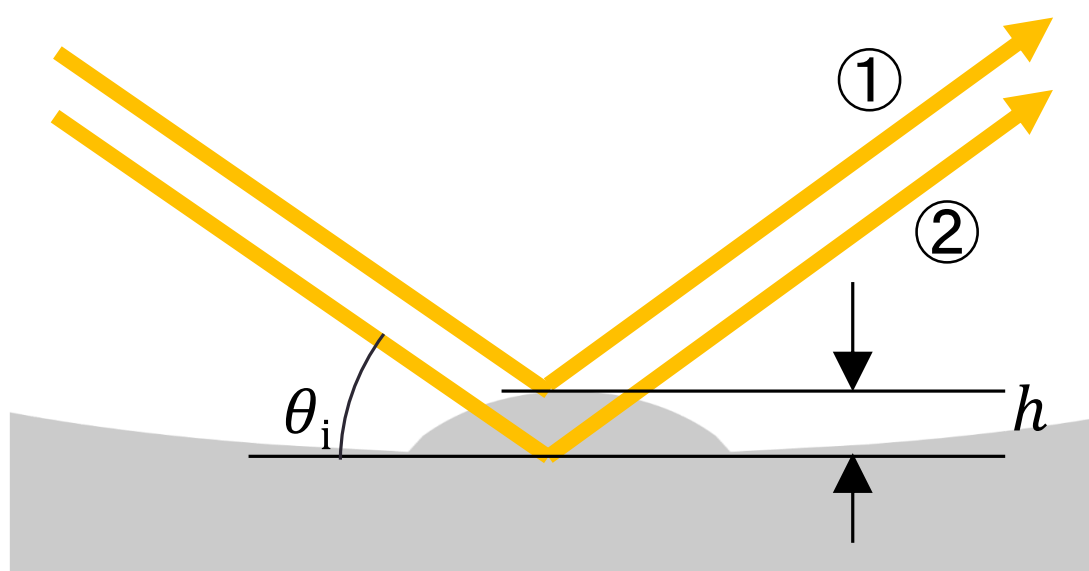


図 2.2.1.3 実際の反射光路①と理想形状による反射光路②は、ミラー表面形状の誤差 h と斜入射角 θ_i に依存した光路差 ΔL を生じる． ΔL が波面誤差そのものであり、 $\lambda/4$ 以下である必要がある．

$$\Delta L = 2h \sin \theta_i < \frac{\lambda}{4}. \quad (2.2.1.5)$$

θ_i はX線の斜入射角である。例えば, sub-50 nm 集光光学系では $\theta_{mc} = 5.0$ mrad, $\lambda = 0.12525$ nm (X線エネルギー: 9.9 keV) であるため, $h < 3.1$ nm と求まり, ミラー全体でナノメートルオーダーの形状精度が必要であると確認できる。KBミラーの最も大きな利点は, ミラーの形状がサジタル(短軸)方向に対して平面であるため、高精度な加工・計測が比較的容易なことにある。この利点と加工・計測技術の発展により, 2005年に世界で初めて, X線ミラーを用いたナノメートルスケールの回折限界集光が達成された[33]。

次に②について, 集光光学系ではサイズ D_s の光源を, 縮小倍率 M に基づいた幾何学的集光サイズ D_g よりも小さく集光できない。楕円ミラーにおいて, 縮小倍率と幾何学的集光サイズは焦点距離と光源ーミラー中心間距離 L_{source} で下記の通り近似的に表せる。

$$M \approx \frac{F}{L_{source}} \approx \frac{WD + \frac{l}{2}}{L_{source}}. \quad (2.2.1.6)$$

$$D_g = D_s M.$$

KBミラーは斜入射光学系であること, 及び直交直列配置であるがゆえに, 特に上流ミラーの WD が必然的に大きくなる。そのため, 極小集光を達成するためには, 光源サイズを小さくする, 光源ーミラー間距離を長くすることなど, 光学的な工夫が必要となる。

2.2.2 X線の反射原理

2.2.2.1 全反射ミラー

X線領域において物質の屈折率の実部 n_R は1よりもわずかに小さいため, X線が真空(大気)から物質の界面に小さな斜入射角で入射した場合に全反射現象が生じる。斜入射角を θ_i , 屈折角を θ_r とすると, スネルの法則よりそれぞれの角度は以下の関係にある。

$$\cos \theta_i = n_R \cos \theta_r. \quad (2.2.2.1.1)$$

となる。全反射臨界角 θ_c は, $\theta_r = 0$ の時の θ_i であるため,

$$\cos \theta_c = n_R = 1 - \delta. \quad (2.2.2.1.2)$$

となる。硬X線領域において $\delta \ll 1$ であるため, $\theta_c \ll 1$ である。この条件下において $\cos \theta_c$ をフーリエ級数展開すると,

$$\cos \theta_c \approx 1 - \frac{\theta_c^2}{2}. \quad (2.2.2.1.3)$$

$$\theta_c = \sqrt{2\delta}.$$

となり、全反射臨界角は物質の屈折率の実部のみによって決まることがわかる。ここで、自由電子近似の範囲内で、 δ は以下の通り求まる[34].

$$\delta = 1.35 \times 10^{-4} \rho \lambda^2 \quad (2.2.2.1.4)$$

ρ は電子密度である。つまり、X 線の波長が一定である場合、反射面の媒質の電子密度が大きいほど全反射臨界角も大きくなる。そのため、一般的に X 線ミラーでは、石英、および Si 基板に作りこまれた反射面に、Pt などの重元素がコーティングされる。

X 線ミラーのエネルギー反射率は、Fresnel の複素振幅反射係数 R_f の絶対値の二乗に等しく、斜入射角 θ_i の関数として下記の通り与えられる。ここで、X 線ミラーは無限の厚みを有する単一基板であると仮定した。

$$|R_f(\theta_i)|^2 = \left| \frac{\sin \theta_i - \sqrt{n^2 - \cos^2 \theta_i}}{\sin \theta_i + \sqrt{n^2 - \cos^2 \theta_i}} \right|^2. \quad (2.2.2.1.5)$$

n は複素屈折率である。図 2.2.2.1.1 に、X 線波長 0.124 nm (X 線エネルギー: 10 keV) において、Pt と C の反射率の斜入射角度依存性を計算した結果を示した。C と比較して電子密度が大きい Pt は、斜入射角が大きい X 線に対しても高い反射率を示すことがわかる。一方、全反射臨界角よりも浅い X 線に対してわずかに反射率が低下している。これは反射面において X 線がわずかに吸収されていることに起因しており、線吸収係数の大きい Pt においてより顕著である。そのため、X 線エネルギーが低い場合や、ミラーの設計斜入射角が小さい場合は、C のような軽元素を反射膜としたほうが、反射率が高く、特に XFEL の場合は吸収が少ないゆえにミラー表面の放射線損傷を抑えることができる。

さて、全反射現象を利用して X 線を集光する場合、全反射臨界角による制限を考慮すると、式(2.2.1.4)より開口数は、近似的にミラー全長に比例し、ワーキングディスタンスに反比例する。上流ミラーにおける幾何学的縮小倍率なども考慮すると、全反射現象を利用した集光サイズには限界があり、現にこれまでに達成された最小集光サイズは 25 nm である[35]。スポットサイズ 10 nm 以下の達成に向けて、全反射とは異なる反射原理の導入が必須である。

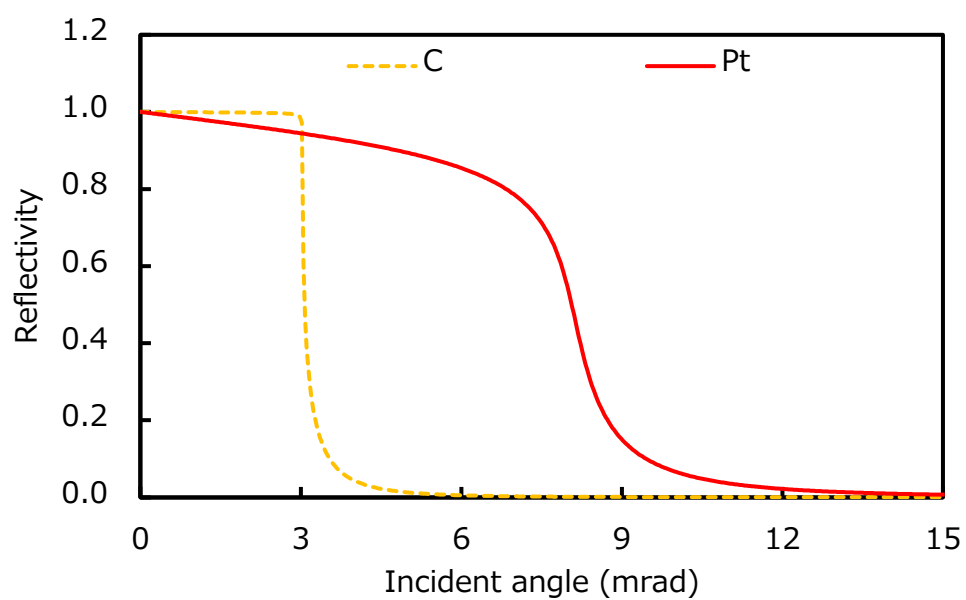


図 2.2.2.1.1 X線波長 0.124 nm (X線エネルギー: 10 keV) における, Pt と C の反射率の斜入射角度依存性.

2.2.2.2 多層膜ミラー

全反射臨界面よりも大きな斜入射角を有する X 線を、高い効率で反射するために多層膜ミラーが用いられている。異なる 2 種類の元素層を交互に配置すると、各界面でわずかに X 線が反射し、それらの位相を揃えることができれば高い反射率が得られる。結晶における理想的なブラッグ反射とは異なり、反射に寄与する元素が原子ではなく膜であるため、材質の屈折率を考慮した以下の式で示される。

$$d = \frac{\lambda}{2\sqrt{n_{\text{Rave}}^2 - \cos^2 \theta_i}} \quad (2.2.2.2.1)$$

d は多層膜の周期長、 n_{Rave} は 2 つの膜の平均的な屈折率の実部である。ここでは多層膜の 1 次のブラッグピークのみを考えている。ただ、 $n_{\text{Rave}} \approx 1$ 、 $\theta_i \approx 0$ であることから、多層膜周期長と X 線斜入射角はほぼ反比例の関係にあることは、結晶のブラッグ反射と変わらない。

X 線領域において各界面での反射率は式 (2.2.2.1.5) と等しく、界面の屈折率差が反射率に直結するため、多層膜は密度の大きい重元素層と小さい軽元素層で構成されている。多層膜の X 線反射率は、多重反射も含めた各界面における反射光強度の合計であるため、Parratt の漸化式[36]を用いて計算することができる。以下、多層膜最表面から数えて第 j 番目の層の屈折率を n_j 、この層内における X 線の進行方向と多層膜試料表面のなす角を θ_j とする(図 2.2.2.2.1)。 $g_j = n_j \sin \theta_j$ とおくと、第 j 層と $j+1$ 層との間の界面の Fresnel 反射係数 $F_{j,j+1}$ は s 偏光に関して、

$$F_{j,j+1} = \frac{g_j - g_{j+1}}{g_j + g_{j+1}}. \quad (2.2.2.2.2)$$

と書ける。X 線領域では s 偏光と p 偏光の間にほとんど違いはないため、以下では s 偏光の式を用いる。また、空気（あるいは真空）中から試料最表面への斜入射角を θ とすると Snell の法則から $\cos \theta = n_j \cos \theta_j$ の関係が成り立つので、

$$g_j = n_j \sin \theta_j = \sqrt{n_j^2 - \cos^2 \theta} \approx \sqrt{\theta^2 - 2\delta_j - 2i\beta_j}. \quad (2.2.2.2.3)$$

と書ける。ただし、 $n_j = 1 - \delta_j - i\beta_j$ (j 番目の層の複素屈折率) としている。また、第 j 層中の入射 X 線の波数ベクトルの界面に対して垂直方向の成分の大きさは $k_{j,z} = \frac{2\pi}{\lambda} g_j$ と表せる。この時、第 j 層と $j+1$ 層の間の界面の地点におけるそれ以降の多層膜全体を考慮した反射係数 $r_{j,j+1}$ は $r_{j+1,j+2}$ を用いて、

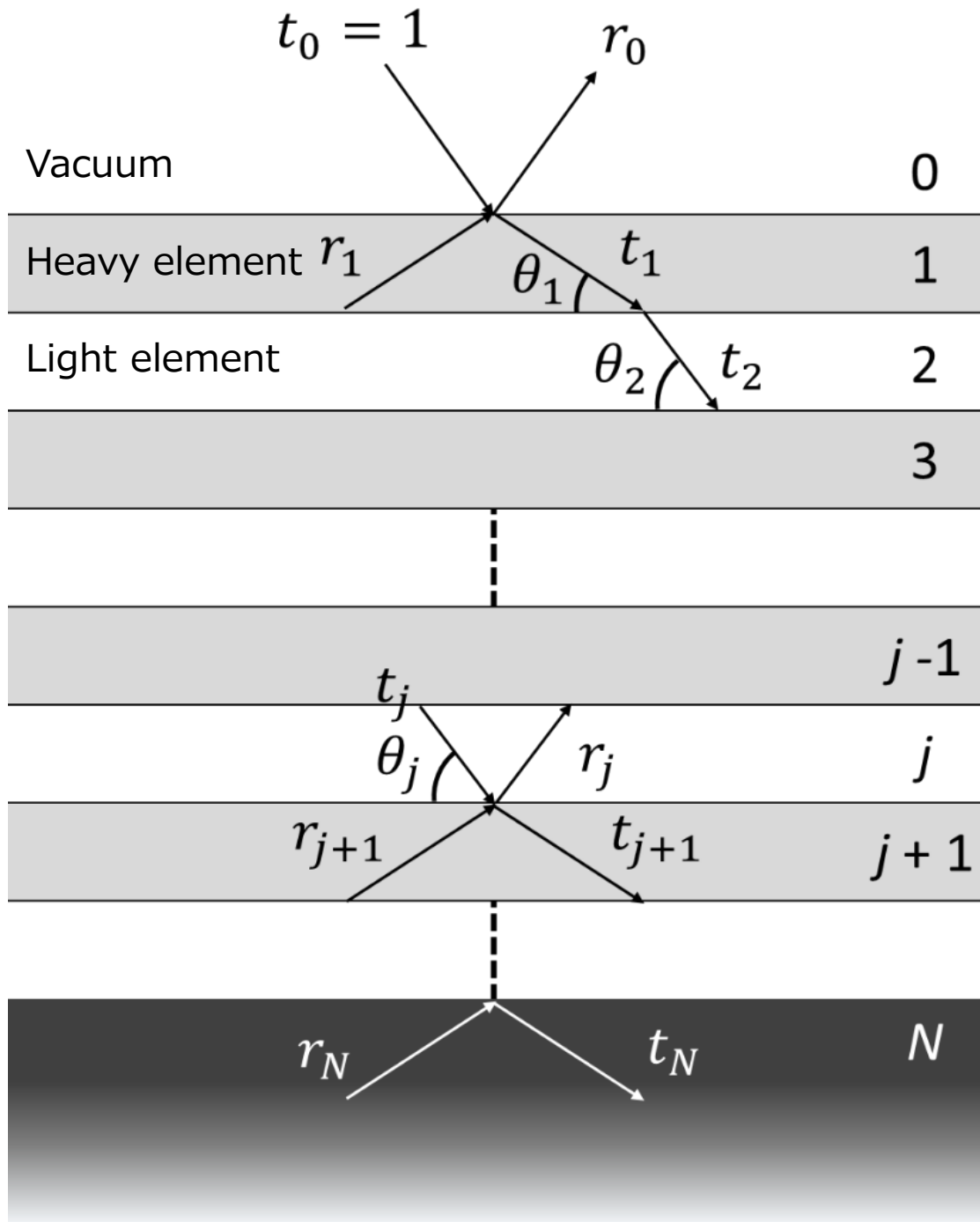


図 2.2.2.2.1 多層膜反射の模式図. t は透過する光を表し, r は反射する光を表す.

$$r_{j,j+1} = \frac{F_{j,j+1} + r_{j+1,j+2} \exp(-2ik_{j+1,z}d_{j+1})}{1 + F_{j,j+1}r_{j+1,j+2} \exp(-2ik_{j+1,z}d_{j+1})}. \quad (2.2.2.2.4)$$

と表せる．ここで $\exp(-2ik_{j+1,z}d_{j+1})$ は、X 線が第 $j+1$ 層中を往復する際に発生する位相差を表している． d_{j+1} は第 $j+1$ 層の厚さである．また、式 (2.2.2.2.4) には多重反射の効果も含まれている．最下層が第 N 層であるなら $r_{N+1,N+2} = 0$ とし、これを初期値として漸化式を順次計算することにより最表面における多層膜全体の反射係数 $r_{0,1}$ を求めることができる．多層膜全体のエネルギー反射率 R_M は、 $R_M = |r_{0,1}|^2$ と表せる．多層膜構成元素を Pt/C として、周期長 5 nm、および 3 nm それぞれにおいて層数を 10, 20, 30 layer とした時の反射率分布を、図 2.2.2.1.1 同様の条件で計算した(図 2.2.2.2.2)．全反射臨界角は膜の平均的な屈折率の実部に依存するため、周期長、層数に関係なく Pt, C それぞれの単層膜における計算結果の大体中間地点に位置しているが、周期長が小さくなるにつれてブラッグピークは、より高角にシフトしている．また、層数が大きくなるにつれて反射率が高くなるが、周期長 5 nm の時は大よそ 20 layer で頭打ちしているように見える．これは、周期長が短い多層膜ほど、X 線が多層膜の奥深くまで侵入しているためである．いずれにせよ層数は可能な限り多くすれば良いように見えるが、成膜時間が長くなるため、プロセスの安定性を考慮しなければならない．また、周期長 3 nm の 10, 30 layer の結果から、ブラッグピークの幅が狭くなっていることがわかる．これは、層数が増えることで干渉に寄与する反射光が増え、位相が揃う斜入射角の範囲が狭くなるからである．また、多層膜反射では斜入射角だけでなく、入射 X 線波長もパラメータである．計算では理想的な単色光を仮定しているが、光源には必ずエネルギーバンド幅が存在する (SACLA の SASE 光で 50 eV[37]) ため、入射 X 線を効率的に利用する場合はブラッグピークの幅がエネルギーバンド幅を上回る必要がある．このように、実験条件も考慮して最適な成膜パラメータを決定する必要がある．

界面の持つ形状的な凹凸や相互拡散層 (以下、これらを総合して界面粗さと呼ぶ) の影響をより定量的に表現するためには、式 (2.2.2.2.4) 中の Fresnel 反射係数 $F_{j,j+1}$ に対して補正を適用する必要がある．理想的でない (深さ方向に密度勾配を持つ) 界面からの鏡面散乱に関して、多重散乱や屈折の効果を見捨てた運動学的近似を行うことで、 $F_{j,j+1}$ に対する補正は、

$$F'_{j,j+1} = F_{j,j+1} \exp(-2k_{j,z}^2 \sigma_{j,j+1}^2). \quad (2.2.2.2.5)$$

と書くことができる．ただしここでは、界面の凹凸に空間的な相関が無く、かつ、界面付近の深さ方向における屈折率分布の微分値が、Gauss 分布に従うという仮定が用いられている．ここで、 $\sigma_{j,j+1}$ は Gauss 分布の標準偏差を表わしており、界面凹凸の RMS 粗さと考えることもできる．また、式(2.2.2.2.5)中の指数部は、Debye-Waller の減衰因子と呼ばれる．

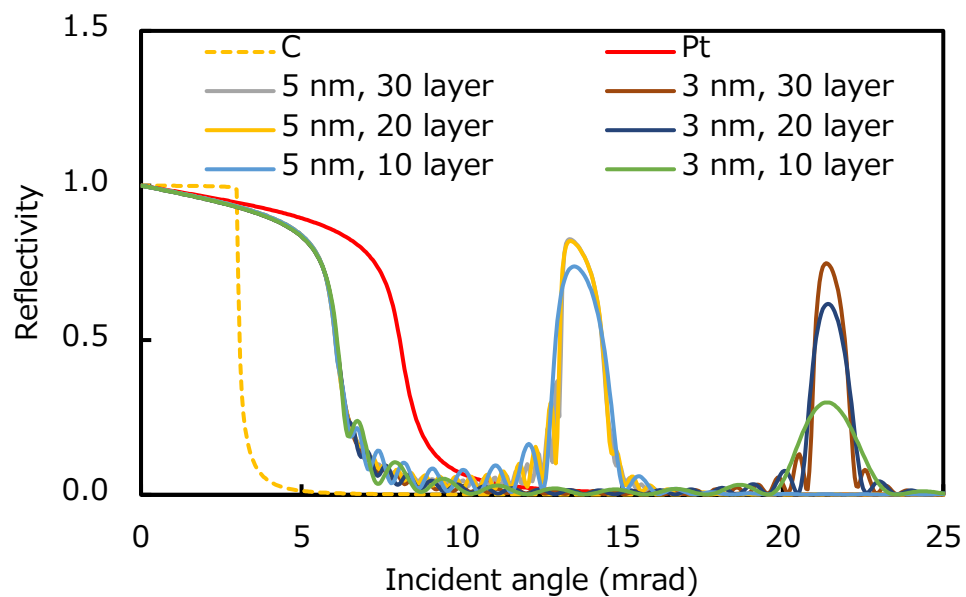


図 2.2.2.2.2 多層膜構成元素を Pt/C として、周期長 5 nm, および 3 nm それぞれにおいて層数を 10,20,30 layer とした時の反射率の計算結果. X 線エネルギーは 10 keV で, Pt, C の単層膜と共に斜入射角度依存性を示した.

さらに, Nevot と Croce は動力的計算から, 以下のような補正の式を導いている.

$$F'_{j,j+1} = F_{j,j+1} \exp(-2k_{j,z}k_{j+1,z}\sigma_{j,j+1}^2). \quad (2.2.2.2.6)$$

式 (2.2.2.2.6) 中の指数部は, Nevot-Croce の減衰因子と呼ばれている. 式 (2.2.2.2.6) は式 (2.2.2.2.5) に比べてより厳密に近い表現であり, 今日薄膜や多層膜の反射率の計算に広く用いられている. 図 2.2.2.2.3 に, 式 (2.2.2.2.4), (2.2.2.2.6) を用いて計算された多層膜の第 1 ブラッグピークにおける反射率と界面粗さとの関係を示す. 界面粗さが反射率に与える影響は, 周期長が短いほど大きいと分かる. 尚, 我々がこれまでに成膜してきたほとんどの多層膜の界面粗さは 0.2~0.3 nm RMS であった. ここで, 界面粗さが急激に悪化する原因として, 一層あたりの膜厚を極端に小さくした場合に均一膜が形成できなくなる島状 (アイランド) 成長があり, 反射率の低下につながる[38]. 島状成長が起こらない最小膜厚は, 文献より 0.7~1.2 nm 程度であるため, 今後の多層膜設計値の境界条件とするべきである. 以上より, 応用実験を考えた X 線エネルギーの選定や光学設計も重要であるが, プロセス時間やエネルギーバンド幅, 界面粗さを境界条件としつつ最適な設計値を決定することで, 集光サイズ 10 nm を達成できる多層膜ミラー集光光学系を構築する.

2.3 sub-10 nm 集光光学系の概要

SACLA をサイズ 10 nm 以下に集光できる X 線ミラー光学系を下記の下設計した.

1. 開口数の確保. 応用実験を見据えて (後述), X 線エネルギーを 9.1 keV ($\lambda = 0.13626$ nm) に設定したことから, 7 mrad 以上が求められる.
2. 縮小倍率の確保. SACLA の光源をガウス関数でフィッティングしたとき, 標準偏差 (σ 値) は縦 (又は垂直, Vertical: V) 15~20 μm RMS, 横 (又は水平, Horizontal: H) 20~25 μm RMS 程度である. よって, 光源サイズは半値全幅 (FWHM) で 40(V) $\times$ 60(H) μm 程度と見積もられるため, 10 nm 以下に集光するにあたり, 特に水平方向では 6000 倍以上の縮小倍率が必要である.
3. ミラーの開口全域の照明. XFEL は発散角が小さく (3~4 μrad), 最も下流 (最終アンジュレータの出口から約 180 m 下流) の実験ハッチ (Experimental hatch: EH) 5 においても光は半値全幅で 800 μm ほどである. 開口数の観点から, KB ミラーの上流側を焦点距離 50 mm にしつつ, 下流側を更に小型に設計するか, 光をさらに発散させる工夫が必要である.

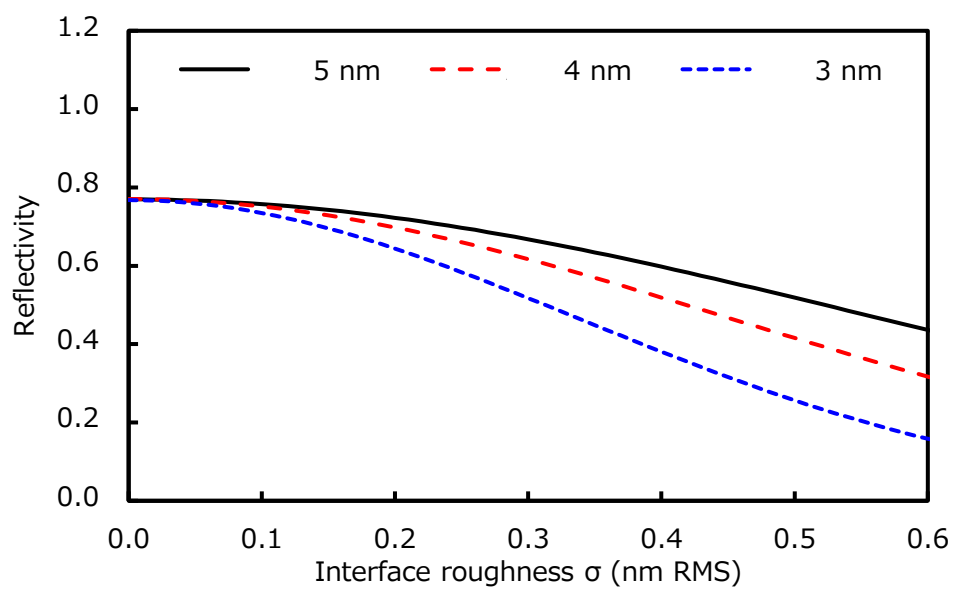


図 2.2.2.2.3 Pt/C 多層膜 X 線反射率の界面粗さ σ 依存性. エネルギー 10 keV. 層数はいずれも 50 周期.

設計された sub-10 nm 集光光学系のミラー配置図を図 2.3.1 に、パラメータを表 2.3.1 に示した。また、ミラーの形状、及び斜入射角分布を図 2.3.2、及び 2.3.3 にプロットした。本光学系では、2 組の KB ミラーを用いて 2 段集光システムを構築している。

光学系全体の縮小倍率は式(2.2.1.6)により求まる前段、後段ミラーそれぞれの縮小倍率の掛け合わせになるため、10000 倍以上と十分大きい。さらに、前段ミラーは光を集光した後に発散するため、後段の大開口数ミラーの全域(水平集光でアクセプタンスが 6 mm)に光を照射できる。尚、後段ミラーの斜入射角は Pt 単層膜の 9.1 keV における全反射臨界角 (8.9 mrad) を超えているため、多層膜ミラーとしている (多層膜周期長は図 2.3.4)。

X 線エネルギー 9.1 keV において、下記の応用実験を考えている。

1. Cu の K 殻電子を励起できることから、Cu を利用した可飽和吸収や内殻準位レーザーを観測する。
2. Fe^{24+} (ヘリウム様 Fe)まで Fe 原子を構成する電子をはぎ取る (8.909 keV) (逐次的な多光子吸収)。
3. Zr の直接 2 光子吸収を観測する (17.998 / 2 keV)。

これらを実現するためにも、sub-10 nm 集光光学系において回折限界条件を満たし、集光効率を高めることが必要である。

2.4 sub-10 nm 集光光学系の形状精度及びアライメント精度

本項では、回折限界条件の下集光サイズ 10 nm 以下を達成するために必要な形状精度、及びアライメント精度について検討を行った結果を述べる。

2.4.1 形状精度に関する問題点

多層膜ミラーの平均斜入射角は垂直で 14.1 mrad、水平で 15.2 mrad であることから、式 (2.2.1.5) より求められる形状精度は 1.21 nm PV, 1.12 nm PV と 1 nm オーダーであることがわかる。合わせて、我々のミラー形状は従来の X 線ミラーと比較して非常に急峻である (図 2.4.1.1, sub-50 nm 集光ミラーと比較)。例えば、可視光干渉計では一度に計測できる領域が非常に狭くなり、システムエラーを引き起こす要因となる。このような急峻な形状を 1 nm PV 以下の精度で絶対計測できる可視光計測器はなく、事前にミラー形状を予測して作製することは不可能である。

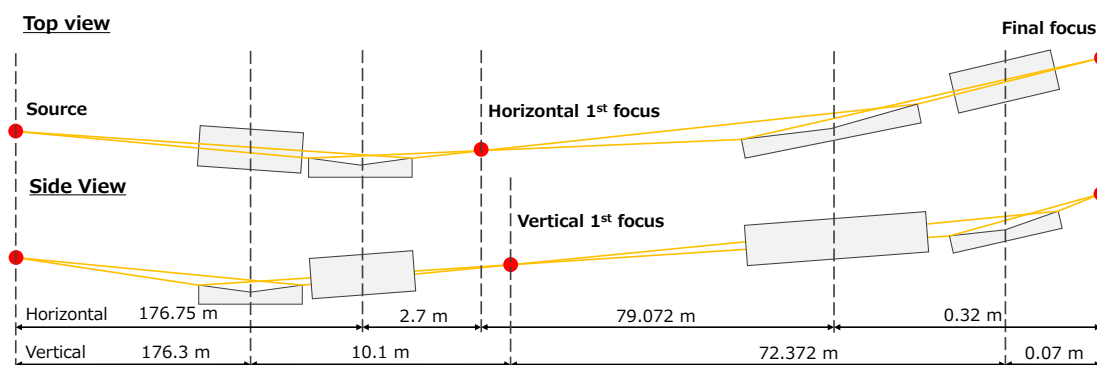


図 2.3.1 sub-10 nm 集光光学系の光学配置.

表 2.3.1 sub-10 nm 集光光学系のパラメータ.

(a) 前段全反射 KB ミラー.

	Vertical	Horizontal
Mirror length (Effective area) (mm)	400 (391.7)	400 (391.2)
Average grazing incidence angle (mrad)	1.5	1.5
Coating	None	None
Substrate	Quartz glass	Quartz glass
Demagnification	17.46	65.46
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	0.029	0.109

(b) 後段多層膜 KB ミラー.

	Vertical	Horizontal
Mirror length (Effective area) (mm)	100 (90.4)	380 (349.7)
Average grazing incidence angle (mrad)	14.1	15.2
Multilayer period (nm) @9.1 keV	7.97 ~ 2.84	6.66 ~ 3.08
Substrate	Quartz glass	Quartz glass
Demagnification (Total demagnification)	1033.9 (18051.9)	247.1 (16175.2)
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	11.88	9.96
Diffraction limit (nm, FWHM) @9.1 keV	5.1	6.0

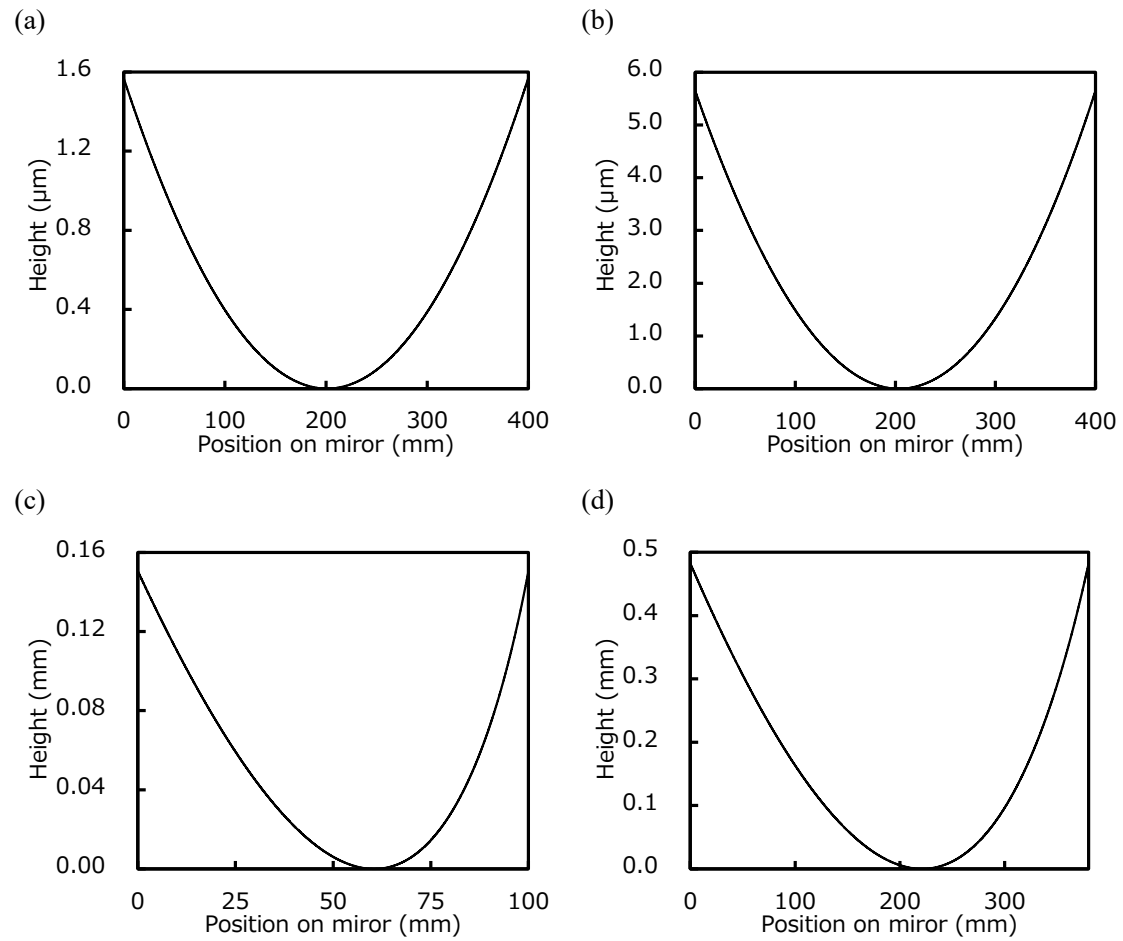


図 2.3.2 ミラー形状. (a)前段垂直集光ミラー, (b)前段水平集光ミラー, (c)後段垂直集光ミラー, (d)後段水平集光ミラー.

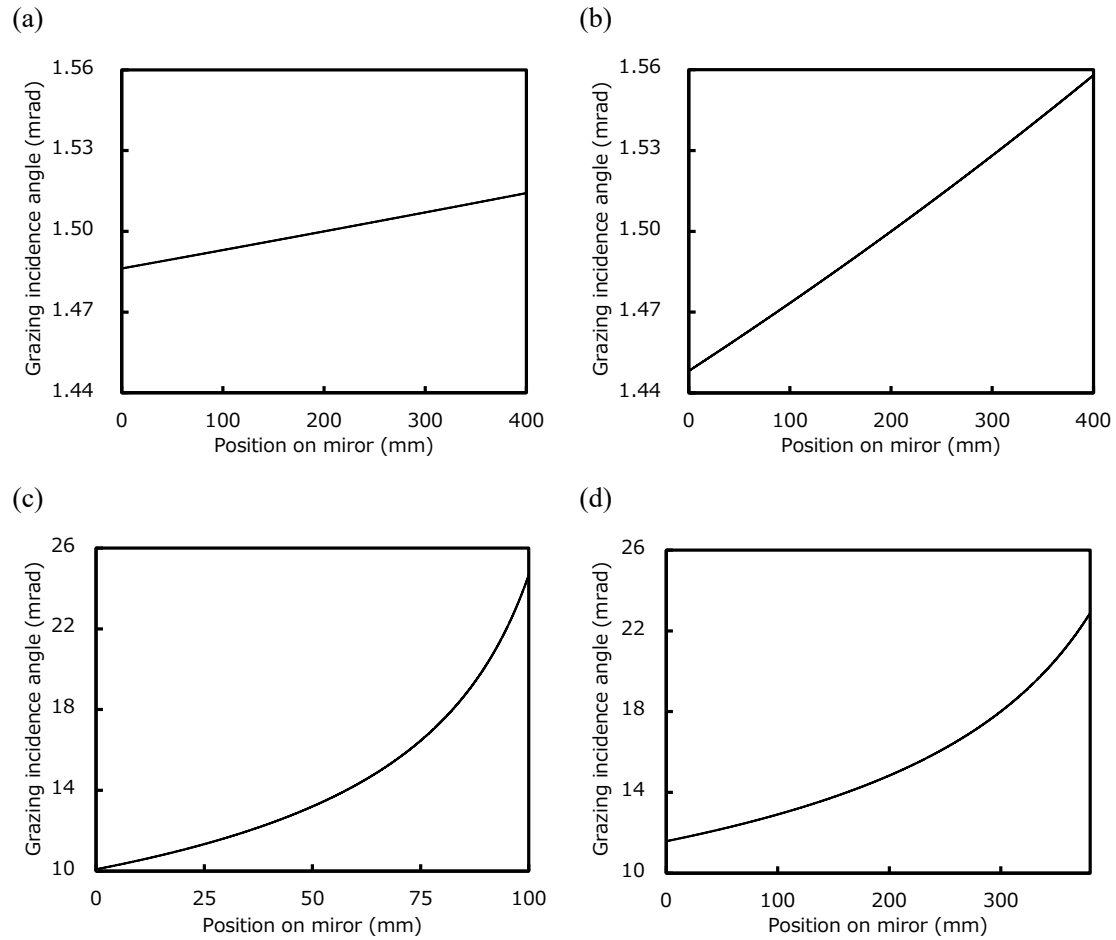


図 2.3.3 ミラー上の斜入射角分布. (a)前段垂直集光ミラー, (b)前段水平集光ミラー, (c)後段垂直集光ミラー, (d)後段水平集光ミラー.

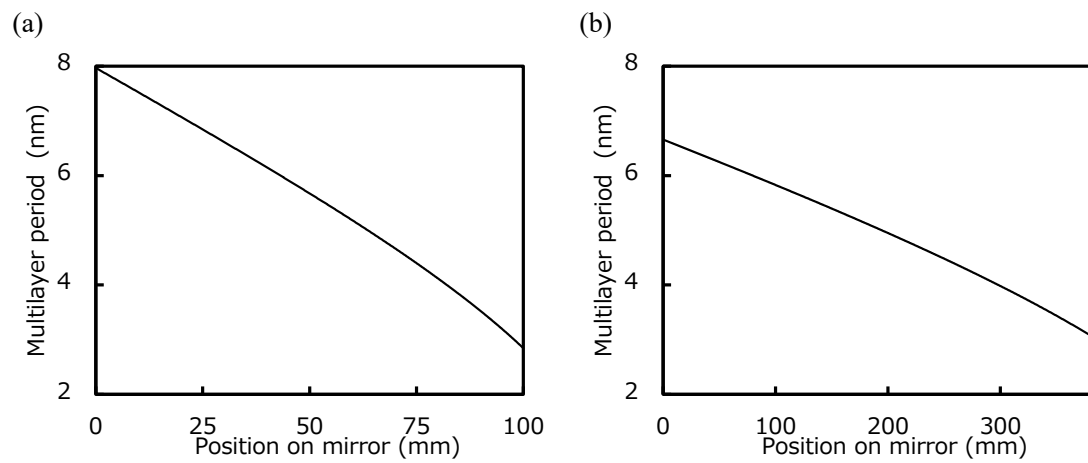


図 2.3.4 多層膜ミラーの周期長分布. (a)垂直集光ミラー, (b)水平集光ミラー.

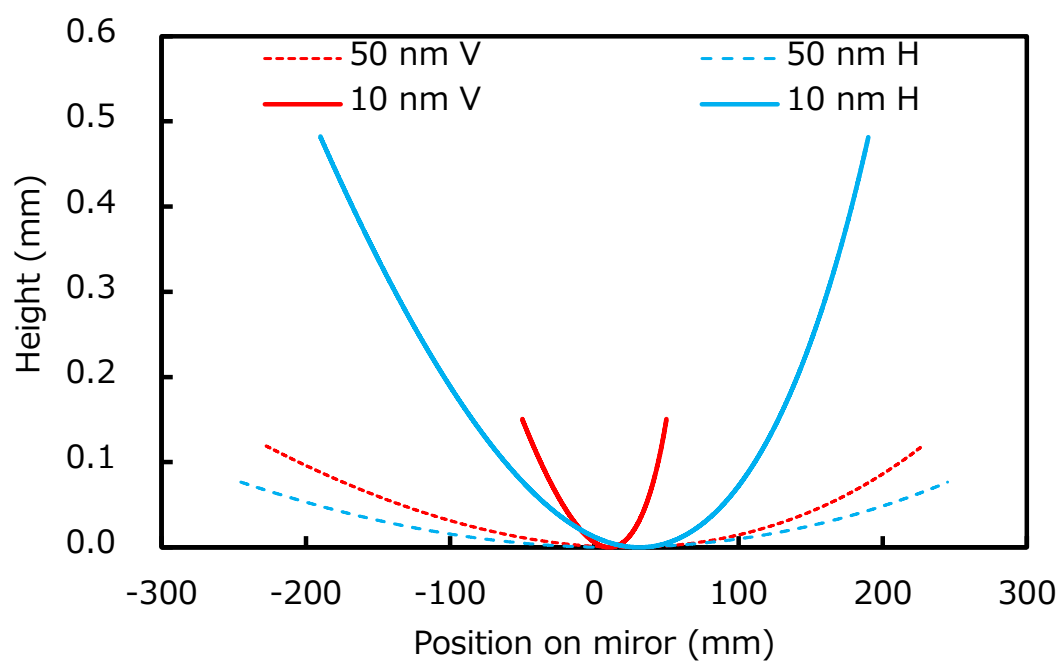


図 2.4.1.1 sub-10 nm 集光光学系の後段ミラーと, sub-50 nm 集光光学系の後段ミラーの形状比較.

2.4.2 許容アライメント精度の考察

KB ミラーは、面内回転、直角度、入射角、非点収差といった主に 4 つのアライメント軸を有しており、形状が高精度に作製されていても、アライメントを正確に調整しなければ X 線の回折限界集光はできない。本項では多層膜ミラーについて、必要とされるアライメント精度を考える。

面内回転について、まず X 線がミラーの有効領域から外れないことが大前提であり、それは数 mrad オーダーである。面内回転誤差が与える収差は、光がミラー有効領域を斜めに横切り、実効的な曲率に変化することにある。しかしこの変化は、140 mrad 程度の誤差で初めてミラー長が 1 % 大きくなったことに相当するため、数 mrad ではほぼ無視できるといえるだろう。この必要精度は電気マイクロメーターなど、簡単な調整手順で十分達成可能な値である。

次に直角度誤差は、ミラー開口を正方形から歪ませると推測した。直角度は 2 枚のミラーの相対配置で決まるので、下流側である垂直集光ミラーの誤差が与える影響について幾何光学的に考察した（波動光学的な考察は第 5 章）。図 2.4.2.1 のように、最終的に集光点で水平垂直それぞれ 10 nm までのビームの広がり許容するならば、直角度誤差の限界は 5 nm/1.017 mm から約 5 μ rad となる。尚、1.017 mm は、垂直集光ミラーの NA 中心（基板の上流から約 75 mm）における、ミラーのサジタル方向の X 線照射範囲である。5 μ rad の精度はオフラインの調整のみで達成することが難しいため、最終的に集光ビームの形状や波面を基に修正する必要がある。

入射角誤差について、波動光学に基づき考察した。Fresnel-Kirchhoff 回折積分[39, 40]を用いて、ミラーの入射角に誤差がある場合に生じる波面収差を見積もった。焦点位置が光軸方向に移動する（デフォーカス）成分を無視すると、コマ収差と呼ばれる 3 次関数が支配的な波面収差が生じていることを確認できた。低周期の波面収差であるため、集光サイズを簡単に拡大し、ピーク強度を低下させてしまう。許容入射角誤差として、コマ収差の PV 値が波長の 4 分の 1 を超えない範囲を求めると、垂直集光ミラーが 900 nrad、水平集光ミラーが 350 nrad であった（図 2.4.2.2）。今までのアライメント軸と比較して非常に厳しく、X 線実験時に調整することが必要不可欠である。

最後に非点収差について考察した。非点収差とは、2 次元方向の焦点位置がそれぞれ光軸方向に沿って一致しない収差のことである。これは、2 枚のミラーの配置が光軸方向に沿って相対的にズレた場合に生じる。焦点の位置ずれの許容範囲は矩形開口レンズの焦点深度（レイリー長の 2 倍）から決定できる。我々が目指す、回折限界集光時の焦点深度 f は以下の式で表される。

$$f = \pm \frac{\lambda}{2(\text{NA})^2}. \quad (2.4.2.1)$$

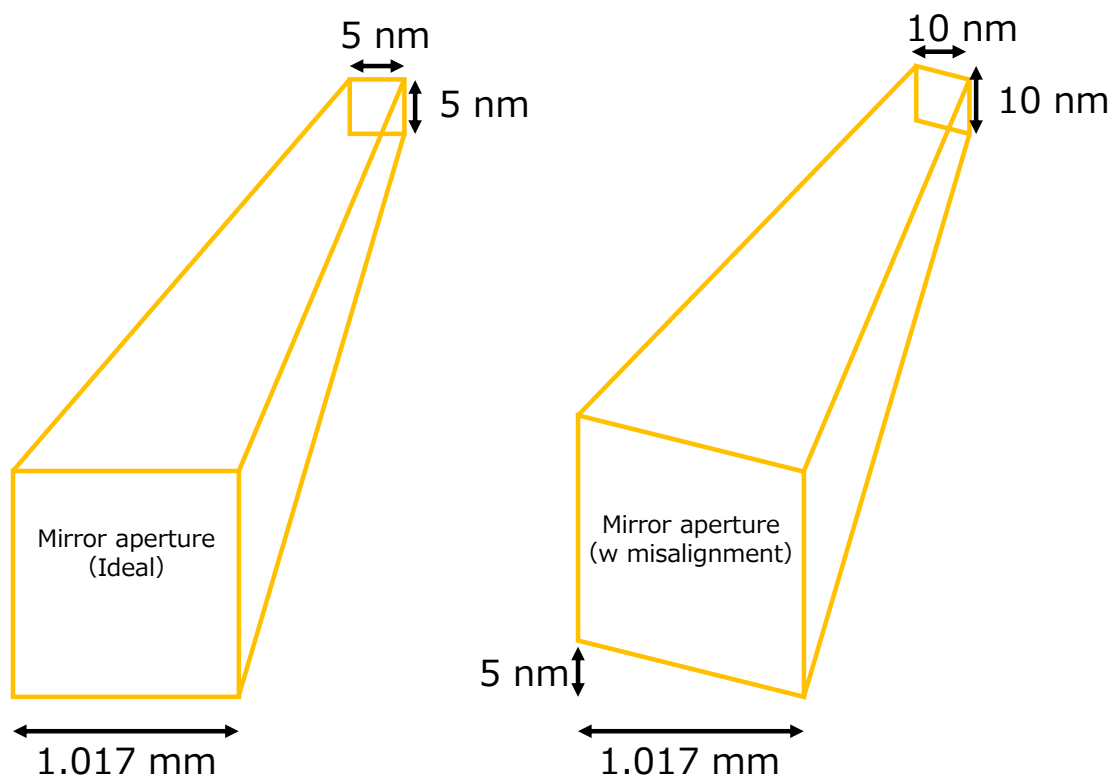


図 2.4.2.1 許容直角度誤差の検討.

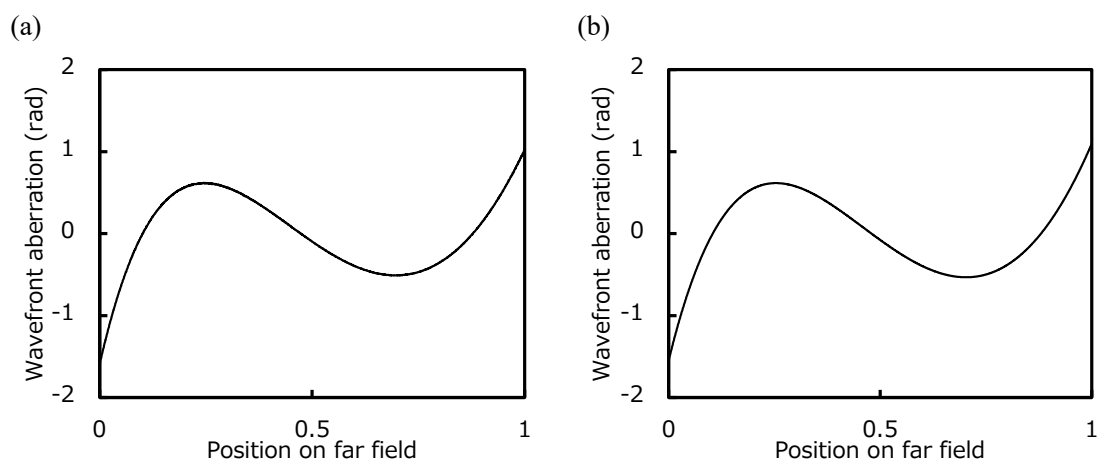


図 2.4.2.2 コマ収差関数. (a)垂直集光ミラーに 900 nrad の入射角誤差があるとき. (b)水平集光ミラーに 350 nrad の入射角誤差があるとき.

我々のミラーの開口数を代入すると、垂直集光ミラーが $0.976\ \mu\text{m}$ 、水平集光ミラーが $1.363\ \mu\text{m}$ であるため、許容範囲はおよそ $\pm 1.15\ \mu\text{m}$ であった。

以上の結果を表 2.4.2.1 にまとめる。sub-10 nm 集光を達成するにあたり、直角度や入射角、非点収差をオフライン計測手法のみで完璧に調整することは不可能であると考えられる。

2.5 sub-10 nm 集光達成のための戦略

2.5.1 精密な X 線波面計測手法を導入した補償光学システムの構築

sub-10 nm 集光光学系において回折限界条件を満たすためには、急峻なミラー形状を $1\ \text{nm}$ PV 以下の精度で計測できる手法が求められる。そこで本研究では、ミラーにより集光・発散された X 線の波面を計測することで、ミラーの形状誤差を決定できると考えた。X 線波面計測手法として、これまでにタイコグラフィー[41, 42]や、マルチハイト位相回復法[43, 44]が開発され、SPring-8 における世界初のサイズ $10\ \text{nm}$ 集光の達成に貢献してきた[45, 46]。しかし、これらの手法は試料を焦点付近で複数回走査しなければならず、XFEL 環境は①光源の振動が多いため安定した計測が難しいこと、および②焦点付近でのピーク強度が高く試料が破壊されてしまうことから、本光学系において正確に波面収差が計測できないと考えられる。そこで我々は X 線グレーチング干渉計を導入する[47, 48]。焦点から数 mm 程度離れた位置に回折格子を置くと、更に後方にその干渉縞（自己像）が現れる Talbot 効果[49]を利用した干渉計である。自己像の強度分布は波面収差に応じて変化するため、カメラで自己像を撮影し解析することで、波面収差を抽出できる。本手法は試料の走査がほぼ不要であること、焦点から試料が離れていることもメリットであるが、干渉計の構成要素が回折格子とカメラのみであるためシステムエラーの要因が少ないことに大きな利点がある。しかしながら、各素子のミスアライメントや回折格子の作製誤差、撮影画像の歪みなどの僅かなシステムエラーの要素が絶対計測精度を致命的に悪化させる恐れがあるため、特にこれらを抽出・除去することに取り組んだ。

また、形状修正手法として差分成膜法を採用した[50, 51]。多層膜を付与するプロセスとほとんど同じ環境で行えること、及び成膜プロセスの安定性が高いことから sub-10 nm 集光ミラーと相性が良いと考えた。以上を踏まえて、本研究で完成を目指す補償光学システムの流れを示した（図 2.5.1.1）。最初にスパッタリング成膜法により、ミラー基板上に多層膜を付与する。次に、その多層膜ミラーを SACLA まで持ち運び、sub-10 nm 集光光学系、及びグレーチング干渉計を構築して集光波面を計測し、形状誤差を評価する。誤差が判明した多層膜ミラーを大学に持ち帰り、反射膜を剥離した後に差分成膜法を実施し、上から再び多層膜を付与する。そして、もう一度 SACLA にて sub-10 nm 集光実験を行い、許容精度を超えていれば再び同じプロセスを踏む。まず、第 3 章にてグレーチング干渉計に基づく精密波面計測手法を開発する。そして第 4 章では、差分成膜と多層膜作製で得られている精度と、補償光学システムの実証結果を詳述する。

表 2.4.2.1 許容ミスアライメント量.

	Vertical	Horizontal
Perpendicularity $\Delta\chi$ (μrad)	± 5.0	
Incident angle $\Delta\theta$ (nrad)	± 900	± 350
Astigmatism Δd (μm)	± 1.15	

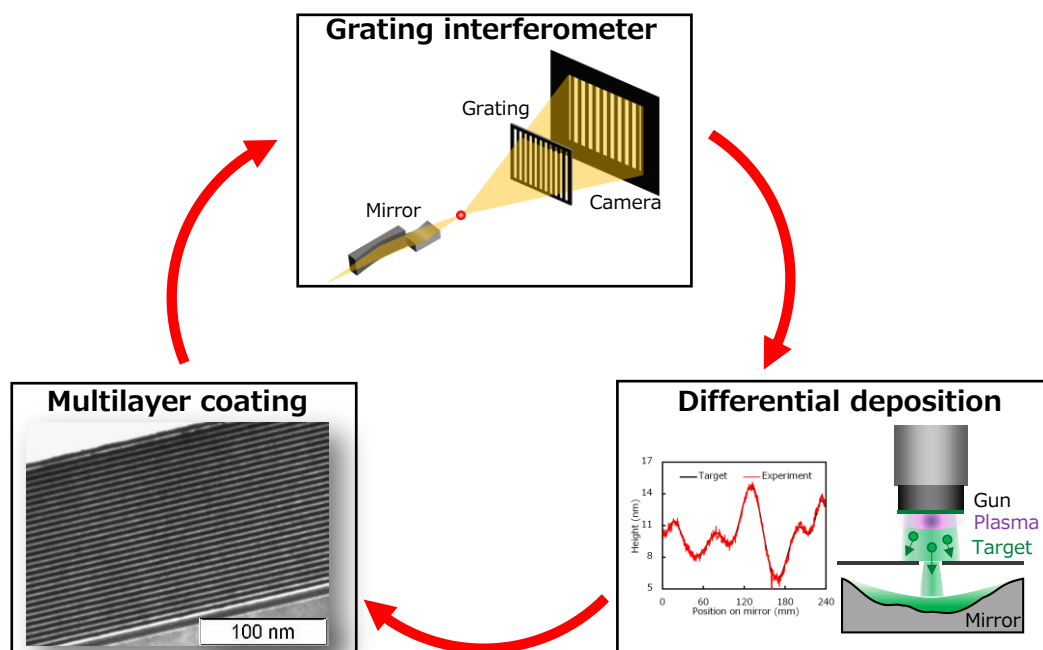


図 2.5.1.1 回折限界条件を満たす sub-10nm 集光ミラーを作製するために構築する補償光学システムの概念図. グレーチング干渉計に基づく形状計測, 差分成膜法による形状修正, 及び多層膜の付与を, 必要精度を満たすまで繰り返す. 反射膜は差分成膜を行う段階で一度全て剥離する.

2.5.2 シングルショットビーム診断法の開発

真に XFEL をサイズ 10 nm 以下に集光するためにはミラーアライメントの調整が必要不可欠である。従来、ビームウェスト近傍に鋭い構造（エッジ構造）を有する試料を挿入・走査しつつ X 線の反射像を観察するフーコーテストを行い、最終的なアライメント、及び集光調整を完了させていた。しかし XFEL において、上述した 2 つの問題（①振動、②高すぎる強度）により、本手法をサイズ 50 nm 以下のビームに適応できない。また、1 次元しか評価できないため、そもそも 2 次元的なビーム診断を必要とする非点収差や直角度の調整が困難であった。

そこで本論文では、XFEL のシングルショットでビームの 2 次元構造を診断する手法を開発するにあたり、光のコヒーレント散乱により生じる干渉模様（スペックル）に注目した（図 2.5.2.1）。スペックルは試料とコヒーレント照明光の関数で表されるため、試料の構造に相関が無い（ランダムである）場合、ビーム形状のみ反映したスペックルが形成される。これは、ほとんど空間的にフルコヒーレントである XFEL と非常に相性が良い。あらかじめ計算機シミュレーションにより、光学系の各軸のミスアライメントとビーム形状、及びスペックル形状の関係性を明らかにすることで、観察されたスペックルを元にアライメント状態を評価・調整できると考えられる。第 5 章では、計算機シミュレーションに基づき sub-10 nm 集光光学系のアライメント調整にスペックル干渉計が適用可能であることを検証し、実際に SACLA にて実験を行った結果を詳述する。

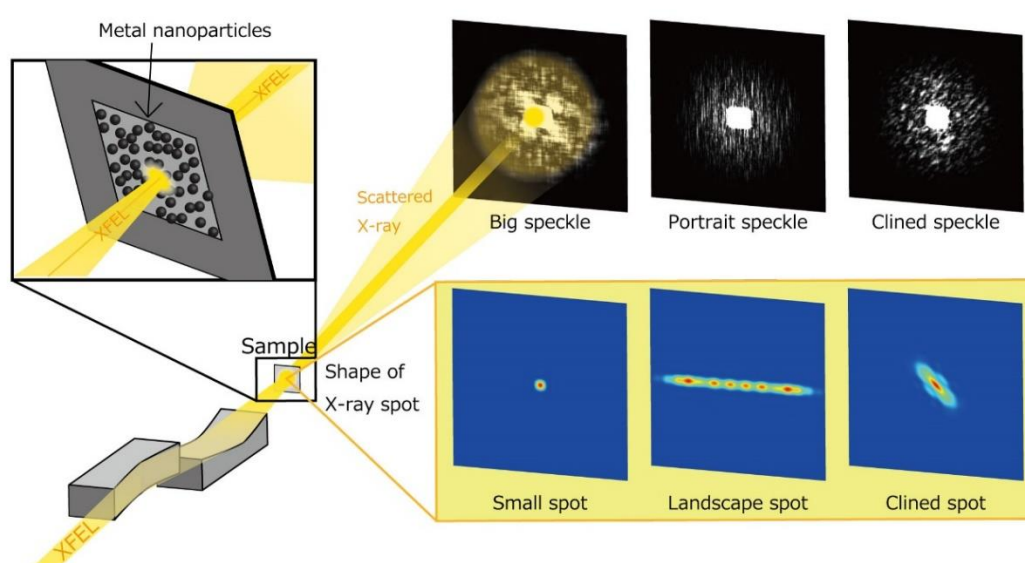


図 2.5.2.1 光のコヒーレント散乱により生じるスペックルを利用したビーム診断法の概念図. 集光された XFEL がランダムな構造の試料（本図では無数の金属微粒子）を照射すると、照明光の強度分布に応じた形状のスペックルが形成される. ミラー各軸のミスマライメントと集光ビームプロファイル、及びスペックルの関係を計算機シミュレーションにより明らかにすることで、実験時に観察されたスペックル形状に基づきアライメントを最適化することを試みる.

2.6 結言

本章では、まず XFEL 用 sub-10 nm 集光光学系の構成を述べ、許容アライメント・形状誤差について検討した後に、光学系完成に向けた戦略を記述した。以下に要点をまとめる。

- (1) XFEL におけるナノ集光素子の主力である X 線ミラーを概説し、特に一般的に用いられている KB ミラーについて述べた。表面形状にナノメートルオーダーの高い精度を必要とすることをレイリーの基準から示した。また、X 線の反射原理に基づき、サイズ 10 nm 以下の集光には多層膜ミラーが必要であることを述べた。
- (2) sub-10 nm 集光光学系を設計した。光源の発散角が小さいこと、及び比較的全長が短いことに対応するために、KB ミラーを 2 組用いた 2 段集光システムを構築し、10000 倍以上の高い縮小倍率を実現した。
- (3) sub-10 nm 集光光学系を用いた回折限界条件達成における 2 つの障壁について言及した。まず、表面形状に求められる精度が 1 nm PV 程度であることを示し、従来のミラー形状と比較することで、形状計測が特に困難であることを述べた。また、幾何光学や波動光学に基づき、必要なアライメント精度が軸によっては nrad オーダーと非常に厳しいことを示した。
- (4) ミラー形状誤差を高精度に決定する手法として、グレーチング干渉計に基づく X 線波面計測法を開発し、差分成膜法を織り交ぜた補償光学システムを実施することを提案した。また、アライメントを調整するために、シングルショットで 2 次元のビーム形状を評価する手法が求められることを言及し、光のコヒーレント散乱により生じるスペックルを利用することを提案した。

第 3 章

グレーチング干渉計に基づく精密波面計測手法の開発

3.1 緒言

集光サイズ 10 nm 以下を達成するために、可視光干渉計で対応できないほど急峻なミラーの形状を 1 nm PV 以下の精度で計測する必要があることを第 2 章で述べた。そこで我々は、X 線集光波面を計測することで X 線ミラー上の形状誤差を高精度に決定できると考え、X 線グレーチング干渉計に着目した。本章ではまず X 線グレーチング干渉計の原理を述べる。次に絶対計測精度を高めるために、干渉計の構成要素である回折格子と X 線カメラのシステムエラーの抽出を行っている。そして、X 線カメラ由来のシステムエラーが無視できないことを確認したため、これを除去する手法を提案し、計算機シミュレーション、および SACLA において実証実験を行った結果を述べる。

3.2 Talbot 効果を利用したグレーチング干渉計

Talbot 効果とは、光が回折格子のような周期構造を透過したとき、一定距離(Talbot 距離)離れた位置に、周期構造に基づく強度分布(自己像)が形成される現象である[49]。本研究で用いるグレーチング干渉計は、本現象によって形成された自己像の強度変化を解析することにより、光学系の波面収差を取得する手法である。

一般的に用いられているグレーチング干渉計は、位相格子だけでなくカメラ直前に吸収格子を置き、自己像と吸収格子のモアレ縞を発生させることで波面の変化を可視化する。しかし、吸収格子は厚みの観点から作製が難しく、システムエラーの要因となりうる。ここで、sub-10 nm 集光光学系は開口数が多いことから、X 線カメラで直接撮影できるサイズに自己像の縞を拡大可能であるため、位相格子とカメラのみで干渉計を構築できる。以下に、Talbot 効果について波動光学に基づき詳述した後に、グレーチング干渉計について述べる。

3.2.1 Talbot 効果

$x_0 - y_0$ 平面に置かれた振幅回折格子を平面波照明した場合に、 $x - y$ 平面にて検出される波動場を考える（図 3.2.1.1）。回折格子から検出面までの距離を z ，回折格子の複素透過関数を T ，X 線の波長を λ とする。フレネル回折に基づく、検出器面における波動場 u は次のように表せる。

$$u(x, y; z) = \frac{1}{i\lambda z} \int T(x_0, y_0) \exp \left[\frac{i\pi}{\lambda z} \{ (x - x_0)^2 + (y - y_0)^2 \} \right] dx_0 dy_0. \quad (3.2.1.1)$$

これはコンボリューションの形である。また、1 次元回折格子（ロンキー回折格子：開口と遮蔽物との比が 1:1）の複素透過関数 T をフーリエ級数展開すると次のように表せる。

$$T(x) = \sum_n a_n \exp \left(i \frac{2\pi n}{p_0} x \right). \quad (3.2.1.2)$$

ここで a_n は n 次の高調波の振幅、 p_0 は回折格子の周期長を表す。1 次元回折格子について考えるので、 $u(x; z)$ と x 方向のみについて計算を進める。式(3.2.1.1)、(3.2.1.2)及び、コンボリューション定義に従い、

$$u(x; z) = \sum_n a_n \exp \left(-i \frac{\pi \lambda n^2}{p_0^2} z \right) \exp \left(i \frac{2\pi n}{p_0} x \right). \quad (3.2.1.3)$$

となる。ここで、 $z = z_T$ とし次のように置く。

$$z_T = \frac{mp_0^2}{\lambda}. \quad (3.2.1.4)$$

m が偶数の場合、 $u(x; z)$ は $T(x)$ と等しくなることがわかる。また m が奇数の場合は $u(x; z) = T(x + p_0/2)$ となり、回折格子と半周期ずれた自己像が観測される。この距離 z_T を Talbot 距離と呼ぶ。

ここまでは振幅回折格子について議論してきたが、位相回折格子においても Talbot 効果が生じることが知られており、 $\lambda/4$ 位相回折格子の場合は式(3.2.1.1)において z_T が

$$z_T = \left(m - \frac{1}{2} \right) \frac{p_0^2}{\lambda}. \quad m: \text{自然数} \quad (3.2.1.5)$$

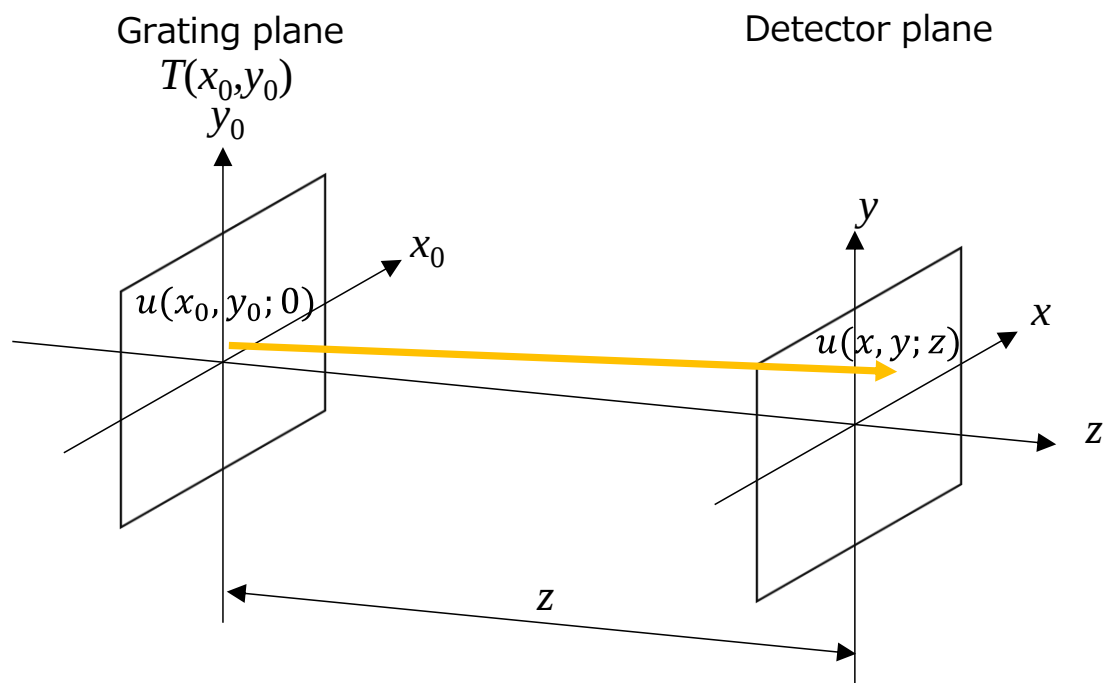


図 3.2.1.1 Talbot 効果の導出に関する図.

を満たす位置でコントラストの高い像が得られることが知られている[52]。また $\lambda/2$ 位相回折格子を用いた場合は

$$z = \left(m - \frac{1}{2}\right) \frac{p_0^2}{4\lambda}. \quad m: \text{自然数} \quad (3.2.1.6)$$

で自己像が形成される。これらの効果は分数 Talbot 効果と呼ばれている。また、検出器面上での強度パターン I は、

$$I(x; z) = |u(x; z)|^2 = \sum_l \sum_m a_l a_m^* \exp\left(-i\pi\lambda \frac{l^2 - m^2}{p_0^2} z\right) \exp\left(i2\pi \frac{l - m}{p_0} x\right). \quad (3.2.1.7)$$

であり、 $l = n + n'$ 、 $m = n'$ と置くと、

$$I(x; z) = \sum_n b_n \exp\left(i2\pi \frac{n}{p_0} x\right). \quad (3.2.1.8)$$

ただし、 b_n は強度の n 次フーリエ係数であって、

$$b_n = a_l a_m^* \exp\left(-i\pi\lambda \frac{l^2 - m^2}{p_0^2} z\right). \quad (3.2.1.9)$$

となる。

波面収差がある場合について x 方向のみで考える。1次元回折格子直前の波動場が位相誤差 $\Phi(x)$ を持っていたとする。この位相誤差は回折格子の n 次回折光上では $\Phi\left(x - \frac{nz\lambda}{p_0}\right)$ の通り横ずれを発生させる。 Φ の変化が穏やかであると仮定すると、

$$\Phi\left(x - \frac{n\lambda}{p_0} z\right) = \Phi(x) - \frac{n\lambda}{p_0} z \frac{\partial \Phi(x)}{\partial x}. \quad (3.2.1.10)$$

のように式変形できる。これを式(3.2.1.8)に代入すると、

$$I(x; z) = \sum_n b_n \exp\left[i2\pi \frac{n}{p_0} x - \frac{in\lambda}{p_0} z \frac{\partial \Phi(x)}{\partial x}\right]. \quad (3.2.1.11)$$

となる．本来は等間隔で現れる自己像の縞が、 $\frac{\partial\Phi(x)}{\partial x}$ によって変調されることが分かる．実際の自己像の縞において、局所的な縞の x 方向の横シフト量 $s(x)$ を定義するなら、

$$s(x) = \frac{\lambda}{2\pi} z \frac{\partial\Phi(x)}{\partial x}. \quad (3.2.1.12)$$

となる．既存干渉計のテクニックを駆使し、等間隔からの逸脱 $s(x)$ を検出できれば、 $\frac{\partial\Phi(x)}{\partial x}$ を決定することができる．

ここまでは平面波照明について考えてきたが、集光光学系に適応することが目的であるため、点光源（焦点）から放たれる球面波（コーンビームなど）についても同様に計算する（図 3.2.1.2）．点光源の位置を原点に取り、点光源から R 離れた位置に回折格子を置いた場合を考えると回折格子下流での波動場は以下のようにほとんど平面波の場合と同じ式となる[53]．

$$\begin{aligned} u(x; R+z) &= \sum_n a_n \exp\left(-i\pi\lambda \frac{n^2}{p_0^2} \frac{R}{R+z} z\right) \exp\left(i \frac{2\pi n}{p_0} \frac{R}{R+z} x\right) \\ &= \sum_n a_n \exp\left(-i\pi\lambda \frac{n^2}{p_0^2} \frac{R}{R+z} z\right) \exp\left[i \frac{2\pi n}{p_0} \left(\frac{x}{M}\right)\right]. \end{aligned} \quad (3.2.1.13)$$

平面波同様 x 方向のみの項を考え、 $\int$ の外側を無視した． $M\left(=\frac{R+z}{R}\right)$ は自己像の倍率を意味する．Talbot 距離は、

$$z_T = m \frac{p_0^2}{\lambda} \frac{R}{R - m p_0^2 / \lambda}. \quad (3.2.1.14)$$

である．同様に $\lambda/4$ 位相回折格子を挿入した場合の Talbot 距離は、

$$z_T' = (m - 1/2) \frac{p_0^2}{\lambda} \frac{R}{R - (m - 1/2) p_0^2 / \lambda}. \quad (m = 1, 2, \dots) \quad (3.2.1.15)$$

である．観察される自己像の周期 p_0' は $p_0' = M p_0$ となり、球面波に従って単純に拡大されることを意味する．そのため、我々の適応する光学系では、吸収格子を使うことなくカメラで自己像の縞を直接観察できる．

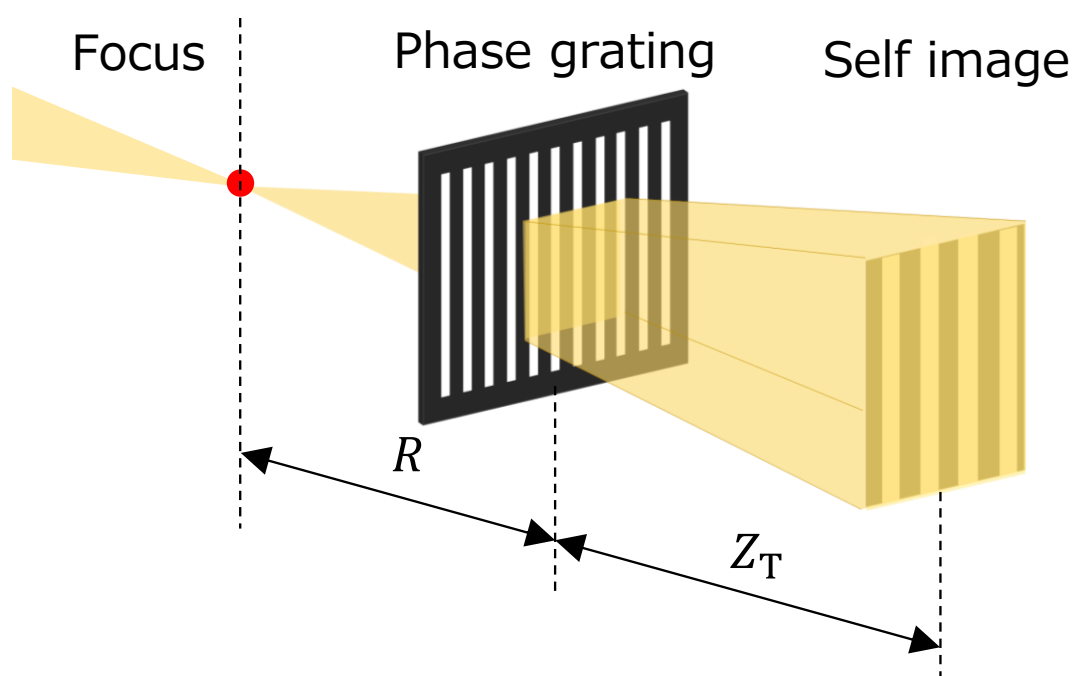


図 3.2.1.2 発散球面波における座標系.

また, 球面波上に位相誤差がある場合に検出される強度は式(3.2.1.11)と同様の操作によって,

$$I(x; R+z) \propto \sum_n b_n' \exp \left[i2\pi \frac{n}{p_0} \left(\frac{x}{M} \right) - \frac{in\lambda}{p_0} z \frac{\partial \Phi \left(\frac{x}{M} \right)}{\partial \left(\frac{x}{M} \right)} \right]. \quad (3.2.1.16)$$

を得ることができる. 以上のように拡大倍率を無視すれば平行ビームの時と同じ式となる.

3.2.2 縞解析法

式(3.2.1.12)より, 縞のシフト量を取得することで, 波面収差を算出できることがわかった. 以降, 撮影された自己像における縞の強度変調 (縞の位相) を $\psi(x, y)$ とする. 本項では, 取得された自己像から縞の位相を抽出する手法を述べる.

3.2.2.1 縞走査法

縞走査法では, 干渉縞をその法線方向に既知量変化させて得られる複数枚の画像を用いる[54]. 格子を走査する必要があるため, タイコグラフィなどの手法と同様に XFEL には不向きであるとも考えられるが, 焦点に試料を挿入する必要がなく, 比較的試料の破壊を気にせずに複数ショットの平均を取得することができるため, 結果的に強度ムラを抑えた安定な計測が可能である. また, 走査回数も他手法より少なく, 短時間で計測を完了することもメリットである.

格子周期を N (整数) 分割して自己像に位相シフト $2\pi/N$ を与え, 縞画像をサンプリングした場合, m 番目の縞画像強度 I_m は以下のように表せる.

$$I_m(x) = a(x) + b(x) \cos \left(\psi(x) + \frac{2\pi m}{N} \right). \quad (3.2.2.1.1)$$

a は背景強度分布, b はコントラストむらである. この時縞の位相 $\psi(x, y)$ は

$$\begin{aligned} \psi(x) &= \arg \left[\frac{1}{N} \sum_{m=0}^N I_m(x) \exp \left(\frac{-2\pi j \cdot m}{N} \right) \right] \\ &= \tan^{-1} \left[\frac{\sum_{m=0}^M I_m(x) \sin \left(\frac{2\pi m}{N} \right)}{\sum_{m=0}^N I_m(x) \cos \left(\frac{2\pi m}{N} \right)} \right]. \end{aligned} \quad (3.2.2.1.2)$$

で与えられる．また縞の位相は $-\pi \sim \pi$ の間で折りたたまれて得られるため，位相アンラップにより実際の縞の位相分布が得られる．アンラップされた後の縞の位相に係数をかけて積分することで波面収差を抽出することができる．

$$\begin{aligned} \frac{2\pi}{p_0}x - \frac{\lambda}{p_0}z \frac{\partial \Phi(x)}{\partial x} &= \psi(x). \\ \Phi(x) &= \frac{p_0}{z\lambda} \int \left(\frac{2\pi}{p_0}x - \psi(x) \right) dx. \end{aligned} \quad (3.2.2.1.3)$$

尚， $\frac{2\pi}{p_0}x$ は縞の存在を意味する項であるため，実際の解析では無視できる．

3.2.2.2 フーリエ変換法

フーリエ変換法とは，1枚の自己像をフーリエ変換し元画像の代表的な周波数成分(キャリアフリンジ)を検出，除去することにより，画像上の位相情報を抽出する手法である[55]．キャリアフリンジが高周波数であるほど計測の空間分解能が向上する（図 3.2.2.2.1）．本手法では1枚の画像から縞の位相分布が得られるため複数露光の必要がなく，理想的にはXFELのショットバイショットの波面を計測できる．縞のキャリアフリンジ周波数を f_0 ，縞の位相のズレ量を $\phi(x)$ とすると，縞の位相は下記の通り表される．

$$\begin{aligned} \psi(x) &= 2\pi f_0 x + \phi(x). \\ (\phi(x) &= -\frac{\lambda}{p_0}z \frac{\partial \Phi(x)}{\partial x}.) \end{aligned} \quad (3.2.2.2.1)$$

この時，画像強度分布は次のようになる．

$$\begin{aligned} I(x) &= a(x) + b(x) \cos\{2\pi f_0 x + \phi(x)\} \\ &= a(x) + b(x) \left\{ \frac{\exp[j\{2\pi f_0 x + \phi(x)\}] + \exp[-j\{2\pi f_0 x + \phi(x)\}]}{2} \right\} \\ &= a(x) + \frac{1}{2}b(x) \{e^{j2\pi f_0 x} e^{j\phi(x)} + e^{-j2\pi f_0 x} e^{-j\phi(x)}\} \\ &= a(x) + c(x)e^{-j2\pi f_0 x} + c^*(x)e^{j2\pi f_0 x} \quad \left(c(x) \equiv \frac{1}{2}b(x)e^{j\phi(x)} \right). \end{aligned} \quad (3.2.2.2.2)$$

これをフーリエ変換すると，フーリエ変換の基本的性質である線形性と周波数シフトにより次の通り表せる．（フーリエ変換とその逆変換をFT,および FT^{-1} とする．）

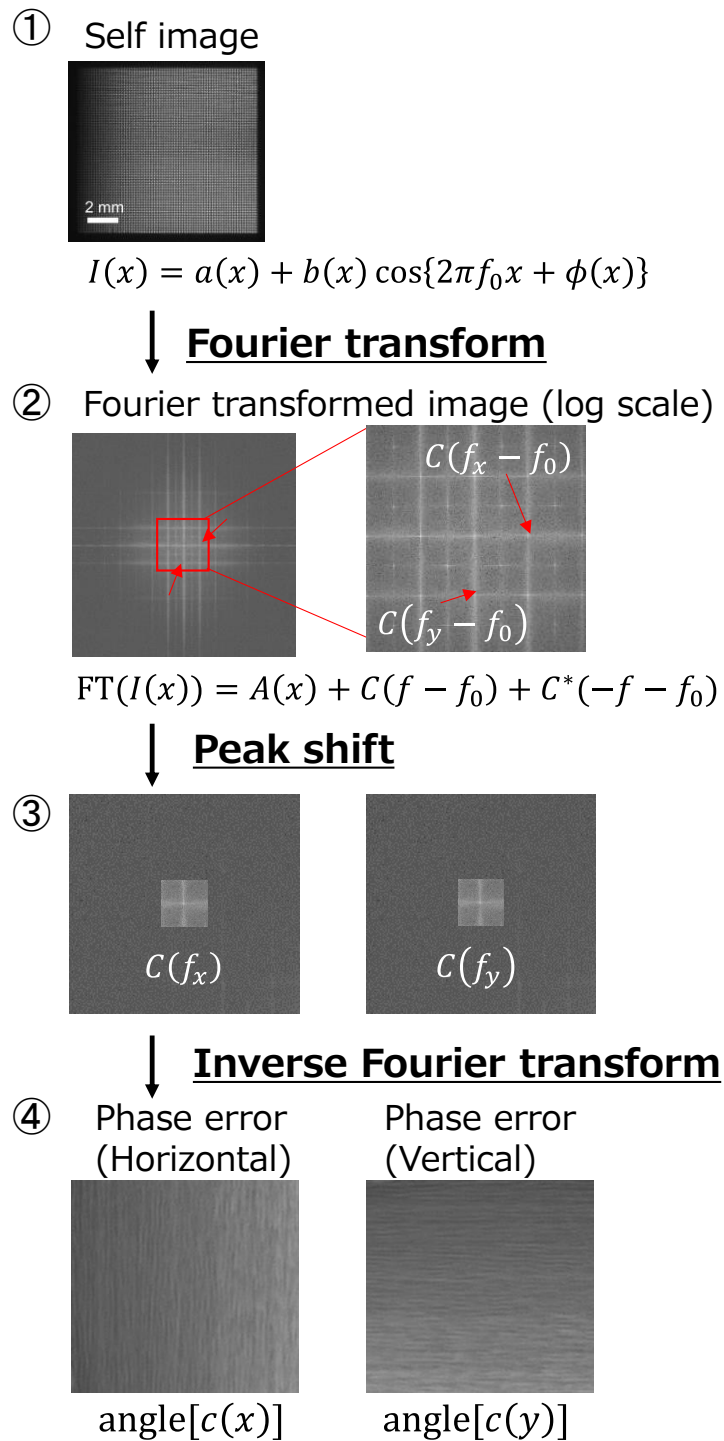


図 3.2.2.2.1 フーリエ変換法の概念図. ①画像を取得する. ②フーリエ変換する. ③キャリアフリンジの周波数が原点になるよう画像をシフトする. ④逆フーリエ変換し, 位相成分のみ抽出する.

$$\text{FT}(I(x)) = A(f) + C(f - f_0) + C^*(-f - f_0). \quad (3.2.2.2.3)$$

ここで、式(3.2.2.2.2)の第2項を取り出すことで、縞の位相の情報のみ抽出できる。これは実際の解析においては第1ピークを切り出すことに相当する。その後、キャリア周波数 f_0 分だけ原点方向にシフトすることでスペクトル $C(f)$ が得られる。 $C(f)$ を逆フーリエ変換することで $c(x)$ が得られることから、下記の通りとなる。

$$\phi(x) = \tan^{-1} \left[\frac{\text{Im}[c(x)]}{\text{Re}[c(x)]} \right]. \quad (3.2.2.2.4)$$

ここからの手順は縞操作法と同じであり、位相アンラップした後に定数をかけて積分することで、波面収差を求めることができる。

3.2.3 2次元積分法

2次元回折格子を用いたとき、縞の位相は垂直・水平方向ともに別々で得られるため、それぞれの微分情報を2次元的に積分する必要がある。本節では検討した2つの積分手法について述べる[56]。

3.2.3.1 Traditional Finite-difference-based Least-Squares Integration (TFLI)

TFLIでは、 x 方向の微分像 S^x と y 方向の微分像 S^y を用いて、積分像 W を図3.2.3.1.1で表すように定義する。これは行列として表記できる。

$$\begin{bmatrix} S_1^x \\ S_2^x \\ \vdots \\ S_M^x \\ S_1^y \\ S_2^y \\ \vdots \\ S_M^y \\ 0 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -1 & 1 & & & \\ & -1 & 1 & & \\ & & & \ddots & \\ -1 & & & 1 & \\ & -1 & & & 1 \\ & & & & \ddots \\ 1 & 1 & \dots & & \end{bmatrix} \begin{bmatrix} w_1 \\ w_2 \\ \vdots \\ w_N \end{bmatrix}. \quad (3.2.3.1.1)$$

式(3.2.3.1.1)は N 個の未知数 $w_1 \sim w_N$ に対して $2M + 1 (> N)$ の方程式が存在する連立方程式であり、 W は唯一解をもたないが、式(3.2.3.1.1)が誤差最小となるような W を、最小二乗法を用いて決定できる。

一方で実用上の課題として、配列の要素数が膨大となり一般的なPCに搭載されているメモリ量では扱いが難しいという点が挙げられる。例えば 700×700 の微分像を扱うとき、 A の

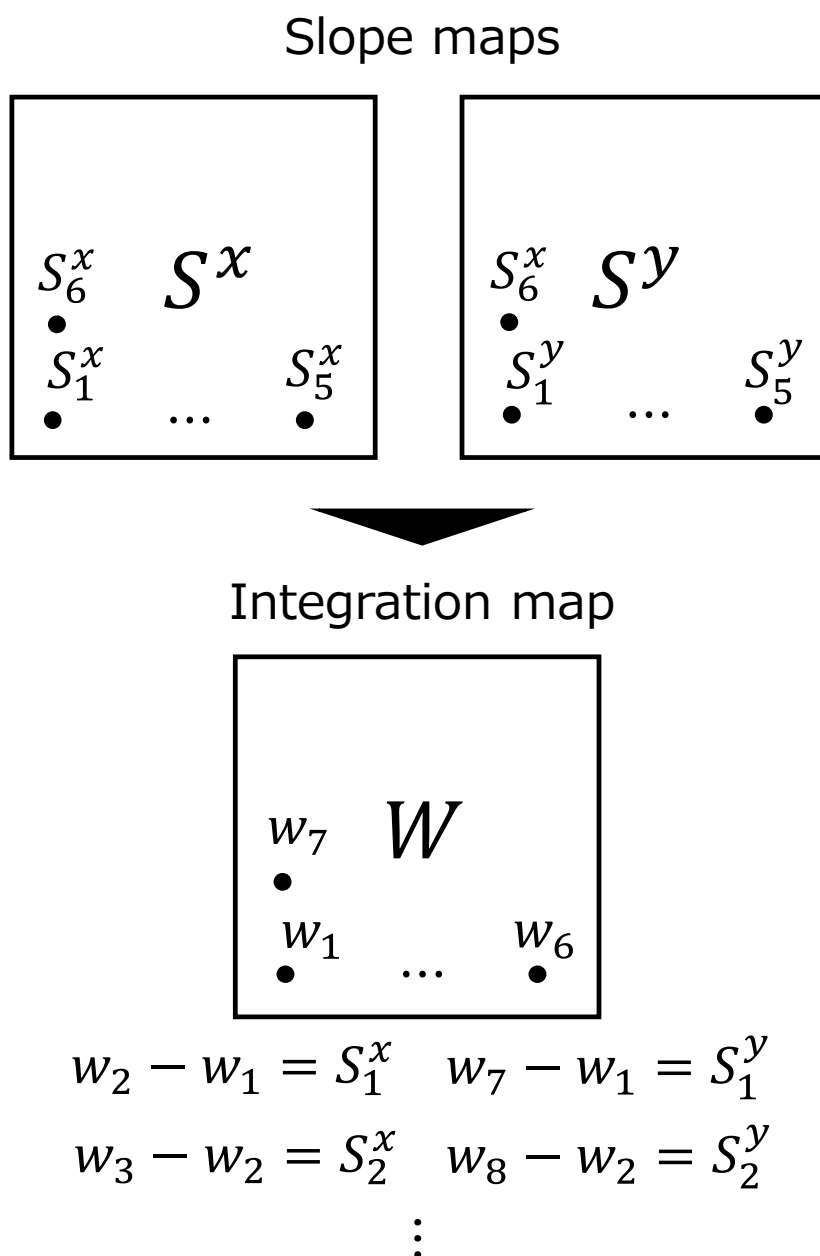


図 3.2.3.1.1 TFLI の概念図.

配列サイズは $(700^2+700^2) \times 700^2$, つまり 980000×490000 となる. 対応策として, `python` のライブラリ `scipy` に実装されているスパース行列(疎行列, `scipy.sparse`)に基づき, 配列 A を定義する手段がある. スパース行列を用いることで, 要素の多くが0であるような配列においてPCのメモリを大幅に節約できる.

3.2.3.2 Cosine Transform Integration (CTI)

コサイン変換積分(CTI)は数値積分においてよく利用されるフーリエ変換を利用した積分法である. 行列 S^x, S^y を x, y 方向の微分像 s^x, s^y を用いて

$$S^x(x, y) := \begin{bmatrix} -s^x(-x, -y) & -s^x(-x, y) \\ s^x(x, -y) & s^x(x, y) \end{bmatrix}. \quad (3.2.3.2.1)$$

$$S^y(x, y) := \begin{bmatrix} -s^y(-x, -y) & s^y(-x, y) \\ -s^y(x, -y) & s^y(x, y) \end{bmatrix}. \quad (3.2.3.2.2)$$

のように定義する. ここで使用する積分法により式(3.2.3.2.3) (CTI-C)もしくは式(3.2.3.2.4) (CTI-R)のように $Z(x, y)$ を定義する.

$$Z(x, y) = \text{FT}^{-1} \left\{ \frac{i \cdot 2\pi [f_x \text{FT}\{S^x(x, y)\} + f_y \text{FT}\{S^y(x, y)\}]}{-4\pi^2(f_x^2 + f_y^2)} \right\}. \quad (3.2.3.2.3)$$

$$Z(x, y) = \text{FT}^{-1} \left\{ \frac{F\{S^x(x, y) + i \cdot S^y(x, y)\}}{i \cdot 2\pi(f_x^2 + i \cdot f_y)} \right\}. \quad (3.2.3.2.4)$$

ここで $Z(x, y)$ は積分結果 $z(x, y)$ を用いて

$$Z(x, y) := \begin{bmatrix} z(-x, -y) & z(-x, y) \\ z(x, -y) & z(x, y) \end{bmatrix}. \quad (3.2.4.2.5)$$

と表されるため, $Z(x, y)$ から $z(x, y)$ を切り取ることで積分結果が得られる.

CTI による積分は, 計算がフーリエ変換のみであるため, TFLI に比べて非常に高速に計算が行える点が特徴である. そのため, 3.3 節以降に述べる実験の解析では縞走査法によって基本的に1方向の波面収差を評価し, 第6章では必要に応じてCTIを用いて2次元の波面収差を取得している.

3.3 実験セットアップ

SACLA Beam Line(BL) 3 Experimental Hatch(EH) 5 の sub-10 nm 集光光学系にて、グレーチング干渉計を構築した。光学配置を図 3.3.1 に、写真を図 3.3.2 に示した。前段の全反射 KB ミラーは 70 m 程上流の EH4 に設置されているため、写真にはない。グレーチング干渉計のパラメータを表 3.3.1 に示した。縞解析手法として、ノイズやミラー上のゴミの影響を比較的受けない縞走査法を取り入れたため、1 次元回折格子のみ使用した。実験条件として、X 線エネルギーは 9.1 keV に設定し、焦点位置でのパルスエネルギーは 11 μ J、パルス幅は 7 fs と見積もられていた[27,57-59]。応用実験の汎用性を考慮して、ミラー、及び試料は真空チャンバの中に設置した。試料を頻繁に交換する可能性を鑑みて、試料チャンバにのみロードロックチャンバを搭載した。ミラーチャンバの上にはビューポートが設置され、オートコリメータでそれぞれのミラーのアライメントをリアルタイムモニターできるようになっている。また、ミラーチャンバの下流側に自己像を撮影するための X 線カメラを設置した。カメラは空冷ファンが作動しているため別架台である。走査軸に関して、水平集光ミラーは x, y, z 軸の直線動作と、 θ_x, θ_z 軸の回転動作軸が備わっている（面内回転である θ_x 軸のみ手動、 θ_z 軸はラフ・ファインチューニングのために手動・自動の両方備わっている）が、垂直集光ミラーには x, y 軸と $\theta_x, \theta_y, \theta_z$ 軸で、 y 軸と θ_z 軸は手動であるため実験中にチャンバ外から動かせる軸が限られている。これは、自動ステージは振動源になりえ、特に垂直集光ミラーは入射角方向の振動に相当することから、できる限り走査軸の導入を抑えたためである。垂直集光ミラーの z 軸方向の調整は定盤の高さを変えて行った。本光学系は大開口数であるがゆえに、X 線カメラ位置での自己像の大きさに着目して実験パラメータを決める必要があり、広い視野、及び解析に耐えうるピクセルサイズを実現する X 線カメラとイメージングユニットを選択した（表 3.3.2, 3.3.3）。

図 3.3.3 は本光学系において撮像された自己像とラインプロファイルである。カメラは表 3.3.2 のものを使用している。XFEL のパルスを 30 ショット積算（1 秒露光）させており、自己像取得の際に光学系の上流に Si のアテネーターを 0.5 mm 導入している（透過率 7.2%）。アテネーターを抜くことで、シングルショットで同等以上の明るさをもつ自己像を撮影できるが、回折格子へのダメージの回避、及び自己像における強度ムラの平均化が、アテネーター挿入の目的である。明視野外でカウントされているバックグラウンドやノイズに対して、縞のビジビリティ（山谷の差）は十分大きいことから、解析可能な強度を得ていることを確認した。波面の解析には 4 ステップ（5 回計測）の縞走査法を用いた。表 3.3.1 に示しているとおり、回折格子の周期長は 2.5 μ m であることから、ステップサイズは 500 nm とした。また、自己像の一部がライン上に反射していない理由として、使用する集光ミラーの両端にマスク領域を設定しているためである。マスクを施すことにより、形状修正の際に波面計測の座標系とミラー上の座標系を正確に一致させることが可能となる。図 3.3.4 にマスクを施したときのミラーパラメータを示した。

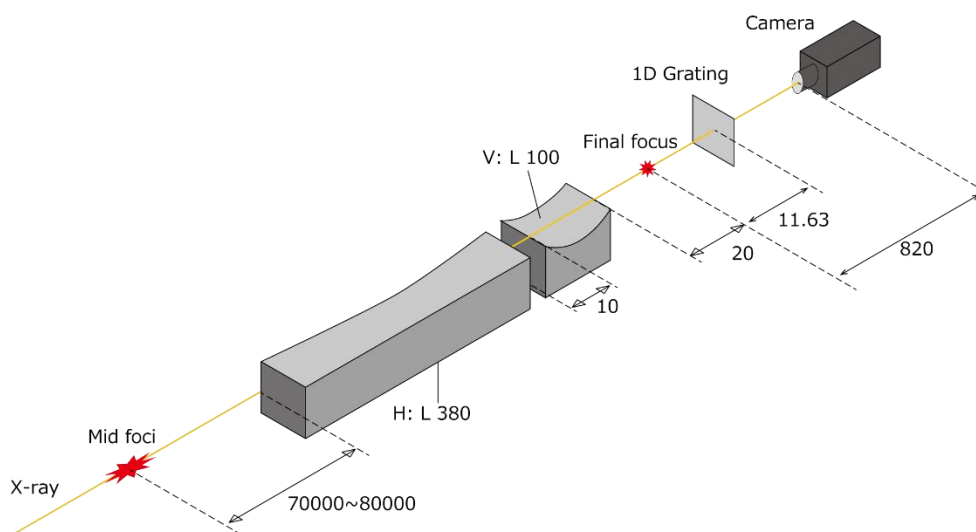


図 3.3.1 sub-10 nm 集光光学系における波面計測の光学配置図.

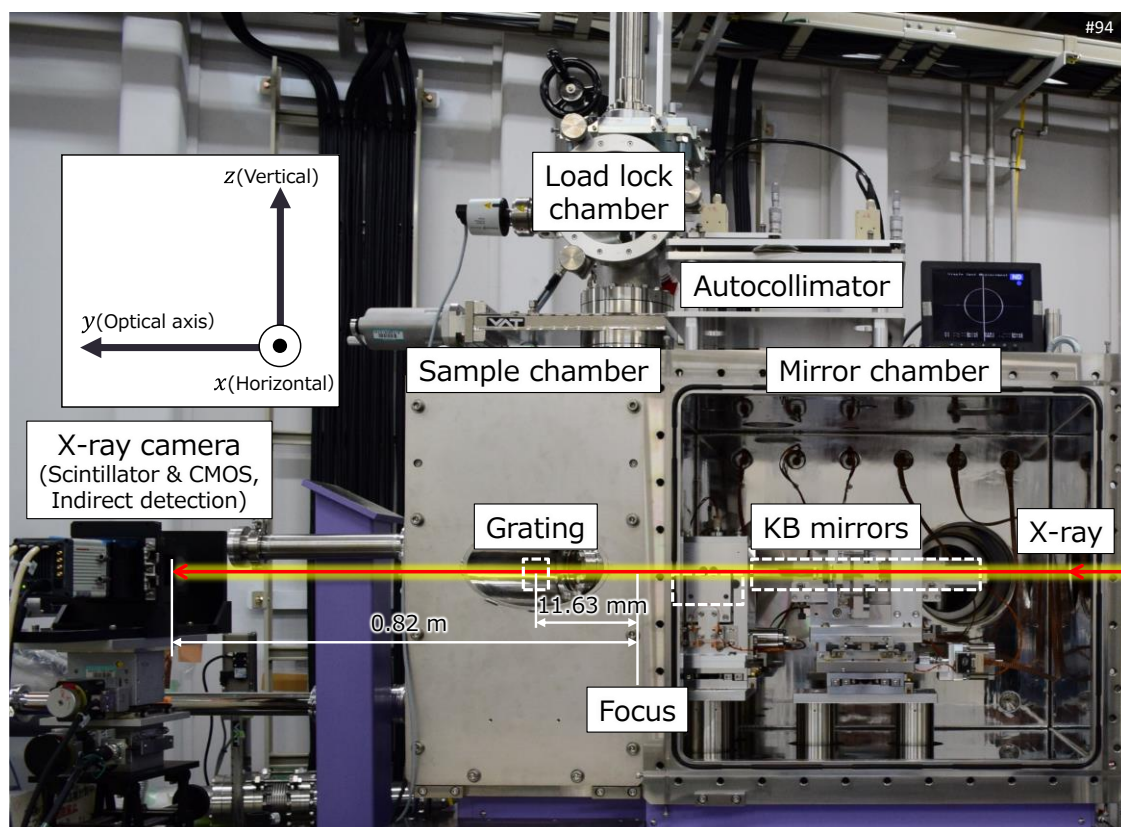


図 3.3.2 sub-10 nm 集光光学系の外観写真.

表 3.3.1 グレーチング干渉計のパラメータ.

Focus-Grating (mm)	11.63
Focus-Camera (m)	0.82
Grating period (μm)	2.5
Talbot order	1/4
Phase Shift	$\lambda/4$
Thickness (μm , Ta)	1.3

表 3.3.2 Setup 1 の構成.

CMOS camera	ORCA-Flash4.0 (浜松ホトニクス社製)
X-ray imaging unit	AA60 (同上) シンチレータ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$, 厚み 10 μm), 2 枚のレンズの組み合わせ
Pixel size (μm)	13
Pixel number	2048(V) $\times$ 2048(H)
Field of view (mm)	27 $\times$ 27

表 3.3.3 Setup 2 の構成.

CMOS camera	C9300-124 (浜松ホトニクス社製)
X-ray imaging unit	AA60 (同上) シンチレータ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$, 厚み 10 μm), 2 枚のレンズの組み合わせ
Pixel size (μm)	9
Pixel number	2672(V) $\times$ 4000(H)
Field of view (mm)	24 $\times$ 36

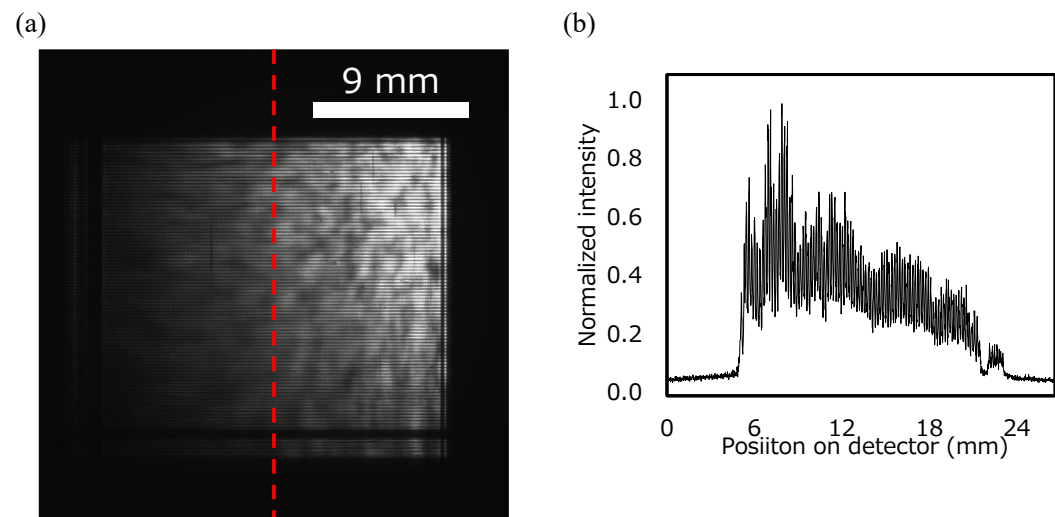


図 3.3.3 実験によって得た(a)自己像と, (b)自己像 (破線) のラインプロファイル.

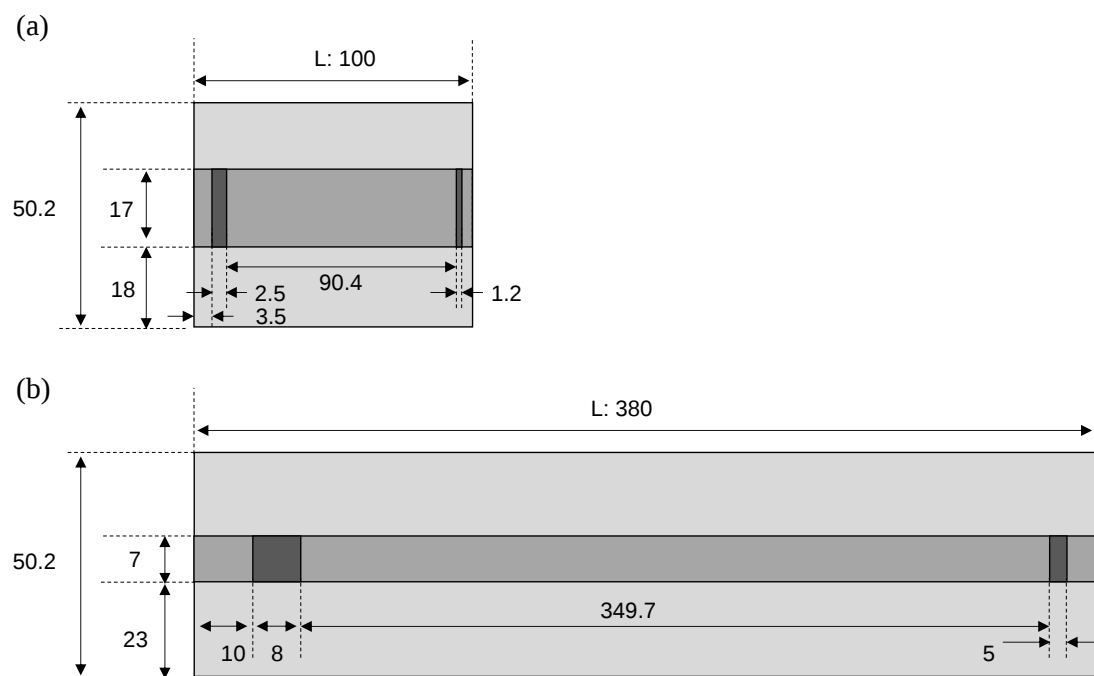


図 3.3.4 後段集光ミラーのパラメータとマスク領域. (a)垂直集光ミラー. (b)水平集光ミラー.

3.4 波面計測法の正当性の確認

グレーチング干渉計を用いて得られた波面収差値が信頼できることを確かめる必要がある。本項にて、①光源が不安定である SACLA において、再現性良く波面を計測可能であること、および②計算機シミュレーションで求めた入射角のミスアライメント由来の既知の波面収差を、実際に計測可能であることの2点について評価した。

3.4.1 波面計測の再現性

sub-10 nm 集光光学系の水平ミラーの波面を 18 回計測した。全ての計測結果の平均値を計算し、実測値から引き算したデータを元に再現性を評価した (図 3.4.1.1(a))。本評価において、コマ収差関数由来の 3 次関数成分は削除している。波面計測によって得られた結果の再現性を RMS 値で評価すると、0.175 rad RMS であった。Marechal criterion によると、波面収差値が 0.449 rad ($\lambda/14$) RMS 以下であれば回折限界集光できる。得られた結果は基準の半分以下であるため、致命的な問題がないことを確認できた。高空間周波数の結果が安定しなかったことについて、やはり光源の安定性が低く、ショットごとの強度分布の変調が原因であったと考えられる。高空間周波数成分を除去 (20 次関数の多項式 fitting) し、波面収差を評価したところ、0.090 rad RMS と半分以下になった。そのため、ミラーの形状誤差として評価すべき低～中周期の波面収差に関して、十分な精度で計測できると結論付けた。

3.4.2 入射角誤差を利用した波面計測の正当性の検証

構築したグレーチング干渉計が正しく波面収差を検出できることを確認するためには、既知の波面収差を与えて実測すればよい。我々はミラー入射角のミスアライメントにより生じるコマ収差に着目した。sub-10 nm 集光光学系の多層膜ミラーをそれぞれ 10 μ rad 変化させた際に発生するコマ収差を、Fresnel-Kirchhoff 回折積分に基づく 1 次元波動光学シミュレーションによって計算した。計算結果と比較するために、SACLA にてオートコリメータ (精度 0.01 分) で観測しつつそれぞれのミラーの入射角を約 10 μ rad ずつ 5 回変化させて波面を計測し、波面収差の変化量の平均値を算出した。尚、5 回走査した際の平均的な角度の変化量は、垂直方向 11.15 μ rad、水平方向 10.62 μ rad であった。実測された波面収差の変化量を 10 μ rad あたりに換算し、計算機シミュレーションの結果と比較した。その結果、垂直方向で 6 %、水平方向で 8 % 程度の誤差であり、良い一致を示していた (図 3.4.2.1)。尚、水平方向のコマ収差は垂直方向の 2 倍以上大きい、これは水平ミラーの長さが垂直ミラーに比べおよそ 4 倍であり、入射角が変化した際、理想的な楕円からのずれがより大きくなるためである。

以上より、我々の構築したグレーチング干渉計は、波面の相対的な変化を正しく計測できることを確認した。

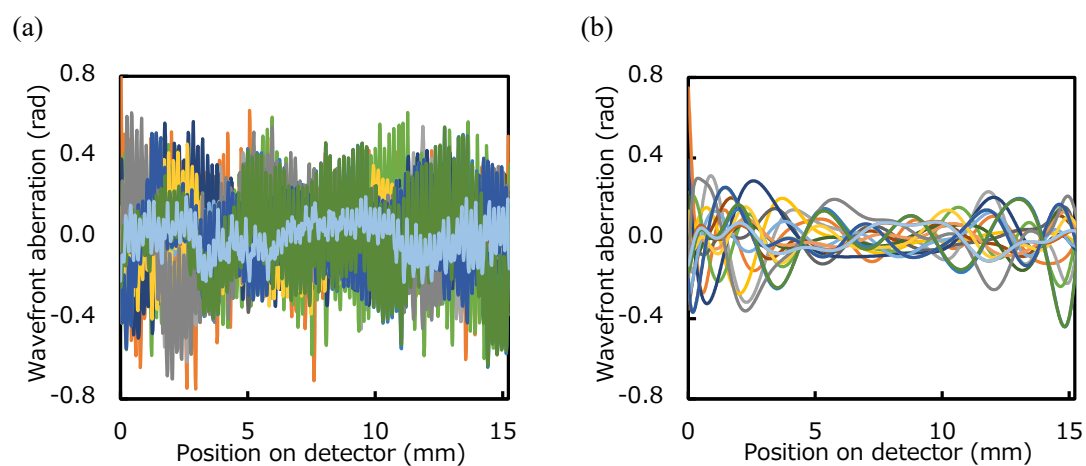


図 3.4.1.1 波面計測再現性の評価データ. 18 回計測している. (a)実測値, (b)実測値を 20 次関数の多項式でフィッティングして得られた結果.

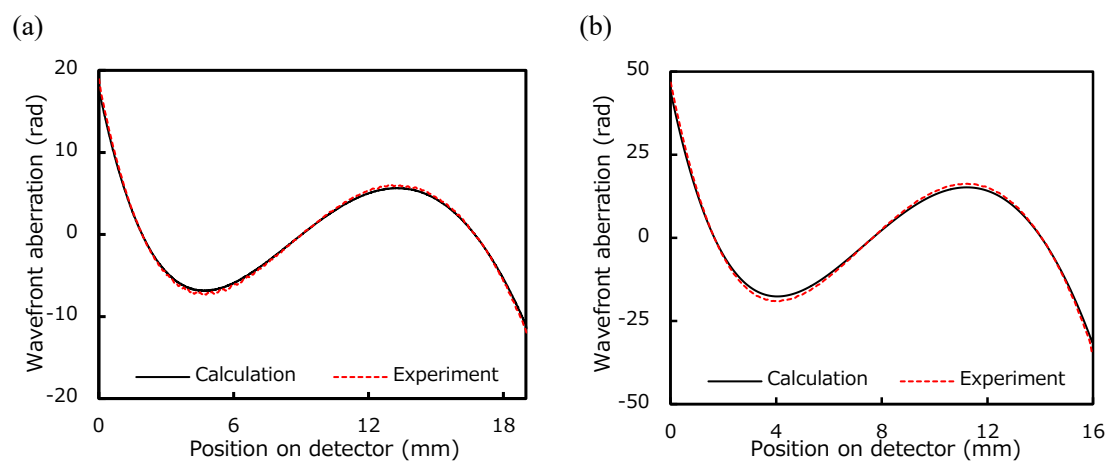


図 3.4.2.1 入射角を理想的な状態から $10\ \mu\text{rad}$ 変化させたときのコマ収差. (a)垂直方向, (b)水平方向. 横軸は波面計測の実験値にそろえている.

3.5 干渉計の絶対計測精度の評価

グレーチング干渉計は構成要素が少ないが、計測される波面収差にはミラーの形状誤差・ミスアライメントだけでなく、回折格子、及びX線カメラに由来するシステムエラーも含んでいる。ミラーの形状計測・修正のためには、ミラー由来の波面収差を絶対計測することが必要不可欠である。そこで本項では、構成要素のシステムエラーの抽出・除去について検討する。

3.5.1 システムエラーの抽出

3.5.1.1 構成要素のミスアライメント

回折格子およびカメラが光軸に対して傾いている場合、自己像の拡大倍率が撮影画像面内の座標に応じて変化するため、波面収差の解析結果にも誤差が生じると考えられる。特にNAの大きな光学系ではこの影響が大きくなると予想されるため、本項では構成要素のミスアライメントが波面に与える影響を調査する[60]。

3.5.1.1.1 幾何学的考察

図 3.5.1.1.1.1 の座標系において、まずカメラが光軸に対して θ_z 軸まわりに角度 α 傾いている場合を考える。干渉計のミスアライメントがない場合の自己像における縞の位相を $\psi(X)$ 、回折格子が角度 α 傾いた時を $\psi'(X)$ とすると、次の通り表せる。

$$\psi(X) = \frac{2\pi}{p_0 M} X + \phi(xM). \quad (3.5.1.1.1.1)$$

$$\psi'(X) = \frac{2\pi}{p_0 M} X' + \phi(xM). \quad (3.5.1.1.1.2)$$

$X = Mx$ で、 $\phi(x)$ は波面の位相誤差が与える縞の変調である。このような傾いたカメラに映る自己像は、倍率が場所によって変化し、歪むことが幾何学的に理解できる。この歪みを、カメラが傾いておらず X' 軸が歪んでいると見なすこともできる。この場合、歪んだ X' 軸は近軸近似を使って、

$$X' = \frac{M'(X)}{M} X = \left(1 - \frac{X\alpha}{R+z}\right) X. \quad (3.5.1.1.1.3)$$

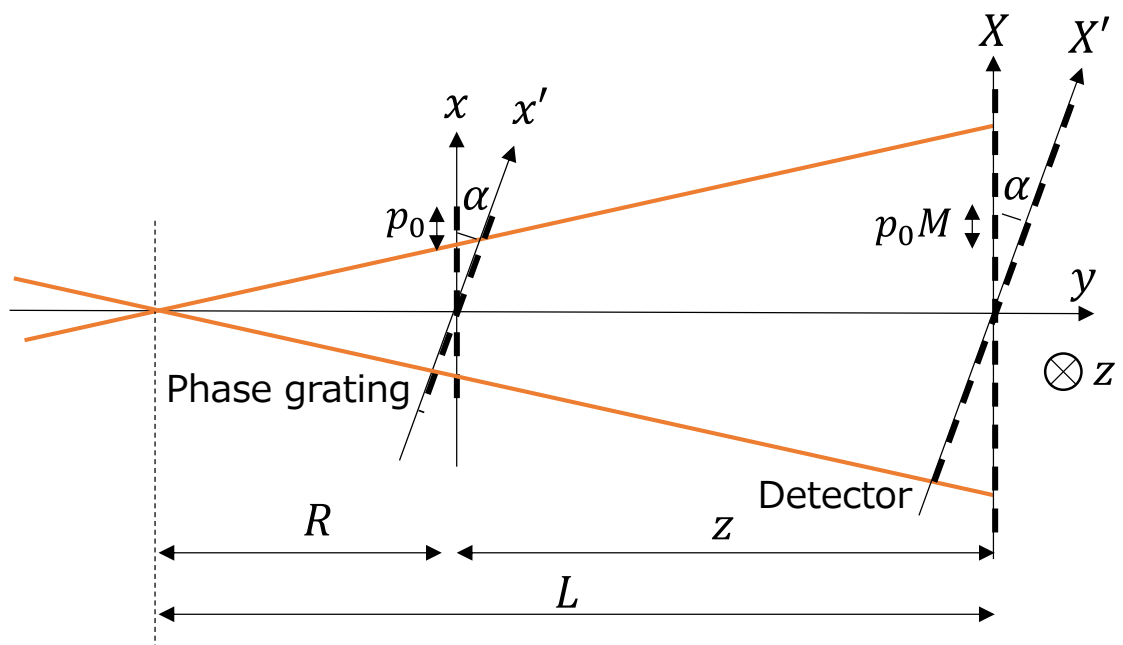


図 3.5.1.1.1.1 傾きを与える波面誤差の導出に関する座標系.

と表されるため式(3.5.1.1.1.2)は

$$\psi'(X) = \frac{2\pi}{p_0 M} \left(X + \frac{\alpha}{R+z} X^2 \right) + \phi(xM). \quad (3.5.1.1.1.4)$$

と書ける．ミスアライメントがない場合の波面の位相を $\Phi(x)$ ，傾きがある場合の波面の位相誤差 $\Phi'(x)$ とすると，両者の差 Φ_{error} は式(3.5.1.1.1.1)および式(3.5.1.1.1.4)より

$$\begin{aligned} \Phi_{\text{error}} = \Phi'(x) - \Phi(x) &= \frac{p_0 L}{z\lambda R} \int \{\psi'(X) - \psi(X)\} dx. \\ &= \frac{2\pi M}{z\lambda} \frac{\alpha}{3R} x^3. \end{aligned} \quad (3.5.1.1.1.5)$$

と表され，傾きの影響は波面に傾き角 α に比例する3次関数の誤差として現れることがわかる．

同様に，回折格子が傾いている場合を考える．

$$\psi(X) = \frac{2\pi}{p_0 M} X + \phi(xM). \quad (3.5.1.1.1.6)$$

$$\psi'(X) = \frac{2\pi}{p_0 M} X' + \phi(xM). \quad (3.5.1.1.1.7)$$

と表される． X' 軸における歪みが下記の通り書き変わる．

$$\begin{aligned} X' = \frac{M'(X)}{M} X &= \frac{\frac{R+z}{R+x\alpha}}{\frac{R+z}{R}} X = \frac{R}{R+x\alpha} X = \left(1 - \frac{x\alpha}{R}\right)^{-1} X \\ &\approx \left(1 + \frac{X\alpha}{R+z}\right) X. \end{aligned} \quad (3.5.1.1.1.8)$$

つまり，カメラが回転した場合と α の正負を逆にすれば同じ式となる． α の正負が逆転する理由は傾きによる倍率への影響が逆転するためである．

3.5.1.1.2 波動光学計算に基づく考察

次に、波動光学計算に基づく計算機シミュレーションにより、構成要素の傾きの影響を評価した。計算モデルとして、フレネルキルヒホッフの回折積分に基づき、薄いレンズによる集光を仮定した。各種パラメータは sub-10 nm 集光光学系に合わせた値とし、縞走査法のステップ数は 50 とした。その他の計算条件を表 3.5.1.1.2.1 に示した。回折格子、およびカメラの傾き角 α がそれぞれ 20 mrad の場合における波面を計算し、0 mrad との差分を図 3.5.1.1.2.1 に示した。また、黒線は式 (3.5.1.1.1.5) において α を 20 mrad とした場合における幾何光学に基づく計算結果であり、波動光学に基づく計算結果とよく一致した。また上述したとおり、回折格子およびカメラの傾きの影響は反転して現れることが確認された。

3.5.1.1.3 実験値との比較

実際に SACLA にてグレーチング干渉計を構築し、回折格子とカメラをそれぞれ 10 mrad 間隔で傾けつつ波面計測を行い、計算値と比較したところ、よく一致することが確認された (図 3.5.1.1.3.1)。尚、本検討のみ第 6 章にて扱う別の光学系で行った結果であるため、グラフ横軸のスケールが異なっている。カメラや回折格子を反射光に対して 10 mrad 以上間違えて配置しないと考えられるので、0.4 rad PV 以上の 3 次関数がシステムエラーとして生じないと推測される。しかしながら、僅かではあるがこれら構成要素のミスアライメント由来のシステムエラーと、ミラー入射角誤差由来のコマ収差は区別できない。そのため、グレーチング干渉計に基づき、ミラーの入射角を真に最適化することは困難であると考えられる。尚、本章における波面計測の目的は形状誤差の評価である。3 次関数の波面収差はミラー入射角の調整で補え、尚且つ 0.4 rad PV 以下とそもそもの絶対量が少ないことから、構成要素のミスアライメント由来のシステムエラーは無視できるものと結論付けた。

3.5.1.2 回折格子の作製精度

回折格子由来のシステムエラーとして、面内における作製誤差が考えられる。そこで、回折格子を上下左右方向に 300 μm ずつ移動させることで、X 線が照射する位置を変化させて波面計測を行い、得られた結果を比較した。Talbot 距離が 11.63 mm、光学系の開口数が 10 mrad 程度であることから、照明領域は 300 μm 以下であるため、格子内の完全に異なる位置を照明することになる。波面は 3 次関数成分を除去して評価した。概念図、および計測結果を図 3.5.1.2.1 に示した。尚、図 3.5.1.2.1(a) は回折格子が縦縞であるため、水平集光用のセットアップであり、垂直集光実験時は横縞の回折格子を用いている。再現性を評価した時と同様に、5 か所の計測結果の平均値を算出し、実測値から引き算した結果を示している。RMS 値で評価すると、垂直方向で 0.127 rad RMS、水平方向で 0.102 rad RMS であり、計測の再現性と同等のオーダーであった。よって、格子の作製精度に由来するシステムエラーは致命的でないことが確認された。

表 3.5.1.1.2.1 計算機シミュレーションのパラメータ.

X-ray Energy (eV)	9100
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	10
Grating period (μm)	3.0
Talbot order	1/8
Phase Shift	$\lambda/2$
Mesh	50000

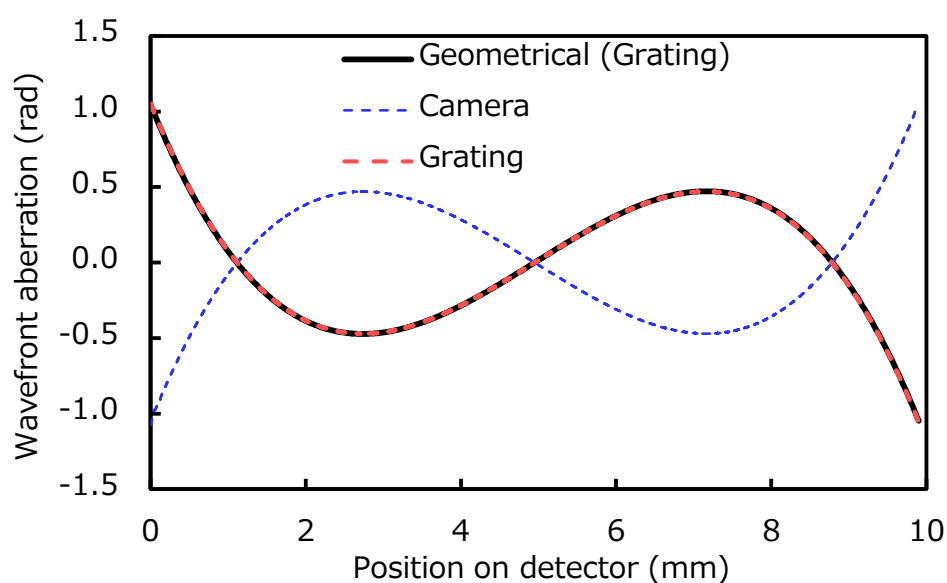


図 3.5.1.1.2.1 各構成要素が傾くことで生じる波面収差の計算機シミュレーション結果.

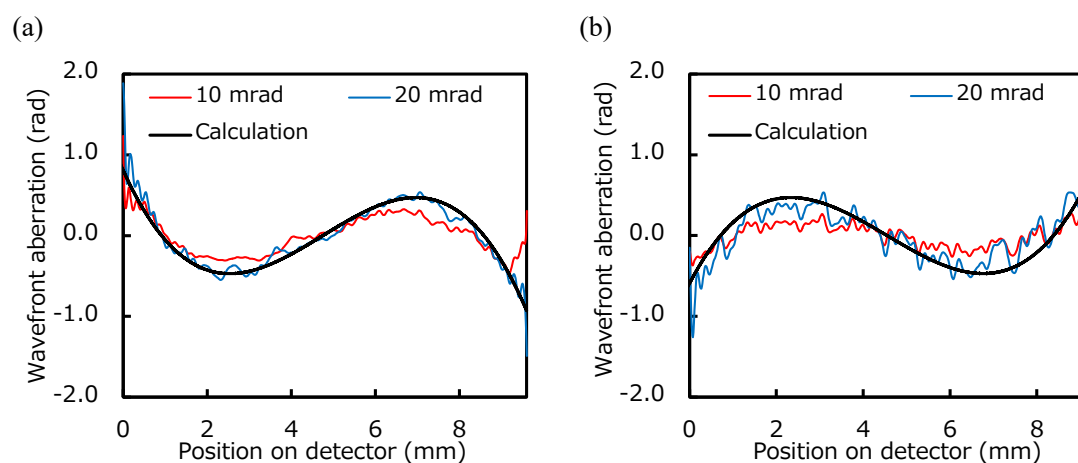
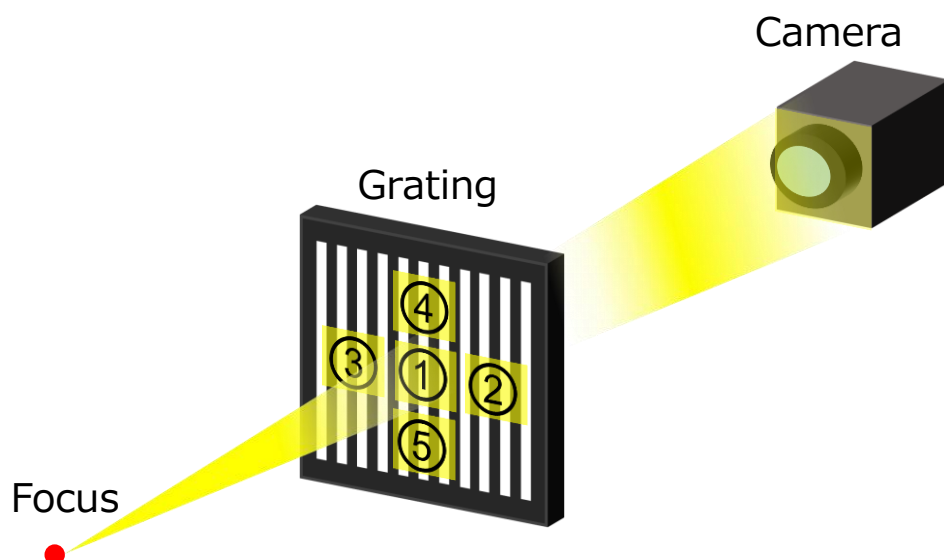
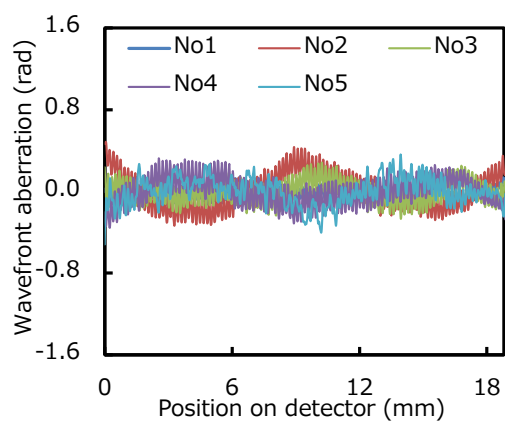


図 3.5.1.1.3.1 構成要素のミスアライメントにより生じる波面収差に関して，実験と計算機シミュレーション結果の比較．Calculation は 20 mrad．(a)垂直方向，(b)水平方向．

(a)



(b)



(c)

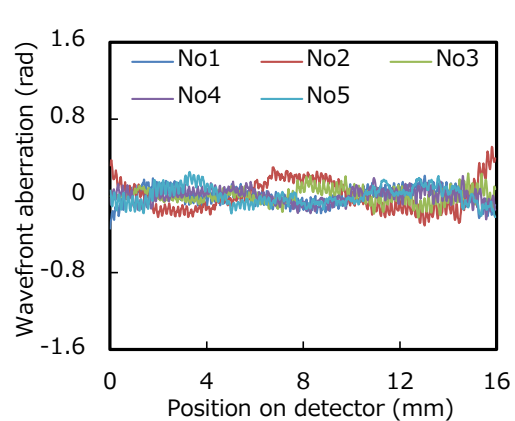


図 3.5.1.2.1 回折格子の作製精度の検討. 回折格子を移動させて, 各位置で波面を計測した. グラフは 5 箇所の波面計測結果の平均値からの差を示している. (a)概念図, (b)垂直方向, (c)水平方向.

3.5.1.3 X線カメラの作製精度

回折格子の場合と異なり，常にX線カメラの視野のほぼ全域を使うセットアップであるため，撮影領域を変化させて結果を比べることが難しい．そこで，2つの異なる間接撮像型X線カメラをそれぞれ図3.3.1の光学系に組み込み，それぞれのカメラで計測された波面収差値を比較した．実験に用いたカメラシステムは表3.3.2，3.3.3に示している．共通のイメージングユニット（AA60）は，厚み10 μm のP43シンチレータとレンズ(焦点距離210mm)，及び光軸変更用の直角プリズムで構築されている．計測の結果，垂直水平方向いずれにおいても無視できない量の違いが確認された（図3.5.1.3.1）．このことから，回折限界条件を満たすミラーを作製するためには，X線カメラのシステムエラーを除去することが必要不可欠であるとわかった．

3.5.2 精密波面計測手法の開発

現状グレーチング干渉計により計測されている波面収差には，ミラー由来の真の波面収差にカメラ由来のシステムエラーが足し合わされているため，ミラーの形状誤差を正確に評価するためにはこれらを分離しなければならない．そこで，カメラの画素位置を連続的に変えつつ自己像を撮影し，解析された複数の波面収差を元にシステムエラーを抽出・除去する手法を提案した（図3.5.2.1）[61]．本項にて計算機シミュレーション，及び実証実験を施行することによって，有用性を評価する．

3.5.2.1 概念と計算機シミュレーションによる評価

カメラの位置を一方向に移動させながら，波面収差（縞走査法の手順に従って自己像を撮影し波面を再構成したもの）を複数個取得する．カメラにシステムエラーがある場合，すべての波面情報は一致しない．この矛盾を抜き出すために，次に示すアルゴリズムで解析する．X線カメラの位置を x とし，計測する波面と同方向の1次元のみについて考える．カメラ内の m （計測波面の法線方向）， n （計測波面の同方向）番目のピクセルで検出される波面を $\varphi_{\text{meas}}(x, m, n)$ とした． n が x と同じ方向である．X線カメラが自己像を視野中心に捉える座標を $x = 0$ としたとき，

$$\varphi_{\text{meas}}(0, m, n) = \varphi_{\text{real}}(m, n) + \varphi_{\text{sys}}(m, n). \quad (3.5.2.1.1)$$

とする． $\varphi_{\text{real}}(m, n)$ は， $x = 0$ においてカメラの m, n 番目のピクセルで検出された真の波面収差であり， $\varphi_{\text{sys}}(m, n)$ はカメラの m, n 番目のピクセルが持つシステムエラー値である．次に，カメラ視野の k pixel 分だけカメラの位置を移動させた場合，干渉計で実測される波面収差は次のように表すことができる．

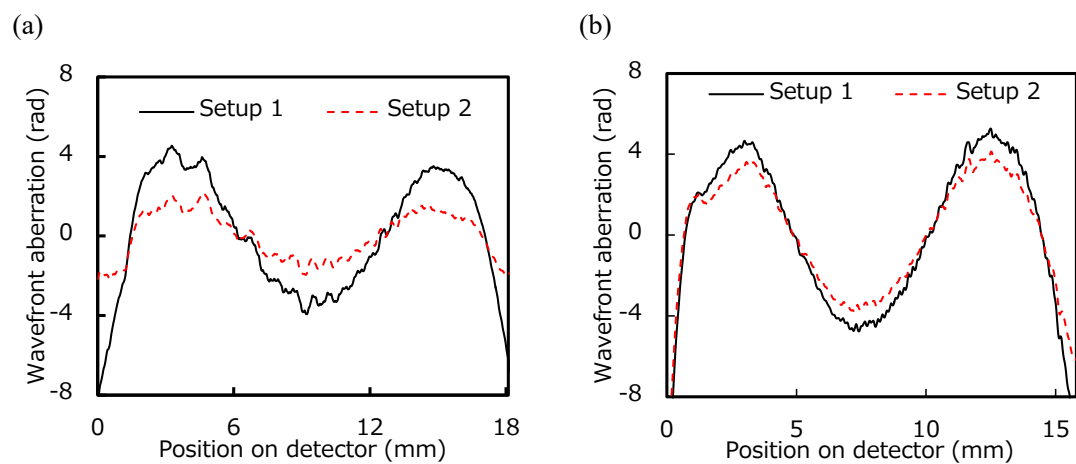


図 3.5.1.3.1 2つの X 線カメラを用いて波面計測を行った結果の比較. (a)垂直方向, (b)水平方向.

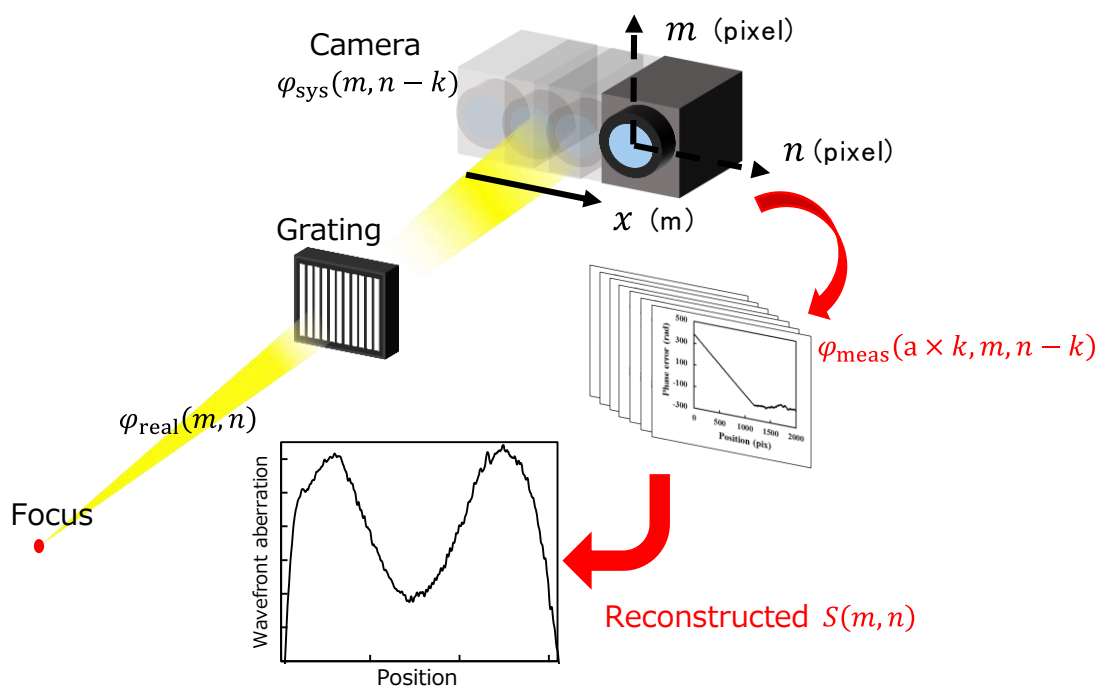


図 3.5.2.1 精密波面計測手法の概要図.

$$\varphi_{\text{meas}}(a \times k, m, n) = \varphi_{\text{real}}(m, n + k) + \varphi_{\text{sys}}(m, n). \quad (3.5.2.1.2)$$

a はカメラのピクセルサイズである．式(3.5.2.1.2)は真の波面収差の位置が変わることで，式(3.5.2.1.1)と異なる波面収差が計測されことを意味している．ここで，本手法で求めたい真の波面収差が変化しないように式変形すると，下記のようになる．

$$\varphi_{\text{meas}}(a \times k, m, n - k) = \varphi_{\text{real}}(m, n) + \varphi_{\text{sys}}(m, n - k). \quad (3.5.2.1.3)$$

1 pixel 間隔で真の波面収差の全領域を通過するようカメラを走査し，撮影画像を元に真の波面収差の位置が変わらないように計測結果を足し合わせたものを S とすると，以下のよう表される．

$$\begin{aligned} S(m, n) &= \sum_k \varphi_{\text{real}}(m, n) + \sum_k \varphi_{\text{sys}}(m, n - k) \\ &= K \cdot \varphi_{\text{real}}(m, n) + \text{constant}. \end{aligned} \quad (3.5.2.1.4)$$

K はカメラの走査回数+1 である．つまり，カメラの 1 pixel ピッチで走査することで，システムエラーの項を完全に定数とすることができる．波面収差における定数項は平面波の位相として理解できるため，ミラーの形状誤差を評価するにあたり完全に無視できる．よって， S を K で割ることで，真の波面収差である $\varphi_{\text{real}}(m, n)$ が求まる．しかしながら，X線カメラのピクセル数はおおよそ 2000 程度であり，放射光施設の限られた実験時間において 1 pixel ピッチで本手法を行うことは非現実的である．ここで，図 3.5.1.3.1 よりシステムエラーは緩やかに変化する関数と予想されるため，走査回数を少なくしても計測結果に致命的な影響を与えないと推測した．そこで，走査ステップを変化させた際に計測される波面収差値を計算機シミュレーションにより評価した（図 3.5.2.1.1）．システムエラーを有する 1 次元カメラ (400 pixel) で真の波面収差を計測する．この時，カメラを 80(10), 40(20), 16(50) pixel(step) ピッチで走査し，上述した手法を用いて真の波面収差を抽出した．シミュレーションの結果，20 steps の時点で計測される波面収差と実際の値の差を 0.1 rad PV に抑えられるとわかった．20 steps であれば時間的に実証可能と見積もられる．

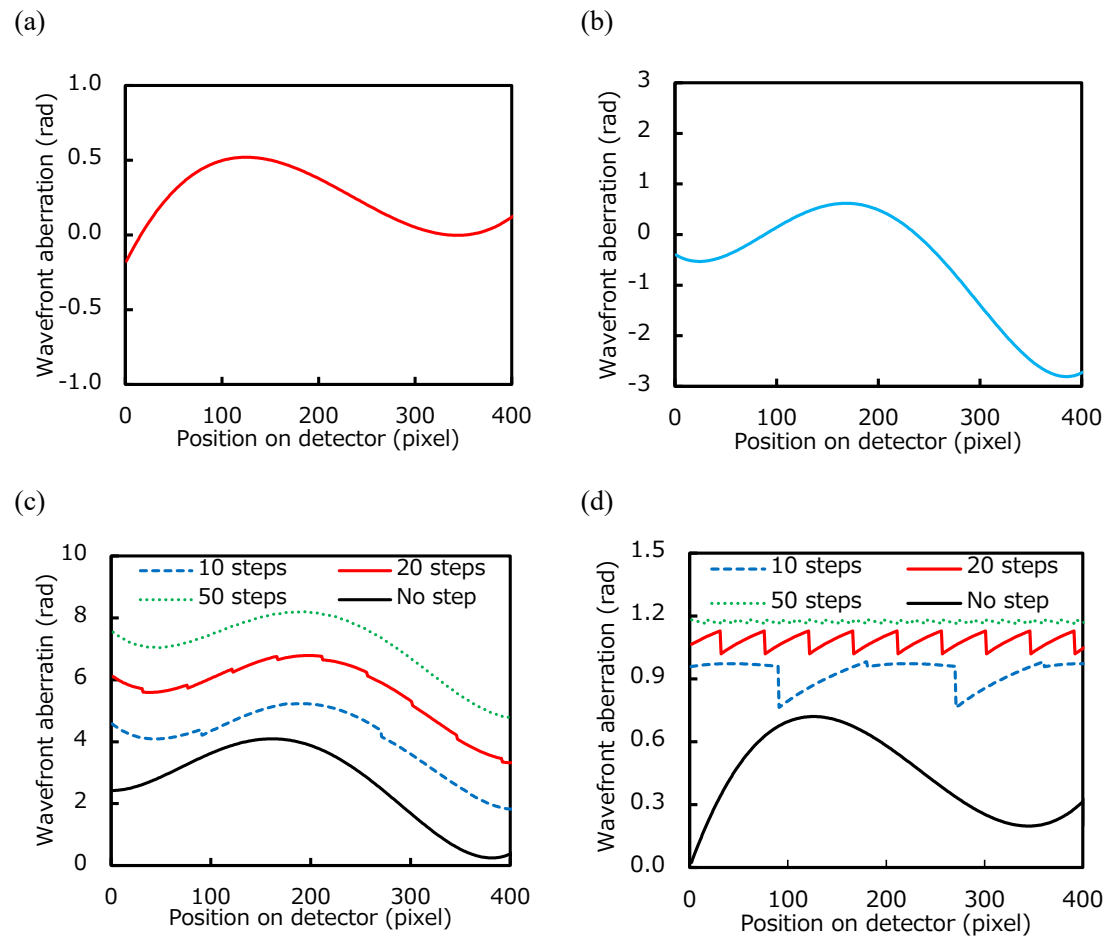


図 3.5.2.1.1 計算機シミュレーション結果. (a)システムエラー, (b)真の波面収差, (c)得られる波面, (d)(b)と(c)の差.

3.5.2.2 SPring-8, および SACLA における実証実験

SPring-8 の BL29XU EH4 (1 km 長尺ビームライン)にて適切な走査回数を調査するための実証実験を行った。尚、システムエラーを抽出する前に、計測された波面収差から 2 次関数成分はデータ上で引き算されており、3 次関数成分はほとんどコマ収差関数と等しいため、ミラーの入射角を調整することで除去されている。カメラには表 3.3.2 の組み合わせを用いた。カメラの走査回数を変えて実験を行い、中でも走査回数が多い 50 steps と 94 steps の平均値を計算し、そこからの誤差をプロットした (図 3.5.2.2.1)。走査回数が多い実測値は真の波面収差とほぼ等しいと考えられるため、図 3.5.2.2.1 は図 3.5.2.1.1(d)と同義である。横軸は X 線カメラ上の座標を示す。以上の結果より、ステップ回数が 20 以上において一つの答えに収束していた。また、測定時間はステップ回数が 20 のとき 15 分程度で予想通りであった。よって、今後はステップ回数を 20 として本手法を実施することに決めた。

次に SACLA の BL3 EH5 にて開発している sub-10 nm 集光システムに本手法を導入し、カメラ毎に計測された波面を図 3.5.2.2.2 に示した。図 3.5.1.3.1 を比較すると明らかに計測結果の矛盾が低減されており、必要精度である 1.57 rad PV (4 分の 1 波長, $\pi/2$) をはるかに下回っていたことから、絶対計測精度を高めた精密波面計測法の開発に成功したと結論付けた。形状誤差がだいたい大きな 4 次関数である理由は、波面計測の際に 3 次関数までの成分はミラーのアライメントで調整したことにある。つまり、ミラーの絶対形状誤差は、2 次、3 次も含めた大きな楕円形状であると考えられる。しかしながら、それらはミラーの NA など設計値を変えるほど致命的な量ではないため、基本的に波面における 4 次関数以上の成分をミラー形状誤差として修正すればよい。

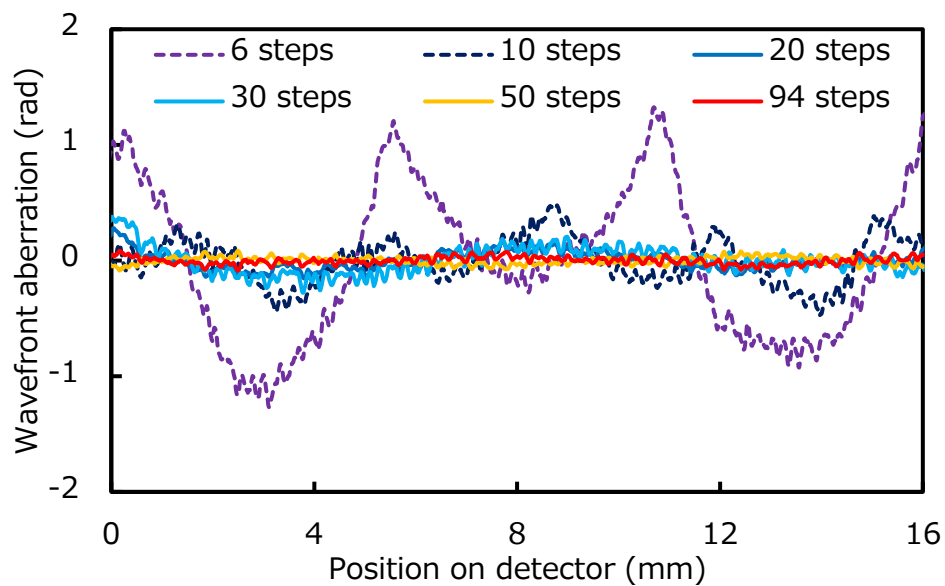


図 3.5.2.2.1 最適なステップサイズを調査した結果. $N=6, 10$ のとき, 値が収束していない.

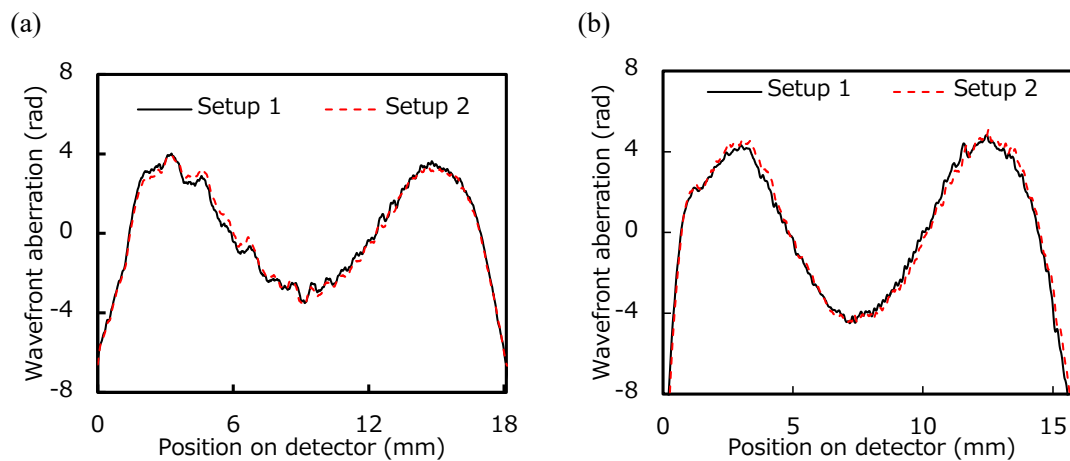


図 3.5.2.2.2 精密波面計測手法により得られた波面収差. (a)垂直方向, (b)水平方向.

3.6 結言

本章では、ミラー形状を高精度に修正するために、グレーチング干渉計に基づく X 線波面計測手法を構築し、絶対計測精度の向上を試みた。以下にまとめを示す。

- (1) グレーチング干渉計に基づく波面計測法について、Talbot 効果の原理や撮影された自己像の解析手法について述べた。
- (2) SACLA BL3 EH5 にて sub-10 nm 集光光学系を構築した。本光学系にグレーチング干渉計を導入するに際し、光学配置、及び干渉計のパラメータを決定した。また、実際に自己像を X 線カメラで取得し、干渉縞のビジビリティから解析可能であることを確認した。
- (3) 波面計測法の測定再現性について調査した所、0.090 rad RMS であったことから、十分な精度で多層膜ミラーの形状計測が可能であることを確認した。
- (4) 入射角誤差によって発生するコマ収差関数を利用することで、波面計測の正確さについて検討を行った。実際の計測結果と波動光学計算結果を比較したところ、精度良く波面を計測できているとわかった。
- (5) グレーチング干渉計におけるシステムエラーの評価をおこなった。まず、回折格子、及びカメラのミスアライメントが波面に及ぼす影響を検討した。その結果、数 mrad 程度の誤差は許容できることを確認した。また、回折格子の照明位置を変えて波面計測を行ったが、ほとんど結果は変わらず、精度よく作製されていることが確認できた。
- (6) 次に、X 線カメラにシステムエラーが存在するかを確かめるため、2 種類の X 線カメラで波面計測を行ったところ、2.0 rad PV 以上の致命的な差が生じていた。つまり、カメラ由来のシステムエラーを取り除く手法が必要であるとわかった。
- (7) X 線カメラが発生させるシステムエラーは、各素子に取り付けられているレンズやミラーの歪み、及びミスアライメントが原因だと考えた。そこでカメラの画素位置を連続的に変えて同一の波面誤差を計測することによって、真の波面誤差とシステムエラーを必要な精度で分離する方法を提案した。適切な走査回数を計算機シミュレーション及び実証実験にて求めたところ、20 回以上で十分であると分かった。実際に 2 つの X 線カメラで本手法を実施したところ、得られる波面が一致することを確認した。以上より、システムエラーフリーな精密波面計測手法が完成した。

第 4 章

差分成膜法による多層膜ミラーの形状修正

4.1 緒言

第 3 章にて、グレーチング干渉計に基づく精密波面計測手法を開発し、ミラー形状誤差由来の波面収差の絶対計測に成功した。回折限界条件下でサイズ 10 nm 集光を達成するために、計測結果に基づき形状を修正する必要がある。本章ではまず、これまでに開発されてきた大型成膜装置を紹介し、形状修正手法である差分成膜法の手順、および成膜結果について詳述する。合わせて、多層膜作製の手順、および成膜精度の検証結果についても述べる。そして、差分成膜されたミラーを用いて SACLA にて再び行った実験結果を検証し、集光達成に向けた今後の方針を示す。

4.2 成膜装置

図 4.2.1 の(a)に成膜装置全体の模式図、(b)に外観写真を示した。XFEL の利用開始に伴いミラーの長尺化が進んだことを受け(例えば sub-10nm 集光光学系の前段ミラーは 400 mm, 後段水平集光ミラーは 380 mm), 新たに開発された比較的大型の成膜装置であり、全長約 500 mm のミラーまで対応可能である。本装置における重要な構成要素として、基板キャリア (substrate carrier) の精密動作機構があげられる。指定された速度情報に基づく基板の正確な往復動作 (数値制御) により、高精度な差分成膜やグレーデッド多層膜の形成が可能となる。本装置には AC サーボモーター、ボールねじ、ベローズ等により構成される 1 次元往復動作機構が搭載されている。レール上に取り付けられた位置センサーを用いた原点合わせにより、0.1 mm 以内の精度による基板の位置合わせが可能である。メインチャンバーにはターボ分子ポンプが取り付けられており、平均的に 10^{-5} Pa 程度まで真空引きできる。

一般的に多層膜作製法として、電子ビーム蒸着法[62], MBE (Molecular Beam Epitaxy)法[63], プラズマ援用 CVD (Chemical Vapor Deposition)法, レーザー蒸着法, 及び各種のスパッタリング法が用いられている[64]。本装置は多層膜作製にも用いることから、成膜法と多層膜の品質との関係を考慮して、マグネトロンスパッタリング法を採用している[65]。

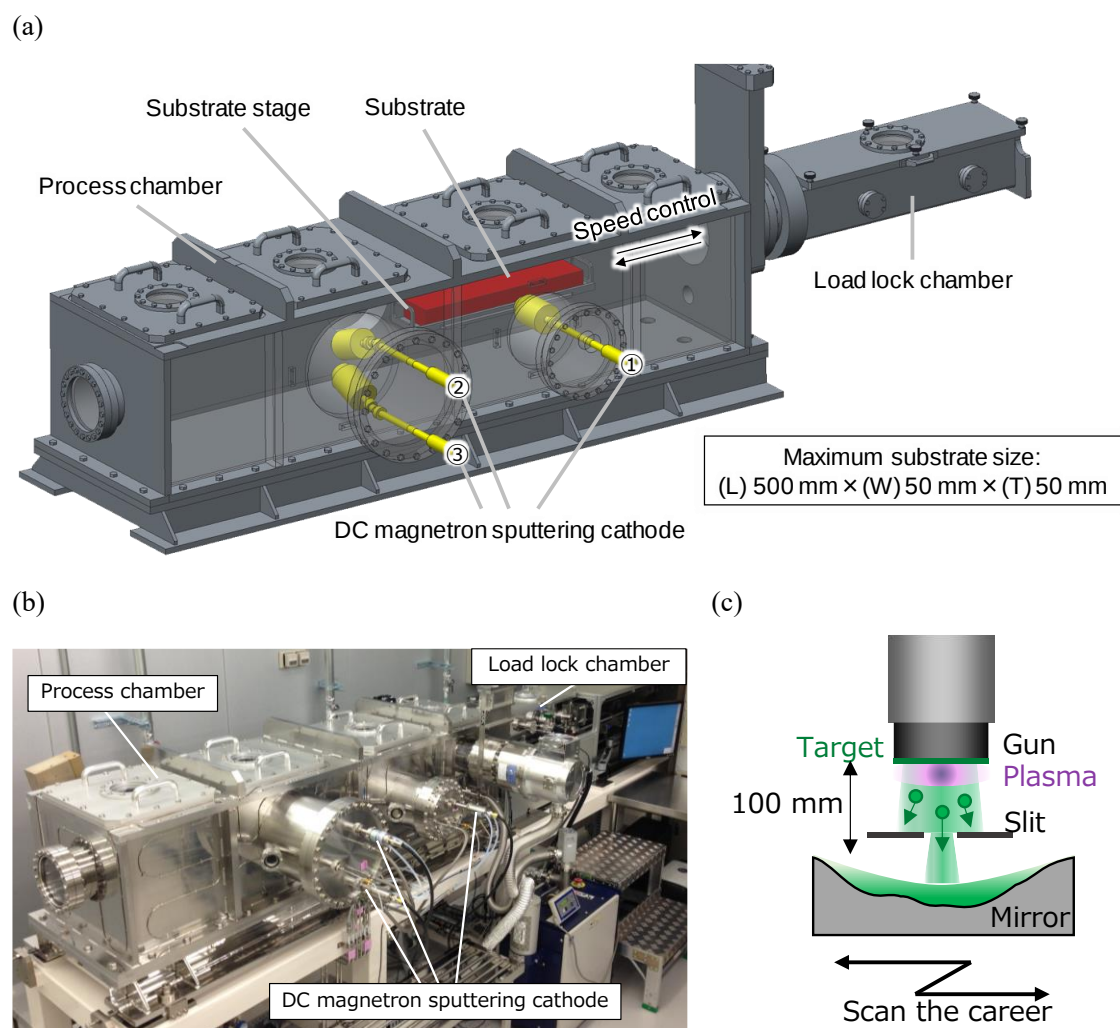


図 4.2.1 開発された長尺ミラー用大型成膜装置. (a)装置の全体の模式図. (b)装置の外観写真. (c)スパッタガン周りの模式図.

マグネトロンスパッタリング法は負イオンや二次電子を磁界で捕らえられるため、基材・基板温度の上昇が抑えられることや、他のスパッタリング手法と比較して高成膜速度が得られることから、工業的にも薄膜作製における主流技術となっている[66, 67]。これまでに DC 電源、または RF 電源を用いた 2 つのプロセスが開発されており、本装置では DC 電源を採用している。図 4.2.1 の(c)にスパッタガン周りの模式図を示した。スパッタガンに成膜材料（ターゲット）が取り付けられ、導入された Ar ガスをプラズマ化させてスパッタリングする。ターゲットー成膜対象距離は 100 mm 程度で、ミラーの近くに成膜領域を制限するスリットが取り付けられている。このような構造のスパッタガンが 3 基搭載されており、①～③のターゲットを変えることで多層膜が作製可能となるだけでなく、②③にそれぞれ Pt, C を装着しミキシング成膜することで、Pt の結晶化を抑制した多層膜を作製できる[68]。こうして作られた多層膜は極限まで界面粗さが抑えられ、理想的な反射率を示す。しかしながら、重元素層と軽元素層間の電子密度差が小さくなるため、高い反射率を得るためには層数を増やす必要がある。本研究では、簡単のために単純な Pt/C 多層膜を用いている。

4.3 差分成膜法

差分成膜法は数値制御成膜に基づく形状修正手法のことで[50, 51]、基板キャリアの走査速度をコントロールすることにより任意の形状を成膜できる。一般的に形状修正に用いられる各種加工手法に対するメリットは、単位時間当たりの成膜レートが加工対象によらず一定かつ比較的長時間安定していることにある。そのため、一度単位成膜痕を計測し、テスト試料を用いて目標形状の形成を確認できれば、高い精度で本番ミラーの形状修正を完了できる。本項では差分成膜の手順と、実証実験の結果を詳述する。

4.3.1 成膜準備

4.3.1.1 幾何光学に基づいた目標成膜形状の決定方法

まず、計測された波面収差をミラーの形状誤差へと変換する必要があり、波面計測時に用いたカメラで観察する反射光の座標と、それに対応するミラー面内の位置関係を把握する必要がある。評価手段として、幾何光学に基づいた光線追跡計算を紹介する。光を幾何学的な線（ベクトル）とみなし、反射の原理に従い進行方向が変化する光線の軌跡を計算する手法である。ミラーの反射光を追跡したいので反射のみ記述する。図 4.3.1.1.1 において、位置ベクトル $\mathbf{r}_0$ から放たれた光が、法線ベクトル $\mathbf{n}$ 、位置ベクトル $\mathbf{r}_m$ のミラー面で反射する系を考えると、入射光の方向余弦 $\mathbf{u}$ は

$$\mathbf{u} = \frac{\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_0}{|\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_0|} \quad (4.3.1.1.1)$$

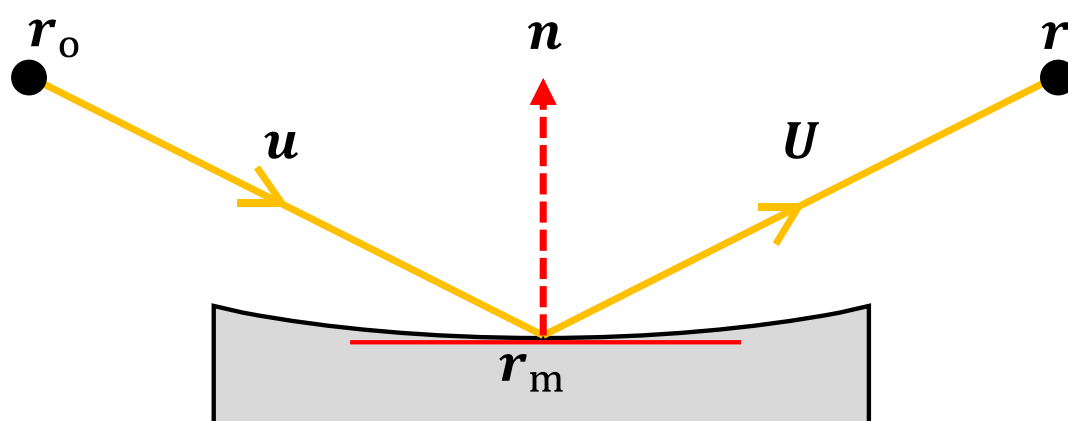


図 4.3.1.1.1 ミラー反射面における，光線追跡計算のモデル．

である。ミラー面で反射した光の方向余弦 U は、

$$U = u - 2(u \cdot n)n \quad (4.3.1.1.2)$$

で表せる。よって r_m で反射した光は、次の式に従ってカメラ位置にたどり着く。

$$r = r_m + tU \quad (4.3.1.1.3)$$

本計算に基づき得られた、sub-10 nm 集光光学系におけるカメラ上の位置とミラー上の位置の関係を図 4.3.1.1.2 に示した。有効領域外からの反射光は計算に加味していない。斜入射角分布のように、ミラー上の座標に対して線形的な関係ではないことがわかる。本結果と斜入射角分布、及び式 (2.2.1.5) に基づき、多層膜ミラー上の形状誤差量を計算した結果を図 4.3.1.1.3 に示した。尚、形状修正プロセスを鑑み、有効領域外は一定値とした。両ミラーともに、10~15 nm PV ほどの形状誤差を有しているとわかった。また、斜入射角分布の関係で、グラフの右側になるにつれて形状誤差は小さくなるが空間周波数が高くなる。回折限界条件に求められる精度は 1 nm PV であるため、もちろん全体的に修正しなければならない。

4.3.1.2 単位成膜痕の評価

図 4.2.1(c)におけるスパッタガン手前のスリットの大きさを変えることで成膜領域を任意に調整できる。狭くするほど空間分解能は向上するが、一度に成膜できる体積が減るため成膜時間が長くなる。マグネトロンスパッタの欠点は、ターゲットの一部分が集中的にスパッタリングされてしまうため、ターゲットの消耗が早いことにある。そのためプロセス時間の長期化は安定した形状修正や成膜結果のフィードバックを困難にする。本実験ではミラー長手方向（基板キャリアの走査方向）に 2 mm、短手方向 20 mm 幅のスリットを導入した。差分成膜を行うためには、成膜装置の基板キャリアの走査速度分布を決定する必要がある。単位時間当たりの成膜量（単位成膜痕）を計測しなければならない。そこで、位置を固定したガラス平面基板上に一定時間成膜を行い、フィゾー干渉計(Zygo GPI-XP/D)を用いて計測することで、①単位成膜痕の形状、及び②基板内における成膜座標の決定を遂行した。干渉計で正確な計測を行うためには、薄膜、及び基板表面における材料由来の反射率違いや、薄膜-基板界面からの反射光の影響を打ち消さなければならない。そのため、前もってガラス基板上全面に差分成膜で用いる材料である Pt の均一膜を十分な厚さ(50~100 nm 程度)だけ成膜し（以降成膜されたガラス基板面を前面とする）、前面をフィゾー干渉計で計測した（この計測データを data_0 とする）。同材料であるため前面と薄膜表面の反射率の差はなく、薄膜-前面界面からの反射もほとんど起こらない。また、Pt は反射率が高いため、前面-基板界面、及び基板裏面からの反射も除去できる。単位成膜痕の評価は、前面上に一定時間成

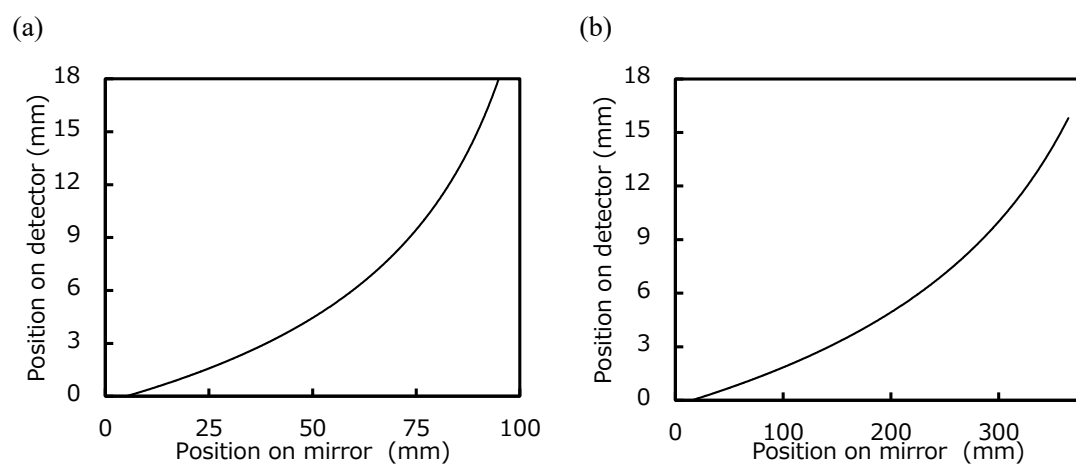


図 4.3.1.1.2 ミラー上の位置と反射光のカメラ上の位置の対応関係. (a)垂直方向, (b)水平方向.

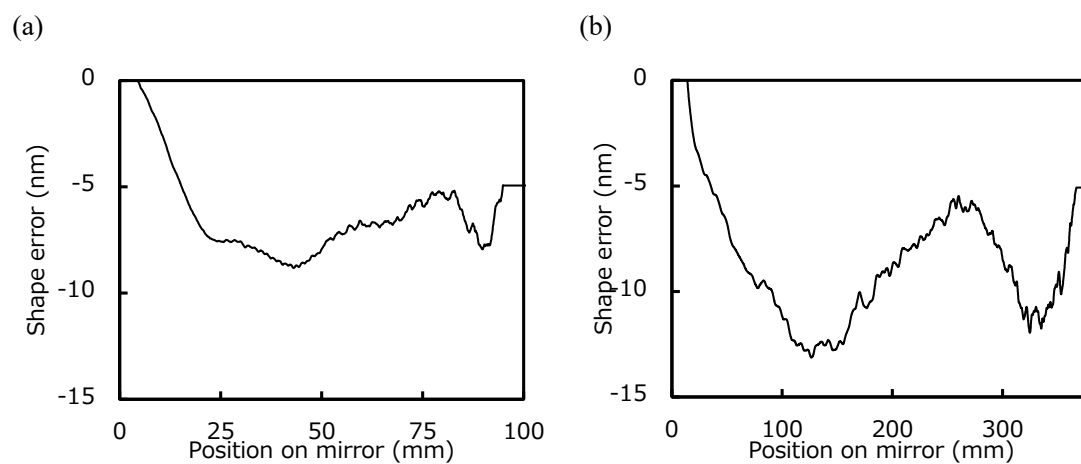


図 4.3.1.1.3 波面計測法によって求めた多層膜ミラーの形状誤差. (a)垂直方向, (b)水平方向.

膜を行いフィゾー干渉計で計測し (data_1), data_1 と data_0 の差分を計算することで実施した. 図 4.3.1.2.1 に, 計測された単位成膜痕, 表 4.3.1.2.1 に成膜時のパラメータを示す. ガラス基板には $60 \times 80 \times 12 \text{ mm}^3$ (シグマ光機, OFPXP-6080R12-10) を用いた. 成膜痕の半値幅は 2.6 mm であった. スリットの裏側にスパッタされた原子が回り込んだ影響で, スリットサイズよりも幅が広がっている. 要因として, ①ターゲットのサイズがスリットサイズに対して大きい, ②スリットの厚みが薄い, ③スリット—基板間距離が大きい, ④プロセスガスにより原子が散乱されている, などが考えられる. (①—③に関して, 簡単に図 4.3.1.2.2 を描いた). Pt 元素は Ar よりも十分重いことから, ④の影響は比較的少ないと推測される. ①の影響は少なくないが, 装置の改造コストを考慮して②, ③を必要に応じて改善することを念頭に置き, 現状の形状修正精度を評価した.

実測された単位成膜痕, 及び多層膜ミラーの形状誤差を元にデコンボリューション演算を行い, まず基板キャリアの走査速度分布を計算した. そして計算された走査速度分布と単位成膜痕に再びコンボリューション演算を施すことで, 実際に成膜されると推測される形状を導き, 目標形状との差分を算出した(図 4.3.1.2.3). 目標成膜量は図 4.3.1.1.3 で示した形状誤差を上下反転させ, ①目標成膜量全体が 0 nm 以上であること(成膜量 0 nm は不可能), ②目標成膜量の(最大値)/(最小値) < 4 であること(基板キャリアの走査速度が極端だと安定性や高さ分解能に問題が生じる), ③成膜時間が 20 時間以内であること(成膜の安定性が低く, フィードバックが難しくなる)を境界条件として目標形状全体を均一にかさ上げした. どちらのミラーにおいても目標値と計算値の差は 1.0 nm PV を下回っており, 必要精度を十分に満たすことが分かった. 尚, 水平ミラーの成膜時間は 15 時間であり, 目標成膜時間の制限をクリアしていた. 以上より, 差分成膜の実験セットアップに問題がないことを確認できた. 次に, 基板内における成膜座標の評価方法について述べる. 図 4.3.1.2.1 を元に, 最大成膜量の半値を有する 2 つの座標の中心を, 単位成膜痕の中心座標とする. 本結果において, 38.2 mm と 40.8 mm であったため, 中心は $(37.6 + 40.2)/2 = 38.9 \text{ mm}$ である. ここで, 成膜装置に指示した基板キャリアの座標は 95 mm であった. これらから, 基板の 0 mm の位置を成膜痕の中心がとらえるとき, 基板キャリアの座標は $95 - 38.9 = 56.1 \text{ mm}$ と求まる. つまり, これまでに計算されたミラー成膜形状を基に実際に差分成膜する場合, ミラー位置の 0 mm が基板キャリアの 56.1 mm に対応すると理解して設定しなければならない.

4.3.2 差分成膜の精度検討

図 4.3.1.2.3 の形状を基に実際に差分成膜法を行い, 形状修正精度を評価した. 本計測においてもフィゾー型干渉計を用いるが, 第 2 章で述べた通り sub- 10 nm 集光用の多層膜ミラーの形状は非常に急峻であり, 計測が困難であるため, 代わりに単位成膜痕評価時に使用したガラス平面基板に差分成膜をすることで, 形状の評価を行った. 尚, 実際に差分成膜を行う前にまず Cr の均一膜を 10 nm 程度ミラー基板に成膜している. これにより, ①Pt とミラー

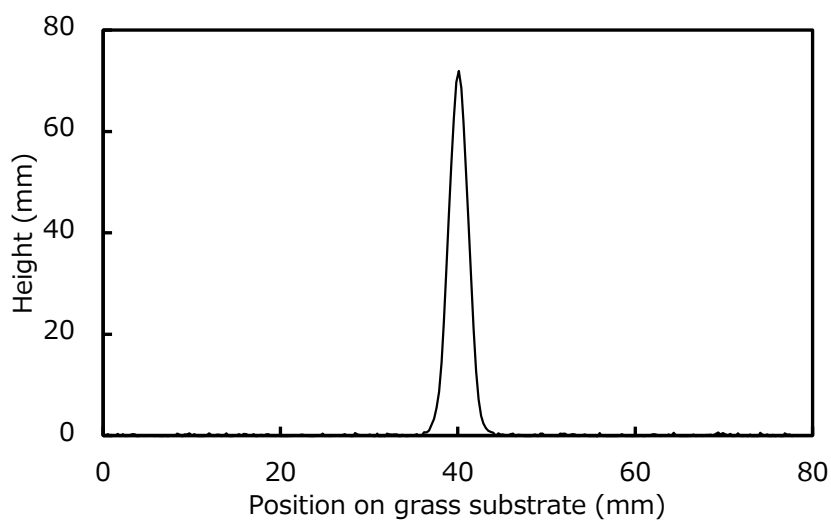


図 4.3.1.2.1 スリット幅を 2 mm に制限したときの単位成膜量分布.

表 4.3.1.2.1 単位成膜痕の作製条件.

Spatter target	Pt
Spatter gun	No. 1
Process time (minute)	20
Power (W)	20
Process gas	Ar
Gas flow rate (sccm)	16

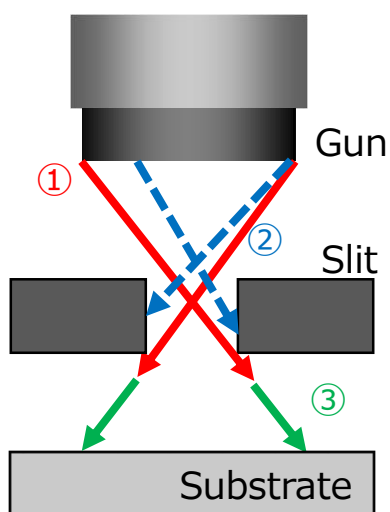


図 4.3.1.2.2 スパッタされた元素の回り込みに関する考察. ①ターゲットが大きいほど、スリットを通過する成膜元素に大きな角度が付く. ②スリットが分厚いほど、高い角度の入射元素をスリット内部で止めることができる. ③スリットー基板間距離が大きいほど、入射元素が大きく広がる.

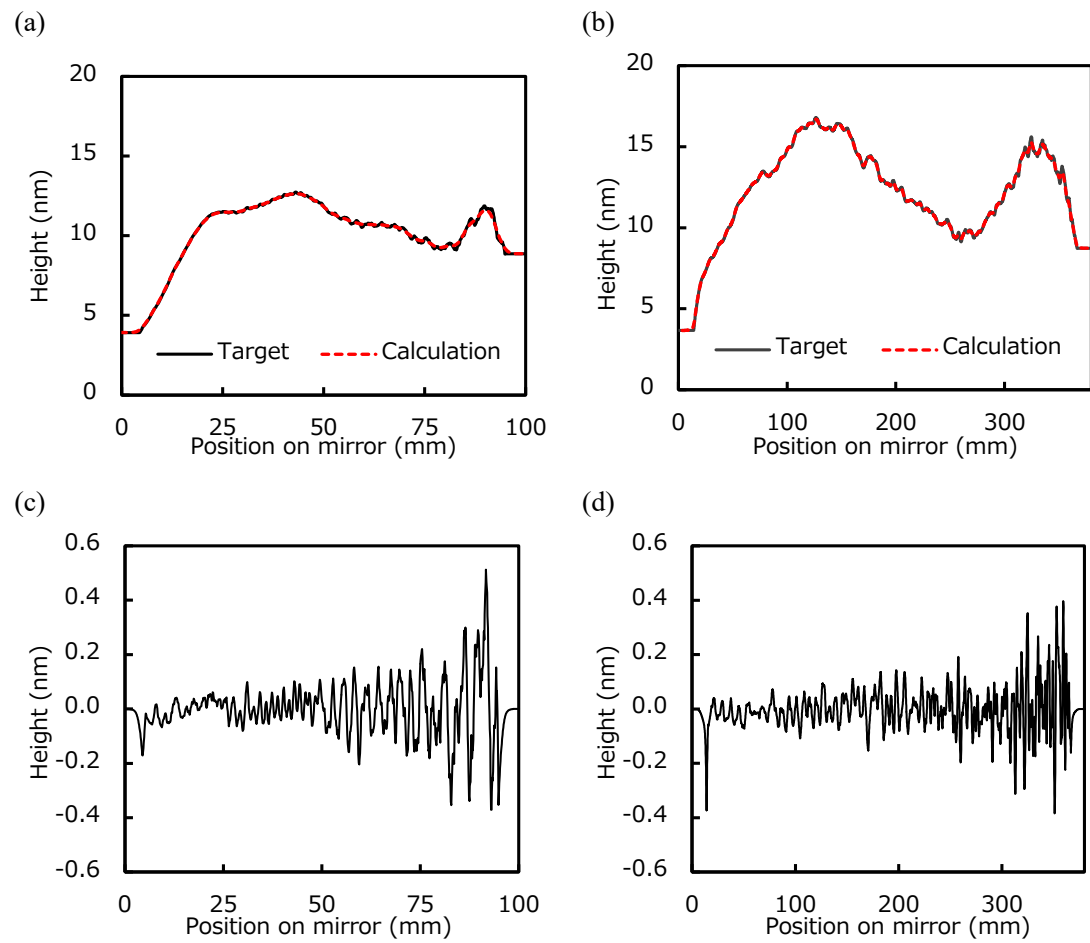


図 4.3.1.2.3 それぞれのミラーでの目標成膜量分布と単位成膜痕から算出されたコンボリューション計算結果（実際に成膜されると予想される膜厚分布，(a)が垂直集光で，(b)が水平集光），及びその差（(c)が垂直集光で，(d)が水平集光）。

基板の密着性が向上し、②エッチング溶液を用いることで差分成膜及び多層膜を剥離し、成膜のフィードバックが可能となる。ガラス基板の大きさは 80 mm であるので図 4.3.1.2.3(a)のうち、0-80 mm の領域について差分成膜し、計測結果を目標値と比較した(図 4.3.2.1)。成膜領域全域にて 1 nm PV 程度の精度で差分成膜できることを確認した。また、計算値との比較でみられなかった高空間周波数形状は、干渉計の 1 pixel 単位(数百 μm) オーダーであることから、差分成膜由来ではなく計測手法に依存した成分であると考えられる。

さらに、2 つの手法で成膜形状を計測し、それらに矛盾がないかをクロスチェックした。計測手法として、これまでにデータを取得してきたフィゾー干渉計と、多層膜の周期長評価で用いる X-ray Diffractometer (XRD, Smart Lab RIGAKU)を選択した。フィゾー干渉計では、従来通りガラス基板上に前面を作製・計測し(data_0)、その上に測定対象となる形状を成膜・計測し(data_1)、その残差を計測結果とした。この時計測は 5 回行い、その平均値を計算した。XRD は厚い膜を高精度に測ることが難しいため、前面が成膜されたフィゾー干渉計用の試料は不適當である。そのため、測定対象となる形状のみが成膜された Si ウエハを試料とした。XRD の膜厚測定は 1 点ずつ行うため試料位置を変えながら測定することで成膜量分布を評価した(図 4.3.2.2)。干渉計と XRD の双方ともに、目標形状と良い一致を示した。ここで、回折限界条件を満たす形状の精度として問題ないが、XRD で計測した結果では全体的に 0.1~0.2 nm ほど膜が薄かった。原因として、Si の基板粗さが約 0.3~0.5 nm RMS であること、及びウエハ上に成膜された Cr と Pt が膜界面で混ざってしまい界面がはっきりしなかったことで、膜厚の過小評価につながったと考えられる。

4.4 多層膜作製手順

2 章で述べた通り、後段のミラーには多層膜が付与されている。これまで硬 X 線領域では、放射光用の集光ミラーや分光器、あるいは X 線天文学における X 線望遠鏡用ミラーとして、様々な材料の組み合わせが研究されている。重元素側として遷移金属である W, Ni, Pt, Mo, Cr, Cu 等が用いられ、軽元素側として B, C, Si, ないしそれらの化合物との組み合わせがよく利用されている。多くの研究の結果、現在特に一般的かつ実用的と考えられる多層膜として、W/B₄C, W/C, W/Si, Pt/C が報告されている[69-73]。しかしながら B₄C では、DC スパッタリング法との相性が悪く、しばしばスパッタ中にターゲットが割れてしまい、また W では、多層膜の周期長によっては剥離されてしまうことを経験してきた。そこで本研究では、密度差が特に大きく、扱いが簡便な Pt/C の組み合わせを採用した。本項では実際に Pt/C 多層膜を作製する過程について述べる。

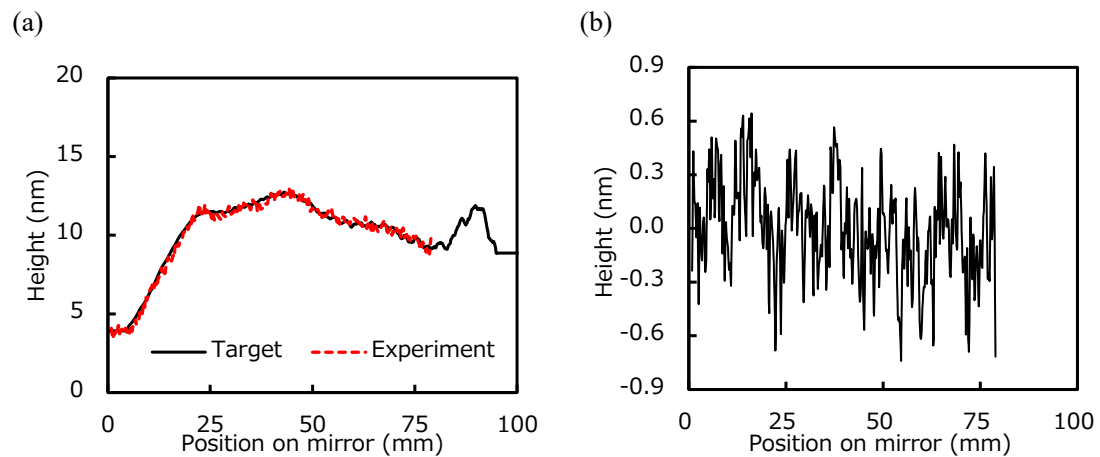


図 4.3.2.1 (a)図 4.3.1.2.3(a)に示した領域を目標形状（黒線）としてガラス基板上に成膜し、干渉計で計測した結果（赤点線）. (b)それらの誤差.

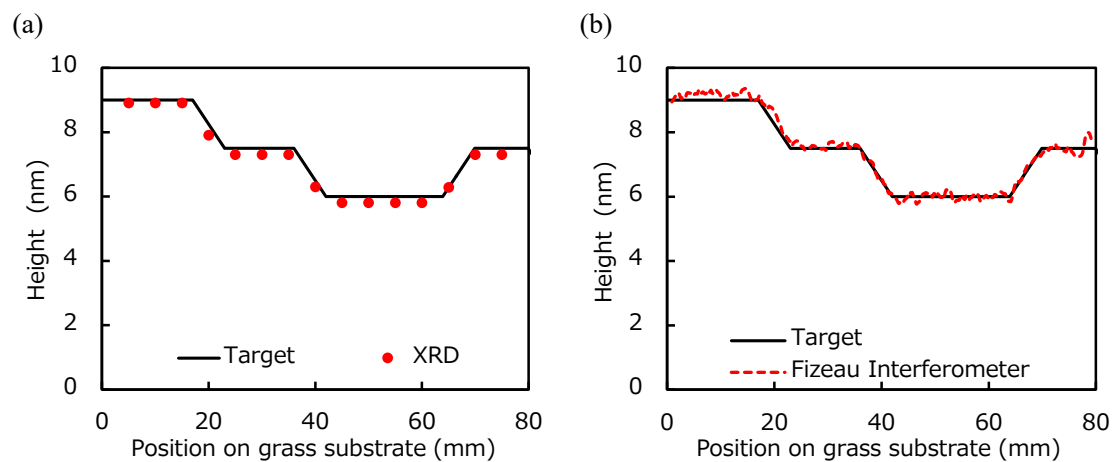


図 4.3.2.2 (a)XRD と(b)干渉計で得られた成膜量分布. テスト基板上には階段状の Pt 薄膜が差分成膜法で作製されている.

4.4.1 単位成膜痕の評価

差分成膜同様に、多層膜においても単位成膜痕を評価する必要がある。Pt に関しては前項と全く一緒の手順であるため、C について手順を記す。C とガラス基板の反射率差をなくすために、前面として C を成膜すべきとも考えられるが、C はそもそも反射率が低く酸化もしやすいことから、可視光計測機で正しく形状を計ることが難しい。そこで提案した計測手順を下記に示す。

1. Pt をガラス基板に成膜することで前面を作製し、干渉計で形状を計測する。
2. 前面の上に C の単位成膜痕を作製する。
3. 再度、Pt の均一膜を成膜する。

以上の手順で作製された試料は最表面が Pt であるため、確実に可視光を反射でき、また、3 度にわたる成膜プロセスで唯一 C のみ基板の全面に成膜されないことから、干渉計で計測することで C による形状の変位、つまり単位成膜痕を評価できる。表 4.4.1.1 の条件で形成された Pt,C の単位成膜痕の計測結果を図 4.4.1.1 に示した。多層膜は差分成膜のように空間周波数が高い形状を作ることが不必要である代わりに、トータルの成膜量が非常に多いため、スリット幅はミラータンジェンシャル方向に 30 mm とした。ターゲットの大きさが直径 50.8 mm(2 inch)であるため、これ以上大きくすると成膜領域内でムラが生じる恐れがある。スパッタガン 1 に Pt、スパッタガン 2,3 に C がそれぞれ装着した。

計測された成膜量分布から、Pt 及び C の成膜レートは、それぞれ約 4.5 nm/min, 1.625 nm/min であることが分かった。C の成膜レートが Pt より遅い理由として、Pt と C のスパッタリング率の違いと、Ar 原子との衝突により Pt よりも軽い C の運動方向がより顕著に変化することがあげられる。また、単位成膜痕の半値幅は、Pt が 31.2 mm, C は 31.8 mm とあまり変わらなかったが、裾の広がり方に明瞭な差が見られ、Ar 原子との衝突の影響を裏付けている。

4.4.2 XRD を用いた多層膜周期長の精密調整

差分成膜の手順と同様に、単位成膜痕と多層膜の目標周期長分布を元にデコンボリューション演算を行うことで基板キャリアの走査速度分布を決定した。目標周期長分布は図 2.3.4 の通りである。また、本光学系の多層膜は 30 layer である。さらに層数を増やすことでミラー下流側の反射率の向上が期待できるが、成膜時間の長期時間化による安定性、及び成膜精度の低下を考慮して意図的に抑えている（水平集光ミラーは現時点で成膜時間が 15 時間程度である）。多層膜の周期長には 0.1 nm 以下の精度が求められるため、多層膜を作製し、XRD で周期長を計測し、誤差に応じて走査速度分布を調整するフィードバック作業が必要

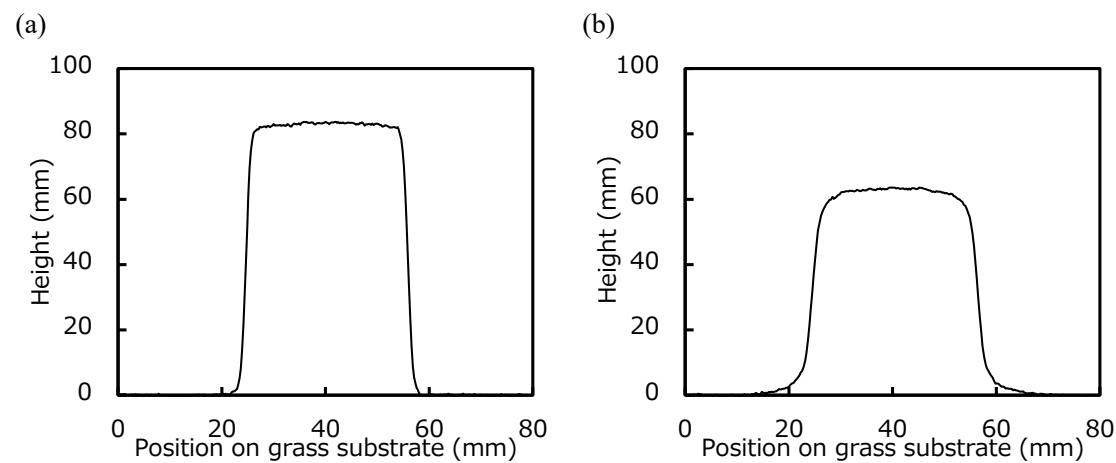


図 4.4.1.1 Pt と C の成膜量分布. 成膜パラメータは表 4.4.1.1 参照. スリット幅は 30 mm×30 mm, (a) Pt の成膜分布量, (b) C の成膜分布量

表 4.4.1.1 成膜時のパラメータ

	Pt	C
Spatter gun	No. 1	No. 2,3
Process time (minute)	20	40
Power (W)	20	120
Process gas	Ar	Ar
Gas flow rate (sccm)	16	10

不可欠である。成膜時間が長い場合、ターゲットの消耗を考慮すると十分な回数のフィードバックを行うことができないと考えられ、結果的に成膜精度、及び反射率の低下につながる。多層膜の周期長を評価する XRD 装置として RIGAKU 社製の SmartLab を用いた（差分成膜精度の評価に用いた装置と同一）。光源の波長 λ は 0.154 nm (CuK α 線)であった。最初に、産総研の GaAs/AlAs 超格子(8500-30402 5203-a)を標準試料として装置の絶対測定精度を評価した。カタログスペックに基づく、GaAs/AlAs が 5 layer 積層されており、各元素層の平均的な膜厚は、AlAs 層が 9.65 nm, GaAs 層が 9.51 nm で、不確かさは両層共に 0.11 nm であった。本試料の測定、及びフィッティング結果を図 4.4.2.1 に示した。縦軸は log スケールである。0.5°以下の測定値が低い理由は、試料基板が小さいことにより、入射 X 線の一部のみ反射に寄与したからである。平均的な多層膜周期長の評価精度の検証を目的としたので、同じ厚みの GaAs/AlAs が繰り返された簡単な多層膜モデルを仮定してフィッティングした。実際は各層における厚みが 0.1 nm オーダーで異なる複雑な構造の超格子であるため 1.5°以上において精度が低く見えるが、計測結果として GaAs 層は膜厚 9.67 nm, AlAs 層は膜厚 9.50 nm が得られ 0.01 nm オーダーで一致した。この検証結果から、本装置は多層膜の周期長を評価するにあたり十分な精度を有することを確認できた。

実際に作製した多層膜を計測した結果を示した。水平集光ミラーの本番成膜をする前に、実際のミラー基板と同じ形をした Al 製のダミー基板に Si ウエハを貼り付け、多層膜を付与した（テスト成膜とする）。迅速にフィードバックを行うことと、ターゲットの消耗を考慮して、本番より少ない 20 layer だけ成膜した。このウエハに作られた多層膜の周期長を XRD で計測し、設計値と比較した結果を基板キャリアの走査速度にフィードバックした。本プロセスにおいて、下記 2 点の工夫をしている。

1. ミラー基板と同じ大きさのダミー基板に Si ウエハを張り付けて成膜してしまうと、Si ウエハの厚み分だけ (0.525 mm) スパッタガンとの距離が本来より近くなる。スパッタガンとの距離は成膜レートを変えてしまうため、本番の成膜条件と近づけるために、ダミー基板上の X 線反射領域に相当する（ウエハを張り付ける）箇所に 0.5mm の溝を掘っておいた。
2. グレーデッド多層膜の周期長を評価するとき、XRD のプローブサイズが有限であることから、狙った位置以外の異なる周期長の多層膜からの反射も測定してしまう。結果的にブラッグ反射のピークを見かけ上ブロードにしてしまい、フィッティングの精度が低下するため、あらかじめ Si ウエハ上にカプトン（ポリイミド）テープを貼り、成膜領域を 1 mm 以下に制限した。

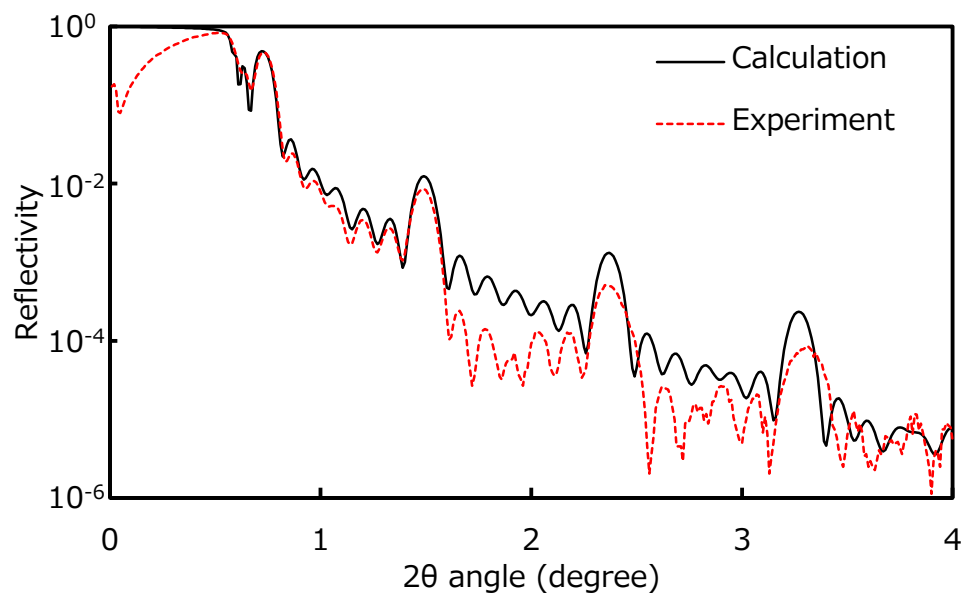


図 4.4.2.1 XRD を用いて標準試料を測定した結果．実線が測定データで，点線が周期長を求めるために測定データにフィッティングをして得られた計算データである．縦軸は対数表示になっている．

こうして作られた多層膜を XRD で測定, 及びフィッティングした結果を図 4.4.2.2 及び表 4.4.2.1 に示した. それぞれミラーの上流と下流位置の多層膜で, 縦軸は対数表示である. 標準試料と異なり同一周期の繰り返しの多層膜であるため, 簡単な多層膜モデルでも高次の反射光までフィッティングできている. 設計値は周期長で 5.715 nm と 3.238 nm であるため, 0.05~0.08 nm 程度の誤差があった. これを元に基板キャリアの走査速度分布を変化させ, 再度 Si ウエハに成膜した. 計測, 及びフィッティングした結果は図 4.4.2.3 及び表 4.4.2.2 の通りで, 0.01 nm の精度で一致させることができた. 上流側のウエハについて, 理想的な周期長における反射率分布と, 実測値をフィッティングした結果を比較することで, 必要精度を満たしているか評価した (図 4.4.2.4). 1 次光反射を用いる本実験においては, フィードバック前でも必要精度をおおよそ満たしていたが, 3 次光反射ではフィードバックが必要不可欠であるとわかる. 3 次光のブラッグピークが狭いこと, 及び斜入射角が大きいことにより, 周期長の僅かなずれが致命的になったと推測できる. 今後, より開口数が大きい光学系の高次光反射の多層膜を作製する際に, 特に重要なプロセスであることを確認できた.

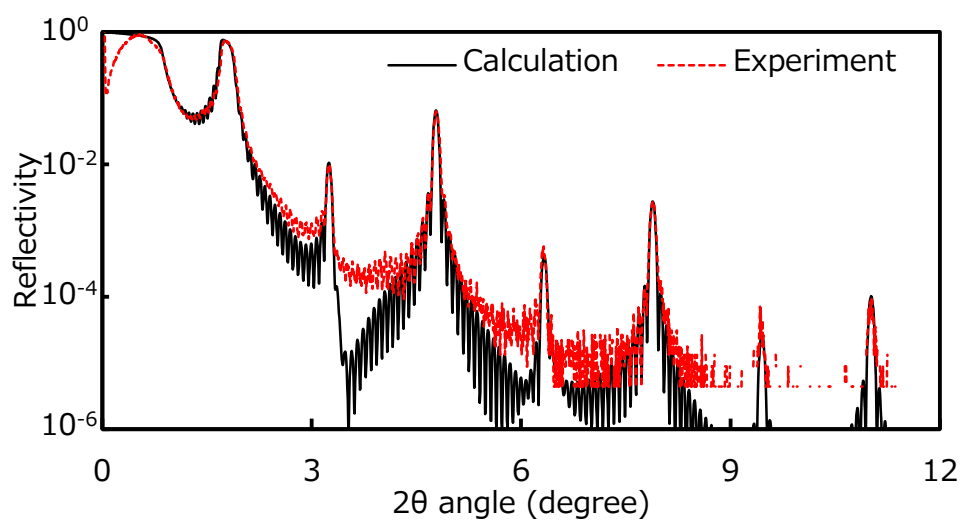
本プロセスで決定した走査速度分布にて多層膜を本番ミラーに付与した. 本番ミラー成膜時に, 想定外の成膜が行われていないか確認するために, テスト成膜時と本番成膜時にミラーの成膜領域外に Si ウエハを貼り付けていた. それぞれのウエハを XRD で計測し, 結果を比較したところ, ほとんど一致していたので, 本番も練習同様の成膜が行われたことを確認できた. これで差分成膜による X 線ミラーの形状修正と, 多層膜の付与が終わり, SACLA にて再び波面計測実験を行う準備が整った. ここまでが提案した補償光学システムの一周期である.

4.5 SACLA における形状修正された多層膜ミラーの性能評価実験

再び SACLA BL3 EH5 のミラーチャンバに形状修正された X 線ミラーを設置し, 波面計測実験を行った[74]. 図 4.5.1 は計測された波面収差値である. ミラーの入射角を調整することで完全に 3 次関数以下の波面収差を除去し, 第 3 章で確立した手法により X 線カメラ由来のシステムエラーも除去されている. 計測された波面収差は, 垂直方向は 1.6 rad PV, 水平方向で 2.0 rad であり, 両方向共に形状修正前と比較して改善されていた. しかし, 第 2 章で議論したレイリーの 4 分の 1 波長則に基づくと, 回折限界条件を満たす基準は波面収差の PV 値が $\lambda/4$ (1.57 rad) を下回ることであり, 垂直方向に関してはほとんど満たしているが, 水平方向は僅かに届かなかった.

垂直集光ミラーと水平集光ミラーの大きな違いは長さである. ミラーが長いことで, 形状修正プロセスで不利に働く事項を列挙する.

(a)



(b)

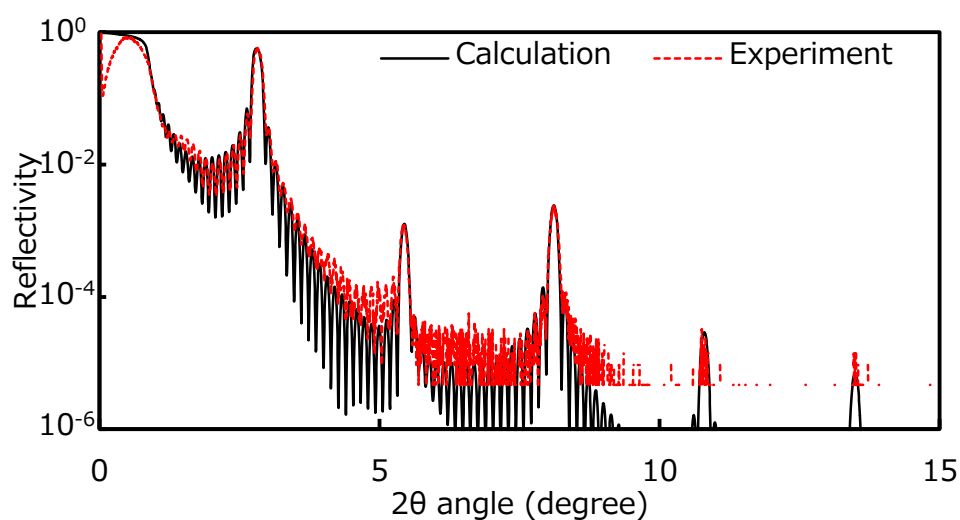
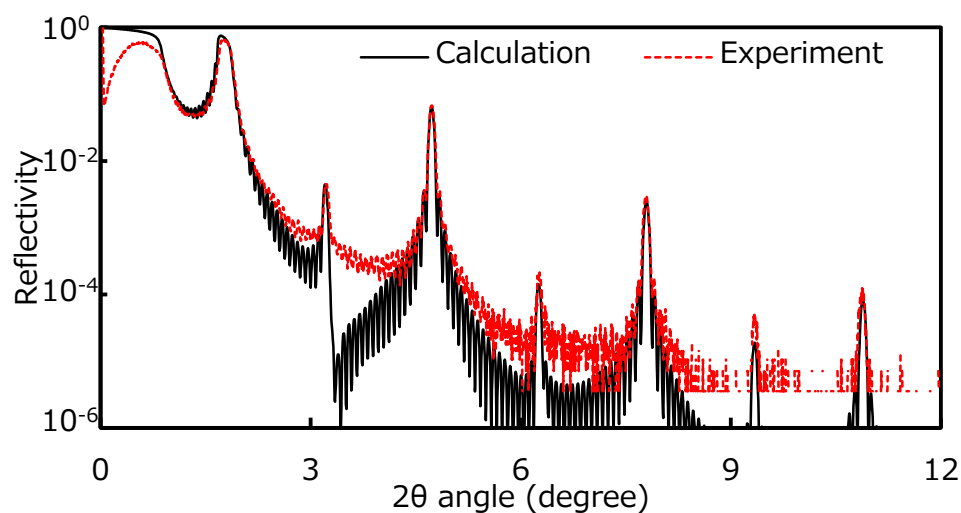


図 4.4.2.2 XRD を用いて多層膜のテスト試料を計測した結果. 赤点線が測定データで, 黒実線が周期長を求めるために測定データにフィッティングをして得られた計算データである. 縦軸は対数表示. (a)がミラー上流側で, (b)が下流.

表 4.4.2.1 図 4.4.2.2 のフィッティング結果.

	Upstream		Downstream	
	Pt	C	Pt	C
Material	Pt	C	Pt	C
Thickness (nm)	2.761	2.874	1.585	1.7
Interface roughness (nm RMS)	0.26	0.26	0.29	0.24
Number of layers	20		20	

(a)



(b)

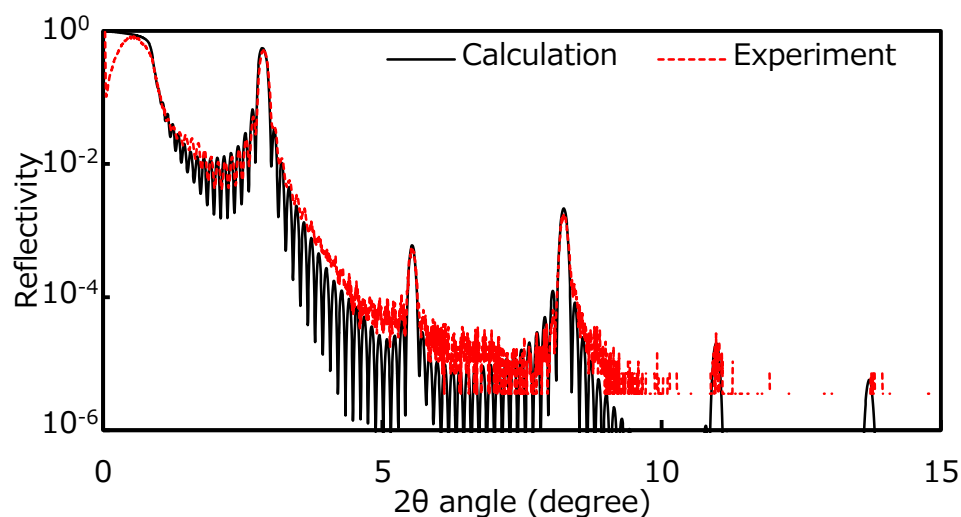


図 4.4.2.3 図 4.4.2.2 を受けて再度多層膜を作製し、計測した結果。赤点線が測定データで、黒実線が周期長を求めるために測定データにフィッティングをして得られた計算データである。縦軸は対数表示。(a)がミラー上流側で、(b)が下流。

表 4.4.2.2 図 4.4.2.3 のフィッティング結果。

	Upstream		Downstream	
	Pt	C	Pt	C
Material	Pt	C	Pt	C
Thickness (nm)	2.847	2.855	1.598	1.633
Interface roughness (nm RMS)	0.29	0.26	0.3	0.27
Number of layers	20		20	

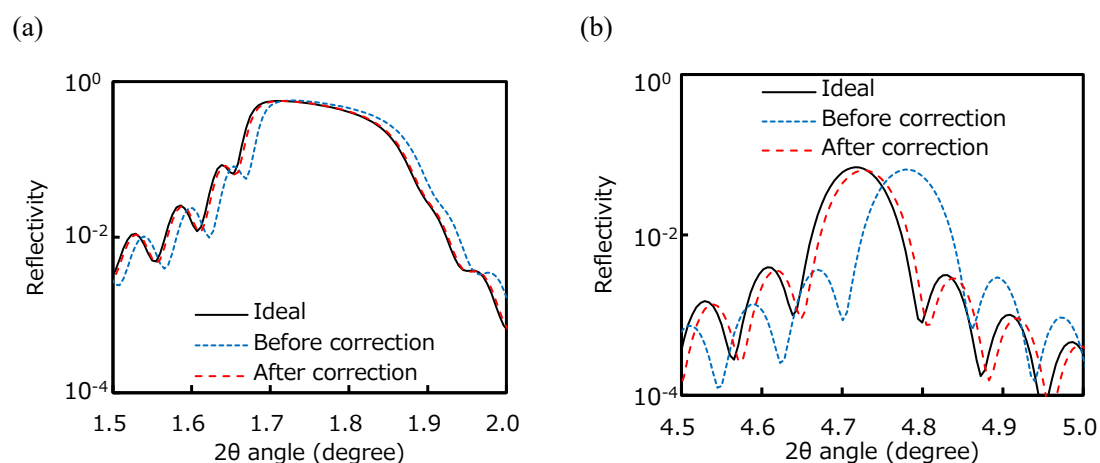


図 4.4.2.4 上流側のウェハについて、理想的な周期長における反射率分布（黒実線）と、実測値をフィッティングした結果．青点線が図 4.4.2.2(a)，赤点線が図 4.4.2.3(a)の黒実線である．(a)が 1 次光反射，(b)が 3 次光反射である．

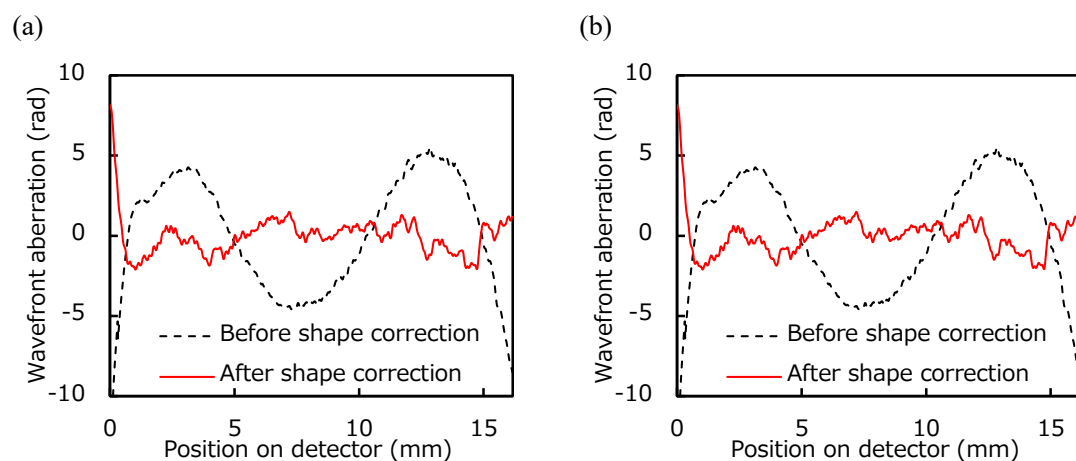


図 4.5.1 多層膜ミラーの形状修正前後の波面収差．(a)垂直方向，(b)水平方向．

1. 基板を成膜治具に固定する際に、ごみを噛んだりネジ止めの順番が悪かったりすることで傾いて固定された場合、ミラーの長さだけ基板両端におけるスパッタガンとの距離が変わる。
2. 成膜プロセスが長期化するため、安定性が一時的に悪くなりやすい。Cの成膜時間が長いとアーク放電が起こりやすく、一時的にレートが変化することがある。その場合ミラーの成膜量が変化し、多層膜由来の位相シフトが生じる。
3. ミラー基板のサグ量が大きくなるため、基板とスパッタガンの距離がミラーを走査するにつれて変化してしまう。
4. 基板キャリアが走査軸と法線方向に長周期的にがたついている。

何度か水平方向のミラーの形状修正を試みたが、やはり回折限界条件を満たすことは無かったため、再現性のない要因が強く作用している可能性が高い。そのため、長いミラーにおいてはオンラインの計測結果をその場で修正できるシステム（形状可変ミラーなど）やミラー形状を変化させるのではなく、位相補正物体を光軸に挿入する（位相板）など、波面を補正する手法を改善すべきと考える。しかしながら、修正前と比較して波面収差の改善には成功したため、開発した精密波面計測法と差分成膜法に基づく補償光学の戦略は有効であるといえる。特に波面計測法は簡便かつ高精度であり、非常によく機能したため、今後も光学系の評価手法として基盤になると期待できる。

実験にて求めた波面誤差から形状誤差を求め、フレネルキルヒホッフの回折積分により sub-10 nm 集光光学系により形成される集光強度プロファイルを計算した（図 4.5.2, 表 4.5.1）。ミラー表面に形状誤差が存在する場合、焦点以外でも強め合いの干渉が起こり、大きなサイドピークが生じる。波面収差の空間周波数が高いほど中心から離れていき、収差の振幅に応じて強度が増す。また周波数が低いと、メインピークが広がってしまう。形状修正前は、両集光方向共に数多くのサテライトピークが見られ、メインピークの高さが理想形状のときと比べて非常に低くなっていた。一方で、形状修正後は理想集光時に対するメインピークの高さが垂直方向は 86 %、水平方向は 55 % と大幅に改善された。また半値幅も垂直方向が 5.4 nm、水平方向が 6.7 nm であり、sub-10 nm 集光が可能な多層膜ミラーの開発に成功したと結論づけられる。計算された集光プロファイルを基に現在のミラーで達成されるパワー密度を見積もった。多層膜ミラーから反射された XFEL シングルショットのパルスエネルギーは 11 μJ 、パルス間隔は 7 fs であったため、 $1.64 \times 10^9 \text{ W}$ と計算される。計算結果からビームサイズは 5.4 nm(V) $\times$ 6.7 nm(H) である。理想集光時でメインピーク内に全体のエネルギーの半分が集光されると考え、本光学系の波面収差を考慮すると、さらにその 86 % $\times$ 55 % がメインピークの強度であるため、 $1.0 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$ と見積もられ、sub-50 nm 集光システムより 1 桁近く高い結果となった。

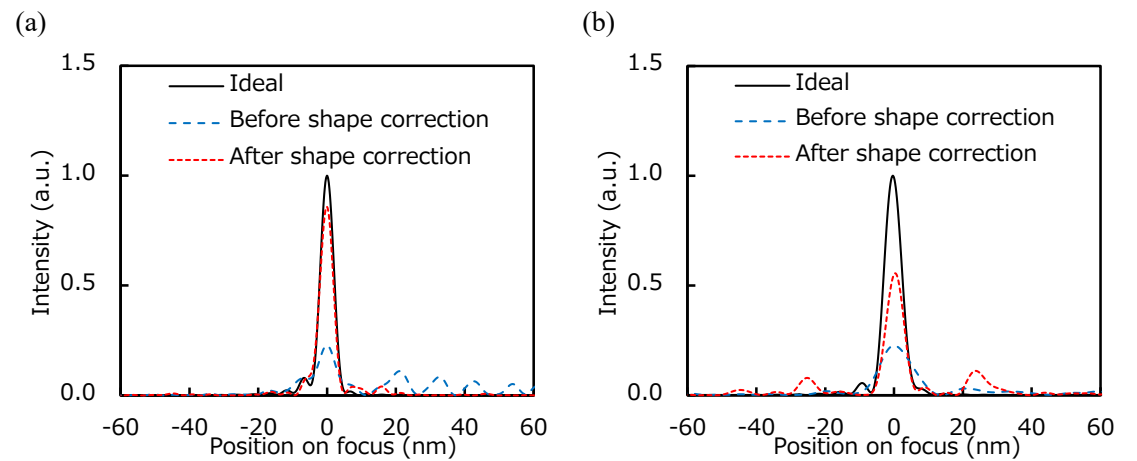


図 4.5.2 波動光学シミュレーションによって計算した集光プロファイル. (a)垂直方向, (b)水平方向.

表 4.5.1 計測された波面収差を元に波動光学に基づく計算機シミュレーションによって求めた集光点でのピーク高さとビームサイズ (nm, FWHM).

	Vertical			Horizontal		
	Ideal	Before correction	After correction	Ideal	Before correction	After correction
Beam size (nm,FWHM)	5.1	6.17	5.4	6.1	11.3	6.7
Intensity (%)	100	23	86	100	26	55

暗視野ナイフエッジスキャン法により、本光学系のビームプロファイルの実測を試みた。入射角誤差は波面計測である程度 3 次関数を除去したのちにフォーコーテストを行うことで数 μrad 程度の精度で最終調整を行った。ナイフエッジスキャンの結果を図 4.5.3 に示す。ナイフエッジには直径 $50\ \mu\text{m}$ の金ワイヤーを用いており、1 点あたりの露光時間は 1 秒(30 shot 積算)であった。このとき、ワイヤーのアブレーション損傷を避けるために光学系の上流に設置した Si アテネーターの厚みは $0.9\ \text{mm}$ (透過率 0.2%)であった。実測された集光プロファイルの半値幅は $40 \sim 50\ \text{nm}$ であり、波面収差を基に計算で求めた結果と比べて非常に大きな値となった。以下の通り、原因を考察する。

1. ワイヤー及びミラーが数 nm(rms) 並進振動している。
2. ワイヤーの表面形状がおおよそ $5\text{-}10\ \text{nm(rms)}$ 程度の形状誤差を有している。さらに、ワイヤーはリアルタイムでアブレーションにより損傷している。
3. 後段の水平集光側の多層膜ミラーの入射角が $80\ \text{mrad(rms)}$ 振動しており、集光点では $25\ \text{nm(rms)}$ の振動に相当する。また、垂直集光側のミラーの場合、 $350\ \text{mrad(rms)}$ の振動が、集光点では $25\ \text{nm(rms)}$ の振動に相当する。
4. 光源の振動により、集光点が $1\text{-}3\ \text{nm(rms)}$ 振動している。

上記の問題は、計測手法が走査型である限り無視できないため、正確にビームを診断するには XFEL のシングルショットでデータの取得が完了する新たな手法を開発しなければならない。

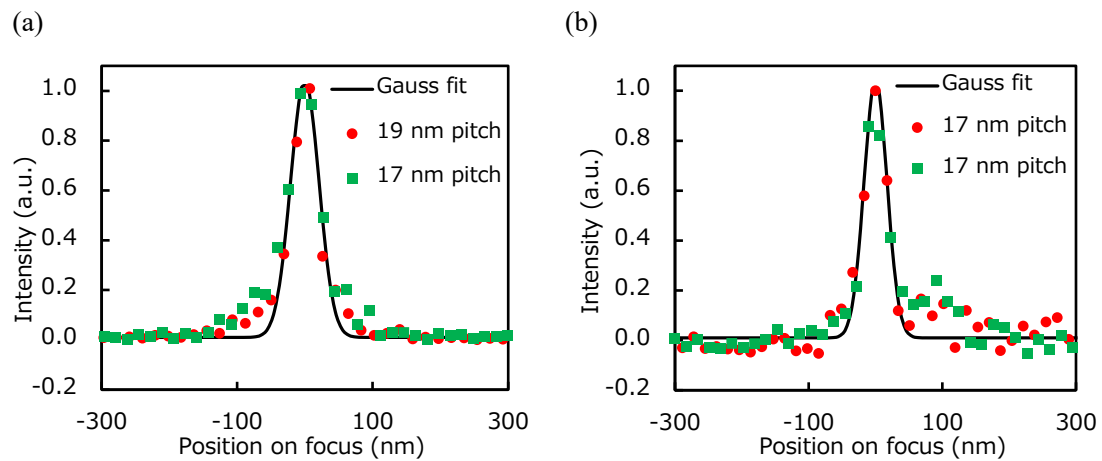


図 4.5.3 暗視野ワイヤースキャン法により集光径を直接計測した結果. (a)垂直方向 47 nm, (b)水平方向 40 nm.

4.6 結言

本章では、波面計測法により決定された形状誤差を修正する差分成膜法と、XFEL を高効率に反射するための多層膜作製の精度を検証した。そして再成膜された X 線ミラーを用いて SACLA にて集光実験を行った。以下に要点をまとめる。

- (1) 単位時間当たりの形状修正量が安定しており、他の成膜手法よりも基板に与えるダメージが少ないことから、DC マグネトロンスパッタリング法に基づく差分成膜法を導入した。
- (2) 差分成膜において、目標形状と単位成膜痕を元に予想される形状修正精度を見積もったところ、幅が 2 mm のスリットで 1 nm PV の精度を満たすことを確認した。実際にガラス平面基板に成膜し、可視光干渉計で計測したところ、1 nm PV の精度で成膜できていることを確認した。また、可視光干渉計と XRD で同じ成膜形状を評価したところ、お互いに目標成膜量と矛盾ない計測結果を示すことを確認した。
- (3) XRD の計測精度を標準試料 (GaAs/AlAs 超格子(8500-30402 5203-a)) を用いて確認したところ、カタログスペックとほぼ同等の膜厚が実測できていた。実際に多層膜を作製し、計測結果を元に目標の周期長になるよう成膜時間を調整したところ、0.01 nm の精度を達成した。
- (4) sub-10 nm 集光システムの後段 KB ミラーのそれぞれに差分成膜、及び多層膜の付与を施し、再び SACLA にて波面計測を行ったところ、各ミラーにおいて 10 rad PV 程度残存した波面収差が、垂直集光側は 1.6 rad PV、水平集光側は 2.0 rad PV まで改善した。水平集光ミラーは、垂直集光ミラーと比較してミラー長が 4 倍程度長いいため、形状修正プロセスが比較的不安定になったと考察した。
- (5) 波面収差値を元にした計算機シミュレーションにより集光強度プロファイルを求めると、スポットサイズは 5.4 nm(V)×6.7 nm(H)となり、sub-10 nm 集光の達成を確認した。本結果を元に集光強度を見積もると $1.07 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$ であり、sub-50 nm 集光光学系より 1 桁近い利得があると推測される。
- (6) 暗視野ワイヤスキャン法により集光径を実測したところ、垂直集光側は 47 nm、水平集光側は 40 nm であった。計算機シミュレーションで得られた結果よりも大きな集光径となってしまったが、その原因としてワイヤーの表面粗さや光源やミラーの振動による計測の誤差が考えられた。真にサイズ 10 nm 集光を達成するためにはビームの実測は必要不可欠であることから、新しいビーム診断法の開発が求められる。

第 5 章

スペックルを利用したビーム診断法の提案と実証

5.1 緒言

第 4 章までで、可視光計測機では対応できない急峻なミラー形状を、高い絶対精度で計測できる精密 X 線波面計測手法を確立し、XFEL をサイズ 10 nm 以下に集光できるミラーの作製に成功した。真に 10 nm 以下に集光された XFEL で実験を行うためには、ビーム形状を直接診断し、ミラーアライメントを最適化しなければならない。しかし、一般的に用いられている診断方法では、試料を複数回走査してデータを取得するため、ショットバイショットで変化する XFEL において不適當である。そこで本章では新たに、XFEL のシングルショットでビーム診断を完了させる手法として、コヒーレントな光の散乱現象により生じるスペックルを利用した干渉計を開発した。計算機シミュレーションにより有用性を評価した後、SACLA で取り組んだ実証実験の結果を詳述する。

5.2 スペックルと入射光の関係

SLAC の Sikorski 氏らのグループは、XFEL のシングルショットで得られるデータから X 線ビームを評価するために、コヒーレント散乱により生じるスペックルの大きさ（スペックルサイズ）を解析する手法を発表した[75]。以下に Goodman の”Speckle Phenomena in Optics”[76]を参考にして、スペックルと入射光の関係を記述する。図 5.2.1 はスペックルの概念図である。

コヒーレント照明光を仮定し、入射光の複素振幅関数 $p(x, y)$ ，試料の複素透過関数 $o(x, y)$ とすると、試料直下の複素振幅関数 $\psi(x, y)$ は次のように表せる。

$$\psi(x, y) = o(x, y) \cdot p(x, y). \quad (5.2.1)$$

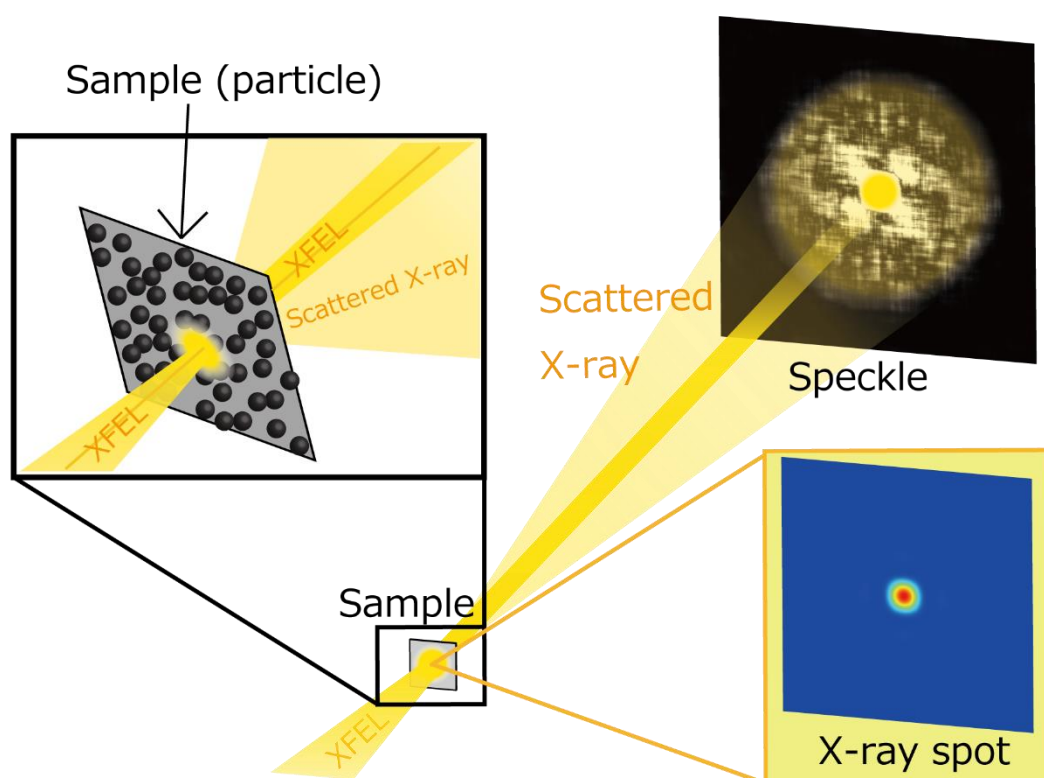


図 5.2.1 スペックル干渉計の概念図. コヒーレントな光 (X-ray spot) が試料 (Sample) に照射されると, 遠方場で干渉模様 (Speckle) が生じる.

観察面（スペックル面）における複素振幅 $A(u, v)$ は、 $\psi(x, y)$ をフレネル伝搬することによって次のように得られる。

$$A(u, v) = \iint \psi(x, y) \exp(2i\pi((x^2 + y^2)/2 - (ux + vy))/\lambda z) dx dy. \quad (5.2.2)$$

(u, v) は散乱ベクトルで、 z は試料と観察面の距離である。ここでスペックル面のある2点 (u_1, v_1) と (u_2, v_2) における複素振幅の自己相関関数 γ_A は次の式に従う。

$$\gamma_A(u_1, v_1; u_2, v_2) = \overline{A(u_1, v_1)} A(u_2, v_2). \quad (5.2.3)$$

式(5.2.2),(5.2.3)より、次のように得られる。

$$\gamma_A(u_1, v_1; u_2, v_2) = \iint \overline{\psi(x_1, y_1)} \psi^*(x_2, y_2) \exp(2\pi i((x_1^2 + y_1^2 - x_2^2 - y_2^2)/2 - (u_1 x_1 + v_1 y_1 - u_2 x_2 - v_2 y_2))/\lambda z) dx_1 dy_1 dx_2 dy_2. \quad (5.2.4)$$

ここで、試料直下のある2点 (x_1, y_1) と (x_2, y_2) における複素振幅の自己相関関数 γ_ψ は式(5.2.3)と同様に次のようになる。

$$\gamma_\psi(x_1, y_1; x_2, y_2) = \overline{\psi(x_1, y_1)} \psi^*(x_2, y_2). \quad (5.2.5)$$

ここで、 $\psi(x, y)$ の相関距離が極めて短い（構造がランダムである）とき、式(5.2.5)は次のように表せる。

$$\gamma_\psi(x_1, y_1; x_2, y_2) = I(x_1, y_1) \delta(x_1 - x_2, y_1 - y_2). \quad (5.2.6)$$

式(5.2.4)-(5.2.6)より、 γ_A は次のようにかける。

$$\gamma_A(\Delta u, \Delta v) = \iint I(x, y) \exp(-2\pi i(\Delta u x + \Delta v y)/\lambda z) dx dy. \quad (5.2.7)$$

$\Delta u = u_1 - u_2$, $\Delta v = v_1 - v_2$ で、 $I(x, y)$ は $\psi(x, y)$ の強度分布である。つまり、スペックルの複素振幅の自己相関関数は、試料直下の強度分布の2次元フーリエ変換と等価である。試料は、ナノメートルサイズの微粒子が薄く一様に広がっているとすると、試料面全体の吸収量が一樣でほぼ無視できると見なせるため、 $I(x, y)$ は $|p(x, y)|^2$ とほぼ等しくなる。

ここで、スペックルパターンは強度分布のみ記録可能なので、スペックルパターンの強度分布の自己相関関数 γ_I は

$$\gamma_I(\Delta u, \Delta v) = \bar{I}^2 \left[1 + \left| \gamma_A(\Delta u, \Delta v) / \iint I(x, y) dx dy \right|^2 \right]. \quad (5.2.8)$$

$\bar{I}$ はスペックル面の平均強度である．ここで， $\Delta u = \Delta v = 0$ のとき，式(5.2.8)の右辺に $1/|A(u, v)|^2$ が追加される． $|A(u, v)|^2$ は (u, v) にて1パルスあたりに検出される平均光子数であり，光子統計に起因している[58, 77]．式(5.2.8)よりスペックルパターンの自己相関関数は入射光に関する情報を含むため，入射光の強度分布はスペックルパターンから推定できる．単純のため， $I(x, y)$ を下記の通りガウシアン関数とする．

$$I(x, y) = \exp(-(px^2 + qy^2)). \quad (5.2.9)$$

その時， $\gamma_I(\Delta u, \Delta v)$ は次のように表せる．

$$\gamma_I(\Delta u, \Delta v) = \alpha \exp\left(-\left(\frac{\Delta u^2}{2p} + \frac{\Delta v^2}{2q}\right)\right) + \beta. \quad (5.2.10)$$

α, β は定数である．式(5.2.9)，(5.2.10)からビームサイズが， γ_I で表される平均スペックルサイズと反比例の関係であることが示せた．

5.3 波動光学に基づく計算機シミュレーション

スペックル形状とビーム形状の関係を評価するために計算機シミュレーションを行った．計算モデルを図 5.3.1 に示した．X 線エネルギー 9.1 keV の平面波が直交直列に配置された薄い 1 次元集光レンズ（開口 500 nm(2048 pixel)，焦点距離 25 μm で NA 10 mrad）の開口全体を照明した場合における焦点近傍の波動場を，フレネル回折に基づき計算した ($p(x, y)$)．直径 0.5 nm の微粒子（位相物体）をランダムに配置した試料関数を作成し ($o(x, y)$ ，詳細は表 5.3.1)，焦点近傍における入射光の波動場と掛け合わせ，試料の背面波動場を求めた ($\psi(x, y)$)．試料面とスペックル面は実験では十分離れていることから，簡単のために， $\psi(x, y)$ のフラウンホーファー回折を計算し，スペックル面での波動場を求めた ($A(u, v)$)．本項ではまず，理想集光されたビームサイズとスペックルサイズの間関係を調査した．次に，ミラーのミスアライメントで特徴的に変化したビーム形状とスペックル形状の間関係を調査し，スペックルの形状からミラーのミスアライメントを独立して抽出可能であるか検証した．

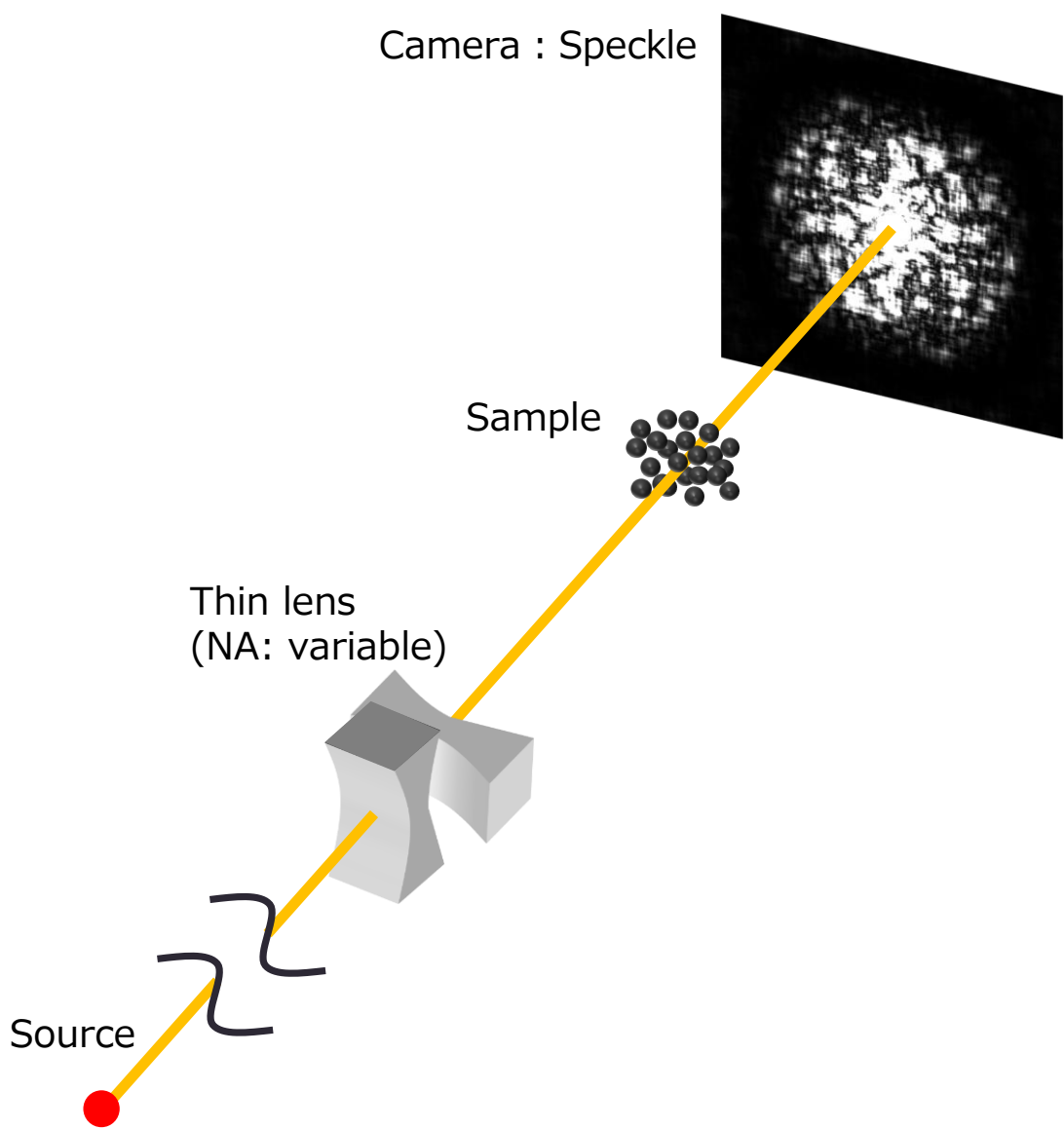


図 5.3.1 計算機シミュレーションの概念図.

表 5.3.1 試料関数のパラメータ.

Size (nm)	0.5
Effective area (nm)	500×500
Number	5000000
Phase shift	$\lambda/1000$

5.3.1 ビームサイズとスペックルサイズ

レンズの開口数を調整することで集光サイズを変化させ、形成されるスペックルパターンを計算した。集光径 (FWHM) が 24 nm と、6 nm のときのスペックルパターンを図 5.3.1.1 に示したが、明らかに形状が異なっていた。尚、試料を透過する X 線の強度はスペックルを生じさせる散乱 X 線と比べて非常に高いことから、X 線の強度はしばしば対数で表示されるが、ここでは線形で表示するために透過 X 線 (画面中心) の強度を 0 にした。また、計算機上において強度の絶対値に意味は無いため、図中のグレースケールは任意で変更した。スペックルサイズの定性的な変化は観察できるが、強度のばらつきが大きく定量的なサイズの評価が難しいため、画像の一部分について 2 次元自己相関関数 γ_I を計算した (図 5.3.1.2)。自己相関関数は計算領域内の平均構造を反映するため、その半値幅から複雑な強度分布を有するスペックルの平均的な大きさを定量的に評価できることは、前節より明らかである。図 5.3.1.1 を元に、集光サイズ 24 nm、6 nm におけるスペックルパターンの自己相関関数を求めた (図 5.3.1.3)。自己相関関数のグレースケールも任意で調整した。ラインプロファイルの半値幅をスペックルサイズとして比較すると、明らかに 6 nm 集光の 때가大きいとわかった。レンズの開口数を調整しつつ同様の計算を繰り返し、集光径とスペックルサイズの関係についてまとめたグラフを図 5.3.1.4 に示す。集光サイズとスペックルサイズが反比例の関係であることが、計算機シミュレーションからも確認できた。さらに、反比例であることから、小さなビーム形状のわずかな変化は、スペックル形状を明瞭に変化させると予想され、我々の構築する sub-10nm 集光システムのビーム診断に最適であると期待できる。

5.3.2 KB ミラーのミスアライメントの抽出

5.3.2.1 ミスアライメントとビームプロファイルの関係

KB ミラーに直角度誤差 $\Delta\chi$ 、入射角誤差 $\Delta\theta$ 、及び非点収差 Δd がある場合のビームプロファイルの変化を計算機シミュレーションにより求める。それぞれのミスアライメントは下記の通り表現した。

1. 直角度誤差は 2 枚のレンズの直交度を崩すことで表現した。
2. 入射角誤差は、レンズが与える位相差に図 2.4.2.2 で求めた sub-10 nm 集光光学系におけるコマ収差を導入して表現した。
3. 非点収差は、垂直水平方向で伝搬距離を変えて表現した。

図 5.3.2.1.1 に、それぞれ直角度誤差 $\Delta\chi = \pm 20 \mu\text{rad}$ 、入射角誤差 $\Delta\theta = \pm 1.5 \mu\text{rad}$ 、非点収差 $\Delta d = 6 \mu\text{m}$ をミスアライメントとして導入したものと、誤差無しの理想集光状態におけるビームプロファイルを計算した結果を示した。焦点周りの波動場に関して、焦点からの伝搬距離 Δz を変えてフレネル回折で計算した。

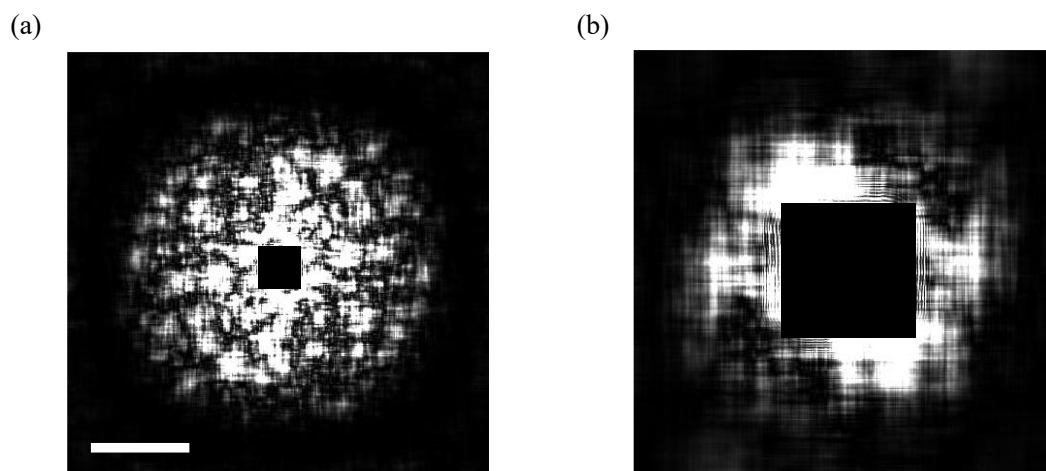


図 5.3.1.1 計算された散乱強度分布（スペックル）．スケールバーは 0.1 nm^{-1} （逆空間上であるため）．同時に観察される透過X線（それぞれの図の中心）の強度が高すぎることから、線形表示のために0にした．強度の絶対値に意味は無いので、図のグレースケールは任意で変更した．それぞれビームの集光径が (a) 24 nm (b) 6 nm.

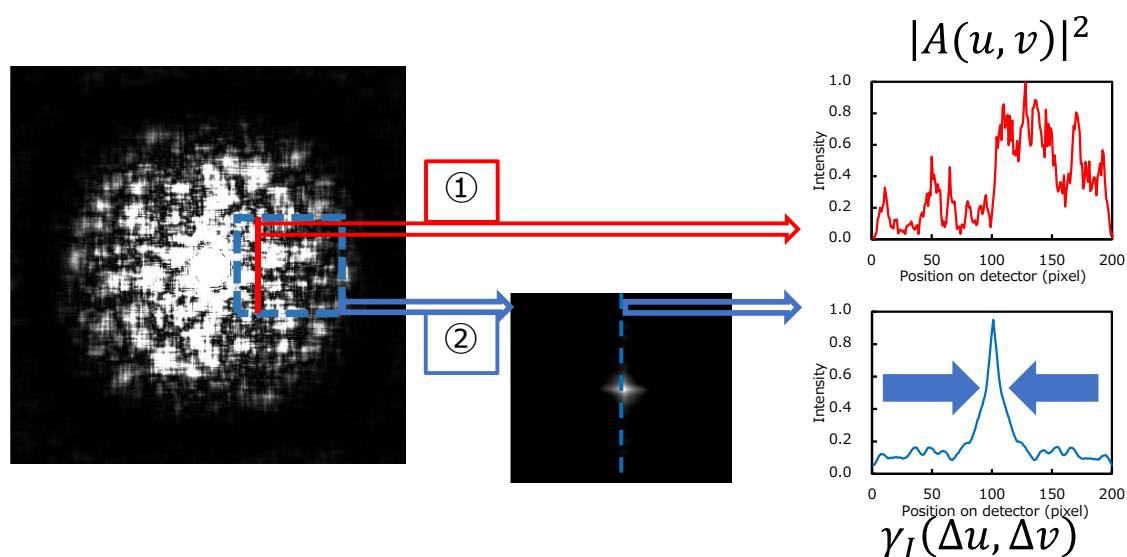


図 5.3.1.2 スペックルサイズ計測の概念図．①スペックルパターンの強度分布は局所的に複雑であるため、散乱強度分布そのものからスペックルサイズを評価することは困難である．②自己相関関数を計算することで、計算領域内の平均的な形状が求まるため、スペックルサイズを定量的に評価できる．

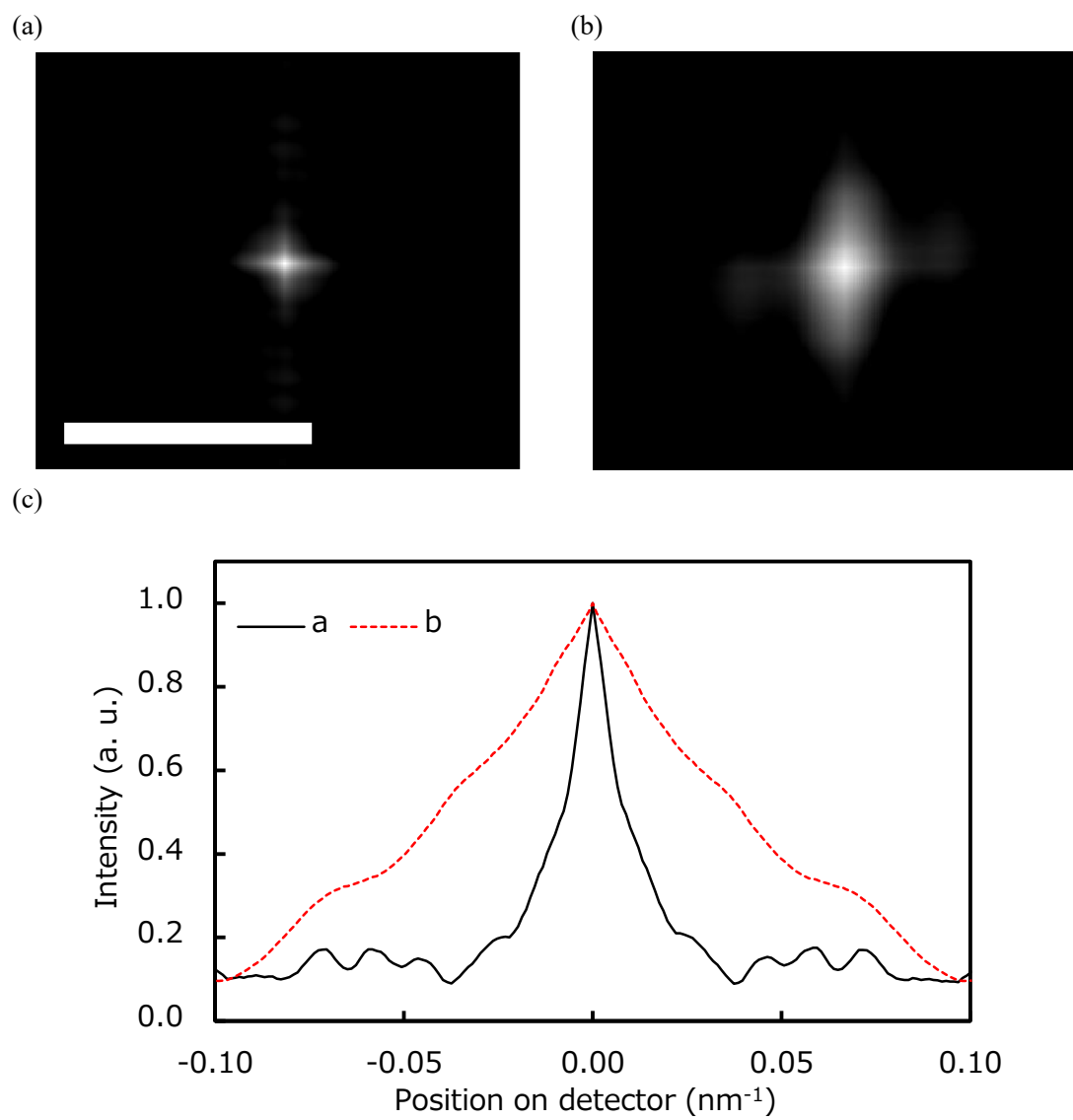


図 5.3.1.3 スペックルパターンの二次元自己相関計算結果. スケールバーは 0.1 nm^{-1} . (a) 図 5.3.1.1(a)のもの, (b)図 5.3.1.2(b)のもの. (c)(a)の垂直方向, 及び(b)の垂直方向のラインプロファイル.

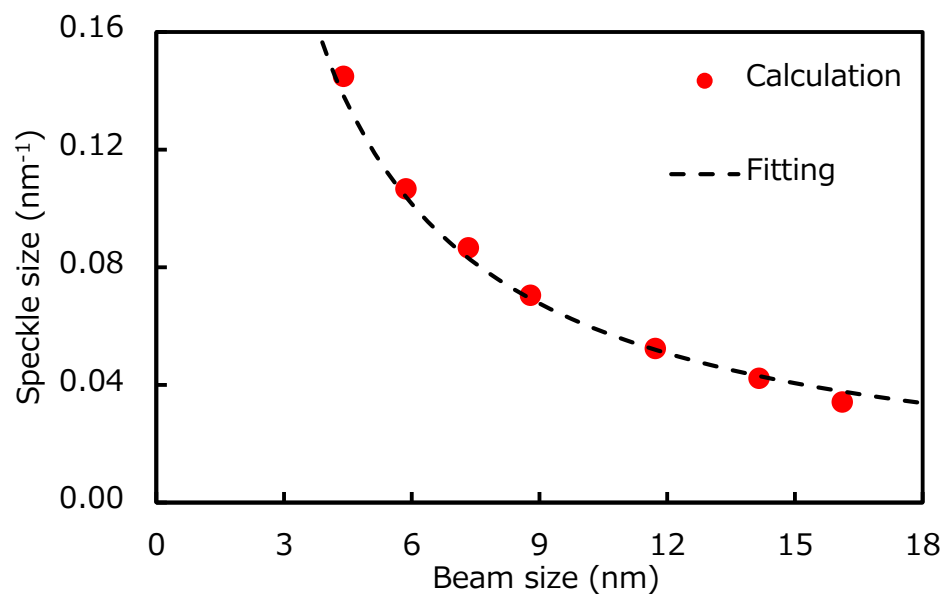


図 5.3.1.4 スペックルサイズとビームサイズの関係. 点線は $(\text{Speckle size}) = 0.6 / (\text{beam size})$ の反比例の関数である.

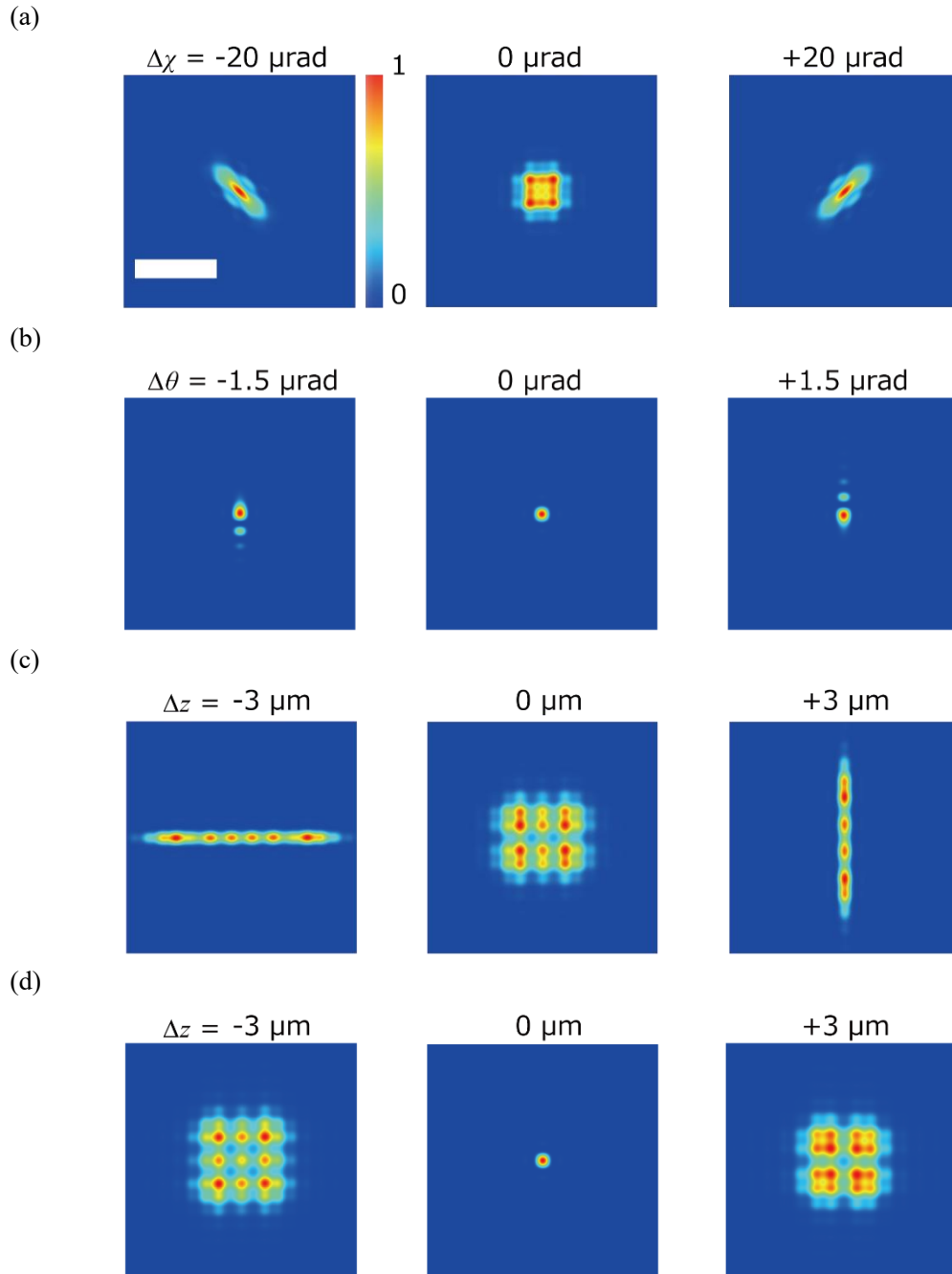


図 5.3.2.1.1 焦点付近のビームプロファイル計算結果. (a)直角度誤差 $\Delta\chi = \pm 20 \mu\text{rad}$ または $0 \mu\text{rad}$ の際, $\Delta z = 1.6 \mu\text{m}$ デフォーカス位置における強度プロファイル. (b)入射角誤差 $\Delta\theta = \pm 1.5 \mu\text{rad}$ または $0 \mu\text{rad}$ の際, 焦点位置における強度プロファイル. $\Delta z = \pm 3 \mu\text{m}$ または $0 \mu\text{m}$ の位置において, それぞれ(c)非点収差 $\Delta d = 6 \mu\text{m}$ と(d) $\Delta d = 0 \mu\text{m}$ の際の強度プロファイル. スケールバーは 50 nm .

計算結果から、各ミスアライメントは下記の通りビームを変化させた。

1. 直角度誤差はビームを傾いた楕円形状に歪ませた
2. コマ収差はビームの片側にサテライトピークを生じさせた。
3. 非点収差は垂直水平方向の焦点位置をミスマッチさせた。

全て集光ビームのメインピークにおける強度を下げる要因であるため、表 2.4.2.1 で示した精度で調整しなければならない。

5.3.2.2 ミスアライメントとスペックルプロファイルの関係

図 5.3.2.1.1 に示したそれぞれの入射波動場に対してスペックルパターンを計算した(図 5.3.2.2.1)。またスペックルパターンの平均的な形状を抽出するために、スペックルパターンの一部分(中心を除く 500×500 pixel)の自己相関関数を計算した(図 5.3.2.2.2)。これらの結果を元に、各アライメント軸に関して最適化に必要な評価基準を考察する。尚、以降のグラフにおけるスペックルの情報は全て自己相関関数を元に評価した結果である。

まず、図 5.3.2.2.2 (a)から、直角度誤差は、スペックル形状を集光方向に対して斜めに伸縮することを確認した。また、スペックルが伸縮する角度(方位角)は直角度誤差が 0 の状態を境界として 90° 変化するため、最適化するためにはミラーの直角度を変化させつつ方位角が水平、垂直になる、もしくは 90° 回転する値を必要精度以内で見つければよい。直角度を徐々に変化した際に生じるスペックルの方位角の推移を計算し、図 5.3.2.2.3 (a)にまとめた。必要精度($\pm 5 \mu\text{rad}$)の直角度誤差 $\Delta\chi$ に対して、方位角が敏感に変化することがわかり、直角度の最適化は可能であるとわかった。

次に、図 5.3.2.2.2 (b)から、入射角誤差は焦点位置におけるスペックルサイズを小さくしている。よって最適化手順は、入射角を変化させつつ焦点位置におけるスペックルサイズを評価し、最大になる状態を探すことである。垂直集光ミラーの入射角を変化させた際の焦点位置におけるスペックルサイズの変化を計算した結果(図 5.3.2.2.3(b))、必要精度($\pm 0.9 \mu\text{rad}$)以内で最大値を見つけることができるとわかり、入射角の最適化も可能であることを確認した。しかしながら、実際にミラーの入射角を変化させると必ず 2 次関数の波面収差も生じ、焦点位置が変わってしまう。そのため、実証実験において入射角を変化させるたびに光軸方向に試料を動かして焦点を探さなければ正しく入射角誤差を評価できない。必要精度が厳しいことも相まって、入射角は最も最適化が難しいと予想される。

最後に、図 5.3.2.2.2 (c)と(d)から、非点収差は垂直、水平方向のそれぞれのスペックルサイズが最大となる光軸方向の位置をずらしてしまう。そのため、最適化するためには①光軸方向に試料を走査しつつ垂直、水平両方向それぞれのスペックルサイズが最大となる位置を見つけ、②ピークの位置のずれ量だけ片方のミラーを光軸方向に動かせばよい。実際に光軸

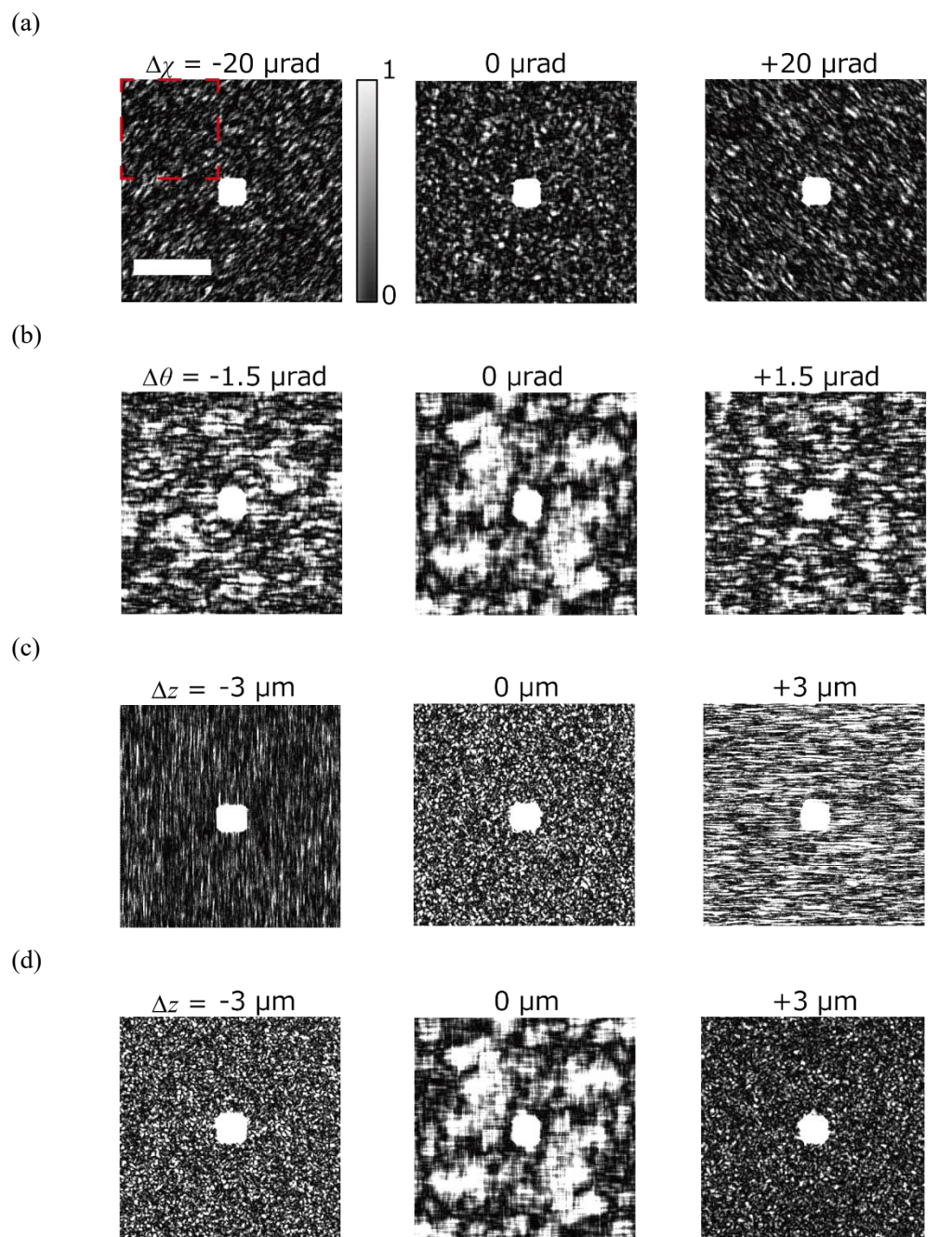


図 5.3.2.2.1 ナノ微粒子のスペックルパターン計算結果. 用いたプローブ関数は図 5.3.2.1.1 の(a)-(d)に対応している. スケールバーは 0.5 nm^{-1} である. 全ての図の中心位置は明視野である. 赤い点線で囲まれた領域が自己相関関数の計算に用いられている.

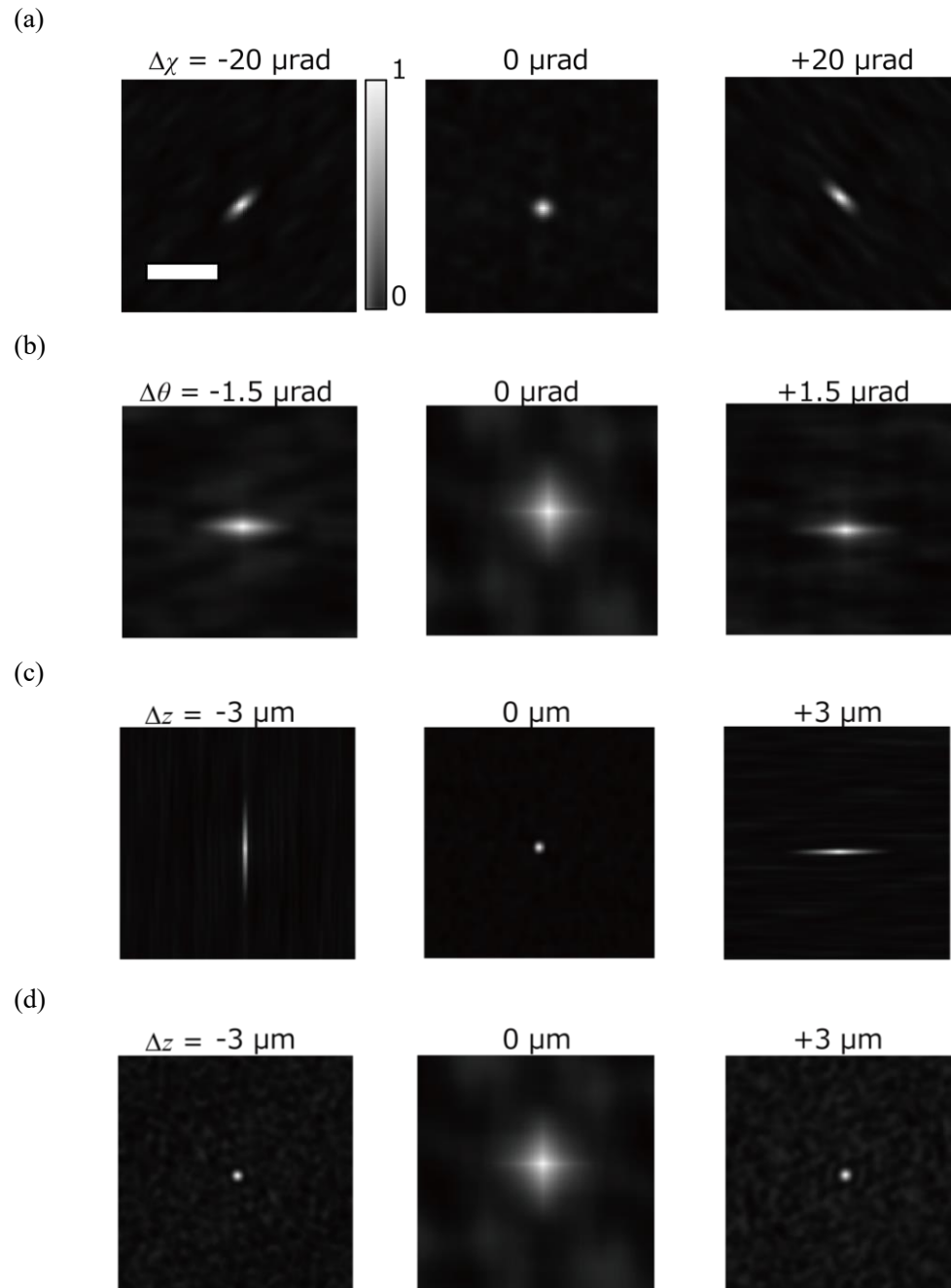


図 5.3.2.2.2 図 5.3.2.1(a)-(d)それぞれのスペックルパターンの自己相関関数. スケールバーは 0.15 nm^{-1} .

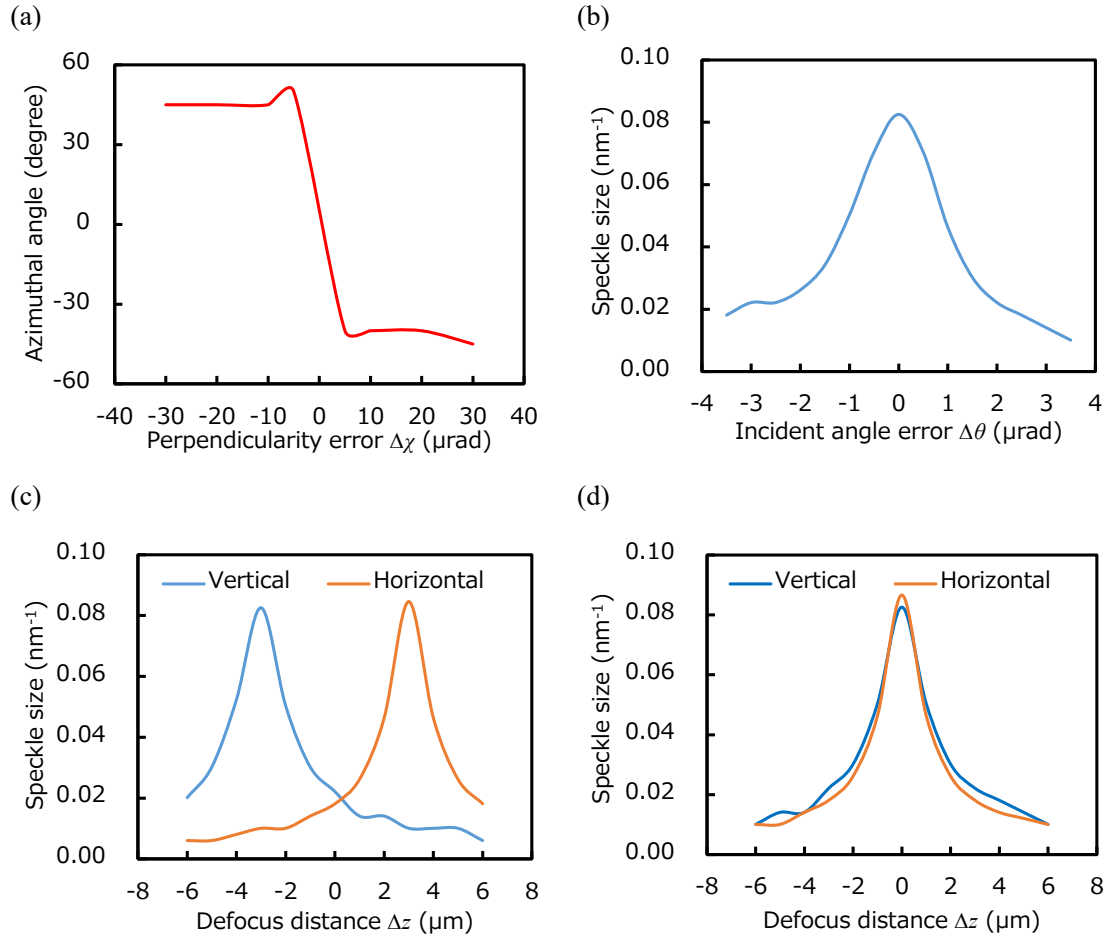


図 5.3.2.2.3 スペックルの解析結果. (a)スペックルの方位角 vs. 直角度誤差. (b)スペックルサイズ vs. 入射角誤差. (c)非点収差 $\Delta d = 6 \mu\text{m}$ の場合と, (d)非点収差が無い場合における, 垂直と水平方向のスペックルサイズ vs. 光軸方向の試料位置.

方向に沿って試料位置を変えて両方向のスペックルサイズを求めたところ (図 5.3.2.2.3(c)), ピークの位置が予め与えた非点収差の量と同じ $6\text{ }\mu\text{m}$ だけずれていることを必要精度($\pm 1\text{ }\mu\text{m}$)で検出できていた. 尚, 非点収差がない場合はピーク位置が一致しており, ピーク位置の違いが非点収差の量を表していることを裏付けている (図 5.3.2.2.3(d)).

よって, 計算機上において第 2 章で問題とした KB ミラーのすべてのアライメント軸は, スペックルの形状を解析することで評価, 及び最適化が可能であると結論づけられる.

5.4 SACLA sub-10 nm 集光光学系における実証実験

計算機シミュレーションから本手法の有用性が示されたことを受け, 実際に SACLA に導入し, sub-10 nm 集光光学系のビーム診断, 及びアライメントの最適化を試みる. 本項ではまず実験セットアップを紹介し, 次に実証実験特有のデータ解析や試料準備における検討・改善事項を述べ, 最後に KB ミラーのアライメントの調整を行った結果を検証する.

5.4.1 実験セットアップとスペックルデータの取得

実験セットアップを図 5.4.1.1 に示した. SACLA の光源パラメータは第 3 章の波面計測時と同様である. sub-10 nm 集光光学系を構築し, 最下流 (最終焦点から 600 mm) に Multi Port CCD (MPCCD) カメラ[78]を配置した (表 5.4.1.1). MPCCD の放射線損傷を避けるため, 厚み 1 mm の Ta 製 Beam Stop (BS)を光軸中に配置し, 反射光を十分に取り除いた.

スペックルを計測するためには試料サイズ由来の散乱光の発散角が光学系の開口数より小さくなくてはならず, 回折限界集光径より小さい構造を有する試料が必要である. そのため, 直径 2 nm の白金微粒子と有機溶媒の混合物 (田中貴金属工業株式会社 疎水性コロイド溶液 PtDA 粒径: 2 nm) を, SiN メンブレン (NTT-AT MEM-N020027/10M) に滴下, 乾燥させたものを試料とした. 厚みは $1,5,20\text{ }\mu\text{m}$ の 3 種類作製した. 試料厚みを 2 nm より十分大きくすることで, 試料面内の位相分布が十分ランダムになると推測される.

実験手順として, まず, グレーチング干渉計で波面計測を行い, 3 次関数の波面収差を基準に入射角を数 μrad の精度で合わせた (入射角誤差が大き過ぎるとスペックルサイズの変化が小さくなり, 最適化が難しいため, 波面基準で合わせてからがよい). 次に, 直径 $50\text{ }\mu\text{m}$ の金ワイヤーを焦点近傍に挿入してフォーコーテストを行うことで, 入射角を再調整しつつ焦点位置を探した. BS が反射光を十分隠す位置に挿入されたことを確認して, アテネーターをすべて抜いた. 上記の調整後, 微粒子試料を焦点位置に挿入し XFEL を 1 ショット照射することでスペックルパターンを取得した. 次に縦 ($500\text{--}1000\text{ pixel}$ 目) 横 ($0\text{--}200\text{ pixel}$ 目) の $500\times 200\text{ pixel}$ を選択して 2 次元自己相関関数を計算し, そのラインプロファイルを評価することで, 垂直水平方向のスペックルサイズを決定した. このとき, ポアソンノイズとチャージシェアリングを考慮して, 中心とその左右 1 pixel は除外した. 以上の条件で一度実験し, 得られたスペックルパターンを元にして, 実験の最適化を検討した.

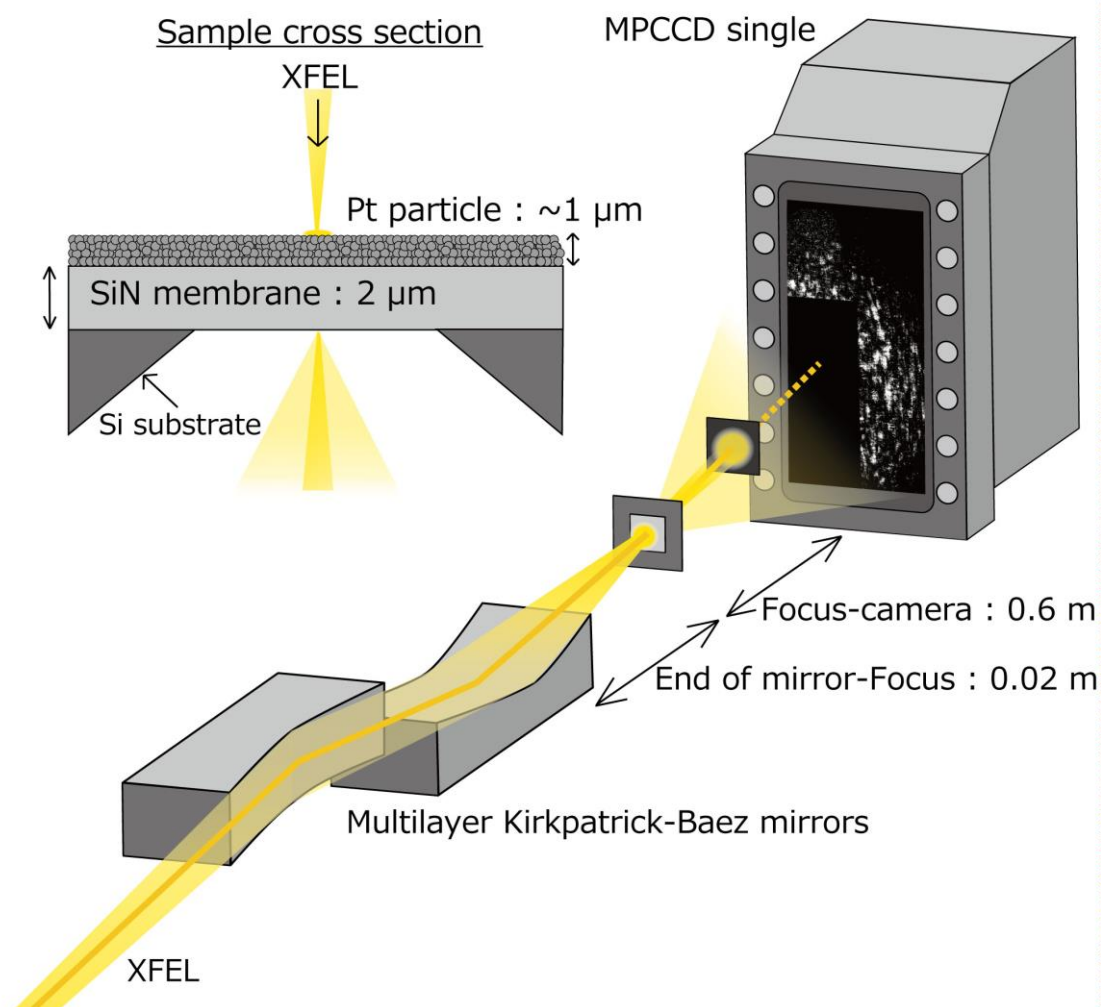


図 5.4.1.1 実験セットアップの概略図. 集光された XFEL を SiN 上に拡散された Pt ナノ微粒子に照射し, 散乱光を MPCCD で記録した. ビームストップは試料と MPCCD の間に配置されている.

表 5.4.1.1 MPCCD のパラメータ.

Pixel number	1024(V)×512(H)
Pixel size (μm)	50
Frame rate (Hz)	60
Photosensitive layer	Epitaxial Silicon
Thickness (μm)	50
Efficiency (%)	about 40

5.4.2 実験データの補正

実験で取得したスペックルパターンには計算機シミュレーションで加味していなかった問題が含まれており、正しくスペックルサイズを評価するためにデータの補正が必要であった。本項では特に、①寄生散乱の除去と②散乱体の構造に起因した散乱強度分布の規格化について検討する。

5.4.2.1 寄生散乱の除去

寄生散乱はミラー上の高周波な形状誤差に起因した散乱で、反射光の上下左右方向に広がる。そのため図 5.4.2.1.1 (a)のようにスペックルパターンと重なり、自己相関関数の計算結果に影響を及ぼす。通常、焦点直前にスリットやピンホールを置くことで物理的に取り除くが、真空チャンバや光学系の設計上ピンホールを設置できなかったため、データ上で対処しなければならない。まず1ショット目で寄生散乱ありのスペックルパターンを取得した（データ A：例えば図 5.4.2.1.1 (a)）。その後、サンプルを移動させずに同じ位置で 99 ショット分 MPCCD のデータを撮影した。1ショット目で試料は破壊されるため、スペックルパターンのない寄生散乱のみが撮影される（データ B：例えば 5.4.2.1.1 (b)）。ここで、単純にデータ A からデータ B を引き算することで、寄生散乱を無視した解析ができるように思えるが、XFEL は光源強度がショット毎に異なるため、データの規格化が必要である。SACLA のビームモニターの強度（bm4、前段集光ミラーからの反射光の強度を計測している）と、寄生散乱の強度の関係をグラフにまとめたところ、ほぼ線形の関係にあった（図 5.4.2.1.2(a)）。寄生散乱の強度は、MPCCD の全ピクセルのフォトン数を足し合わせることで求めた。実際にビームモニターの値を元にデータ A、B を規格化し、A から B を引き算した結果、図 5.4.2.1.2(b)の通り取り除くことに成功した。

5.4.2.2 散乱体の構造に起因した散乱強度分布の規格化

カメラ面内におけるスペックルの強度は、ミラーの反射光から離れるにつれて弱くなる。これは微粒子の形状に起因した散乱強度分布によるものであり、スペックルの SN 比が低い場合に、長周期の構造として自己相関関数の計算結果を変えてしまうため（図 5.4.2.2.1 (c) 補正前）、取り除く必要がある。そこでガウシアン関数に基づく疑似的な散乱光（図 5.4.2.2.1 (a)）を測定結果から割り算する工程を加えた（図 5.4.2.2.1 (b)）。本補正前後の自己相関関数の水平方向のラインプロファイルを示したが（図 5.4.2.2.1(c)規格化している）長周期形状の除去に成功していることが分かった。今後記述する結果は、全てこのデータ補正をした後に解析した結果である。

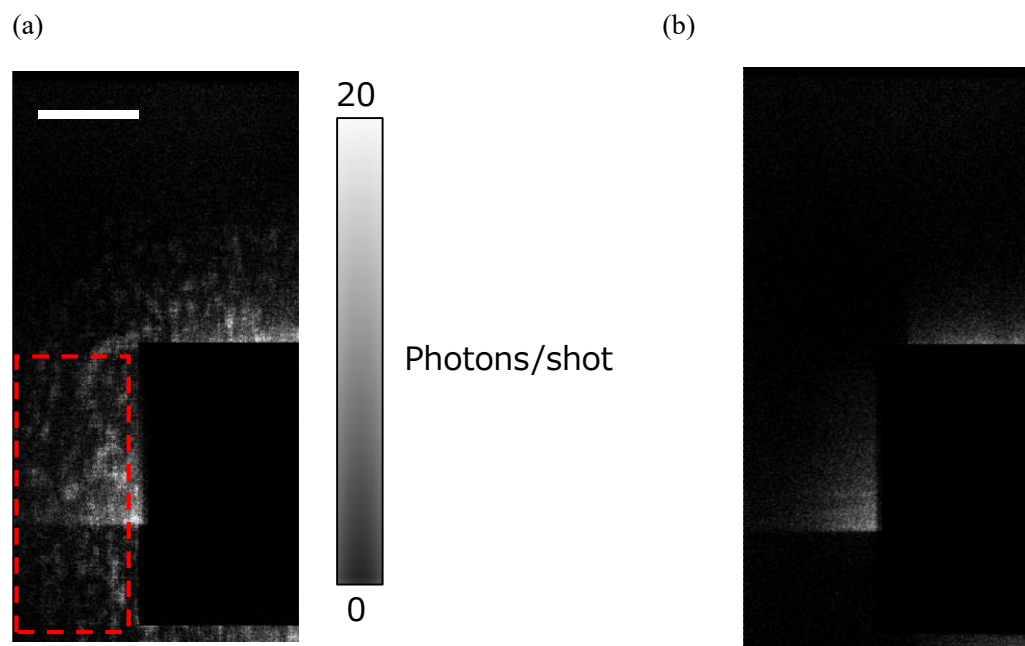


図 5.4.2.1.1 MPCCD で取得した散乱強度分布. スケールバーは $0.15 \text{ nm}^{-1}(200 \text{ pixel})$. (a) 寄生散乱とスペックルを同時取得した場合 (赤い点線が前節で記述した計算領域), (b) 寄生散乱のみ.

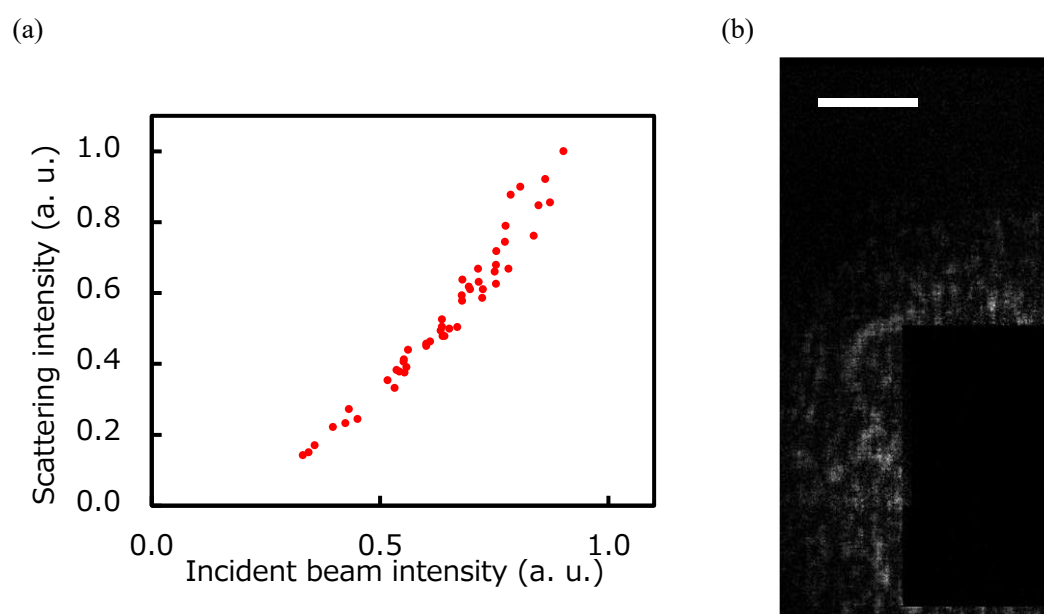


図 5.4.2.1.2 (a) ビームモニター の値と寄生散乱強度の関係. 縦軸横軸ともに計測されたカウント数の最大値で規格化している. (b) 寄生散乱除去後の図 5.4.2.1.1 (a). スケールバーは $0.15 \text{ nm}^{-1}(200 \text{ pixel})$.

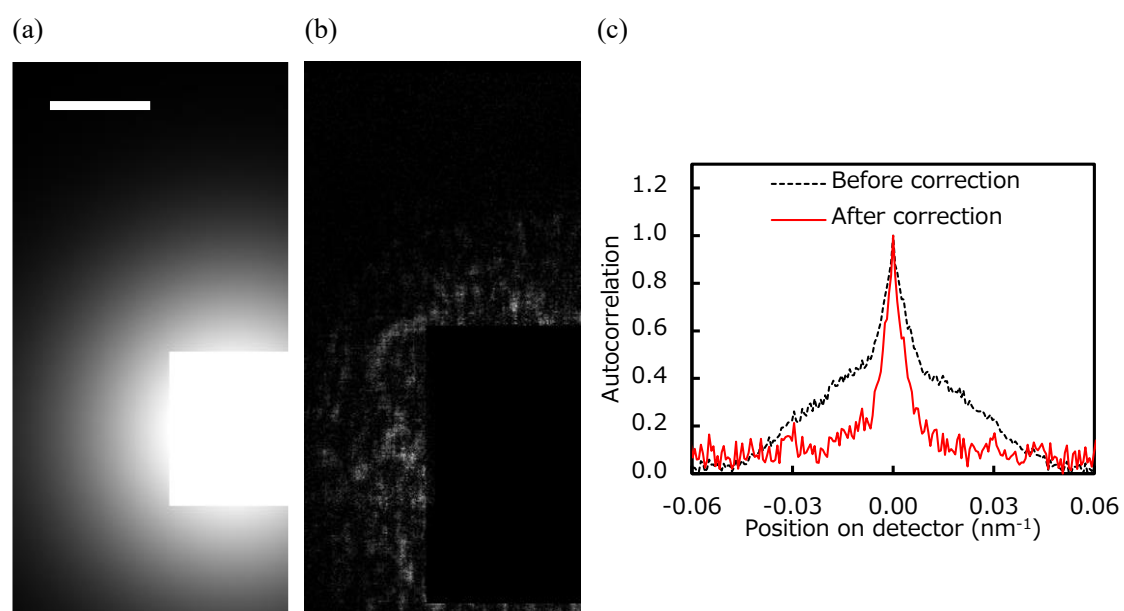


図 5.4.2.2.1 (a)ガウシアン関数で表現した散乱強度分布(中心は明視野). スケールバーは 0.15 nm^{-1} (200 pixel). (b)図 5.4.2.1.2(b)を本図(a)で割り算した結果. (c)補正前後の自己相関関数の水平方向のラインプロファイル.

5.4.3 試料準備

ここまででスペックルパターンの取得手順とデータ解析手法が確立された。本項では、ビームプロファイルの情報を確実に反映したスペックルのデータを取得するために、散乱体とする試料の構造の再検討を行った。

5.4.3.1 試料の厚みの検討

スペックルパターンの強度を高めるためには試料をできる限り厚くすべきである。本実証実験のみ、SACLA の BL3EH5 にて構築されるナノ集光システム (100 exa 集光光学系) [79]において、試料の厚みを変えて得られたスペックルパターンを示した (図 5.4.3.1.1)。尚、本画像は MPCCD ではなく表 3.3.2 で示した ORCA-flash4.0 (ピクセルサイズ: 13.0(V)×13.0(H) μm^2 , ピクセル数: 2048×2048, 露光時間はシングルショット分) で撮影された。カメラ長は 1.04 m で、X 線エネルギーは 9.1 keV であった。これまでと異なり検出器の単純なカウント数で表現しているが、バックグラウンド (100 counts/sec) よりも、スペックルの強度 (50 counts/sec) の方が弱かった。厚みが大きくなると明視野を中心に円を描くようにスペックルの形状が変化していることがわかる。これは投影近似が破綻し、式 (5.2.2) が成立していないことが原因とみなして、次に示す考察を行った。

5.4.3.1.1 投影近似の破綻

投影近似は X 線イメージングの分野で一般的に利用されている近似であり、試料を光軸方向に投影した極めて薄い物体として考える手法である。投影近似が破綻する原因の 1 つが、集光照明光学系の焦点深度 (式 (2.4.2.1)) よりも試料の厚さが大きくなる場合が挙げられる。sub-10 nm 集光光学系の焦点深度は約 1 μm 程度であるため、本考察が正しければ試料の厚みをそれ以下にしなければならない。

もう 1 つの要因として考えられるのが、散乱パターンの高角領域に現れる試料厚さの影響である。図 5.4.3.1.1.1 にエバルト球と散乱パターンの断面図の関係を示した。グレーで示した試料の厚さ方向に対応するスペックルの大きさは試料厚さ D_y の逆数で表される。投影近似はエバルト球を平面で近似することに相当し、その基準は厚さ方向の空間周波数 q_y を利用して、

$$q_y < \frac{1}{4D_y} \quad (5.4.3.1.1.1)$$

と表される [80]。つまりエバルト球が厚さ方向に対応するスペックルの 1/4 に収まっている領域では、エバルト球を平面と見なせるということである。よって、式 (5.4.3.1.1.1) より、投影近似が成立する光軸方向面内方向の最大空間周波数 $q_{x,z,\max}^{\text{projection}}$ は次のように表せる。

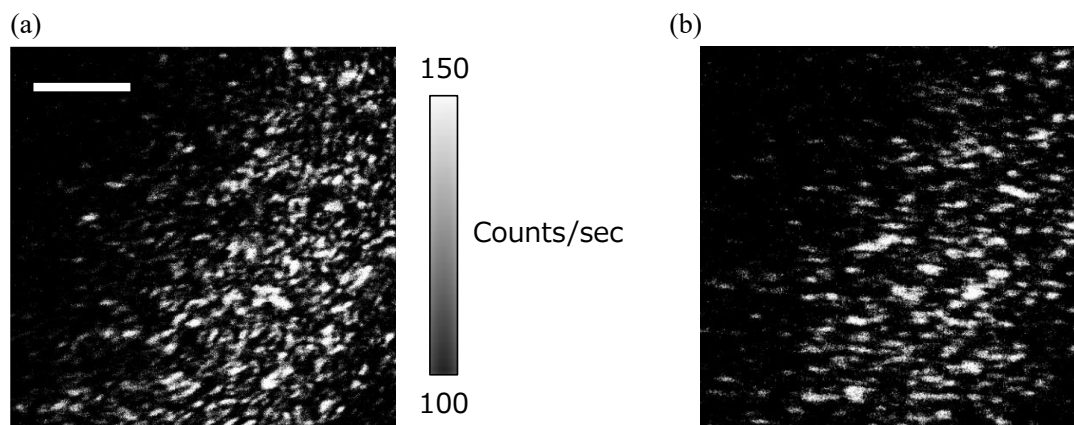


図 5.4.3.1.1 100exa 集光光学系にて取得した散乱強度分布(a)厚い試料(20 μm), (b)薄い試料(5 μm). 両図の左上が明視野である. スケールバーは 0.025 nm^{-1} (200 pixel).

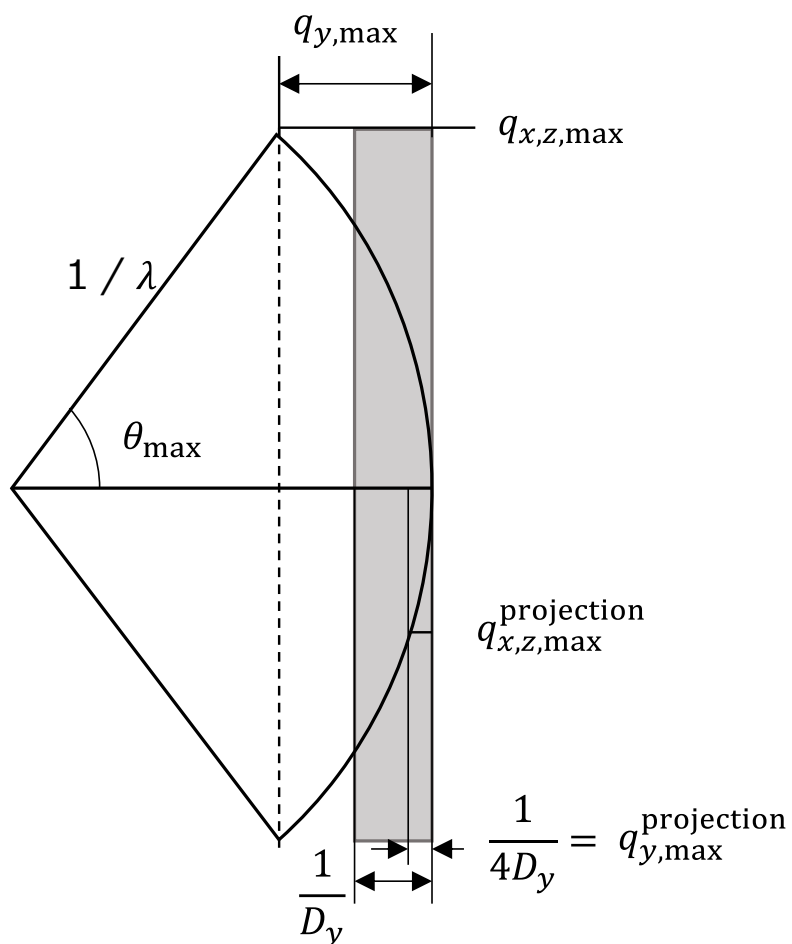


図 5.4.3.1.1.1 エバルト球と散乱パターンとの断面図の関係. $\theta_{\max}$ は最大散乱角, λ は入射 X 線の波長, D_y は試料の厚さ, q は空間周波数である.

$$q_{x,z,\max}^{\text{projection}} = \frac{1}{\sqrt{2D_y\lambda}} \quad (5.4.3.1.1.2)$$

以上より本研究の場合、開口数が多い光学系を用いて、明視野より外側の高角側でスペックルを計測する必要があるため、集光光学系の焦点深度と、計測する散乱角の2つの独立した問題が、投影近似の成立を限定していると考えられる。

まず、焦点深度の観点で議論する。回折限界条件において 100exa 集光光学系の焦点深度は、垂直集光ミラーが 35.7 μm 、水平集光ミラーが 8.6 μm である。実験結果から、試料の厚みが 20 μm の際は投影近似が破綻したことでスペックルが傾いており、5 μm の際は投影近似が破綻せず計算通りのスペックルが計測できていたことを考えると焦点深度の観点の考察は有用であるとわかった。

次に、計測する散乱角に着目して議論する。計測領域は中心から 20 mrad ほど離れた位置で、空間周波数は 0.146 nm^{-1} であった。式(5.4.3.1.1.2)の $q_{x,z,\max}^{\text{projection}}$ に代入すると、投影近似の条件が成り立つ D_y は、206.5 nm となる。これはスペックルが歪まない試料である 5 μm すらも投影近似が成り立たない計算となり実験結果と矛盾する。問題なくスペックルパターンを取得できた理由として、エバルト球に基づいた投影近似の破綻は、非常に繊細な散乱強度分布の変化にとどまり、本実験においてスペックルの形状(位相)そのものに影響を与えず、スペックルの強度をわずかに変化させる程度であったと結論付けられる。

最後に、散乱角の影響を幾何光学に基づき議論する(図 5.4.3.1.1.2)。集光径 D の光で厚み T の試料を照射し、散乱強度分布を入射光の光軸に対して θ だけ高角側で観察した場合、見かけの試料の照射領域は図 5.4.3.1.1.2 中①のように単純な集光径でなく、②の通り斜めから見る分大きくなる。本実験になぞらえて考えると、各種パラメータは $\theta = 20 \text{ mrad}$ 、 $D(\text{①}) = 200 \text{ nm}$ 、で $T = 5, 20 \mu\text{m}$ となる。 $T = 5 \mu\text{m}$ のとき、② = 300 nm となり、① = 200 nm と大差ないが、 $T = 20 \mu\text{m}$ のとき、② = 600 nm となり、見掛けのサイズが3倍大きくなるため、本観点は妥当性があると考えられる。

以上より、sub-10nm 集光光学系において、まず焦点深度の観点から投影近似が成立する条件を計算すると、垂直集光ミラーが 0.976 μm 、水平集光ミラーが 1.363 μm であるため、おおよそ 1 μm の厚みまでは許容できると結論付けられる。ただ、散乱角と幾何光学の観点より、 $D = 10 \text{ nm}$ 、 $\theta = 20 \text{ mrad}$ 、 $T = 500 \text{ nm}$ とすると、② = 20 nm となるため、2倍ほど見掛けが大きくなってしまっても考えられる。

5.4.3.1.2 マルチスライス法の導入による投影近似破綻時の散乱強度分布の再現

最後に投影近似が破綻した条件下で計測されるスペックルを、マルチスライス法を導入した計算機シミュレーションにより再現を試みた。マルチスライス法では、試料を薄い層の積み重なりとして表現し、各層ではその層における試料情報を投影した2次元試料面と層

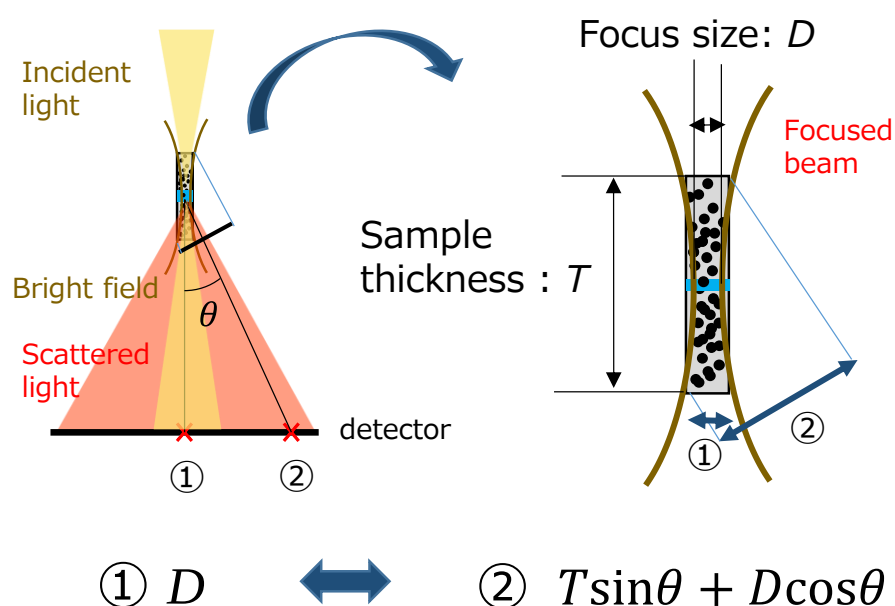


図 5.4.3.1.1.2 試料の厚みと見かけの集光径の変化の関係図. D が集光径で, T が試料の厚み. 入射光の光軸中と, 光軸に対し θ だけ高角側の位置で散乱強度分布を観察した際, 見かけのビームサイズが異なり, スペックルの形状が観察角度と試料の厚みに依存すると考えた.

の厚さ分の真空層からなると考える[81]. 真空層での波面の伝播は波動光学（角スペクトル法）[82]に則り計算した. 各層での背面波動場を逐次計算することによって, 試料中での伝播による波面の変化を考慮しながら試料の背面場での波動場を算出できる. 図 5.4.3.1.2.1 にマルチスライス法を導入した計算機シミュレーションの模式図を示した. はじめに試料をそれぞれの層では投影近似が成立する N 層に分割する. ここでは簡単に $N = 2$ とする. 次に, 前節までの計算機シミュレーション同様レンズを仮定して計算した入射波動場関数 $\varphi_{i,1}(\mathbf{r})$ と微粒子試料関数 $O_1(\mathbf{r})$, $O_2(\mathbf{r})$ を設定する. 試料全体の投影近似は成立しないが, 各層では投影近似が成り立つので, 1 層目の試料の背面波動場は, 入射波動場関数と 1 層目の試料関数を利用して,

$$\varphi_{e,1}(\mathbf{r}) = \varphi_{i,1}(\mathbf{r}) \cdot O_1(\mathbf{r}) \quad (5.4.3.1.2.1)$$

と表せる. ここで, 背面波動場を 2 層目の厚さ T だけ伝播させ, 2 層目における入射波動場関数 $\varphi_{e,2}(\mathbf{r})$ を求める.

$$\varphi_{i,2}(\mathbf{r}) = \mathfrak{K}_T[\varphi_{e,1}(\mathbf{r})] \quad (5.4.3.1.2.2)$$

$\mathfrak{K}$ は光軸方向に伝播させるオペレータを表しており, 実際には角スペクトル法を用いている. 1 層目と同様に 2 層目への入射波動場 $\varphi_{i,2}(\mathbf{r})$ と 2 層目の試料関数 $O_2(\mathbf{r})$ との積によって背面波動場 $\varphi_{e,2}(\mathbf{r})$ を算出した. 更にこれをフーリエ変換することで検出器面での波動場関数, 散乱パターンを求めた. 実際に本手法により薄い試料 ($0.8 \mu\text{m}$) と厚い試料 ($2.0 \mu\text{m}$) における散乱パターンを計算した. レンズの開口数は sub-10 nm 集光光学系に近い 10 mrad とし, 焦点深度に基づく投影近似が破綻する試料厚みは $1.36 \mu\text{m}$ であった. 試料の分割数は 2 とし, 両試料ともに各層間では投影近似が成り立つようにした. 試料関数として, 各層異なるランダムな微粒子試料を仮定した. 図 5.4.3.1.2.2 に示した計算結果から, 厚み $2.0 \mu\text{m}$ の場合のみスペックルが歪んだことが確認された. 以上より, マルチスライス法の導入により歪みの原因が試料の厚みにあることを実証した. また, $1 \mu\text{m}$ の厚みが歪みの閾値であったため, 焦点深度の観点がおおよそ正しいと確認できた. よって, sub-10 nm 集光実験に使う試料は, 白金微粒子を $1 \mu\text{m}$ 積層させたものとした.

5.4.3.2 試料保持基板の検討

試料を塗布した SiN メンブレン (270 nm 厚) に XFEL を 1 ショット照射した際, しばしば窓の全域 ($2 \times 2 \text{ mm}$) に亀裂が生じ, 使い物にならなくなってしまった. 試料が塗布されるメンブレン膜の強度が弱い (試料が乾燥, 凝集する際に, 膜に加わる負荷に耐えられず, ふとした衝撃で爆散する) ことが原因と考え, 新たに窓枠のサイズが $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ で, 厚み $2 \mu\text{m}$ の特注品 (メンブレン B : NTT-AT) に変更した. 窓枠を小さくし, 厚みを

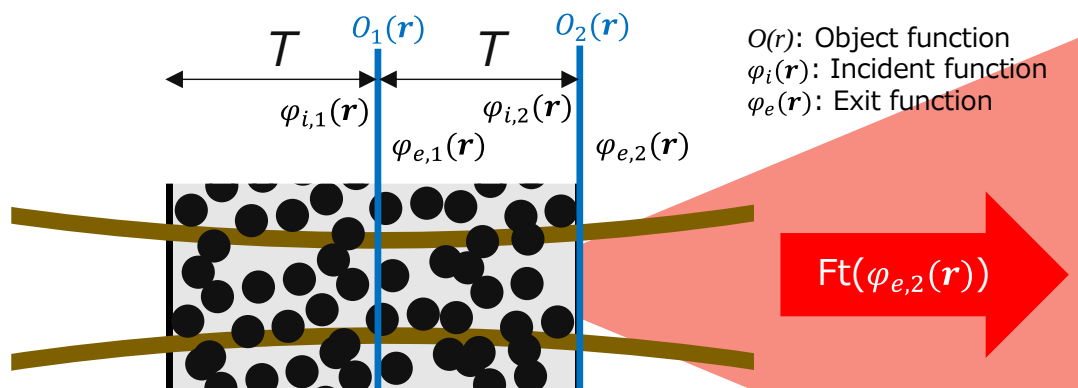
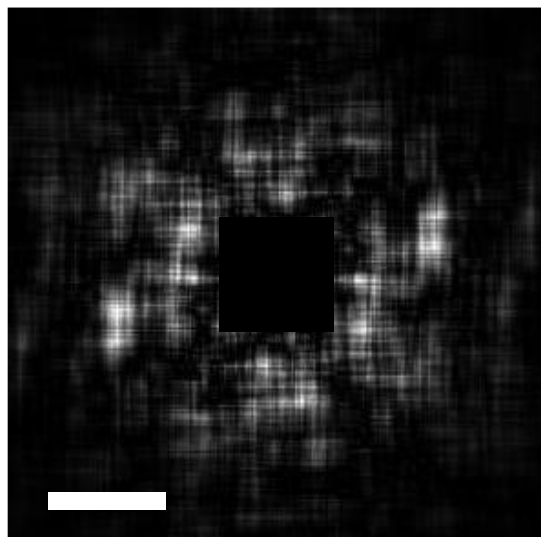


図 5.4.3.1.2.1 マルチスライス法を導入した計算機シミュレーションの模式図. 焦点付近の試料に光が入射し伝播する様を横から捕らえている. まず試料面 $O_1(\mathbf{r})$ に $\varphi_{i,1}(\mathbf{r})$ で表される光が入射すると, 試料関数と入射光を掛け合わせた $\varphi_{e,1}(\mathbf{r})$ が背面波動場として計算される, そして長さ T だけ真空中を伝播 (角スペクトル法) し $\varphi_{i,2}(\mathbf{r})$ となり, 次の試料面に照射される. そして最終的に $\varphi_{e,2}(\mathbf{r})$ が最終背面波動場として計算され, それをフーリエ変換した関数が, 投影近似の破綻も考慮した際の散乱パターンとなる.

(a)



(b)

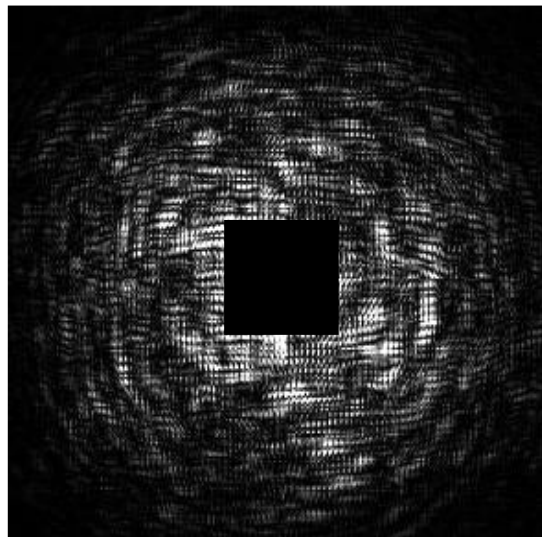


図 5.4.3.1.2.2 マルチスライス法で計算された散乱強度分布. それぞれ試料の厚みが(a)薄いとき($0.8 \mu\text{m}$)と, (b)厚いとき($2.0 \mu\text{m}$). スケールバーは 0.1 nm^{-1} (200 pixel). グレースケールは規格化.

大きくすることで、膜が負荷に耐え、割れにくくなると考えた。SACLA で実験するに、可視光のフェムト秒レーザーを用いたオフライン実験により試料強度の改善を検証した。本実験は大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻の高谷裕浩教授のご協力の下行われた。メンブレン A, B 共に白金微粒子を $1\text{ }\mu\text{m}$ になるよう塗布し、フェムト秒レーザー

(Spectra-Physics Mai Tai) を 4 msec 照射した。(表 5.4.3.2.1)。図 5.4.3.2.1 に実験後のメンブレンを光学顕微鏡 (Nikon OPTIPHOT200) で撮影した写真を示す。メンブレン A の試料は光学顕微鏡 (焦点深度: 数十 μm) のピントがずれるほど大破しており、おおよそ XFEL 実験を再現できているとわかった。一方、メンブレン B の試料は何度照射してもレーザー照射領域以外は全く壊れることは無かった。メンブレン A が XFEL の再現をしているのであれば、メンブレン B の結果も XFEL 実験を再現していると考えられ、XFEL によって全損しない試料の作製に成功したと考えられる。

5.4.4 実験結果

5.4.4.1 スペックル干渉計によるミスアライメントの実測

再び、SACLA の sub-10 nm 集光光学系において行った実験結果について詳述する[83]。計算機シミュレーションと同様の手順を踏み、各アライメント軸を独立して評価することを試みた。尚、厚みが $1\text{ }\mu\text{m}$ の白金微粒子に照射しスペックルを取得したが、前節のような厚みの影響による歪みは見られなかった。そのため、スペックルの形状評価において、焦点深度による投影近似の破綻が支配的であると結論付いた。以降の散布図の各点は 3-10 枚のスペックル画像を元に解析された結果の平均値で、エラーバーは標準偏差(σ)である。

まず、直角度を $10\text{ }\mu\text{rad}$ ピッチで変化させ、スペックルの方位角を計測した結果を示した (図 5.4.4.1.1)。計算機シミュレーション同様、方位角は 0 度付近でのみ一気に変化していた。これらからスペックルがまったく傾かないときの直角度を最適値とすると、 $\pm 5\text{ }\mu\text{rad}$ の必要精度で決定でき、直角度の調整が可能であると明らかにした。尚、非点収差があったため、方位角が 45° ではなくなっている。

次に、垂直水平集光ミラーともに、①入射角を変化させ、②試料を光軸方向に走査し、③スペックルサイズが最も大きくなった時の値をグラフにまとめた。(図 5.4.4.1.2)。両方向共に最適な入射角を、 $\pm 0.5\text{ }\mu\text{rad}$ の必要精度を十分に満たして決定できた。第 4 章より、水平集光ミラーの形状精度が悪いことから集光ビームに多数のサイドピークが生じており、焦点位置のビームが太って見える。そのためスペックルサイズのピーク位置が比較的決定しづらいが、十分最適化に必要な計測精度であった。

そして、入射角を変化させると焦点が光軸方向に移動するため、最後に非点収差を評価した。計算機シミュレーション同様に、試料を光軸方向に移動させて各位置におけるスペックルサイズを 2 次元同時に計測した結果を示した (図 5.4.4.1.3)。このグラフから、垂直水平方向の焦点位置が光軸方向に沿って $13\text{ }\mu\text{m}$ 異なることがわかった。2 つのピーク位置の違いの検出精度は約 $\pm 1.0\text{ }\mu\text{m}$ で必要精度と同等であり、非点収差も調整可能と分かった。

表 5.4.3.2.1 フェムト秒レーザーのパラメータ.

Wavelength (nm)	800
Numerical aperture	0.5
Focus size (μm)	1.0
Average power (W)	1.5
Repetition late (MHz)	80

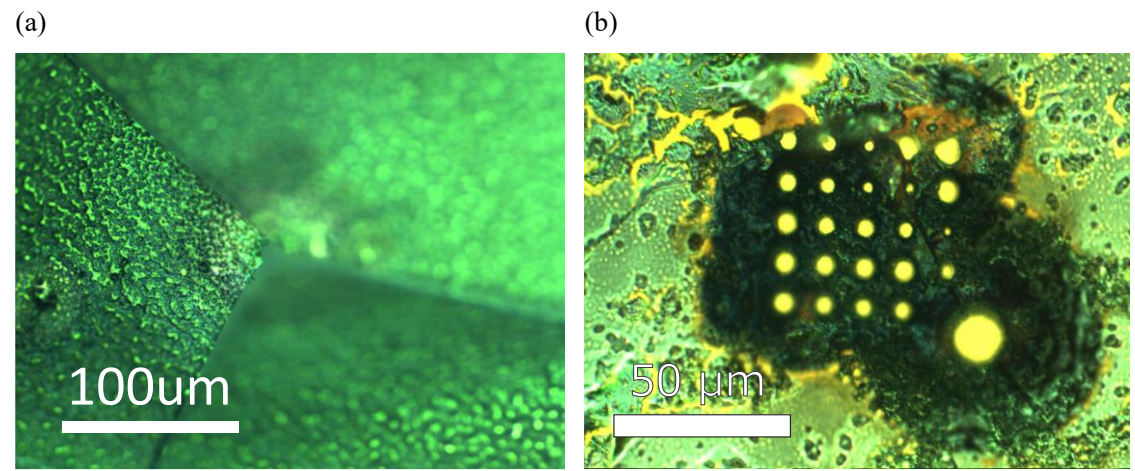


図 5.4.3.2.1 フェムト秒レーザーの照射実験後に、光学顕微鏡で表面を観察した結果. (a) メンブレン A を用いた試料, (b)メンブレン B を用いた試料.

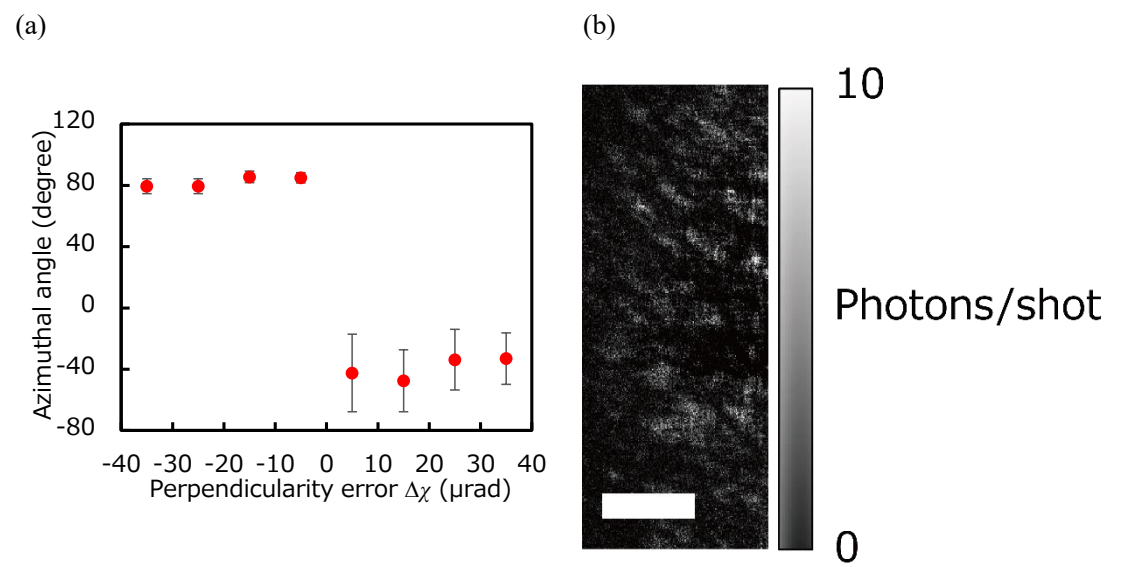


図 5.4.4.1.1 (a)直角度の変化とスペックルの方位角の関係. 必要精度である $\pm 5 \mu\text{rad}$ を満たしている. (b) $\Delta\chi = 35 \mu\text{rad}$ の時に撮影されたスペックルパターン. スケールバーは 0.06 nm^{-1} .

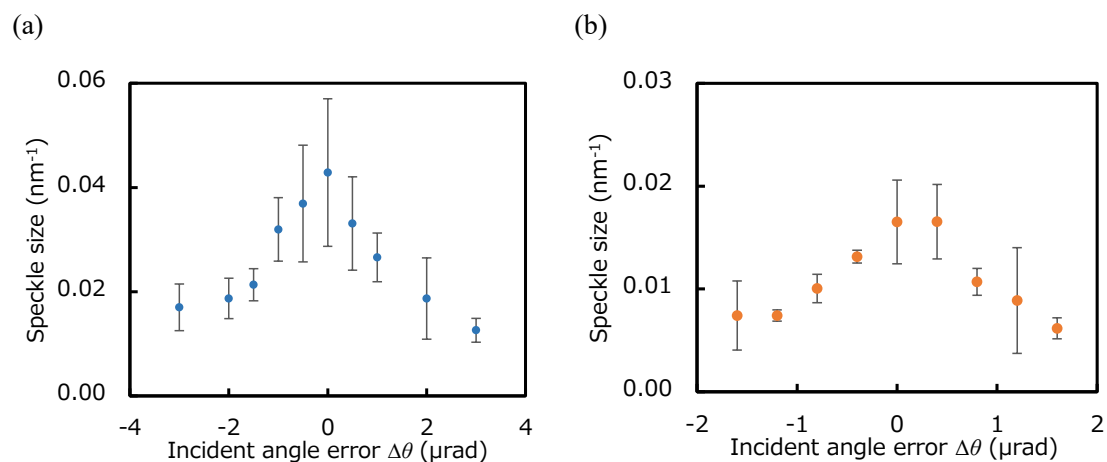


図 5.4.4.1.2 焦点位置における，入射角誤差とスペックルサイズの関係．(a)垂直方向，(b)水平方向．

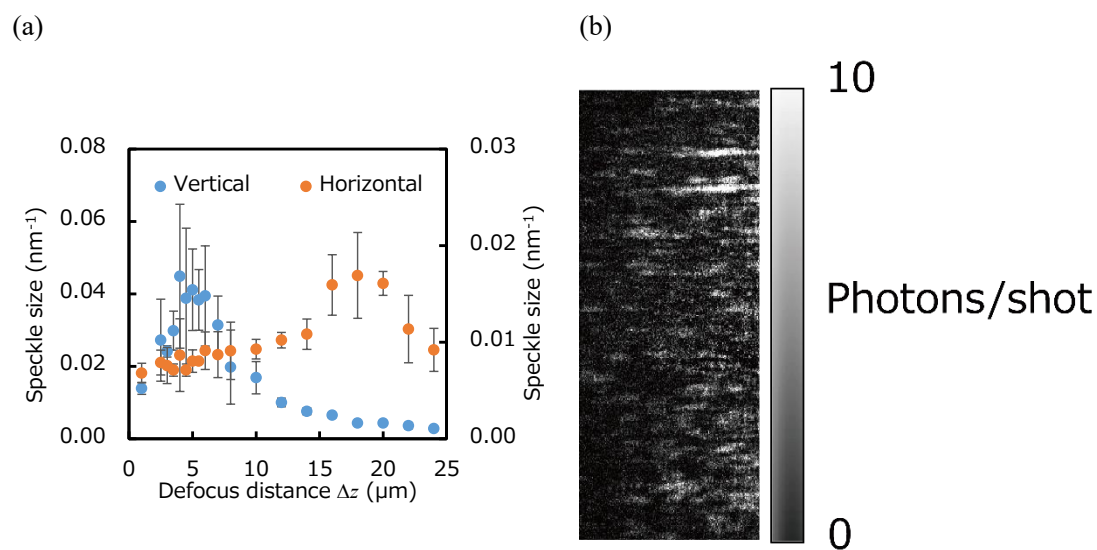


図 5.4.4.1.3 (a)非点収差が存在する場合の垂直と水平方向のスペックルサイズ vs. 光軸方向の試料位置．(b) $\Delta z = 16 \mu\text{m}$ の時に撮影されたスペックルパターン．スケールバーは 0.06 nm^{-1} ．

5.4.4.2 アライメントの最適化と集光状態の評価

実際にアライメントを最適化した．ナイフエッジスキャン法や格子干渉計を用いて従来通りアライメントを調整した後に図 5.4.4.2.1 (a)のスペックルパターンを得た．前項までの結果を参考に，スペックル形状を元にアライメントを調整した後，図 5.4.4.2.1 (b)のスペックルパターンを得た．スペックルが大きくなっていることから，ミラーアライメントの調整に成功したことが確認できる．垂直方向のスペックルサイズが水平方向よりも大きいことが、これは水平方向集光ミラーの波面収差が垂直方向集光ミラーよりも大きいこと、及び水平方向集光ミラーの入射角が、温度変化の影響でずれてしまったことが原因である．ミラーステージは真空環境下にあるため、入射角を調整する過程でマニピュレータが温まり、長時間にわたりミラー位置がドリフトしてしまったと考えられる．

次に、垂直集光ミラー由来の波面収差（グレーチング干渉計により計測）を用いて、アライメントが最適化された状態におけるスペックルパターンと、その自己相関関数を計算機シミュレーションにより求めた．また、調整前後で得られたスペックルパターンについても自己相関関数を計算し、その垂直方向のラインプロファイルと比較した（図 5.4.4.2.1 (c)調整前, (d)調整後）．それぞれのグラフにおいて、赤線は実験で得られた複数枚のスペックルパターンの平均値、ピンクの領域はその標準偏差値で、黒線は波面収差を元に計算した結果である．特に図 5.4.4.2.1 (d)では、実験値と波面に基づく計算値がよく一致していた．そのため、スペックルパターンからビームを高精度に診断し、アライメントの最適化に成功していると確認できた．また、集光径の FWHM は 5.8 ± 1.2 nm と計算された．スペックルとビームサイズの不確定性は、スペックルサイズを評価するにあたり、十分な計算領域が確保されていないことによるものである．スペックルサイズとビームサイズをより正確に決定するためには、直径 2 nm 以下の微粒子を用意し、スペックルが計測できる領域をより広げなければならない．

そして、水平集光ミラーのアライメントを調整した直後に撮影された、スペックルプロファイルを示した(図 5.4.4.2.2 (a))．アライメント最適化時と比較するために、水平集光ミラーの波面計測結果を元にスペックルプロファイルの自己相関関数を計算し、図 5.4.4.2.2 (a)の自己相関関数の水平方向プロファイルと比較した（図 5.4.4.2.2 (b))．参考のために、全アライメント軸の調整前後で得られたスペックルの自己相関関数の水平方向プロファイルとも比較した（つまり図 5.4.4.2.2(c), (d)は、それぞれ図 5.4.4.2.1 (a), (b)の水平方向である）．その結果、水平集光ミラーの入射角を合わせた直後の結果は、波面収差に基づく計算値とよく一致しており、このとき集光径の FWHM は 5.9 ± 1.4 nm であると計算された．このように、調整直後には理想的に集光されていたが、安定性が悪く、他のアライメント軸を調整する僅かな時間で、入射角がずれてしまったと推測される（図 5.4.4.2.2(d))．一方で、両ミラーともにサイズ 10 nm 以下に集光できる状態までアライメントを最適化することに成功したことは確認できた．よって提案したスペックル干渉計に基づくビーム診断法、及びアライメント調整は有用であると結論付けられる．

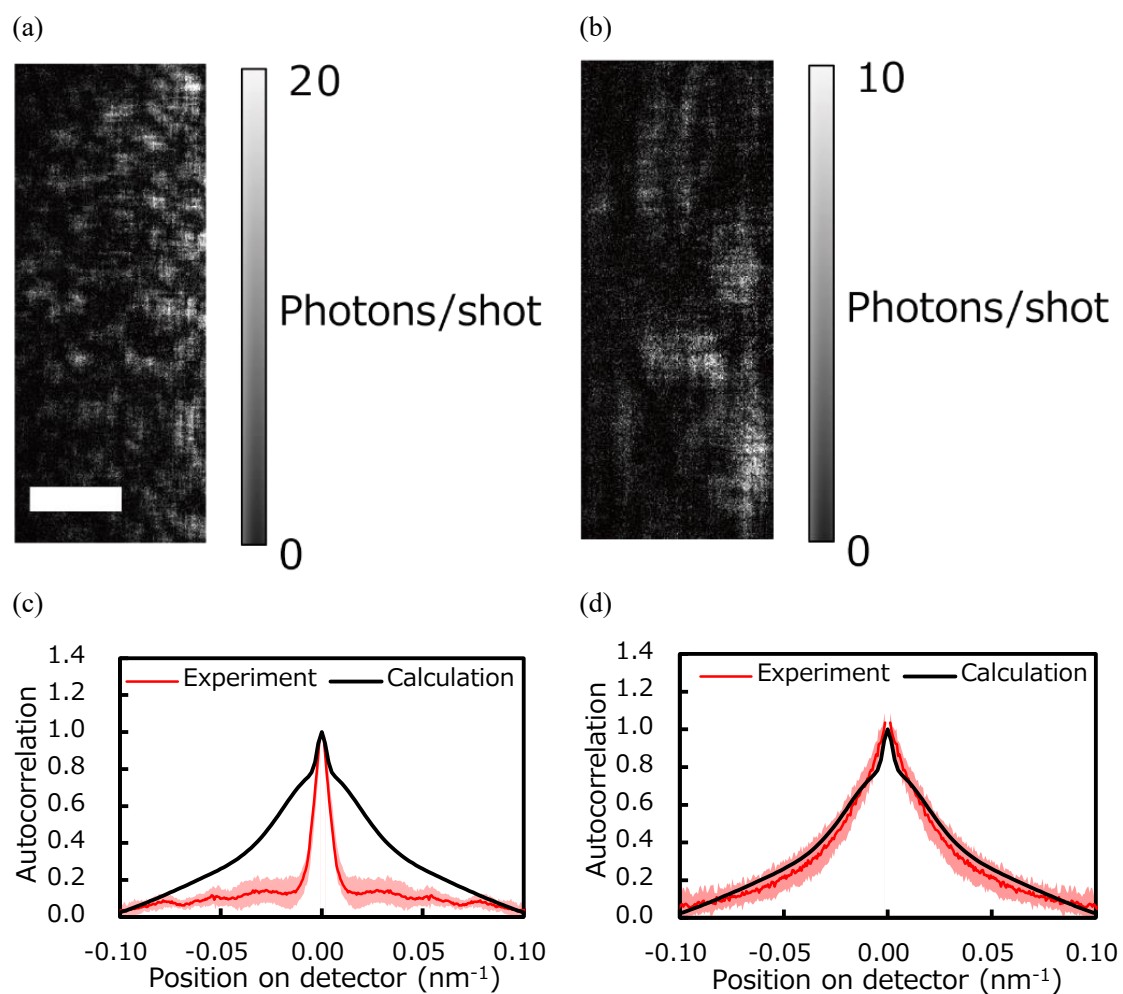


図 5.4.4.2.1 スペックル強度分布の比較 ((a)調整前, (b)調整後). スケールバーは 0.06 nm^{-1} . 自己相関関数の垂直方向のラインプロファイル ((c)調整前, (d)調整後). 赤線は実験で得られた複数枚のスペックルパターンの平均である ((c)10 枚, (d)17 枚). ピンクの領域は標準偏差を表し, 黒線は, アライメントが最適化されたときに計測されると考えられる計算値である.

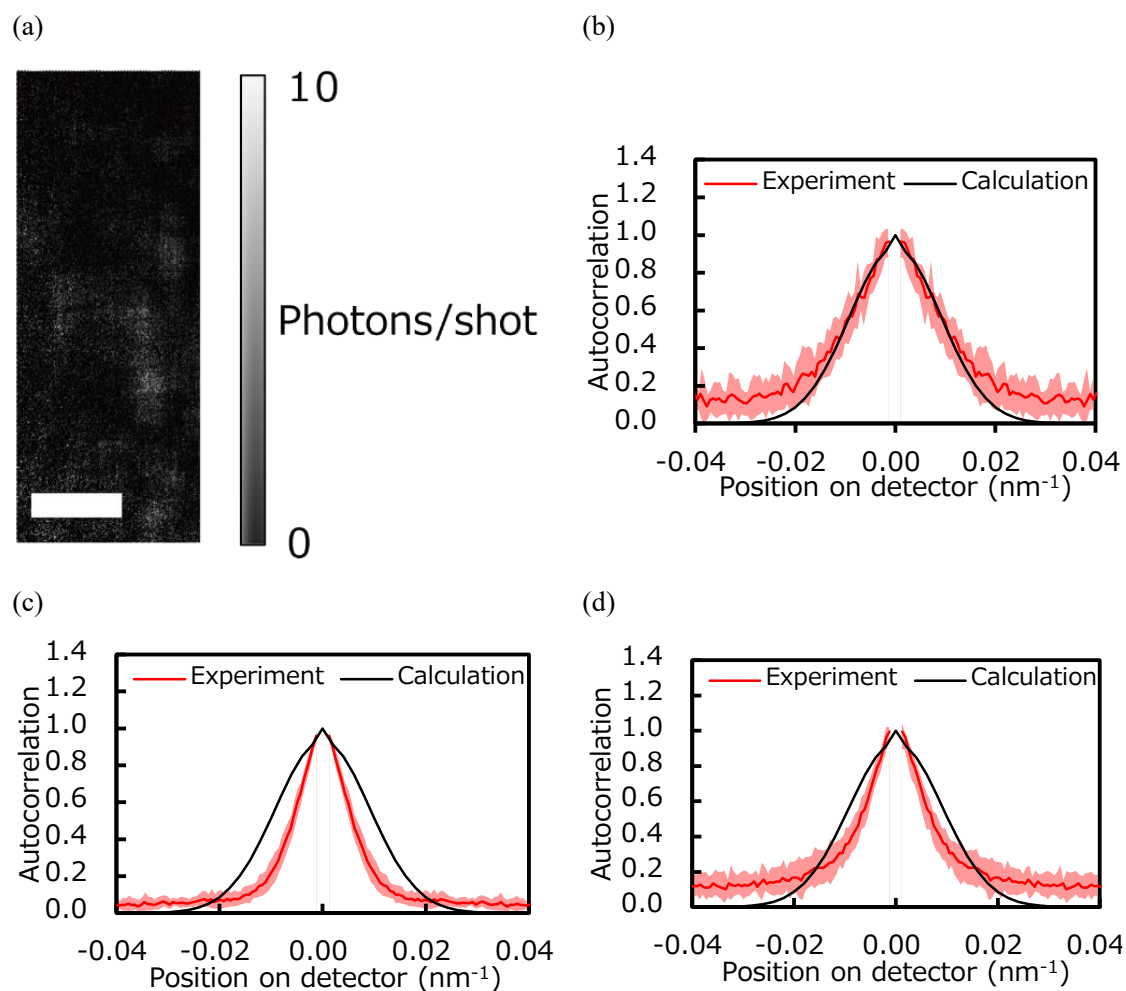


図 5.4.4.2.2 (a)水平集光ミラーの入射角が最適化された直後に計測されたスペックル．スケールバーは 0.06 nm^{-1} ．自己相関関数の水平方向のラインプロファイル (b)水平集光ミラーのみ調整直後，(c)全軸調整前 (5.4.4.2.1(a)と同じ状況) (d)全軸調整後 (5.4.4.2.1(b)と同じ状況)．赤線は実験で得られた複数枚のスペックルパターンの平均である ((b)12枚，(c)10枚，(d)17枚)．ピンクの領域は標準偏差を表し，黒線は，アライメントが最適化されたときに計測されると考えられる計算値である．

5.5 結言

本章では、ビーム診断法としてコヒーレント X 線の散乱現象により生じるスペックルを利用した手法を提案した。スペックルの变化からミラーアライメントを必要精度以内に調整可能であることを、計算機シミュレーションと実証実験に基づき検討・確認した。以下に要点をまとめる。

- (1) 試料にコヒーレントな光が照射された際に生じるスペックルパターンに、照明領域の情報が含まれる原理を説明した。また計算機シミュレーションにより、スペックルサイズとビームサイズが反比例の関係を示すことを明らかにした。
- (2) 各ミスアライメントとビームプロファイルの関係を、計算機シミュレーションにより示した。また、スペックルパターンから、全てのアライメント軸の誤差を独立して評価できるか調査した。直角度誤差は、スペックルの方位角を計測することで調整が可能であると確認した。入射角誤差は焦点におけるビームサイズを大きくするため、焦点位置でのスペックルサイズを評価することで調整が可能であると確認した。そして、非点収差がある場合、垂直水平方向の集光点が光軸に沿って異なるため、スペックルサイズを2次元同時に評価した際のピーク位置を元に調整が可能であると確認した。
- (3) 実証実験の装置構成を示した。試料を散布させるメンブレンが破壊されてしまうことが多々あったため、膜厚を大きく ($270\text{ nm} \rightarrow 2\text{ }\mu\text{m}$) し、窓枠を小さく ($2\text{ mm} \rightarrow 1$ 又は 0.5 mm 四方) することで改善させた。正確にスペックルサイズを評価するために、ミラー由来の寄生散乱、及び微粒子試料の構造に起因した強度分布の影響を取り除く処理を提案、実証した。試料として、散乱光をできる限り広げるために、粒径 2 nm の白金微粒子を採用した。また、試料が厚いとスペックルが歪む原因として、焦点深度による幾何光学的要因が支配的であることを、実証実験及びマルチスライス法を導入した計算機シミュレーションによって確認し、sub-10 nm 集光光学系での実験における試料の厚さを $1\text{ }\mu\text{m}$ 程度と決定した。
- (4) 実際にスペックル形状を元にミラーのアライメント調整を行ったところ、全てのアライメント軸を必要精度の範囲で最適化することに成功した。調整後に取得されたスペックルは、波面計測結果から予想されたものとほとんど矛盾無く、サイズ 10 nm 以下の集光が実現していることを確認した。

第 6 章

Wolter III 型配置に基づく新型 sub-10 nm 集光光学系の開発

6.1 緒言

第 5 章までで、2 組の KB ミラーを用いた sub-10 nm 集光光学系（以降、旧型 sub-10 nm 集光光学系）を設計・構築した。そして、グレーチング干渉計に基づく精密波面計測手法と、スペックル干渉計に基づくビーム診断法を開発したことにより、XFEL をサイズ 10 nm 以下に集光できた。しかしながら、KB ミラーは必要アライメント精度が厳しく、調整に時間がかかる上に安定性に乏しい。非線形 X 線光学現象の観察など応用実験を実施するためには統計的データの取得が必要であり、スムーズな集光調整と、集光状態の安定性が重要である。この問題に対して、第 6 章では Wolter III 型配置に基づく Advanced KB (AKB) ミラー集光光学系の開発に着手する。まず、Wolter ミラーと AKB ミラーの概要について述べ、AKB ミラーに基づく sub-10 nm 集光光学系（以降、新型 sub-10 nm 集光光学系）を紹介する。次に、波動光学に基づいた計算機シミュレーションにより本光学系の利点を述べる。また、本光学系における多層膜の高反射率化を検討する。そして SACLA にて実際に光学系を構築し、これまでに開発してきた精密波面計測と差分成膜により、回折限界条件の達成を試みる。

6.2 X 線ミラー結像光学素子

KB ミラーは X 線結像光学素子として提案されたが、その実視野が狭い。図 6.2.1 に示した通り、光源が同一面内であっても、焦点面から大きく外れた位置にコマ収差を伴いつつ集光される。これは光源位置が不動である場合、ミラーアライメントの入射角軸に誤差があることに相当する。そのため、結像特性を有するミラー光学素子を適用することでコマ収差が低減され、安定した集光光学系の実現につながると推測される。

6.2.1 Wolter ミラー

Wolter ミラーは共通焦点を有する回転曲面 2 枚で構成された結像光学素子である(図 6.2.1.1)[84]。物点から発せられた光は 2 つの曲面で反射したのち、像点に達する。回転面を

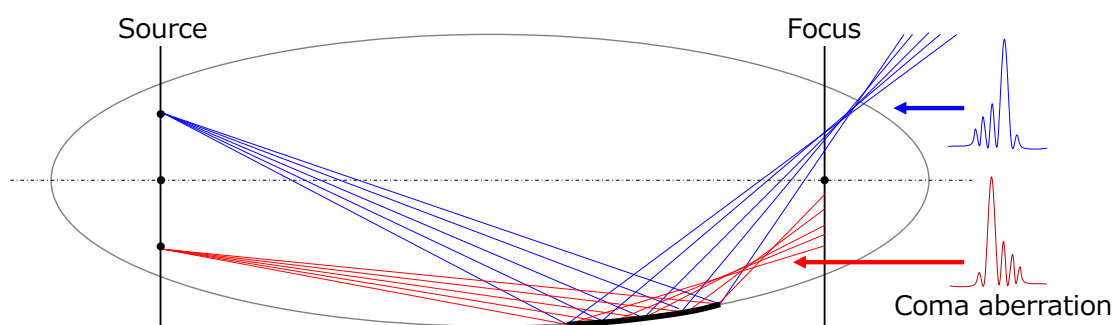


図 6.2.1 KB ミラーにおける光線図. 光源が同一面内であっても焦点面に結像できず, コマ収差も伴ってしまう.

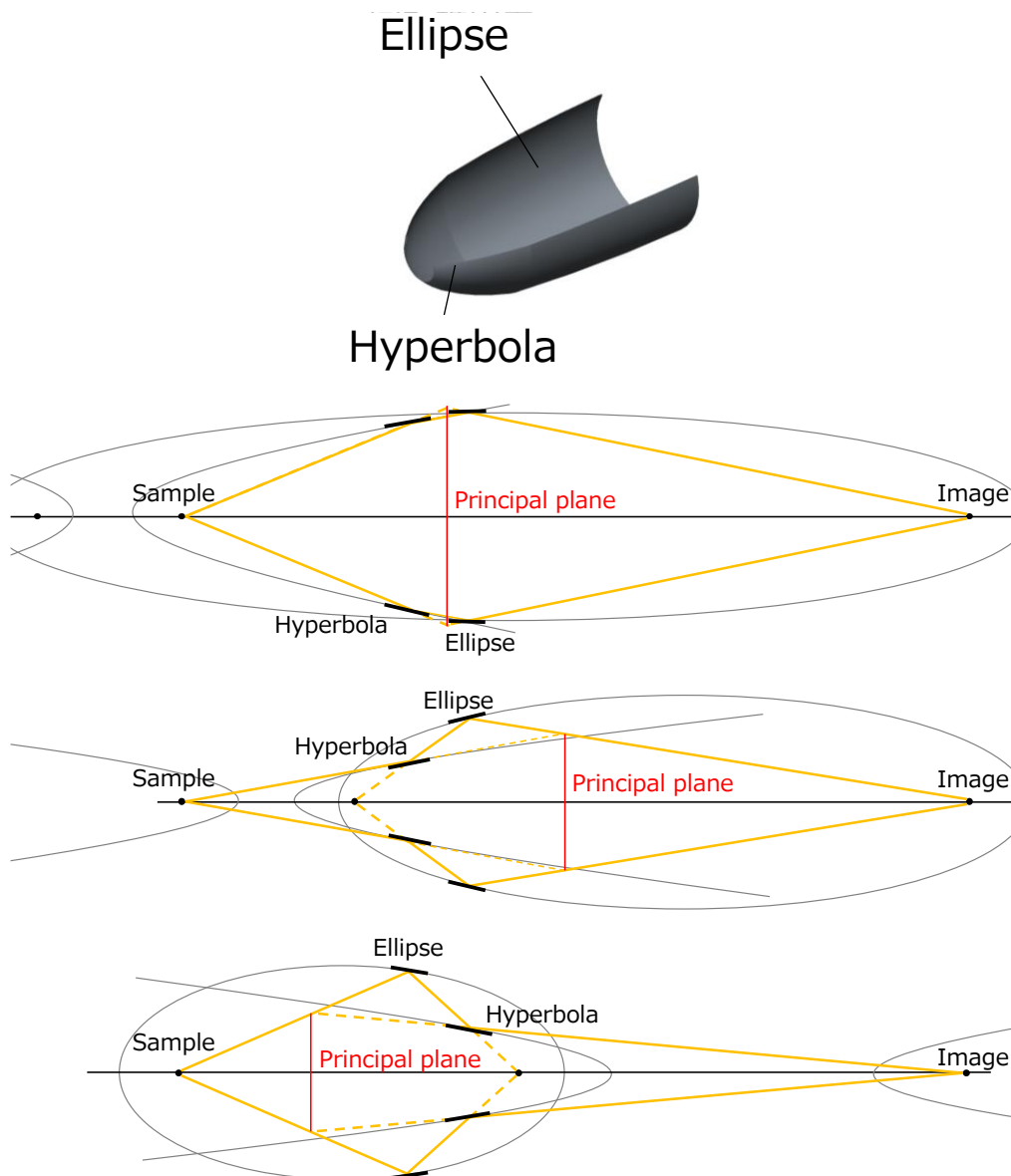


図 6.2.1.1 Wolter ミラー (I 型). 光線図は上から I 型, II 型, III 型である.

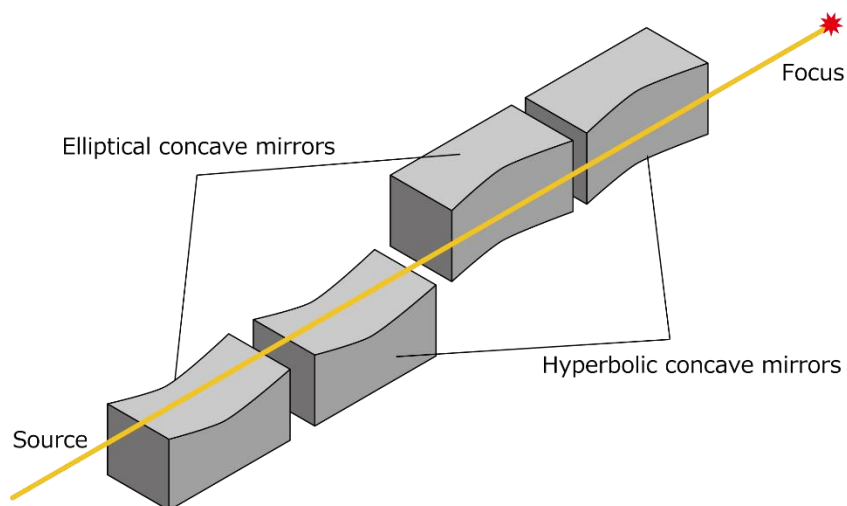
用いるため、理想的な2次元集光・結像が達成される。また単枚の楕円ミラーと異なり、2枚の非球面からなる Wolter ミラーでは Abbe の正弦条件を近似的に満たす(6.2.2 節に詳述)ため、コマ収差を低減でき、物点から離れた点を通じた光もほとんど収差なく像点付近に結像できる(視野が広い)。実像を結ぶ Wolter ミラーは曲面の組み合わせ方で主に3種類存在する。物点側から、双曲凹ミラー、楕円凹ミラーを経由する Wolter I 型配置、双曲凸ミラー、楕円凹ミラーを経由する Wolter II 型配置、そして楕円凹ミラー、双曲凸ミラーを経由する Wolter III 型配置である。これらの配置の特徴的な違いは主面の位置にある。主面は、物点を射出する光線と、像点に入射する光線の交点で与えられる。そのため、I 型では2枚のミラーの間、II 型では像点側、III 型では物点側に存在する。ここで結像光学系の拡大倍率は、 $(\text{像面}-\text{主面間距離}) \div (\text{物点}-\text{主面間距離})$ で求まるため、III 型が最も倍率を稼げる光学配置である。II 型と III 型配置はミラーの反射面が対向しており、I 型と比べて一体化で作ることが難しいため、主に I 型ミラーが実用化されてきた。また、宇宙望遠鏡など一体化しない場合においても、対向配置ではマウント機構が複雑化することから、やはり I 型配置が積極的に利用されている。しかしながら、サジタル方向(回転軸に対し直交方向)の曲率半径が数 mm 程度と小さく、高精度な形状の作製・計測が非常に困難であるため、回折限界性能のために数 nm オーダーの形状精度を必要とする硬 X 線領域において高性能化はあまり進んでいない。

6.2.2 Advanced KB ミラー

Advanced KB(AKB)ミラーは、1次元に楕円(または放物線)と双曲の形状が作りこまれたミラーを組み合わせる Wolter ミラーの光学配置を形成し、さらにそれらを2組用意して直交直列に配置(KB 配置)した光学素子である(図 6.2.2.1) [85, 86]。Wolter ミラーと異なり、1枚1枚のミラーはタンジェンシャル方向のみに曲率を有し、サジタル方向は平面形状であるため、Wolter ミラーの視野の広さを享受しつつ、高精度なミラー形状の計測・作製が可能となる。特に Wolter I 型配置に基づく AKB ミラーは、ミラーペア(1次元の集光における楕円・双曲面の組み合わせ)を1枚の基板上に一体型で作製することが容易であるため、アライメント等を非常に簡略化できる。これまでに、AKB ミラーに基づく結像型硬 X 線顕微鏡が開発され、線幅 50 nm 構造の解像、及び広波長範囲に適用可能な XAFS イメージングの実現が報告された[87, 88]。

Wolter ミラーや AKB ミラーが Abbe の正弦条件を近似的に満たすことは、幾何学的倍率に対する等式を変形することで証明できる。図 6.2.2.2 に AKB ミラー (Wolter III 型配置)を用いた集光光学系の1次元断面図を示す。光軸に対して θ の角度で光線が双曲の焦点を射出し、双曲ミラーおよび楕円ミラー面にて2回反射ののち光軸に対して θ' の角度で楕円焦点に到達する。入射光線と射出光線の交わる点(主点)の光軸からの距離を h とすると

(a)



(b)

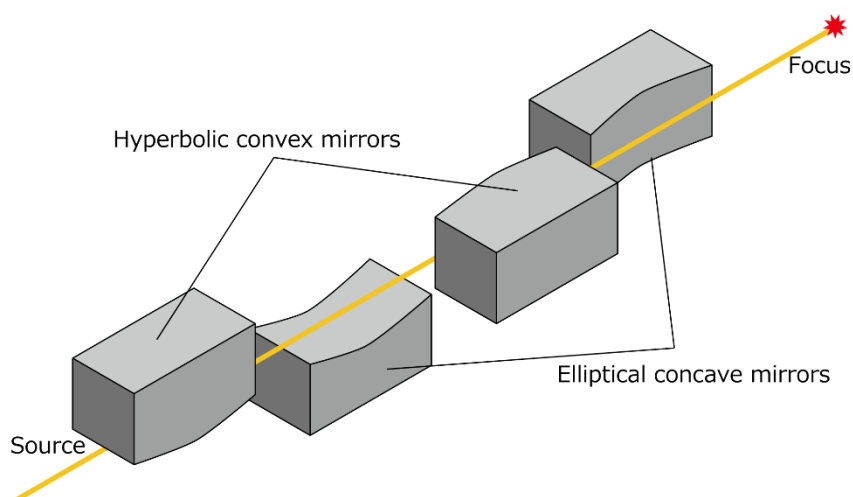


図 6.2.2.1 AKB ミラーの概略図. (a)Wolter I 型配置, (b)Wolter III 型配置.

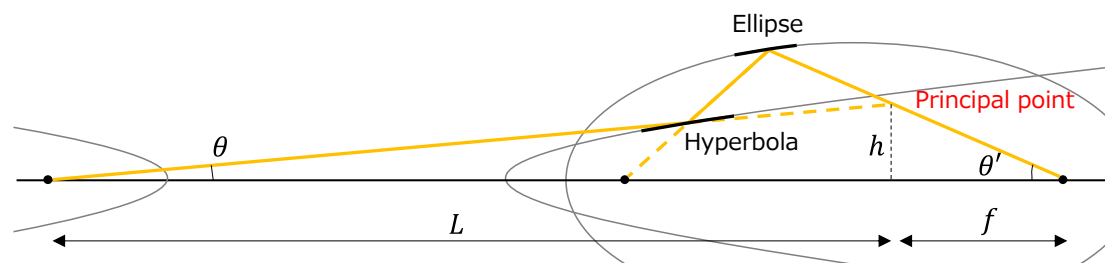


図 6.2.2.2 AKB ミラー(Wolter III 型配置)の光線図.

$$h = L \tan \theta = f \tan \theta'. \quad (6.2.2.1)$$

と表される．ここで L と f はそれぞれ図 6.2.2.2 中に示す主面（主点から光軸に垂直になるよう下した直線）から光源，焦点までの距離である．式(6.2.2.1)を変形すると

$$\frac{\tan \theta}{\tan \theta'} = \frac{L}{f}. \quad (6.2.2.2)$$

が得られる．ここで式(6.2.2.2)の右辺はまさしく本光学系における拡大倍率を表しており， $L/f=M$ (M : 拡大倍率)と置きなおせる．さらに斜入射光学系において， $\theta, \theta' \ll 1$ であるので

$$\frac{\sin \theta}{\sin \theta'} = M. \quad (6.2.2.3)$$

となる．KB ミラーの場合，ミラーの各位置において θ が大きくなると θ' が小さくなるため M が変化するが，AKB ミラーにおいては θ とほぼ同じ割合で θ' も変化するため， M が変わらず（主面と光軸が直交）近似的に Abbe の正弦条件を満たす[89]．ここで，Abbe の正弦条件を満たしたことによるコマ収差の低減は，結像光学系において視野の広さにつながるが，集光光学系においては広い入射角誤差許容幅につながる．また，Wolter III 型配置は主面がミラー基板より焦点側に存在するため，第 2 章において楕円ミラーで問題となったミラー基板による制限を打破しつつ高い縮小倍率を実現できる．本特性は比較的コンパクトな XFEL である SACLA において強力な利点であり，2 段集光配置が不要になる．以上の利点から，集光素子に AKB ミラーを用いることにより，高い安定性の下 SACLA をスポットサイズ 10 nm 以下に集光できる光学系の構築を試みた．

6.3 新型 sub-10 nm 集光光学系の概要

6.3.1 光学系の設計

SACLA をサイズ 10 nm 以下に集光できる AKB ミラー光学系を，下記の制約の下設計した．X 線エネルギーは 9.1 keV とした．

1. 旧型 sub-10 nm 集光光学系同様，サイズ 10 nm 以下を達成するための開口数 (> 7 mrad) と縮小倍率 (4000(V)又は 6000(H)倍以上) の確保．
2. 多層膜が作製可能なミラー斜入射角の確保．多層膜周期長が短くなるとアイランド成長が生じ，反射率が低下してしまう．後述するが，周期長 2.5~2.6 nm が最小周期長とすると，最大斜入射角は約 27 mrad と計算される．

3. SACLA の光を過不足なく受けるアクセプタンスの確保. ナイフエッジスキャン法の実測値から, EH4c (アンジュレータ出口から 100 m 下流) において入射強度の 59 %以上を受けるためには, 500 μm 程度アクセプタンスが必要である. 十分に開口を広くすれば XFEL の光すべてを集光に寄与させることができるが, ミラーの両端に照射される光が弱くなるため, 疑似的な開口数の損失につながり (アポタイズド照明) 集光サイズが鈍化する. これに関しても十分な大きな開口数を確保することで解決できるが, 後述するワーキングディスタンスの確保や, 前回の光学系で問題となったミラーの長尺化に繋がり, 実用性が低くなると推察される.
4. ワーキングディスタンス (ミラー下流端ー焦点間距離) の確保. 前回光学系において, スペックルを計測するときに問題となった光学系由来の寄生散乱は, 本来ミラーと試料の間にガードスリットやピンホールを配置することで解決すべきである. しかし, ワーキングディスタンスが 20 mm と短く (これでもゾンプレートやラウエレンズと比較すると長い), 光学系と試料を隔てるチャンバーの壁を設けるだけで手いっぱいであった. 本光学系を用いた応用実験に向けて試料周りのセットアップを充実させるためにも 40 mm 以上を目指した.

以上を踏まえて設計した光学系の配置図を図 6.3.1.1 に, 性能パラメータを表 6.3.1.1 に示した. 両集光ミラーペアに十分な縮小倍率を実現するために, 垂直集光ペアと水平集光ペアが互いに入れ子配置となっている. これにより, 2 次元両方向において 4000~7000 倍の十分な縮小倍率を確保できた. 倍率や集光サイズが一つに決まらないことは, SACLA の発進原理上光源位置が不確定であることに起因している. 反射率を確保するために, 前段ミラーのみ全反射ミラーとした. 本光学系を理想的に構築できた場合, 焦点におけるパワー密度は

$$500 \mu\text{J} \times 0.4 \times 0.59 \times 0.5 / (6.4 \text{ nm} \times 7.2 \text{ nm} \times 7 \text{ fs}) = 1.83 \times 10^{22} \text{ W/cm}^2.$$

入射強度×反射率×受光量×メインピークに集まる効率 / (水平集光×垂直集光×パルス幅[27,57-59])=パワー密度.

と見積もられ, 10^{22} W/cm^2 を達成できると見込まれている. 図 6.3.1.2 に基板上のミラー領域を示した. 本光学系に使用する基板の特徴として, ミラー領域と平面領域が作りこまれている. 面内に曲率分布がある楕円, 双曲面ではなく, 平面領域からの反射光と入射 X 線の位置関係をカメラで測定し, 光軸方向における平面領域ーカメラ間距離を測定することで, X 線に対するミラー基板の傾き角が正確にわかる. 後述するが, AKB ミラーは 4 枚のミラーのアライメントを正確に行う必要があるため, 幾何光学に基づくラフアライメントの精度を向上させることで, 光学系の最終調整が迅速に完了すると考えられる. 図 6.3.1.3 および図 6.3.1.4 にミラー形状と入射角分布を示す.

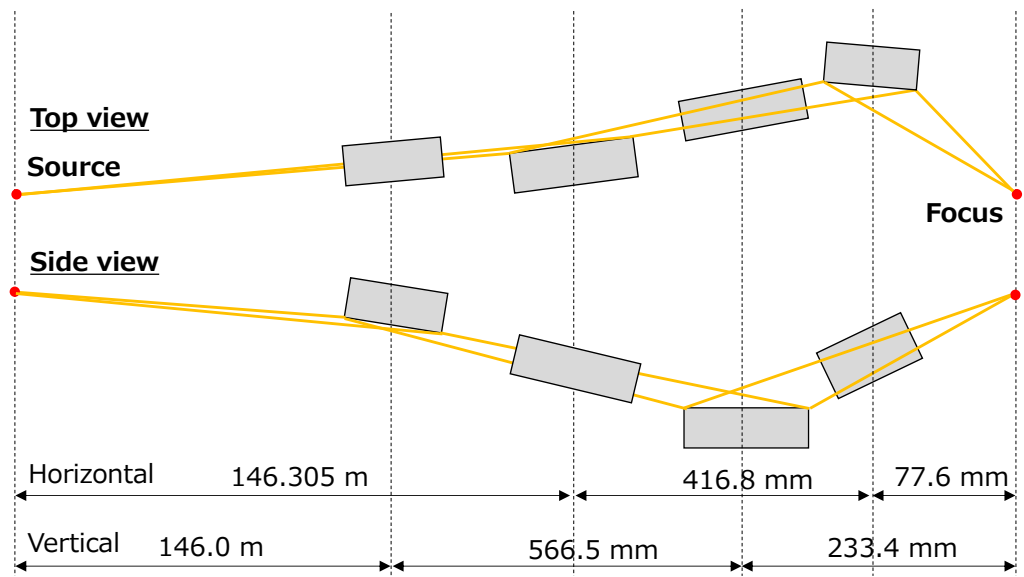


図 6.3.1.1 新型 sub-10 nm 集光光学系の光学配置.

表 6.3.1.1 新型 sub-10 nm 集光光学系の性能パラメータ.

(a)垂直集光ペア.

	Hyperbola	Ellipse
Mirror length (Effective area) (mm)	118.24 (115)	226.82 (223.4)
Average grazing incidence angle (mrad)	3.8	18.9
Coating	Pt	Pt/C (40 layer)
Demagnification	4435~6052	
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	9.54	
Focus size (nm, FWHM) @9.1 keV	7.2~8.9	

(b)水平集光ペア

	Hyperbola	Ellipse
Mirror length (Effective area) (mm)	253 (250)	69.38 (66.3)
Average grazing incidence angle (mrad)	1.95	23.5
Coating	Pt	Pt/C (60 layer)
Demagnification (Total demagnification)	6037~7773*	
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	10.31	
Focus size (nm, FWHM) @9.1 keV	6.4~8.6*	

*計測された SACLA 光源パラメータ(光源サイズ: σ_{16} ~20(V), σ_{25} ~32(H) μm , 光源~ミラー間距離: 107~146 (V), 146~188 (H) m)に基づく値

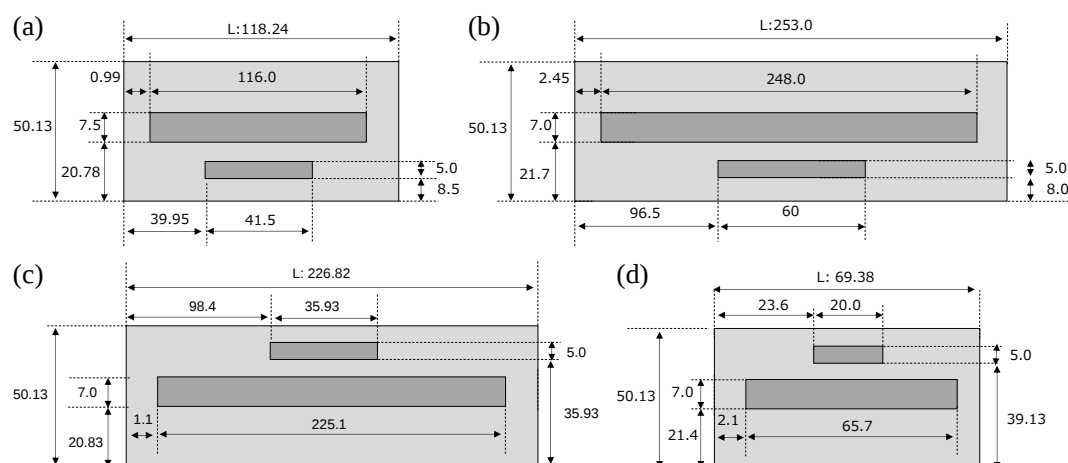


図 6.3.1.2 ミラー形状領域. 製造工程の都合上, ミラー基板の端まで有効領域として使うことは難しいため, 全ての基板は設計されたミラー長よりも 3 mm 程度長くなっている. ミラー領域とは別に平面領域が作りこまれている. それぞれ, (a) 垂直集光双曲ミラー, (b) 水平集光双曲ミラー, (c) 垂直集光楕円ミラー, (d) 水平集光楕円ミラー.

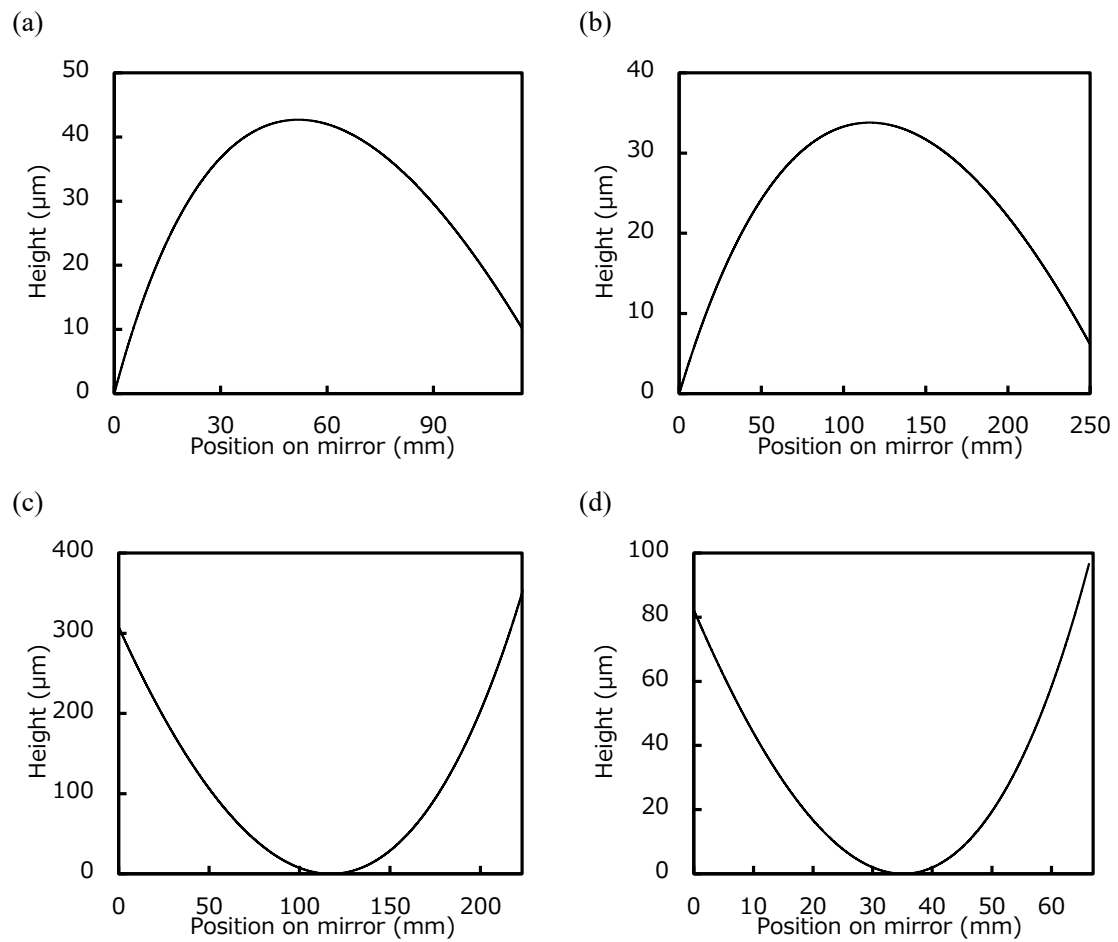


図 6.3.1.3 ミラー形状. (a) 垂直集光双曲ミラー, (b) 水平集光双曲ミラー, (c) 垂直集光楕円ミラー, (d) 水平集光楕円ミラー.

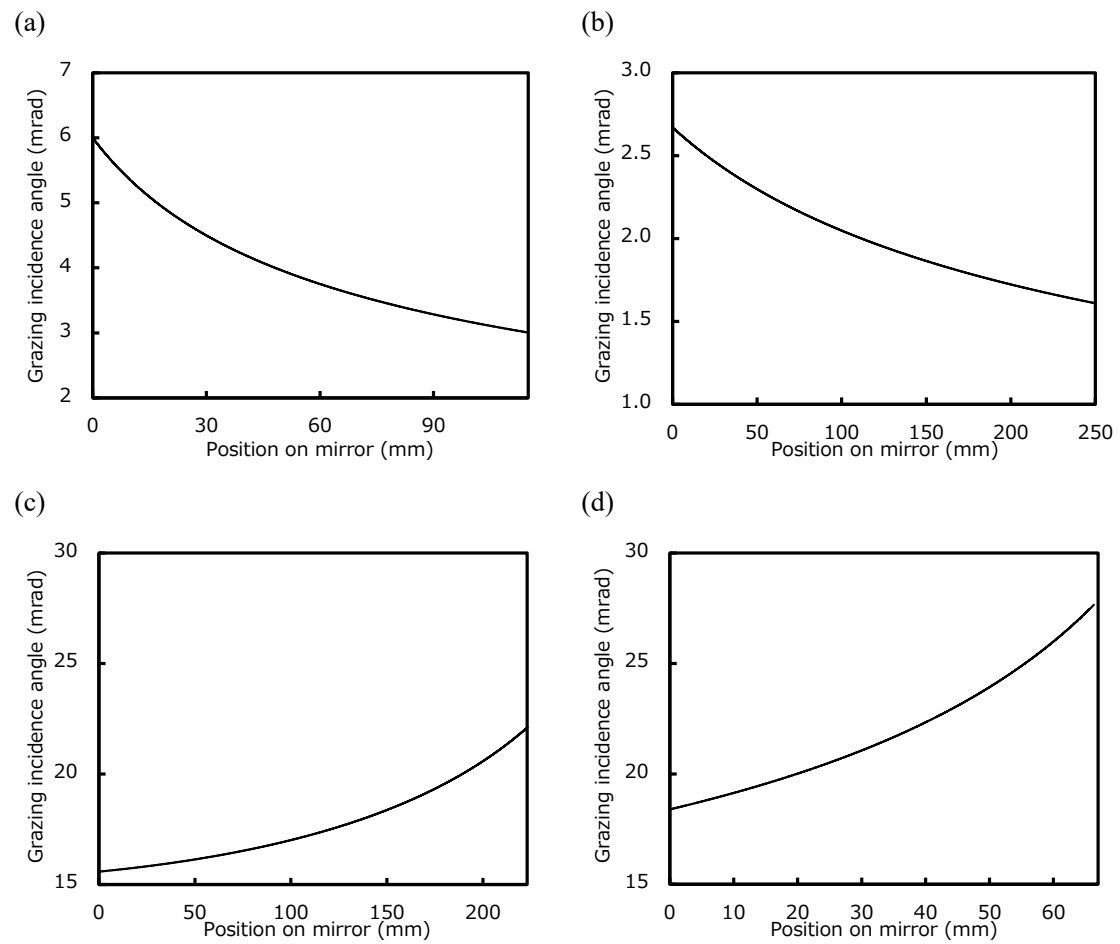


図 6.3.1.4 ミラーの入射角分布. (a) 垂直集光双曲ミラー, (b) 水平集光双曲ミラー, (c) 垂直集光楕円ミラー, (d) 水平集光楕円ミラー.

6.3.2 ミラーのアライメント精度

AKB ミラーを集光光学系として導入した最大の理由は、入射角誤差に対する許容精度の向上にある。本項では、ミラーに入射角誤差を与えた際の設計焦点位置におけるビームプロファイルの半値幅に着目し、Fresnel-Kirchhoff 回折積分に基づいた計算機シミュレーションを行うことで許容精度を評価した (図 6.3.2.1)。比較として、前回の KB ミラー光学系においても同様に計算した。その結果、KB ミラーでは mrad オーダーの誤差で 10 nm の集光が破綻したが、AKB ミラーでは両方向ともに数百 μrad 程度の誤差までは許容できることがわかった。尚、KB ミラーの 10 nm 集光破綻の主な原因は、コマ収差による集光プロファイルの鈍化ではなくデフォーカス由来であるため、2 章や 5 章で言及したコマ収差に着目したアライメント精度より厳しい値となっている。

一方で、AKB ミラーでは双曲面と楕円面が共通焦点を有する状態で光を反射する必要があるため、2 枚のミラーの相対位置関係に高い精度が求められると予想される。そこで、双曲ミラーに対する楕円ミラーの相対アライメントを変化させた場合の影響を計算機シミュレーションに基づき評価する。図 6.3.2.2 の通り、垂直集光ペアに関して xyz 軸に沿った並進移動と、それぞれの軸を中心とした $\theta_x, \theta_y, \theta_z$ の 6 軸の自由度を考える。

まず、 x 軸は基本的に双曲と楕円面の相対位置を変化させないため無視できる。次に、第 2 章で KB ミラーについて議論した際と同様に、面内回転の θ_z も mrad オーダーであるため重要ではない。残った 4 軸の中で、次に y, z, θ_x 軸について考える。それぞれ相対 y 距離、相対 z 距離、及び相対入射角と名付ける。計算機シミュレーションに基づき、それぞれの軸のミスアライメントによる波面収差を見積もった。デフォーカスで無視できる 2 次関数成分を取り除くと、 μrad , μm オーダーのわずかな誤差により、3 次関数成分がメインとなったコマ収差が生じていた (図 6.3.2.3(a))。いずれも双曲ミラーが作る仮想光源に対して、楕円面がズレたことによる収差と理解できる。図 6.3.2.3(a) より、これらのミスアライメントが生み出す収差は僅かであれば互いに補正しあえるが、理想配置に対して極端に誤差がある場合 (図 6.3.2.3(b) では相対 y 距離における $100\text{ }\mu\text{m}$ の誤差を他軸で補正した)、3 次関数以上の成分の不一直による残差が生じ、回折限界条件を達成できなくなる。また、双曲ミラーからの反射光が楕円全体を照明しなくなり、NA の欠落につながる。そして、波動光学計算から波面の高次成分の不一致よりも、NA が 10% 欠落しないための許容アライメント精度が厳しいことがわかった (表 6.3.2.1)。

最後に、 θ_y (平行度と呼ぶ) に誤差があると相対 z 距離がミラーのサジタル方向に沿って徐々に変わる。相対 z 軸はコマ収差よりデフォーカスを顕著に発生させるため、2 次関数の波面収差がサジタル方向に沿って変化してしまう。波動光学計算から、 $\pm 0.05\text{ }\mu\text{m}$ だけ相対 z 距離がずれると、2 次関数の波面収差により回折限界条件を満たさなくなることがわかった。よって、サジタル方向に 1 mm 程度の X 線照明領域があるとする、 $100\text{ }\mu\text{rad}$ の精度が必要であると求まる。以上より、KB ミラーの入射角ほど高い精度は必要としないが、多くのアライメント軸を調整しなければならないことが明らかとなった。

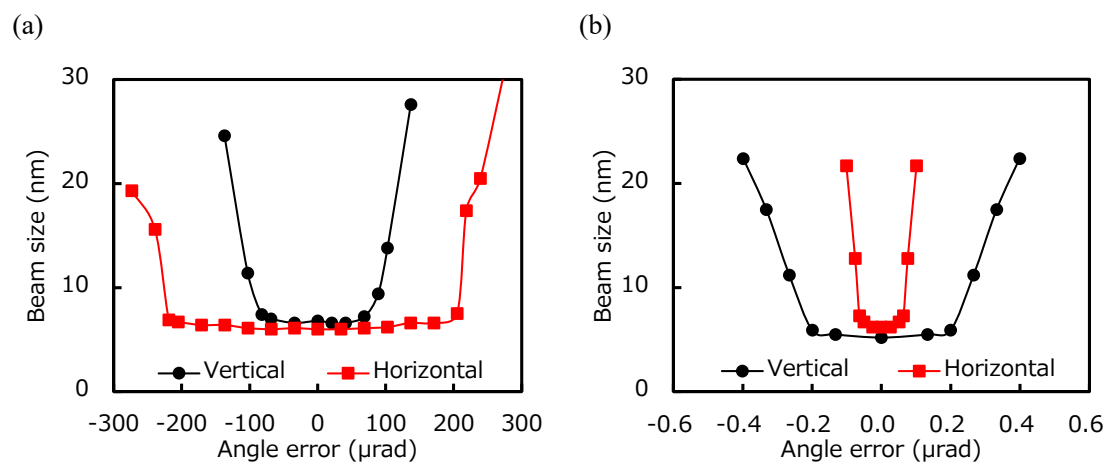


図 6.3.2.1 入射角誤差とビームサイズの関係. (a)新型 sub-10 nm 集光光学系, (b)旧型 sub-10 nm 集光光学系.

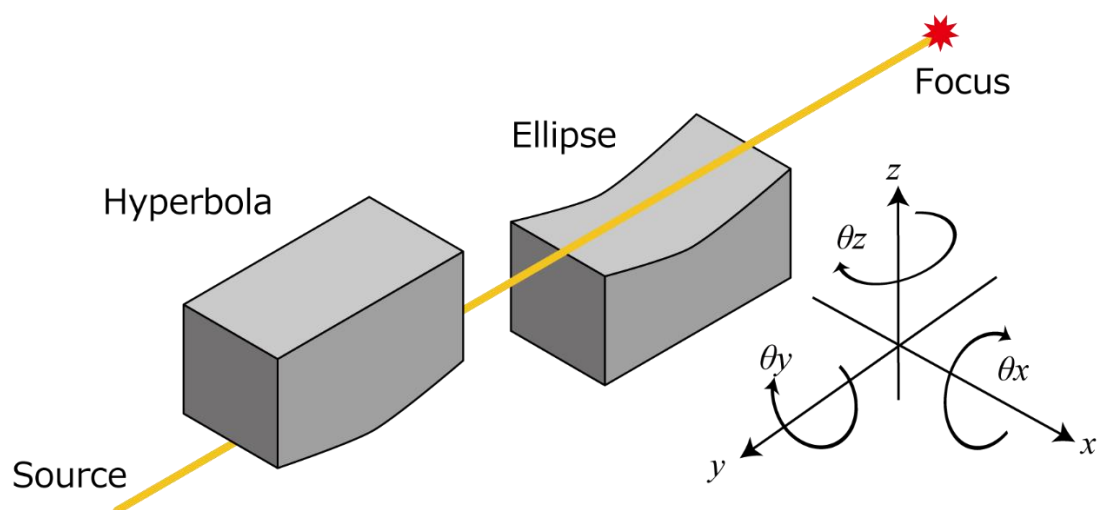


図 6.3.2.2 AKB ミラーのアライメント軸.

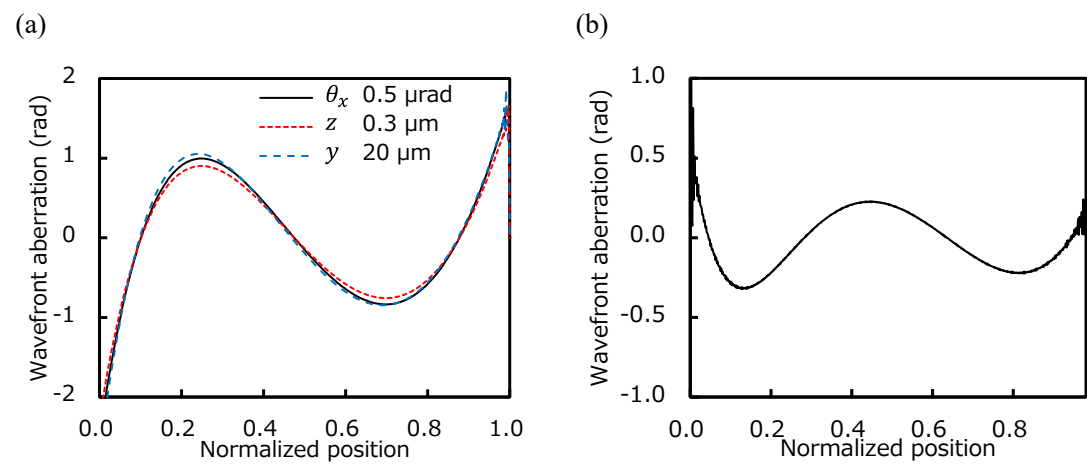


図 6.3.2.3 (a)それぞれのアライメント軸に誤差を与えた場合に生じる波面収差値. (b)y軸に 100 μm の誤差があった時, z軸を意図的にずらして波面を修正した場合の残差.

表 6.3.2.1 許容ミスアライメント量.

θ_x (μrad)	± 7
z (μm)	± 4
y (μm)	± 80

6.4 高反射率多層膜の設計

ミラーの反射率は高い光子密度を達成するために重要である。多層膜の層数を増やすだけでは、膜による吸収の観点から限界があることを 2 章で述べた。そこで本項では重元素層を薄くすることで多層膜による吸収を減らし、反射率を向上させることを試みた。

6.4.1 計算機シミュレーションによる高反射率化の検討

多層膜の反射率は材料の密度差だけでなく、X 線が薄膜を通過する際の吸収量にも依存する。吸収量は膜の平均的な複素屈折率に依存するため、重元素と軽元素の比率を 1:1 にするのではなく、重元素をできる限り薄くすべきであると推測される。このとき、多層膜反射における X 線エネルギーバンド幅が狭くなるが、SACLA の光源のバンド幅は 30~50 eV と十分狭いため問題ない。多層膜周期長が 4, 5 nm, 層数が 40, 60 layer の多層膜において重元素比率を変化させたときの反射率分布を計算した結果を示した (図 6.4.1.1)。界面粗さは 0.3 nm RMS で X 線エネルギーは 9.1 keV とした。凡例の数字は周期長に対する重元素膜厚の比率である。尚、多層膜の平均的な屈折率が変わるため、反射率ピークの位置が徐々にシフトしている。周期長 5 nm では、多層膜の層数に関係なく、予想通り重元素が薄くなるほど反射率が向上しているが、周期長 4 nm, 40 layer において比率を 0.2 とした時、反射率が下がった。これは重元素層を薄くしたことにより、最深部の多層膜すら貫通して基板に抜ける X 線が生じたからと考えられる。60 layer の場合は比率が 0.2 の場合でも反射率が増加していることから、40 layer では透過していた X 線も深部の多層膜で反射したと推測できる。

6.4.2 実証実験に基づく重元素膜の薄化閾値の探索

次に、周期長を固定して Pt の比率を変えた多層膜を実際に作製し、得られた反射率を計算結果と比較した (図 6.4.2.1)。本計算では実験値との比較を容易にするために、X 線エネルギーを 8.048 keV と XRD の光源 (Cu α 線) と同じにし、界面粗さは 0.25 nm RMS に設定した。それぞれ、新型 sub-10 nm 集光光学系の多層膜において最長、及び最短周期長であると予想される 5.0 nm, 及び 2.6 nm にて検討した。プローブ径、及び基板サイズが有限であることから、XRD 装置において反射率の絶対値を計測することは困難なため、測定された X 線反射率分布を fitting した結果を反射率の実験値とした。5 nm において、Pt の比率を 0.23 まで小さくした場合においても、計算値と実測値がよく一致することを確認した。しかしながら、2.6 nm においては全領域において良好に一致しておらず、特に 0.5 を下回ったあたりで極端に計算と実験値が乖離した。尚、反射率の計算値も比率 0.2 あたりで下がっていることは、X 線の透過の影響である。実験値において、Pt の比率を小さくした際の反射率の減少は、これまでに何度か議論したアイランド成長が実際に発生し、膜の界面粗さを急激に悪化させたためであると考えられる。また、0.5~0.7 においても反射率が乖離する点についても、界面粗さで説明できる。第 2 章において、周期長が短くなるほど界面粗さに対して敏感

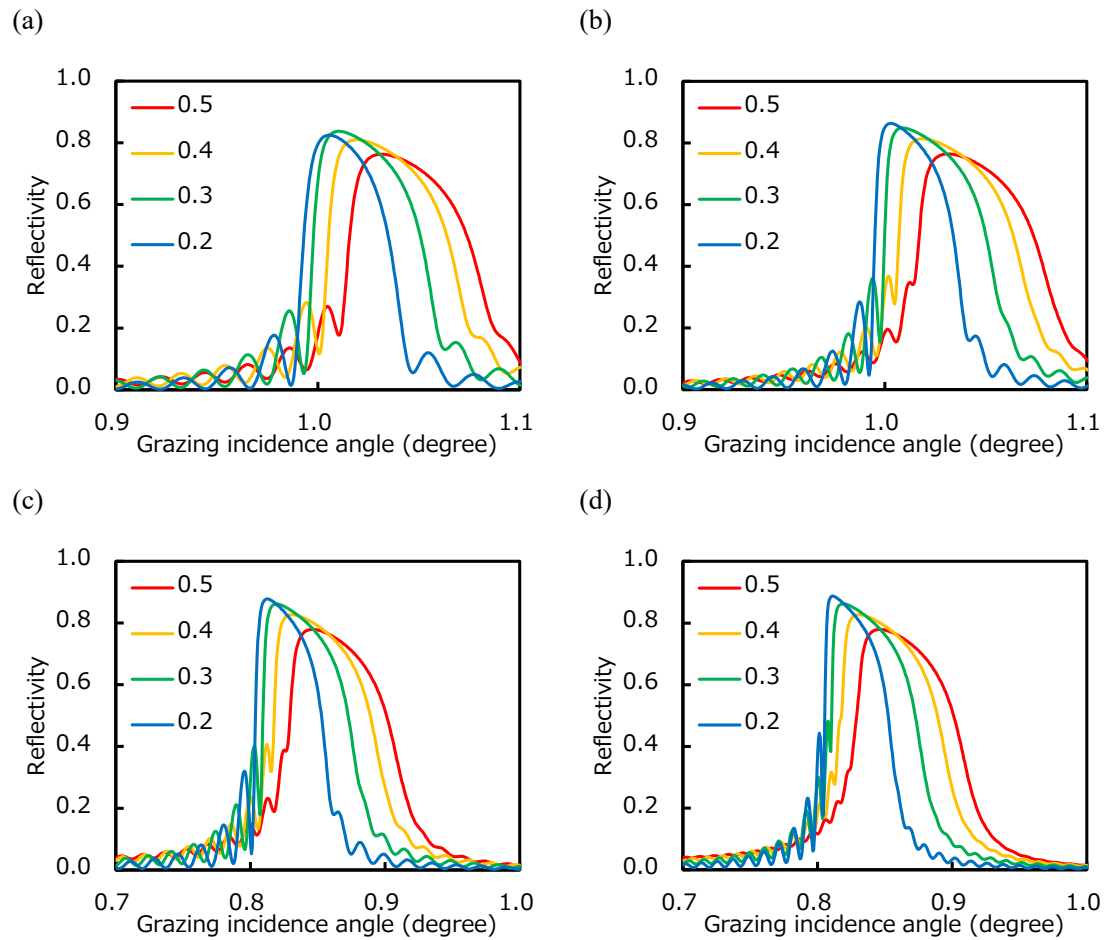


図 6.4.1.1 多層膜の反射率分布. (a)周期長 4 nm, 層数 40 layer, (b)4 nm, 60 layer, (c)5 nm, 40 layer, (d)5 nm, 60 layer.

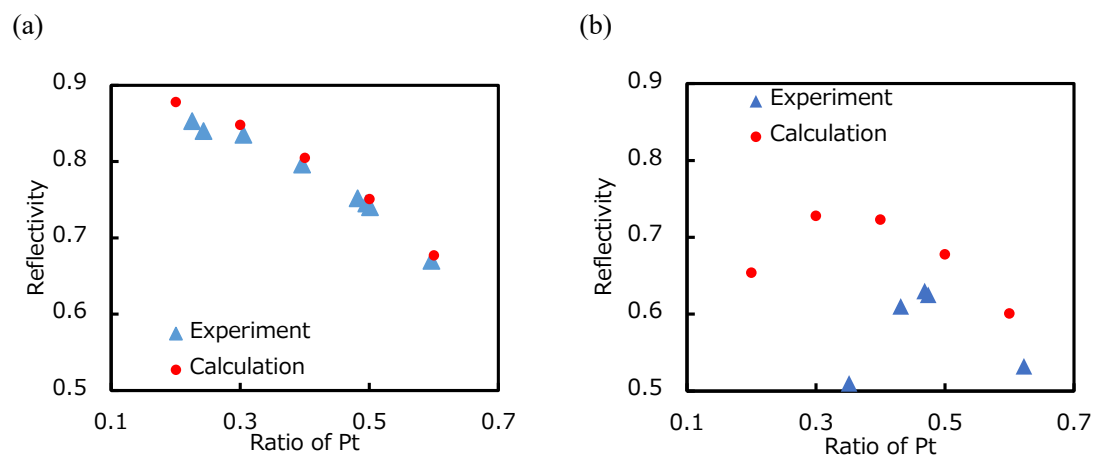


図 6.4.2.1 実験と計算における, 多層膜の反射率と Pt 膜厚比の関係の評価結果. (a)周期長 5 nm, (b)2.6nm.

に反射率が減少することを示した．実験で作製された多層膜のほとんどは界面粗さが 0.3 nmRMS 程度であったため，計算値の 0.25 nm RMS に対して明瞭に差が生じた．

以上より，①重元素の膜厚を薄くすることで反射率が向上すること，②薄膜化しすぎるとアイランド成長が起こり，急激に反射率が低下することを，計算及び実験で確認してきた．つまりアイランド成長が起こらない Pt 層の厚みの閾値を調査することが反射率の向上につながると考えられる．これまでにアイランド成長を報告した論文では，0.7~1.2 nm 程度であるとされている．そこで，Pt の厚みを変化させた層数 20~40 layer の Pt/C 多層膜を複数作製し，XRD により界面粗さの変化を評価することで独自の閾値を決定することを試みた（図 6.4.2.3）．XRD で評価する理由は，X 線集光ミラーとして利用するため，X 線プローブを基準とした計測手法が適していると考えたからである．計測の結果，Pt の膜厚が 1.23 nm を下回ったあたりから界面粗さが 0.3 nm RMS を確実に超えはじめて急激に悪化した．これは参考にしていた論文とおおよそ矛盾のない結果である．周期長 2.6 nm の多層膜において，反射率の低下がみられたのは重元素比率が 0.43 と 0.47 の間で，膜厚に換算すると 1.118 nm と 1.22 nm に相当するため，本検討結果と概ね一致する．以上より，新型 sub-10 nm 集光光学系の多層膜において，Pt の厚みを 1.23 nm に固定することとした．図 6.3.1.4(c),(d)を元に，楕円凹ミラーにおける多層膜の周期長を改めて計算した結果を示した（図 6.4.2.4）．

6.5 新型 sub-10 nm 集光光学系の実証実験

6.5.1 実験セットアップ

新型 sub-10 nm 集光光学系の実証実験を SPring-8 BL29XU EH4 にて行った．図 6.5.1.1 に構築した実験配置の概略図および図 6.5.1.2 に外観写真および軸定義を示す．SACLA を想定した光学系であるため，光源－ミラー間距離が大きく異なるセットアップ（SACLA は約 100~200 m であるのに対し，SPring-8 は 1 km）だが，Wolter III 型配置の利点である高い縮小倍率の恩恵で本影響は波面上ほぼ完全に無視できることを計算機シミュレーションで確認している．

まず本光学系のマニピュレータの大きな特徴として，双曲と楕円の相対的な配置変化を抑えるために，1 つのブリッジの上に各集光方向のミラーペアが配置されている．ブリッジの下にミラーペア全体を動かす調整軸として垂直，水平集光ユニットともに x ， z 軸を備え付け，ミラーの挿入，退避と，サジタル方向に走査できるようされている．また，入射角の調整機構として垂直集光ユニットには θ_x 軸，水平集光ユニットには θ_z 軸が備えられており，さらに水平集光ユニットのみ直角度を調整するための θ_y 軸がそなわっている．次に，後段の楕円ミラーの直下に，相対 z 距離（水平集光ペアにとっては相対 x 距離）を調整する軸として垂直楕円 z 軸，水平楕円 x 軸が備わっている．そして，それぞれの双曲ミラーにはミラーペア同士の平行度の調整軸として，楕円ミラーにはミラー相対入射角調整軸として自動リニアアクチュエータが取り付けられている．他にも，双曲ミラーの y 軸，及び全てのミラーの面

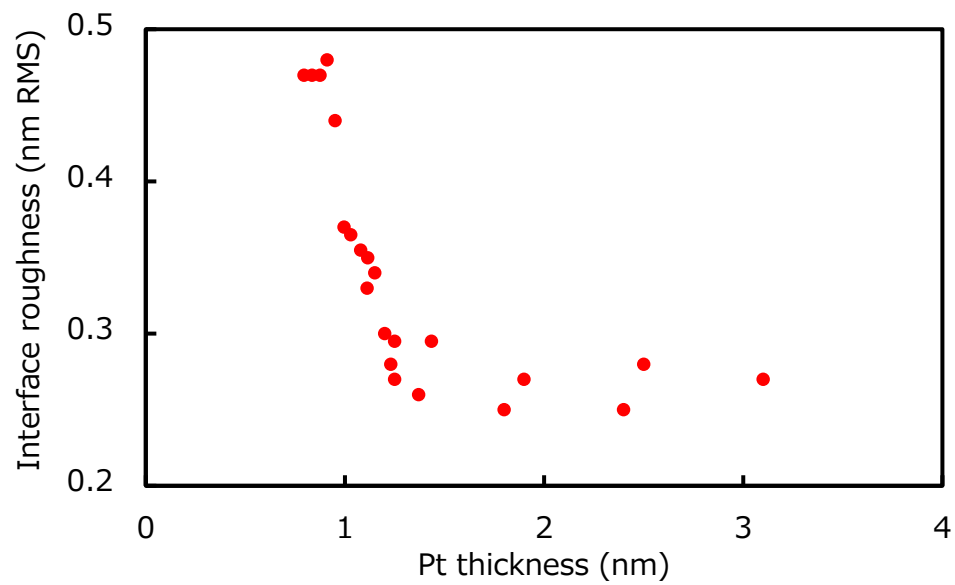


図 6.4.2.3 Pt/C 多層膜における, Pt 膜厚と界面粗さの関係.

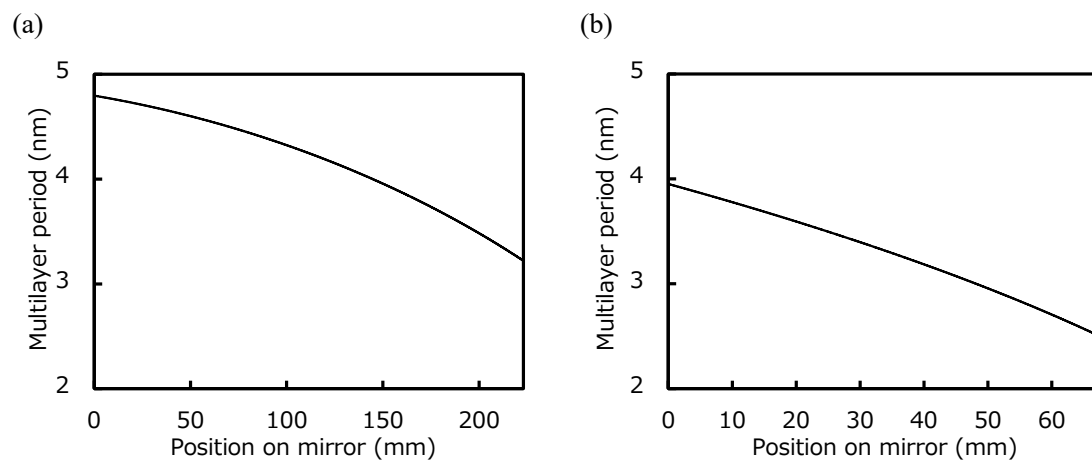


図 6.4.2.4 多層膜周期長分布. (a)垂直集光楕円ミラー, (b)水平集光楕円ミラー.

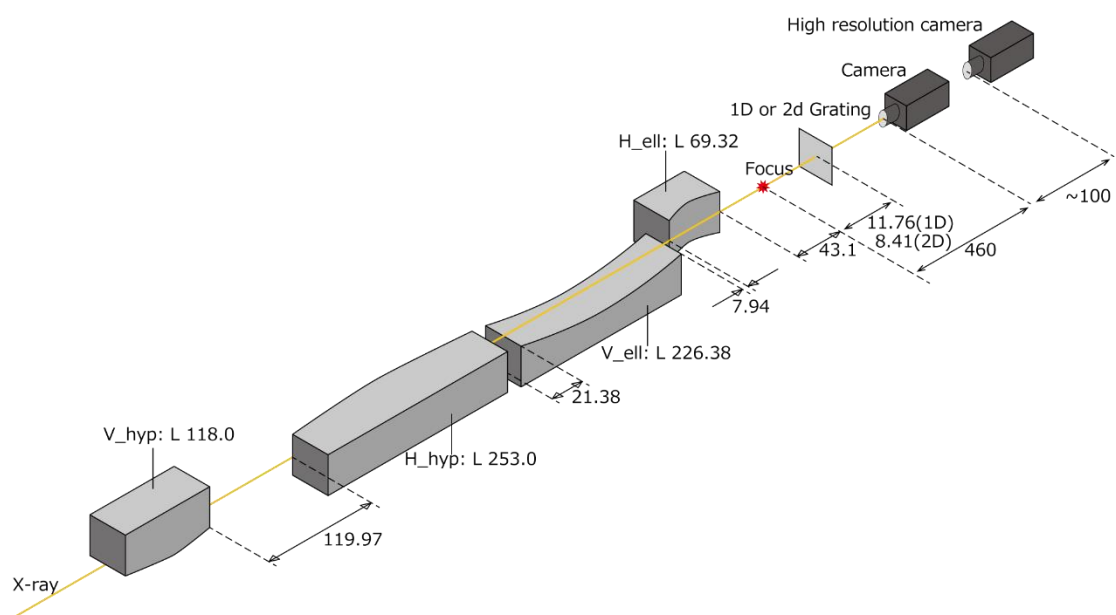


図 6.5.1.1 実験セットアップ.

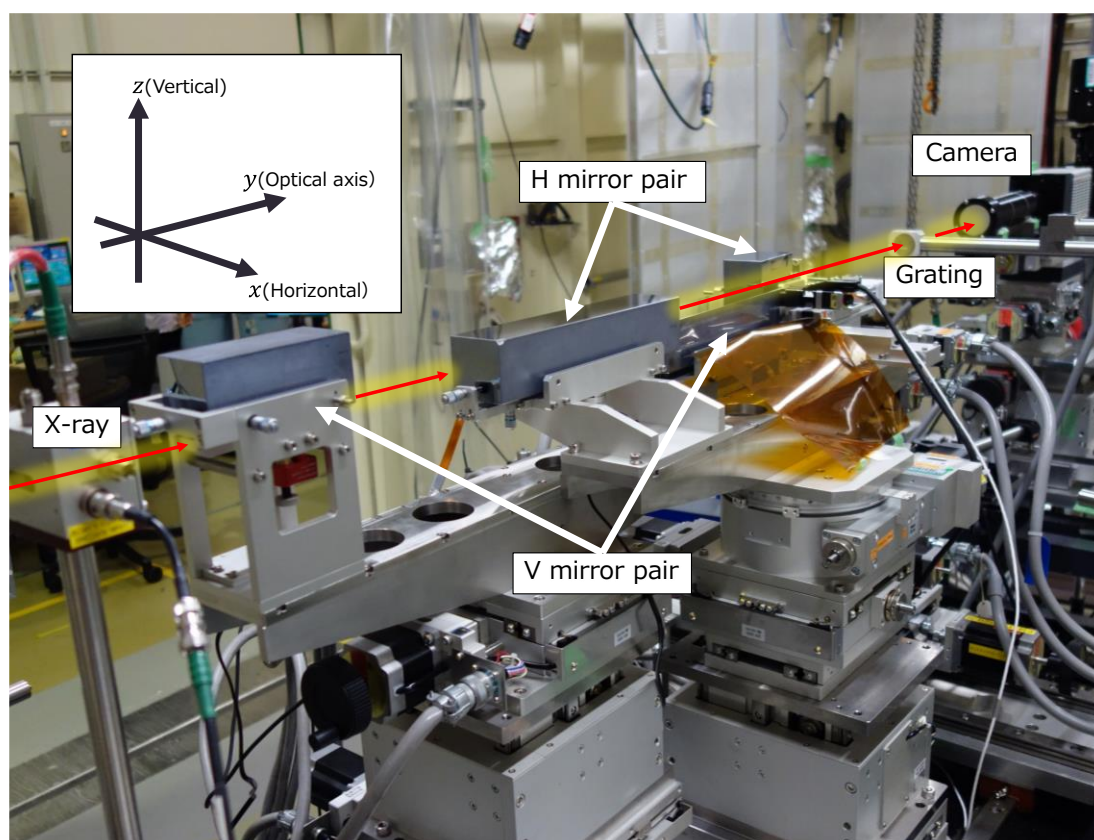


図 6.5.1.2 セットアップの外観写真.

内回転軸に手動のマイクロメーターヘッドが取り付けられている。それぞれの楕円ミラーは角度分解能 $2\text{ }\mu\text{rad}$ の以下のオートコリメータ (HAWK-504L, ファイブラボ株式会社) で監視されている。

グレーチング干渉計に関するパラメータを表 6.5.1.1 に示す。回折格子・カメラのユニットには並進 (x, y, z) と回転 ($\theta_x, \theta_y, \theta_z$) の軸が全て備えられている。グレーチング干渉計用の回折格子として 9.1 keV 用 1 次元 $\lambda/4$ 位相格子および 2 次元 $\lambda/2$ 位相格子 (NTT アドバンスドテクノロジー社製, 材質 Ta) を用い, 1 次元回折格子は焦点から 11.76 mm 下流に, 2 次元回折格子は 8.41 mm 下流に配置した。また, 回折格子と同ユニットにキューブプリズムを取り付けた。キューブプリズムによる X 線の影や全反射光を基準にすることで, 第 3 章で言及した回折格子のアライメントを 1 mrad 以下の精度で調整できる。焦点から 0.46 m 下流に X 線カメラを配置した。X 線カメラは異なる構成の 2 種類のものを用いた。各カメラの各種パラメータを表 6.5.1.2 および表 6.5.1.3 に示す (カメラ①は 3 章の表 3.3.2 と同じ)。更に下流に, ミラーアライメントを調整するために高空間分解能カメラ[90]を配置した。イメージングレンズを変えることで, 325 nm/pixel まで分解能を向上させて使用した。これにより, 反射 X 線の光線を基準にして, 相対 z 距離は $0.6\text{ }\mu\text{m}$ 以下の精度で, 相対入射角は $0.5\text{ }\mu\text{rad}$ 以下の精度で幾何光学的に調整することができる。

6.5.2 波面計測に基づくミラーの性能評価

本項ではまず, グレーチング干渉計に基づくミラーのアライメントについて詳述する。次にアライメント調整後に計測された波面収差を元に差分成膜を行い, 再び SPring-8 にて波面を計測した結果を記す。そして最後に光学系の性能を評価した結果についてまとめる。

6.5.2.1 カメラ由来のシステムエラーの再検討

第 3 章にて, 自己像を撮影するカメラの素子の歪み等が計測波面に無視できないシステムエラーを生じさせることを示し, 除去手法を開発してきた。ここで, 集光光学系を一新するにあたり, X 線カメラの改善も試みた。カメラ由来のシステムエラーは, イメージングユニット内のリレーレンズや対物レンズ等の歪曲収差が原因であると考えてきた。そこで, 低歪みレンズをカメラユニットのイメージングレンズとして用いることで, カメラのシステムエラーの改善を試みた。従来用いていたカメラ (カメラ①) と低歪みレンズを使った新しいカメラ (カメラ②) における波面計測の結果を比較した。システムエラーはカメラ視野内の位置に依存した収差であるため, カメラが自己像を中心でとらえる位置からそれぞれ 7 mm ずつ上下左右に移動させ, 各位置で計測された波面の平均値からの差を取得した。Upper, Left 位置においては垂直方向の波面, Left, Right 位置に関しては水平方向の波面を計測した。第 3 章と異なり, 実験セットアップにおけるカメラ長を短くしたことから自己像の全域をとらえつつ, カメラ視野内における撮影位置を大きく変えることができた。カメラ①を用いたときの結果を図 6.5.2.1.1 (a),(b) に示す。カメラの各位置で計測された波面は最大

表 6.5.1.1 Talbot 干渉計に関するパラメータ.

	1D	2D
Focus-Grating (mm)	11.76	8.41
Focus-Camera (m)	0.46	
Grating period (μm)	2.5	3.0
Talbot order	1/4	1/8
Phase Shift	$\lambda/4$	$\lambda/2$
Thickness (μm , Ta)	1.3	2.6

表 6.5.1.2 カメラ①の構成 (表 3.3.2 と同じ).

CMOS camera	ORCA-Flash4.0v2 (浜松ホトニクス社製)
X-ray imaging unit	AA60 シンチレータ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$, 厚み $10\mu\text{m}$), 2 枚のレンズの組み合わせ
Pixel size (μm)	13.3
Pixel number	$2048(\text{V}) \times 2048(\text{H})$
Field of view (mm)	27.2×27.2

表 6.5.1.3 カメラ②の構成.

CMOS camera	ORCA-Flash4.0 v2 (浜松ホトニクス社製)
X-ray imaging unit	シンチレータ(LuAG:Ce , 厚み 0.7 mm , 神島化学製) および対物レンズ(株式会社ミュートロン製 LS05C 倍率 0.5) の組み合わせ
Pixel size (μm)	13
Pixel number	$2048(\text{V}) \times 2048(\text{H})$
Field of view (mm)	26.6×26.6

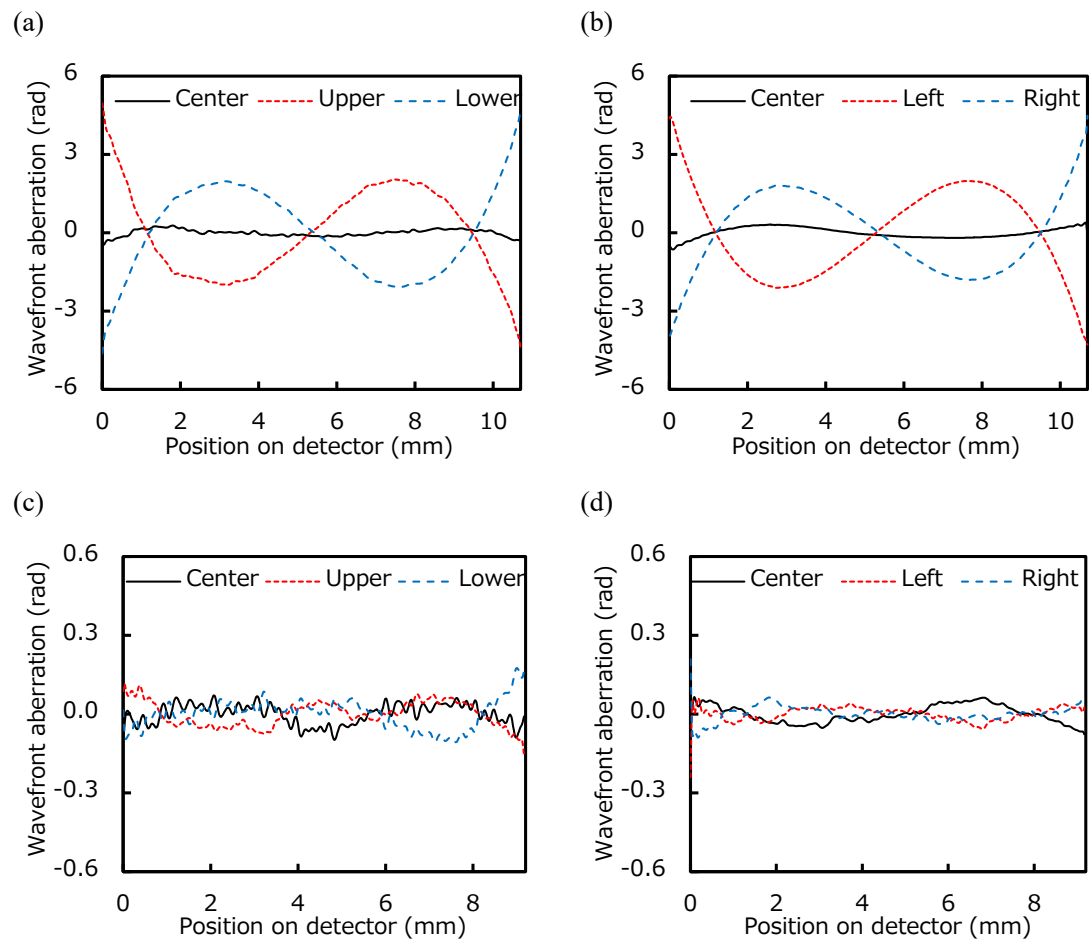


図 6.5.2.1.1 計測された波面のカメラ位置依存性. (a)カメラ①垂直方向, (b)カメラ①水平方向, (c)カメラ②垂直方向, (d)カメラ②水平方向.

で $\lambda/3$ 以上の誤差があり、カメラによるシステムエラーが存在することを意味している。次に、カメラ②により同様の計測を行った結果を図 6.5.2.1.1(c),(d)に示す。いずれも $\lambda/20$ 以下の精度で一致し、カメラ上の自己像の場所によらず同じ波面を計測することに成功した。つまり、カメラ②の構成ではカメラ由来のシステムエラーは無視できると結論付け、以降の計測ではカメラ②の構成を使用した。

6.5.2.2 波面計測に基づくミラーアライメント

波面計測に基づき、ミラーアライメント調整を行った。各軸のミスアライメントが引き起こす収差はコマ収差のように低周期関数で近似できると考えられる。そこで、各アライメント軸を独立して評価するために、計測波面の多項式フィッティングを提案した。円形開口屈折レンズの波面収差を特徴づけるために、フィッティング関数として Zernike 多項式(図 6.5.2.2.1 (a))がよく用いられる。Zernike 多項式は半径 1 の単位円上で定義された直交関数形であり、レンズの様々な収差により引き起こされる波面収差をそれぞれ独立して評価できる。一方で、Legendre 多項式(図 6.5.2.2.1 (b))は閉区間 $[-1,1]$ における直交関数形の一種であり、KB 配置のように縦横独立に生じる収差を表すのに適していること考え、フィッティング関数として採用した。フィッティング関数は参考文献[91]に記された数式を使用した。計測した波面を、Legendre 多項式を用いた最小二乗法によりフィッティングした。ミラーペアの相対アライメント軸の中で、波面計測で調整すべきは相対入射角と平行度である。

まず、相対入射角は主に波面の 3 次関数成分を変化させることを計算機シミュレーションで確認している。図 6.5.2.2.1 より、第 10 次係数が垂直方向、第 7 次係数が水平方向の 3 次関数成分を表しているため、これらの関数を 0 にすることが相対入射角の最適化につながると考えた。相対角調整用のリニアアクチュエータを垂直楕円ミラーは 10 pulse (0.5 μrad) ずつ、水平楕円ミラーは 30 pulse (5.1 μrad) ずつ変化させた際の波面を計測し各係数の変化を評価したところ、ほぼ線形的に変化することを確認した(図 6.5.2.2.2(a), (c))。しばしば見られる係数の変化の非線形性がリニアアクチュエータの動作由来であることを、ミラーの角度を監視しているオートコリメータで確認できている。また、係数の各値における波面収差をプロットしたところ、やはり係数が 0 に近いと 3 次関数成分が除去できているとわかった(図 6.5.2.2.2(b), (d))。

次に平行度を調整した。先に述べた通り、ミラーのサジタル方向に異なる相対 z 距離の誤差が生じることとほぼ同義である。相対 z 距離の誤差はコマ収差だけでなくデフォーカスも生じさせるため、サジタル方向に沿って異なる 2 次関数の波面収差が生じると推測される。実際に垂直双曲ミラーと水平双曲ミラーの平行度を同時に動かしつつ波面を計測すると、第 8・9 次の係数が変化していく様子が見られた(図 6.5.2.2.3 (a))。さらに垂直双曲ミラー、もしくは水平双曲ミラーのどちらか片方のみ動かすと、8・9 次の係数の相対量が変化していく様子を確認できた(図 6.5.2.2.3 (b)(c))。平行度調整前後の波面を図 6.5.2.2.4 に示したが、平行度の調整により第 8,9 次の係数を 0 にでき、波面収差を小さくできることがわかった。

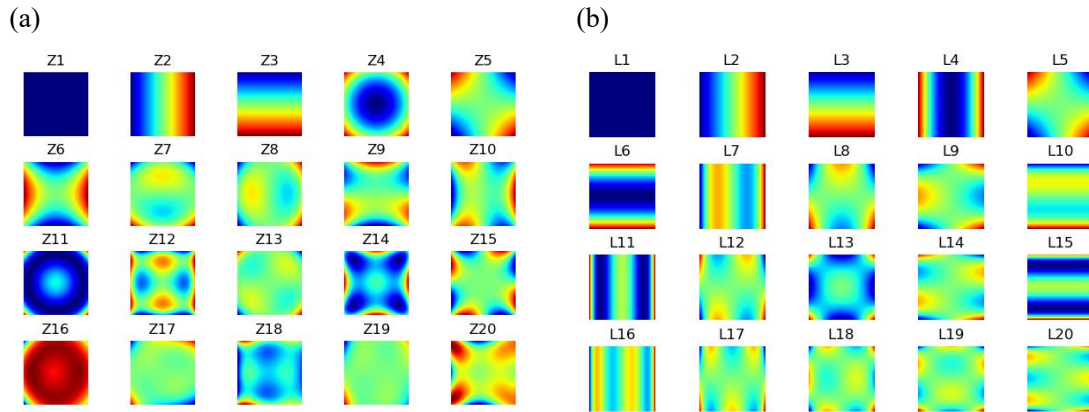


図 6.5.2.2.1 直交関数形. (a)Zernike 多項式, (b)Legendre 多項式.

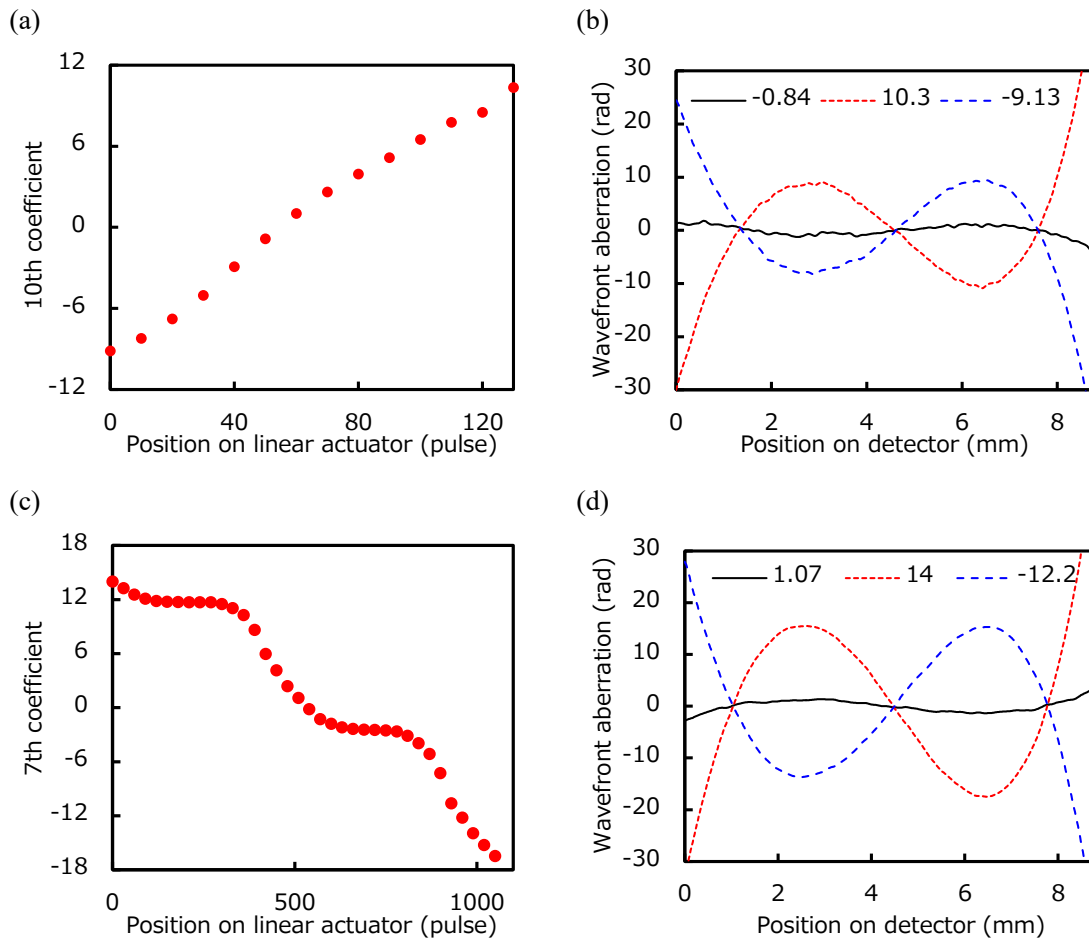


図 6.5.2.2.2 (a)垂直楕円ミラーの入射角を変化させた場合の Legendre 第 10 係数 (b)(a)の各係数の値の時に計測された垂直方向の波面収差値. (c)水平楕円ミラーの入射角を変化させた場合の Legendre 第 7 係数 (d)(c)の各係数の値の時に計測された水平方向の波面収差値.

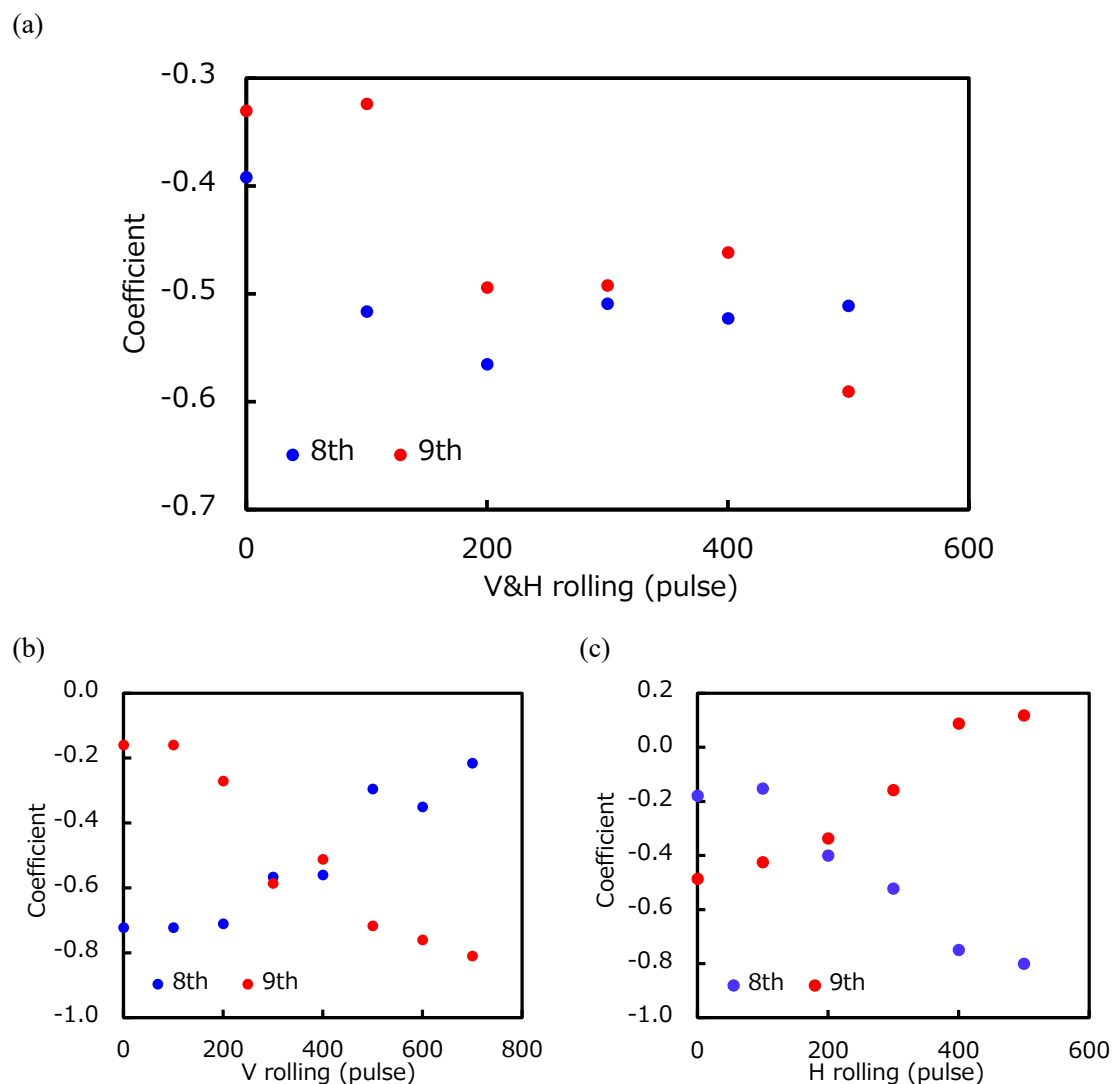


図 6.5.2.2.3 平行度を調整した際の Legendre8・9 次係数の変化. (a)垂直, 及び水平双曲ミラー両方とも変化させたとき. (b)垂直双曲ミラーのみ, 及び(c)水平双曲ミラーのみ変化させたとき.

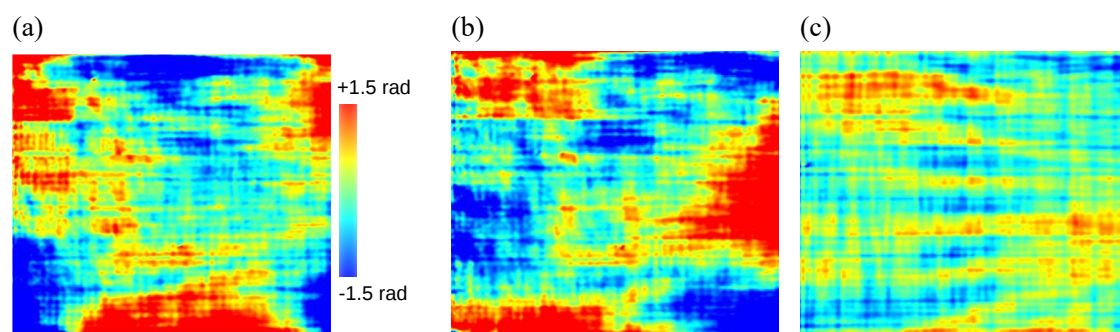


図 6.5.2.2.4 ローリング調整前((a)図 6.5.2.2.3 (b)中 Vrolling : 0, (b) 図 6.5.2.2.3 (b)中 Vrolling : 700 の位置)の波面, (c)ローリング調整後の波面. カラーバーは全て同じ.

ここまでで、ペアを構成するミラー基板の相対アライメントが完了した。最後にミラーペア同士の直角度を調整した。ミラー直角度を 40 pulse ($41.188 \mu\text{rad}$) ずつ変化させたとき、Legendre 第 5 次の係数が明瞭に変化していくことが確認された (図 6.5.2.2.5(a))。また、係数の各値における波面収差を確認したところ、やはり 0 に近いときに波面収差が小さくなることがわかった (図 6.5.2.2.5(b), (c))。以上より、波面計測と Legendre 多項式に基づき、AKB ミラーのアライメントを完了させることができた。

アライメント完了後に計測された波面を示した (図 6.5.2.2.6)。尚、図 6.5.2.2.5 (c)は後述する形状修正後の波面であるため、図 6.5.2.2.6 の各ラインプロファイルとは矛盾があるが問題ではない。各集光方向において、サジタル方向の平均値である。まず 4 次関数が目立って見られていないことから、ミラーペアアライメントされていると考えられる。しかしながら、必要精度が 1.57 rad PV に対して、両方向共に大きく上回っていることがわかる。そのため、ミラー形状の修正が不可欠である。垂直方向と比較して水平方向の波面収差が大きい理由はミラーの曲率半径にあると考えられる。水平楕円ミラーの曲率半径は、ミラー全体を通して垂直楕円ミラーの最小曲率半径 (約 10 m) を下回り、最下流では 3 m 以下となる。このため、可視光干渉計による計測が難しく、中周期に大きな形状誤差が生じたと考えられる。

6.5.2.3 波面収差を元にした差分成膜による形状修正

第 4 章と同様に、図 6.5.2.2.6 から形状誤差を算出し、差分成膜を施した。差分成膜は水平楕円ミラーおよび垂直楕円ミラー、及び水平双曲ミラーに対して行った。図 6.5.2.3.1 にそれぞれの目標形状に対するテスト成膜の結果を示す。第 4 章同様テスト成膜はガラス平面基板に行い、Fizeau 干渉計で計測した。80 mm 以上の形状は、ミラー基板を複数枚組み合わせで計測した。計測結果は 1 nm PV 以下の精度で形状修正が可能であることを示しており、同条件で実際にミラーの形状修正を行った。

図 6.5.2.3.2 に SPring-8 にて計測された形状修正前後の波面を示した。形状修正前は $\lambda/4 \text{ PV}$ 以上の収差が見られたが、形状修正後は回折限界条件を満たすことに成功した。

6.5.3 AKB ミラー光学系の性能評価

水平及び垂直集光ミラーペアの入射角を走査したときの波面の変化の様子、およびその PV 値を図 6.5.3.1 に示した。波面の PV 値が $\lambda/4$ を上回るまで、約 $150 \mu\text{rad}$ 程度の入射角許容誤差を有していることが示された。これは旧型 sub-10 nm 集光光学系と比較して 100 倍程度大きく、コマ収差を低減する光学系の確立に成功していることがわかった。

次に、本光学系を SACLABL3 EH4c に導入し、集光実験を行った。実験外観写真を図 6.5.3.2 に示した。SACLA と SPring-8 で計測された波面の比較を図 6.5.3.3 に示した。計算通り、光源ミラー間距離が数百 m 程度異なるにも関わらず、SACLA にて計測した波面は SPring-8 にて得られた波面とよく一致し、回折限界条件を満たすことを確認した。

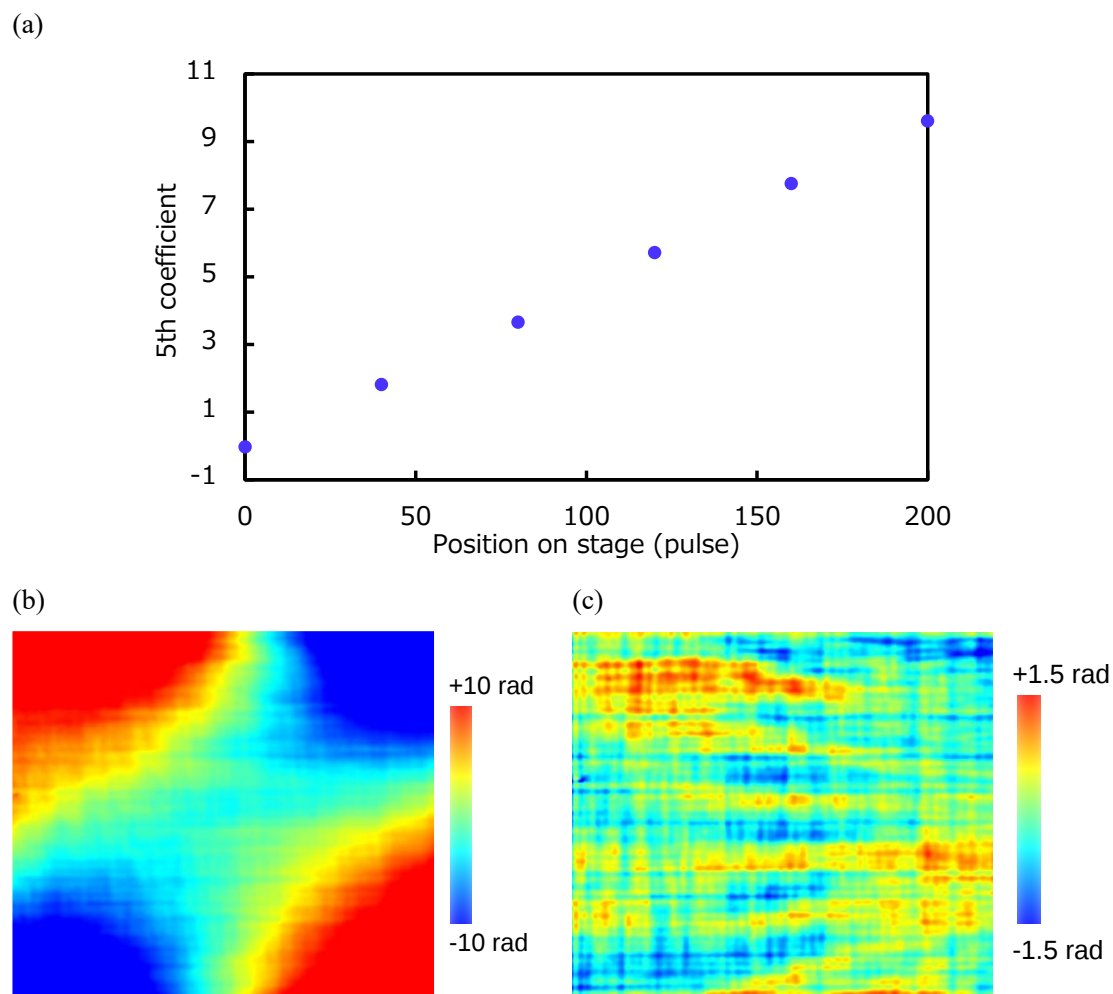


図 6.5.2.2.5 (a)直角度を動かしたときの Legendre 第 5 係数の変化. (b)直角度調整前の波面(+9.61), (c)直角度調整後の波面(0).

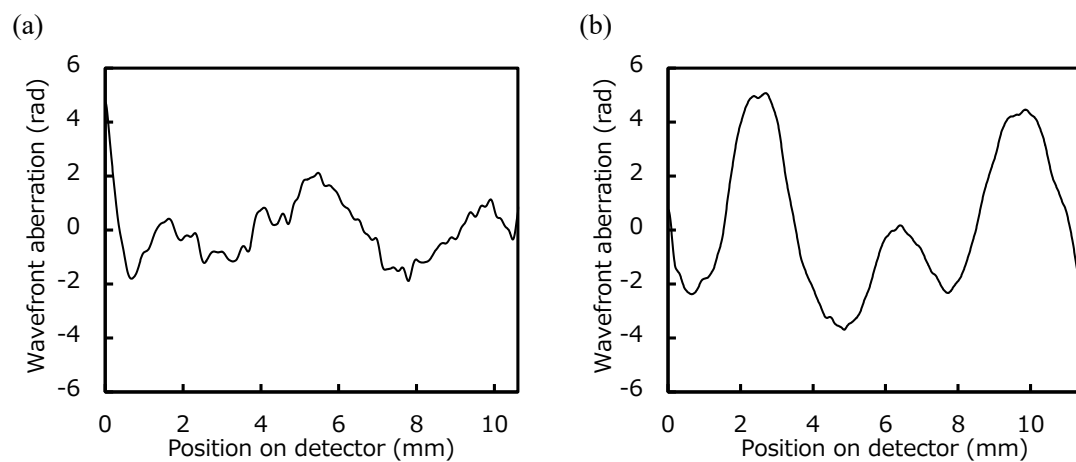


図 6.5.2.2.6 アライメント最適化後に計測された波面収差. (a)垂直方向, (b)水平方向.

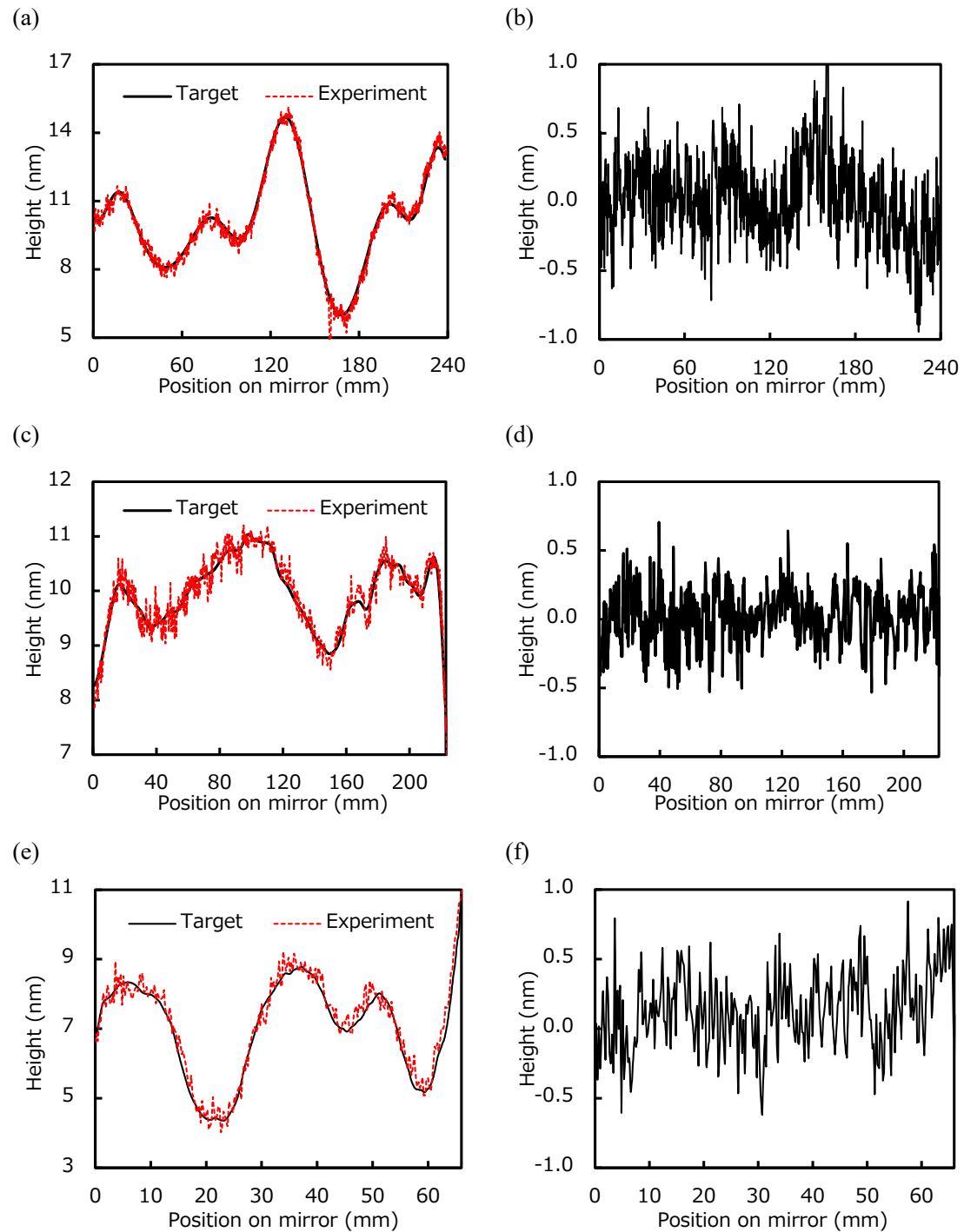


図 6.5.2.3.1 テスト成膜結果. 目標修正値と実測値の比較 (a)水平双曲, (c)垂直楕円, (e)水平楕円, 及びそれらの差(b)水平双曲, (d)垂直楕円, (f)水平楕円.

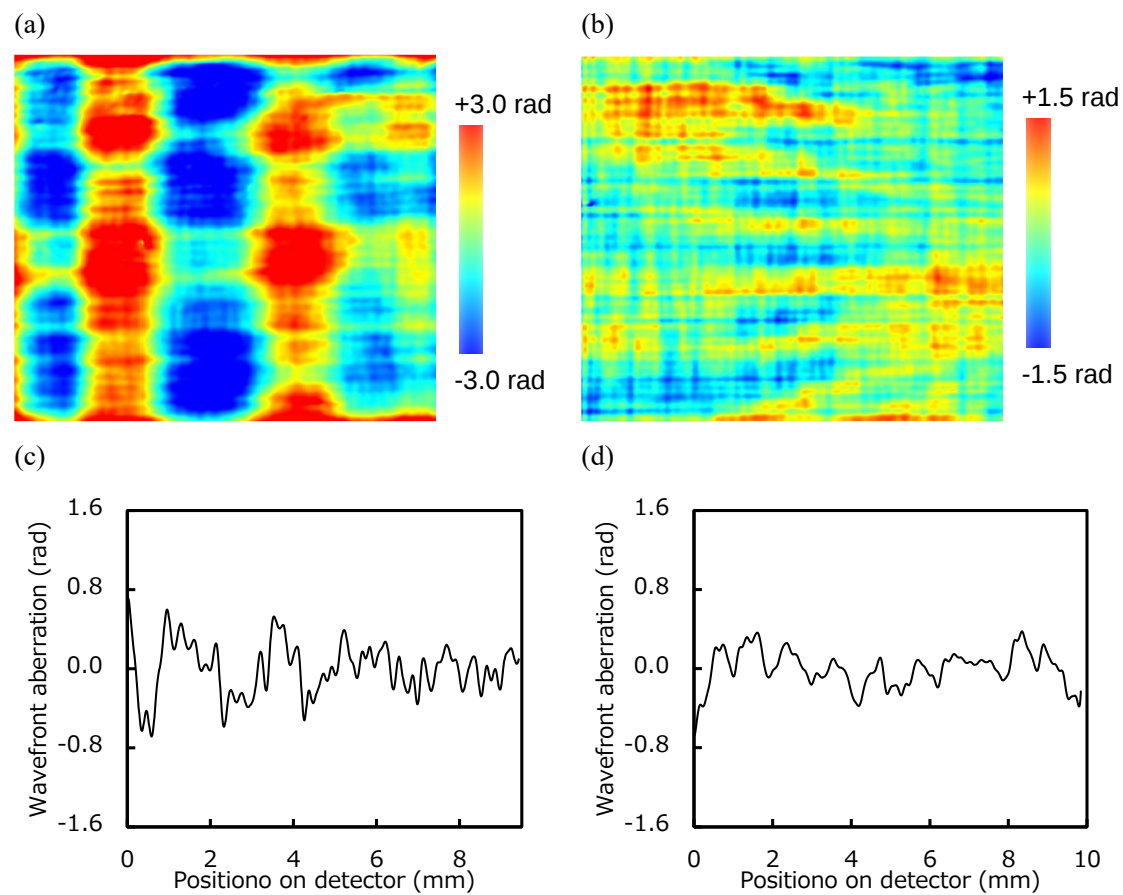


図 6.5.2.3.2 形状修正前(a)と後(b)の 2 次元の波面収差. (c) 垂直方向のラインプロファイル, (d) 水平方向のラインプロファイル.

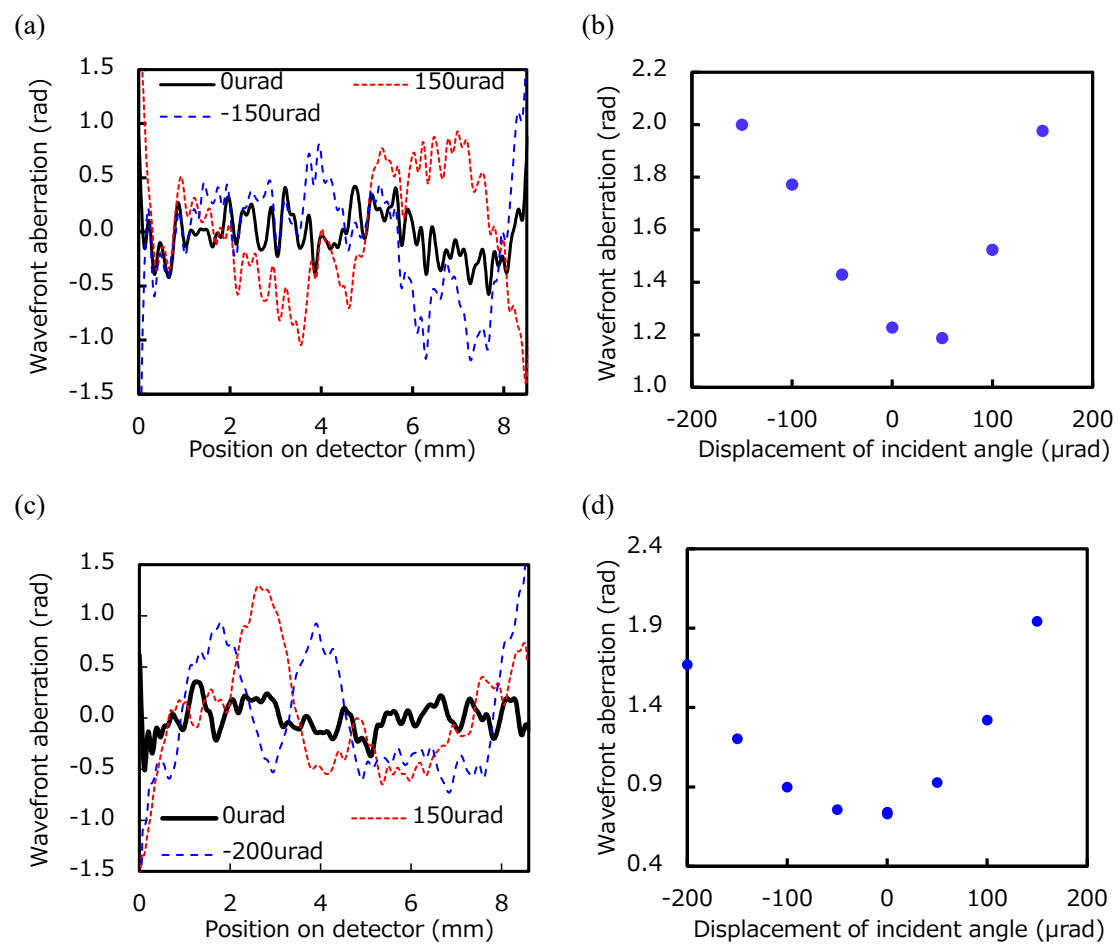


図 6.5.3.1 波面の全体入射角特性. (a)各入射角における垂直方向の波面と(b)PV 値の推移. (c)各入射角における水平方向の波面と(d)PV 値の推移.

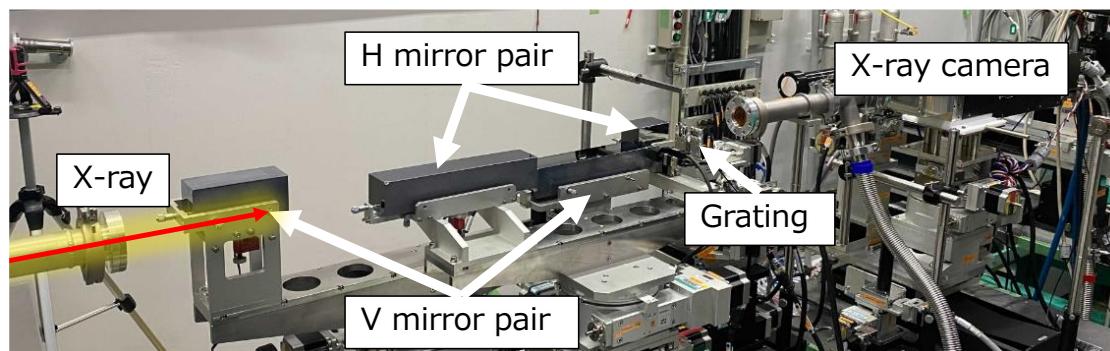


図 6.5.3.2 SACLA で構築した光学系の外観写真.

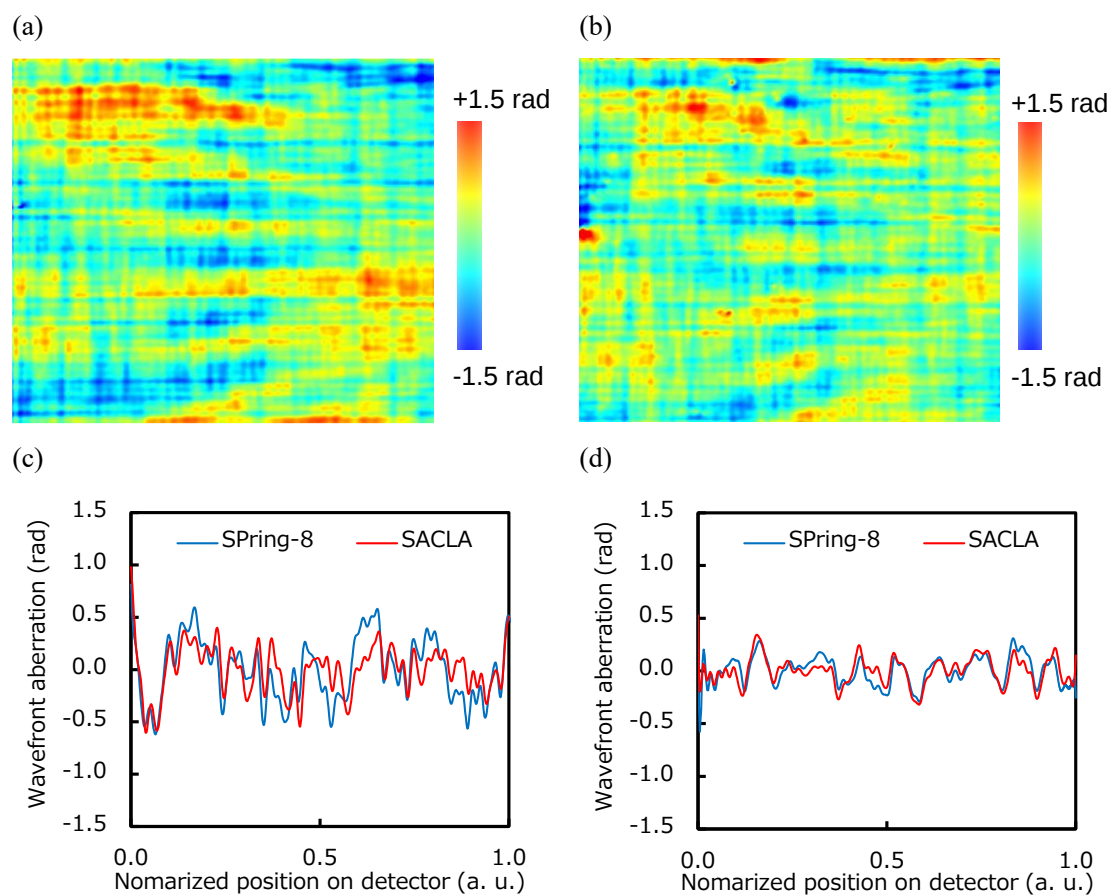


図 6.5.3.3 SPring-8 および SACLA で計測された波面の比較. 2次元(a)SPring-8 (b)SACLA, 1次元(c)垂直方向, (d)水平方向.

6.6 結言

本章では、安定してサイズ 10 nm 集光を達成することを目的として、Wolter III 型配置に基づく新型 sub-10 nm 集光光学系の設計、及び実証実験を行った。以下に得られた結果を記す。

- (1) X 線ミラー結像光学素子である各種 Wolter ミラーと AKB ミラーについて述べた。広い視野と、形状加工の難易度から、AKB ミラーが新規光学系の集光素子として有用であることを示した。
- (2) NA, 縮小倍率, 多層膜周期長, アクセプタンス, 及びワーキングディスタンスなどの制約の下, 新型 sub-10 nm 集光光学系を設計した。波動光学に基づく計算機シミュレーションを行い, 入射角の許容誤差が数百倍向上していることを確認した。一方で, 双曲, 楕円ミラーの相対アライメントに μrad , μm 程度の精度が求められることを確認した。
- (3) 多層膜ミラーの反射率を向上させるために, 多層膜の平均屈折率 (吸収率) を下げることが目的として重元素 (Pt) の薄膜化を検討した。計算機シミュレーションと実証実験により, Pt の厚みがアイランド成長する程度にまで薄くなると反射率が下がることに気づき, Pt 膜厚のみ 1.23 nm の一定値とした多層膜を設計した。
- (4) SPring-8 BL29XU EH4 において新型 sub-10 nm 集光光学系を構築した。波面計測の絶対計測精度を向上させるために, 新しく歪み補正レンズを組み込んだカメラを導入し, 実際にシステムエラーが存在しないことを確認した。
- (5) ミスアライメントが波面に与える影響をそれぞれの軸において独立して評価するために, 計測した波面を Legendre 多項式によってフィッティングした。ミラーの入射角誤差は Legendre 多項式の 7, 10 次成分を, 直角度誤差は 5 次の成分を, ローリング誤差は 8, 9 次の成分を変化させることを確認した。これらの特徴を利用することで, 波面計測結果に基づきミラーアライメントを完了できることが示された。
- (6) 第 4 章同様, 波面計測結果に基づき, ミラー形状を差分成膜法によって修正した。その結果, $\lambda/4$ PV 以下の波面誤差を達成し, 回折限界集光が可能なミラーの作製に成功した。
- (7) 光学系全体の入射角を変化させて, 許容角度誤差範囲を評価したところ, $200 \mu\text{rad}$ 程度であり, KB ミラーと比較して数百倍大きいことを確認した。そして, SACLA BL3 EH4c にて新型 sub-10 nm 集光光学系を構築し, グレーチング干渉計による波面計測を行っ

た．計測された波面は SPring-8 とよく一致し，本光学系が SACLA においても回折限界集光が実現できる光学系であることを確認した．

第 7 章

形状可変多層膜ミラーを用いた sub-5 nm 集光光学系の開発

7.1 緒言

第 6 章までで、KB ミラー、及び AKB ミラーをベースにした sub-10 nm 集光光学系を開発し、それぞれにおいて XFEL が 10 nm 以下に集光されていることを確認してきた。本章では、更に小さく X 線を集光することを目指し、新たな波面制御技術に基づく sub-5 nm 集光光学系を開発した結果について詳述する。第 2 章で述べた通り、光学系の開口数と X 線ミラーの設計斜入射角には相関があるため、回折限界集光サイズの微小化はミラーに必要とされる形状精度の厳格化に直結する。形状誤差評価手法の精度は非常に高いが、これまでの実験から形状修正手法に問題が生じると推測される。そこで新たな形状制御手法として、形状可変多層膜ミラーの導入を提案する。特にバイモルフ構造を有する圧電素子駆動型形状可変ミラーは、高精度かつミラー全長に対して細かく変形できることから、補償光学システムや集光径可変のアダプティブ光学系を構成する重要な素子として導入されている[92-95]。これまでに開発してきたグレーチング干渉計と組み合わせることで、高い絶対精度かつ迅速な波面補償が実現できると考えられる。まず原理実証のために、1 次元における sub-5 nm 集光を目指して光学系を構築し、有限要素法、波動光学計算に基づき性能を評価している。次に、多層膜周期長が小さくなるため、従来使用していた Pt/C 多層膜では対応が難しいと考え、W/C 多層膜を想定し W の最小膜厚を検討している。以上の初期検討を踏まえ、SPring-8 にて実際に光学系を構築し、回折限界条件を満たしつつ、X 線を 5 nm 以下に集光することを目指した。また、もう一つの問題として、垂直集光ミラーペアでは多層膜周期長が更に小さくなり、1 次光反射の多層膜の適用ではアイランド成長の影響を避けられないことが予想される。そこで、新たに高次光反射を利用した集光光学系を構築し、原理実証実験を遂行している。

7.2 圧電素子駆動型形状可変ミラー

圧電素子に応力が加わるとその生じたひずみに応じて、電圧が発生する。これを圧電効果といい、圧力センサー、加速度計などに応用されている。一方、圧電素子に電圧を印加した際には印加した電圧の大きさに応じてひずみが発生する。これを逆圧電効果といい、この現象を利用した振動子や圧電アクチュエータは様々な用途で用いられている。圧電アクチュエータは、小型かつ即応性があり、変位をナノメートルスケールの高分解能で制御できるといった利点がある。圧電材料としては焼結体のセラミック材がよく用いられ、中でもチタン酸ジルコン酸鉛 (lead zirconate titanate, PZT, 組成式 : $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$) はその大きな圧電特性からアクチュエータとしてよく利用されている [96, 97]。また近年では、圧電単結晶体の研究も盛んに行われており、マグネシウムニオブ酸・チタン酸鉛固溶体 (magnesium niobate-lead titanate, PMN-PT, 組成式 : $(1-x) [\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3] - x[\text{PbTiO}_3]$) は PZT の 6 倍程度の圧電定数を持つと報告されている [98, 99]。これまでに開発してきた圧電素子駆動型形状可変ミラーは、ミラー基板の上下面にバイモルフ構造となるように PZT を接着したものである。本項ではその構造、及び変形原理について述べる。

7.2.1 逆圧電効果により発生する応力の算出

圧電素子に応力 T を加えると、次式の応力-ひずみ関係式に従ってひずみ S が発生する。

$$S = sT \quad (7.2.1.1)$$

s : 弾性コンプライアンス

このとき、圧電効果が発生するため、加えた応力 T に応じて電気変位 D が発生する。

$$D = dT \quad (7.2.1.2)$$

d : 圧電定数

また、圧電素子に電界 E を与えた場合、次式の電気変位が生じる。

$$D = \varepsilon E \quad (7.2.1.3)$$

ε : 誘電率

このときに逆圧電効果によって発生するひずみ S は次のように表せる。

$$S = d^t E \quad (7.2.1.4)$$

(添え字 t は転地行列を表している。)

以上の関係をまとめたものを圧電方程式といい、次式で表される。

$$\mathbf{S} = \mathbf{s}\mathbf{T} + \mathbf{d}^t\mathbf{E} \quad (7.2.1.5)$$

$$\mathbf{D} = \mathbf{d}\mathbf{T} + \boldsymbol{\varepsilon}\mathbf{E} \quad (7.2.1.6)$$

これらの圧電方程式を電界と応力の関係式に書き直すと、次のようになる。

$$\mathbf{T} = \mathbf{s}^{-1}\mathbf{S} - \mathbf{s}^{-1}\mathbf{d}^t\mathbf{E}. \quad (7.2.1.7)$$

ここで弾性コンプライアンスの逆行列はヤング率 $\mathbf{Y}$ であるので、以下のように書き直せる。

$$\mathbf{T} = \mathbf{Y}\mathbf{S} - \mathbf{Y}\mathbf{d}^t\mathbf{E}. \quad (7.2.1.8)$$

このように、圧電素子に発生する応力は、圧電素子のヤング率、ひずみ、圧電定数、与えた電界によって記述することができる[100]。図 7.2.1.1 に示されるように分極方向に対して 3 軸を与えた座標系をとる場合、行列を用いると下記の通り表せる。

$$\begin{pmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} Y_{11} & Y_{12} & Y_{13} & Y_{14} & Y_{15} & Y_{16} \\ Y_{21} & Y_{22} & Y_{23} & Y_{24} & Y_{25} & Y_{26} \\ Y_{31} & Y_{32} & Y_{33} & Y_{34} & Y_{35} & Y_{36} \\ Y_{41} & Y_{42} & Y_{43} & Y_{44} & Y_{45} & Y_{46} \\ Y_{51} & Y_{52} & Y_{53} & Y_{54} & Y_{55} & Y_{56} \\ Y_{61} & Y_{62} & Y_{63} & Y_{64} & Y_{65} & Y_{66} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{pmatrix} \quad (7.2.1.9)$$

$$- \begin{bmatrix} Y_{11} & Y_{12} & Y_{13} & Y_{14} & Y_{15} & Y_{16} \\ Y_{21} & Y_{22} & Y_{23} & Y_{24} & Y_{25} & Y_{26} \\ Y_{31} & Y_{32} & Y_{33} & Y_{34} & Y_{35} & Y_{36} \\ Y_{41} & Y_{42} & Y_{43} & Y_{44} & Y_{45} & Y_{46} \\ Y_{51} & Y_{52} & Y_{53} & Y_{54} & Y_{55} & Y_{56} \\ Y_{61} & Y_{62} & Y_{63} & Y_{64} & Y_{65} & Y_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} d_{11} & d_{21} & d_{31} \\ d_{12} & d_{22} & d_{32} \\ d_{13} & d_{23} & d_{33} \\ d_{14} & d_{24} & d_{34} \\ d_{15} & d_{25} & d_{35} \\ d_{16} & d_{26} & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{bmatrix}.$$

$\mathbf{Y}$ の行列について、バイモルフミラーでよく用いられる PZT のような圧電セラミックスを使う場合について考える。分極方向に対して直交する面内で等方性があるなら、 $\mathbf{Y}$ マトリックスの要素は以下のように簡単になる。

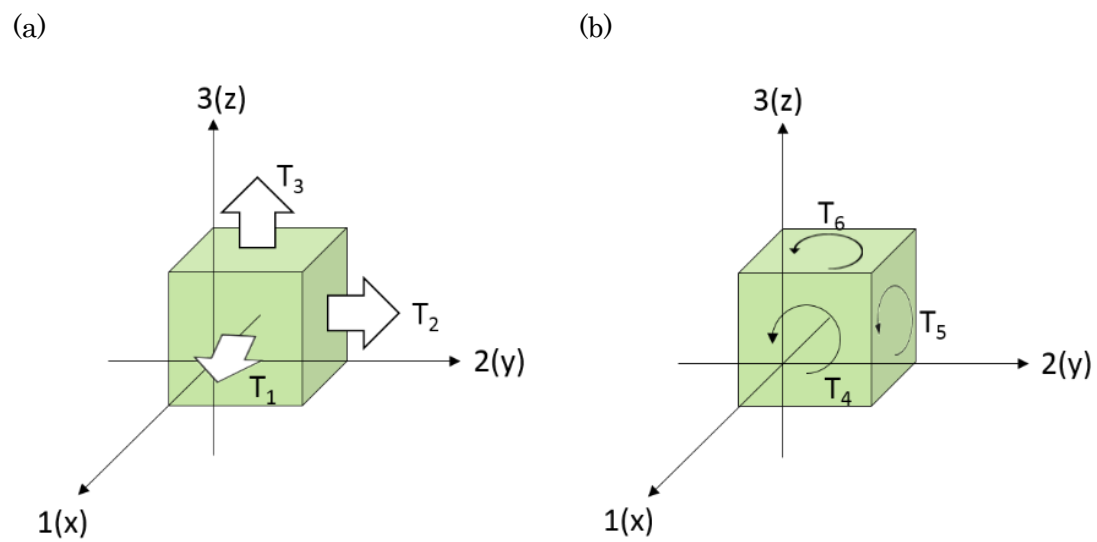


図 7.2.1.1 圧電素子の応力の成分 (a) 縦方向, (b) せん断方向.

$$\begin{pmatrix} T_1 \\ T_2 \\ T_3 \\ T_4 \\ T_5 \\ T_6 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} Y_{11} & Y_{12} & Y_{13} & 0 & 0 & 0 \\ Y_{21} & Y_{22} & Y_{23} & 0 & 0 & 0 \\ Y_{31} & Y_{32} & Y_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & Y_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & Y_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & Y_{66} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{pmatrix} \quad (7.2.1.10)$$

$$- \begin{bmatrix} Y_{11} & Y_{12} & Y_{13} & 0 & 0 & 0 \\ Y_{21} & Y_{22} & Y_{23} & 0 & 0 & 0 \\ Y_{31} & Y_{32} & Y_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & Y_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & Y_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & Y_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 0 & 0 & d_{31} \\ 0 & 0 & d_{31} \\ 0 & 0 & d_{33} \\ 0 & d_{15} & 0 \\ d_{15} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_3 \end{bmatrix}.$$

ここで、これらの式は微小振幅に対してのみ有効であることを述べておく．変形が大きくなると非線形な現象が現れてくる．

7.2.2 圧電素子によるミラー基板の変形

図 7.2.2.1 のようにミラー基板に圧電素子を接着して構成される構造の形状可変ミラーは、圧電素子の分極方向に対して電圧を印加することで、屈曲変位型の圧電アクチュエータとして動作する．3(z)軸に対して電圧を印加するため、 $E_1 = E_2 = 0$ を式(7.2.1.10)に代入することと同意である．また、圧電素子はミラー基板に対して接着・固定されており、変形量は極微小であることから変位 $\mathbf{S}$ はほぼ0であるとみなせる．よって圧電素子によってミラー基板に曲げモーメントを発生させる応力 T_1 は次のようになる．

$$T_1 = -(Y_{11}d_{31} + Y_{12}d_{31} + Y_{13}d_{33})E_3. \quad (7.2.2.1)$$

さらに圧電素子のポアソン比を ν としたとき、次式の通り応力はヤング率、圧電定数、ポアソン比、電界で表せることがわかる．

$$T_1 = -(Y_{11}d_{31} - \nu Y_{11}d_{31} - \nu Y_{33}d_{33})E_3. \quad (7.2.2.2)$$

次に、形状可変ミラーを目標形状へと変形させる場合について考える．形状可変ミラーは、前述したように、楕円や放物面などの非球面形状へと変形させる．非球面形状は、場所ごとに曲率が異なる．そこで目標形状の曲率 $\frac{1}{R(x)}$ は、目標形状を $y(x)$ としたとき、目標形状の二階微分をとることで近似的に求めることができる．(式(7.2.2.3))

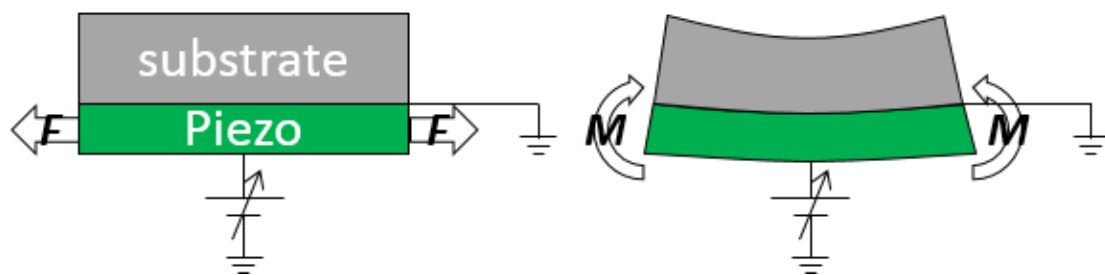


図 7.2.2.1 圧電素子によるミラー基板の変形.

$$\frac{1}{R(x)} = \frac{d^2 y(x)}{dx^2}. \quad (7.2.2.3)$$

材料力学における梁の曲げ理論において、曲げモーメント分布 $M(x)$ と曲率の関係は、ミラー基板のヤング率を Y_m 、断面二次モーメントを I_m としたとき、次のように表すことができる。

$$M(x) = Y_m \times I_m \times \frac{1}{R(x)}. \quad (7.2.2.4)$$

次に、ミラー基板のある場所で曲げモーメント M を発生させるために必要な力を F とすると、ミラーの基板の厚みを t_m 、圧電素子の厚みを t_p としたとき、せん断力と曲げモーメントは、中立層がミラー基板の中心であると近似した場合、下記の関係で表せる。

$$M = F \frac{(t_m + t_p)}{2}. \quad (7.2.2.5)$$

F は圧電素子によって発生する力であるので、圧電素子の断面積を S 、幅を w_p 、印加電圧を V とすると、次式で表せる。

$$\begin{aligned} F = T_1 \times S &= -(Y_{11}d_{31} - \nu Y_{11}d_{31} - \nu Y_{33}d_{33}) \times \frac{V}{t_p} \times S \\ &= (Y_{11}d_{31} - \nu Y_{11}d_{31} - \nu Y_{33}d_{33}) \times V \times w_p \\ &= -Y_p d_p V w_p. \end{aligned} \quad (7.2.2.6)$$

ここで、 Y_p, d_p は圧電素子の実効的なヤング率と圧電定数である。式(7.2.2.3)～(7.2.2.6)をまとめると曲率 $\frac{1}{R}$ と電圧の関係式は次のようになり、目標形状へと変形するために必要な電圧を求めることができる。

$$\frac{1}{R} = \frac{Y_p d_p w_p \frac{(t_m + t_p)}{2}}{Y_m I_m} V. \quad (7.2.2.7)$$

このように、圧電素子に印加する電圧を制御することによって、ミラー上の曲率を制御することができる[101]。また、電圧が印加される領域は、圧電素子に作りこむ電極の大きさで決まるため、ミラー基板に対して電極サイズを小さくすることで、高い空間周波数で形状の変形が実行できる。

7.3 sub-5 nm 集光光学系の設計

最終的に SACLA への導入を目指しているが、プロトタイプとして SPring-8 BL29XU EH4 を想定して設計した。下記に設計の制約を示した。

1. サイズ 5 nm 以下を達成するための開口数の確保。ここで、X 線エネルギーを 9.1 keV とした場合、ミラーの曲率半径が非常に小さくなり、基板の初期加工段階で致命的な問題が発生すると危惧される。そのため、20 keV (SACLA で発振できる限界付近) まで上げてミラー形状が新型 sub-10 nm 楕円凹ミラーと大差ないようにする。尚、SACLA と違い、ミラー光源間が 1 km 程度と長い場合、縮小倍率は十分満足するので、本光学系では制約に課さない。
2. 形状可変ミラー化に際するミラー全長の制限。本光学系の形状可変ミラーとして、圧電素子駆動型のバイモルフミラーを想定している。圧電素子は製造できる長さが限られており、ミラー全長が長い場合、複数枚貼り合わせることになる。その場合、僅かではあるが張り合わせた箇所に極端に曲がらない領域ができる (ジャンクションエフェクト) [102-104]。sub-5 nm 集光ミラーでは、この僅かな誤差が無視できない可能性があるため、全長 200 mm 以下の多層膜ミラーを設計する必要がある。
3. 前段ミラーは全反射ミラーで、後段多層膜ミラーの下流側のみ 3 次光反射。反射率を少しでも上げることは必須事項であるため、前段ミラーは必ず全反射ミラーにする。前回までの光学系と異なり 20 keV であるため、臨界角が低くなる点について注意して設計する。また、焦点に近い側の多層膜ミラーは、斜入射角が大きくなるため、多層膜の周期長が短くなり、おそらくアイランド成長が起こる膜厚になってしまう。そこで、多層膜の高次光反射を利用する。これにより、長い周期長の多層膜でも大きな斜入射角の X 線を効率よく反射できる。ただし、反射率が比較的低く、ブラッグピークのエネルギーバンド幅が小さいことから、後段ミラーの上流側は可能な限り 1 次光反射で対応できるように設計したい。

以上の制約を踏まえて、sub-5 nm 集光光学系を設計した。図 7.3.1 に光学系の配置図、表 7.3.1 に性能パラメータを示した。また、図 7.3.2, 7.3.3, 及び 7.3.4 にミラー形状、入射角、及び多層膜周期長分布を示した。本光学系においても Wolter III 型配置の導入による光学系全体の高安定化を狙っている。X 線エネルギー 20 keV にて、垂直水平両方向ともに 4 nm 以下に X 線を回折限界集光できる。X 線エネルギーを上げた分開口数は新型 sub-10 nm 集光光学系と比較するとわずかに小さくなっている。両方向共に双曲凸ミラーは全

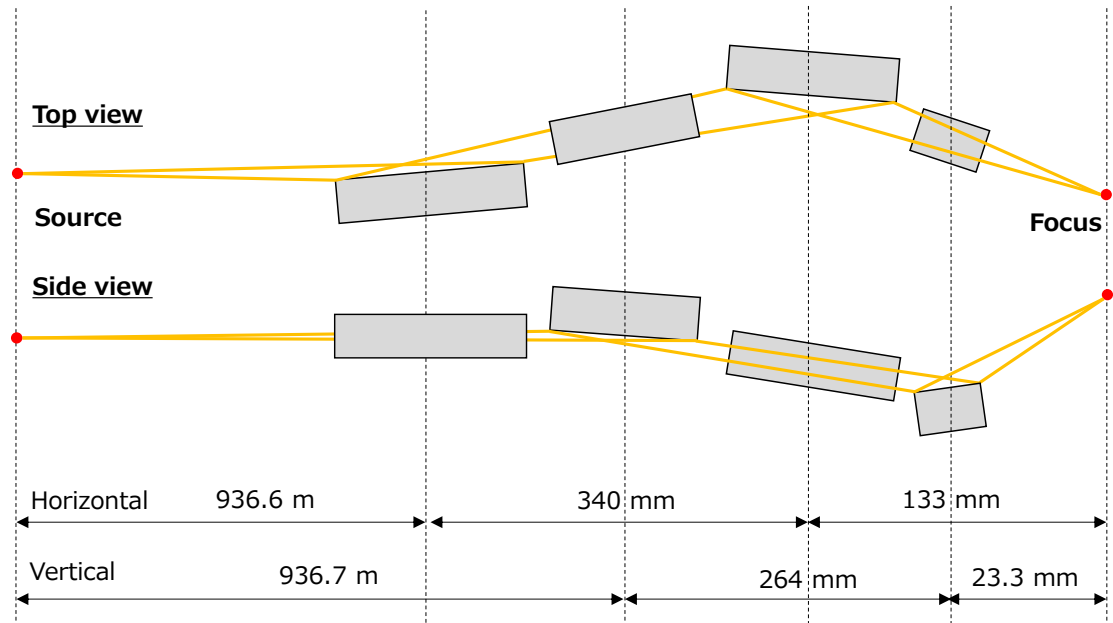


図 7.3.1 構築した sub-5 nm 集光光学系の光学配置.

表 7.3.1 sub-5 nm 集光光学系の性能パラメータ.

(a)垂直集光ペア.

	Hyperbola	Ellipse
Mirror length (mm)	130	26.1
Average grazing incidence angle (mrad)	1.41	23.0
Coating	Pt	Pt/C (100 layer)
Demagnification	117935	
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	10.8	
Diffraction limit (nm, FWHM) @20 keV	2.53	

(b)水平集光ペア.

	Hyperbola	Ellipse
Mirror length (Effective area) (mm)	200 (190)	151.5 (145.1)
Average grazing incidence angle (mrad)	2.3	12.3
Coating	Pt	W/C (50 layer)
Demagnification (Total demagnification)	35751	
Numerical aperture ($\times 10^{-3}$)	7.25	
Diffraction limit (nm, FWHM) @20 keV	3.76	

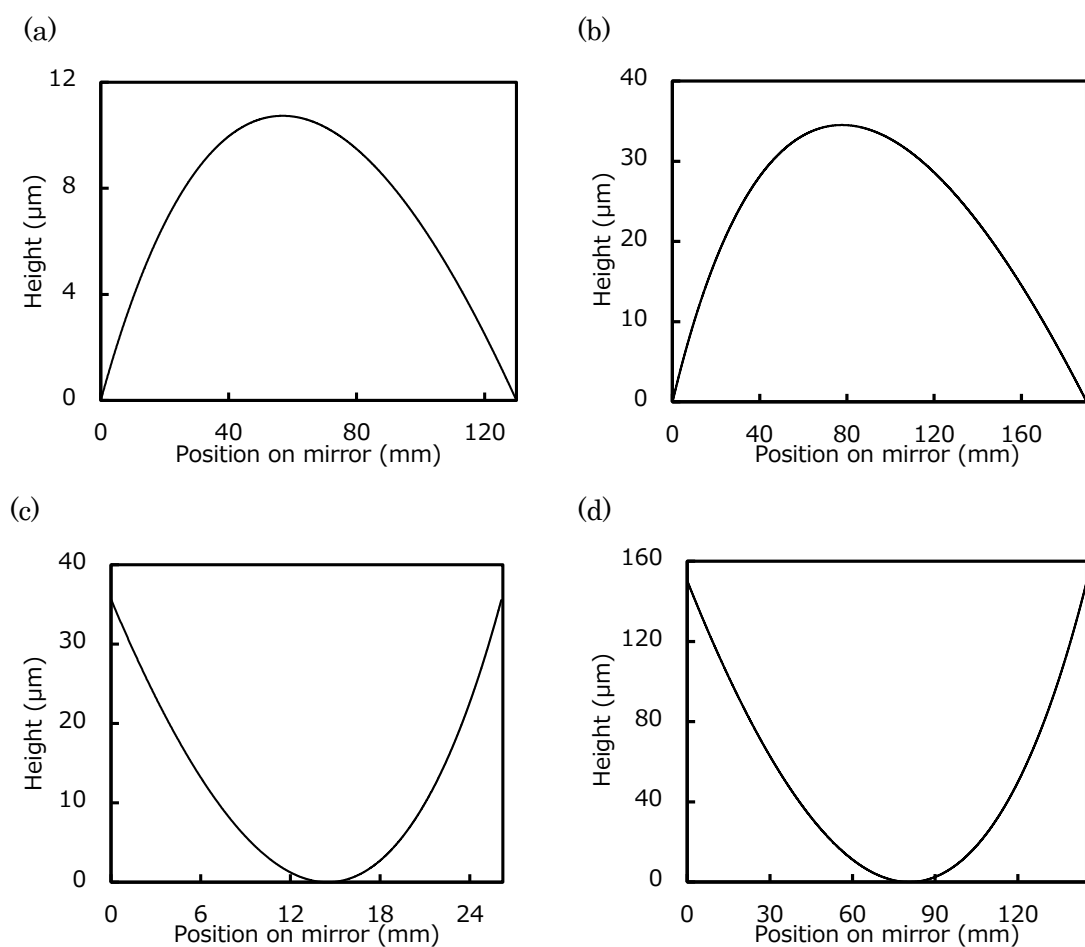


図 7.3.2 ミラー形状. (a) 垂直集光双曲ミラー, (b) 水平集光双曲ミラー, (c) 垂直集光楕円ミラー, (d) 水平集光楕円ミラー.

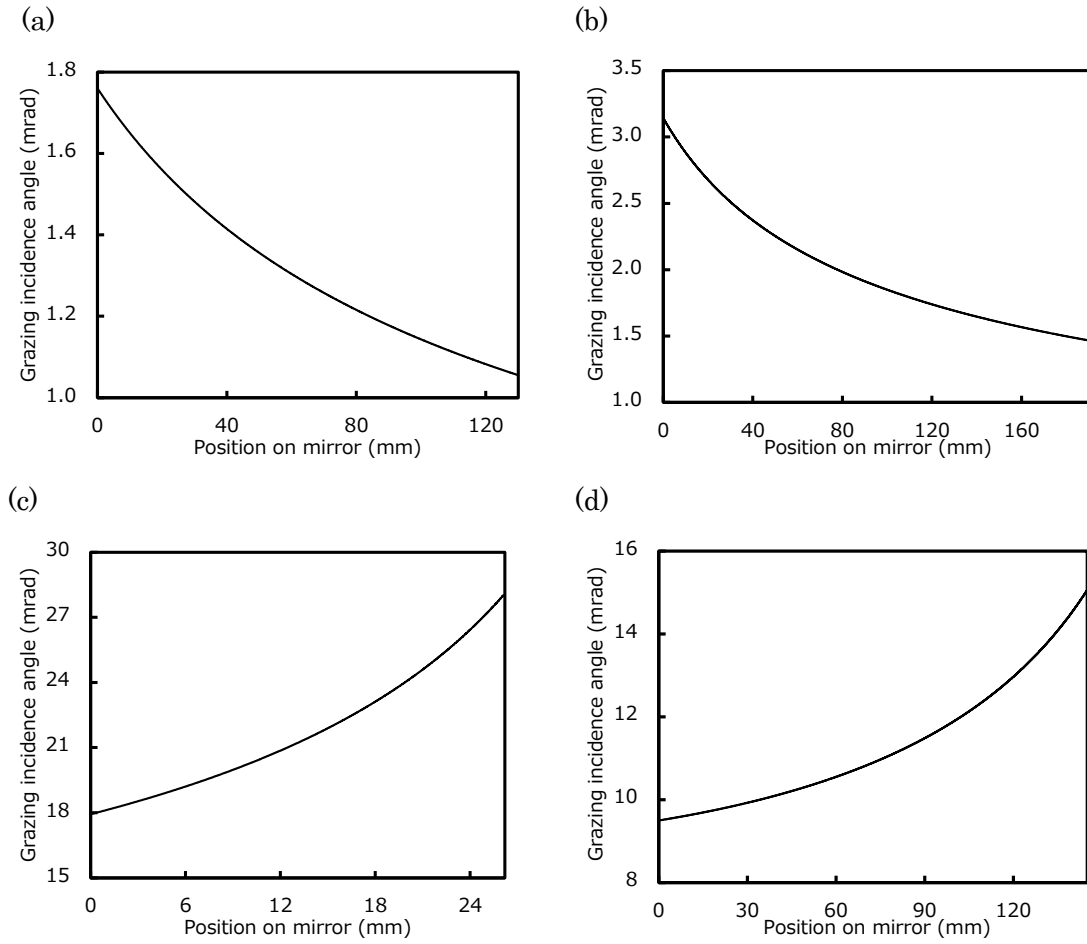


図 7.3.3 ミラーの入射角分布. (a) 垂直集光双曲ミラー, (b) 水平集光双曲ミラー, (c) 垂直集光楕円ミラー, (d) 水平集光楕円ミラー.

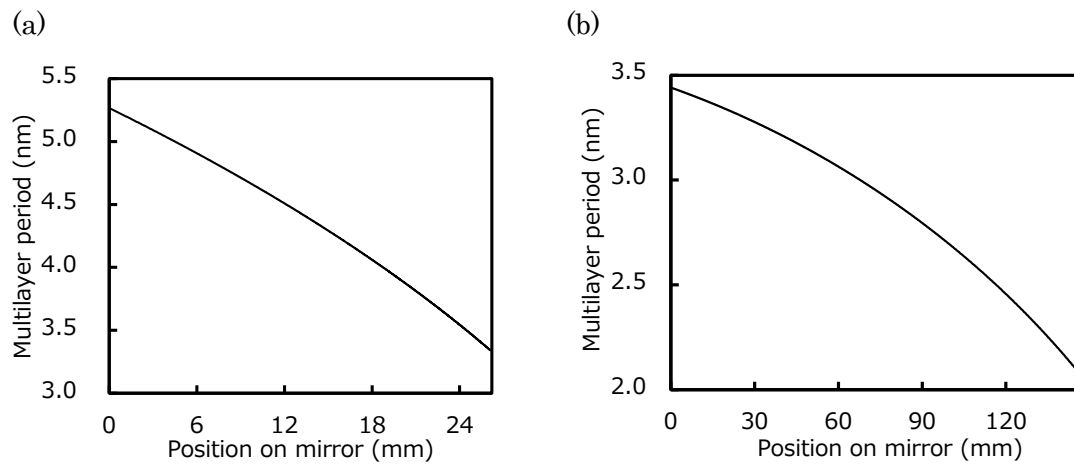


図 7.3.4 ミラーの多層膜周期長分布. (a) 垂直集光楕円ミラー (3次光), (b) 水平集光楕円ミラー.

反射ミラーである。水平集光楕円ミラーの多層膜周期長が 2.1 nm 以下であり Pt/C 多層膜では対応が困難であると考え、後述する検討の結果から W/C 多層膜としている。垂直集光楕円ミラーは多層膜の 3 次光反射で設計されている (3 次光の選定理由は後述)。斜入射角度と X 線波長から回折限界集光に必要な形状精度は、垂直方向 0.3 nm PV、水平方向 0.5 nm PV と見積もられる。

7.4 水平集光ミラーペアの基礎検討

水平集光ミラーペアについて、計算機シミュレーションに基づき光学系の性能を評価した結果を詳述する。そして、多層膜の最小膜厚についての検討を W/C で再度行った結果を述べる。

7.4.1 波動光学計算に基づくミラーアライメント精度の検討

第 6 章と同様に、入射角誤差に対するビームサイズの変化を計算した結果を示した(図 7.4.1.1)。比較のために、水平集光ペアの楕円ミラーと同じワーキングディスタンスを有し、sub-5 nm 集光可能な KB ミラーにおいても同様の計算を行った。KB ミラーでは ± 100 nrad の誤差で集光サイズが 5 nm を超えてしまったことに対して、AKB ミラーでは ± 60 μ rad 程度までの誤差であれば 5 nm 以下に集光できるとわかり、高い安定性を有することが確認できた。また、NA が欠落する許容精度についても計算した結果を示した(表 7.4.1.1)。新型 sub-10 nm 集光光学系と比較して NA が大差ないからか、許容精度はほとんど変わらないため、問題なく配置できると推測される。尚、設計 X 線エネルギーを上げたため、波面収差による制限は大きくなる。しかし、ミラーの形状を変えられるため、4 次関数誤差などはその場で容易に修正できることから、本光学系において議論の必要は無い。

7.4.2 有限要素法に基づく形状修正精度の評価

水平集光楕円ミラー(図 7.4.2.1(a))の形状修正精度を評価するために、有限要素法(FEM)に基づく計算機シミュレーションを行った。図 7.4.2.1(b),(c)に計算モデル、表 7.4.2.1 にパラメータを記述した。151.5 $\times$ 59 $\times$ 5 mm³ のガラス基板に、147.5 $\times$ 15 $\times$ 1 mm³ の PZT プレートが表裏面に 2 枚ずつ貼り付いている。基板のタンジェンシャル方向の大きさが楕円ミラーの設計値より大きいことは、①sub-10 nm 集光ミラー同様に基板の端までミラー形状を精度良く作れないこと、及び②圧電素子を貼るために空間が必要であることに起因している[105]。基板のサジタル方向の大きさは、①圧電素子の裏面電極を作るスペースの確保と、②形状加工段階における作業の容易化といった理由で、最小値が制限されている。それぞれの PZT は電極により 30 分割されており、各電極に異なる電圧を印加することで任意の形状を作ることができる。FEM において逆圧電効果による変形を表現するために、材料の圧電定数を熱膨張係数として代入し、電圧の代わりに温度を変化させる近似を行った。

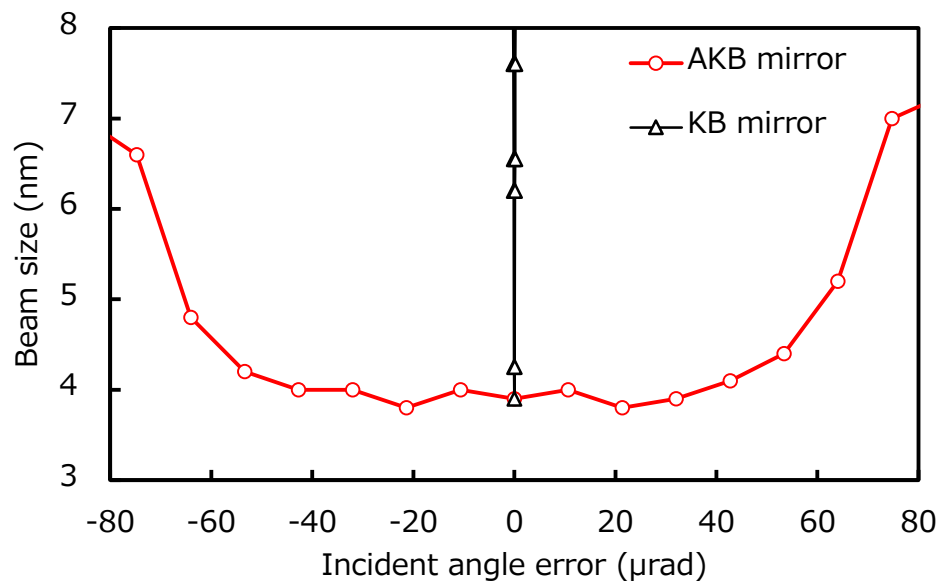


図 7.4.1.1 入射角誤差とビームサイズの関係.

表 7.4.1.1 許容ミスアライメント量

θ_x (μrad)	± 20
z (μm)	± 10
y (μm)	± 72

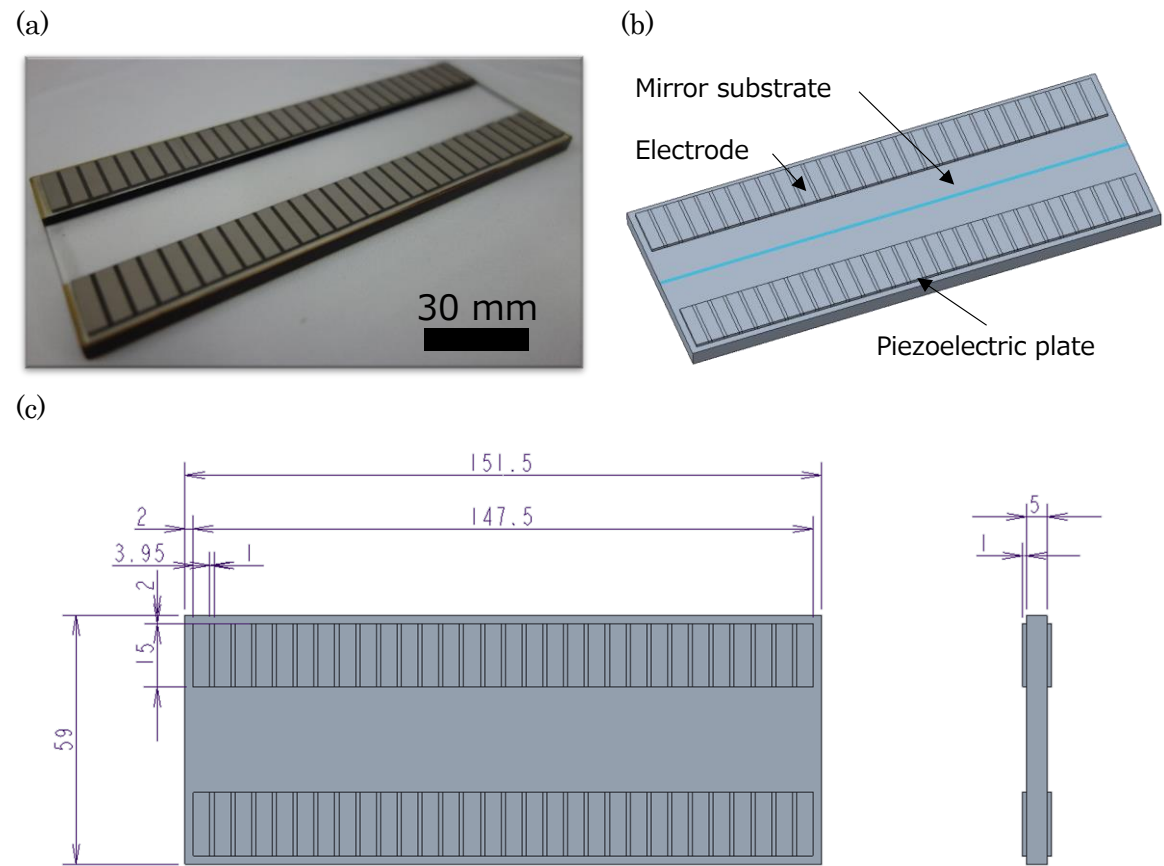


図 7.4.2.1 水平集光楕円形状可変ミラーの(a)外観写真と，(b),(c)シミュレーションモデル．

表 7.4.2.1 形状可変ミラーのパラメータ．

	Mirror substrate	Piezoelectric plate	Electrode
Material	Quartz glass	Lead zirconate titanate (PZT)	Chromium
Length (mm)	151.5	147.5	3.95
Width (mm)	59	15	15
Thickness (mm)	5	1	-
Young's modulus (GPa)	90	80	-
Piezoelectric coefficient (m/V)	-	-135×10^{-12}	-

d_{31} はゼロに近似し、圧電素子が等方的に伸びることにしている（本来は縦に延びると横は縮む.）。また、ガラス基板と、電極間の隙間は圧電定数がゼロの物質とした。まず、各電極一つ一つに電圧 100 V を印加した際の変形量である応答関数を計算した（図 7.4.2.2）。

この応答関数に基づき、修正可能な形状を計算した。本光学系の必要形状精度は 0.5 nm PV であるので、これを一つの基準とする。振幅が 10 nm の正弦波関数目標形状を作成し、応答関数を用いて最小二乗法でフィッティングした（図 7.4.2.3）。残差は形状可変ミラーで修正できない形状であるため、これが 0.5 nm PV を超えると回折限界集光できない。図 7.4.2.3 より、4 周期形状は非常によく再現できているが、7 周期形状に関しては大きく残差が生じることが分かった。正弦波の周期数と残差の関係をグラフにまとめると、残差は周期数に対して対数的に大きくなることが分かった（図 7.4.2.4(a)）。また、本形状修正を行う際に必要であった印加電圧の絶対値の最大値に関してもまとめたところ、こちらに関しても周期数に対して対数的に大きくなることが分かった（図 7.4.2.4(b)）。用意できる電力源にも限りがあり、我々の場合 ± 500 V の範囲でしか変形できないため、本パラメータにも注意しなければならない。

以上を踏まえて、周期数毎に必要な精度を満たせる修正可能形状の PV 値を見積もった結果、電圧ではなく残差が修正可能形状を制限していた（図 7.4.2.4(c)）。これは我々の光学系の必要形状精度が厳しいことに起因する。ミラーの加工手法である EEM 法で生じる形状誤差は 2 nm PV とされており、計算の結果、6.5 周期までであれば修正可能であることが分かった。このような形状誤差は、第 6 章までで開発してきた X 線ミラーの初期形状誤差として生じていなかったことから、本形状可変ミラーは実用的な性能を有していると確認できた。

7.4.3 W/C 多層膜ミラーの検討

第 6 章の検証結果から、Pt 薄膜の閾値は 1.23 nm としていた。本光学系の多層膜の最短周期長は 2.099 nm であるため、Pt と C を 1 対 1 で成膜することができない。結晶粒が生成されやすい Pt と異なり、C の成膜可能最小膜厚は薄いと考えられるため、Pt が分厚くなるよう元素比率を調整することは可能である。しかし、平均屈折率が増加し、膜の吸収量が大きくなるため、結果として反射率は落ちてしまう。そこで、新たな重元素として W を採用した。理由として、①電子密度が大きく X 線領域の反射膜として一般的に用いられていること、及び②W と C の相性が良いことから（PtC と比較して WC は一般的に存在する）[106]シード層のような働きをすると期待できることが挙げられる。実際に第 6 章にて Pt で行った検討と同じように、W の厚みを変化させつつ多層膜を複数作製し、XRD で反射率分布を計測し、界面粗さを評価した（図 7.4.3.1）。0.9 nm より分厚いときは界面粗さが 0.25 nm RMS を下回っており、0.7 nm 未満で一気に悪化した。この結果から、Pt よりも周期長が短い多層膜をアイランド成長なく作製できると結論付けられ、周期長 2.099 nm の多層膜に問題なく対応できると考えられる。

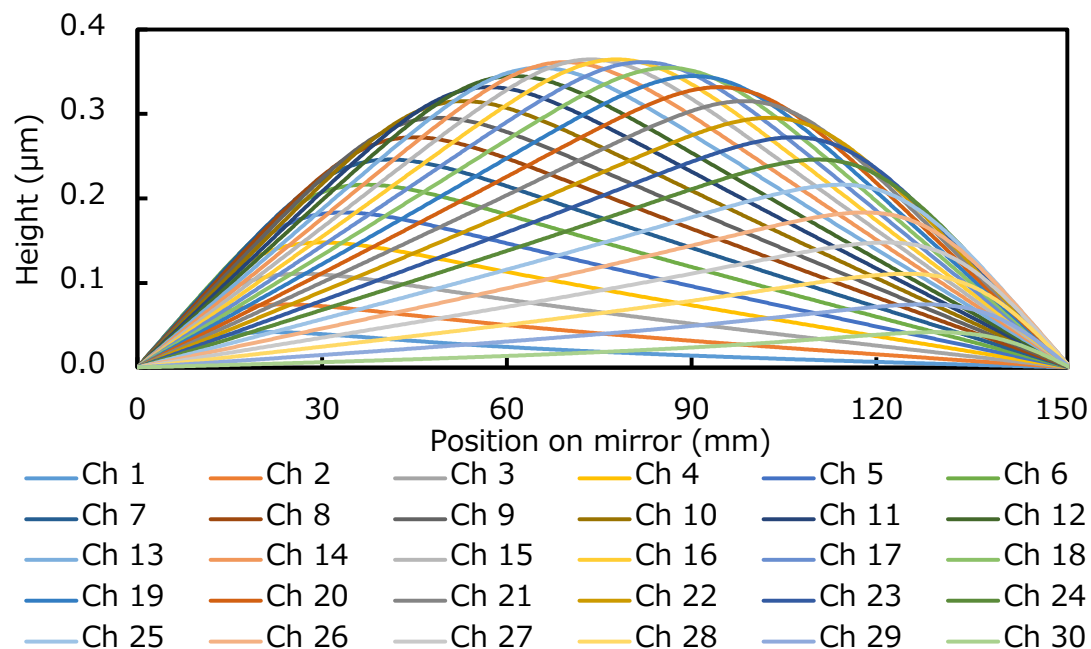


図 7.4.2.2 水平集光楕円ミラーの応答関数 (100 V).

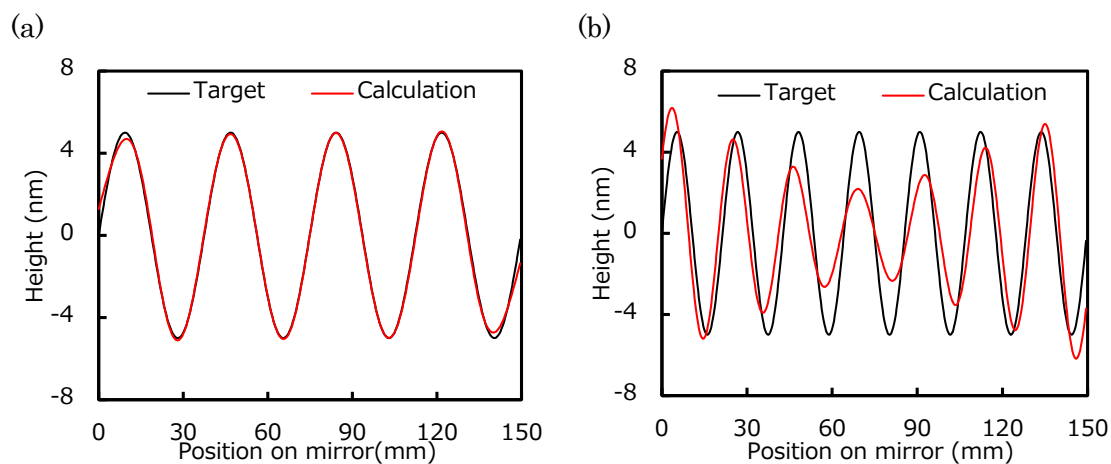


図 7.4.2.3 形状可変ミラーにおける変形精度の検証例. (a)正弦波 4 周期, (b)正弦波 7 周期.

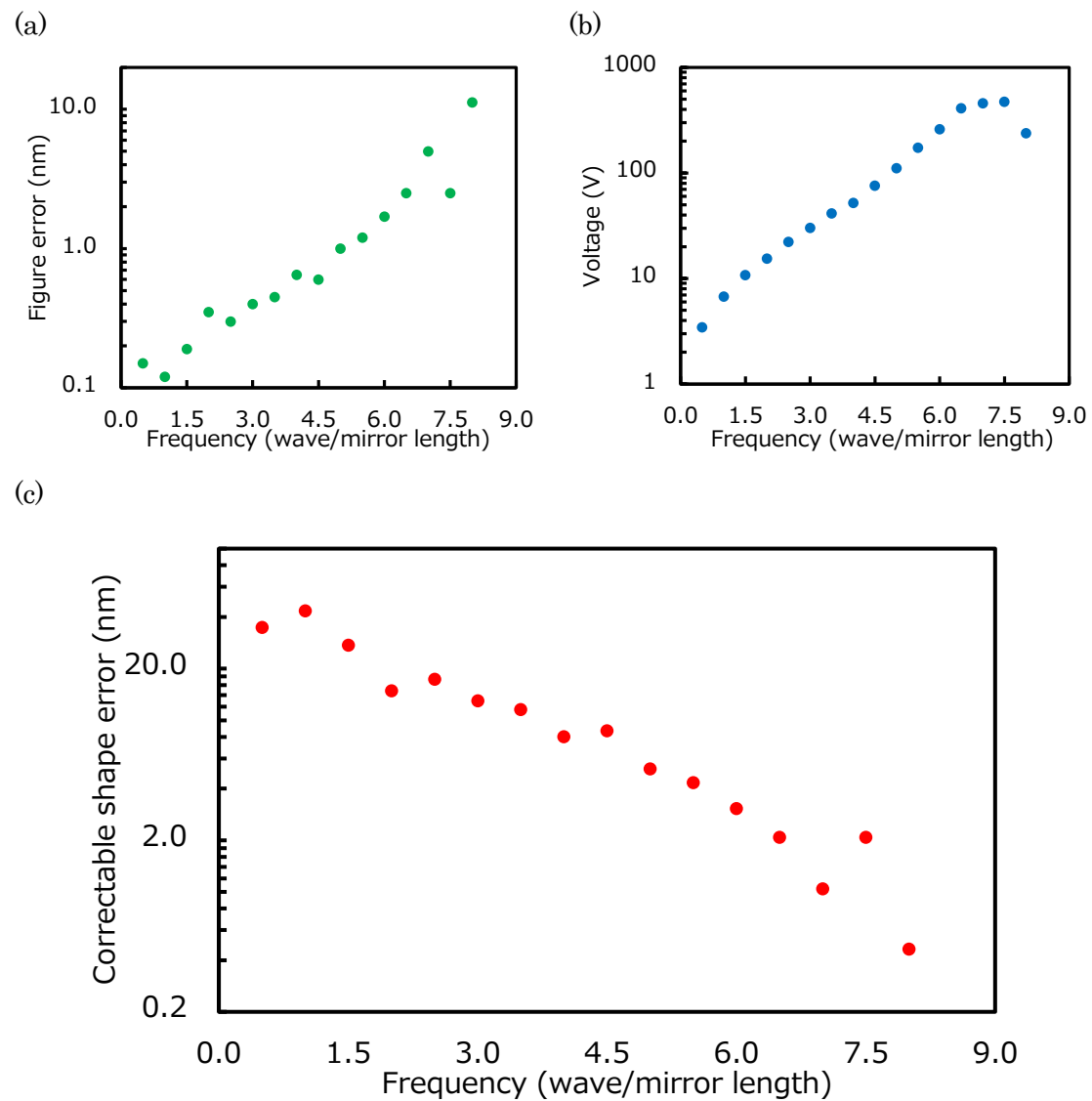


図 7.4.2.4 正弦波形状の周期数を変えつつ、変形精度を検証した結果. (a)振幅 10 nm に対する変形精度, (b)必要な印加電圧分布の絶対値の最大値, 及び(c)必要形状精度を満たすことができる初期形状誤差量.

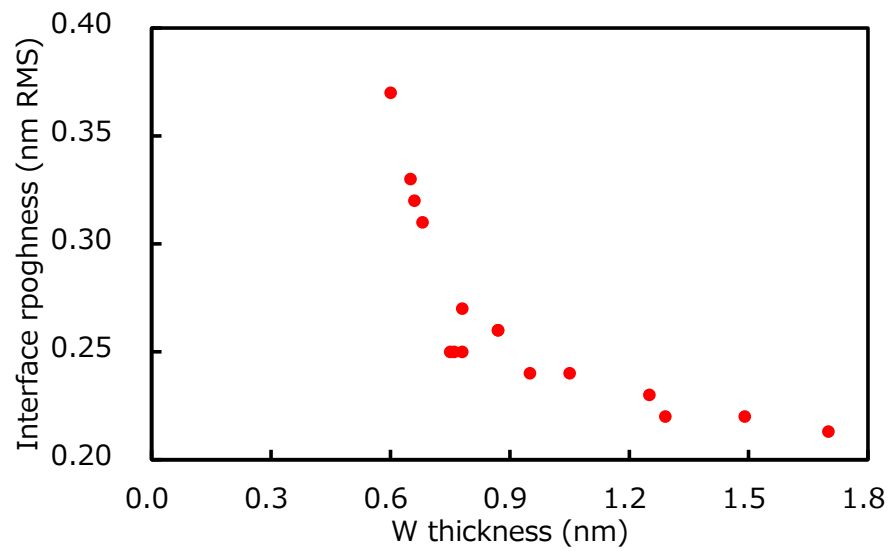


図 7.4.3.1 W/C 多層膜における, W 膜厚と界面粗さの関係.

7.5 SPring-8 における水平方向の 1 次元集光実験

7.5.1 実験セットアップ

SPring-8 BL29XU EH4 にて形状可変多層膜ミラーを用いた sub-5 nm 集光光学系を構築し、実証実験を行った。多層膜として W/C を 50 層成膜した。アンジュレータの 3 次光を Si(111) で単色化した 20 keV の X 線を利用した。図 7.5.1.1 に実験配置の概略図、図 7.5.1.2 に写真を示した。sub-10 nm 集光実験時と同じグレーチング干渉計を構築している。本光学系においても 2 枚のミラーは 1 つのブリッジに乗っており、調整軸などは新型 sub-10 nm 集光光学系とほぼ同じである。オフラインにおけるミラー、及び回折格子のアライメント方法も従来通りであるため省略する。2 枚のミラーはオートコリメータにより常に角度の変位が計測されている。波面を基準に 3 次関数がなくなるように相対入射角（楕円ミラー）を調整し、残った 4 次関数以上の成分を形状可変ミラーで修正した。

7.5.2 形状可変ミラーとグレーチング干渉計に基づくリアルタイム補償光学

まず、グレーチング干渉計にて得られた自己像を示した（図 7.5.2.1）。水平方向のみ集光しているため、自己像は横長である。ラインプロファイルの通り、波面計測の実施に十分な高いビジビリティを有していることがわかった。3 次関数成分を補正するように相対入射角を調整したところ、60 rad PV 程度の大きな 4 次関数の波面収差が生じていることを確認した（図 7.5.2.2）。ミラーの配置が設計より大きくずれていることが考えられたが、NA を計測したところ設計値の 97 % であったことから、ミスアライメント由来ではないと推測される。基板が薄いことにより、ミラーの製造段階において形状計測時に基板の形が安定せず、低周期の形状を正確に計測できていなかったことが原因と考えられる。4 次関数が残った理由は旧型 sub-10 nm 集光光学系と同様で、2, 3 次関数形状はアライメントで補正できたからである。しかしながら、低周期の形状誤差は形状可変ミラーで問題なく修正できるので、グレーチング干渉計を用いて応答関数の計測を行った（図 7.5.2.3）。カメラ視野内の原点側が形状可変ミラーの下流方向に相当している。曲率の変位が視野内の正方向に偏っているのは、ミラーの斜入射角分布に依存したものであり、幾何光学的に正しい。取得した応答関数と計測結果を元に最小二乗法を行い、算出された電圧分布を印加した結果、6 rad PV まで波面収差は改善した（図 7.5.2.4(a)）。本補償光学システムの有用性が示せた一方で、2 nm PV 程度の形状誤差が残存していた（図 7.5.2.4(b)）。形状可変ミラーで修正が困難な高空間周波数成分であることは、計算機上で確認できている。従来のミラーでは見られない高空間周波数形状であることから、本来は加工の段階で十分に取り除ける成分であると推測される。しかし、前述した計測の安定性の問題に加えて、ミラーの下流側は上流と比較して更に表面形状の曲率が大きいため、比較的高い空間周波数の形状誤差が計測されずに残存してしまったと考えられる。

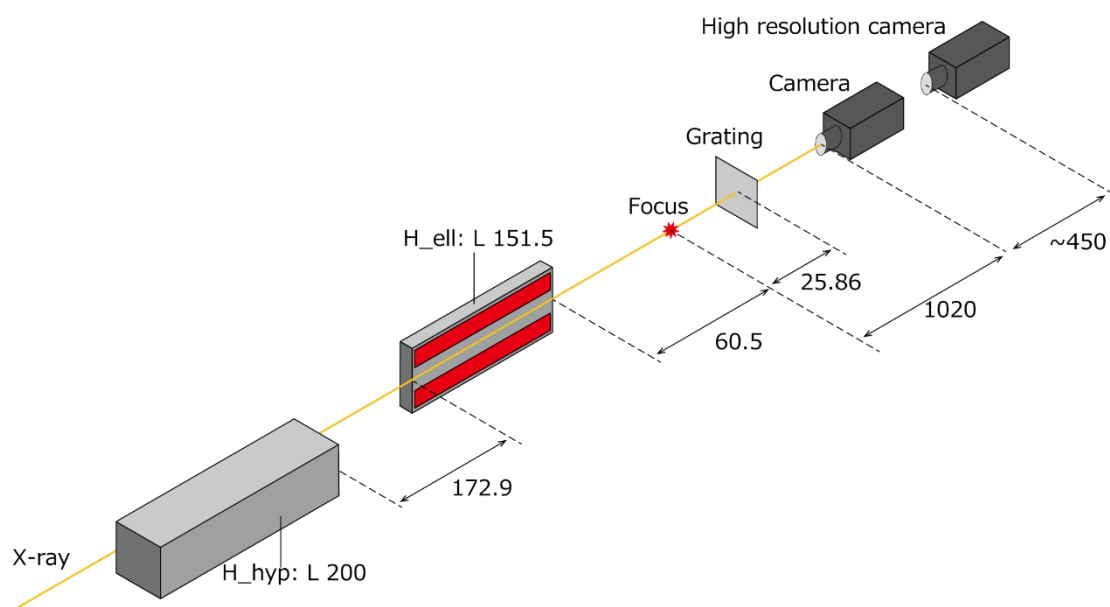


図 7.5.1.1 実験セットアップ.

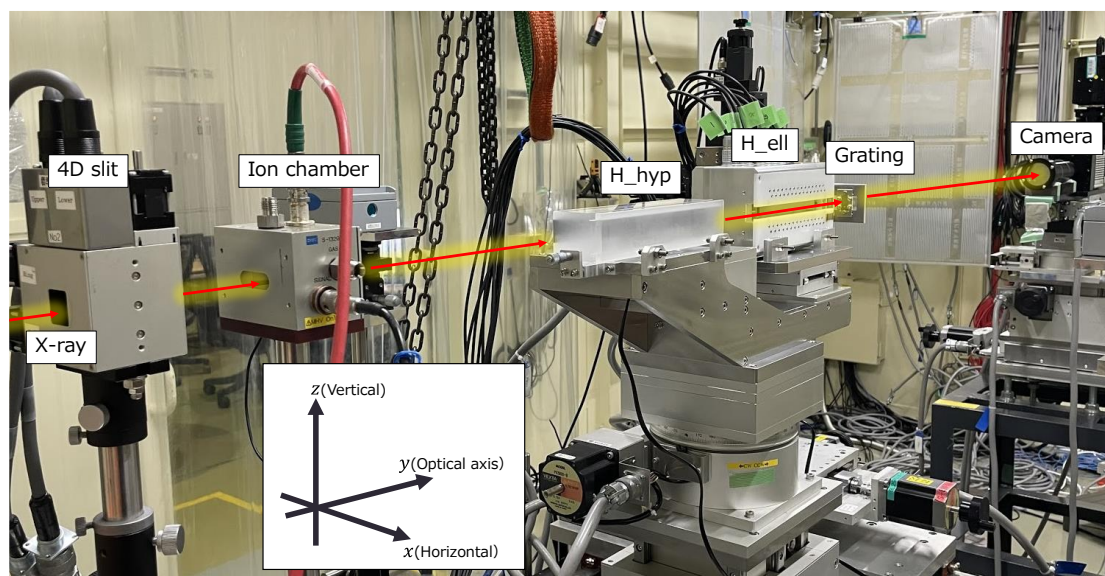


図 7.5.1.2 実験セットアップの外観写真.

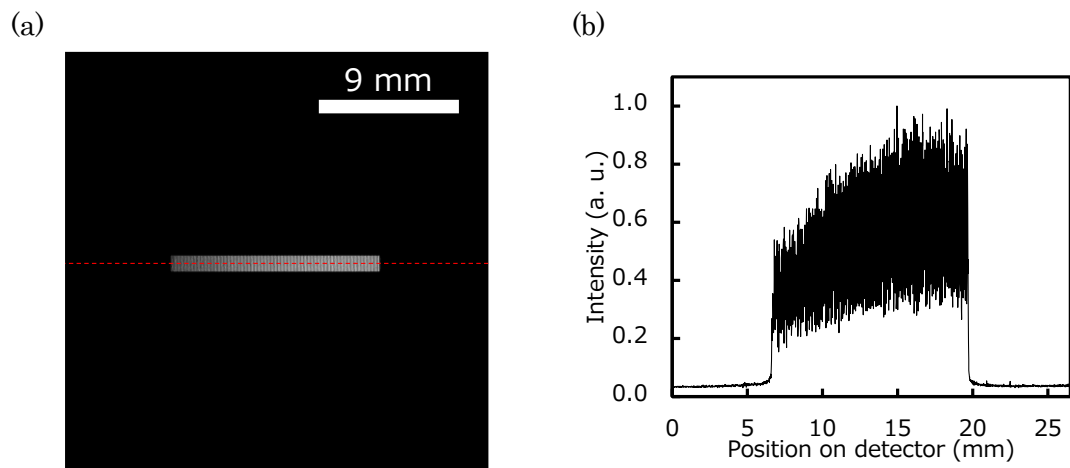


図 7.5.2.1 実験によって得た(a)自己像と, (b)自己像 (破線) のラインプロファイル.

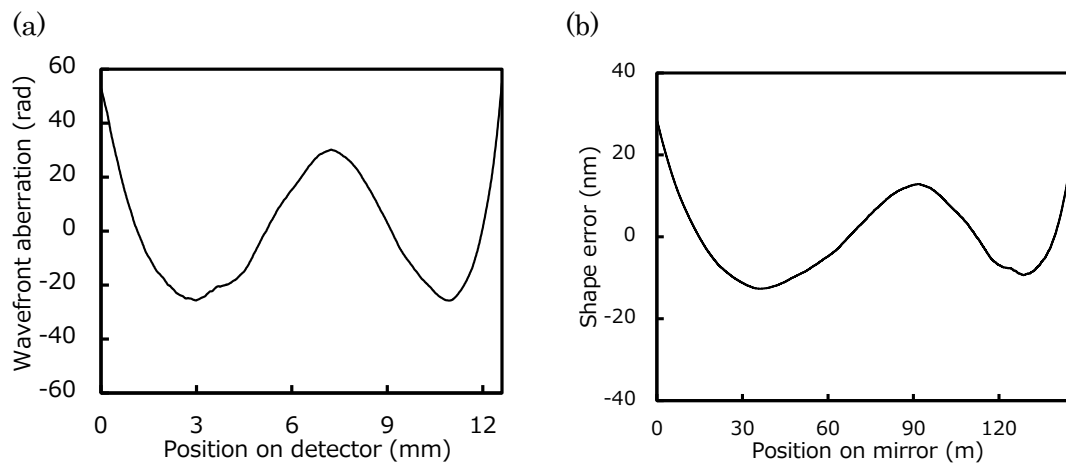


図 7.5.2.2 アライメント調整後に得られた(a)波面収差, 及び, (b)楕円ミラーの形状誤差として換算した結果.

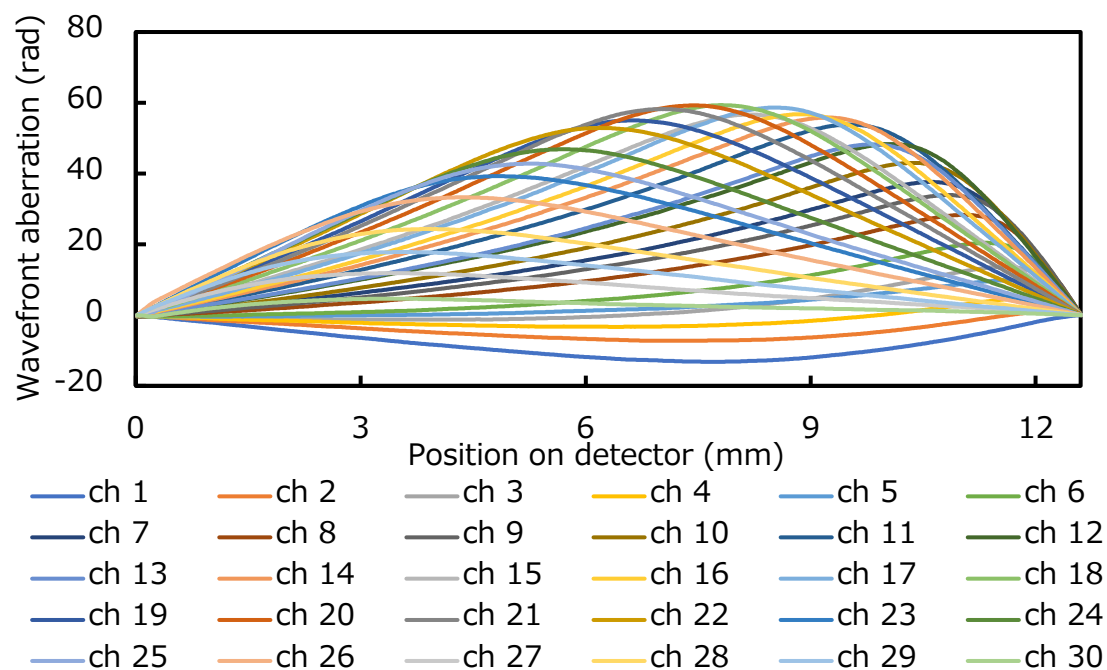


図 7.5.2.3 グレーチング干渉計で計測された応答関数.

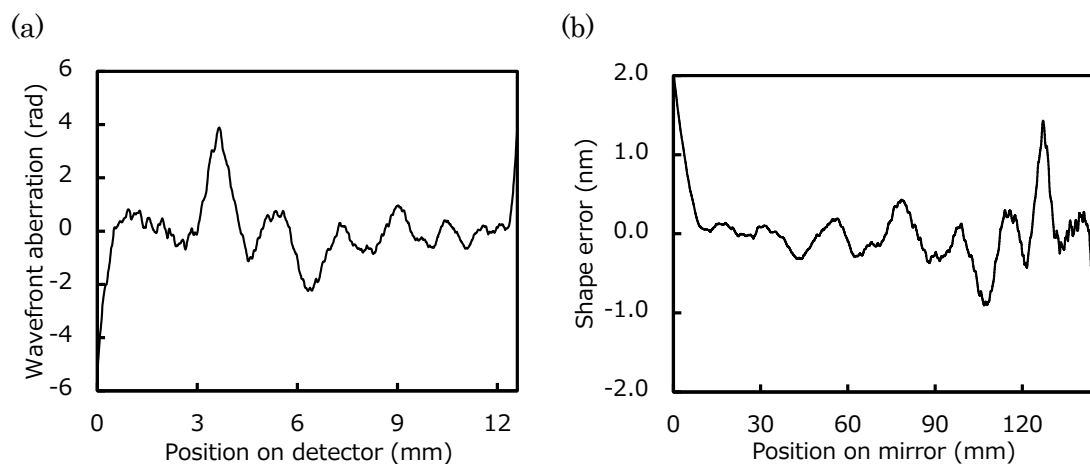


図 7.5.2.4 形状可変ミラーによる形状修正後に得られた(a)波面収差, 及び, (b)楕円ミラーの形状誤差として換算した結果.

上記の問題に関しては、今後ミラー製造プロセスを見直すことで改善されることを期待し、本研究では従来法である差分成膜による形状修正を行うこととした。図 7.5.2.5 に目標修正形状を示した。波面計測時と目標形状が異なる理由は、スパイキーなピークの存在は成膜領域全体のかさ上げ量を増やしプロセスの長時間化につながるため、時間が短くなるように調整したからである。しかしながら、楕円ミラーは全体を通して必要形状精度が 1 nm PV を下回っており（図 7.5.2.5(b)）、特に下流端において 0.5 nm PV 程度と非常に厳しい。そこで、精度良くできていると考えられる双曲ミラーの形状を意図的に変えることで、光学系全体の波面補償することを試みた。斜入射角の関係で形状誤差が大きく換算されるため、必要な成膜量は増えるが（図 7.5.2.5(c)）、許容形状誤差が最小でも 2.5 nm PV と 5 倍程度大きくなっている（図 7.5.2.5(d)）。本形状に基づき、従来通りガラス平面基板にテストの差分成膜を行い、干渉計で計測したところ、ほとんどの領域で 1 nm PV と必要形状精度を満たせることが確認できた（図 7.5.2.6）。

以上を踏まえて双曲ミラーに差分成膜を行い、再び SPring-8 にて波面を計測した結果、1.0 rad PV 程度まで波面収差が改善し、回折限界条件を満たすことを確認した（図 7.5.2.7(a)）。Fresnel-Kirchhoff 回折積分に基づき集光プロファイルを見積もったところ、ピーク強度は理想値に対して 93 % であり、半値幅も 4.2 nm を達成できることが確認できた（図 7.5.2.7(b)）。尚、波面計測手法では、ミラー面内における sub-mm 以下の低空間波長（高空間周波数）の形状誤差は取得できないため、高角への散乱による強度の減衰を無視した議論にはなっているが、メインピークの形を大きく歪ませることはない十分に証明できる。以上より、形状可変ミラーと差分成膜法を併用することで、回折限界条件下で 5 nm 集光達成可能な光学系の構築に成功した。

7.5.3 光学系の性能評価

7.5.3.1 入射角特性

ミラーユニット全体の入射角を変化させた際の波面収差を評価した（図 7.5.3.1.1）。入射角の変化量は、双曲ミラーを睨んだオートコリメータ（第 6 章と同じ）基準である。新型 sub-10 nm 集光光学系と異なり、入射角を変化させると 3 次関数より中周期の関数が大きく変化した。これは、形状誤差を有する楕円に合わせるように双曲ミラーの形状を変えてしまったため、入射角を変えることでミラー間の対応位置関係がかみ合わなくなったからであると考えられる。波面収差が最も小さくなる角度を中心として、入射角と波面収差の PV 値の変化をまとめたところ、50 μ rad の範囲でほぼ回折限界条件を満たしていた。また、この範囲において 3 次関数が大きく変化しなかったことから、視野の中心でかみ合うように差分成膜できていたことがわかった。新型 sub-10 nm 集光光学系ほどではないが、KB ミラーよりはるかに許容入射角誤差が大きいことを実験的に確認できた。しかし、双曲ミラー形状を修正する必要が無ければ、より高安定な光学系を構築できたと考えられるため、ミラー基板の加工・計測手順を改善することは必要不可欠である。具体的に次の通り提案する。

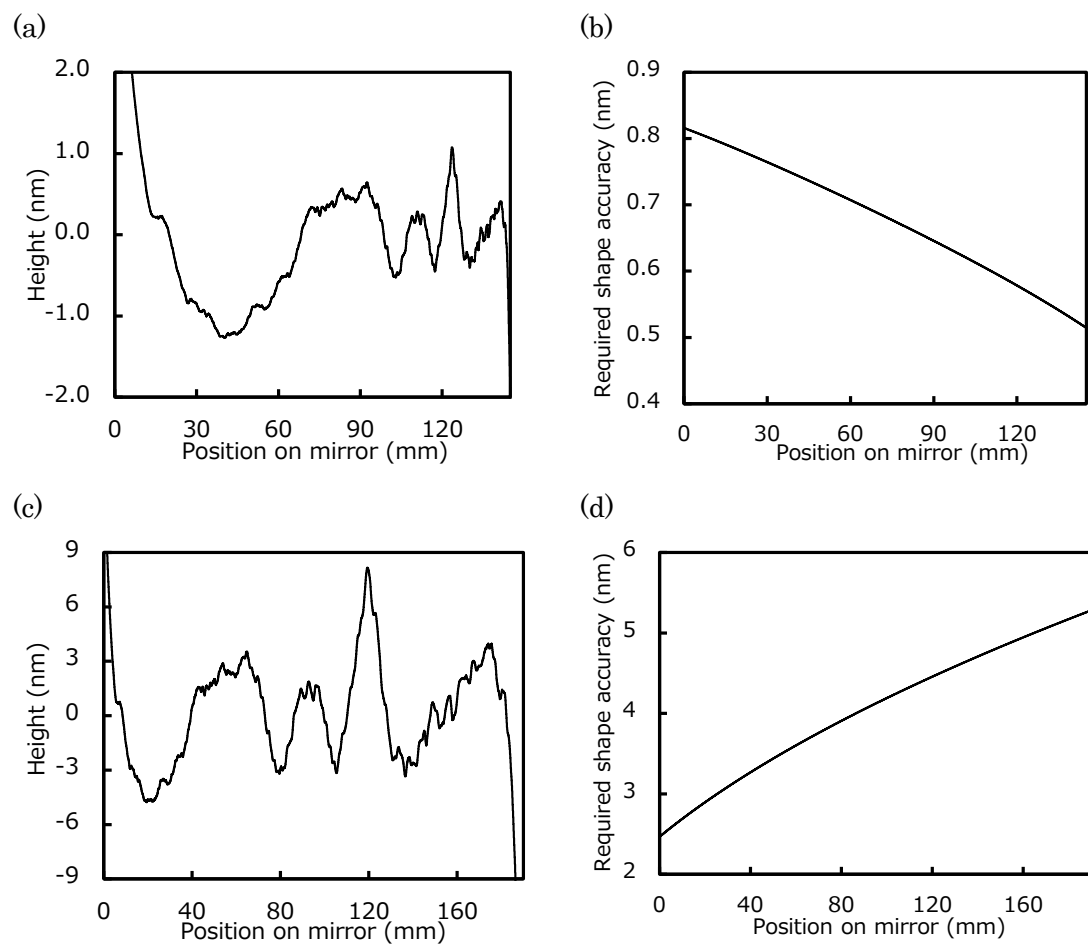


図 7.5.2.5 修正すべき形状誤差 ((a)楕円ミラーの場合, (c)双曲ミラー), 及び必要形状精度 ((b)楕円ミラーの場合, (d)双曲ミラー).

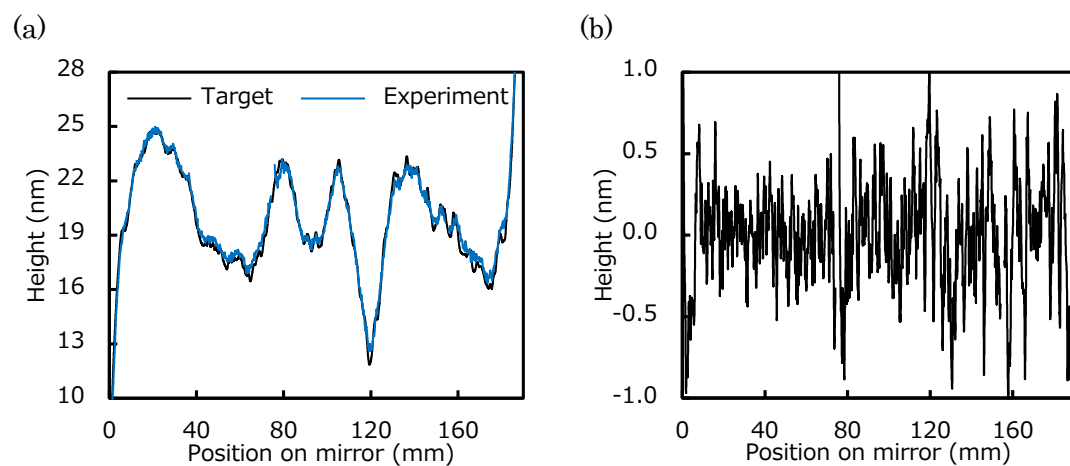


図 7.5.2.6 テスト成膜結果. (a)目標修正値と実測値の比較, 及び(b)それらの差.

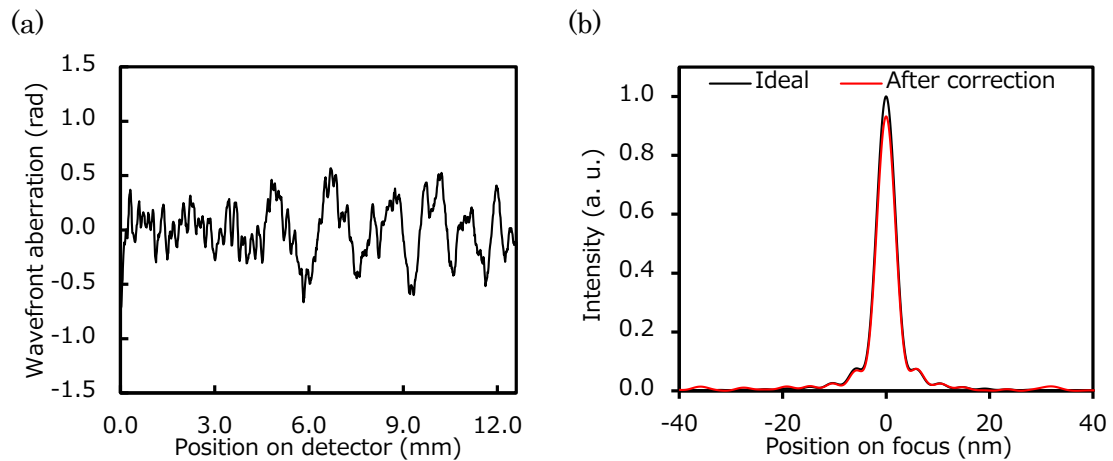


図 7.5.2.7 (a)形状修正後の波面収差値, 及び(b)波面計測結果を元に計算したビームプロファイルと理想値の比較.

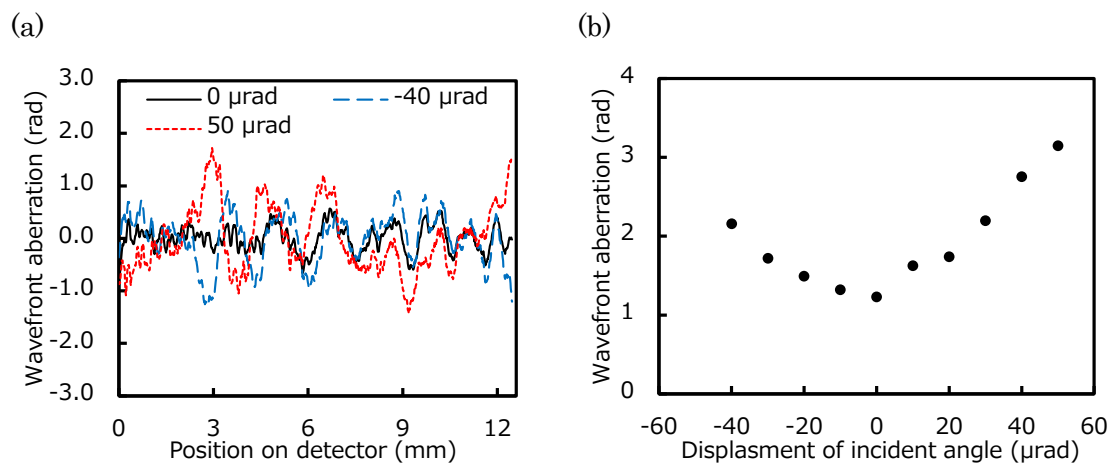


図 7.5.3.1.1 波面の全体入射角特性. (a)各入射角における波面と(b)PV 値の推移.

1. 基板を Si に変更する．ヤング率がガラスより大きいことから計測時の基板形状の安定性向上が見込まれる．その分変形に必要な電圧量も増えるが，計測精度の向上による形状誤差の緩和と，そもそも本実験で印加した電圧量には余裕があったことから十分に対応可能であると考えられる．また，ガラス基板では裏面反射の影響を受けてしまう（圧電素子貼り付け工程の関係で砂面にできない）が，Si 基板では全く問題とならないことも利点である．
2. 高空間周波数形状の計測時に，基板の両端を固定し，曲げモーメントを印加する．曲げモーメントを制御すると，基板上の 2,3 次関数形状だけを自由に調整できる．これにより基板の曲率を一時的に大きく変化させることができるため，計測精度の向上が見込まれる．2, 3 次関数の形状も，曲げモーメントを発生させた際の応力を計測しておくことで，計算機的に高い精度で求めることができると考えられる．

7.5.3.2 安定性の評価

相対入射角の調整，及び形状可変ミラーによる形状修正を終えた後に光学系を長時間放置し，波面の変化を比較することで，形状可変ミラーの安定性を評価した（図 7.5.3.2.1）．その結果，少なくとも 7 時間の間，形状はほとんど変化していなかったことを確認した．このことから，半日以上回折限界集光状態をキープできる光学系となることが期待できる．この高い安定性は，従来の形状可変ミラーと比較しても秀でている．本光学系では，多層膜ミラーを形状可変型としたこと，及び基板の厚みを 5 mm まで薄くしたことで，僅かな印加電圧でも高い感度で波面収差を修正できる．これにより，圧電素子そのものの变形ドリフトが抑えられ，高い安定性が実現したと考えられる．

7.5.3.3 2次元の波面収差

Wolter III 型配置に基づく AKB ミラーでは，2次元の波面収差を計測し平行度を合わせなければならない．図 7.5.3.3.1(a)の波面を元に，サジタル方向の 2 次関数分布がなくなるように平行度を調整した結果，(b)の波面が得られた．本結果から，サジタル方向に異なる 3 次関数の波面収差が生じていることがわかった．本収差は面内回転を変化させてもほとんど変わらなかったことから，ミラーのねじれ成分であると推測される．形状に変換すると 1 nm PV 以下の非常に小さい 3 次関数形状である．ここで，バイモルフミラーの構造から，光軸を境に左右の印加電圧に差をつけることで，サジタル方向の形状誤差も修正できると考えられる．実際に有限要素法に基づき変形させたところ，十数 nm 程度の変化をつけられることが確認できた．現状のミラーホルダーでは左右の電圧に差をつけられる構造にはなっていないが，改良することで十分対応できると推測される．

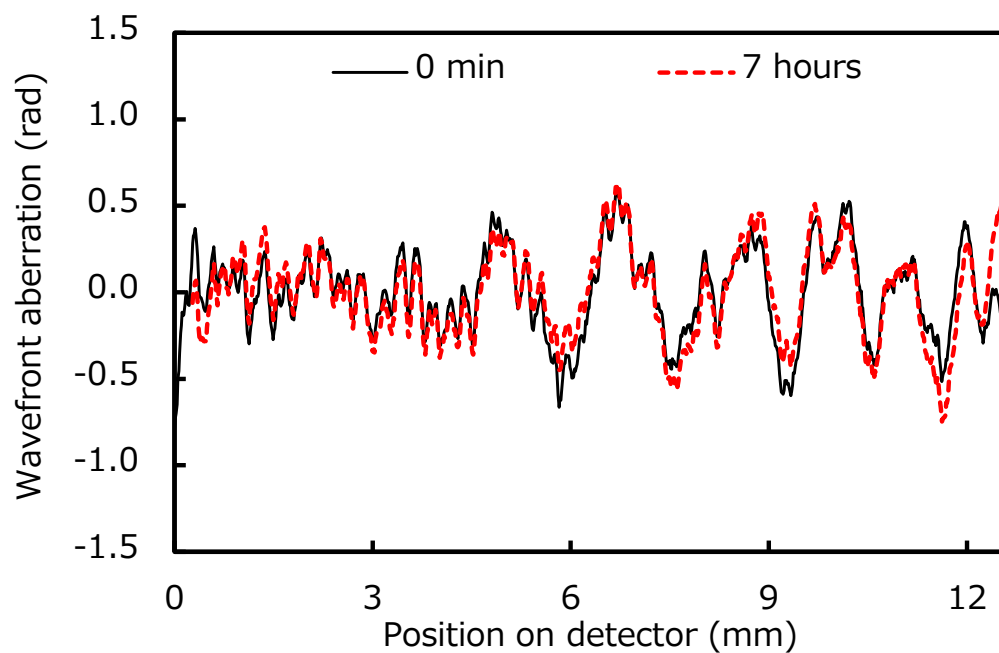


図 7.5.3.2.1 安定性の評価. (a)各経過時間における波面と(b)PV 値の推移. (c)波面収差の 4 次関数以上の成分の変化.

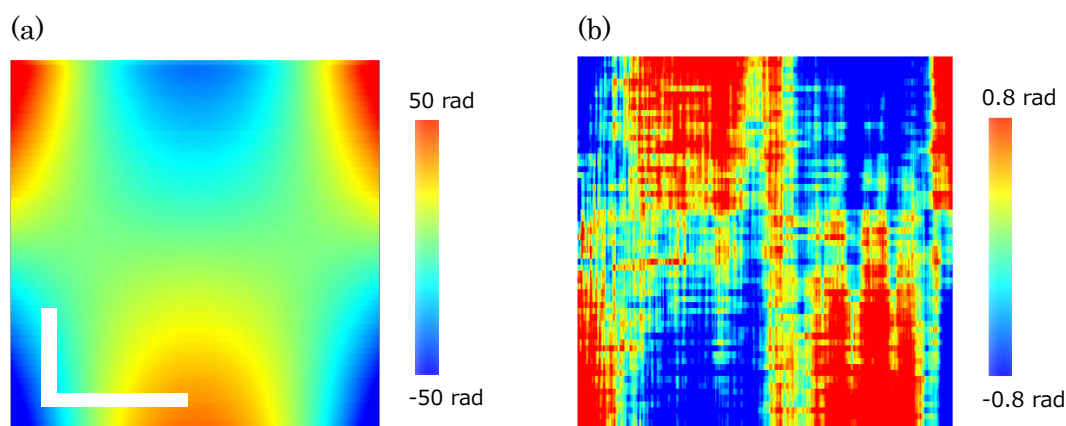


図 7.5.3.3.1 2 次元の波面収差. 平行度の(a)調整前と(b)調整後. スケールバーは, 縦が $200\text{ }\mu\text{m}$, 横が 4 mm . 画面内縦がミラーサジタル方向.

7.6 高次光反射多層膜集光ミラーの開発

垂直集光ペアの多層膜周期長は、最小で 1.1 nm 程度と計算され、W/C でもアイランド成長無しに作製できないほど薄くなる。そこで本項では、多層膜の高次光反射を利用した X 線集光ミラーの初期検討結果を詳述する。

7.6.1 反射次数の選定

多層膜では、吸収効果を見捨てる、膜厚比 $\gamma = d_W/(d_W + d_C)$ と反射率の関係は、角度依存構造因子 $|F(\theta_m)|$ で説明できる [107]。

$$|F(\theta_m)| = (d/\pi m) \sin(m\pi\gamma)(\varphi_W - \varphi_C) \quad (7.6.1.1)$$

φ_W, φ_C は、特定のエネルギーの X 線に対する散乱振幅密度関数である。 $\gamma = 1/2$ では $m = 1, 3, 5 \dots$ の次数の反射が許容され、 $\gamma = 1/3$ では $m = 1, 2, 4, 5, 7 \dots$ の次数の反射が許容されることがわかる。つまり、2 次光反射を利用するためには $\gamma = 1/4, 3/4$ とする必要がある。そのため、周期長が 2 倍となるが、結果的に重元素、または軽元素のいずれか一方は 1 次光と同じ膜厚となってしまう、アイランド成長を防ぐための根本的な解決策とはならない。そのため、本光学系において、 $\gamma = 1/2$ で利用できる 3 次光反射に基づく多層膜を設計する。

7.6.2 3 次光反射多層膜ミラーの作製

sub-5 nm 集光光学系の 3 次光反射多層膜ミラーは形状可変ミラーとする予定である。本ミラーの光学設計を確定させるための実証実験を、まず KB ミラーを用いて行う。以下を実証実験の段階で確認する。

1. ミラー全体で設計通りの多層膜を作製できるか。3 次光反射のブラッグピークの半値幅は、1 次光のそれと比較して狭くなる。そのため、僅かな成膜の誤差でミラー全体が同じ X 線エネルギーにおいて反射なくなり、結果として NA の欠落につながる。XRD を基準にして膜厚を調整できること、及び SPring-8 にて集光実験を行った際にミラー全長において同じエネルギーで反射することを確認する。
2. 波面計測が可能であるか。本光学系においてもリアルタイム波面補償の実施が必須であるため、ミラー形状誤差由来の波面を計測する必要がある。しかしながら、強度やビジビリティの観点から 3 次光反射の自己像を元に波面を決定することが困難であるとも考えられる。そのため放射光であることを利用して、多層膜の 1 次光反射のエネルギーにて波面を計測することを試みる。こ

ここで、3 次光をミラー全体で反射する多層膜ミラーが、1 次光も全体で反射するとは限らないため、実証実験で確認する必要がある。

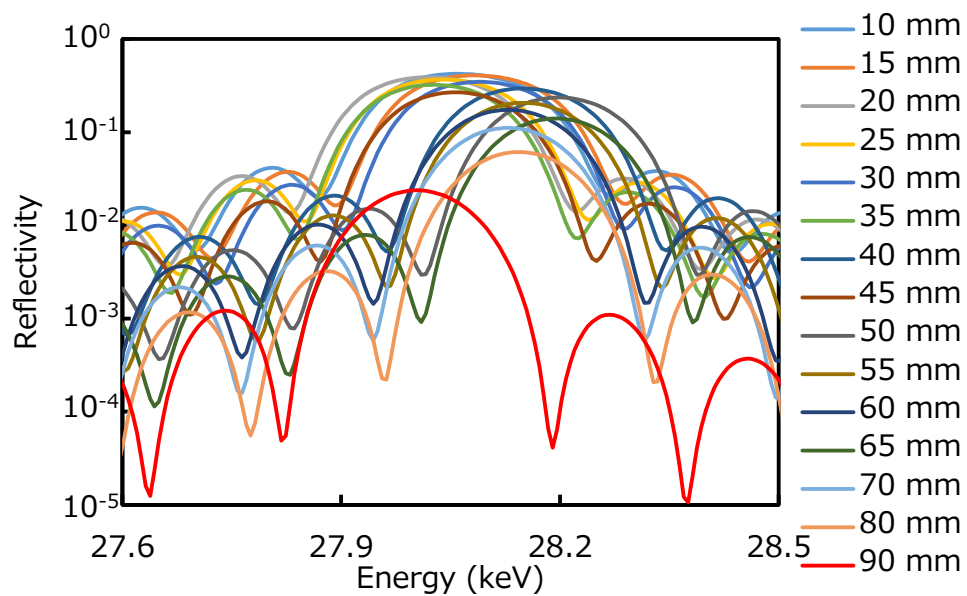
まず多層膜を必要精度で作製可能であるか確認した。第 2 章で開発した旧型 sub-10 nm 集光光学系の後段多層膜ミラーが X 線エネルギー 28 keV を反射できるように、3 次光反射多層膜を設計した。元々 9.1 keV 用多層膜を問題なく成膜できた実績があるため、その 3 倍に近くなるよう考慮している。回折限界集光サイズは 2 nm を下回る。多層膜周期長の調整手順はこれまでの光学系と同様で、ミラーのダミー基板に Si ウエハを張り付け、ウエハに作製された多層膜の周期長を XRD で評価し、多層膜装置の基板キャリアの走査速度を調整した。調整後に得られた結果を図 7.6.2.1 に示した。垂直、水平集光ミラーそれぞれにおいて基板上流から 90 mm、及び 240 mm の位置を除けば 28.15 keV に反射率ピークを有する多層膜が作製できることを確認した。これは全ての周期長が 0.01 nm のオーダーで調整されたことを示唆している。誤差があった位置について、突然成膜レートが変わることは考えにくいので、計測誤差が原因と推測される。XRD で多層膜の評価をする際、試料の初期アライメント（半割作業）を行う。例えばそれが 0.01° ずれるだけで、X 線エネルギー上で 100 eV 程度反射率ピークがシフトしてしまうため、十分に誤差の原因としてなりうる。

7.6.3 3 次光反射多層膜ミラーを用いた実証実験

7.6.3.1 実験セットアップ

テスト成膜した条件で KB ミラーに多層膜を付与し、実証実験を SPring-8 BL29XU EH4 にておこなった。図 7.6.3.1.1 に実験セットアップの概要図、図 7.6.3.1.2 に外観写真を示した。マニピュレータは第 3 章で述べたものとほぼ同一である。ミラーを正確にアライメントし、ミラー各位置におけるエネルギー反射率分布を計測することが目的であるため、10 keV 用の回折格子、及び低歪みレンズを導入したカメラを用い、グレーチング干渉計を構築した。mrad オーダーで回折格子とカメラのアライメントを校正できていれば、3 次関数誤差に対して敏感な KB ミラーの角度は波面収差を基準に μ rad オーダーで正確に調整できるため、本実験において十分な精度である。実験は垂直、水平集光ミラー別々で行った。まず、1 次光反射のエネルギー付近で波面計測を行い、3 次関数成分がなくなるようにミラーの入射角を調整した。次にミラーの前に置いたスリットでミラーの開口を制限し、ミラーの各位置で X 線エネルギーを変化させた場合の反射率分布を計測した。本結果を元に 3 次光反射多層膜ミラーに基づく集光光学系が構築可能であるか判断する。

(a)



(b)

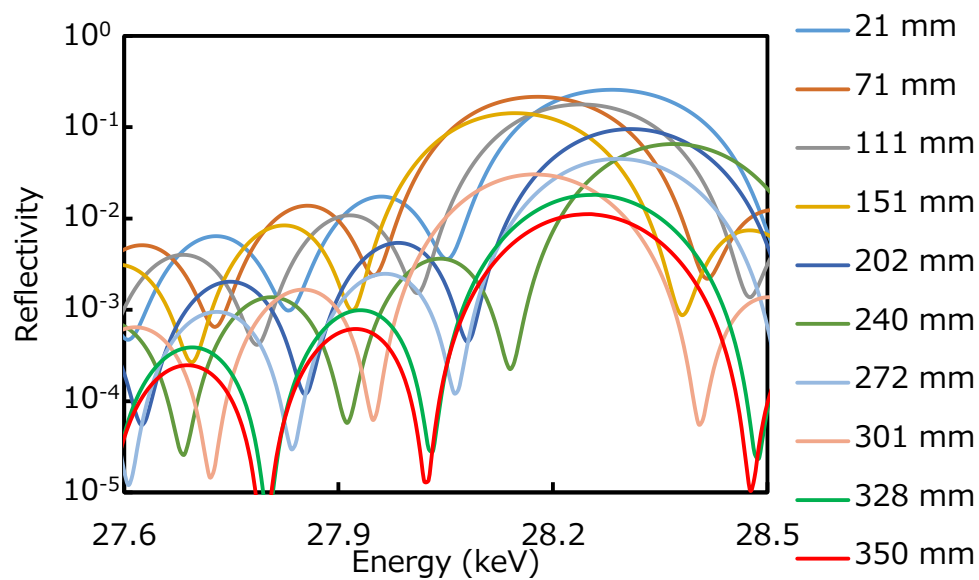


図 7.6.2.1 多層膜の反射率分布. (a)垂直集光ミラー, (b)水平集光ミラー.

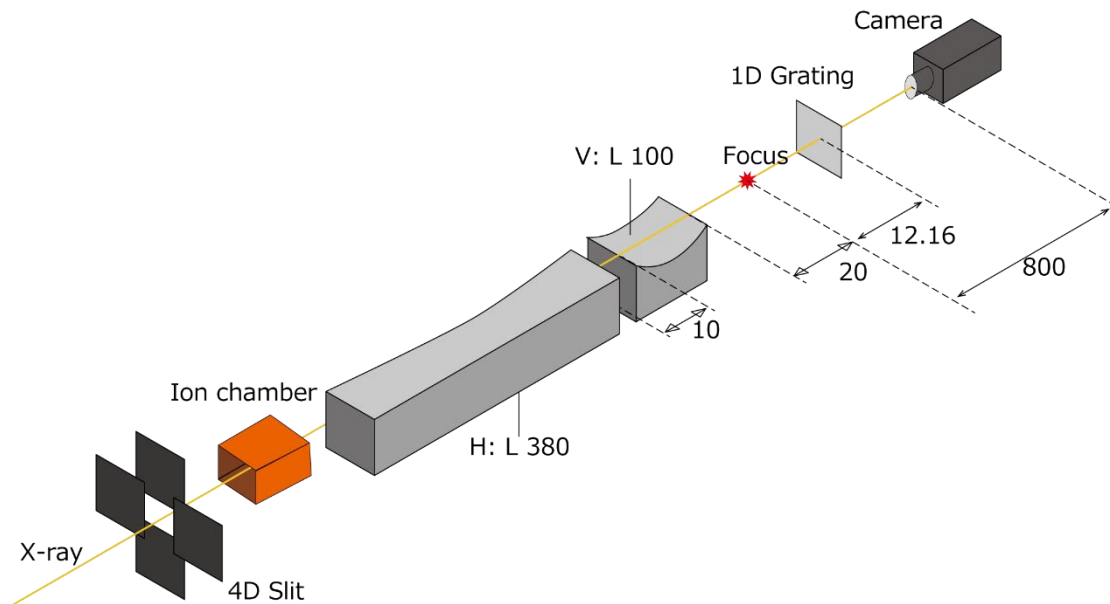


図 7.6.3.1.1 実験セットアップ.

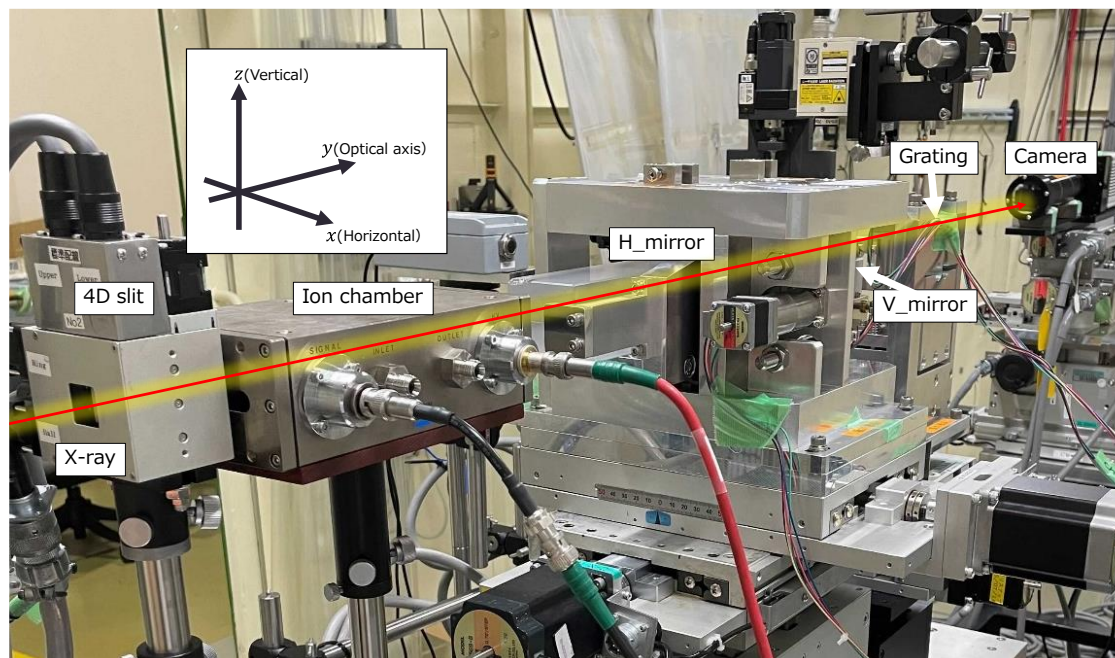


図 7.6.3.1.2 実験セットアップの外観写真.

7.6.3.2 1 次光反射の波面計測によるミラーアライメント

XRD での検討結果から、多層膜の 3 次光反射における反射率は基板内で数桁異なることが予想されるため、グレーチング干渉計による波面計測の遂行が難しいと考えられる。波面計測はミラーのアライメント、及び形状修正を行う上で欠かせない要素であるため、計測手段を考えなくてはならない。そこで、波面計測時のみ 1 次光反射を利用することを試みた。まず、垂直集光ミラーにおいて、ミラー前スリットの縦方向を 80 μm にすることでミラー照明領域を制限し、X 線エネルギーとスリット位置を変えつつ 1 次光における反射率分布を計測したところ、ミラーの各位置において反射率ピークを迎える X 線エネルギーが揃っていないことを確認した (図 7.6.3.2.1)。本結果は計算でも確認できるため妥当であり、3 次光反射用に設計されたミラーでは、単純に 1 次光反射ピークが利用できないことを意味している。結果的に、ミラー全体が均一に数%反射する X 線エネルギーとして垂直集光ミラーでは 9.5 keV、水平集光ミラーでは 10 keV が適当であると判断した。この時、得られた自己像とそのラインプロファイルを図 7.6.3.2.2 に示した。入射角を走査しつつ得られた画像を元に波面を解析すると 3 次関数成分が変化することを確認でき、入射角を調整 (3 次関数成分を除去) することができた (図 7.6.3.2.3)。本結果から、高次光反射用に設計した多層膜においても、1 次光ピーク付近の X 線エネルギーで波面が計測でき、アライメント調整を完了できた。形状可変ミラーを導入することで波面制御も可能になると推測される。

7.6.3.3 放射光を利用した 3 次光反射多層膜ミラーの反射率計測

アライメントが調整された多層膜ミラーにおいて 3 次光の反射率を計測した。ミラー前スリットの開口を、垂直集光ミラーでは 80 μm 、水平集光ミラーでは 300 μm まで制限し (全体のおよそ 1/20)、X 線エネルギーとスリット位置をスキャンしつつ、ミラー上流のイオンチャンバとミラーの下流の PIN フォトダイオードで X 線強度を測定した。また、ミラー開口全域を照射した条件においても X 線エネルギーのスキャンを行った。その後、X 線を照射していないとき、ミラーを退避させた際に PIN で検出される強度も計測することで、反射率の絶対値計測も試みた (図 7.6.3.3.1)。計測の結果、ミラー全域において反射率ピークを迎える X 線エネルギーが XRD の結果と多少異なったものの、垂直集光ミラーは 27.7 ~ 27.8 keV、水平集光ミラーは 28.3 ~ 28.4 keV でミラー全域が反射することを確認した。また、ミラー全域の反射率の最大値は垂直方向で 3.8 %、水平方向で 0.9 %であった。XRD で計測された膜厚基準では垂直方向 14.2 %、水平方向 5.2 %であったことから、両方向共に計算結果に対して 20~30%の反射率にとどまった。XRD 計測からの予想値より低い原因として、多層膜の深さ方向に、僅かな周期長の分布があることが考えられる。単に界面粗さが悪化している場合はピークの幅は変わらずブラッグ次数が高い反射光から反射率が低下するが、XRD の計測結果からその傾向はみられなかった。そもそも 0.01 nm のオーダーで周期長を制御する場合、原子サイズよりも小さいことから、各層でランダムに変

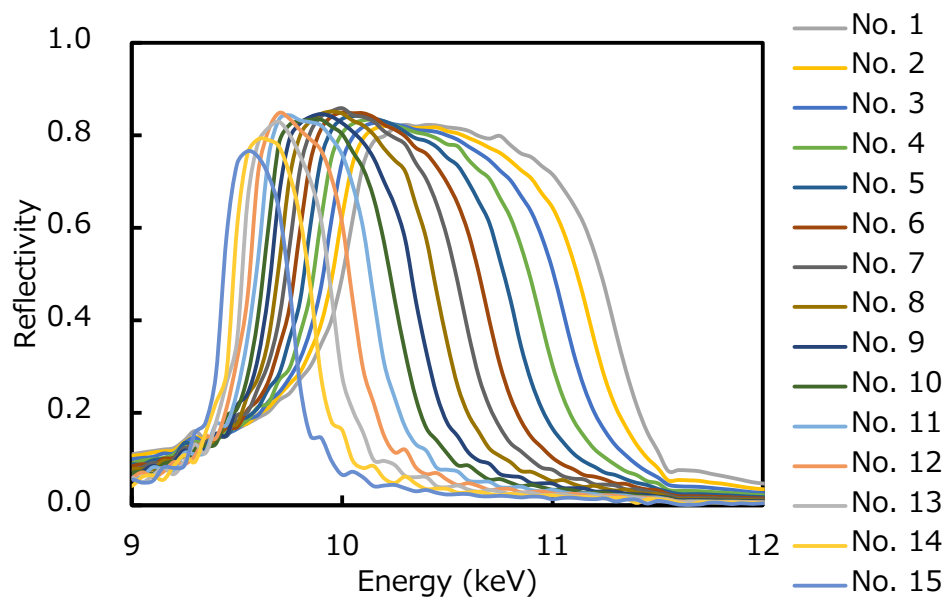


図 7.6.3.2.1 垂直集光ミラーの多層膜の 1 次光の反射率分布. No.が進むにつれてミラーの下流側となる.

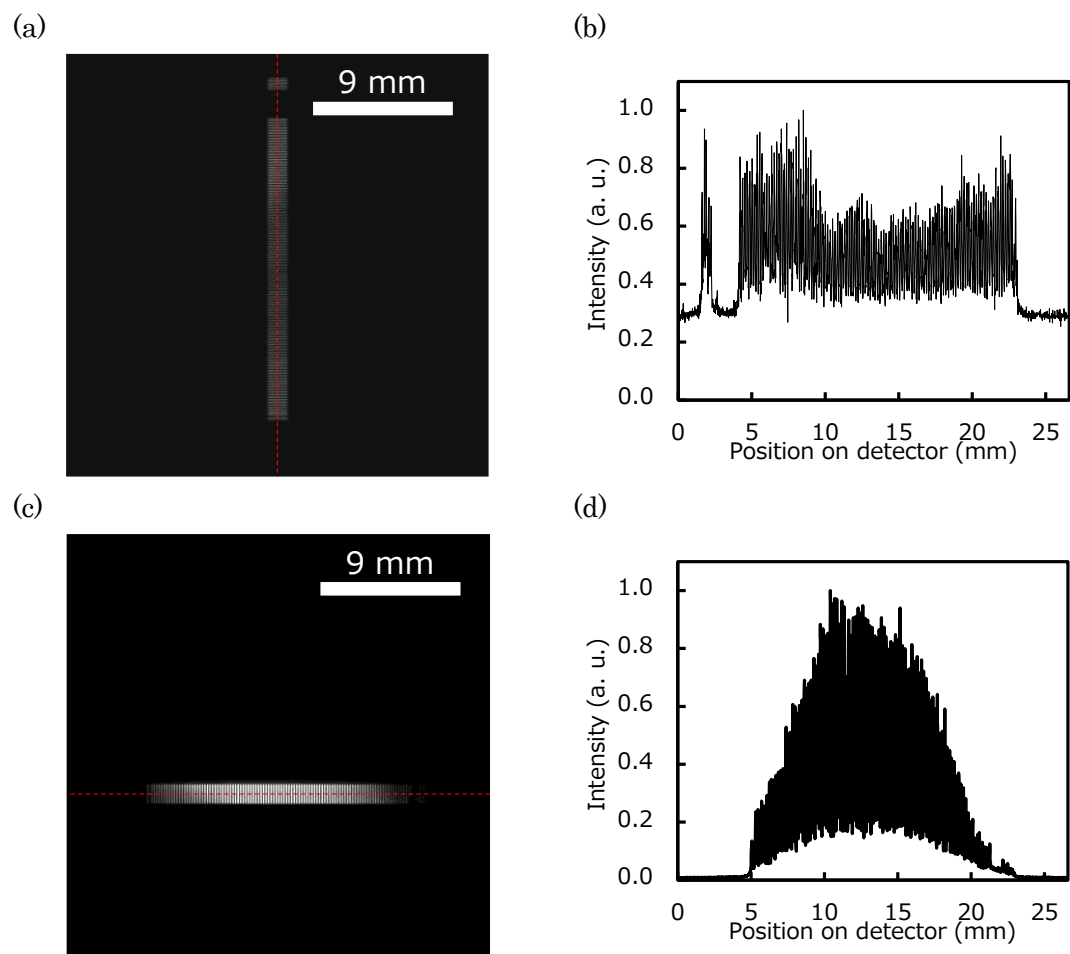


図 7.6.3.2.2 実験によって得た自己像 ((a)垂直, (c)水平) と, そのラインプロファイル (破線, (b)垂直, (d)水平).

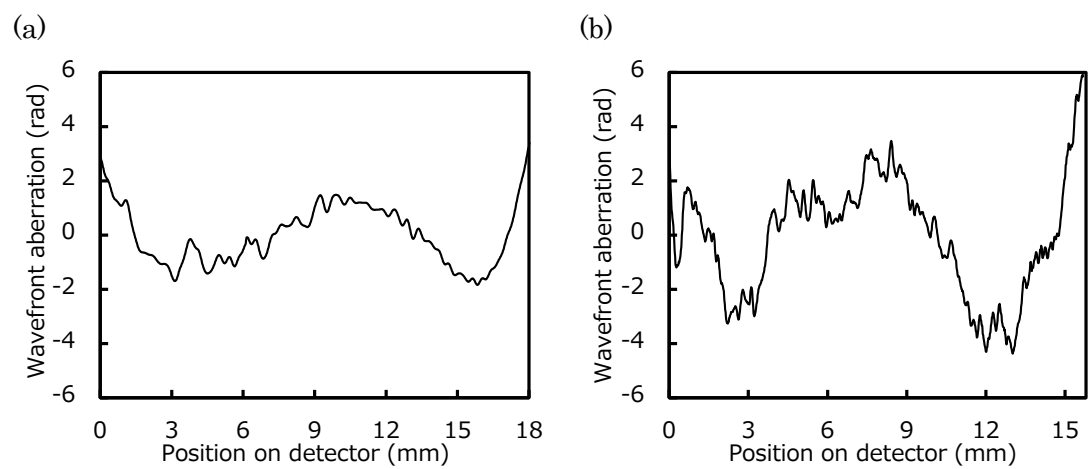
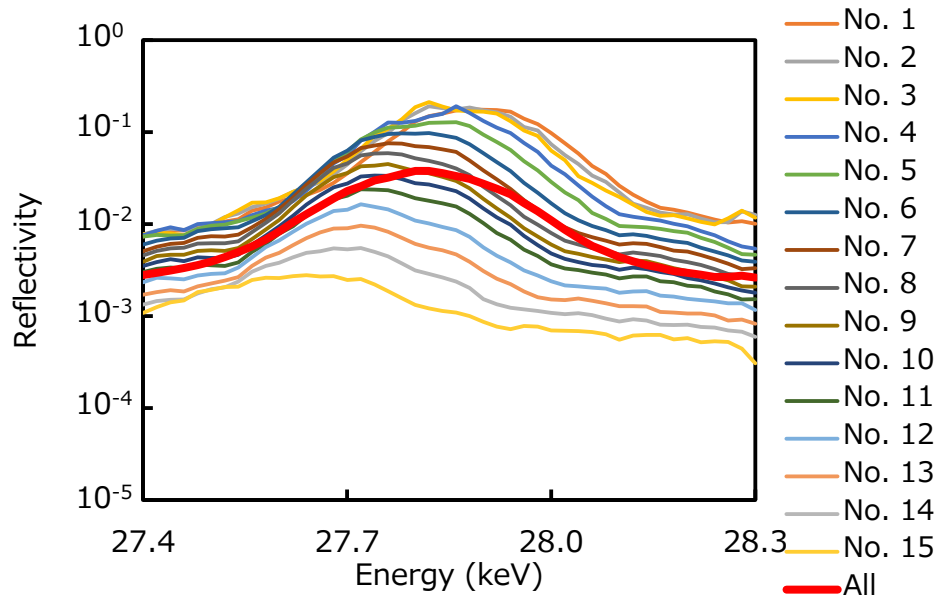


図 7.6.3.2.3 計測された波面収差(a)垂直, (b)水平.

(a)



(b)

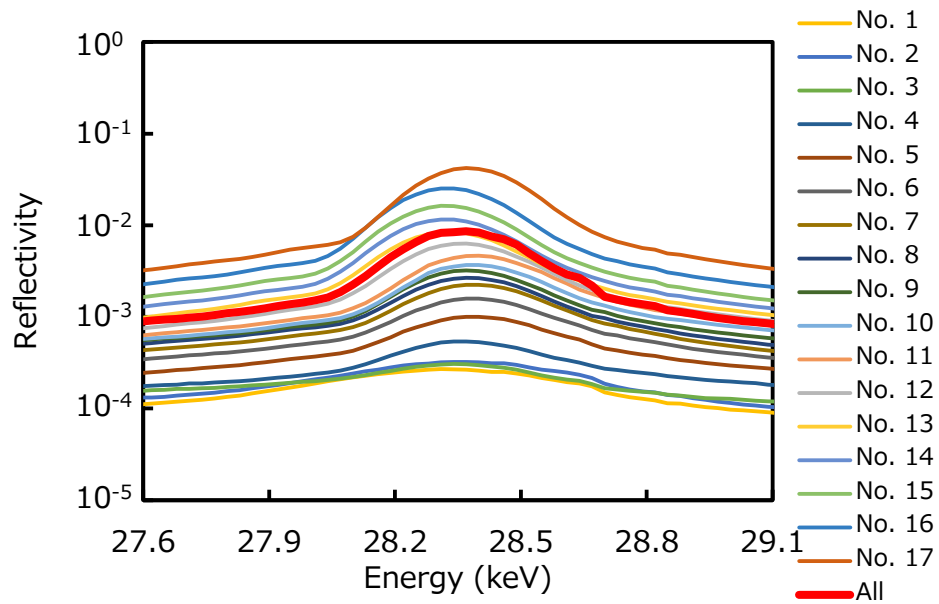


図 7.6.3.3.1 多層膜の 3 次光の反射率分布. (a)垂直集光ミラー, (b)水平集光ミラー. No が進むにつれて, 垂直集光ミラーでは下流側, 水平集光ミラーでは上流側となる.

化する膜厚の平均値を調整していると考えられる。また、図 7.6.2.1 における計算結果では見られた周期長由来のフリンジ構造が実測結果では見られないことも、複数の多層膜周期長が混在することを裏付けている。以上より、物性限界による反射率の低下は見られたが、工学的技術的に 3 次光反射多層膜ミラーを作製できることが確認された。

7.7 結言

本章では、更なる極小集光サイズの実現に向けて、多層膜形状可変ミラーに基づく sub-5 nm 集光光学系を設計し、1 次元集光実験を行った。また、多層膜の高次光反射を利用した集光光学系の基礎検討を行った。以下に得られた結果を示す。

- (1) 目指す集光サイズの微小化に伴い、求められる形状精度が厳しくなることから、加工・成膜のような *ex-situ* における形状修正手法では対応できなと考えられる。そこで、バイモルフ構造を有する圧電素子駆動型形状可変ミラーの導入を提案した。
- (2) AKB 配置、多層膜、及び形状可変ミラーに基づく sub-5 nm 集光光学系を設計した。この時、必要形状精度は垂直楕円ミラーで 0.3 nm PV、水平楕円ミラーで 0.5 nm PV 程度であると計算された。
- (3) 水平集光ミラーペアに関して、計算機シミュレーションによりアライメント特性と変形可能形状を調査した。まず、入射角誤差に対して $\pm 60 \mu\text{rad}$ 程度の許容値を有することがわかった。また、周期数 6.5 以下であれば、2 nm PV の基板形状誤差を許容精度(0.5 nm PV)以下に修正できることがわかった。ここで、2 nm PV は、一般的に初期加工で達成できる形状精度であるとされている。
- (4) 多層膜の材料として W/C を検討した。第 6 章の Pt と同様に W の膜厚を徐々に小さくしたところ、厚み 0.9 nm 以上において界面粗さは 0.25 nm RMS 以下と良好で、0.7 nm を下回った辺りで急激に悪化した。これは、Pt よりアイランド成長が発生する膜厚の閾値が小さいことを意味しており、最小周期長 2.099 nm の多層膜を理想的に作製できることが確認できた。
- (5) SPring-8 BL29XU EH4 にて、水平集光ミラーペアを用いた 1 次元集光実験を行った。グレーチング干渉計で計測された波面を基準にアライメントを調整し 3 次関数を取り除いたところ、60 rad PV 程度の大きな 4 次関数収差の残存を確認した。開口数が設計値と 3 %程度しか変わらないことからミスアライメント由来ではなく、楕円ミラーの形状が原因と考えられる。形状可変ミラーの応答関数を取得し、形状修正を試みたところ、6 rad PV まで改善されたが、回折限界条件は満たさなかった。ミラー下流領域は特に曲

率が厳しく、形状可変ミラーでも対応できない高空間周波数形状の計測が困難となったと推測される。残った僅かな波面収差を、許容形状誤差が大きい双曲ミラーに差分成膜法を施すことで再び修正を試みたところ、回折限界条件を満たすことに成功した。

- (6) 光学系の特性を調査した。双曲ミラーで波面補償したことにより、入射角を変化させると高空間周波数成分の収差が生じたが、 $\pm 20 \mu\text{rad}$ 程度の範囲で回折限界条件を満たしていることを確認した。また、形状可変ミラーの変形は 10 時間近く安定していることも実測できた。
- (7) 垂直集光楕円ミラーの高次光反射多層膜において、重・軽元素比率に対する反射率の関係を数学的に考察し、Pt/C を 1:1 の関係で積層させた多層膜の 3 次光反射を利用することを決定した。
- (8) 高次光反射多層膜の原理実証実験のために、第 5 章までで開発した旧型 sub-10 nm 集光光学系の多層膜ミラーを X 線エネルギー 28 keV 周辺で使用するを試みた。研究室の XRD 基準で成膜精度を確認したところ、基板の半割精度(0.01° 程度)に匹敵する高い精度で 3 次光の多層膜周期長を調整することに成功した(0.01 nm オーダー)。
- (9) SPring-8 BL29XU EH4 において実証実験を行った。各ミラーの 3 次光における反射率分布を計測したところ、ミラー領域の全域でほぼ同じ X 線エネルギーで反射率ピークを迎えていることを確認した。実験室の XRD の精度で、3 次光反射多層膜ミラーを作製できることを確認した。

第 8 章

機械曲げ機構と圧電素子駆動を組み合わせたハイブリッド型形状可変ミラーの開発

8.1 緒言

第 7 章までに、グレーチング干渉計に基づいた波面計測手法と、差分成膜、及び圧電素子駆動型形状可変ミラーに基づいた形状修正手法を組み合わせることで、精密な波面制御技術を確立し、sub-10 nm、及び sub-5 nm 集光を回折限界条件の下達成してきた。これらにより、高強度 X 線に基づく X 線非線形光学現象の開拓や、極小スポットサイズを利用した X 線顕微法の発展が見込まれる。

さて、更に実用的な計測を行うために、集光スポットの小ささを競うのではなく、試料や計測手法に応じて自由に集光サイズを変えられる光学系が求められている。第 7 章で使用した形状可変ミラーにはそれを実現できるポテンシャルがある。そこで本章では、極限集光から一步離れ、集光サイズをアクティブに変化させられる光学系について研究する。現在、SPring-8 などの第 3 世代放射光施設の改良・発展を行う計画が進められており、光源の輝度が 10 ~ 100 倍向上すると見込まれている[108]。それに伴い、一度の実験期間中に、一つの試料を複数の方法を用いて分析・観察を行う X 線複合分析の実用化が期待される。しかしながら、実験方法や試料のサイズによって求められる集光径やワーキングディスタンスなどの光学パラメータが異なるため、それぞれの実験系に最適な集光光学素子をその都度用意する必要がある。そのため、既存の X 線集光光学素子を用いて、前述のような X 線複合分析を行うことは、時間効率の観点からほぼ不可能に近い。また、SACLA などの XFEL 施設ではビームラインの数が少なく、供給可能なビームサイズが限られていることから、現状測定可能な試料サイズが限定されている。

これらの課題に対して、ミラーを変形させて光学系の開口数を制御することで、適切なサイズの集光ビームを供給することを目的とした、アダプティブ集光光学系が開発されている。これまでに第 7 章で述べた圧電素子駆動型バイモルフミラーに基づくアダプティブ集光光学系を構築し、回折限界条件の下 X 線を 100 nm ~ 1 μ m の範囲で集光することに成功してきた[95]。ここで、開発されてきたバイモルフミラーは基板長 100~150 mm 程度である。

そのため、式 (2.2.1.4) から、更に開口数の制御幅を向上させようとする、ミラーの長尺化は必要不可欠である。しかしながら、バイモルフミラーは、形状ドリフトの観点から大変形が困難であることや、作製可能な圧電素子の大きさに伴うジャンクションエフェクト [102-104]の影響で、ミラー基板の大きさが制限されている。

そこで本章では特に、バイモルフミラーを機械曲げ機構の中にインストールした新たな形状可変ミラー（ハイブリッド型形状可変ミラー）の開発をスタートする[109, 110]。まず機械曲げ機構について述べ、構築したハイブリッド型形状可変ミラーの設計パラメータと基本的なコンセプトを言及する。その後、有限要素法に基づく計算機シミュレーションに基づき最適な変形手順について検討し、実証実験を基に有効性を確認した結果を詳述する。

8.2 ハイブリッド型形状可変ミラー

8.2.1 機械曲げ機構

機械曲げ機構では、ミラー基板の両端に曲げモーメントを加えて基板形状を変形させる。梁の曲げ理論に基づき両端に異なる 2 つの曲げモーメントを加える系を考える場合、図 8.2.1.1 のようなモデルで表すことができる。

M_a, M_b ははりの両端に与える曲げモーメント、 R_a, R_b は各支点に加わる反力、 L ははりの長さを表している。この時、ミラーのたわみ量 y は式 (8.2.1.1) で表現できる。

$$y = \left(\frac{1}{6} \left(\frac{M_b - M_a}{L} \right) x^3 + \frac{1}{2} M_a x^2 \right) / EI. \quad (8.2.1.1)$$

E はヤング率、 I は断面二次モーメント、 x はミラー上の座標を表している。つまり、機械曲げ機構は 3 次関数成分までの形状創成に寄与することができる。本結果を踏まえ、高精度変形を実現させるため、機械曲げ機構と長尺バイモルフミラーを組み合わせたハイブリッド X 線アダプティブ集光システムを下記のコンセプトの下開発する。

1. 機械曲げ機構によって目標形状の 3 次関数以下の変形を完了させる。
2. 残りの高周期形状、及びミラー上の形状誤差をバイモルフミラーによって修正する。

また、圧電素子によるねじれの影響に対しても、圧電素子の役割を減らした本システムは有効なものであると考えている。

8.2.2 ハイブリッド型形状可変ミラーの構造

図 8.2.2.1(a) は機械曲げ機構とバイモルフミラーを含んだハイブリッド形状可変ミラーの概要図で、表 8.2.2.1 はバイモルフミラーのパラメータである。ミラー基板反射面の初期形

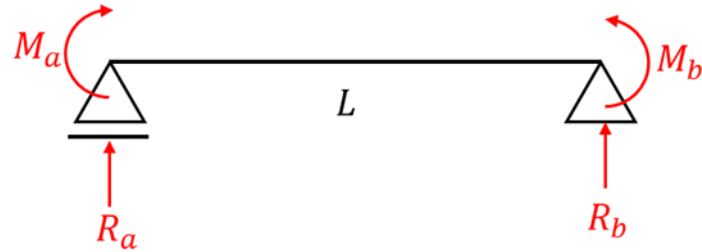


図 8.2.1.1 梁の曲げ理論における機械曲げミラーの単純モデル図.

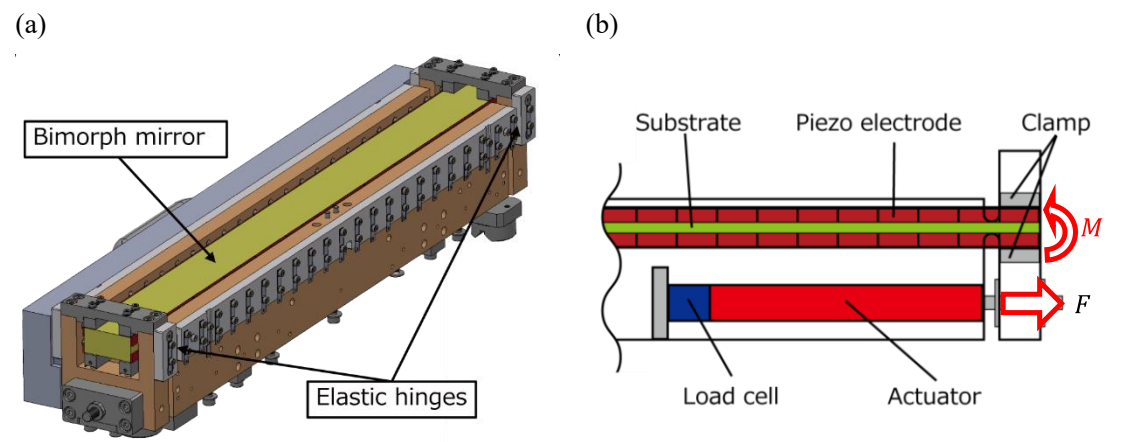


図 8.2.2.1 (a)ハイブリッド形状可変ミラーの概略図. (b)ミラー Clamp 部品, 及び曲げモーメントを印加するためのアクチュエータ周辺の拡大図.

表 8.2.2.1 作製した長尺圧電素子駆動型ミラーのパラメータ.

	Mirror substrate	Piezoelectric plate	Electrode
Material	CREARCERAM-Z (OHARA INC.)	Lead zirconate titanate (PZT)	Chromium
Length (mm)	400	200 or 100	15.9
Width (mm)	30	5	5
Thickness (mm)	15	1	-
Young's modulus (GPa)	90	80	-
Piezoelectric coefficient (m/V)	-	-135×10^{-12}	-

状は平面で、PZT で作られた piezo プレートがミラー基板両側面の上方、下方に接着されることでバイモルフ構造となっている[104]。機械曲げ機構との接合部を除いて、ミラー基板が 22 分割されるように Cr 電極が piezo プレートに成膜されている。これにより、各電極部に独立して曲率を作ることができるため、基板に残存した中周期の形状誤差を除去しつつ目標の楕円形状に変形できる。尚、バイモルフミラーで修正できない高空間周波数成分は EEM 法であらかじめ除去されている。

図 8.2.2.1 (b) はハイブリッド形状可変ミラーの側面図である。バイモルフミラーの両端がブロック、及びネジを介して弾性ヒンジ部にクランプされることで一体化している。弾性ヒンジは R2.5 mm、厚み 1 mm、幅 5 mm の寸法で、ワイヤー放電加工により作製されている。弾性ヒンジの駆動は piezo アクチュエータ (P-841, Physik Instrumente) により行われ、弾性ヒンジの回転軸からアクチュエータ先端までの距離は 40 mm である。ミラー基板両端に異なるモーメントを加えるために、2 台の piezo アクチュエータがミラー下部に配置されており、加えた力は圧縮ロードセル (TCLB-500L-M-V-TYM, 東洋測器) によってモニターできる。これにより機械曲げ機構による 3 次関数までの変形を、ミラーに加わる力を把握しながら実行できる。

8.3 FEM シミュレーションに基づく変形手順の考察

8.3.1 応答関数

クランプ状態にあるバイモルフミラーの形状修正の特徴を理解するために、バイモルフミラーの応答関数を FEM シミュレーションにより求め、クランプされていない (フリースタンディングとする) 状態の計算結果と比較した。図 8.3.1.1(a) はフリースタンディング状態におけるバイモルフミラーの応答関数で、印加電圧は 250 V である。図 8.3.1.1(b) は(a)を曲率分布に換算した結果である。第 7 章で述べた通り、電圧を印加された電極周辺の曲率のみ変化している。一方、図 8.3.1.2(a) はクランプ状態におけるバイモルフミラーの応答関数である。図 8.3.1.1(a) と比較してミラー面全体が曲がっており、電圧を印加された電極周辺以外は凹形状になっている。図 8.3.1.2(b) は(a)を曲率分布に換算した結果であるが、バイモルフミラーを曲げることでクランプ位置に生じた反モーメントにより、形状変形機構が複雑になっていることがわかる。

図 8.3.1.3 は、両状態において全ての電極に 250 V の電圧を印加したときのミラー形状の曲率を表している。ミラー領域全体に一定の曲率が生じており、2 次関数形状が作り出されていることを意味している。特に、フリースタンディングでは変形量が大きいがわかる。一方、クランプ状態において、圧電素子によりミラー全体に一樣な曲げモーメントが印加された場合、本来であればクランプ位置に生じた反モーメントによりモーメント分布は 0 に打ち消されるはずである。ここで、本計算機シミュレーションモデルでは実験状

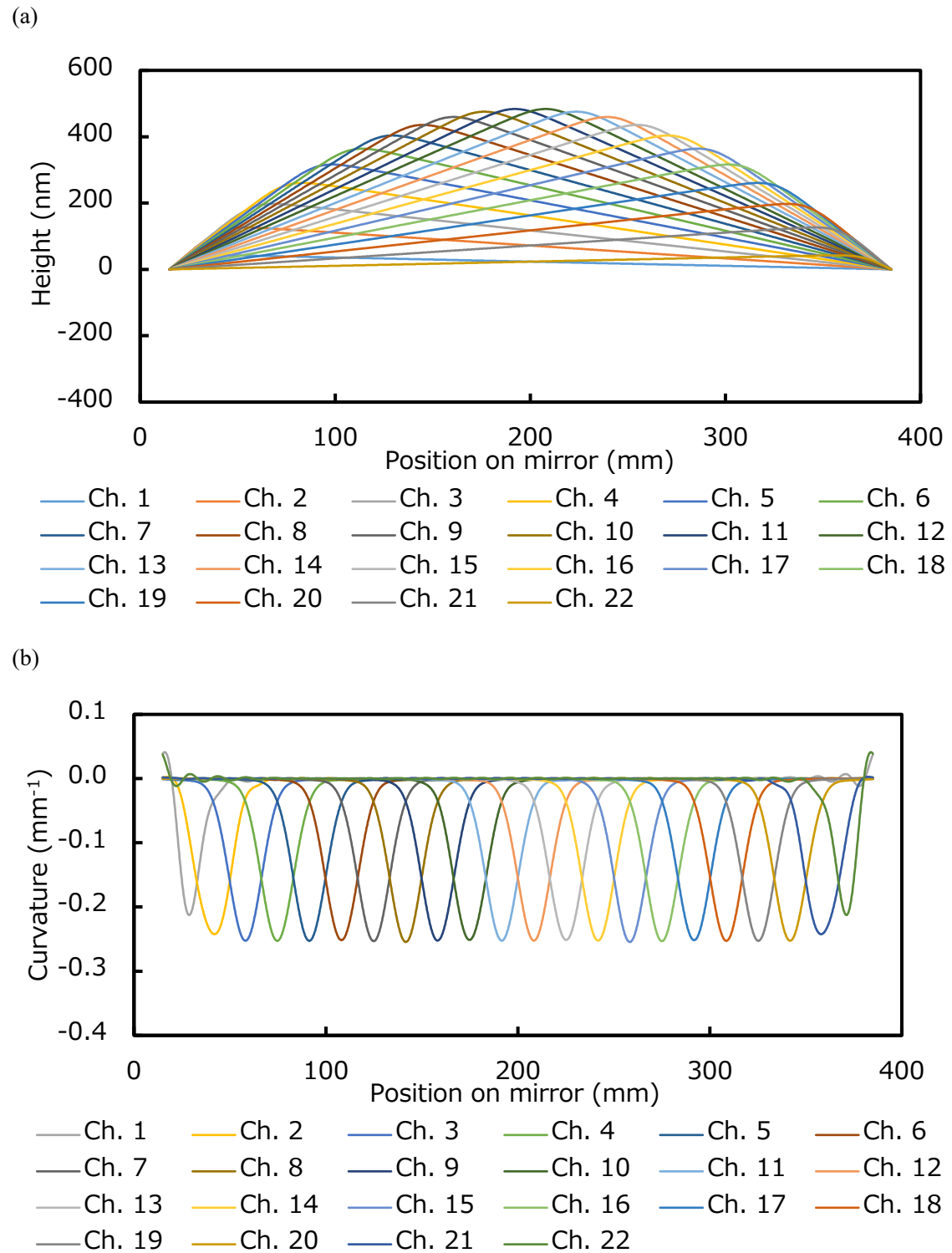


図 8.3.1.1 フリースタンディング状態において、圧電素子の各電極に 250 V の電圧を印加した際の(a)応答関数、及び(b)曲率分布.

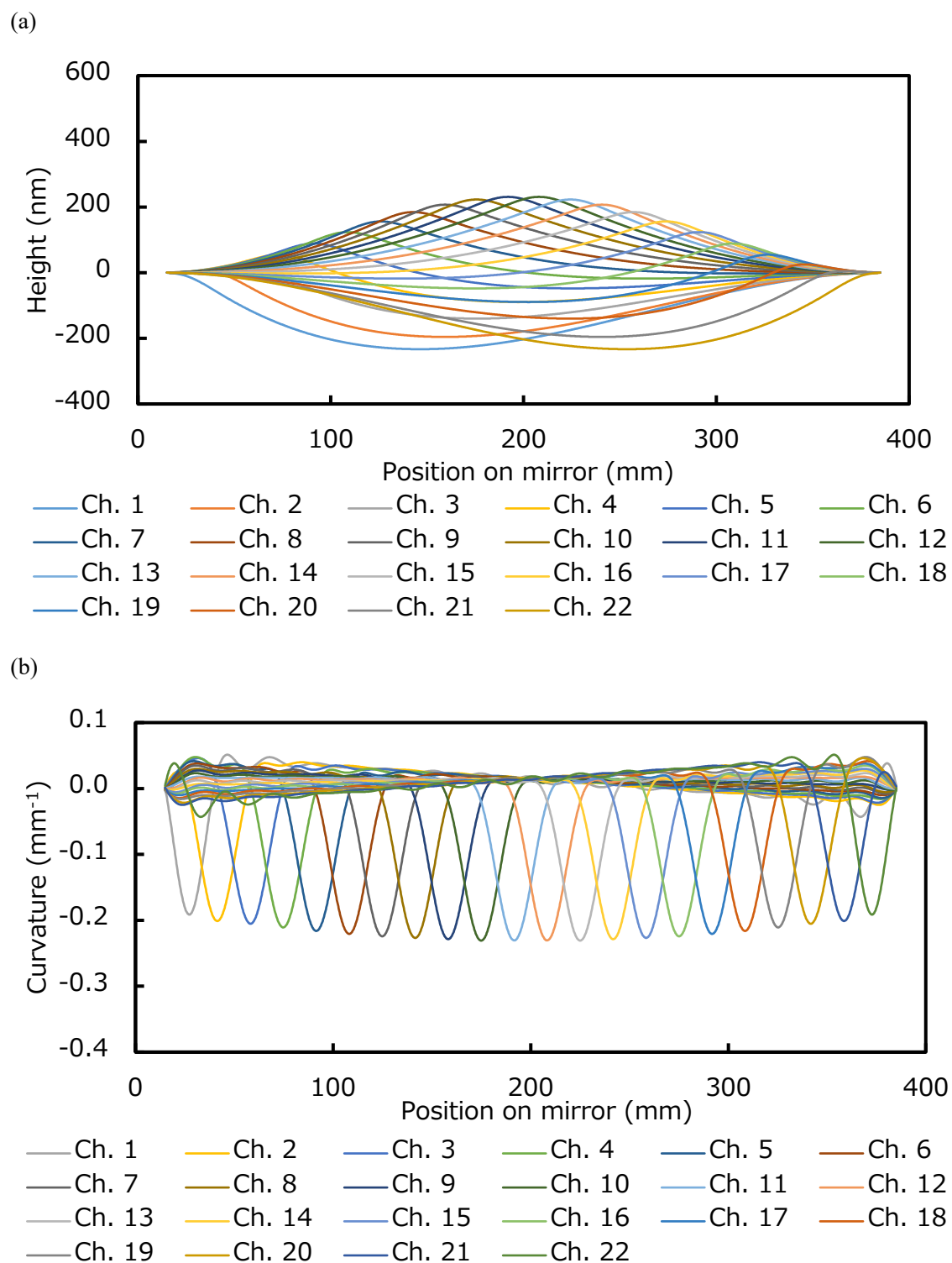


図 8.3.1.2 クランプ状態において、圧電素子の各電極に 250 V の電圧を印加した際の(a) 応答関数、及び(b)曲率分布.

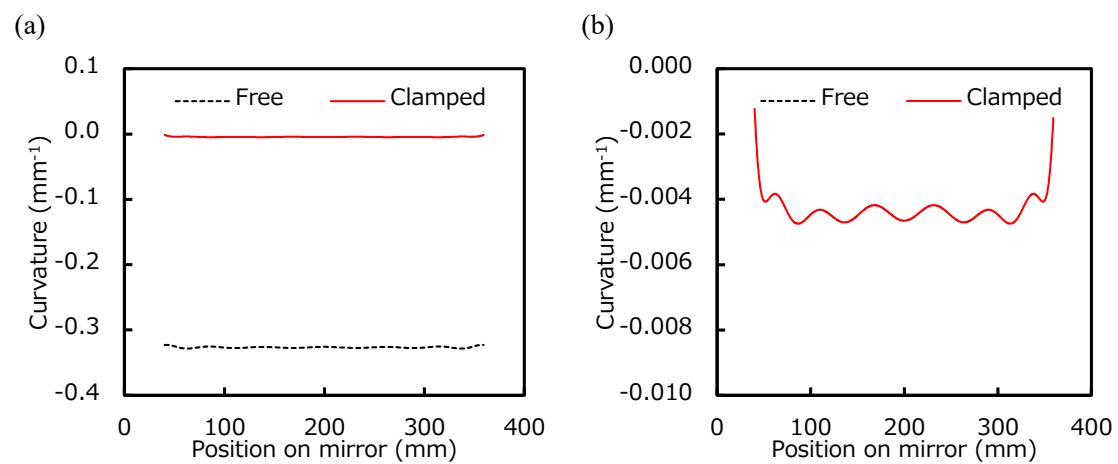


図 8.3.1.3 クランプ状態とフリースタANDING状態において、全ての電極に 250 V 印加した際の曲率分布の比較. (b)は(a)を拡大したグラフで、Clamped の曲率が僅かに 0 まですで打ち消されていないことがわかる.

態を再現するために、ミラーをクランプするブロックやネジなども組み込んだ。それらが反モーメントを弱めた結果、ミラー全体に僅かなモーメント分布が生じたと考えられる(図 8.3.1.3(b))。これは機械曲げ機構において両端に同じモーメントを加えた際に生じる変形と全く同じであるため、目標形状を形成するにあたり 2 つの曲げ機構が担う変形量の組み合わせは 1 つではないことを意味している。したがって、いかに圧電素子の負担を減らす組み合わせを選ぶかが、光学系の安定化、及び変形の高精度化に繋がる。

8.3.2 最適な形状変形手順の考案

図 8.3.2.1(a)を目標形状として計算機上でミラーを変形させることで、各状態における応答関数の違いを評価した。表 8.3.2.1 に目標形状のパラメータを示した。図 8.3.2.1(b)は、(a)の形状から機械曲げ機構で変形できる 3 次関数までの形状を引き算することで、形状の PV 値を最小にした結果である。図 8.3.2.1(c)は、(b)の形状をそれぞれの状態におけるバイモルフミラーで修正したのちに残存する最終的な形状誤差を示しており、応答関数に基づいて計算されている。それぞれの状態において、1 nm PV の精度で形状修正できることが確認された。しかしながら、図 8.3.2.1(d)に示した通り、クランプ状態において必要な電圧分布の絶対値が、フリースタANDINGの場合と比較して非常に大きいことがわかった。尚本来であれば、フリースタANDINGの形状可変ミラーは図 8.3.2.1(b)ではなく、(a)の形状にバイモルフミラーのみで変形しなければならないため、遥かに大きな電圧を必要とすることを断っておく。

ここで、図 8.3.1.3 の特徴から、クランプ状態において 2 次関数形状は電圧分布の定数項を、3 次関数形状は電圧分布の傾きを変化させると考えられる。図 8.3.2.2(a)の Error 1 は図 8.3.2.1(b)と同じである。この形状誤差を取り除くためにバイモルフミラーに印加した電圧分布は、図 8.3.2.2(b)にて Error 1(Free)、及び Error 1(Clamped)としてプロットされており、図 8.3.2.1(d)のそれぞれの曲線と等しい。図 8.3.2.2(a)の Error 2 は、バイモルフミラーに印加する電圧を小さくするために、意図的に 3 次関数以下の形を Error 1 に追加した形状誤差である。Error 2 の形状を、クランプ状態のバイモルフミラーで修正した場合に必要な印加電圧分布を計算し、図 8.3.2.2(b)にて Error 2(Clamped)として示したが、明らかに電圧分布の振幅が小さくなっていることがわかる。3 次関数以下の追加形状誤差は機械曲げ機構で実現できるため、実証実験においても実現できる手順である。

8.4 SPring-8 における実証実験

8.4.1 実験セットアップ

SPring-8 BL29XU EH3 にて、ハイブリッド型形状可変ミラーを用いた一次元集光実験を行った。図 8.4.1.1 は、実験配置とハイブリッド型形状可変ミラーの写真である。実験には、Si(111)二結晶分光器 (DCM) で単色化された 10 keV の X 線を用いた。仮想光源として、

表 8.3.2.1 目標楕円形状の設計パラメータ.

a^* (m)	22.23
b^* (mm)	40.05
Grazing incidence angle** (mrad)	0.90
Focal length** (mm)	450

*楕円: $x^2/a^2 + y^2/b^2 = 1$

**ミラーの中心

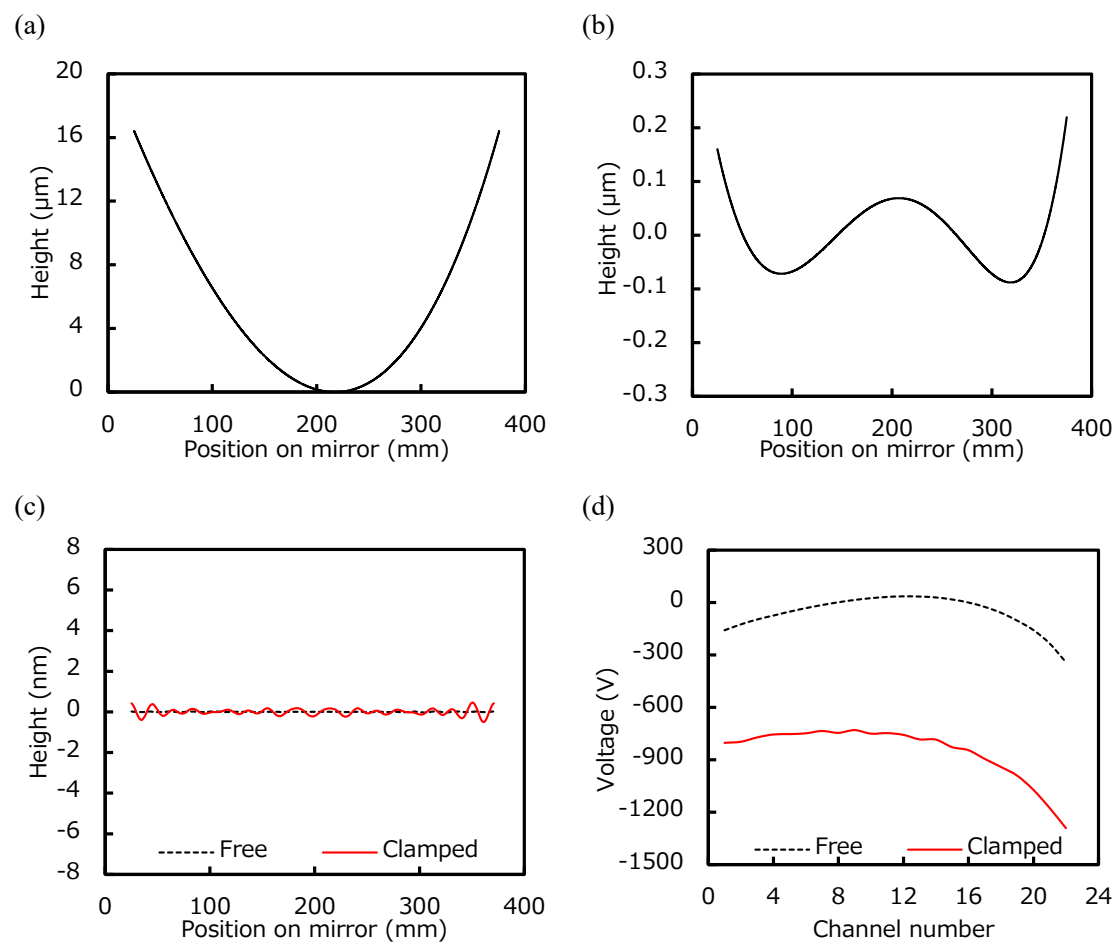


図 8.3.2.1 (a)目標楕円形状. (b)機械曲げ機構による変形後の最小形状誤差 (3 次関数除去). (c)各クランプ状態における応答関数を用いて(b)の形状を修正した後に得られる残差. (d)(c)の変形を完了させるために必要となった印加電圧分布.

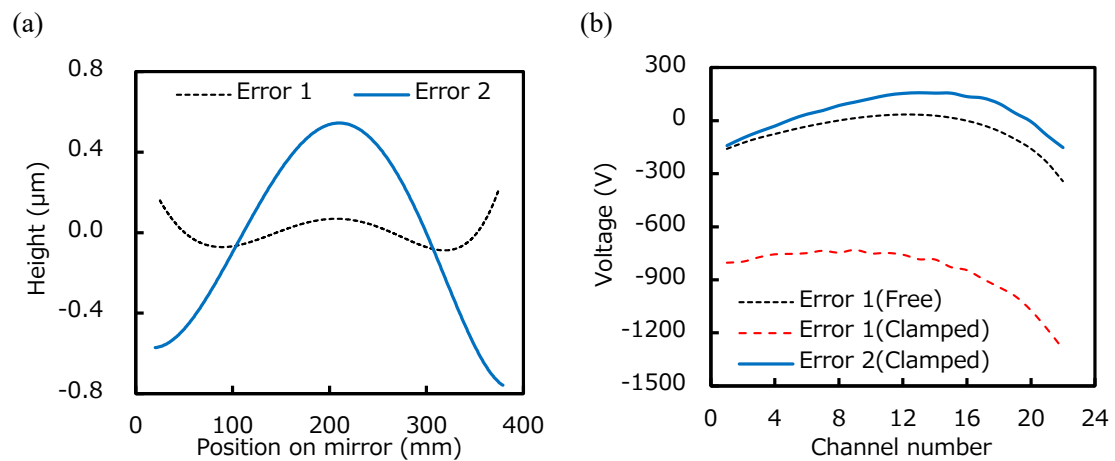
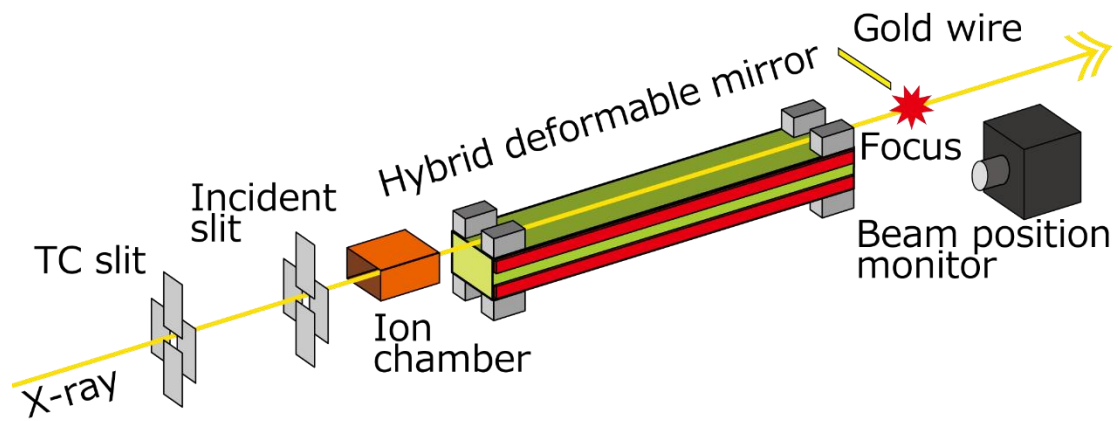


図 8.3.2.2 (a)Error 1 は図 8.3.2.1(b)と同じ (3 次関数を全て除去した) 形状で, Error 2 は Error 1 に 3 次関数以下の形状を追加した形である. (b)Error 1 の形状を修正するときに, 各状態で必要となった電圧分布 (Error 1(Free), Error 1(Clamped)), 及び Error 2 の形状を修正するときに, クランプ状態において必要となった電圧分布 (Error 2(Clamped)).

(a)



(b)

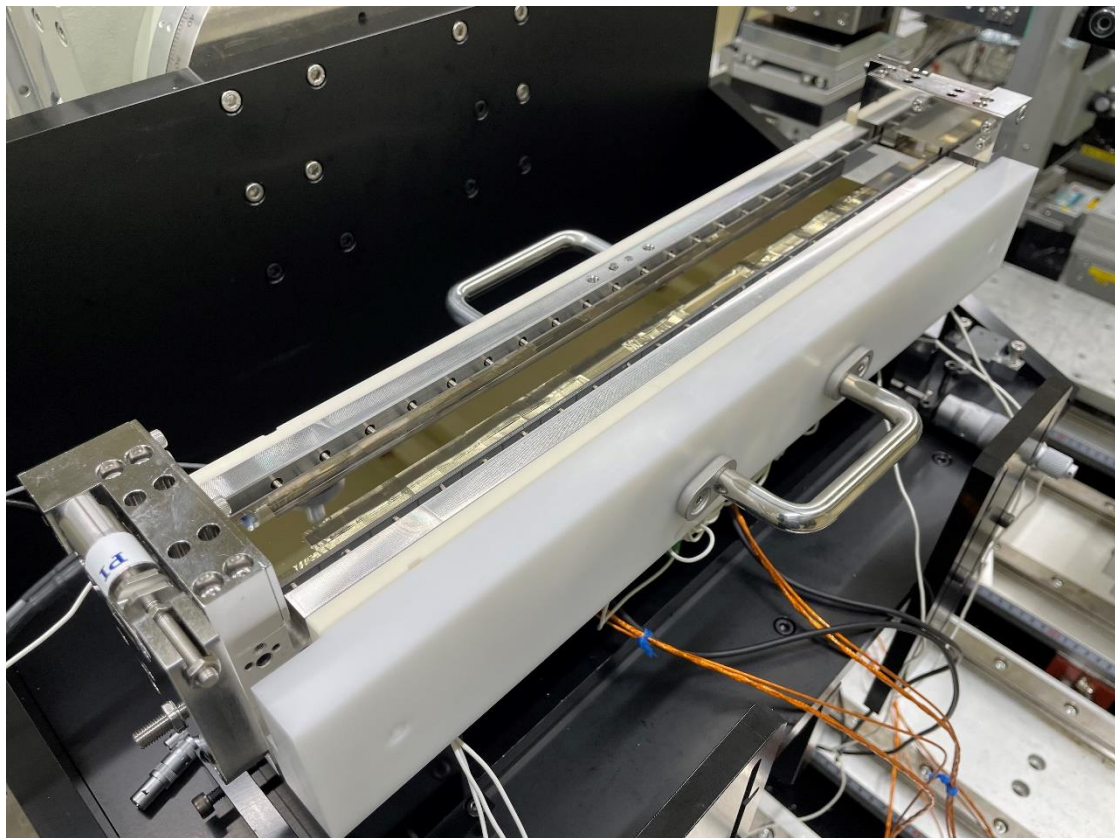


図 8.4.1.1 (a)1次元集光実験のセットアップ. (b)ハイブリッド型形状可変ミラーの写真.

DCM の下流に設置された Transport Channel(TC)スリットを用いた。バイモルフミラーの開口サイズを決める、又はペンシルビームを作り出すために、ミラーのすぐ上流に入射ビームの大きさを制限するスリットを設置した。焦点付近には、YAG:Ce セラミック製の薄型シンチレータ、レンズ、CMOS カメラからなるビームモニターと、金ワイヤー（直径 200 μm ）を設置した。実験に使用したミラーの有効長は 350 mm であった。反射面には、マグネトロンスパッタ法を用いて Pt 薄膜（厚さ：100 nm）をコーティングした。今回の実証実験では、前項のシミュレーションと同様に、図 8.3.2.1(a)を目標形状とした。あらかじめ三次元測定機（Coordinate Measurement Machine: CMM）[111]を用いて、目標形状の変形に必要な機械曲げ量とバイモルフミラーへの印加電圧を確認した。ビームラインにおける形状補正には、ペンシルビームスキャン法に基づき得られた応答関数を用いた。

8.4.2 ペンシルビームスキャン法[112-114]

これまでの光学系で用いてきたグレーチング干渉法は、開口数に応じてセットアップを変える必要があるため、アダプティブ光学系において不向きであると考えられる。そこで、ペンシルビームスキャン（Pencil beam scan:PBS）法を導入した。図 8.4.2.1 に X 線ペンシルビームスキャン法の概念図を示している。ミラーをいくつかの区間に分割し、その区間ごとにスリットにより制限された X 線を照射し、反射した X 線の位置を焦点位置で計測することにより、ミラーの各区間での傾斜誤差を求める手法である。

ミラーが理想的な形状をしている場合、すべての区間において反射した X 線は焦点位置で 1 点に集まる。しかし、ミラーに形状誤差がある場合、X 線の反射軌道にはその誤差によって区間ごとにずれが生じる。焦点からのずれ量は傾斜誤差の高さに比例しており、図 8.4.2.1 に示すように、焦点位置での X 線のずれを Δy 、反射位置から焦点までの距離を L とするとき、傾斜誤差 θ は、式(8.4.2.1)で表すことができる。

$$\theta = \tan^{-1} \frac{\Delta y}{2L}. \quad (L \gg \Delta y) \quad (8.4.2.1)$$

すべての区間における傾斜誤差分布がわかれば、形状可変ミラーの補正電圧分布に変換し、形状を修正することが可能である。この方法が 10^{-7} rad を超える角度計測精度を有していることを確認しており、回折限界条件下で波面を評価するのに十分である[114]。

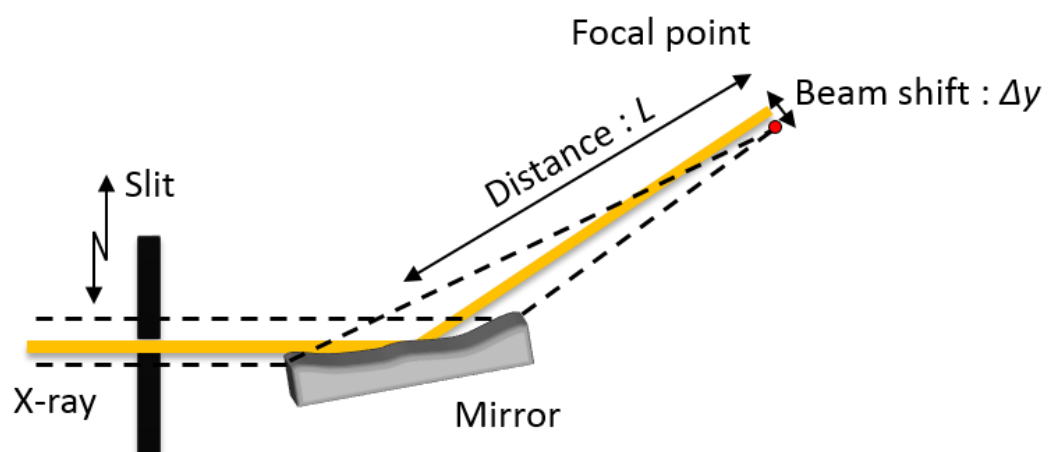


図 8.4.2.1 X 線ペンシルビームスキャン法の計測概念図.

8.4.3 提案手法に基づいた形状修正の実証

図 8.4.3.1 にペンシルビームスキャン法で計測した応答関数を示した。各電極に印加した電圧は 250 V である。確かにバイモルフミラーの両端がクランプされていることによりミラー全域にわたって曲率が生じていることが確認できた。しかしながら、FEM シミュレーションの結果と比較すると、クランプ状態の不完全性がさらに大きいことが推測される。図 8.4.3.2(a)はそれぞれバイモルフミラーの目標形状である。Error 1 は計算機シミュレーションで用いた最小誤差形状とほとんど等しいが、印加可能電圧の問題で ± 500 V 以内の電圧で修正できるようにわずかに 3 次関数以下の形状が追加されている。Error 2 は、印加電圧が低くなるように、意図的に 3 次関数以下の形状を十分に追加した後の形状誤差である。バイモルフミラーによる形状修正の結果、両形状において 4 nm PV 以下の回折限界条件を満たすことができた(図 8.4.3.2(b))。また、必要な印加電圧分布も、Error 1 と比較して Error 2 が低くなっていることが確認でき(図 8.4.3.2(c))、提案手法の有効性を示すことができた。

また、各形状における集光プロファイルを明視野ナイフエッジスキャン法により計測した結果を図 8.4.3.3 に示した。Error 1, 2 において、それぞれ半値幅 157 nm, 及び 171 nm であった。本光学系における回折限界集光サイズは 141 nm であるため、おおよそ満たしていることが確認できた。

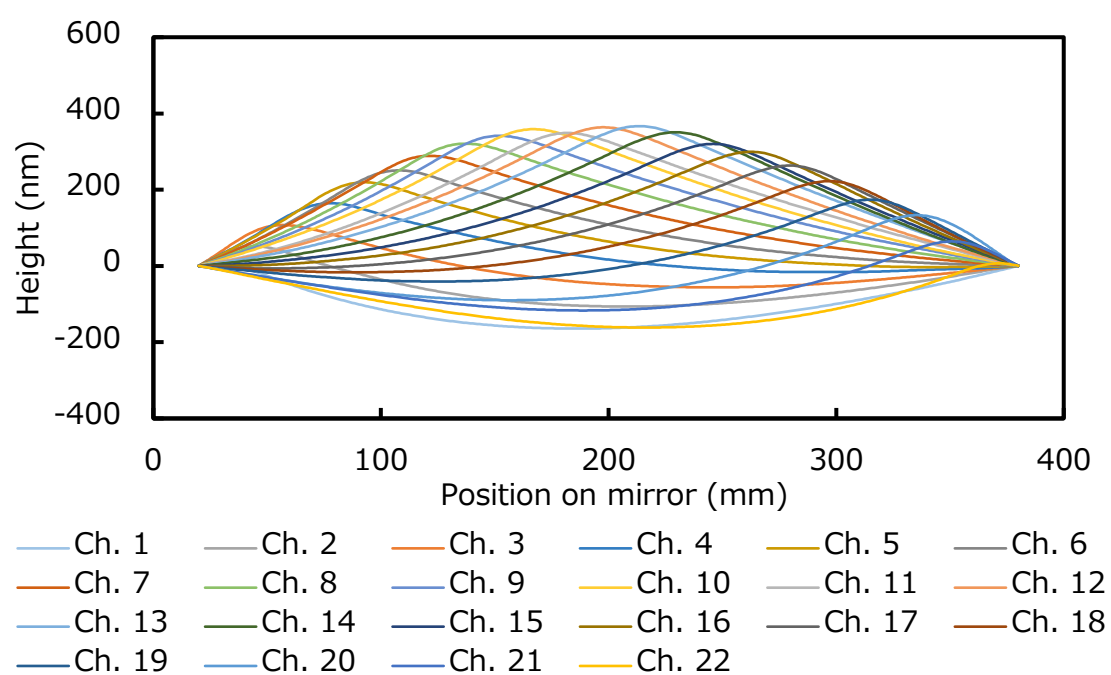


図 8.4.3.1 クランプ状態において、圧電素子の各電極に 250 V の電圧を印加した際の応答関数.

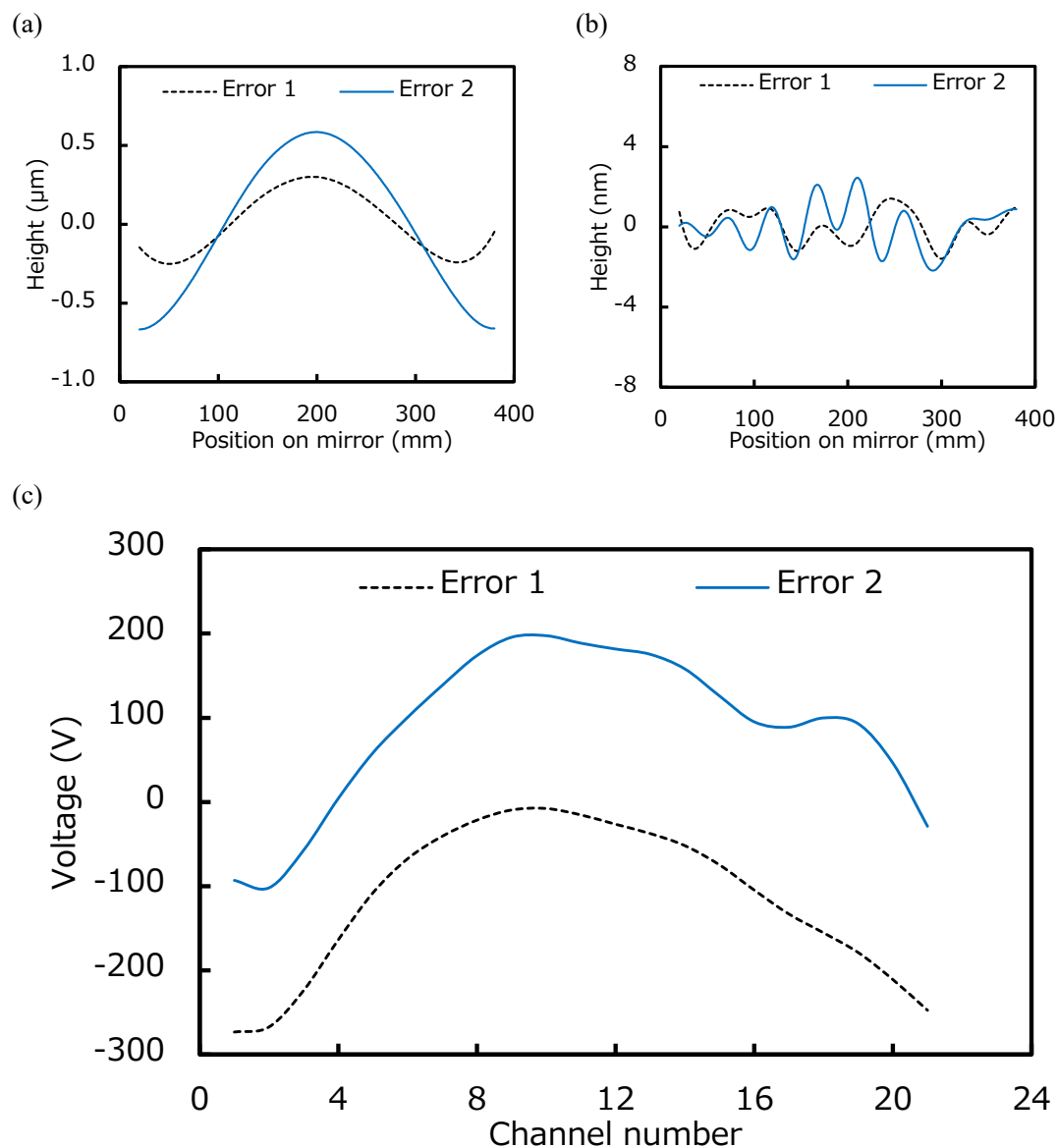


図 8.4.3.2 (a)機械曲げ機構による変形後の、バイモルフミラーにおける目標形状. Error 1 は計算機シミュレーションで用いた最小誤差形状とほとんど等しいが、印加可能電圧の問題で ± 500 V 以内の電圧で修正できるようにわずかに 3 次関数以下の形状が追加されている. Error 2 は、印加電圧が低くなるように、意図的に 3 次関数以下の形状を十分に追加した後の形状誤差である. (b)バイモルフミラーによって、(a)の形状をそれぞれ修正した結果. (c)それぞれの目標形状に対して、バイモルフミラーに印加した電圧分布.

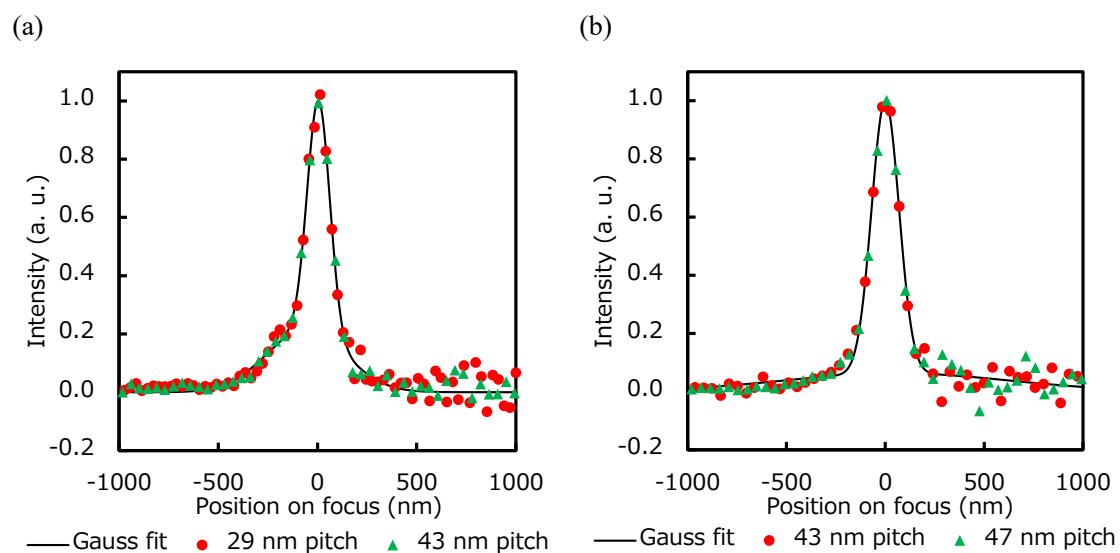


図 8.4.3.3 (a)Error 1 と(b)Error 2 における集光ビームの強度プロファイル. 各点は 2 回のナイフエッジスキャン法で実測された強度である. 実線は, 実測値を 2 つのガウシアン関数でフィッティングした結果である.

8.5 結言

本章では、開発がスタートしたハイブリッド型形状可変ミラーにおける変形プロセスを FEM 法に基づいて検討し、SPring-8 にて実証実験を行った結果について述べた。以下に要点をまとめる。

- (1) より幅広い集光サイズを自由に形成するために、長尺な形状可変ミラーの実現を目指し、機械曲げ機構とバイモルフミラーを組み合わせたハイブリッド型形状可変ミラーを開発した。機械曲げにより 3 次関数以下の変形ができることを梁の曲げ理論に基づき確認し、ハイブリッド型形状可変ミラーの基本的コンセプトを示した。
- (2) FEM 法を用いて計算機シミュレーションを行い、バイモルフミラーの変形特性の調査を行った。フリースタANDING状態では電圧が印加された電極の周囲のみの曲率が増加していることに対し、クランプ状態ではミラー両端において発生する反モーメントの影響で、ミラー全体の曲率が増加することを確認した。そのため、全ての電極に同じ電圧を印加した際、フリースタANDINGでは大きな 2 次関数に変形されているが、クランプ状態では反モーメントによりほとんどキャンセルされ、変形量が極僅かになることが示された。
- (3) 機械曲げ機構で目標楕円形状の 3 次関数以下の変形を全て担った場合、クランプ状態とフリースタANDINGにおいて変形に必要な電圧が大きく異なることがわかった。ここで機械曲げ機構により、意図的に 3 次関数以下の形状誤差を与えることで、印加電圧分布の一次関数成分（傾きと切片）を変化させ、電圧分布の絶対値を小さくできることを確認した。
- (4) SPring-8 BL29XU EH3 にてハイブリッド形状可変ミラーを用いた集光実験を行った。実証実験において機械曲げ機構により形状誤差を加えることで、電圧分布の絶対値を制御できることを確認した。また、変形後の形状は回折限界条件を満たしており、ナイフエッジスキャン法により理想集光 141 nm にほぼ近い集光サイズを実測できた。

第9章

総括

本論文では、X線光子場の更なる高強度化を目的として、XFELをスポットサイズ10 nm以下に集光する光学系の開発に挑戦した。まず、Kirkpatrick-Baez(KB)ミラーを用いた sub-10 nm 集光光学系の構築において、回折限界条件を達成するために、グレーチング干渉計に基づくミラー形状誤差決定手法と、スペックル干渉計に基づくナノビーム診断法を開発した。次に、応用実験に向けて集光状態の高安定化を目指し、Wolter III型配置に基づく Advanced KB(AKB)ミラー集光光学系を構築した。さらに、加工手法では対応できない高い形状修正精度を実現できる新たな手法として、圧電素子駆動型形状可変ミラーを導入し、集光サイズ5 nm以下の実現を目指した。最後に、形状可変ミラーを用いて光学系の設計を変えることで、ビーム径の制御を実現できる、アダプティブ集光光学系の開発へと展開した。本論文の構成、及び各章で得られた知見と結果を以下にまとめる。

第1章では本研究の背景、及びX線集光光学系を開発する目的を述べ、本論文の構成を示した。

第2章では、まずXFEL用 sub-10 nm 集光光学系の構成を述べ、許容アライメント・形状誤差について検討した後に、光学系完成に向けた戦略を記述した。以下に要点をまとめる。

- (1) XFELにおけるナノ集光素子の主力であるX線ミラーを概説し、特に一般的に用いられているKBミラーについて述べた。表面形状にナノメートルオーダーの高い精度を必要とすることをレイリーの基準から示した。また、X線の反射原理に基づき、サイズ10 nm以下の集光には多層膜ミラーが必要であることを述べた。
- (2) sub-10 nm 集光光学系を設計した。光源の発散角が小さいこと、及び比較的全長が短いことに対応するために、KBミラーを2組用いた2段集光システムを構築し、10000倍以上の高い縮小倍率を実現した。
- (3) sub-10 nm 集光光学系を用いた回折限界条件達成における2つの障壁について言及した。まず、表面形状に求められる精度が1 nm PV程度であることを示し、従来のミラー形状

と比較することで、形状計測が特に困難であることを述べた。また、幾何光学や波動光学に基づき、必要なアライメント精度が軸によっては mrad オーダーと非常に厳しいことを示した。

- (4) ミラー形状誤差を高精度に決定する手法として、グレーチング干渉計に基づく X 線波面計測法を開発し、差分成膜法を織り交ぜた補償光学システムを実施することを提案した。また、アライメントを調整するために、シングルショットで2次元のビーム形状を評価する手法が求められることを言及し、光のコヒーレント散乱により生じるスペックルを利用することを提案した。

第3章では、ミラー形状を高精度に修正するために、グレーチング干渉計に基づく X 線波面計測手法を構築し、絶対計測精度の向上を試みた。以下にまとめを示す。

- (1) グレーチング干渉計に基づく波面計測法について、Talbot 効果の原理や撮影された自己像の解析手法について述べた。
- (2) SACLA BL3 EH5 にて sub-10 nm 集光光学系を構築した。本光学系にグレーチング干渉計を導入するに際し、光学配置、及び干渉計のパラメータを決定した。また、実際に自己像を X 線カメラで取得し、干渉縞のビジビリティから解析可能であることを確認した。
- (3) 波面計測法の測定再現性について調査した所、 0.090 rad RMS であったことから、十分な精度で多層膜ミラーの形状計測が可能であることを確認した。
- (4) 入射角誤差によって発生するコマ収差関数を利用することで、波面計測の正確さについて検討を行った。実際の計測結果と波動光学計算結果を比較したところ、精度良く波面を計測できているとわかった。
- (5) グレーチング干渉計におけるシステムエラーの評価をおこなった。まず、回折格子、及びカメラのミスアライメントが波面に及ぼす影響を検討した。その結果、数 mrad 程度の誤差は許容できることを確認した。また、回折格子の照明位置を変えて波面計測を行ったが、ほとんど結果は変わらず、精度よく作製されていることが確認できた。
- (6) 次に、X 線カメラにシステムエラーが存在するかを確かめるため、2種類の X 線カメラで波面計測を行ったところ、 2.0 rad PV 以上の致命的な差が生じていた。つまり、カメラ由来のシステムエラーを取り除く手法が必要であるとわかった。

- (7) X 線カメラが発生させるシステムエラーは、各素子に取り付けられているレンズやミラーの歪み及びミスアライメントが原因だと考えた。そこでカメラの画素位置を連続的に変えて同一の波面誤差を計測することによって、真の波面誤差とシステムエラーを必要な精度で分離する方法を提案した。適切な走査回数を計算機シミュレーション及び実証実験にて求めたところ、20 回以上で十分であると分かった。実際に 2 つの X 線カメラで本手法を実施したところ、得られる波面が一致することを確認した。以上より、システムエラーフリーな精密波面計測手法が完成した。

第 4 章では、波面計測法により決定された形状誤差を修正する差分成膜法と、XFEL を高効率に反射するための多層膜作製の精度を検証した。そして再成膜された X 線ミラーを用いて SACLA にて集光実験を行った。以下に要点をまとめる。

- (1) 単位時間当たりの形状修正量が安定しており、他の成膜手法よりも基板に与えるダメージが少ないことから、DC マグネトロンスパッタリング法に基づく差分成膜法を導入した。
- (2) 差分成膜において、目標形状と単位成膜痕を元に予想される形状修正精度を見積もったところ、幅が 2 mm のスリットで 1 nm PV の精度を満たすことを確認した。実際にガラス平面基板に成膜し、可視光干渉計で計測したところ、1 nm PV の精度で成膜できていることを確認した。また、可視光干渉計と XRD で同じ成膜形状を評価したところ、お互いに目標成膜量と矛盾ない計測結果を示すことを確認した。
- (3) XRD の計測精度を標準試料 (GaAs/AlAs 超格子(8500-30402 5203-a)) を用いて確認したところ、カタログスペックとほぼ同等の膜厚が実測できていた。実際に多層膜を作製し、計測結果を元に目標の周期長になるよう成膜時間を調整したところ、0.01 nm の精度を達成した。
- (4) sub-10 nm 集光システムの後段 KB ミラーのそれぞれに差分成膜、及び多層膜成膜を施し、再び SACLA にて波面計測を行ったところ、各ミラーにおいて 10 rad PV 程度残存した波面収差が、垂直集光側は 1.6 rad PV、水平集光側は 2.0 rad PV まで改善した。水平集光ミラーは、垂直集光ミラーと比較してミラー長が 4 倍程度長いため、形状修正プロセスが比較的不安定になったと考察した。
- (5) 波面収差値を元にした計算機シミュレーションにより集光強度プロファイルを求める、スポットサイズは 5.4 nm(V)×6.7 nm(H)となり、sub-10 nm 集光の達成を確認した。本結果を元に集光強度を見積もると $1.07 \times 10^{21} \text{ W/cm}^2$ であり、sub-50 nm 集光光学系より 1 桁近い利得があると推測される。

- (6) 暗視野ワイヤースキャン法により集光径を実測したところ、垂直集光側は 49.5 nm、水平集光側は 40.3 nm であった。計算機シミュレーションで得られた結果よりも大きな集光径となってしまったが、その原因としてワイヤーの表面粗さや光源やミラーの振動による計測の誤差が考えられた。真にサイズ 10 nm 集光を達成するためにはビームの実測は必要不可欠であることから、新しいビーム診断法の開発が求められる。

第5章では、ビーム診断法としてコヒーレント X 線の散乱現象により生じるスペックルを利用した手法を提案した。スペックルの变化からミラーアライメントを必要精度以内で調整可能であることを、計算機シミュレーションと実証実験に基づき検討・確認した。以下に要点をまとめる。

- (1) 試料にコヒーレントな光が照射された際に生じるスペックルパターンに、照明領域の情報が含まれる原理を説明した。また計算機シミュレーションにより、スペックルサイズとビームサイズが反比例の関係を示すことを明らかにした。
- (2) 各ミスアライメントとビームプロファイルの関係を、計算機シミュレーションにより示した。また、スペックルパターンから、全てのアライメント軸の誤差を独立して評価できるか調査した。直角度誤差は、スペックルの方位角を計測することで調整が可能であると確認した。入射角誤差は焦点におけるビームサイズを大きくするため、焦点位置でのスペックルサイズを評価することで調整が可能であると確認した。そして、非点収差がある場合、垂直水平方向の集光点が光軸に沿って異なるため、スペックルサイズを2次元同時に評価した際のピーク位置を元に調整が可能であると確認した。
- (3) 実証実験の装置構成を示した。試料を散布させるメンブレンが破壊されてしまうことが多々あったため、膜厚を大きく (270 nm → 2 μm) し、窓枠を小さく (2 mm → 1 又は 0.5 mm 四方) することで改善させた。正確にスペックルサイズを評価するために、ミラー由来の寄生散乱、及び微粒子試料の構造に起因した強度分布の影響を取り除く処理を提案、実証した。試料として、散乱光をできる限り広げるために、粒径 2 nm の白金微粒子を採用した。また、試料が厚いとスペックルが歪む原因として、焦点深度による幾何光学的要因が支配的であることを、実証実験及びマルチスライス法を導入した計算機シミュレーションによって確認し、sub-10 nm 集光光学系での実験における試料の厚さを 1 μm 程度と決定した。
- (4) 実際にスペックル形状を元にミラーのアライメント調整を行ったところ、全てのアライメント軸を必要精度の範囲で最適化することに成功した。調整後に取得されたスペックルは、波面計測結果から予想されたものとほとんど矛盾無く、サイズ 10 nm 以下の集光

が実現していることを確認した。

第 6 章では、安定してサイズ 10 nm 集光を達成することを目的として、Wolter III 型配置に基づく新型 sub-10 nm 集光光学系の設計、及び実証実験を行った。以下に得られた結果を記す。

- (1) X 線ミラー結像光学素子である各種 Wolter ミラーと AKB ミラーについて述べた。広い視野と、形状加工の難易度から、AKB ミラーが新規光学系の集光素子として有用であることを示した。
- (2) NA, 縮小倍率, 多層膜周期長, アクセプタンス, 及びワーキングディスタンスなどの制約の下, 新型 sub-10 nm 集光光学系を設計した。波動光学に基づく計算機シミュレーションを行い, 入射角の許容誤差が数百倍向上していることを確認した。一方で, 双曲, 楕円ミラーの相対アライメントに μrad , μm 程度の精度が求められることを確認した。
- (3) 多層膜ミラーの反射率を向上させるために, 多層膜の平均屈折率 (吸収率) を下げることを目的として重元素 (Pt) の薄膜化を検討した。計算機シミュレーションと実証実験により, Pt の厚みがアイランド成長する程度にまで薄くなると反射率が下がることに気づき, Pt 膜厚のみ 1.23 nm の一定値とした多層膜を設計した。
- (4) SPring-8 BL29XU EH4 において新型 sub-10 nm 集光光学系を構築した。波面計測の絶対計測精度を向上させるために, 新しく歪み補正レンズを組み込んだカメラを導入し, 実際にシステムエラーが存在しないことを確認した。
- (5) アライメント誤差が波面に与える影響をそれぞれの軸において独立して評価するために, 計測した波面を Legendre 多項式によってフィッティングした。ミラーの入射角誤差は Legendre 多項式の 7, 10 次成分を, 直角度誤差は 5 次の成分を, ローリング誤差は 8, 9 次の成分を変化させることを確認した。これらの特徴を利用することで, 波面計測結果に基づきミラーアライメントを完了できることが示された。
- (6) 第 4 章同様, 波面計測結果に基づき, ミラー形状を差分成膜法によって修正した。その結果, $\lambda/4$ PV 以下の波面誤差を達成し, 回折限界集光が可能なミラーの作製に成功した。
- (7) 光学系全体の入射角を変化させて, 許容角度誤差範囲を評価したところ, $200 \mu\text{rad}$ 程度であり, KB ミラーと比較して数百倍大きいことを確認した。そして, SACLA BL3 EH4c にて新型 sub-10 nm 集光光学系を構築し, グレーチング干渉計による波面計測を行っ

た。計測された波面は SPring-8 とよく一致し、本光学系が SACLA においても回折限界集光が実現できる光学系であることを確認した。

第7章では、更なる極小集光サイズの実現に向けて、多層膜形状可変ミラーに基づく sub-5 nm 集光光学系を設計し、1次元集光実験を行った。また、多層膜の高次光反射を利用した集光光学系の基礎検討を行った。以下に得られた結果を示す。

- (1) 目指す集光サイズの微小化に伴い、求められる形状精度が厳しくなることから、加工・成膜のような *ex-situ* における形状修正手法では対応できなと考えられる。そこで、バイモルフ構造を有する圧電素子駆動型形状可変ミラーの導入を提案した。
- (2) AKB 配置、多層膜、及び形状可変ミラーに基づく sub-5 nm 集光光学系を設計した。この時、必要形状精度は垂直楕円ミラーで 0.3 nm PV、水平楕円ミラーで 0.5 nm PV 程度であると計算された。
- (3) 水平集光ミラーペアに関して、計算機シミュレーションによりアライメント特性と変形可能形状を調査した。まず、入射角誤差に対して $\pm 60 \mu\text{rad}$ 程度の許容値を有することがわかった。また、周期数 6.5 以下であれば、2 nm PV の基板形状誤差を許容精度(0.5 nm PV)以下に修正できることがわかった。ここで、2 nm PV は、一般的に初期加工で達成できる形状精度であるとされている。
- (4) 多層膜の材料として W/C を検討した。第6章の Pt と同様に W の膜厚を徐々に小さくしたところ、厚み 0.9 nm 以上において界面粗さは 0.25 nm RMS 以下と良好で、0.7 nm を下回った辺りで急激に悪化した。これは、Pt よりアイランド成長が発生する膜厚の閾値が小さいことを意味しており、最小周期長 2.099 nm の多層膜を理想的に作製できることが確認できた。
- (5) SPring-8 BL29XU EH4 にて、水平集光ミラーペアを用いた 1次元集光実験を行った。グレーチング干渉計で計測された波面を基準にアライメントを調整し 3 次関数を取り除いたところ、60 rad PV 程度の大きな 4 次関数収差の残存を確認した。開口数が設計値と 3 %程度しか変わらないことからミスアライメント由来ではなく、楕円ミラーの形状が原因と考えられる。形状可変ミラーの応答関数を取得し、形状修正を試みたところ、6 rad PV まで改善されたが、回折限界条件は満たさなかった。ミラー下流領域は特に曲率が厳しく、形状可変ミラーでも対応できない高空間周波数形状の計測が困難となったと推測される。残った僅かな波面収差を、許容形状誤差が大きい双曲ミラーに差分成膜法を施すことで再び修正を試みたところ、回折限界条件を満たすことに成功した。

- (6) 光学系の特性を調査した. 双曲ミラーで波面補償したことにより, 入射角を変化させると高空間周波数成分の収差が生じたが, $\pm 20 \mu\text{rad}$ 程度の範囲で回折限界条件を満たしていることを確認した. また, 形状可変ミラーの変形は 10 時間近く安定していることも実測できた.
- (7) 垂直集光楕円ミラーの高次光反射多層膜において, 重・軽元素比率に対する反射率の関係を数学的に考察し, Pt/C を 1:1 の関係で積層させた多層膜の 3 次光反射を利用することを決定した.
- (8) 高次光反射多層膜の原理実証実験のために, 第 5 章までで開発した旧型 sub-10 nm 集光光学系の多層膜ミラーを X 線エネルギー 28 keV 周辺で使用することを試みた. 研究室の XRD 基準で成膜精度を確認したところ, 基板の半割精度(0.01° 程度)に匹敵する高い精度で 3 次光の多層膜周期長を調整することに成功した(0.01 nm オーダー).
- (9) SPring-8 BL29XU EH4 において実証実験を行った. 各ミラーの 3 次光における反射率分布を計測したところ, ミラー領域の全域でほぼ同じ X 線エネルギーで反射率ピークを迎えていることを確認した. 実験室の XRD の精度で, 3 次光反射多層膜ミラーを作製できることを確認した.

第 8 章では, 開発がスタートしたハイブリッド型形状可変ミラーにおける変形プロセスを FEM 法に基づいて検討し, SPring-8 にて実証実験を行った結果について述べた. 以下に要点をまとめる.

- (1) より幅広い集光サイズを自由に形成するために, 長尺な形状可変ミラーの実現を目指し, 機械曲げ機構とバイモルフミラーを組み合わせたハイブリッド型形状可変ミラーを開発した. 機械曲げにより 3 次関数以下の変形ができることを梁の曲げ理論に基づき確認し, ハイブリッド型形状可変ミラーの基本的コンセプトを示した.
- (2) FEM 法を用いて計算機シミュレーションを行い, バイモルフミラーの変形特性の調査を行った. フリースタANDING状態では電圧が印加された電極の周囲のみの曲率が変化していることに対し, クランプ状態ではミラー両端において発生する反モーメントの影響で, ミラー全体の曲率が変化することを確認した. そのため, 全ての電極に同じ電圧を印加した際, フリースタANDINGでは大きな 2 次関数に変形されているが, クランプ状態では反モーメントによりほとんどキャンセルされ, 変形量が極僅かになることが示された.

- (3) 機械曲げ機構で目標楕円形状の3次関数以下の変形を全て担った場合、クランプ状態とフリースタANDINGにおいて変形に必要な電圧が大きく異なることがわかった。ここで機械曲げ機構により、意図的に3次関数以下の形状誤差を与えることで、印加電圧分布の一次関数成分（傾きと切片）を変化させ、電圧分布の絶対値を小さくできることを確認した。
- (4) SPring-8 BL29XU EH3 にてハイブリッド形状可変ミラーを用いた集光実験を行った。実証実験において機械曲げ機構により形状誤差を加えることで、電圧分布の絶対値を制御できることを確認した。また、変形後の形状は回折限界条件を満たしており、ナイフエッジスキャン法により理想集光 141 nm にほぼ近い集光サイズを実測できた。

ここから将来展望を述べる。本研究を通じて XFEL を集光する光学系の設計・構築と、X 線干渉計や形状可変ミラーを導入した精密波面制御技術を確立してきた。中でも第 6 章にて構築した新型 sub-10 nm 集光光学系が供給する X 線場は、高次の X 線非線形光学現象開拓の礎を築いてきた sub-50 nm 集光光学系と比較して、強度、安定性ともに数桁高い。これにより、3 次高調波、光カー効果や非線形なラマン過程など、新たな非線形光学現象の発現だけでなく、応用実験の開拓も期待される。実際に Cu の可飽和吸収を利用することで XFEL のパルス幅を自在に制御し、入射光に対して 35 %短縮させることに成功している[115]。さらに、スペックル干渉計に基づくビーム診断と組み合わせることで、より正確に実験環境を把握し、原子の理論模型や物理現象の理解に繋がると期待される。もちろん本光学系はイメージング手法の発展にも大きく貢献する。コヒーレント回折イメージングにおいて高強度化は、画像の空間分解能の向上に直結するだけでなく、弱散乱体の観察を実現する。これにより、有機触媒に起因した化学反応や、光合成など軽元素が主役となるダイナミクス of 熟視が進むだろう。

次に、第 7 章で開発した多層膜形状可変ミラーは、集光径の更なる微小化を目指すにあたり限界を迎えつつある形状修正技術においてブレイクスルーとなる。本論文において 0.5 nm PV 以下の高精度変形を遂行し、サイズ 5 nm 集光を回折限界条件のもと達成した。このようにグレーチング干渉計のような X 線波面計測手法と組み合わせることで、簡単かつ高精度に補償光学が実施できるため、集光サイズの極小化だけでなく、極限集光光学系の世界的普及が期待される。また、本光学系は集光素子としてはもちろん、結像素子としても有望である。結像型 X 線顕微鏡はリアルタイムで広範囲を観察できるため、様々なスケールで発生するダイナミクスを同時に観察することに優れている。空間分解能が光学素子の性能に制限されてしまうため、コヒーレント回折イメージングの登場により利用が少なくなっていたが、本光学系の導入により急速に普及されることが期待される。近年、結像配置における波面計測手法や位相イメージングの開発が進んでいることも本イメージングシステムの汎用化を加速させるだろう。

また、第 8 章で開発したハイブリッド型形状可変ミラーを導入することで、アダプティブ光学系が対応できる開口数の最大値を引き上げることができる。アメリカの Advanced Photon Source(APS)では、最小 20 nm 集光が達成できる光学系の開発がスタートしている。第三世代放射光施設のアップグレード計画と組み合わせることで、実験時間の劇的な短縮化に繋がり、試料の多角的な解析が実現する。また、XFEL においては計測可能な試料サイズの幅が広がるだけでなく、リアルタイムでビームサイズを変えることができるため、試料に応じて自動的にビームサイズを最適化できるシステムが実現する。XFEL における実験は膨大な数の試料と計測時間を必要とするため、本システムの構築は科学の発展への貢献においてクリティカルである。

以上のように、X 線ミラー集光光学系の開発において、波面制御が律速する段階はクリアしたように思う。しかしながら、X 線ミラーは他の光学素子と比較してアライメント軸が多く、また、求められる精度が高い。そのため、使いこなせる人材が限られており、世界的な利用は比較的少ない。この問題に対して、近年コンピュータ技術の発展により急速に開発が進んでいる AI 技術との相性は非常に良いと考える。ミラーアライメントや形状可変ミラーの応答は直交関数的であるため、機械学習をさせて最適化するにあたり都合が良い。実際に APS では、AI に基づく補償光学システムをアダプティブ集光光学系に取り入れ、共用ビームラインとして利用する計画が進められている。この潮流に乗り、X 線ミラーがもたらす高密度光子場が世界中に広がることで、X 線計測、分析技術があらゆる分野に遍在化し、科学、産業、及び社会の発展につながることを願う。

参考文献

1. W. C. Röntgen, “On a new kind of a ray: A preliminary communication,” *Würzburger Physik-medice* (1895).
2. M. Eckert, “Max von Laue and the discovery of X-ray diffraction in 1912” *Annalen der Physik* **524**, 83–85 (2012).
3. W. H. Bragg and W. L. Bragg, “The Structure of the Diamond” *Nature* **91**, 557 (1913).
4. A. Einstein, “Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt” *Annalen der Physik*, **17**, 132-148 (1905).
5. C. G. Barkla and C. A. Sadler, “The Absorption of X-Rays” *Nature* **80**, 37 (1909).
6. H. G. J. Moseley, “The High-Frequency Spectra of the Elements. Part II.” *Philosophical Magazine* **27**, 703-713 (1914).
7. J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz and D. Sayre, “Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens” *Nature*, **400**, 342-344 (1999).
8. P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. Bucksbaum, R. Coffee, F.J. Decker, Y. Ding, D. Dowell, S. Edstrom, A. Fisher, J. Frisch, S. Gilevich, J. Hastings, G. Hays, P. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, M. Messerschmidt, A. Miahnahri, S. Moeller, H.D. Nuhn, G. Pile, D. Ratner, J. Rzepiela, D. Schultz, T. Smith, P. Stefan, H. Tompkins, J. Turner, J. Welch, W. White, J. Wu, G. Yocky, and J. Galayda, “First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser” *Nature Photonics* **4**, 641 (2010).
9. T. Ishikawa, H. Aoyagi, T. Asaka, Y. Asano, N. Azumi, T. Bizen, H. Ego, K. Fukami, T. Fukui, Y. Furukawa, S. Goto, H. Hanaki, T. Hara, T. Hasegawa, T. Hatsui, A. Higashiya, T. Hirono, N. Hosoda, M. Ishii, T. Inagaki, Y. Inubushi, T. Itoga, Y. Joti, M. Kago, T. Kameshima, H. Kimura, Y. Kiri-hara, A. Kiyomichi, T. Kobayashi, C. Kondo, T. Kudo, H. Maesaka, X.M. Maréchal, T. Masuda, S. Matsubara, T. Matsumoto, T. Matsushita, S. Matsui, M. Nagasono, N. Nariyama, H. Ohashi, T. Ohata, T. Ohshima, S. Ono, Y. Otake, C. Saji, T. Sakurai, T. Sato, K. Sawada, T. Seike, K. Shirasawa, T. Sugimoto, S. Suzuki, S. Takahashi, H. Takebe, K. Takeshita, K. Tamasaku, H. Tanaka, R. Tanaka, T. Tanaka, T. Togashi, K. Togawa, A. Tokuhisa, H. Tomizawa, K. Tono, S. Wu, M. Yabashi, M. Yamaga, A. Yamashita, K. Yanagida, C. Zhang, T. Shintake, H. Kitamura, and N. Kumagai, “A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångström region” *Nature Photonics* **6**, 540 (2012).

10. H.S. Kang, C.K. Min, H. Heo, C. Kim, H. Yang, G. Kim, I. Nam, S.Y. Baek, H.J. Choi, G. Mun, B.R. Park, Y.J. Suh, D.C. Shin, J. Hu, J. Hong, S. Jung, S.H. Kim, K.H. Kim, D. Na, S.S. Park, Y.J. Park, J.H. Han, Y.G. Jung, S.H. Jeong, H.G. Lee, S. Lee, S. Lee, W.W. Lee, B. Oh, H.S. Suh, Y.W. Parc, S.J. Park, M.H. Kim, N.S. Jung, Y.C. Kim, M.S. Lee, B.H. Lee, C.W. Sung, I.S. Mok, J.M. Yang, C.S. Lee, H. Shin, J.H. Kim, Y. Kim, J.H. Lee, S.Y. Park, J. Kim, J. Park, I. Eom, S. Rah, S. Kim, K.H. Nam, J. Park, J. Park, S. Kim, S. Kwon, S.H. Park, K.S. Kim, H. Hyun, S.N. Kim, S. Kim, S.M. Hwang, M.J. Kim, C.Y. Lim, C.J. Yu, B.S. Kim, T.H. Kang, K.W. Kim, S.H. Kim, H.S. Lee, H.S. Lee, K.H. Park, T.Y. Koo, D.E. Kim, and I.S. Ko, “Hard X-ray free-electron laser with femtosecond-scale timing jitter” *Nature Photonics* **11**, 708 (2017).
11. T. Tschentscher, C. Bressler, J. Grünert, A. Madsen, A. Mancuso, M. Meyer, A. Scherz, H. Sinn, and U. Zastra, “Photon Beam Transport and Scientific Instruments at the European XFEL” *Applied Sciences* **7**, 592 (2017).
12. R. Neutzo, R. Wouts, D. Van Der Spoel, E. Weckert, and J. Hajdu, “Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses” *Nature* **406**, 752 (2000).
13. H.N. Chapman, P. Fromme, A. Barty, T.A. White, R.A. Kirian, A. Aquila, M.S. Hunter, J. Schulz, D.P. DePonte, U. Weierstall, R.B. Doak, F.R.N.C. Maia, A. V. Martin, I. Schlichting, L. Lomb, N. Coppola, R.L. Shoeman, S.W. Epp, R. Hartmann, D. Rolles, A. Rudenko, L. Foucar, N. Kimmel, G. Weidenspointner, P. Holl, M. Liang, M. Barthelmeß, C. Caleman, S. Boutet, M.J. Bogan, J. Krzywinski, C. Bostedt, S. Bajt, L. Gumprecht, B. Rudek, B. Erk, C. Schmidt, A. Hömke, C. Reich, D. Pietschner, L. Ströder, G. Hauser, H. Gorke, J. Ullrich, S. Herrmann, G. Schaller, F. Schopper, H. Soltau, K.U. Kühnel, M. Messerschmidt, J.D. Bozek, S.P. Hau-Riege, M. Frank, C.Y. Hampton, R.G. Sierra, D. Starodub, G.J. Williams, J. Hajdu, N. Timneanu, M.M. Seibert, J. Andreasson, A. Rocker, O. Jönsson, M. Svenda, S. Stern, K. Nass, R. Andritschke, C.D. Schröter, F. Krasniqi, M. Bott, K.E. Schmidt, X. Wang, I. Grotjohann, J.M. Holton, T.R.M. Barends, R. Neutze, S. Marchesini, R. Fromme, S. Schorb, D. Rupp, M. Adolph, T. Gorkhover, I. Andersson, H. Hirsemann, G. Potdevin, H. Graafsma, B. Nilsson, and J.C.H. Spence, “Femtosecond X-ray protein nanocrystallography” *Nature* **470**, 73 (2011).
14. M. Suga, F. Akita, K. Hirata, G. Ueno, H. Murakami, Y. Nakajima, T. Shimizu, K. Yamashita, M. Yamamoto, H. Ago, and J.R. Shen, “Native structure of photosystem II at 1.95 Å resolution viewed by femtosecond X-ray pulses” *Nature* **517**, 99 (2015).
15. K.H. Kim, J.G. Kim, S. Nozawa, T. Sato, K.Y. Oang, T.W. Kim, H. Ki, J. Jo, S. Park, C. Song, T. Sato, K. Ogawa, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, J. Kim, R. Ryoo, J. Kim, H. Ihee, and S.I. Adachi, “Direct observation of bond formation in solution with femtosecond X-ray scattering” *Nature* **518**, 385 (2015).
16. K. Katagiri, N. Ozaki, S. Ohmura, B. Albertazzi, Y. Hironaka, Y. Inubushi, K. Ishida, M. Koenig, K. Miyaniishi, H. Nakamura, M. Nishikino, T. Okuchi, T. Sato, Y. Seto, K. Shigemori, K. Sueda,

- Y. Tange, T. Togashi, Y. Umeda, M. Yabashi, T. Yabuuchi, and R. Kodama, “Liquid Structure of Tantalum under Internal Negative Pressure” *Physical Review Letters* **126**, 175503 (2021).
17. T. H. Maiman, “Stimulated optical radiation in ruby” *Nature*, **187** 493 (1960).
 18. P. Eisenberger and S.L. McCall, “X-ray parametric conversion” *Physical Review Letters* **26**, 684 (1971).
 19. O. Halpern, “Scattering processes produced by electrons in negative energy states” *Physical Review* **44**, 855 (1933).
 20. B. De Tollis, “Dispersive approach to photon-photon scattering” *Il Nuovo Cimento Series 10* **32**, 757 (1964).
 21. T. Inada, T. Yamaji, S. Adachi, T. Namba, S. Asai, T. Kobayashi, K. Tamasaku, Y. Tanaka, Y. Inubushi, K. Sawada, M. Yabashi, and T. Ishikawa, “Search for photon-photon elastic scattering in the X-ray region” *Physics Letters B* **732**, 356 (2014).
 22. K. Yamauchi, H. Mimura, K. Inagaki, and Y. Mori, “Figuring with subnanometer-level accuracy by numerically controlled elastic emission machining” *Review of Scientific Instruments* **73**, 4028 (2002).
 23. K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Ueno, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, and Y. Mori, “Microstitching, interferometry for x-ray reflective optics” *Review of Scientific Instruments* **74**, 2894 (2003).
 24. H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, K. Yamamura, Y. Sano, K. Ueno, K. Endo, Y. Mori, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Relative angle determinable stitching interferometry for hard x-ray reflective optics” *Review of Scientific Instruments* **76**, 045102 (2005).
 25. H. Yumoto, H. Mimura, T. Koyama, S. Matsuyama, K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Sato, T. Tanaka, T. Kimura, H. Yokoyama, J. Kim, Y. Sano, Y. Hachisu, M. Yabashi, H. Ohashi, H. Ohmori, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Focusing of X-ray free-electron laser pulses with reflective optics” *Nature Photonics* **7**, 43 (2013).
 26. T. Kimura, Y. Joti, A. Shibuya, C. Song, S. Kim, K. Tono, M. Yabashi, M. Tamakoshi, T. Moriya, T. Oshima, T. Ishikawa, Y. Bessho, and Y. Nishino, “Imaging live cell in micro-liquid enclosure by X-ray laser diffraction” *Nature Communications* **5**, 3052 (2014).
 27. K. Tamasaku, M. Nagasono, H. Iwayama, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Tanaka, K. Tono, T. Togashi, T. Sato, T. Katayama, T. Kameshima, T. Hatsui, M. Yabashi, and T. Ishikawa, “Double core-hole creation by sequential attosecond photoionization” *Physical Review Letters* **111**, 043001 (2013).
 28. H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, T. Koyama, K. Tono, Y. Inubushi, T. Togashi, T. Sato, J. Kim, R. Fukui, Y. Sano, M. Yabashi, H. Ohashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Generation of 10^{20} W cm⁻² hard X-ray laser pulses with two-stage reflective focusing system” *Nature*

- Communications **5**, 3539 (2014).
29. K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Katayama, K. Sawada, H. Yumoto, H. Ohashi, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi, and T. Ishikawa, “X-ray two-photon absorption competing against single and sequential multiphoton processes” *Nature Photonics* **8**, 313 (2014).
 30. H. Yoneda, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Katayama, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, and H. Kitamura, “Saturable absorption of intense hard X-rays in iron” *Nature Communications* **5**, 6 (2014).
 31. H. Yoneda, Y. Inubushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi, H. Yumoto, K. Yamauchi, H. Mimura, H. Kitamura, T. Katayama, T. Ishikawa, and M. Yabashi, “Atomic inner-shell laser at 1.5-ångström wavelength pumped by an X-ray free-electron laser” *Nature* **524**, 446 (2015).
 32. P. Kirkpatrick and A. V. Baez, “Formation of optical images by X-rays” *Journal of the Optical Society of America* **38**, 766 (1948).
 33. H. Mimura, S. Matsuyama, H. Yumoto, H. Hara, K. Yamamura, Y. Sano, M. Shibahara, K. Endo, Y. Mori, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Hard X-ray diffraction-limited nanofocusing with kirkpatrick-baez mirrors” *Japanese Journal of Applied Physics*, **44**, L539 (2005).
 34. 鈴木芳生, 八木直人, 香村芳樹, “X線の屈折を利用した画像計測”, 夏の学校 (2003)
 35. H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Yamamura, Y. Mori, M. Yabashi, Y. Nishino, K. Tamasaku, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Efficient focusing of hard x rays to 25 nm by a total reflection mirror” *Applied Physics Letters* **90**, 2005 (2007).
 36. L.G. Parratt, “Surface studies of solids by total reflection of x-rays” *Physical Review* **95**, 359 (1954).
 37. M. Yabashi, H. Tanaka and T. Ishikawa, “Overview of the SACLA facility” **22**, 477-484 (2015).
 38. B.K. Gan, B.A. Latella, and R.W. Cheary, “Fabrication and characterisation of ultra-thin tungsten-carbon (W/C) and platinum-carbon (Pt/C) multilayers for X-ray mirrors” *Applied Surface Science* **239**, 237 (2005).
 39. M. Born and E. Wolf, “Principles of Optics, 6th ed” Cambridge U. Press, (1997).
 40. K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, and Y. Mori, “Wave-optical evaluation of interference fringes and wavefront phase in a hard-x-ray beam totally reflected by mirror optics” *Applied Optics* **44**, 6927 (2005).
 41. P. Thibault, M. Dierolf, A. Menzel, O. Bunk, C. David and F. Pfeiffer, “High-Resolution Scanning X-ray Diffraction Microscopy” *Science* **321**, 379-382 (2008).
 42. C.M. Kewish, M. Guizar-Sicairos, C. Liu, J. Qian, B. Shi, C. Benson, A.M. Khounsary, J. Vila-Comamala, O. Bunk, J.R. Fienup, A.T. Macrander, and L. Assoufid, “Reconstruction of an astigmatic hard X-ray beam and alignment of K-B mirrors from ptychographic coherent

- diffraction data” *Optics Express* **18**, 23420 (2010).
43. G.R. Brady and J.R. Fienup, “Nonlinear optimization algorithm for retrieving the full complex pupil function” *Optics Express* **14**, 474 (2006).
 44. T. Kimura, H. Mimura, S. Handa, H. Yumoto, H. Yokoyama, S. Imai, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Komura, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Wavefield characterization of nearly diffraction-limited focused hard x-ray beam with size less than 10 nm” *Review of Scientific Instruments* **81**, 123704 (2010).
 45. H. Mimura, S. Handa, T. Kimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, H. Yokoyama, S. Matsuyama, K. Inagaki, K. Yamamura, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Breaking the 10 nm barrier in hard-X-ray focusing” *Nature Physics* **6**, 122 (2010).
 46. K. Yamauchi, H. Mimura, T. Kimura, H. Yumoto, S. Handa, S. Matsuyama, K. Arima, Y. Sano, K. Yamamura, K. Inagaki, H. Nakamori, J. Kim, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, and T. Ishikawa, *Journal of Physics Condensed Matter* **23**, 394206 (2011).
 47. Y. Takeda, W. Yashiro, Y. Suzuki, S. Aoki, T. Hattori, and A. Momose, “Japanese Journal of Applied Physics” *Japanese Journal of Applied Physics* **46**, L89 (2007).
 48. S. Matsuyama, H. Yokoyama, R. Fukui, Y. Kohmura, K. Tamasaku, M. Yabashi, W. Yashiro, A. Momose, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Wavefront measurement for a hard-X-ray nanobeam using single-grating interferometry” *Optics Express* **20**, 24977 (2012).
 49. H.F. Talbot, “LXXVI. Facts relating to optical science. No. IV” *Philosophical Magazine Series 3* **9**, 401 (1836).
 50. G.E. Ice, J.S. Chung, J.Z. Tischler, A. Lunt, and L. Assoufid, “Elliptical x-ray microprobe mirrors by differential deposition” *Review of Scientific Instruments* **71**, 2635 (2000).
 51. S. Handa, H. Mimura, H. Yumoto, T. Kimura, S. Matsuyama, Y. Sano, and K. Yamauchi, “Highly accurate differential deposition for X-ray reflective optics” *Surface and Interface Analysis* **40**, 1019 (2008).
 52. J.P. Guigay, “On fresnel diffraction by one-dimensional periodic objects, with application to structure determination of phase objects” *Optica Acta*. **18**, 677 (1971).
 53. W. Yashiro, Y. Takeda, and A. Momose, “Efficiency of capturing a phase image using cone-beam x-ray Talbot interferometry” *Journal of the Optical Society of America A* **25**, 2025 (2008).
 54. S. Toyooka and M. Tominaga, “Spatial fringe scanning for optical phase measurement” *Optics Communications* **51**, 68 (1984).
 55. M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, “Fourier-Transform Method of Fringe-Pattern Analysis for Computer-Based Topography and Inteferometry.” *Journal of the Optical Society of America* **72**, 156 (1982).
 56. L. Huang, M. Idir, C. Zuo, K. Kaznatcheev, L. Zhou and A. Asundi, “Comparison of two-dimensional integration methods for shape reconstruction from gradient data”, *Optics and Lasers*

- in Engineering, **64**, 1 (2015).
57. Y. Inubushi, K. Tono, T. Togashi, T. Sato, T. Hatsui, T. Kameshima, K. Togawa, T. Hara, T. Tanaka, H. Tanaka, T. Ishikawa, and M. Yabashi, "Determination of the Pulse Duration of an X-Ray Free Electron Laser Using Highly Resolved Single-Shot Spectra" *Physical Review Letters* **109**, 6 (2012).
 58. I. Inoue, T. Hara, Y. Inubushi, K. Tono, T. Inagaki, T. Katayama, Y. Amemiya, H. Tanaka, and M. Yabashi, "X-ray Hanbury Brown-Twiss interferometry for determination of ultrashort electron-bunch duration" *Physical Review Accelerators Beams* **21**, 080704 (2018).
 59. I. Inoue, K. Tamasaku, T. Osaka, Y. Inubushi, and M. Yabashi, "Determination of X-ray pulse duration via intensity correlation measurements of X-ray fluorescence" *Journal of Synchrotron Radiation* **26**, 2050 (2019).
 60. J. Yamada, T. Inoue, N. Nakamura, T. Kameshima, K. Yamauchi, S. Matsuyama, and M. Yabashi, "X-ray single-grating interferometry for wavefront measurement and correction of hard x-ray nanofocusing mirrors" *Sensors* **20**, 7356 (2020).
 61. T. Inoue, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Osaka, I. Inoue, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Systematic-error-free wavefront measurement using an X-ray single-grating interferometer" *Review of Scientific Instruments* **89**, 043106 (2018).
 62. E. Spiller, "Evaporated Multilayer Dispersion Elements for Soft X-Rays" *AIP Conference Proceedings* **75**, 124 (1981).
 63. J.M. Slaughter, D.W. Schulze, C.R. Hills, A. Mirone, R. Stalio, R.N. Watts, C. Tarrio, T.B. Lucatorto, M. Krumrey, P. Mueller, and C.M. Falco "Structure and performance of Si/Mo multilayer mirrors for the extreme ultraviolet" **74**, 2144-2156 (1994).
 64. E. Ziegler, "Multilayers for high heat load synchrotron applications" *Optical Engineering* **34**, 445 (1995).
 65. C. Morawe, P. Pecci, J.C. Peffen, and E. Ziegler, "Design and performance of graded multilayers as focusing elements for X-ray optics" *Review of Scientific Instruments* **70**, 3227 (1999).
 66. 草野英二, はじめての薄膜作製技術, 工業調査会 (2006).
 67. 麻蒔立男, 薄膜作製の基礎, 日刊工業新聞社 (1977).
 68. J. Kim, H. Yokoyama, S. Matsuyama, Y. Sano, and K. Yamauchi, "Improved reflectivity of platinum/carbon multilayers for X-ray mirrors by carbon doping into platinum layer" *Current Applied Physics* **12**, S20 (2012).
 69. Ch. Morawe, Ch. Borel, and J.-Ch. Peffen, "The new ESRF multilayer deposition facility" *Proceedings of SPIE* **6705**, 670504 (2007).
 70. M. H. Modi, G. S. Lodha, S. R. Naik, A. K. Srivastava, and R. V. Nandedkar, "Smoothing of tungsten-carbon interfaces and change in interface asymmetry on heat treatment" *Thin Solid*

Films **503**, 115 (2006).

71. P. Hoghoj, E. Ziegler, J. Susini, A. K. Freund, K. D. Joensen, P. Gorenstein, and J. L. Wood, "Focusing of hard X-rays with a W/Si supermirror" *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **132**, 528 (1997).
72. D. L. Windt, F. E. Christensen, W. W. Craig, C. Hailey, F. A. Harrison, M. Jimenez-Garate, R. Kalyanaraman, and P. H. Mao, "Growth, structure, and performance of depth-graded W/Si multilayers for hard x-ray optics" *Journal of Applied Physics* **88**, 460 (2000).
73. K. Yamashita, P. J. Serlemitsos, J. Tueller, S. D. Barthelmy, L. M. Bartlett, K. Chan, A. Furuzawa, N. Gehrels, K. Haga, H. Kunieda, P. Kurczynski, G. Lodha, N. Nakajo, N. Nakamura, Y. Namba, Y. Ogasaka, T. Okajima, D. Palmer, A. Parsons, Y. Soong, C. M. Stahl, H. Takata, K. Tamura, Y. Tawara, and B. J. Teegarden, "Supermirror hard-x-ray telescope" *Applied Optics* **37**, 8067 (1998).
74. S. Matsuyama, T. Inoue, J. Yamada, J. Kim, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Osaka, I. Inoue, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Nanofocusing of X-ray free-electron laser using wavefront-corrected multilayer focusing mirrors" *Scientific Reports* **8**, 17440 (2018).
75. M. Sikorski, S. Song, A. Schropp, F. Seiboth, Y. Feng, R. Alonso-Mori, M. Chollet, H. T. Lemke, D. Sokaras, T.-C. Weng, W. Zhang, A. Robert and D. Zhu, "Focus characterization at an X-ray free-electron laser by coherent scattering and speckle analysis" *Journal of Synchrotron Radiation* **22**, 599-605 (2015).
76. J. W. Goodman, "Speckle Phenomena in Optics: Theory and Applications, Vol. 1." Roberts and Company (2007).
77. A. Singer, U. Lorenz, A. Marras, A. Klyuev, J. Becker, K. Schlage, P. Skopintsev, O. Gorobtsov, A. Shabalin, H.C. Wille, H. Franz, H. Graafsma, and I.A. Vartanyants, "Intensity interferometry of single X-ray pulses from a synchrotron storage ring" *Physical Review Letters* **113**, 064801 (2014).
78. T. Kameshima, S. Ono, T. Kudo, K. Ozaki, Y. Kirihara, K. Kobayashi, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Horigome, A. Holland, K. Holland, D. Burt, H. Murao, and T. Hatsui, "Development of an X-ray pixel detector with multi-port charge-coupled device for X-ray free-electron laser experiments" *Review of Scientific Instruments* **85**, 033110 (2014).
79. H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Osaka, I. Inoue, T. Koyama, K. Tono, M. Yabashi, and H. Ohashi, "Nanofocusing Optics for an X-Ray Free-Electron Laser Generating an Extreme Intensity of 100 EW/cm² Using Total Reflection Mirrors" *Applied Science* **10**, 2611 (2020).
80. H. N. Chapman, A. Barty, S. Marchesini, A. Noy, S. P. Hau-Riege, C. Cui, M. R. Howells, R. Rosen, H. He, J. C. H. Spence, U. Weierstall, T. Beetz, C. Jacobsen, and D. Shapiro, "High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy" *Journal of the Optical*

- Society of America A, **23**, 1179 (2006).
81. J.M. Cowley and A.F. Moodie, "The scattering of electrons by atoms and crystals. I. A new theoretical approach" *Acta Crystallographica* **10**, 609 (1957).
 82. J. W. Goodman. "Introduction to Fourier Optics, McGraw-Hill, 2nd edition" (1996).
 83. T. Inoue, S. Matsuyama, J. Yamada, N. Nakamura, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, K. Tono, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Generation of an X-ray nanobeam of a free-electron laser using reflective optics with speckle interferometry" *Journal of Synchrotron Radiation* **27**, 883 (2020).
 84. H. Wolter, "Spiegelsysteme streifenden Einfalls als abbildende Optiken für Röntgenstrahlen" *Annalen der Physik* **10**, 94-114 (1952).
 85. R. Kodama, N. Ikeda and Y. Kato, "Development of an advanced Kirkpatrick-Baez microscope," *Optics Letter* **21**, 1321-1323 (1996).
 86. R. Sauneuf, J. M. Dalmaso, T. Jalinaud, J.-P. Le Breton, D. Schirmann, J. P. Marioge, F. Bridou, G. Tissot, and J. Y. Clotaire, "Large-field high-resolution X-ray microscope for studying laser plasmas," *Review of Scientific Instruments* **68**, 3412 (1997).
 87. S. Matsuyama, S. Yasuda, J. Yamada, H. Okada, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "50-nm-resolution full-field X-ray microscope without chromatic aberration using total-reflection imaging mirrors" *Scientific Reports* **7**, 2 (2017).
 88. J. Yamada, S. Matsuyama, R. Hirose, Y. Takeda, Y. Kohmura, M. Yabashi, K. Omote, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Compact full-field hard x-ray microscope based on advanced Kirkpatrick–Baez mirrors" *Optica* **7**, 367 (2020).
 89. J. Yamada, S. Matsuyama, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Compact reflective imaging optics in hard X-ray region based on concave and convex mirrors" *Optics Express* **27**, 3429 (2019)
 90. T. Kameshima, A. Takeuchi, K. Uesugi, T. Kudo, Y. Kohmura, K. Tamasaku, K. Muramatsu, T. Yanagitani, M. Yabashi, and T. Hatsui, "Development of an X-ray imaging detector to resolve 200 nm line-and-space patterns by using transparent ceramics layers bonded by solid-state diffusion" *Optics Letters* **44**, 1403 (2019).
 91. E. Muslimov, E. Hugot, W. Jahn, S. Vives, M. Ferrari, B. Chambion, D. Henry and C. Gaschet, "Combining freeform optics and curved detectors for wide field imaging: a polynomial approach over squared aperture", *Optics Letter* **25**, 13 (2017).
 92. T. Kimura, S. Handa, H. Mimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, S. Matsuyama, K. Inagaki, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, "Wavefront control system for phase compensation in hard X-ray optics" *Japanese Journal of Applied Physics* **48**, 1 (2009).
 93. K. Sawhney, S. Alcock, J. Sutter, S. Berujon, H. Wang, and R. Signorato, "Characterisation of a novel super-polished bimorph mirror" *Journal of Physics: Conference Series* **425**, 052026 (2013).

94. D.J. Merthe, V. V. Yashchuk, K.A. Goldberg, M. Kunz, N. Tamura, W.R. McKinney, N.A. Artemiev, R.S. Celestre, G.Y. Morrison, E.H. Anderson, B. V. Smith, E.E. Domning, S.B. Rekawa, and H.A. Padmore, “Methodology for optimal in situ alignment and setting of bendable optics for nearly diffraction-limited focusing of soft x-rays” *Optical Engineering* **52**, 033603 (2013).
95. S. Matsuyama, H. Nakamori, T. Goto, T. Kimura, K.P. Khakurel, Y. Kohmura, Y. Sano, M. Yabashi, T. Ishikawa, Y. Nishino, and K. Yamauchi, “Nearly diffraction-limited X-ray focusing with variable-numerical-aperture focusing optical system based on four deformable mirrors” *Scientific Reports* **6**, 24801 (2016).
96. 内野研二, “圧電/電歪アクチュエータ.” 森北出版 (1986).
97. K. Uchino and J. R. Giniewicz, “マイクロメカトロニクス 圧電アクチュエータを中心に.” 森北出版, (2007).
98. S. E. Park and T. R. Shrout, “Characteristics of relaxor-based piezoelectric single crystals for ultrasonic transducers” *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, **44**, 1140–1147 (1997).
99. 松下三芳, 舘義仁, 岩崎洋介, “大口径高変換効率圧電単結晶 PMN-PT, JFE 技報.” **8**, 43–48 (2005) .
100. 株式会社富士セラミックス. “富士セラミックス テクニカル・ハンドブック.”
101. 吉田総仁, “弾塑性力学の基礎” 共立出版, (1997).
102. R. Signorato, O. Hignette, and J. Goulon, “Multi-segmented piezoelectric mirrors as active/adaptive optics components” *Journal of Synchrotron Radiation* **5**, 797 (1998).
103. H. Nakamori, S. Matsuyama, S. Imai, T. Kimura, Y. Sano, Y. Kohmura, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Experimental and simulation study of undesirable short-period deformation in piezoelectric deformable x-ray mirrors” *Review of Scientific Instruments* **83**, 053701 (2012).
104. S. G. Alcock, I. Nistea, J. P. Sutter, K. Sawhney, J. J. Fermé, C.Thellier, and L. Peverini, “Characterization of a next-generation piezo bimorph X-ray mirror for synchrotron beamlines” *Journal of Synchrotron Radiation* **22**, 10–15 (2015).
105. Y. Ichii, H. Okada, H. Nakamori, A. Ueda, H. Yamaguchi, S. Matsuyama, and K. Yamauchi, “Development of a glue-free bimorph mirror for use in vacuum chambers” *Review of Scientific Instruments* **90**, 021702 (2019).
106. 岡田修, ”薄膜技術” <https://www.rs.tus.ac.jp/a26259/index.html>
107. 金月俊樹, 山本雅彦, “金属多層膜を利用した X 線分光素子” *まてりあ* **38**, 865 (1999).
108. M. Yabashi, K. Tono, H. Mimura, S. Matsuyama, K. Yamauchi, T. Tanaka, H. Tanaka, K. Tamasaku, H. Ohashi, S. Goto, and T. Ishikawa, “Optics for coherent X-ray applications,” *Journal of Synchrotron Radiation* **21**, 976–985 (2014).
109. D. Cocco, G. Bortoletto, R. Sergo, G. Sostero, and I. Cudin, “A hybrid active optical system for

- wave front preservation and variable focal distance” Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **616**, 128 (2010).
110. T. Goto, S. Matsuyama, H. Hayashi, H. Yamaguchi, J. Sonoyama, K. Akiyama, H. Nakamori, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Nearly diffraction-limited hard X-ray line focusing with hybrid adaptive X-ray mirror based on mechanical and piezo-driven deformation” Optics Express **26**, 17477 (2018).
111. H. Nakamori and M. Kanaoka "Performance evaluation of JTEC coordinate measuring machine", Proceedings of SPIE **114920A** (2020)
112. O. Hignette, A.K. Freund, and E. Chinchio, “Incoherent x-ray mirror surface metrology” Materials, Manufacturing, and Measurement for Synchrotron Radiation Mirrors **3152**, 188 (1997).
113. J. Sutter, S. Alcock, and K. Sawhney, “In situ beamline analysis and correction of active optics” Journal of Synchrotron Radiation **19**, 960 (2012).
114. T. Goto, S. Matsuyama, H. Nakamori, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, “Simulation and Experimental Study of Wavefront Measurement Accuracy of the Pencil-Beam Method” Synchrotron Radiation News **29**, 32 (2016).
115. I. Inoue, Y. Inubushi, T. Osaka, J. Yamada, K. Tamasaku, H. Yoneda, and M. Yabashi, “Shortening X-Ray Pulse Duration via Saturable Absorption” Physical Review Letters **127**, 163903 (2021).

研究業績

主たる研究論文

- (1) **T. Inoue**, Y. Nishioka, S. Matsuyama, J. Sonoyama, K. Akiyama, H. Nakamori, Y. Ichii, Y. Sano, X. Shi, D. Shu, M. D. Wyman, R. Harder, Y. Kohmura, M. Yabashi, L. Assoufid, T. Ishikawa, and K. Yamauchi.
 “Optimal deformation procedure for hybrid adaptive X-ray mirror based on mechanical and piezo-driven bending system.”
 Review of Scientific Instruments, **92**, 123706 (2021).
- (2) **T. Inoue**, S. Matsuyama, J. Yamada, N. Nakamura, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, K. Tono, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
 "Generation of an X-ray nanobeam of free electron laser using reflective optics with speckle interferometry"
 Journal of Synchrotron Radiation, **27**, 883-889 (2020).
- (3) S. Matsuyama, **T. Inoue**, J. Yamada, J. Kim, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Osaka, I. Inoue, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
 "Nanofocusing of X-ray free-electron laser using wavefront-corrected multilayer focusing mirrors"
 Scientific Reports **8**, 17440 (2018).
- (4) **T. Inoue**, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Osaka, I. Inoue, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
 "Systematic-error-free wavefront measurement using an X-ray single-grating interferometer"
 Review of Scientific Instruments **89**, 043106 (2018).

その他研究論文

- (1) Y. Tanaka, H. Usuzawa, M. Yoshida, K. Kumagai, K. Kobayashi, S. Matsuyama, **T. Inoue**, A. Matsunaga, M. Shimura, J. R. Encinar, J. M. Costa-Fernández, Y. Fukumoto, N. Suzuki, and Y. Ogra
“Formation mechanism and toxicological significance of biogenic mercury selenide nanoparticles in human hepatoma HepG2 cells”
Chemical Research in Toxicology, **34**, 2471-2484 (2021).
- (2) J. Yamada, I. Ichiro, T. Osaka, **T. Inoue**, S. Matsuyama, K. Yamauchi, and M. Yabashi
“Hard X-ray nanoprobe scanner”
IUCrJ, **8**, 713-718 (2021).
- (3) S. Matsuyama, H. Yamaguchi, **T. Inoue**, Y. Nishioka, J. Yamada, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
“X-ray adaptive zoom condenser utilizing an intermediate virtual focus”
Optics Express **29**, 15604 (2021).
- (4) J. Yamada, **T. Inoue**, N. Nakamura, T. Kameshima, K. Yamauchi, S. Matsuyama, and M. Yabashi
“X-Ray Single-Grating Interferometry for Wavefront Measurement and Correction of Hard X-Ray Nanofocusing Mirrors”
Sensors **20**, 7356 (2020).
- (5) N. Nakamura, S. Matsuyama, **T. Inoue**, I. Inoue, J. Yamada, T. Osaka, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
“Focus characterization of an X-ray free-electron laser by intensity correlation measurement of X-ray fluorescence”
Journal of Synchrotron Radiation, **27**, 1366-1371 (2020).

プレスリリース

- (1) X線ナノプローブスキャナーの発明－試料は動かさずに、X線を精密にスキャンするナノ顕微法－(2021年8月11日、理化学研究所、名古屋大学、大阪大学)。
- (2) 最先端の「光」。集光径 6nm の X 線レーザービームの精密計測に成功！－(2020 年 6 月 30 日、大阪大学, SPring-8, 理化学研究所, 和文 3 報)。

(EurekAlert , AlphaGalileo , Scienmag , Phys.org , Bright Surf , Bioengineer.org , Nanowerk , Tunisiesoir , Zephyrnet , Justdial , 15 minute news, 英文 11 報).

- (3) X 線レーザーを 10nm 以下まで集光できる鏡を開発—1nm レベルで精密な多層膜鏡作製技術を確立—(2018 年 11 月 28 日, 大阪大学, SPring-8, 理化学研究所).

和文誌記事

- (1) 井上陽登

"形状可変ミラーを用いた X 線 sub-5 nm 集光システムの開発"

日本放射光学会誌放射光, (2022).

- (2) 井上陽登

"X 線自由電子レーザー用 sub10nm 集光システムの開発 — 高反射率多層膜ミラーの作製 —"

日本放射光学会誌放射光, **33**, 138-139 (2020).

国際会議

口頭発表

- (1) **T. Inoue**, Y. Nishioka, S. Matsuyama, J. Sonoyama, K. Akiyama, H. Nakamori, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, L. Assoufid, K. Yamauchi

"Optimization of mirror deformation strategy using mechanical and piezoelectric bending system"

SPIE Optics+Photonics2021, 118370B (1-5 August, 2021, ONLINE).

- (2) **T. Inoue**, S. Matsuyama, Y. Tanaka, K. Futamura, Y. Ichii, J. Yamada, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi

"Development of sub-5 nm focusing system based on precise deformable mirrors"

6th International Conference on X-ray Optics and Applications 2021 (XOPT2021) (19 April, 2021, ONLINE).

- (3) **T. Inoue**, J. Yamada, S. Matsuyama, N. Nakamura, T. Osaka, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi

"Development of ultraprecise X-ray focusing mirrors based on Wolter geometry"

18th International Conference on Precision Engineering 2020 (ICPE2020), D-3-1 (23-27

November, 2020, ONLINE).

- (4) **T. Inoue**, J. Yamada, S. Matsuyama, N. Nakamura, T. Osaka, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Development of x-ray mirrors for XFEL sub-10 nm focusing system based on Wolter type III geometry"
SPIE Optics+Photonics2020, (22 August, 2020, ONLINE).

- (5) **T. Inoue**, J. Yamada, S. Matsuyama, N. Nakamura, T. Osaka, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Ultraprecise fabrication of X-ray mirrors for XFEL sub-10 nm focusing system based on Wolter type III geometry"
5th International Conference on X-ray Optics and Applications 2020 (XOPT2020) in OPIC2020, X-ray Optics(II), XOPT4-03 (22 April, 2020, ONLINE).

- (6) **T. Inoue**, S. Matsuyama, N. Nakamura, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, T. Osaka, I. Inoue, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Precision focusing mirror alignment at SACLA using new nanobeam diagnosis"
SPIE Optics+Photonics2019, 11108-1 (11-15 August, 2019, San Diego Convention Center, San Diego, California, US).

- (7) **T. Inoue**, S. Matsuyama, N. Nakamura, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, T. Osaka, I. Inoue, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Precision KB mirror alignment using new nanobeam diagnosis"
4th International Conference on X-ray Optics and Applications 2019 (XOPT2019) in OPIC2019, XOPT-14-01 (23-25 April, 2019, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan).

- (8) **T. Inoue(invited)**
"Sub-10 nm focusing system using multilayer KB mirror at SACLA"
SPIE Optics+Optoelectronics 2019, 11038-18 (1-4 April, 2019, Clarion Congress Hotel, Prague, Czech Republic).

- (9) **T. Inoue(invited)**, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, K. Tono, T. Osaka, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Fabrication of ultraprecise multilayer focusing mirrors using an X-ray grating interferometer and differential deposition technique"

The 6th International Workshop on X-ray Optics and Metrology Satellite Meeting of SRI 2018 (IWXM 2018)

Session II "Fabrication and Finishing Technologies for X-ray Mirrors" (6-9 June, 2018, National Synchrotron Radiation Research Center, Hsinchu, Taiwan).

ポスター発表

- (1) **T. Inoue**, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, K. Tono, T. Osaka, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi

"Development of a multilayer Kirkpatrick-Baez mirror optics for X-ray free electron laser"

The 13th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI 2018), PD1-16 (10-15 June, 2018, Taipei International Convention Center, Taipei, Taiwan).

- (2) **T. Inoue**, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, K. Tono, T. Osaka, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi

"Development of nanofocusing system for X-ray free electron Laser (Study of nanobeam characterization)"

International Conference on X-ray Optics and Applications 2018 (XOPT2018) in OPIC2018, XOPTp9-24 (24-26 April, 2018, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan).

- (3) **T. Inoue**, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, T. Katayama, S. Goto, T. Ishikawa, M. Yabashi, and K. Yamauchi

"Development of Precise Wavefront Measurement Method for X-Ray Free Electron Laser Focusing System"

The 24th Congress of the International Commission for Optics, Optical Metrology, P3-20 (21-25 August, 2017, Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan).

- (4) **T. Inoue**, S. Matsuyama, S. Kawai, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, T. Katayama, S. Goto, T. Ishikawa, M. Yabashi, and K. Yamauchi

"Development of calibration method for X-ray single-grating interferometry"

International conference on X-ray optics and applications 2017 (XOPT'17) in OPIC2017, XOPTp8-7 (18-21 April, 2017, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan).

その他国際会議

- (1) Y. Tanaka, S. Matsuyama, **T. Inoue**, N. Nakamura, J. Yamada, Y. Kohmura, M. Yabashi, K. Omote, T. Ishikawa, K. Yamauchi

"Image-based wavefront measurement for full-field X-ray microscopy"

SPIE Optics+Photonics2021, Oral 118390A (1-5 August, 2021, ONLINE).

- (2) Y. Ichii, H. Okada, S. Aono, M. Kanaoka, **T. Inoue**, S. Matsuyama, and K. Yamauchi.
“Ultrafine figuring for glue-free deformable mirror”
SPIE Optics+Photonics2021, Oral 1183708 (1-5 August, 2021, ONLINE).
- (3) Y. Tanaka, S. Matsuyama, **T. Inoue**, N. Nakamura, J. Yamada, Y. Kohmura, M. Yabashi, K. Omote, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Development of wavefront sensing in full-field X-ray microscopy"
6th International Conference on X-ray Optics and Applications 2021 (XOPT2021) Oral (19 April, 2021, ONLINE).
- (4) Y. Nishioka, **T. Inoue**, S. Matsuyama, J. Sonoyama, K. Akiyama, H. Nakamori, Y. Sano, Y. Kohmura, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi
"Optimization of mirror deformation method for hybrid bender combining mechanical and piezoelectric bending"
6th International Conference on X-ray Optics and Applications 2021 (XOPT2021) Oral (19 April, 2021, ONLINE).
- (5) J. Yamada, S. Matsuyama, N. Nakamura, **T. Inoue**, T. Osaka, I. Inoue, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, K. Yamauchi, and M. Yabashi
"Single-grating interferometer for hard X-ray sub-10 nm focusing mirror system"
6th International Conference on X-ray Optics and Applications 2021 (XOPT2021) Oral (19 April, 2021, ONLINE).
- (6) T. Sakao, S. Matsuyama, J. Yamada, **T. Inoue**, K. Hata, H. Yamaguchi, T. Hagiwara, N. Nakamura, K. Yamauchi, Y. Kohmura, Y. Suematsu, and N. Narukage.
“Development of precision Wolter mirrors towards PhoENiX mission for the Sun.”
SPIE Optics+Photonics2020, 114440O oral (13 December, 2020, ONLINE).
- (7) N. Nakamura, J. Yamada, S. Matsuyama, T. Inoue, T. Osaka, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Precise wavefront measurement using grating interferometer for sub-10 nm XFEL focusing system"
18th International Conference on Precision Engineering 2020 (ICPE2020), Oral D-3-2 (23-27 November, 2020, ONLINE).

- (8) N. Nakamura, J. Yamada, S. Matsuyama, **T. Inoue**, T. Osaka, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Precise wavefront measurement using grating interferometer for sub-10 nm focusing system"
5th International Conference on X-ray Optics and Applications 2020 (XOPT2020) in OPIC2020, Oral X-ray Optics(I), XOPT1-03 (22 April, 2020, ONLINE).
- (9) J. Yamada(invited), S. Matsuyama, **T. Inoue**, N. Nakamura, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, K. Tono, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi, and M. Yabashi
"Development of XFEL sub-10 nm focusing mirrors: wavefront-corrected multilayer KB system and upgrade to advanced KB system"
X RIAO-XIII OPTILAS-MOPM 2019, X-ray optics Owe_3.4 (23-27 September, 2019, CANCUN ICC, Cancun, Mexico).
- (10) N. Nakamura, S. Matsuyama, **T. Inoue**, I. Inoue, T. Osaka, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Beam size measurement for XFEL nanobeam using intensity interferometer of X-ray fluorescence"
SPIE Optics+Photonics2019, oral11109-19 (11-15 August, 2019, San Diego Convention Center, San Diego, California, US).
- (11) N. Nakamura, S. Matsuyama, **T. Inoue**, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Koyama, T. Osaka, I. Inoue, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Nanobeam diagnosis for XFEL sub-10nm focusing system"
4th International Conference on X-ray Optics and Applications 2019 (XOPT2019) in OPIC2019, XOPT-P-41 (23-25 April, 2019, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan).
- (12) J. Yamada, S. Matsuyama, **T. Inoue**, N. Nakamura, T. Osaka, I. Inoue, Y. Inubushi, K. Tono, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi, and M. Yabashi
"Development of XFEL sub-10 nm focusing system based on Wolter III-advanced KB optics"
4th International Conference on X-ray Optics and Applications 2019 (XOPT2019) in OPIC2019, XOPT-P-09 (23-25 April, 2019, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan).
- (13) T. Sakao, S. Matsuyama, T. Goto, J. Yamada, **T. Inoue**, K. Hata, H. Yamaguchi, K. Yamauchi, Y. Kohmura, A. Kime, Y. Suematsu, N. Narukage, and S. Ishikawa
"Precision Wolter mirrors for future x-ray observations of the Sun (Conference Presentation)".

SPIE Optics+Photonics2018, 107600B (18 September, 2018, San Diego, California, United States).

- (14) S. Kawai, S. Matsuyama, **T. Inoue**, H. Yumoto, Y. Inubushi, T. Osaka, T. Koyama, K. Tono, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi
"Development of a multilayer KB mirror sysem for sub-10nm XFEL focusing"
International conference on X-ray optics and applications 2017 (XOPT'17) in OPIC2017, XOPTp8-8 (18-21 April, 2017, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan).

国内会議

口頭発表

- (1) **井上陽登**, 松山智至, 田中優人, 伊藤篤輝, 一井愛雄, 山田純平, 佐野泰久, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“形状可変ミラーを用いた X 線 sub-5 nm 集光システムの開発”
第 35 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 9B102S (2022 1/7-9, オンライン).
- (2) **井上陽登**, 松山智至, 田中優人, 二村浩平, 一井愛雄, 山田純平, 佐野泰久, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“圧電素子駆動型形状可変ミラーを用いた X 線 sub-5 nm 集光システムの開発(第 2 報)差分成膜を組み合わせたハイブリッド波面修正”
2021 年度精密工学会秋季大会学術講演会, G107 (2021 9/23, オンライン).
- (3) **井上陽登**, 松山智至, 田中優人, 二村浩平, 一井愛雄, 山田純平, 佐野泰久, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“圧電素子駆動型形状可変ミラーを用いた X 線 sub-5nm 集光システムの開発”
2021 年度精密工学会春季大会学術講演会, D0405 (2021 3/16-3/22, オンライン).
- (4) **井上陽登**, 山田純平, 松山智至, 中村南美, 田中優人, 大坂泰斗, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“WolterIII型 Advanced KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザー sub-10 nm 集光システムの開発(第 3 報)ー差分成膜による X 線ミラーの高精度形状修正および SPring-8 における性能評価ー”
2020 年度精密工学会秋季大会学術講演会, D0402, (2020 9/1-7, オンライン).

- (5) **井上陽登**, 松山智至, 山田純平, 中村南美, 大坂泰斗, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“WolterIII型 AdvancedKB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーsub-10nm 集光システムの開発(第2報)-高反射率多層膜の作製と差分成膜による形状修正-”2020 年度 2020 年度 精密工学会春季大会学術講演会, G33 (2020 3/17-3/19, 東京, 東京農工大学 小金井キャンパス).
- (6) **井上陽登**, 松山智至, 山田純平, 中村南美, 大坂泰斗, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“WolterIII型 Advanced KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーsub-10 nm 集光システムの開発”
2019 年度精密工学会秋季大会学術講演会, J15, (2019 9/4-6, 静岡, 静岡大学浜松キャンパス).
- (7) **井上陽登**, 松山智至, 中村南美, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 登野健介, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発(第三報)ースペックルを利用した, ミラーアライメント手法の開発ー”
2019 年度精密工学会春季大会学術講演会, K37 (2019 3/13-3/15, 東京, 東京電機大学東京千住キャンパス).
- (8) **井上陽登**, 松山智至, 中村南美, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 登野健介, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"X 線自由電子レーザー用 sub10nm 集光システムの開発-新しいビーム径診断法を用いた精密ミラーアライメント-"
第 32 回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 7E003, (2019 1/9-11, 福岡, 福岡国際会議場).
- (9) **井上陽登**, 松山智至, 中村南美, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 登野健介, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発(第二報)"
2018 年度精密工学会秋季大会学術講演会, 3A(T)84 (2018 9/5-7, 北海道, 函館アリーナ).
- (10) **井上陽登**, 松山智至, 川合蕉吾, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発 スペック

ルを利用したビームキャラクタリゼーション法の検討"

2018 年度精密工学会春季大会学術講演会, I67 (2018 3/15-3/17, 東京, 中央大学後楽園キャンパス).

- (11) **井上陽登**, 松山智至, 川合蕉吾, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発-波面計測法とビームキャラクタリゼーション法の検討-"
2017 年度精密工学会秋季大会学術講演会, M13 (2017 9/20-22, 大阪, 大阪大学豊中キャンパス).

ポスター発表

- (1) **井上陽登**, 松山智至, 一井愛雄, 山田純平, 佐野泰久, 山内和人
"X 線ミラーを用いた sub-5nm 集光システムの開発"
第 34 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 10P007(2021 1/8-10, オンライン).
- (2) **井上陽登**, 松山智至, 山田純平, 中村南美, 大坂泰斗, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"X 線自由電子レーザー用 sub10nm 集光システムの開発 — 高反射率多層膜ミラーの作製 —"
第 33 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 11P016(2020 1/10-12, 愛知, ウィンクあいち).
- (3) **井上陽登**, 松山智至, 川合蕉吾, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"X 線自由電子レーザー用 sub10nm 集光システムの開発波面計測法とビームキャラクタリゼーション法の検討"
第 31 回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 10P001, (2018 1/8-10, 茨城, つくば国際会議場).
- (4) **井上陽登**, 松山智至, 川合蕉吾, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"多層膜 KB ミラーX 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発 ビームキャラクタリゼーション法の検討"
第 14 回 X 線結像光学シンポジウム, P-17 (2017 11/29-30, 茨城, 筑波大学つくばキャン

パス).

- (5) 井上陽登, 松山智至, 川合蕉吾, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発-波面計測法とビームキャラクタリゼーション法の検討-"
2017 年度精密工学会秋季大会学術講演会, P-63 (2017 9/20-22, 大阪, 大阪大学豊中キャンパス).
- (6) 井上陽登, 松山智至, 川合蕉吾, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"XFEL 用集光光学系のための精密波面計測法の開発"
精密工学会関西支部 2017 年度関西地方定期学術講演会, 51-J (2017 6/29, 大阪, 摂南大学寝屋川キャンパス).

その他国内会議

- (1) 山田純平, 松山智至, 井上陽登, 伊藤篤輝, 田中優人, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 犬伏雄一, 小山貴久, 湯本博勝, 大橋治彦, 山内和人, 矢橋牧名
"Advanced KB ミラーに基づく硬 X 線自由電子レーザー sub-10 nm 集光システム"
第 35 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 9B101 (2021 1/7-9, オンライン).
- (2) 田中優人, 松山智至, 井上陽登, 山田純平, 木村隆志, 志村まり, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"結像型 X 線顕微鏡を用いた波動伝搬ベースの位相イメージング"
第 35 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 8B204S (2021 1/7-9, オンライン).
- (3) 田中優人, 松山智至, 井上陽登, 山田純平, 木村隆志, 志村まり, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"結像型 X 線顕微鏡を用いた位相イメージング手法の開発"
日本光学会年次学術講演会 Optics and Photonics Japan 2021, 29aD4 (2021 10/26 - 10/29, 東京, 国立オリンピック記念青少年総合センター, およびオンライン).
- (4) 田中優人, 松山智至, 井上陽登, 山田純平, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"結像型 X 線顕微鏡における位相イメージング手法の開発"

2021 年度精密工学会秋季大会学術講演会, オーラル G108 (2021 9/23, オンライン).

- (5) 二村浩平, 井上陽登, 松山智至, 田中優人, 一井愛雄, 山田純平, 佐野泰久, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"形状可変ミラーと多層膜の高次光反射を利用した X 線 sub-5 nm 集光光学系の開発"
2021 年度関西地方定期学術講演会, ポスター 41-J (2021 6/30, 大阪, 千里ライフサイエンスセンター).
- (6) 田中優人, 松山智至, 井上陽登, 山田純平, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"結像型 X 線顕微鏡におけるマルチハイト位相回復法の開発"
2021 年度関西地方定期学術講演会, ポスター 37-J (2021 6/30, 大阪, 千里ライフサイエンスセンター).
- (7) 田中優人, 松山智至, 井上陽登, 中村南美, 山田純平, 香村芳樹, 矢橋牧名, 表和彦, 石川哲也, 山内和人
"結像型 X 線顕微鏡における波面計測手法の開発"
2021 年度精密工学会春季大会学術講演会, オーラル D0407 (2021 3/16-3/22, オンライン).
- (8) 中村南美, 松山智至, 山田純平, 井上陽登, 井上伊知郎, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
"コヒーレント X 線散乱を用いた XFEL ナノビーム強度プロファイルの再構成"
第 34 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, ポスター 10P008(2021 1/8-10, オンライン).
- (9) 山田純平, 松山智至, 井上陽登, 中村南美, 田中優人, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 犬伏雄一, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 山内和人, 矢橋牧名
"Wolter III 型 advanced KB ミラーによる XFEL sub-10 nm 集光光学系の開発 "
第 34 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 8C003(2021 1/8-10, オンライン).
- (10) 田中優人, 松山智至, 井上陽登, 中村南美, 山田純平, 香村芳樹, 矢橋牧名, 表和彦, 石川哲也, 山内和人
"結像型 X 線顕微鏡における in-situ 波面計測手法の開発"
第 34 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 3D004(2021 1/8-10, オンライン).

- (11) 中村南美, 松山智至, 山田純平, 井上陽登, 大坂泰斗, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発-格子干渉計を用いた X 線波面計測法の検証-”
2020 年度精密工学会春季大会学術講演会, オーラル G32 (2020 3/17-3/19, 東京, 東京農工大学 小金井キャンパス).
- (12) 中村南美, 松山智至, 井上陽登, 大坂泰斗, 山田純平, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人, 井上伊知郎
“蛍光 X 線の強度相関を利用した XFEL ナノビーム径計測手法の実証”
第 33 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 2D001(2020 1/10-12, 愛知, ウィンクあいち).
- (13) 松山智至, 山田純平, 井上陽登, 表和彦, 廣瀬雷太, 武田佳彦, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“多層膜結像ミラーを用いた高分解能結像型 X 線顕微鏡の開発”
第 33 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 4B004(2020 1/10-12, 愛知, ウィンクあいち).
- (14) 中村南美, 松山智至, 井上陽登, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 山田純平, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発 (第 2 報)-蛍光 X 線の強度干渉現象を利用したビーム径計測手法の実証-”
2019 年度精密工学会秋季大会学術講演会, ポスター P 55 (2019 9/4-6, 静岡, 静岡大学浜松キャンパス).
- (15) 中村南美, 松山智至, 井上陽登, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 山田純平, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人
“X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発 (第 2 報)-蛍光 X 線の強度干渉現象を利用したビーム径計測手法の実証-”
2019 年度精密工学会秋季大会学術講演会, オーラル J16 (2019 9/4-6, 静岡, 静岡大学浜松キャンパス).
- (16) 松山智至, 山田純平, 井上陽登, 表和彦, 廣瀬雷太, 武田佳彦, 香村芳樹, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

“多層膜結像ミラーを用いた高分解能 X 線顕微鏡の開発(第二報)”

2019 年度精密工学会秋季大会学術講演会, オーラル J02, (2019 9/4-6, 静岡, 静岡大学浜松キャンパス).

- (17) 中村南美, 松山智至, 井上陽登, 井上伊知郎, 大坂泰斗, 山田純平, 湯本博勝, 小山貴久, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

“X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発 -蛍光 X 線の強度干渉現象を利用したビーム径決定手法の検討-”

2019 年度関西地方定期学術講演会, ポスター 41-J (2019 6/28, 大阪, 大阪大学吹田キャンパス).

- (18) 中村南美, 松山智至, 井上陽登, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 登野健介, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

“多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発 -蛍光 X 線の強度干渉現象を利用したビーム径決定手法の検討-”

2019 年度精密工学会春季大会学術講演会, オーラル K38 (2019 3/13-3/15, 東京, 東京電機大学東京千住キャンパス).

- (19) 中村南美, 松山智至, 井上陽登, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 井上伊知郎, 登野健介, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

"X 線自由電子レーザーナノ集光システムの開発"

2018 年度関西地方定期学術講演会, ポスター 44-J (2018 6/29, 大阪, 大阪電気通信大学).

- (20) 川合蕉吾, 松山智至, 井上陽登, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 大坂泰斗, 大橋治彦, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

"大開口数多層膜集光ミラーを用いた sub-10nm 集光システムの開発"

第 31 回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オーラル 5C002, (2018 1/8-10, 茨城, つくば国際会議場).

- (21) 川合蕉吾, 松山智至, 井上陽登, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

"多層膜 KB ミラーを用いた sub-10nm 集光システムの開発"

第 14 回 X 線結像光学シンポジウム, ポスター P-13 (2017 11/29-30, 茨城, 筑波大学つくばキャンパス).

- (22) 川合蕉吾, 松山智至, 井上陽登, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦,

大坂泰斗, 矢橋牧名, 石川哲也, 山内和人

"多層膜 KB ミラーを用いた X 線自由電子レーザーナノ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, ポスター P03 (2017 3/13-15, 神奈川, 慶応義塾大学矢上キャンパス).

- (23) 川合蕉吾, 松山智至, **井上陽登**, 湯本博勝, 犬伏雄一, 小山貴久, 登野健介, 大橋治彦, 後藤俊治, 石川哲也, 矢橋牧名, 山内和人

"X 線自由電子レーザーナノ集光用の大開口数多層膜集光ミラーの開発"

第 30 回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, ポスター 8P012S (2017 1/7-9, 兵庫, 神戸芸術センター).

受賞歴

- (1) JSR2022 学生発表賞, 第 35 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2022 年 1 月.
- (2) アドバンスト・ベストプレゼンテーション賞, 2020 年度精密工学会春季大会学術講演会, 2020 年 12 月.
- (3) JSR2020 学生発表賞, 第 33 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2020 年 1 月.
- (4) アドバンスト・ベストプレゼンテーション賞, 2019 年度精密工学会春季大会学術講演会, 2019 年 3 月.
- (5) ベストプレゼンテーション賞, 2018 年度精密工学会春季大会学術講演会, 2018 年 3 月.

その他

- (1) 投稿論文 "Generation of an X-ray nanobeam of free electron laser using reflective optics with speckle interferometry" が Journal of Synchrotron Radiation の表紙に選定. 2020 年 6 月.
- (2) SACLA 大学院生研究支援プログラム生に採択 (2020 年 4 月~2022 年 3 月).
- (3) 日本学術振興会特別研究員 DC1 に採択 (2019 年 4 月~2022 年 3 月). 特別研究員奨励費獲得 "高精度 X 線ミラーの作製による X 線自由電子レーザーのナノ集光" JP19J20094.

