

X線集光ミラー：軟X線集光ミラーの開発と応用

本山 央人, 三村 秀和

1 X線集光ミラーとは

X線の集光は最も重要なX線光学技術の一つである。X線集光は、計測技術の空間分解能の向上、あるいは集光点における光強度の増強の基礎であり、物性研究やX線光学、産業利用技術の発展を支えてきた。光の理論的な最小集光サイズは回折限界の式 ($0.62\lambda/NA$) によって決まるため、波長の短いX線 (0.1~1 nm) は、可視領域では理論的に不可能な直径 100 nm 以下の集光スポットにまで集光される。ナノメートルスケールの集光を実現すべく、X線ナノ集光ミラーの開発が精力的に行われた。

X線集光ミラーの表面は楕円形状であり、焦点に光源点を一致させることにより、光源から発したX線はミラーで反射後もう片方の焦点に収束する。X線集光ミラーの原理は極めてシンプルであるが、その製造は、X線の波長の長さ故に困難を強いられることとなる。例えば、ミラー面上に高さ d の誤差が存在するとき、波長 λ のX線が斜入射角 θ で入射した際に発生する反射光の波面収差量は $2d \sin \theta$ と見積もることができる。一方で、レイリーの 1/4 波長則によると、回折限界における集光のためには波面収差量は $\lambda/4$ 以下に抑えなければならない。すなわち、X線ミラーにおいて、回折限界で集光するために必要なミラー面の形状精度は、次の式で見積もられる。

$$d = \frac{\lambda}{8 \sin \theta} \dots\dots\dots (1)$$

例えば、硬X線の場合について考えてみる。波長 0.1 nm (λ) の硬X線が、斜入射角度 4 mrad (θ) で入射した場合、式(1)から必要形状精度は 3 nm、すなわち、シングルナノメートルレベルの極めて高い形状精度が、X線集光ミラーに求められることとなる。このような超高精度ミラーの製造は、最初不可能なものと思われていたが、大阪大学のグループにより超精密加工技術 (EEM, PCVM 等) や超精密表面形状計測技術 (MSI, RADSI 等) が開発された^{1)~3)}。これらの技術で作製された楕円ミラー 2 枚を直交配置した KB ミラーシステムにより、硬X線の sub-10 nm 集光が実現された⁴⁾。現在では、世界中の放射光施設で硬X線集光ミラーが使用されており、集光X線ビームが実験に供されてい

る。本稿では、現在、製造プロセスの開発が進められている、軟X線集光ミラー開発の現状について紹介する。硬X線集光ミラーと軟X線集光ミラーの違いや軟X線集光ミラー製造における課題、および新規開発されたミラー製造プロセスについて紹介する。また、これまでに実施した、いくつかの軟X線ビームラインへの導入事例を紹介し、最後に、稼働を目前に控えた東北地方の放射光施設における、軟X線ナノ集光の可能性について述べる。

2 軟X線集光ミラーの開発

硬X線のナノ集光ミラーが普及している一方で、軟X線領域における安定的な 100 nm 集光は依然として難しい。式(1)を見ると波長の長い軟X線の方が容易に製造できそうであるように思われるが、実際はそうではないためである。回折限界の式に立ち戻ると、長い波長の光で同じサイズに集光するためには、その分 NA (開口数: numerical aperture) を大きくしなければならないことがわかる (図 1)。NA を大きくするためには、ミラーの曲率半径を小さくし、斜入射角度を大きくする必要があり、つまり、波長が長い分、斜入射角度 θ を大きくする必要があり、その結果、式(1)より、軟X線集光ミラーにも硬X線集光ミラーと同程度の形状精度が必要であることがわかる。それでは、硬X線集光ミラーと軟X線集光ミラーの違いは何なのか。それは、ミラー表面の形状である。NA を大きくすると、楕円形

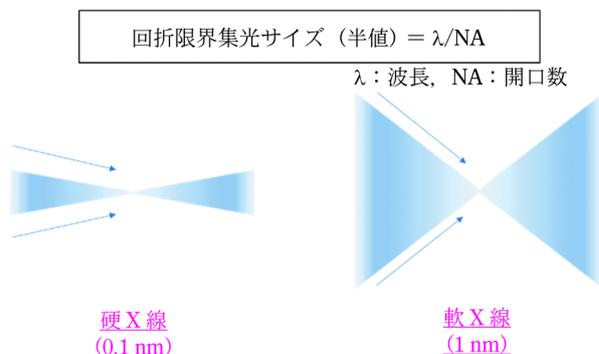


図 1 硬X線と軟X線をナノ集光するために必要な NA の違い

状の曲率半径が小さくなり、表面の形状が急峻となる。表面が急峻になるほど、その形状をナノメートル精度で加工、計測することが難しくなり、このことが軟 X 線ナノ集光ミラー開発の大きな課題となっている。

現在、作り込みミラー（Wolter I ミラー）と回転体ミラー（回転楕円ミラー、Wolter ミラー）の 2 種類の軟 X 線集光ミラー開発が進められている（図 2）。前者は平面基板上に曲面が創成されたミラーであり、後者は中空形状の内側に曲面が形成されている。どちらも斜入射光学系であるが、回転体ミラーの場合、光軸を挟んだ両側から光線がやってくるため、高 NA 集光が可能となる。理論的な最小集光サイズは 10 nm を下回る⁵⁾。一方で、製造が難しいという課題もあり、この点では作り込みミラーに軍配があがる。化学的に安定なシリコンや合成石英を基板として製造され、加工完了後の追加工や表面のコーティングも比較的用意である。導入されるビームラインの光源性能（主に波長）と目標集光サイズを勘案し、作り込みミラーと回転体ミラー、どちらを導入するかが選択される。以下では、回転体ミラーの製造方法と導入事例、および作り込みミラーの導入事例を紹介する。

3 回転体ミラーの作製

3.1 製造方法

回転楕円ミラーは光軸に関して楕円形状を 1 回転させた際の包絡線を反射面とする中空形状ミラーである。集光点に近いほど内径は狭くなり、最下流端の直径は 5

mm 程度となる。このような細いミラーの内側をナノメートル精度で形状計測、加工するのは、既存の手法では不可能に近い。そのため、図 3 に示す電鍍法を用いたナノ精度形状転写プロセスが開発された⁶⁾⁷⁾。まず、回転楕円形状の合成石英製マンドレルを製作する。精密研磨技術とプローブ計測技術を組み合わせた加工プロセスにより、形状精度 10 nm (PV) まで作り込まれる。続いて、電子ビーム蒸着でマンドレル表面に厚さ 100 nm 前後の金属層を形成した後、電鍍法を用いてマンドレル表面に金属層を電気析出させる。熱変形による転写精度の低下を避けるため、電鍍プロセスは室温条件下で行われる。最後に、温浴槽でマンドレルと電析層の温度を上昇させ、合成石英と金属の熱膨張率の違いを利用してミラーをマンドレルから分離する。ミラーの材料には、主にニッケルが用いられる。本技術は、大学の研究室で開発され、現在は夏目光学株式会社に技術移転がなされている。技術移転後も、ミラーの形状精度向上のための研究開発が継続して行われている。また、本技術で作製可能なミラー形状は回転楕円ミラーに限らない。後述する回転体 Wolter ミラーなど、広範な回転体形状ミラーの作製に応用することができる。

3.2 SPring-8 への導入例

SPring-8 の軟 X 線ビームライン BL25SU へのミラー導入事例を紹介する⁸⁾。本ビームラインでは、2 枚のミラーから構成される集光システムが導入された（図 4）。上流側のミラーは、リング集光ミラーと呼ばれ、

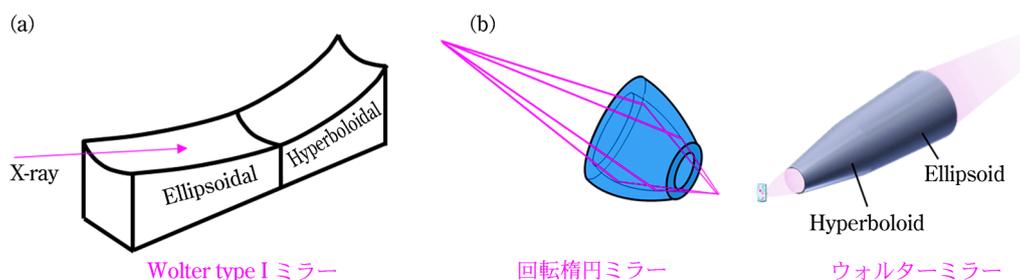


図 2 (a)作り込みミラーと(b)回転体ミラーの模式図。

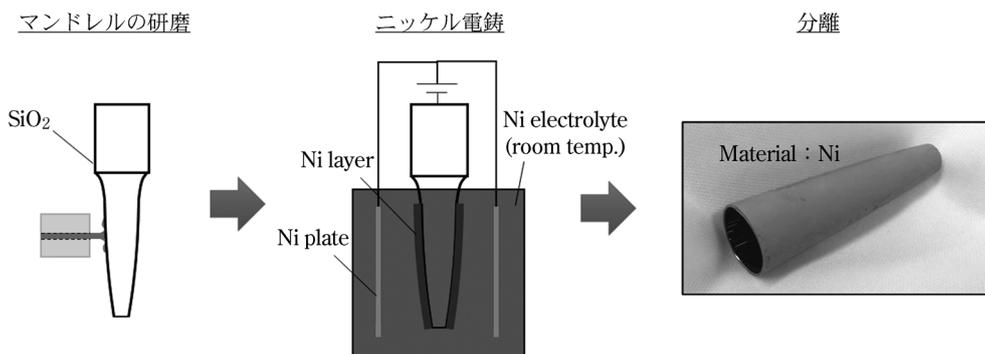


図 3 マンドレル加工→転写

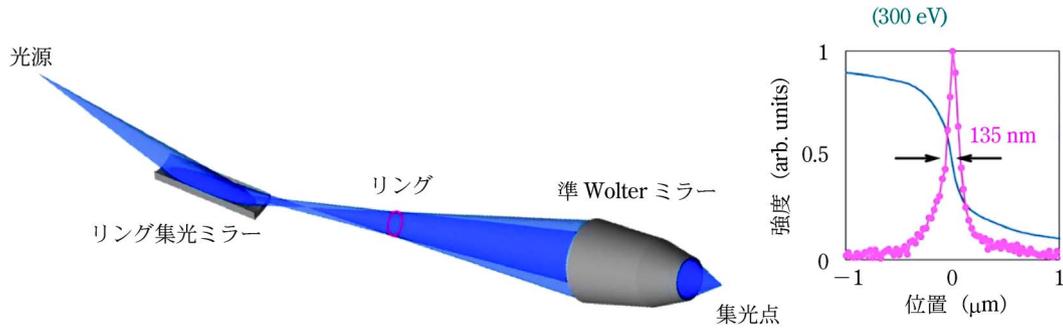


図 4 (a)二段集光光学系の模式図, (b)集光プロファイルの計測例

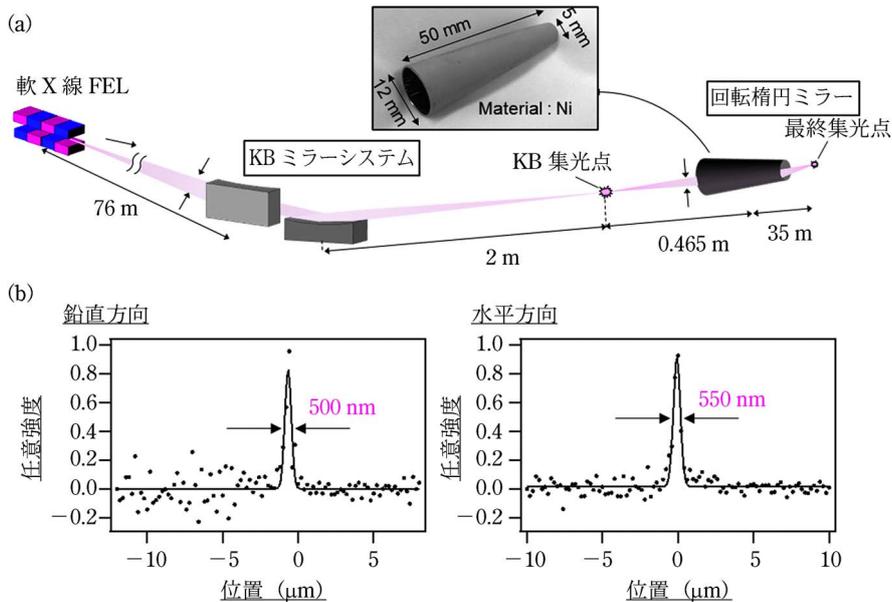


図 5 (a)集光システムの模式図, (b)集光プロファイルの計測例

入射した X 線をリング状に集光し、その後リング上に拡大して回転体ミラー内全面を照明する機能を持つ⁹⁾¹⁰⁾。下流側には、準 Wolter ミラーと呼ばれるミラーが設置されている。回転楕円ミラーが楕円曲面のみから構成されるのに対して、この回転体 Wolter ミラーは双曲面、楕円面の 2 枚の曲面から構成される。Wolter ミラーは Abbe の正弦定理を擬似的に満たすため、理論的に必要なアライメントの精度が緩和されるという特徴を持つ。下流側のミラーは、集光リングを仮想光源とするよう設計されており、通常の Wolter ミラーとわずかに異なる形状プロファイルを有する。そのため、準 Wolter ミラーと呼称される。

本集光システムを用いることで、波長 4 nm の軟 X 線を 175×135 nm のナノ領域に集光することに成功した⁸⁾。光学系のスループットは約 40 % であった。集光ビームを用いたタイコグラフィ顕微計測装置に統合されており、幅 80 nm の微細構造計測にも成功している。ミラーの形状精度のさらなる改善による 50 nm の極微集光ビーム形成が計画されている。

3.3 SACLA への導入例

X 線自由電子レーザー施設 SACLA の軟 X 線ビームライン (BL1) への導入事例を紹介する¹¹⁾。BL1 には KB ミラーによるマイクロ集光装置が常設装置として整備されている。この KB ミラーと回転楕円ミラーを組み合わせた集光装置が整備された。回転楕円ミラーの仮想光源点を KB ミラーの集光点に一致させ、さらに、仮想光源点からミラーまでの距離を KB ミラーの焦点距離の 1/4 とすることにより、実験ハッチ入射時の直径 (10 mm) を 1/4 のサイズ (2.5 mm) に縮小して、回転楕円ミラーに入射させることが可能となる (図 5)。これにより、小型の回転楕円ミラーを利用した、ビームを取りこぼすことのない高スループット集光を実現することができる。

BL1 の発振波長は 10~20 nm である。集光性能テストにより、波長 10 nm の軟 X 線が 500×550 nm の領域に集光されていることが確認された。また、本ビームラインではフェムト秒軟 X 線パルスが発振している。ナノ集光することにより、集光点において極めて高い集光

強度を生成することが可能であり、その値は最大で $8 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ と見積もられた。本集光システムを用いて、非線形現象の一種である可飽和吸収の観測や、磁気光学カー効果を利用した磁性材料分布の高分解能計測などが実施されている¹¹⁾¹²⁾。

4 作り込みミラーの導入例

最後に、作り込みミラーの導入事例を紹介する(図6)¹³⁾。3・2節でも紹介した SPring-8 BL25SU に、プローブビームの微細化による ARPES の高分解能化を目的として、作り込み Wolter ミラーによる集光システムが導入された。合成石英を基板とし、修正加工と形状計測を繰り返すことにより、形状精度 1 nm (RMS) が達成されている。また、波長 1~4 nm で波長掃引することを想定し、ミラーの表面はこの波長帯域でフラットな反射率を有する金でコーティングされている。

集光点における典型的なビームサイズは $0.4 \times 4.0 \mu\text{m}$ 程度であった。ビームの扁平は、光源スリットの形状(開口 $20 \times 200 \mu\text{m}$) に起因するものである。ARPES では、固体表面からの光電子放出を増強するために、プローブビームは斜入射で固体表面に入射させる。典型的な計測条件におけるサンプル上でのビームのフットプリントは直径約 $5 \mu\text{m}$ の円形となるように設計されている。本集光ミラーを統合することにより、今後、高分解能 ARPES 計測の共用利用が進められる予定である。

5 まとめ

本稿では、軟 X 線領域のナノ集光光学素子として開発が進められている、回転体ミラーと作り込みミラーを紹介した。いずれのミラーも、放射光施設、X 線自由電子レーザーに導入され、それらを利用した実験は一定の成果をあげている。ミラー製造プロセスの開発が進み、軟 X 線集光ミラーの利用がますます拡大するものと期待される。

現在、東北大学の青葉山新キャンパスに、東北地方初の放射光施設が 2023 年の稼働開始を目指して建造され

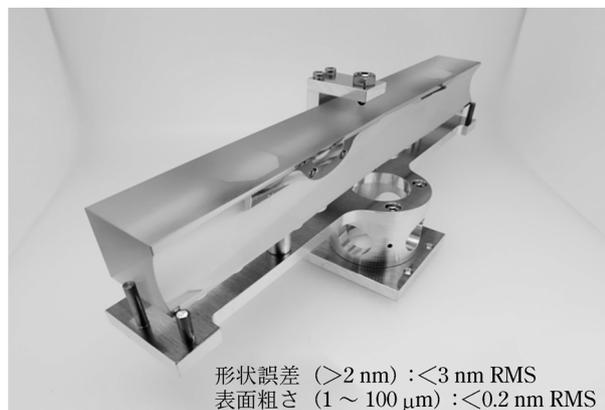


図 6 導入された作り込み Wolter ミラーの外観写真

ている。電子エネルギーは 3 GeV に設計されており、軽元素材料をターゲットとして 0.1~10 keV での高フラックスビームの利用が計画されている。冒頭で述べたように、軟 X 線の集光はサンプルへの照射強度を飛躍的に高めることができる。ミラー光学系であれば、高いスループットでの集光が可能である。そのため、次世代放射光施設では、多くのビームラインにおいて、集光ミラーの導入が計画されている。

高 NA が求められる軟 X 線集光ミラーはいまだ製造プロセスにおいて開発すべき課題が多く理想的な性能を達成するためには更なる発展が必要である。そのため、OAM (Organic Abrasive Machining) 法など、新しい加工・計測技術の開発が精力的に行われている¹⁴⁾。今後、これまで開発してきた軟 X 線ミラーが多くの軟 X 線分析装置の性能向上に寄与することを期待している。

謝辞 本研究開発の遂行にあたり多くの研究者の方から多大な支援をいただきました。東京大学の竹尾陽子博士、山口豪太氏、高輝度光科学研究センター (JASRI) の大橋治彦博士、仙波泰典博士、岸本輝氏、理化学研究所の矢橋牧名博士、大和田成起博士、江川悟博士、久保田雄也博士、登野健介博士、夏目光学株式会社の久米健大博士、松澤雄介氏、平栗健太郎氏、橋爪寛和氏に深く感謝いたします。

文 献

- 1) K. Yamauchi, H. Mimura, K. Inagaki, Y. Mori : *Rev. Sci. Instrum.*, **73**, 4028 (2002).
- 2) K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito, K. Ueno, K. Endo, A. Souvorov, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, Y. Mori : *Rev. Sci. Instrum.*, **74**, 2894 (2003).
- 3) H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, K. Yamamura, Y. Sano, K. Ueno, K. Endo, Y. Mori, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, K. Yamauchi : *Rev. Sci. Instrum.*, **76**, 045102 (2005).
- 4) H. Mimura, S. Handa, T. Kimura, H. Yumoto, D. Yamakawa, H. Yokoyama, S. Matsuyama, K. Inagaki, K. Yamamura, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi : *Nature Physics*, **6**, 122-125 (2010).
- 5) H. Motoyama, T. Saito, H. Mimura : *Jpn. J. Appl. Phys.*, **53**, 22503 (2014).
- 6) H. Mimura, Y. Takei, T. Kume, Y. Takeo, H. Motoyama, S. Egawa, Y. Matsuzawa, G. Yamaguchi, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi : *Rev. Sci. Instrum.*, **89**, 093104 (2018).
- 7) T. Kume, Y. Takei, S. Egawa, H. Motoyama, Y. Takeo, G. Yamaguchi, H. Mimura : *Rev. Sci. Instrum.*, **90**, 021728 (2019).
- 8) Y. Takeo, H. Motoyama, T. Shimamura, T. Kimura, T. Kume, Y. Matsuzawa, T. Saito, Y. Imamura, H. Miyashita, K. Hiraguri, H. Hashizume, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi, H. Mimura : *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 151104 (2020).
- 9) H. Motoyama, H. Mimura : *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **48**, 244002 (2015).
- 10) H. Mimura, Y. Takeo, H. Motoyama, Y. Senba, H.

- Kishimoto, H. Ohashi: *Appl. Phys. Lett.*, **114**, 131901 (2019).
- 11) H. Motoyama, S. Owada, G. Yamaguchi, T. Kume, S. Egawa, K. Tono, Y. Inubushi, T. Koyama, M. Yabashi, H. Ohashi, H. Mimura: *J. Synchrotron Rad.*, **26**, 1406–1411 (2019).
- 12) Y. Kubota, H. Motoyama, G. Yamaguchi, S. Egawa, Y. Takeo, M. Mizuguchi, S. Himanshu, S. Owada, K. Tono, H. Mimura, I. Matsuda, M. Yabashi: *Appl. Phys. Lett.*, **117**, 042405 (2020).
- 13) Y. Senba, H. Kishimoto, Y. Takeo, H. Yumoto, T. Koyama, H. Mimura, H. Ohashi: *J. Synchrotron Rad.*, **27**, 1103 (2020).
- 14) Y. Matsuzawa, S. Yokomae, J. Guo, K. Hiraguri, H. Hashizume, H. Mimura: *Proc. SPIE 11108*, Advances in X-ray/EUV Optics and Components XIV, 1110803 (2019).



本山央人 (Hiroto MOTOYAMA)
 東京大学大学院理学系研究科 (〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1 理学部化学東館 0227)。東京大学大学院工学系研究科。博士 (工学)。《現在の研究テーマ》フェムト秒軟 X 線パルスの集光技術開発および物質との相互作用。《趣味》映画鑑賞。



三村秀和 (Hidekazu MIMURA)
 東京大学大学院工学系研究科 (〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1 工学部 14 号館 831 室)。大阪大学大学院工学研究科。博士 (工学)。《現在の研究テーマ》精密加工法と高精度 X 線光学素子の開発。《趣味》スキー。

原稿募集

創案と開発欄の原稿を募集しています

内容：新しい分析方法・技術を創案したときの着想、新しい発見のきっかけ、新装置開発上の苦心と問題点解決の経緯などを述べたもの。但し、他誌に未発表のものに限ります。

執筆上の注意：1) 会員の研究活動、技術の展開に参考になるよう、体験をなるべく具体的に述べる。物語風でもよい。2) 従来の分析方法や装置の問題点に触れ、記事中の創案や開発の意義、すなわち主題の背景を分かりやすく説明する。3) 図や表、当時のスケッチなどを用いて理解しやす

くすることが望ましい。4) 原稿は図表を含めて 4000~8000 字 (図・表は 1 枚 500 字に換算) とする。

◇採用の可否は編集委員会にご一任ください。原稿の送付および問い合わせは下記へお願いします。

〒141-0031 東京都品川区五反田 1-26-2
 五反田サンハイツ 304 号
 (公社)日本分析化学会「ぶんせき」編集委員会
 [E-mail: bunseki@jsac.or.jp]