

# XFEL ナノ集光技術開発とその応用

犬伏雄一

高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

**要旨** X線自由電子レーザー (XFEL) 施設 SACLA では、ナノ集光技術の開発により  $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> という極めて高強度の XFEL パルスの利用が可能となり、この高強度 XFEL を励起光として用いた研究が盛んに行われている。本稿では、ナノ集光技術とその利用研究の成果について報告する。更に、 $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> という未到の X 線強度を目指した sub-10 nm 集光光学系開発の現状を紹介する。

## 1. はじめに

X線自由電子レーザー (X-ray Free Electron Laser: XFEL)<sup>1,2)</sup>は、高輝度 ( $\sim 10^{33}$  photons/sec/mm<sup>2</sup>/mrad<sup>2</sup>/0.1%BW)、超短パルス (10 fs 以下)、高空間コヒーレンス (ほぼ100%) という3つの特徴を有する X 線光源である。XFELは、事象を観測するためのプローブ光として利用され、従来の放射光実験では不可能であった、フェムト秒・オンゲストロームの時空間の高分解能計測を可能にした。このような革新的な光の登場により、生命科学、超高速の化学・物質科学、原子・分子・光科学など、多岐にわたる科学の分野において新たな研究領域が開拓されている<sup>3-8)</sup>。一方、XFEL の高い強度を利用することで、近年広まってきた利用法がある。それが、系に刺激を与えるための光源、すなわちポンプ光としての利用である。光の強度  $I$  は、 $E$  をパルスエネルギー、 $\tau$  をパルス幅、 $S$  をビームの面積として、下記の式で表される。

$$I = \frac{E}{\tau S} \quad (1)$$

XFEL パルスは高輝度であるため  $E/\tau$  が大きく、非集光のビームでおおよそ  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> の強度を有する。これは Spring-8 の放射光と比較して10桁以上高いものであるが、ビームを集光し小さなスポットサイズを実現することで、更に高い強度を得ることができる。SACLA (Spring-8 Angstrom Compact free-electron LAsEr)<sup>2)</sup>では、超高精度ミラー製作技術に基づいたナノ集光光学系から生成される、高強度 XFEL パルスを安定に供給しており、それをポンプ光として用いた実験が盛んに行われている。本稿では、SACLA におけるナノ集光技術とそれをういた研究、今後の更なる高強度化について紹介する。

## 2. SACLA の XFEL とナノ集光光学系

### 2.1 SACLA の現状と特殊運転

SACLA において、ナノ集光光学系は主に BL3<sup>9)</sup> で利用されている。BL3 は2011年6月にレーザー発振を達成した、最初の硬 X 線 FEL ビームラインである。SACLA を含めた現行の XFEL は、自己増幅型自然放射 (Self-Amplified Spontaneous Emission: SASE)<sup>10,11)</sup> という原理に基づいている。SASE-FEL は100%に近い空間コヒーレンスを有する一方、レーザー増幅の立ち上がり電子ビームのショットノイズに由来することから、強度やスペクトル構造、時間構造の精密制御は困難であり、その特性がパルス毎に変化する。BL3 は、光子エネルギー 4~20 keV の範囲において、数百  $\mu$ J のパルスエネルギーを有する XFEL パルスを供給している。SASE-FEL のスペクトルは数百 meV の幅を持つ数十の細かいスパイク構造の集合である<sup>12,13)</sup>。その包絡線の半値全幅 (FWHM) は、光子エネルギーの  $5 \times 10^{-3}$  程度である。また、そのパルス幅は10 fs 以下という極短パルスである<sup>13)</sup>。

BL3 では、2色発振 XFEL という特殊な運転が可能である<sup>14)</sup>。SACLA の特徴である、可変ギャップアンジュレータを利用し、アンジュレータ列の前半部と後半部においてギャップを変えることで、異なる光子エネルギーの XFEL パルスを同時に発振する。このとき、1 keV 以上も離れた2色のパルスを利用することができる。更に、アンジュレータ列の間にある電子ビームのシケインによって、後半部で発振するパルスに数百フェムト秒までの遅延時間を設けることができる。このシステムはフェムト秒領域の X 線ポンプ・X 線プローブ法という新しい実験手法を提供しており、その応用例を3節で報告する。

また、マイクロチャンネルカット結晶<sup>15)</sup>を用いた反射型セルフシード技術により、輝度が通常の SASE-XFEL のおおよそ6倍に達する、狭帯域高強度 XFEL パルスが実現した<sup>16)</sup>。本稿での紹介は割愛するが、ナノ集光光学系と組み合わせた実験も実施されており、今後の成果の創出

が期待される。

## 2.2 XFEL ナノ集光光学系

SACLA では、ナノメートル領域の集光を実現するため、山内和人氏、三村秀和氏らによって、全反射 Kirkpatrick-Baez (KB) 光学系を2セット用いた2段集光光学系が開発された<sup>17)</sup>。ナノ集光を実現するための大きな Numerical Aperture (NA), 利用実験に適した充分な作動距離、この2つを両立させるために、XFEL ビームを1段目のKB光学系で一旦集光し、その後に拡がったビームを2段目のKB光学系で再度集光する。1段目と2段目のKB光学系は90 m 程度離れた位置に設置された。この光学系ではおよそ50 nm の集光径を実現し、その強度は $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>に達した。この2段集光光学系を用いて、3節に示すような顕著な研究成果があげられてきた。

しかし、この2段集光光学系はSACLAがレーザー発振する以前から設計・製作が進められており、設計に用いたパラメータが実際のXFELパルスとは異なる部分があった。例えば、実際のビームサイズとミラー開口のミスマッチのため、パルスエネルギーのスループットが想定より低かった。また、2段階の光学系の調整には比較的長い時間を要し、ビームタイム中に光学系の調整に時間を割く場合が多かった。このような事情から、ビームの利用効率の向上が課題となっていた。

そこで、XFELパルスの現状のパラメータに即した、簡便な1段のナノ集光全反射KB光学系が、湯本博勝氏らにより開発された<sup>18)</sup>。この光学系では集光サイズ210 nm × 120 nm が得られた (Fig. 1)。2段集光光学系よりも集光サイズは大きい、ミラー開口の増大によるスループット向上のため、2段集光光学系と同様の $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> (100 exawatt/cm<sup>2</sup>) の強度が得られ、その強度から“100exa集光光学系”と名付けられた。Fig. 2に示すように、実験チャンバーは普段はミラーチャンバーに接続されており、固体試料をスキャンするための各種自動ステージを備えている。また、固体試料だけでなく液体ジェット試料の使用も可能である。更に、その実験チャンバーを取り外すこともでき、大型の検出器の利用、特殊な試料の使用など、様々な実験条件に柔軟に対応できるよう工夫がなされている。この実験システムは2018年から共用が開始された。

## 3. ナノ集光・高強度XFELの利用研究

### 3.1 高強度X線と物質の相互作用

従来の可視～近赤外領域の光学レーザーでは高強度の光が広く用いられており、例えば、非線形光学の研究がその例として挙げられる。X線領域においても、 $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup> のという極めて高強度のXFELパルスの実現により、非線形現象の研究が可能となってきた。しかし、その波長が

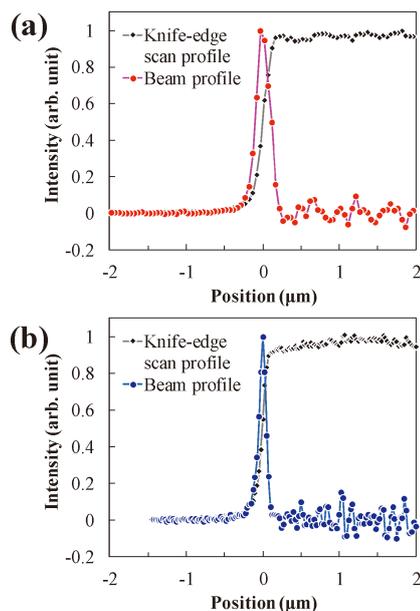


Fig. 1 (Color online) Typical intensity distributions of a focused beam with the 100exa system at a photon energy of 10 keV in the (a) vertical direction and (b) horizontal direction. The focused beam size of 210 nm × 120 nm (FWHM) was evaluated using the knife-edge scanning method. Reprinted from Ref. 18.

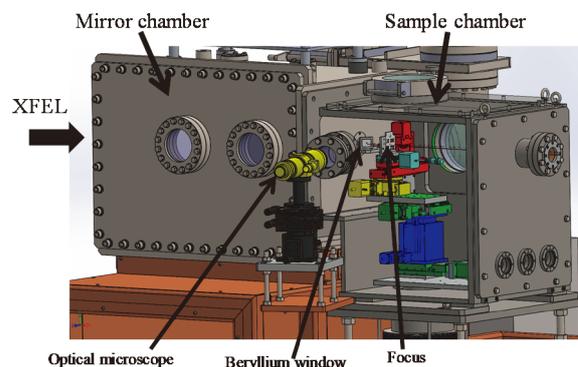


Fig. 2 (Color online) Drawing of the mirror and the sample chamber. The wall on the near side of the sample chamber is presented as transparent to show the inside of the chamber. A beryllium window separates the mirror and sample chambers. An optical microscope is used to observe the sample at the focus from outside the vacuum chamber. Various sample environments, stage arrangements, and sample supply systems can be operated utilizing a 100 mm space upstream of the focus. A portion of the sample chamber can be altered based on experimental requests while keeping the mirror chamber unchanged. Reprinted from Ref. 18.

大きく異なることから、光学レーザーとは大きな違いがある。

高強度光学レーザーを物質に照射すると、ポンデロモーティブ力 (空間的・時間的に振幅が変化する電磁波中で荷電粒子にはたらく力のこと) により電子が加速される。その電子エネルギーは  $I\lambda^2$  でスケールされる ( $I$ は強度、

$\lambda$  は波長)。1  $\mu\text{m}$  程度の波長の光ではおよそ  $10^{18} \text{ W/cm}^2$  で加速された電子の運動エネルギーが静止エネルギーを上回り、いわゆる相対論領域となる。この高エネルギー電子（高速電子）を利用して、粒子加速<sup>19-21)</sup>、高速点火核融合<sup>22)</sup>、X線光源開発<sup>23)</sup>等の研究が進められている。一方、X線の場合は波長が1 Å程度と4桁も短いため、光学レーザーと同様のポンデロモータビリティを得るためには8桁高い強度が必要となる。したがって、X線を用いてこの領域まで電子を加速することは現状では不可能である。

また、光学レーザー（光子エネルギー1.5 eV程度）は主に原子の外殻電子に作用するのに対し、数 keV のエネルギーをもつX線は内殻電子に直接作用することができる。SACLAの光子エネルギー領域は、周期表の第4周期（Sc~Kr）のK殻電子の束縛エネルギーに近く、これらの原子のK殻電子を電離、励起することが可能である。一方で、高強度光学レーザーにより生成される高速電子も数 keV から数 MeV のエネルギーを有するため、内殻電子に作用することができる。実際、K殻電子を電離して  $K\alpha$  線を発光させることができ、X線源やプラズマ診断として研究が進められている<sup>23,24)</sup>。しかし、X線と高速電子との間には、束縛電子の各準位に対する電離断面積の違いがある。高速電子はK殻電子を電離できるとはいえ、その電離断面積はL殻などの上準位の電子の電離断面積よりも小さい。したがって、K殻電離状態が生成された際には、その数以上の上準位電子の電離が生じている。一方、X線は、上準位の電離断面積よりもK殻電離断面積が大きいため、上準位の電子を残したままの“きれいな”内殻電離状態を生成できる。但し、上準位の断面積もゼロではないので、強度が非常に高くなるとその影響が無視できなくなる。このように、ナノ集光により生み出される高強度XFELパルスは、内殻電子との直接相互作用を介した非線形な現象の研究という新しい分野の開拓を可能とした。以下では、その研究例を紹介する。

### 3.2 X線2光子吸収

2光子吸収過程は、可視光領域では基礎科学から産業にまで広く利用されている非線形現象である。X線領域においては、反応断面積の小ささ故に、その観測はXFELナノ集光の達成を待つこととなった。X線2光子吸収は玉作賢治氏らによってSACLAにおいて初めて観測された<sup>25)</sup>。実験では、5.5 keVのXFELパルスをナノ集光し、ゲルマニウムに照射した。入射XFELの光子エネルギーがゲルマニウムのK殻電子の束縛エネルギー（11 keV）に満たないため、1光子の吸収ではK殻電離は生じない。一方で、2つのX線光子がほぼ同時（X線の場合は数百zeptosecondという極短時間）に同一の原子に吸収される2光子吸収が生じた場合、K殻電離が生じる。K殻電離状態の緩和過程で生じる蛍光X線を計測したところ、比較的強度の低い領域において、入射光強度の2乗に比

例した蛍光収量が得られた。2光子吸収過程の発生頻度は入射光強度の2乗に比例することから、X線2光子吸収の発生が示された。しかし、強度の高い領域では2光子吸収頻度が2乗予測から下回ることが確認された。これは1光子吸収によるL殻電離や、それに伴うオーグメント過程等によって原子の電子状態が変化したためだと考えられており、高強度XFELを利用した物性研究への警鐘を鳴らす結果にもなった。

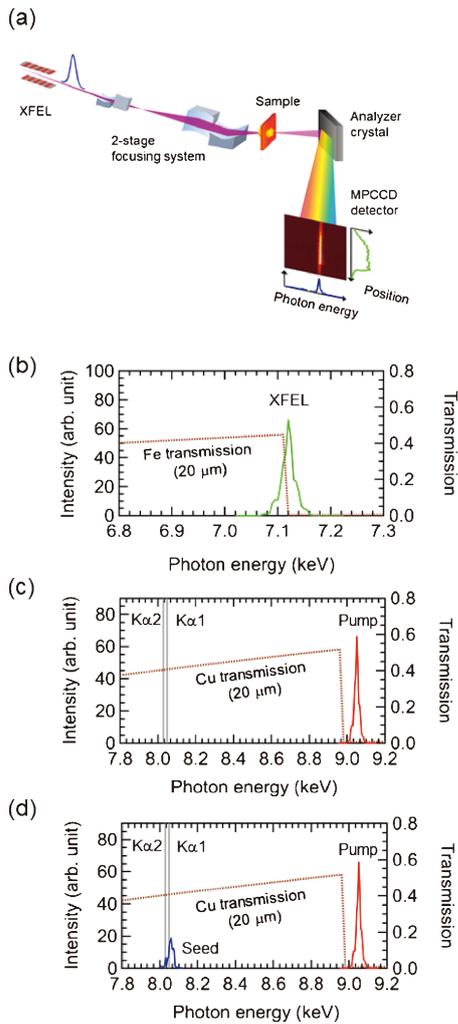
また、S. Ghimire 氏らは、9 keV のナノ集光XFELを利用することで、より原子番号が大きく、反応断面積の小さなジルコニウム（K殻電子の束縛エネルギーが18 keV）に対しても2光子吸収過程の観測を行った<sup>26)</sup>。このように、様々な原子に対する2光子吸収断面積を計測することで、X線と物質との非線形な相互作用の理解を助け、応用展開に向けた足がかりとなっている。

また、X線領域における2光子吸収の観測は、その他の非線形光学過程もX線領域で観測可能であることを示唆している。2光子吸収だけでなく非線形ラマン散乱、光カー効果などの非線形光学過程を利用した新しいイメージング法、分光法、X線光学素子といった応用が期待される。

### 3.3 X線可飽和吸収

米田仁紀氏と筆者らは、X線領域において、物質に高強度の光が入射することによって光吸収係数が小さくなる、可飽和吸収現象を観測した<sup>27)</sup>。この現象もまた可視光領域ではよく知られており、可飽和吸収ミラーなどで利用されているが、X線領域では未観測であった。この実験では、高強度XFELを鉄薄膜に照射した際に、鉄の電子が電離されることで吸収構造が変化し、透過率が上昇することを観測した。その実験セットアップをFig. 3(a)に示す。XFELの光子エネルギーはFig. 3(b)に示すように、鉄のK吸収端に重なるように調整した。そのXFELパルスを2段集光光学系によりナノ集光し、厚さ20  $\mu\text{m}$  の鉄薄膜に照射した。そのXFEL光軸の下流側に、シングルショット・スペクトロメーター<sup>12)</sup>を設置し、透過スペクトルを計測した。照射強度を変化させながら透過率を計測した結果をFig. 4(a)に示す。K吸収端の高エネルギー側では、低強度時にはほとんどX線が透過しない不透明な状態であるが、理論的に予測された強度（ $10^{19} \text{ W/cm}^2$ ）に達すると、急激にX線が透過することが観測された。これは、固体中の多くの鉄原子が内殻電離状態になり、K殻電子がXFELの光子を吸収できなくなったことを示している。最も変化の大きい7130 eV付近では、通常の鉄に対して10倍以上もの透過率上昇が観測された（Fig. 4(b)）。

このX線可飽和吸収は、XFELパルスの前半部が内殻電離状態を生成し後半部が透過する現象であり、X線領域の高速スイッチングとして更なる超短パルスX線発生への応用が期待される。シミュレーション計算では、アト

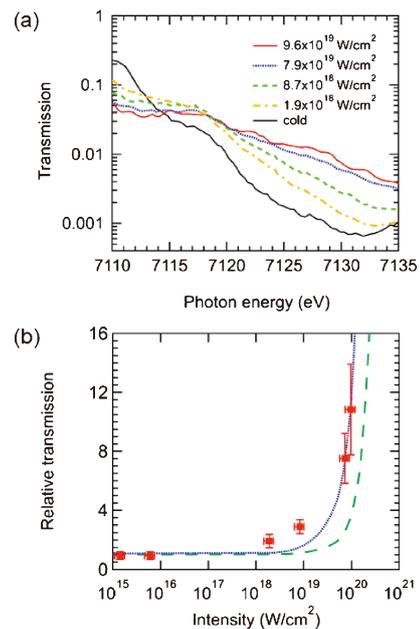


**Fig. 3** (Color online) (a) Typical experimental setup for observing X-ray nonlinear phenomena using the 2-stage focusing system. Relationship between XFEL spectra and transmission of samples for (b) measurement of x-ray saturable absorption, (c) XFEL-pumped  $K\alpha$  laser experiment, and (d) Seeding experiment.

秒領域のパルス発生が可能になることも示唆されている。このような超短パルス X 線レーザーが利用できれば計測の時間分解能が飛躍的に向上すると期待される。

### 3.4 XFEL 励起原子準位レーザー

自由電子レーザーではない、原子準位を用いた一般的なレーザーは、レーザー媒質を光などで励起して反転分布を形成し、励起された電子が遷移する際に放出される光が誘導放出を起こすことでレーザー発振が達成される。レーザー発振に必要な励起光強度がレーザーの光子エネルギーの 4 乗に比例するために、硬 X 線領域では  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> もの非常に高い X 線強度が必要である。そのため、これまでの X 線光源では実現不可能であった。米田氏、筆者らのグループは、SACLA の 2 段集光光学系を利用すること



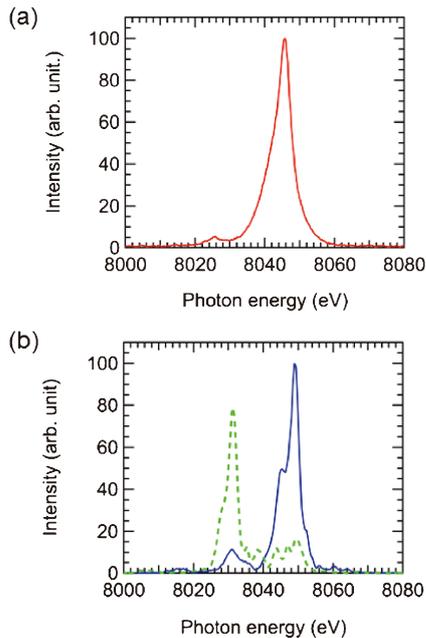
**Fig. 4** (Color online) (a) Transmission spectra around Fe K-absorption edge depending on XFEL intensities. (b) Relative transmission at 7130 eV, which is normalized by the transmission at the cold condition, as a function of XFEL intensity. The square dots show the experimental results, while the dashed and the dotted lines are simulated curves with core-hole lifetimes of 500 as and 2 fs, respectively. The simulation calculates a spatio-temporal evolution of the absorption coefficient along the beam axis, taking into consideration the electrons in the K-shell, L-shell, and vacuum levels.

で、世界で初めて硬 X 線領域の原子準位レーザーの発振を達成した<sup>28)</sup>。

この研究では、内殻電離状態から放射される  $K\alpha$  線が誘導放出を引き起こすことによるレーザー発振をねらいとする。したがって、1s 準位の 1 つに空乏があるものが励起状態、2p 準位に 1 つの空乏があるものが基底状態である。レーザー発振のためには、励起状態の原子数が基底状態の原子数を上回る、反転分布の生成が求められるが、これはまさに、3.1 節で述べた、“きれいな”内殻電離状態を生成することにより達成される。

実験では、Cu を試料とし、その K 吸収端 (8.98 keV) を上回る 9.05 keV の XFEL パルスを集光照射することで、内殻電離状態を生成した (Fig. 3(c))。その状態から生成される  $K\alpha$  レーザーの発振を、XFEL 光軸下流側において、シングルショット・スペクトルを計測することで確認した。その結果を Fig. 5(a) に示す。Cu- $K\alpha$  線と同じ 8.05 keV において、レーザー発振のスペクトルが計測された。そのバンド幅は、 $K\alpha$  の自然幅 (2 eV) より広い、およそ 6 eV であった。これは、周囲の原子の電離の影響により  $K\alpha$  線を放射する各 Cu 原子のポテンシャルが変化し、スペクトルが広がったものと考えられる。

更に、2.1 節で紹介した、2 色同時発振 XFEL を用いて、



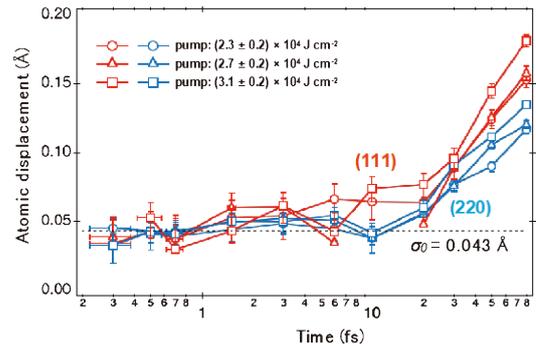
**Fig. 5** (Color online) (a) Single-shot spectrum of XFEL-pumped  $K\alpha$  laser. (b) Single-shot spectra measured in seeding experiment.

X線領域におけるシーディングを行った。**Fig. 3(d)**に示すように、1色目はポンプ光の9.05 keVであり、2色目はCu- $K\alpha$ 線と同じ8.05 keVのシード光である。この2色を同時にCuに照射した。XFELはスパイク構造がパルス毎に変化するため、入射するパルスによって得られる増幅スペクトルが異なり、 $K\alpha 1$ のみが増幅される場合 (**Fig. 5(b)**の実線)、 $K\alpha 2$ のみが増幅される場合があった (**Fig. 5(b)**の破線)。Cuの通常の内殻電離状態は、61%がオーグメントにより緩和され、 $K\alpha 1$ 線放射は26%、 $K\alpha 2$ 線放射は13%である。しかし、 $K\alpha 2$ のみが増幅されたように、本実験では、この脱励起過程のレートを、シード光を入れることによってコントロールできることを示した。

この研究では、ごく小さな材料に高強度XFELパルスを照射することで、さまざまな原子からさまざまな波長をもつコヒーレントなX線レーザーを発振させる技術を実現した。今後は、更に機能性の高いX線レーザーの実現が期待される。

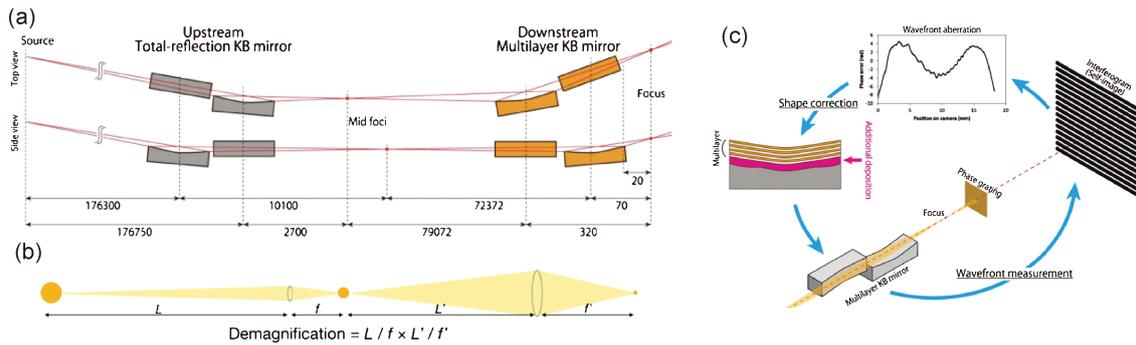
### 3.5 フェムト秒 X線ダメージ計測

高強度のXFELが物質に及ぼすダメージについての理論的な研究はこれまで精力的に行われてきたが<sup>29)</sup>、実験的にフェムト秒の時間スケールでどのようにX線ダメージ過程が進行していくのかを直接測定し、XFELによる物質の「破壊の物理」を明らかにすることはX線科学を進展させるために極めて重要な研究課題である。井上伊知郎氏は、2.1節で述べた2色発振XFELで遅延時間を設けたダブルパルスを用いたX線ポンプ・X線プローブ法



**Fig. 6** (Color online) Atomic displacements of carbon atoms perpendicular to the (111) and (220) planes in diamond after irradiation of the pump pulse.

によって、ダイヤモンド試料にX線パルスを与えるダメージの時間発展についての研究を行った<sup>30)</sup>。SACLAにおいて光子エネルギー6.1 keVのポンプ光、5.9 keVのプローブ光を発振させ、さらに2段集光光学系によって130 nm (水平) × 200 nm (垂直)のサイズに集光した。集光点にダイヤモンドの薄膜 (15  $\mu\text{m}$  厚)を設置して、ポンプ光とプローブ光の時間間隔を0.3 fsから80 fsまで変えながらダイヤモンドからの111反射と220反射を測定した。その際、パルス毎にダイヤモンド薄膜を移動させ、新しい試料表面へと照射した。その結果、プローブ光の散乱強度が時間の経過とともに明瞭に減衰する様子が観測された。これは、フェムト秒の時間スケールでダイヤモンドの電子密度の空間分布が大きく変化していることを意味している。特に、80 fsの場合は0.3 fsの場合よりも10%以上反射強度が減衰していた。この大きな変化は構造へのダメージ、すなわち原子の格子点からの変位が大きくなっていることを意味している。各原子の原子変位が各格子点の位置を中心にしてランダムになっていると仮定して、ポンプ光照射後の原子変位の大きさの時間変化をプロットしたものを**Fig. 6**に示す。この図からわかるように、ポンプ光照射後20 fsを境に原子変位が大きくなっていく。逆に言えば、XFELを照射してから20 fs後までは構造へのダメージはほとんど起こっていないということが実験によって明らかになった。ここで強調すべき点は、この実験におけるポンプ光はおよそ $10^{19} \text{ W/cm}^2$ と、現在のXFELと集光光学素子を組み合わせて実現できる世界最高レベルの高強度であることである。現在のXFEL施設においては、多くの場合パルス幅が10 fs以下のXFELが利用されている。この時間幅は、今回の実験によって分かった構造へのダメージが顕在化する時間スケールよりも短い。すなわち、現在のXFELを用いた多くの実験では、構造へのダメージを無視できることが推測された。



**Fig. 7** (Color online) (a) Geometrical arrangement of the two-stage sub-10 nm focusing system. Length unit: mm. (b) Schematic illustration of (a). The total demagnification is given by multiplying the first-stage and second-stage demagnification factors. (c) Schematic of the wavefront-correction method consisting of wavefront measurement and direct shape correction of the focusing mirrors. Reprinted with modifications from Ref. 31.

#### 4. 更なる高強度化を目指して

前述の2段集光光学系および100exa集光光学系よりも小さな集光径を実現することで、更に高い強度のX線パルスの生成が期待される。しかし、全反射KB光学系において達成可能な集光径は、XFEL実験に適した作動距離という条件の下では、およそ30 nm程度が限界であるとされている。そこでSACLAでは、更なる高強度X線の実現を目的とし、山内和人氏らを中心に、X線の多層膜ブラッグ反射を利用した多層膜集光鏡によるsub-10 nm集光光学系の開発を推し進めてきた。

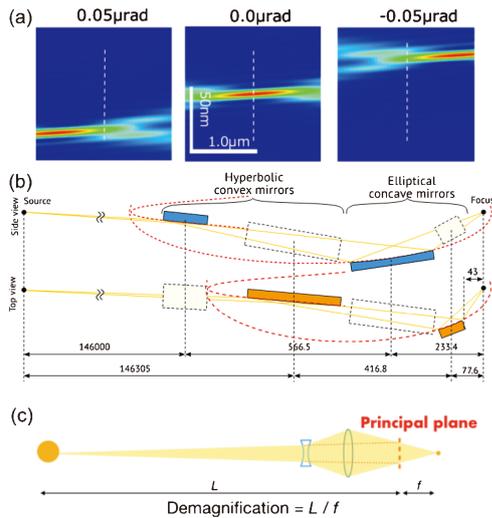
SACLAにおいて開発した2段集光多層膜KB光学系をFig. 7(a)に示す<sup>31)</sup>。水平、鉛直両方向ともに約 $10 \times 10^{-3}$ の大きなNAを有している。これは光子エネルギー9.1 keVにおいて回折限界集光径 $6.0 \times 5.1 \text{ nm}^2$ に対応する。KB光学系を2セット用いることで、大きな縮小倍率を達成している (Fig. 7(b))。

このように、多層膜KB光学系を採用することで、臨界角による制限を超えるX線光学設計が可能となるが、一方でミラーの作製法にも、従来とは異なる戦略が求められる。斜入射角が大きくなることで許容形状誤差が約1 nm PVと厳しくなり、尚且つ、ミラーの曲率半径が数メートルオーダー (全反射鏡の数 $\sim$ 数百分の1) となるためである。このような急峻に湾曲した形状を精度1 nmで計測することは、最先端の計測技術をもってしても難しく、測れないが故に作製できない、という問題が浮上する。これに対し、X線グレーチング干渉計を「形状計測法」として応用した、波面収差補正による多層膜ミラー作製手法がSACLAにて開発された。今回用いられた波面収差補正の概念図をFig. 7(c)に示す。光路内に配置した回折格子の下流側に形成される干渉縞を解析することで、X線反射波面誤差、即ちX線ミラーの形状誤差が計測される。グレーチング干渉計の測定精度はミラーの湾曲度合に依存せず、波長の短いX線が計測プローブであるため、可視光

計測法に比べて非常に高い精度で形状誤差を決定できる。測定された形状誤差は、マグネトロンスパッタ成膜において局所的に成膜量を制御する手法 (差分成膜法) により、原子層オーダーの精度で修正可能であり、1 nm以下の精度で多層膜ミラーの形状修正、即ち波面収差補正が実現される。実際にBL3にて行われた実験では、鉛直方向ミラーにおいて波面精度約 $\lambda/4$  PVの波面補正結果が確認された。波動伝搬計算による評価では、半値幅5.4 nmの集光径が達成可能であることが示され、sub-10 nm集光用大NA多層膜ミラーの超精密作製法が確立されたといえる。

上記手法により、sub-10 nm集光光学系が実現されたかに思われるが、SACLAにおける10 nm集光プラットフォームの確立という観点で言えば、未だ別の課題が残されている。KB光学系においてよく知られている、軸外コマ収差に対する入射角調整の難易度もさることながら、大NA集光ミラーであるが故の問題として、ショット毎のデフォーカス不安定性が挙げられる。一般に、回折限界集光径は $\lambda/NA$ に、焦点深度は $\lambda/NA^2$ に比例することが知られている。sub-10 nm集光実現のために大NA化を図った結果、2段集光多層膜KB光学系では、焦点深度が約 $\pm 0.5 \sim 1 \mu\text{m}$ と微小化する。ここで、KB集光に入射角誤差が存在する場合の焦点距離ずれ (デフォーカス) を考える必要がある。波動光学計算による評価結果では、現状のsub-10 nm集光光学系に $20 \sim 30 \text{ nrad}$ の微小な入射角誤差が存在する場合、 $0.5 \mu\text{m}$ 以上のデフォーカスが生じることが分かっている (Fig. 8(a))。大NA集光ミラーという特性上、軸外コマ収差よりもデフォーカスにより許容入射角誤差が制限されるわけである。この問題により、ショット毎の角度振動や長時間安定性を考慮すると、特にデフォーカスと非点収差 (縦集光と横集光の位置ずれ) に関して、安定した集光ビームを実験に供することができないという懸念がある。

この問題に対処すべく、近年SACLAではadvanced



**Fig. 8** (Color online) (a) Results of wave-optical calculation. Intensity fields near the foci of the two-stage sub-10 nm focusing system were computed varying the grazing-incidence angle errors of  $\pm 50$  nrad. (b) Geometrical arrangement of the sub-10 nm advanced KB focusing system. Length unit: mm. (c) Schematic illustration of (b). The combination of converging and diverging optics shifts the principal plane, resulting in a large demagnification of the focusing system.

KB 光学系<sup>32,33)</sup>に基づく新たな sub-10 nm 多層膜集光光学系 (Fig. 8(b)) の開発に着手している。この光学系は鉛直・水平それぞれにおいて 1 次元 Wolter ミラーを構成しており、光源面から焦点面への縮小結像 (集光) が可能な光学配置となっている。つまり、KB 光学系とは異なり入射角誤差に起因するデフォーカスや軸外コマ収差が生じにくくなっている。また 2 段集光から 1 段の光学系へと回帰し、1 次元方向にペアとなる 2 枚のミラーは同一駆動とすることで、角度振動に対する集光安定性の向上を見込んでいる。1 次元方向に構成される Wolter 光学配置は凸面と凹面の組み合わせの Wolter-III 型<sup>33,34)</sup>であり、光学系の主面をシフトすることで、1 段光学系ながら大きな縮小倍率が達成可能となっている (Fig. 8(c))。新たな sub-10 nm 光学系の開発は波面収差補正法を基に、ミラーの作製と評価が進められており、すでに  $\lambda/3 \sim \lambda/4$  に迫る波面精度が達成されている。この集光光学系では、設計上、 $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> を超える強度を達成できる見込みである。この強度は、米国ミシガン大学のペタワットレーザー HERCULES の持つ、レーザー強度の世界最高記録  $2 \times 10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> (2020年10月現在<sup>35)</sup>) に比肩しうるものである。

## 5. おわりに

SACLA では、高精度ミラー開発技術に基づいたナノ集光光学系が開発され、高強度 XFEL パルスをポンプ光として用いた様々な研究が盛んに行われている。また、 $10^{22}$

W/cm<sup>2</sup> という未達の X 線強度を実現するため、sub-10 nm 集光光学系の開発も進行中である。これらの集光技術や研究成果は、X 線領域の高品質なコヒーレント超短パルス光源の実現、あるいはイメージングや分光法をはじめとする計測法の高度化など、X 線技術に革新をもたらすことが期待される。

## 謝辞

本稿を執筆するに際し御助言、御協力をいただきました、大阪大学 山内和人先生、松山智至先生、東京大学 三村秀和先生、理化学研究所 山田純平博士、大坂泰斗博士、井上伊知郎博士、矢橋牧名博士、高輝度光科学研究センター 湯本博勝博士、小山貴久博士、大橋治彦博士、登野健介博士に深く謝意を表します。

## 参考文献

- 1) P. Emma *et al.*: Nature Photon. **4**, 641 (2010).
- 2) T. Ishikawa *et al.*: Nature Photon. **6**, 540 (2012).
- 3) J. G. Kim *et al.*: Nature **582**, 520 (2020).
- 4) T. Katyama *et al.*: Nature Commun. **10**, 3606 (2019).
- 5) M. Yonemura *et al.*: Scientific Reports **9**, 11241 (2019).
- 6) B. Albertazzi *et al.*: Sci. Adv. **3**, e1602705 (2017).
- 7) M. Suga *et al.*: Nature **543**, 131 (2017).
- 8) T. Kimura *et al.*: Nature Commun. **5**, 3052 (2014).
- 9) K. Tono *et al.*: New Journal of Physics **15**, 083035 (2013).
- 10) R. Bonifacio *et al.*: Opt. Commun. **50**, 373 (1984).
- 11) E. L. Saldin *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. A **475**, 357 (2001).
- 12) Y. Inubushi *et al.*: Phys. Rev. Lett. **109**, 144801 (2012).
- 13) Y. Inubushi *et al.*: Appl. Sci. **7**, 584 (2017).
- 14) T. Hara *et al.*: Nature Commun. **4**, 2919 (2013).
- 15) T. Osaka *et al.*: J. Synchrotron. Rad. **26**, 1496 (2019).
- 16) I. Inoue *et al.*: Nature Photon. **13**, 319 (2019).
- 17) H. Mimura *et al.*: Nature Commun. **5**, 3539 (2014).
- 18) H. Yumoto *et al.*: Appl. Sci. **10**, 2611 (2020).
- 19) S. P. D. Mangles *et al.*: Nature **431**, 535 (2004).
- 20) C. G. R. Geddes *et al.*: Nature **431**, 538 (2004).
- 21) J. Faure *et al.*: Nature **431**, 541 (2004).
- 22) R. Kodama *et al.*: Nature **418**, 933 (2002).
- 23) A. Rousse *et al.*: Nature **410**, 65 (2001).
- 24) H. Nishimura *et al.*: Plasma physics and Controlled Fusion **47**, B823 (2005).
- 25) K. Tamasaki *et al.*: Nature Photon. **8**, 313 (2014).
- 26) S. Ghimire *et al.*: Phys. Rev. A **94**, 043418 (2016).
- 27) H. Yoneda *et al.*: Nature Commun. **5**, 5080 (2014).
- 28) H. Yoneda *et al.*: Nature **524**, 446 (2015).
- 29) S. P. Hau-Riege: High-Intensity X-Rays-Interaction with Matter, Wiley-VCH, Weinheim (2011).
- 30) I. Inoue *et al.*: Proc. Natl. Acad. Sci. USA **113**, 1492 (2016).
- 31) S. Matsuyama *et al.*: Sci. Rep. **8**, 17440 (2018).
- 32) J. Yamada *et al.*: Opt. Express **27**, 3429 (2019).
- 33) J. Yamada *et al.*: Optica **7**(4), 367 (2020).
- 34) H. Wolter: Ann. Phys. **445**, 94 (1952).
- 35) Guinness World Records: <https://www.guinnessworldrecords.com/world-records/highest-intensity-focused-laser>

## 著者紹介



### 犬伏雄一

公益財団法人高輝度光科学研究センター  
主幹研究員

E-mail: inubushi@spring8.or.jp

専門：プラズマ科学, X線分光

#### 【略歴】

2007年3月大阪大学大学院工学研究科電気工学専攻博士課程修了。博士（工学）。

2007年4月日本学術振興会特別研究員（PD），大阪大学大学院工学研究科にて研究。2008年4月大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻特任研究員。

2010年10月理化学研究所X線自由電子レーザー計画推進本部研究員。2011年4月理化学研究所放射光科学総合研究センター特別研究員。2014年1月高輝度光科学研究センター研究員。2018年4月より現職。

# Development of XFEL nano-focusing technique and applications

**Yuichi INUBUSHI** Japan Synchrotron Radiation Research Institute  
1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo, 679-5198, Japan

**Abstract** In X-ray Free Electron Laser (XFEL) facility SACLA, nano-focusing systems produce intense XFEL pulses with intensities of the order of  $10^{20}$  W/cm<sup>2</sup>. Such intense XFEL pulses are utilized not only as a conventional probe, but also as a pump source, which have opened up new fields of study for X-ray nonlinear phenomena. This article reports on the nano-focusing systems and their applications such as two-photon absorption, saturable absorption, XFEL-pumped K $\alpha$  laser, and femtosecond X-ray damage. Moreover, the current status of development of a sub-10 nm focusing system toward intensity of  $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> is described.