



Title	高精度非球面スーパーミラーの作製と中性子集光デバイスへの応用
Author(s)	永野, 幹典
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/27535">https://hdl.handle.net/11094/27535</a>
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

高精度非球面スーパーミラーの作製と  
中性子集光デバイスへの応用

永 野 幹 典

2013 年 1 月

大阪大学大学院工学研究科



博士学位論文

高精度非球面スーパーミラーの作製と  
中性子集光デバイスへの応用

永 野 幹 典

2013 年 1 月

大阪大学大学院工学研究科

第1章 序論	1
第2章 ローカルウェットエッチング（LWE：Local Wet Etching）による形状創成	7
2.1 緒言	7
2.2 LWE の加工原理	8
2.3 NC-LWE による精密形状創成加工プロセス	10
2.4 LWE 加工装置	17
2.4.1. 加工ヘッド部	18
2.4.2. エッチャント循環システム	18
2.5 HF を用いた石英ガラスの加工特性	20
2.5.1 HF と石英ガラスの反応	21
2.5.2 体積加工量の走査速度依存性	23
2.5.3 体積加工速度の HF 濃度依存性	25
2.5.4 体積加工速度の HF 温度依存性	27
2.5.5 共沸濃度の HF を用いた形状創成	28
2.5.6 LWE 加工における表面粗さに関する考察	31
2.6 結言	35
第3章 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの開発	39
3.1 緒言	39
3.2 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの概要	40
3.3 研削による粗加工	41
3.4 HF 浸漬・低圧研磨による加工変質層除去	41
3.5 低圧力研磨プロセスによる表面粗さ除去	43
3.5.1 低圧力研磨の概要	43
3.5.2 硬質パッドを用いた LSFR 改善プロセス	44
3.5.3 軟質パッドを用いた MSFR・HSFR 改善プロセス	46
3.6 イオンビームスパッタによる NiC/Ti スーパーミラー成膜	47
3.7 中性子集光用 400 mm 長さ楕円面スーパーミラーの作製と評価	49
3.7.1 ミラーの作製	50
3.7.2 BL10 における中性子集光特性の評価	55
3.7.3 CHOP における中性子集光幅の評価	57
3.8 結言	58



第4章 ミリメートル厚さの楕円面ミラー基板を多重配置した 小型大開口集光デバイスの開発	61
4.1 緒言	61
4.2 中性子集光用薄型楕円面スーパーミラーの作製と評価	62
4.2.1 ミラーの形状誤差が集光径に与える影響	62
4.2.2 ミラーの作製	65
4.2.3 MINE2 における中性子反射率の評価	74
4.2.4 CHOP における中性子集光特性の評価	75
4.3 中性子集光用多重楕円面スーパーミラーデバイスの作製と評価	77
4.3.1 光学系	77
4.3.2 多重ミラーアライメント機構の開発	79
4.3.2.1 光線追跡シミュレーションによる必要アライメント精度の算出	79
4.3.2.2 くさび機構を用いた多重ミラーアライメント機構	82
4.3.2.3 多重ミラー保持機構の測定再現性の評価	84
4.3.3 四枚の1 mm 厚楕円面スーパーミラーの形状創成と評価	85
4.3.4 光線追跡シミュレーションによる集光径の算出	86
4.3.5 BL17 における集光特性評価	88
4.4 結言	89
第5章 集光デバイスの中性子計測技術への適用	93
5.1 諸言	93
5.2 即発 $\gamma$ 線分析への適用	93
5.3 小角散乱実験への適用	97
5.4 KB 配置による2次元集光デバイスの開発	100
5.5 結言	102
第6章 総括	105

研究業績

謝辞

## 第1章 序論

19世紀末、RöntgenがX線を発見したことに端を発した放射線・放射能の発見の歴史は20世紀初頭になり急加速した。1920年頃には、Rutherfordが $\alpha$ 線を原子核に照射する実験を始めた。その結果、ベリリウムに $\alpha$ 線を照射することで $\alpha$ 線とも $\beta$ 線とも違う透過力の強い放射線が放出されることがわかった。Curie夫妻はこれを高エネルギーの $\gamma$ 線だと考えたが、Chadwickはこれを否定し、この放射線こそ彼の師 Rutherford が予想していた中性子に違いないとして、実験により中性子を発見した。

1932年、Chadwickによってその存在が証明された中性子は、表1.1に示すように陽子とほぼ同じ質量であり、スピンと磁気モーメントを有し、寿命が約890秒の電氣的に中性の粒子である[1]。中性子を大量に発生させるには、原子炉を用いる方法ならびに加速器を用いる方法が考えられる。どちらの発生方法においても、主に放出されるのは、数MeVのエネルギーで、 $4 \times 10^{-14}$  m以下と極めて短いde Broglie波長(以降波長)を有した高速中性子である。この高速中性子を減速材で減速することで、エネルギー約25 meV、波長約0.18 nmにピークを持った分布の熱中性子束を得ることができる。大部分の熱中性子の波長は0.1 nm以上であり、物質の結晶格子間隔と同程度であるので、回折、散乱といった光学的性質を示しやすい。また、熱中性子を液体窒素貯槽でさらに冷却することでより長い波長を有した冷中性子を取り出すことができる。

中性子の運動エネルギーは、以下のように波数 $k$ 、波長 $\lambda$ 、振動数 $\nu$ 、速度 $v$ 、温度 $T$ 等の関数として表される。

$$E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \frac{h^2}{2m\lambda^2} = h\nu = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{1}{2}m\left(\frac{d}{dt}\right)^2 = k_B T \quad (1.1)$$

実際の定数を代入すると

$$E[\text{meV}] = 0.20723k^2 = \frac{0.8181}{\lambda^2} = 4.136\nu = 5.2267 \times 10^{-6} \left(\frac{t}{d}\right)^{-2} = 0.086173T \quad (1.2)$$

また、各定数値の単位は以下の通りである。

$$\lambda [\text{nm}], \nu [\text{THz}], v [\text{m/s}], k [\text{nm}^{-1}], \frac{t}{d} \left[\frac{\mu\text{s}}{\text{m}}\right], T [\text{K}]$$

ここで、 $m$ は中性子の質量、 $v$ は速度、 $k_B$ はボルツマン定数である。

低速中性子は、X線、電子線と比較して、以下のような特徴を有する。

- ①中性子は電荷を持たない物質波であり、主に原子核と磁場にだけ相互作用する。
- ②低速中性子の場合、波長が結晶格子間隔と同程度以上であり、そのエネルギーが分子や結晶のもつ振動エネルギーと同程度である。
- ③多くの物質に対して透過性が高い



## 第1章 序論

- ④軽い原子でも散乱断面積が大きいものがある。
  - ⑤同じ元素でも同位体によって断面積の大きさが異なるものがある。
  - ⑥磁性体との相互作用が大きい。
  - ⑦X線や電子線等と異なり、測定中の温度の上昇などの試料に対する影響が小さい。
- これらの特徴により、物質科学研究において大きく注目されている。

中性子ビーム実験のための中性子源としては、研究用原子炉や加速器が用いられる。日本においては、Japan Research Reactor No.3 Modified (JRR-3M)、Kyoto University Research Reactor (KUR)が研究用原子炉として建設され、中性子ビームを用いた実験が盛んにおこなわれている。2008年に稼働し始めた大強度陽子加速器施設 Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC)の Materials and Life Science Experimental Facility(MLF)においては、世界最高強度のパルス中性子ビームを用いた実験が可能になり、物質科学、生命科学研究の飛躍的な進歩が期待されている。中性子線は、X線や電子線に対して上記のように特異な特徴を有した放射線であり、研究上必要不可欠であるが、その線源が高価であるにもかかわらず、得られる中性子線の強度が低いという大きな制約がある。よって、その有効利用が大きな研究テーマの一つとなっている。

中性子ビームは中性であるため電氣的制御が効かず、ビームコントロールが困難なことが問題として挙げられる。よって、その光学的性質を利用して利用可能な中性子強度を増大する必要がある。中性子ビームの制御手法には、大きく分けて屈折光学系と反射光学系の2つがある。

屈折光学系としては、中性子磁気レンズ[2]、中性子物質レンズ[3]が挙げられ、大きく広がったビームを制御することができる。しかしながら、MLFにおいて発生されるパルス中性子を用いた実験においては、幅広い波長域の中性子ビームを集光する必要があるが、屈折光学素子においては熱中性子以上の高エネルギーの中性子を制御することは難しく、色収差は不可避である。

表 1.1 中性子の性質

質量 $m_n(\text{kg})$	$1.674928 \times 10^{-27}$
$m_n c^2(\text{MeV})$	$939.56563 \pm 0.00028$
電荷の上限( $\times 10^{-21}e$ )	$-0.4 \pm 1.1$
スピン量子数( $\hbar$ )	$-1/2$
磁気モーメント( $\mu_n/\mu_N$ )	$-1.9130427 \pm 0.0000005$
Larmor 振動数(MHz/Tesla)	29.16
寿命(sec)	$885.9 \pm 0.9$
クオーク構成	u-d-d

## 第1章 序論

それに対し、反射光学素子は色収差なく、熱中性子を含む幅広い波長域の中性子ビームを集光することができる。中性子ビームの反射光学素子としては、従来ニッケルの全反射ミラーが用いられてきた。しかし、利用中性子強度の増大やミラー長さを適切な長さに抑える観点から、数 nm-数百 nm の膜厚分布を有した高反射率のスーパーミラーが必要不可欠である。スーパーミラーは、屈折率の異なる物質を対層とする金属多層膜であり、この人工結晶格子の膜周期間隔を変化させることで、幅広い波長域の中性子をブラッグ反射するものである[4,5]。スーパーミラーの高性能化は中性子源の利用効率を高めるために極めて重要であり、日本では、イオンビームスパッタ成膜によるスーパーミラーの開発が精力的におこなわれており、世界最高レベルの実効臨界面角と立ち上がり反射率を達成している[6]。

中性子ビームを微小集光し、単位面積当たりの中性子強度を増大することで、測定時間の大幅な短縮、空間分解能の向上、S/N 比の向上が見込まれる。中性子ビームの微小集光技術として非球面形状のスーパーミラーが注目されているが、未だに実用化には至っていない。実用的な集光ミラーを作製しようとした場合、集光ミラーにはサブマイクロメートルレベルの形状精度、サブナノメートルレベルの表面粗さを有しながらも大面積かつ大きな曲率が求められる。米国の Oak Ridge 国立研究所で、平板基板にスーパーミラーを成膜したミラー基板を両端に設置した板バネによって変形させるベンディングミラーシステムが開発されているが、変形量には限界があり集光実験の際のアライメントにも時間を要することが懸念される。よって、長期的なミラーの安定性、アライメントの容易さから、非球面形状に形状創成したミラー基板上にスーパーミラーを成膜する作り込み非球面スーパーミラーデバイスの開発が求められる。作り込み非球面ミラーデバイスとしては、X 線集光ミラーの開発が精力的におこなわれている。X 線集光ミラー基板の形状創成には、プラズマ CVM (PCVM : Plasma Chemical Vaporization Machining)、Elastic Emission Machining (EEM) が適用され、ナノメートルレベルの形状精度と原子レベルで平滑な表面を得ることに成功している。しかしながら、中性子集光ミラーにおいては X 線集光ミラーと比較して最大加工深さで 2 桁、体積加工量で 3-4 桁以上の大きさが求められ、PCVM や EEM といった化学的加工手法における体積加工速度では加工時間の観点からも現実的ではない。このような背景から、高能率かつ高精度な非球面ミラー基板の作製プロセスの開発が求められている。

本研究では、従来の研削技術、非接触の化学的加工法であるローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) 法による形状創成技術とイオンビームスパッタ成膜による多層膜成膜技術を組み合わせた高能率かつ高精度な非球面スーパーミラー作製プロセスの開発を目的とする。また作り込み非球面スーパーミラーを適用した中性子集光デバイスを開発し、サブミリメートルレベルの微小集光技術を確立することを目的とする。



以下に本論文の構成について述べる。

第1章では本論文の背景及び目的について述べる。

第2章では、非接触無歪加工である数値制御ローカルウェットエッチング法による合成石英ガラス基板の形状創成技術について述べる。共沸濃度のフッ化水素酸をエッチャントとして用いることで、加工中のエッチングレートの変動を1%以下に抑え、本手法により決定論的に石英ガラスの形状創成が可能であることを示す。

第3章では、大強度の中性子ビーム集光のための大面積ミラー作製に向けて、精密研削、HF浸漬、NC-LWE、低圧研磨、イオンビームスパッタ成膜を組み合わせた高能率かつ高精度な1次元楕円筒面スーパーミラー作製プロセスの開発について述べる。開発したミラー作製プロセスにより、長さが400 mmの長尺楕円筒面スーパーミラーを試作する。作製したミラーの中性子反射率ならびに中性子集光特性を評価する。

第4章では、厚さが1 mmの楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイスの開発について述べる。大強度の中性子ビーム集光を実現する手段として、ミラーの大面積化とミラーの多重化が挙げられる。ミラーの多重化においては、基板の厚さ部分における吸収損失を極力抑えるためミリメートル厚の楕円面ミラーを高精度に作製する必要がある。工具の位置制御によって形状創成をおこなう通常の機械加工では固定時の変形、加工圧力による変形、スプリングバック等によりミリメートル厚の基板をサブマイクロメートルレベルの形状精度で加工することは大変困難である。それに対して、加工圧力のかからない非接触無歪加工であるNC-LWE法を適用することで、ミリメートル厚の基板においてもサブマイクロメートルレベルの形状精度で加工することが可能である。そして、1.5 mm厚ミラーの先行試作結果、多重ミラーデバイス作製のためミラー保持機構の開発、多重化に用いる4枚の1 mm厚楕円面ミラーの作製、集光デバイスの中性子集光特性評価について述べる。

第5章では、楕円面ミラーをKirkpatrick-Baez(KB)配置した2次元集光デバイスの開発ならびに作製した各ミラーデバイスの位置分解型即発 $\gamma$ 線分析、集光型小角散乱実験への適用を検討する。

第6章は、本研究の総括である。

## 参考文献

- [1] J. Chadwick: Possible existence of a neutron, *Nature*, **129** (1932) 312.
- [2] D. F. R. Mildner, B. Hammouda, S. R. Kline: A refractive focusing lens system for small-angle neutron scattering, *J. Appl. Crystallogr.* **38** (2005) 979.
- [3] T. Oku, H. Kira, T. Shinohara, S. Takata, M. Arai, J. Suzuki, H. Shimizu: Development of a triplet magnetic lens system to focus a pulsed neutron beam, *J. Phys. Conf.* **251** (2010) 012078.

## 第 1 章 序論

- [4] F. Mezei, Comm. Phys. **1** (1976) 81.
- [5] T. Ebisawa, N. Achiwa, S. Yamada, T. Akiyoshi, S. Okamoto, J. Nucl. Sci. Tech. **16** (1979) 647.
- [6] R. Maruyama, D. Yamazaki, T. Ebisawa, M. Hino, K. Soyama: Development of neutron supermirrors with large critical angle, Thin Solid Films **515** (2007) 5704.



## 第1章 序論

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

### 2.1 緒言

中性子集光用ミラーデバイスには、大強度の中性子ビームを微小集光するという目的から、大面積かつ大きな曲率を有しながらもサブマイクロメートルレベルの形状精度とサブナノメートルレベルの表面粗さが求められる。ミラー基板の形状創成技術には、その要求精度を満たし、また多層膜成膜時に導入される GPa レベルの膜応力に耐え得るべく、加工変質層を導入しないダメージフリーな加工法であることが求められる。

研削や切削、ラッピング、ポリシング等の機械的な加工法を用いた場合、体積加工速度は大きいものの、塑性変形や脆性破壊を利用する加工原理から、図 2.1 に示すように表面層にマイクロクラック等の多数の欠陥が導入される[1]。このような欠陥を導入せずに加工をおこなうためには、化学的な方法に頼らざるを得ないが、加工の空間的な制御性や加工能率の点から、機械加工に置き換わるほどの加工特性は得られておらず、現在研究・開発が進められている。

Elastic Emission Machining (EEM)[2-4]は、微細粉末粒子と加工物表面との固体間化学反応を利用した超精密加工法であり、結晶学的性質を乱すことなく、ナノメートルオーダーの形状精度と原子レベルで平坦な表面を得ることができている。ところが、EEM は体積加工速度が非常に小さく、ナノメートルオーダーの加工量を想定した最終仕上げに適した加工法である。

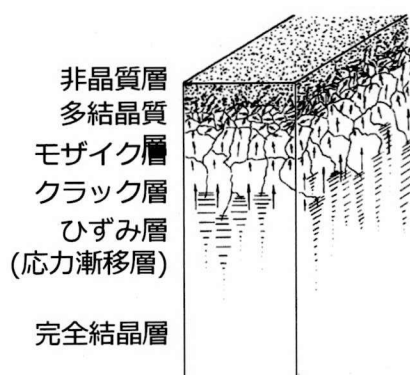


図 2.1 機械加工によって形成される加工変質層のモデル図[1]

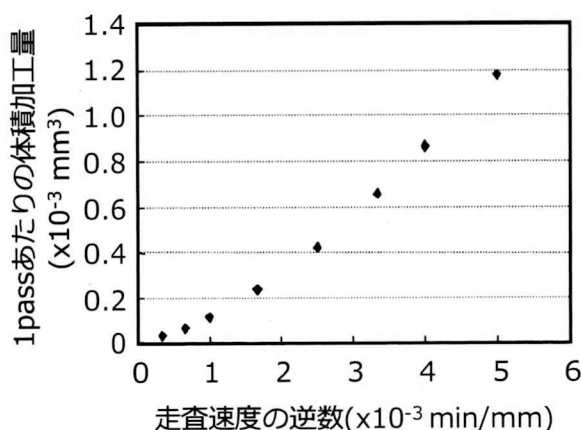


図 2.2 プラズマ CVM の走査速度依存性

また機械加工に匹敵する加工速度を有し、加工の空間的な制御性も高いプラズマ CVM (Plasma Chemical Vaporization Machining : PCVM) [5-7]が開発され、X 線ミラーの形状創成等に適用されている。しかし、PCVM では、電極と試料の間にプラズマを発生させ化学的な加工をおこなうので、石英ガラスのように熱伝導率が低い試料を加工する場合、プラズマの滞在時間に比例して試料の温度が上昇するため、図 2.2 に示すように、加工量が走査速度に対して非線形になり、結果として加工の制御性が悪化する。また、試料の厚みが増すと、プラズマを発生させるために大電力を投入しなければならない。さらに、加工がチャンバー内で行われるため、試料の大型化に伴い、装置を大きくする必要があり、チャンバー内に充填するガスも大量になるので、非常にコストが高くなってしまう。

このような背景のもとで、Local Wet Etching (LWE)が開発された。この加工法の特長は、加工試料に応じたエッチャントを用いたウェットエッチングであるが、加工ヘッドを二重のパイプ型にし、エッチャントの供給と回収をおこなうことで局所的な加工が可能であることである。そして、化学的な加工法であるため、機械加工にみられる塑性変形や脆性破壊が生じることなく空間的な制御性の高い加工が可能である。また、エッチャントの組成や温度を変化させることで、機械加工と同等の加工能率を有する。さらに非接触な化学的無歪加工法であるため、振動等の外乱に対して鈍感であるので、加工装置の機械的な剛性はそれほど高くする必要が無く、装置コストを低く抑えることが出来る。また、真空排気系等の高価なインフラが不要であるため、装置導入時のインシヤルコストも極めて安価である。

本章では、LWE の加工原理ならびに NC-LWE による形状創成について説明した後、具体的にフッ化水素酸(Hydrofluoric Acid :HF) をエッチャントとして用いた場合の石英ガラス加工特性について述べる。

### 2.2 LWE の加工原理

LWE とは、二重のパイプ型ノズルヘッドからエッチャントの供給、回収を同時におこない、局所的にウェットエッチングをおこなう非接触無歪加工法である。図 2.3 に試料および加工ヘッド部の模式図を示す。内側のパイプよりエッチャントを供給し、すぐ外側のパイプより吸引することにより、加工ヘッドと試料の間にエッチャントの流れが発生し、試料表面に接触し

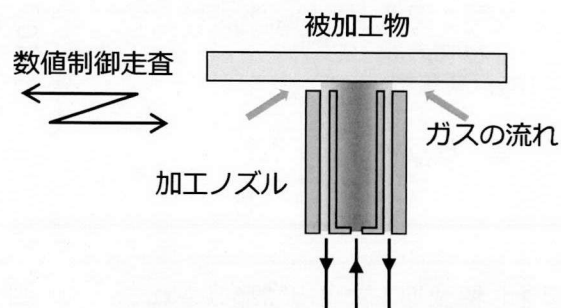


図 2.3 加工ヘッド部模式図

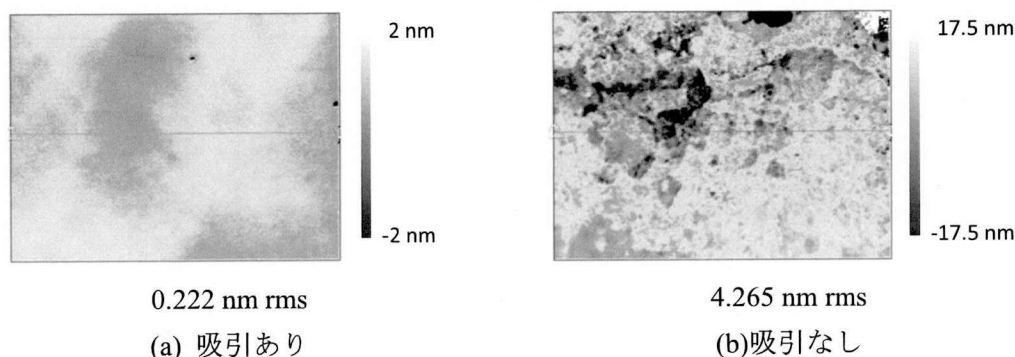


図 2.4 加工痕周辺部表面粗さ像 (64×48 μm<sup>2</sup>)

ているエッチャントは常に循環している。真空ポンプで吸引することにより、加工ヘッドの吸引部が外部に対して負圧となり、大気から加工ヘッド部に向かうガスの流れが発生し、エッチャントと被加工物の接触領域を制限することが可能となる。つまり、任意形状かつ安定した加工痕が得られるため、局所的に加工ができ、さらには数値制御加工することも可能である。また、ガスの流れによって、エッチャントから発生し拡散する反応性ガスも吸引することができ、反応性ガスの拡散によっておこる表面粗さの悪化を防ぐことも可能である。

図 2.4 に 50 wt% の HF を用いて石英ガラスを 5 min 静止加工したときの加工痕周辺部の表面粗さ像を示す。吸引の有無で明らかに表面粗さの違いが見られた。さらに詳細な比較のため、得られたデータの Power Spectral Density (PSD) 解析[8]をおこなった。

ここで PSD 解析について説明する。一般的に、表面粗さ、表面形状と呼ばれるものは、表面プロファイルのマイクロラフネスを示す Root-Mean-Square (RMS) 値、や Peak to Valley (PV) 値により評価されている。しかし、このような評価においては、その表面形状の空間波長的な特徴は含まず、その値の良し悪しは、その表面の平坦性を評価するのにすぎない。したがって、表面形状評価を厳密におこなうためには、表面にどの領域の空間波長の凹凸が存在しているかを調べる必要がある。その有効な手段として表面プロファイルの空間周波数解析が挙げられる。

空間周波数による評価は、測定器および測定条件に依存しない統一した粗さの表記法として有効である。この方法の特徴の一つは、測定された表面データから特定波長の成分を取り出せる点にあり、表面プロファイルから求まる PSD カーブで表現される。

以下に PSD を求める方法を示す。

$$F(k) = \sum_{n=0}^{N-1} Z_n \exp(-i2\pi kn/N) \quad (k = 0, 1, 2, \dots, N-1) \quad (2.1)$$

$$P(k) = \frac{2\pi d}{N} |F(k)|^2 \quad (2.2)$$

ここで、 $Z_n$  は  $n$  番目のデータ(高さの情報)、 $N$  は  $X$  方向のデータ数、 $d$  はサンプリング

間隔を示し、 $P(k)$  が空間周波数  $f = k/(N-1)d$  における PSD である。

実際に位相シフト干渉顕微鏡による測定データの空間周波数解析をおこなう場合には、有限区間の離散データをフーリエ変換することが必要となる。そこで、測定データの一方向の情報のみをフーリエ変換し、他方向の測定データは、PSD を統計平均するという方法を用い、安定したスペクトルを得ることが可能となる [9]。

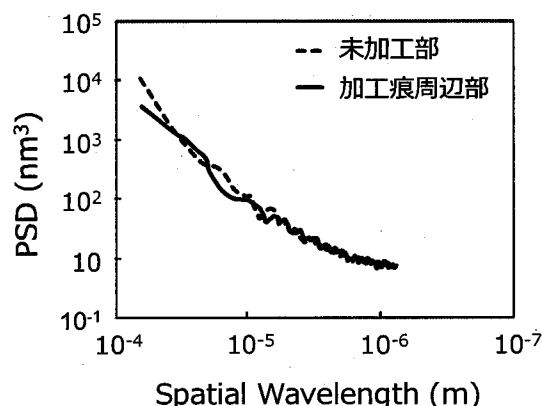


図 2.5. PSD による未加工部と加工痕周辺部の表面粗さ比較

図 2.5 に未加工部と加工痕周辺部の PSD 解析結果の比較を示す。吸引をおこ

なった場合では、未加工面と比較しても全ての空間波長において表面粗さの悪化は見られなかった。この結果から、LWE は未加工時と比べて表面粗さを維持することのできる加工法であるといえる。また加工現象が化学的であることから、幾何学的に優れた加工面が得られると同時に、結晶学的、原子構造的観点から言っても乱れのない加工を実現できる。

## 2.3 NC-LWE による精密形状創成加工プロセス

LWE は、加工ノズルヘッドよりエッチャントの供給をおこない、供給されたエッチャントと同時に、被加工物とエッチャントの反応から生じる反応生成物を回収することで、局所的にエッチングをおこなう加工法である。エッチャントの組成、濃度、温度を最適化することで、高い加工速度と、高空間分解能の加工をおこなうことができる。局所的なエッチングのため、要求される加工特性に応じて走査速度を変化させながら、スポット状加工痕を試料全体に走査することによって目的形状を得る。

LWE における超精密形状創成加工過程ではまず、前加工面の幾何学的形状を測定する。次に、その前加工面と目的加工面との比較により加工痕形状、加工速度等の最適加工特性を決定する。そしてその決定された最適加工特性を実現するパラメータ変数を制御しながら加工ノズルヘッドを試料全体に走査することによって目的加工形状を得る。

LWE において、加工量はワーク上のエッチャントの滞在時間と比例関係にある。従って加工ノズルヘッドの走査速度に応じた除去加工をおこなうことができる。この原理を用いれば、機械加工では原理的に困難な非球面形状等の複雑な形状加工であっても滞在時間すなわち走査速度を制御することにより比較的簡単におこなえる。

エッチャントの滞在時間を算出するには、(2.3)式に示す量み込み積分を用いる。すな



## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

わち、目標除去形状  $h(x,y)$  は、前加工面形状と目的形状との比較によって求めることができ、単位加工痕形状  $f(x,y)$  は、静止加工痕形状を測定することによって得られるので、(2.3) 式をデコンボリューションすることによって滞在時間分布  $g(x,y)$  を逆算できる。そして滞在時間から加工ノズルの走査速度を計算することができる。またデコンボリューション計算を単純化するには単一加工痕形状が単純なものであることが望ましい。よって単一加工痕形状を選定するポイントとして形状の単純さがあげられる。

$$h(x,y) = \iint_A g(u,v) f(x-u, y-v) du dv \quad (2.3)$$

LWE においては目的に応じた加工ノズルヘッド形状を適用することにより様々な加工形態を取ることができるが、数値制御による形状加工をおこなうには単位加工痕形状が円、もしくはそれに近い形状になるノズルを使用する。本プロセスにおいては、まず前加工面の形状を恒温室にて精密に計測し、目的形状からの偏差量(誤差量)を求める。次に、LWE における加工量はエッチャントの滞在時間に比例するという原理をもとにして、加工物上の各点における偏差量を解消するための加工物の送り速度のデータを作成し、そのデータにより加工ノズルの速度制御をおこなうことで形状修正加工をおこなう。最後に再度形状測定をおこない、形状誤差の値が許容値以内になるまで上記プロセスを繰り返すことにより、目標形状精度を達成する。

詳細を以下に述べる。

- ① 加工に用いる合成石英基板を NH-3S または NH-5N を用いて測定する。
- ② 加工に用いる加工条件と同条件での加工痕形状を NewView で測定する。
- ③ 加工に用いるのと同サイズの試料を用いて、ある機械座標で加工痕をとり、試料上のどの座標に加工痕が存在するかを、NewView、NH-3SP または NH-5N で計測する。これによって、試料形状と単位加工痕形状の相対位置が得られる。
- ④ ①-③により得られた値を用いて、(2.3)式に基づくデコンボリューション計算により、走査速度分布を計算する。
- ⑤ 計算で得られた走査速度分布により、数値制御加工をおこなう。
- ⑥ 数値制御加工後の形状を NH-3SP または NH-5N で測定し、評価する。

以上をおこない、任意の形状を作製する。

なおここで述べる NewView は、Zygo 社製のミラウ型、マイケルソン型の走査型位相シフト干渉顕微鏡(SWLI: scanning white light interferometry)、NH-3SP、NH-5N は三鷹光器社製のレーザーオートフォーカス三次元形状測定器の製品名であり、その原理および特徴について説明する。

まず、NewView について述べる。図 2.6 に光学系のレイアウトを、図 2.7 にミラウ干渉計、図 2.8 にマイケルソン干渉計の光学系を示す[10]。

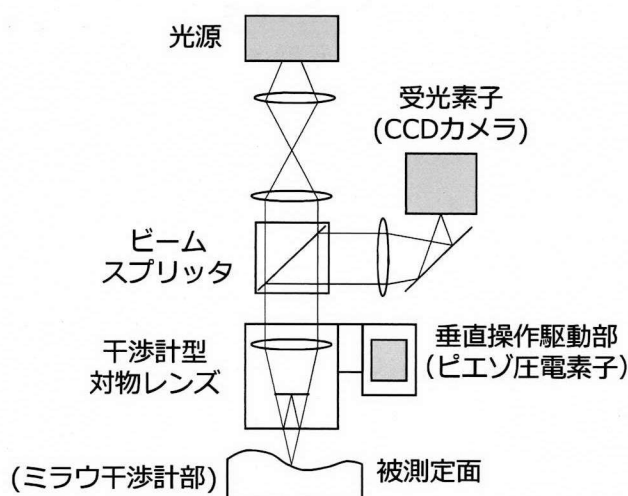


図 2.6 位相シフト干渉顕微鏡

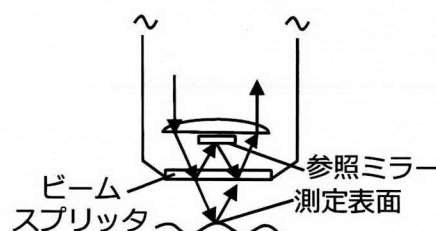


図 2.7 ミラウ干渉計

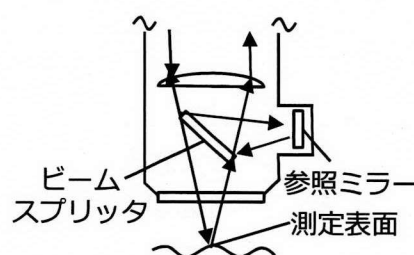


図 2.8 マイケルソン干渉計

光源から出た光は参照ミラーを通過し、ハーフミラーによって参照ミラーへ向かう光と測定面へ向かう光に二分される。これらの光は参照ミラーおよび測定面においてそれぞれ反射し、再びハーフミラーにおいて合流した後、光路差によって生じる干渉パターンを CCD カメラ上に形成する。そして、参照ミラーの垂直走査をおこなうことで、測定面に相当する CCD の各番地におけるフリンジの輝度の変化から形状が計算される。

図 2.6 において光源から出た光はコリメーターレンズにより平行光となり、ハーフミラーにより 2 つの光路に分割（振幅分割）される。2 つに分かれた光束はそれぞれ参照ミラーおよび測定面でそれぞれ反射し、再びハーフミラーにより重ね合わせられ、TV カメラにより干渉縞画像が捉えられる。一方を高精度に研磨された平面（参照ミラー）とし、他方を被検面とすれば、被検面の形状を測定することができる。

図 2.9 に本研究で用いた位相シフト干渉顕微鏡（ZYGO 社製：NewView200CHR）の外観を示す。

次に NH-3SP、NH-5N について説明する。NH-3SP、NH-5N はともに三鷹光器社製のレーザプローブ式超精密非接触 3 次元測定器である[11]。装置構成図を図 2.10、それぞれの仕様を表 2.1 に示す。

NH-3SP、NH-5N の測定原理を説明する。図 2.11 のように顕微鏡鏡筒に送り込まれたレーザ光は、対物レンズを通り、光軸中心の焦点面に向かって進み、サンプル表面

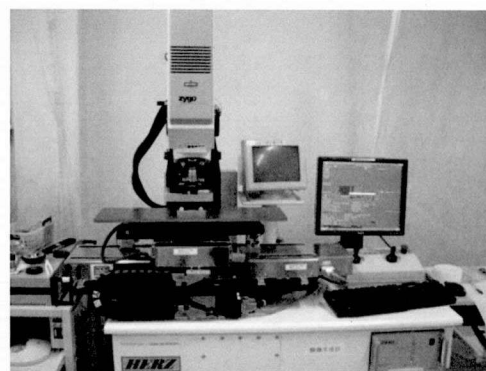


図 2.9 位相シフト干渉顕微鏡の外観

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

に反射して再び対物レンズを通して AF センサー部に結像する。図 2.12 のようにフォーカスが合っていない場合、レーザの位置が変化し、この位置変化  $W$  をセンサーが捉え、AF 駆動機構を用いて対物レンズをフォーカスポイントへ位置決めする。ワークを自動 XY ステージでスキャンさせ、オートフォーカスした各測定ポイントでの XYZ の座標値を PC に出力する。

また本測定装置は 1 点 1 点測定するため、1 測定に数時間から十数時間要する。その際、レーザ、ハロゲンランプ等の熱源からの熱で測定機の各部品が熱膨張し、それが測定誤差として測定データに含まれてしまう。これを回避すべく、図 2.13 に示すように 1 ライン測定するごとにリファレンス点の高さを計測し、1 ラインの始点、終点で 1 次補正することでこの経時変化に対応している。

またバックラッシュ等の影響を最小限にするため、走査方法は片送りとしている。

図 2.14、図 2.15 に本研究で用いた NH-3SP、NH-5N の外観をそれぞれ示す。

表 2.1 NH-3SP,NH-5N 仕様

	NH-3SP	NH-5N
XY 測定範囲 (mm <sup>2</sup> )	150×150	300×410
XY 分解能 (nm)	10	100
Z 測定範囲 (mm)	120	130
AF 軸測定範囲 (mm)	10	10
AF 軸分解能 (nm)	1	10
レーザ波長 (nm)	635	635
フォーカスエリア (μm)	1	1

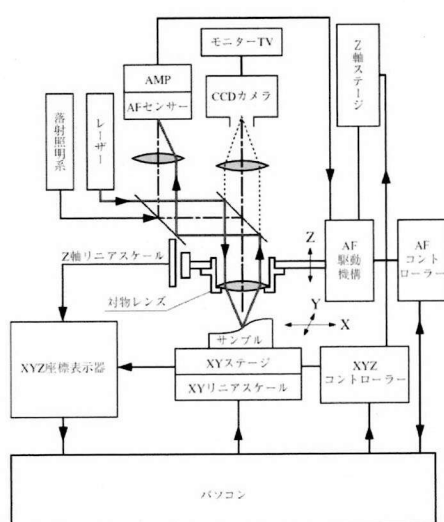


図 2.10 装置構成図[11]

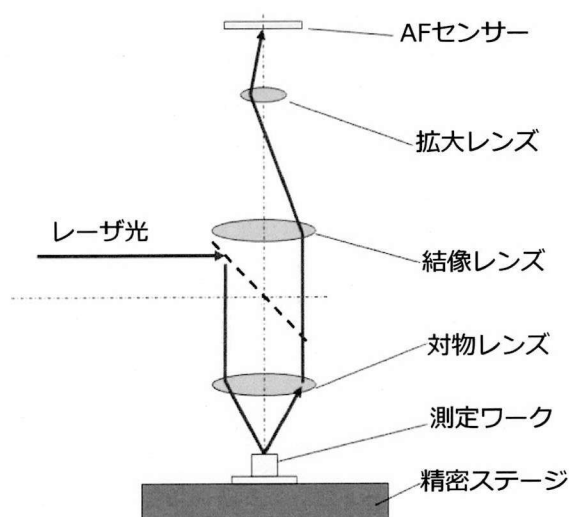


図 2.11 オートフォーカス光学系

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

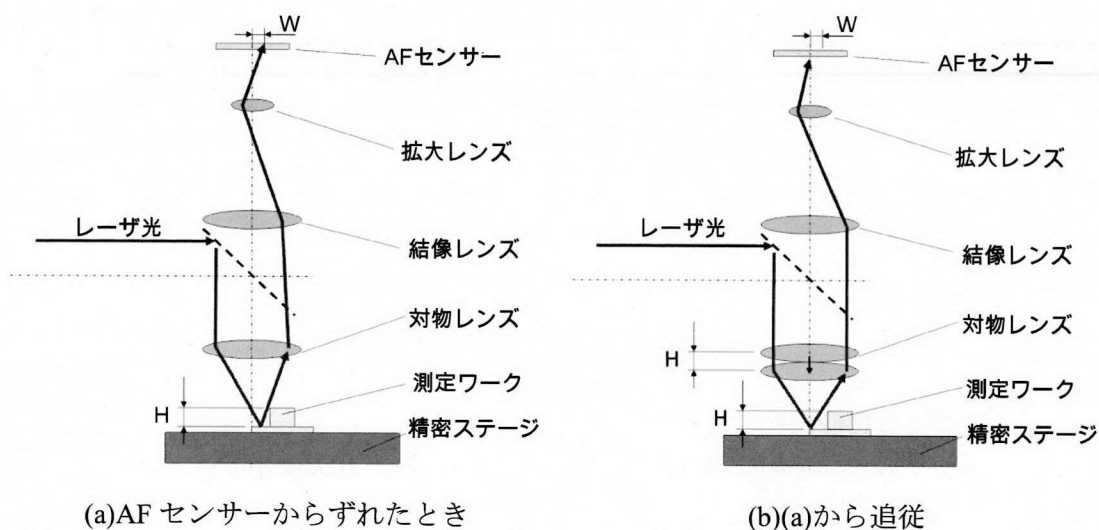


図 2.12 オートフォーカス原理図

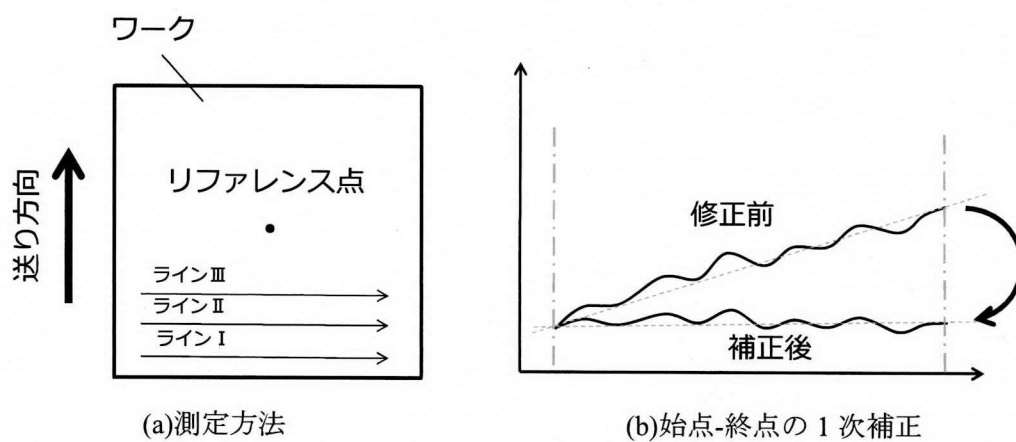


図 2.13 熱膨張に対する1次補正

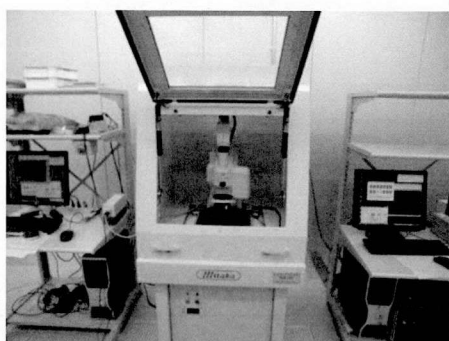


図 2.14 NH-3SP の外観

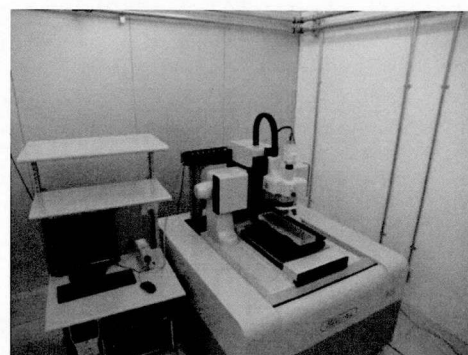


図 2.15 NH-5N の外観

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

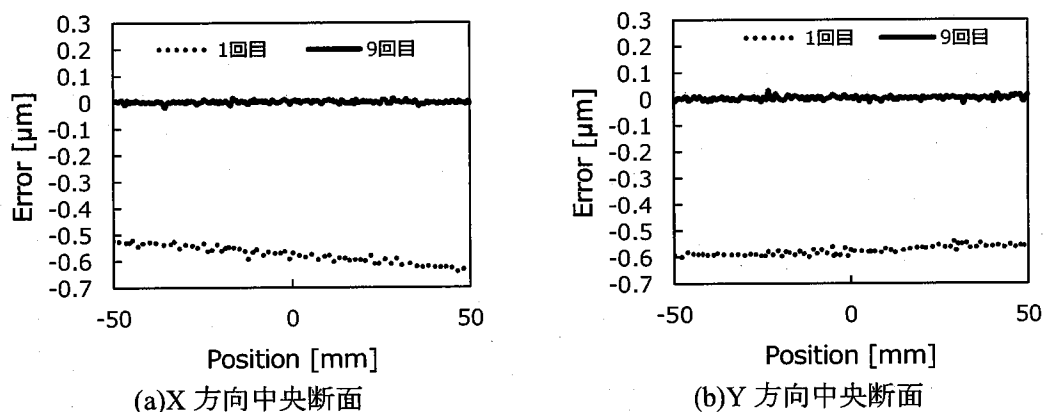


図 2.16 10 回目の測定を基準とした測定再現性

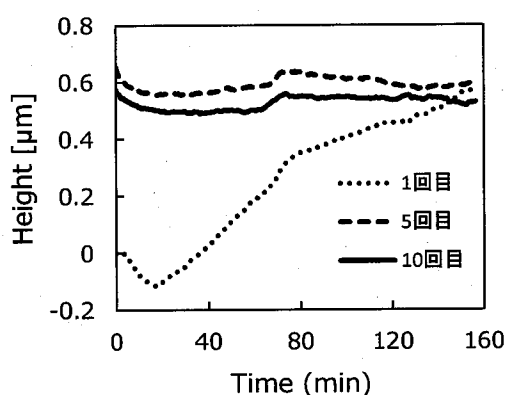


図 2.17 リファレンス点高さの変動

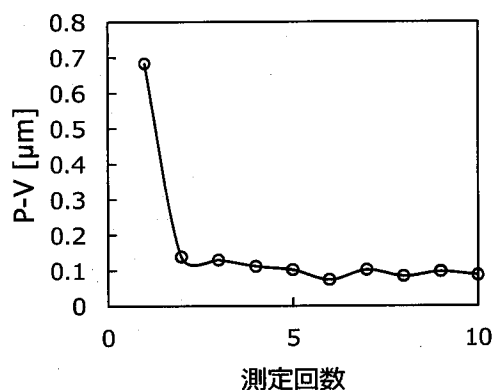


図 2.18 リファレンス点高さの変動の推移

我々が提案する決定論的形状創成を実現するためには、加工前後における形状測定の高い再現性が不可欠である。ここで、NH-3SP の測定再現性について述べる。本装置は恒温室に設置しており、装置内の温度変動は  $23.6 \pm 0.02^\circ\text{C}$  で制御されている。しかしながら、ハロゲンランプ、レーザ等によるオートフォーカス軸、レンズ、試料の熱膨張、XY ステージを走査することによるボールネジ等駆動部の熱膨張は不可避であり、上述した 1 次関数による補正をおこなうことで緩和している。  $150 \times 150 \times 20 \text{ mm}^3$  のオプティカルフラット基板を連続測定し、測定再現性を評価した。  $100 \times 100 \text{ mm}^2$  を  $0.5 \text{ mm}$  ピッチで連続 10 回測定をおこなった。

図 2.16(a)に 1 回目および 9 回目の測定データの X 方向中央断面から 10 回目の測定データの X 方向中央断面を引いた差分値の比較を示す。また同様に図 2.16(b)に Y 方向中央断面の差分値を示す。X 方向、Y 方向ともに 1 回目の測定結果がそれ以降の結果から大きく外れていた。1 次関数による補正をおこなった場合、各測定開始時に測定するリファレンス点高さを基準として測定データ全点がオフセットされる。図 2.17 に連続測定におけるリファレンス点高さの変動を示す。1 回目の測定結果が他の結果から大きく

外れているのは、1回目の測定中の熱膨張の影響が大きく、熱膨張の影響をあまり受けていない測定開始時に取得したリファレンス点高さを用いてデータ全体をオフセットしたからであると考えられる。また全測定において測定開始直後から徐々にリファレンス点高さが減少する傾向にある。測定を基板左下から開始した場合、各回の測定終了時基板右上から基板左下へと大きくステージの移動をおこなう。各回の測定においては、X ステージは1ラインごとに100 mm 走査するが、

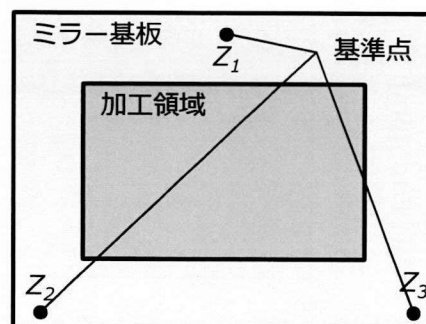


図 2.19 任意の3点を基準点とした平面補正

Y 軸ステージは送りピッチの 0.5 mm ずつしか走査しないため、この大きな走査により熱膨張の状態が大きく変わることと起因すると考えられる。図 2.18 に各回の測定におけるリファレンス点高さの変動の p-v 値の推移を示す。この結果から、3回目以降は安定したリファレンス高さで1次関数補正できていると考えられる。しかしながら、3回目以降においても、全体的なオフセットが存在し、1ラインで100 nm 近い誤差がある。

そこで、各測定間で形状が変化していない3点を基準に平面補正することで、測定再現性を評価した。ミラーを加工する際には、図 2.19 に示すように未加工面部分が存在する。今回、測定開始点を(0,0)としたとき、 $Z_1(0,0)$ 、 $Z_2(100,0)$ 、 $Z_3(50,100)$ となる点を基準に図 2.17 のデータを補正し、評価した。補正後の X 方向断面を図 2.20(a)、Y 方向断面を図 2.20(b)に示す。その結果、1回目を除き、X 方向で 30 nm、Y 方向で 50 nm 程度の測定再現性を得ることに成功した。

以上の結果から、0.5 mm ピッチで  $100 \times 100 \text{ mm}^2$  の領域を1回測定する際に要する2時間40分を暖機運転時間とし、さらに未加工部分の任意の3点で平面補正をおこなうことで、 $100 \times 100 \text{ mm}^2$  の領域を 100 nm p-v 以下の測定再現性をもって測定可能であることがわかった。

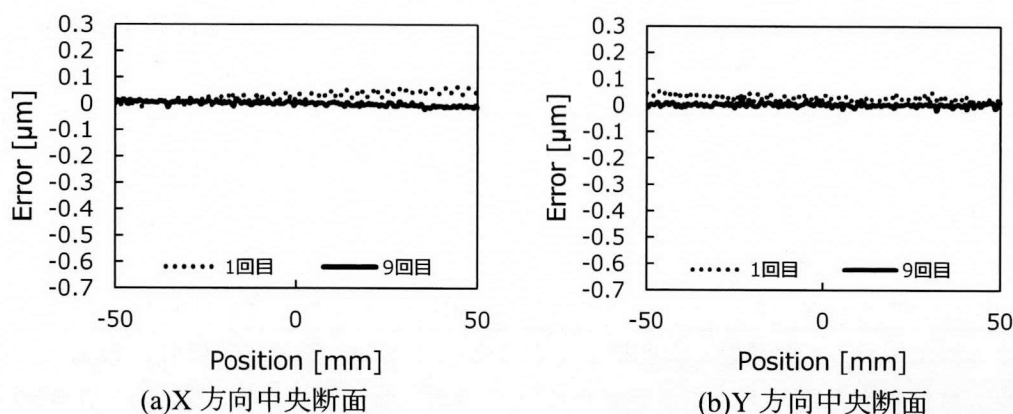


図 2.20 基準点での補正をおこなった10回目の測定を基準とした測定再現性

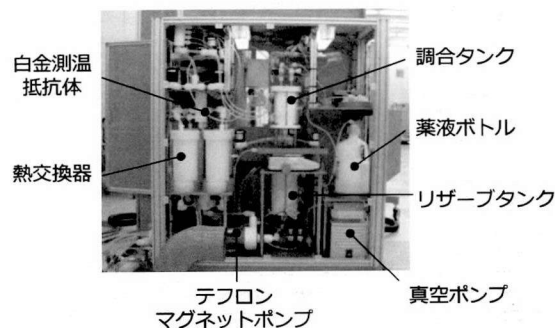
## 2.4 LWE 加工装置

加工の高精度化や複雑な形状の創成に必要とされる要求を満たすこと、さらに安全性の高い装置設計をおこなうことを目的として、5軸制御LWE装置を設計・製作し、大阪大学大学院工学研究科附属超精密科学研究センターのウルトラクリーン実験施設内に設置した。図2.21にLWE装置の外観を示す。5軸制御LWE装置は加工室と機械室、操作盤により構成されている。図2.22に加工室内の外観を示す。加工ノズルは垂直配置されており、加工物面内の移動をする $X$ 、 $Y$ 軸、加工物との距離を制御する $Z$ 軸、ノズルのあたり角度を制御する $a$ 軸を有する。また加工物は、 $b$ 軸ターンテーブル上の試料台上に垂直に固定されており、大型基板を加工する際もフットプリントを節約することが可能である。

機械室内には、主に調合タンク、リザーブタンク、テフロンマグネットポンプ、熱交換器、白金測温抵抗体、真空ポンプが設置されている。ウェットベンチ内で濃度調整された薬液をLWE装置内にセットした後は、数値制御加工、使用済薬液の排出、超純水による装置内洗浄まですべて制御盤により操作可能であり、安全性の高い装置設計となっている。

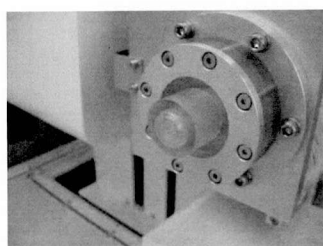


(a) 加工室と操作盤

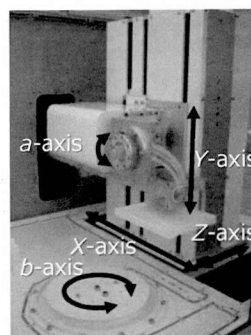


(b) 機械室

図2.21 LWE装置外観



(a) 加工ノズル



(b) 5軸ステージ

図2.22 加工室内外観



### 2.4.1 加工ヘッド部

一般的におこなわれているウェットエッチングは、洗浄もしくはレジスト除去、加工変質層の除去のためにおこなわれている。エッチャントを満たした容器内で侵食するディップ式が主流であるが、改良した手法として、処理対象に薬品を吹き付けるスプレー式、スピナーと呼ばれる回転台に基板を取り付けて、薬品を滴下するスピンスピン式などがある。またウェットエッチングを用いた光学素子の作製法として、Wet-Etch Figuring (WEF) がLaurence Livermore National Laboratory (LLNL)のRushfordらによって報告されている[12]。WEFにおいては、鉛直上向きに配置したエッチャント供給ノズルの周囲を、アルコール等の揮発性の有機溶媒の蒸気で満たし、マランゴニ効果によって生じた表面張力の差によってエッチャントの接液領域をノズルの近傍のみに限定し、局所的なエッチング領域を形成している。したがって、鉛直上方以外のノズル姿勢をとることは困難であり、また、エッチャントの揮発成分が拡散によって加工ポイント以外の基板上に付着し、意図しない場所における加工の進行や表面粗さの悪化を引き起こすことは否めない。そこで本研究では、エッチャントの供給と、さらに真空ポンプの強制吸引によりエッチャントの回収も同時におこなうことができる加工ノズルヘッドを開発した。本加工法では、加工ノズル加工物間の距離をサブミリオーダーに接近させ、2重パイプの内側からエッチャントの供給をおこなう。そして真空ポンプによりリザーブタンクを減圧状態にし、吸引口のスリットからエッチャントの回収をおこなうことで、吸引口の内径φ15mmの領域に一致した、局所的な液相エッチング領域を形成できる。また、周囲の雰囲気ガスも同時に吸引しているため、揮発性エッチャントの拡散の抑制が期待できる。

### 2.4.2 エッチャント循環システム

図2.23にエッチャント循環システムの概念図を示す。エッチャントの調合から、LWE装置内へのエッチャントの導入、エッチャントの循環の一連の流れについて説明する。ウェットベンチ内で最小分解能0.1 gのロードセルを用いて、所望の濃度のエッチャントを調合する。調合したエッチャントの薬液ボトルをLWE装置内にセットし、N<sub>2</sub>ガスにより調合タンクへ圧送し、最小分解能0.1 gのロードセルを用いてエッチャント約3.0 kgを計量し、容量約3 Lのテフロン製リザーブタンクに導入する。リザーブタンクからテフロンマグネットポンプ（アズワン、IFP-611）により送液する。白金測温抵抗体によりエッチャント温度をモニタリングし、恒温槽（アズワン、LTB-400）にフィードバック、PID制御し、熱交換器（フロン工業、F-1098-03）を介してエッチャント温度を一定に制御している。温度が一定に制御されたエッチャントは、超音波流量計（東フコーポレーション、USF100A-G10EP-LIQUID）、流量調整バルブを経由し、加工ノズルに供給される。リザーブタンクを真空ポンプ（ULVAC、DTC-120）により減圧状態にすることで、

## 第2章 ローカルウェットエッチング（LWE：Local Wet Etching）による形状創成

加工物と反応したエッチャントは吸引され、リザーブタンクへと帰還する。排気ガスは、ウルトラクリーン実験施設のスクラバーで処理される。また加工後の廃液は、循環系内への $N_2$ ガスの圧送により、ウルトラクリーン実験施設の廃液タンクへ直接排出される。表2.2に5軸制御LWE装置に使用している主な機器の性能を示す。

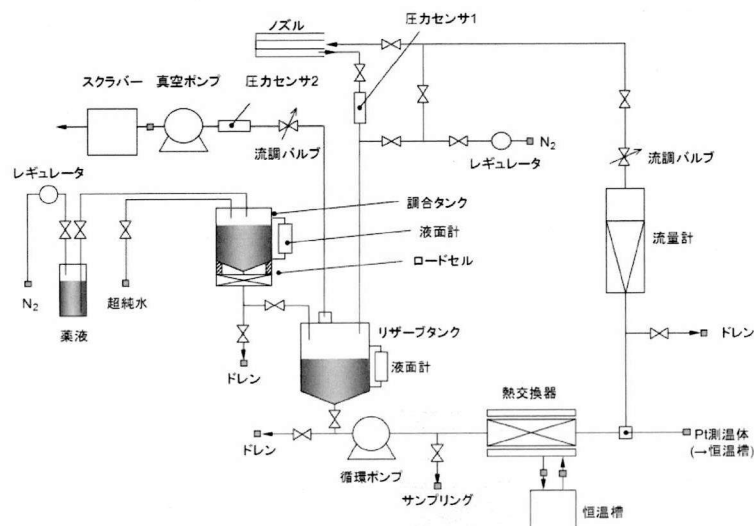


図2.23 LWE装置循環システムの概念図

表2.2 使用している機器の性能.

マグネットポンプ	アズワン社 IFP-611	吐出能力；揚程1mのとき57 L/min
恒温槽	アズワン社 LTB-400	温度調整範囲；-30+80 °C 容量；24.0 L、冷却能力；395 W
流量計	東フロコーポレーション社 USF100A-G10EP-LIQUID	流量測定範囲；50-2000 mL/min 測定精度； $\pm 1\%$ @FS
真空ポンプ	ULVAC社 DTC-120	実効排気速度；140 L/min 到達圧力； $1.0 \times 10^3$ Pa

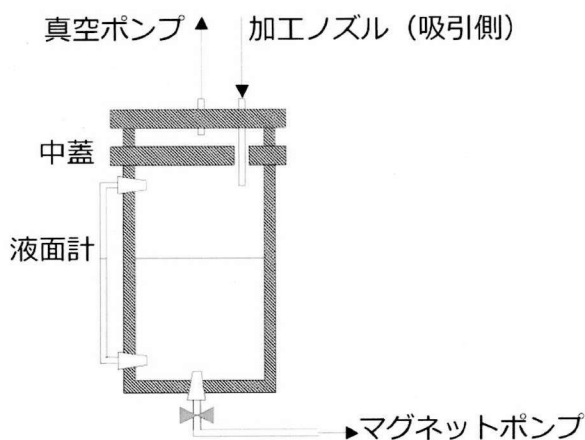


図2.24 リザーブタンクの断面図

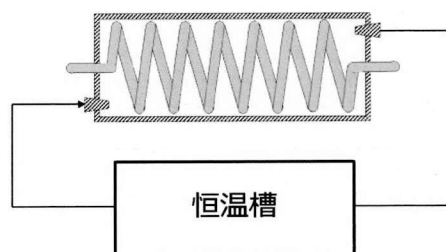


図2.25 熱交換器の断面図

図2.24にリザーブタンクの断面図を示す。リザーブタンクはテフロン製で不透明なため、外部から液量が見えない。エッチャントは、加工が長時間に及ぶと蒸発によって液量が減少するため液面計を設けた。加工中、真空ポンプで排気することにより、リザーブタンク内の圧力は約-30 kPa（図2.23中の圧力センサ1）に維持されている。なお、調合タンクにもリザーブタンクと同様に液面計を設けた。また、調合タンク内は常に大気圧になるように蓋の上部に穴をあけ、大気開放状態にした。

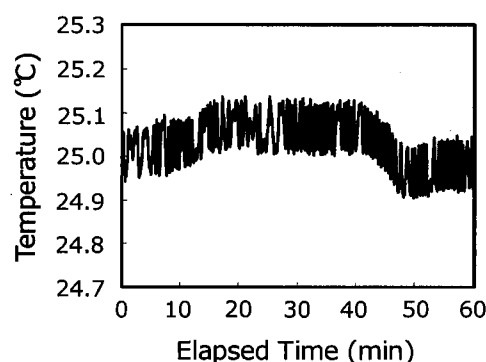


図2.26 加工中のエッチャント温度変化

図2.25に熱交換器の断面図を示す。エッチャント温度を制御するために、恒温槽により温度制御された水を熱交換器に循環させる。エッチャントは、らせん状の外径10mm、内径8 mmのテフロンチューブ（20 巻）内を流れ、所望の温度へ昇温、あるいは降温される。図2.26に加工中の白金測温体により測定したエッチャント温度の変化を示す。60 minに渡り、 $25 \pm 0.15$  °Cに維持できていることがわかる。LWEは化学的な加工法のため、エッチャントの温度や濃度に大きく依存すると考えられるが、この結果より加工中のエッチャント温度の変化によるエッチングレートの変動を抑制し、高精度な加工の実現が可能である。

## 2.5 HF を用いた石英ガラスの加工特性

HF を用いた合成石英ガラスの加工特性について述べる。合成石英基板上に加工ノズルを任意の時間静止させて取得した加工痕形状を NewView により測定した。表 2.3 に加工条件、図 2.27 に加工ノズル外観、図 2.28 に加工痕の 2 次元形状と中央断面形状を示す[13]。

合成石英ガラスは基本的にアモルファス構造であることから、シリコン等の単結晶を化学エッチングする際に生じる面方位に依存したエッチングレートの差異はなく、エッチャントが接触した領域がほぼ均一にエッチングされていることが確認できる。

表 2.3 加工条件

HF 濃度 (wt%)	22.2
HF 温度 (°C)	25
HF 流量 (L/h)	30
加工ノズル径 (mm)	15
加工ギャップ (μm)	300
加工時間 (min)	10

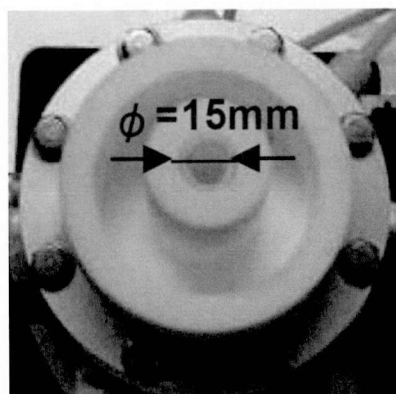


図 2.27 加工ノズル外観[13]

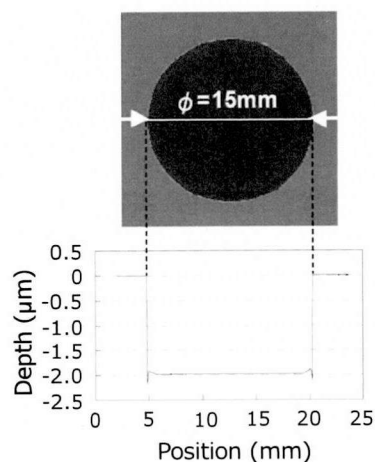


図 2.28 加工痕形状[13]

## 2.5.1 HF と石英ガラスの反応

本加工法は、化学反応を利用した加工法であるため、加工物の材質とエッチャントの組合せが重要である。中性子集光用ミラー基板の材料としては、最終仕上げ研磨工程の容易さから合成石英を用いる。そこで、HF 用いて石英ガラスを加工する場合を考える。

まず HF の特徴について述べる。HF は特異な水素化合物である。HF の化学的特徴として常温で液体であることが挙げられる。

表 2.4 ホウ素族～ハロゲン族元素の水素化合物の沸点  
および標準生成ギブスエネルギー  $\Delta G^0$  : eV/mol gas 298.15 K[14]

ホウ素族	炭素族	窒素族	酸素族	ハロゲン族
B <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	CH <sub>4</sub>	NH <sub>3</sub>	H <sub>2</sub> O	HF
-92.8 °C	-161.5 °C	-33.3 °C	100.0 °C	19.5 °C
+0.90 (+86.7)	-0.53 (-50.79)	-0.17 (-16.45)	-2.99 (-288.57)	-2.83 (-273.2)
	SiH <sub>4</sub>	PH <sub>3</sub>	H <sub>2</sub> S	HCl
	-111.5 °C	-87.8 °C	-60.3 °C	-85.0 °C
	+0.59 (+56.9)	+0.14 (+13.4)	-0.35 (-33.56)	-0.99 (-95.30)
	GeH <sub>4</sub>	AsH <sub>3</sub>	H <sub>2</sub> Se	HBr
	-88.5 °C	-62.5 °C	-42 °C	-66.7 °C
	+1.17 (+113.4)	+0.71 (+68.93)	+0.16 (+15.9)	+0.55 (-53.45)
	SnH <sub>4</sub>	SbH <sub>3</sub>	H <sub>2</sub> Te	HI
	-52 °C	-17.0 °C	-2.2 °C	-36 °C
	+1.69 (+162.9)	+1.94 (+187.4)	+1.43 (+138.5)	-0.02 (-1.70)

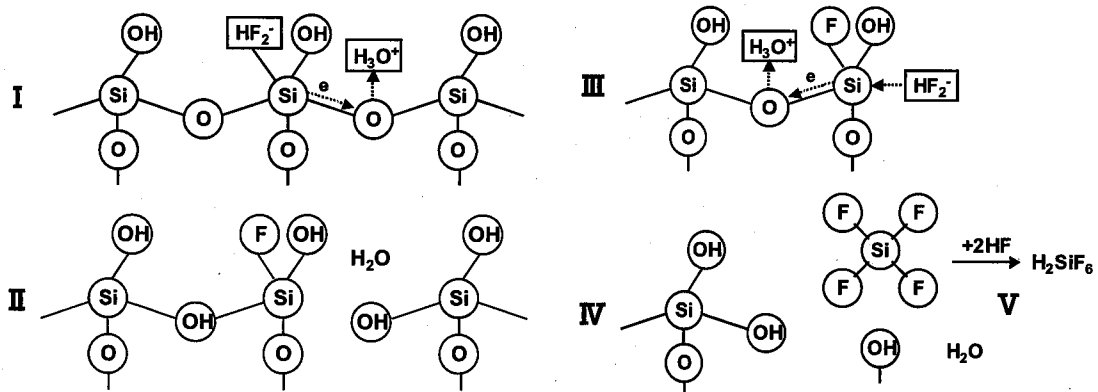


図 2.29 シリコン酸化膜とフッ化水素酸の液相反応における電子授受メカニズム

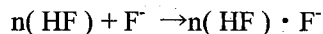
表 2.4 に周期表の配列でホウ素族-ハロゲン族の水素化合物の沸点および標準生成ギブスエネルギーを示した[14]。これら軽元素の水素化合物は気体であるのが正常である。しかし、ほとんどの水素化合物の沸点が総てマイナス温度である中で、水と HF のみが例外として異常に高い沸点を持ち、常温で液体である。これは水素結合による分子会合のためである。また、水と HF の結合エネルギーは大きく、さらに水素結合により分子が安定化している。水と HF がともにイオンへの解離定数が小さいのはこのためである。

HF 水溶液中の HF の解離平衡反応式を(2.4)、(2.5)に示す。



解離状態は HF 濃度により次の領域に分けられると考えられている[15-18]。

1. HF 濃度が 0.0001 mol/kg 以下の完全解離領域
2. HF 濃度が 0.0001-0.01 mol/kg で未解離の HF と HF<sub>2</sub><sup>-</sup>イオン (SiO<sub>2</sub> に対するエッチングで支配的なイオン) が生成するが、未解離の HF 生成が主反応である領域
3. HF 濃度が 0.01-1 mol/kg では未解離の HF と HF<sub>2</sub><sup>-</sup>イオンの生成が進行するが、HF<sub>2</sub><sup>-</sup>イオンの生成が主反応となる領域
4. HF 濃度が 1-10 mol/kg では HF<sub>2</sub><sup>-</sup>イオンの生成が進行していく
5. HF 濃度 10 mol/kg のクラスターイオンの生成が進行していく領域



濃度により解離状態が様々な形態をとるのは、HF の酸解離平衡定数が液温 25 °C において  $1.67 \times 10^{-4}$ - $1.30 \times 10^{-3}$  と報告されており、平均値として  $6.26 \times 10^{-4}$  と小さな値をとるからである(ref. HCl: 酸解離平衡定数  $K = 10^8$ )。

石英ガラスの O-Si-O 結合構造を切断するには、反応イオン種との間の電子授受が必

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

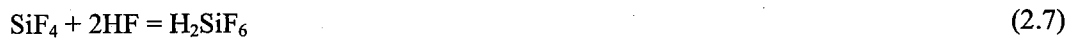
要である。図 2.29 に石英ガラス表面と HF の液相反応における電子授受メカニズムを示す[19,20]。

石英ガラス表面の Si-4 配位構造 (末端基を -Si-OH としている) を、結合角を無視して模型的に表している。Si-O 結合電子は、電気陰性度の差により O の側にひきつけられ、 $\text{Si}^{\delta+}\text{-O}^{\delta-}$  の状態にある。(2.4)式、(2.5)式により生成している電子供与体  $\text{HF}_2^-$  が  $\text{Si}^{\delta+}$  に接近し、電子受容体  $\text{H}_3\text{O}^+$  が  $\text{O}^{\delta-}$  に接近する。 $\text{HF}_2^-$  の電子が O-Si-O 結合鎖を通り  $\text{H}_3\text{O}^+$  に受容される I ~ IV のプロセスで F-Si-F 結合が形成され、 $\text{SiF}_4$  が構造表面から遊離し、V のプロセスでイオン反応により  $\text{H}_2\text{SiF}_6$  が生成する。

電子授受プロセス : I-IV



イオン反応 : V



なお、図 2.29 の  $\text{SiO}_2$  構造モデルでは、末端基を OH 基で表して電子授受メカニズムの混同を避けている。しかし、実際には(2.8)式で示す反応が進行し、OH 基から F 基への置換が並行して起こっている。



以上から、HF による石英ガラスのエッチングは基板表面層から加工が進行していく。また、LWE は化学的な手法を用いた加工法であるため、加工速度はエッチャント温度に大きく依存するが、熱交換器を使用してエッチャント温度を一定に保つことで安定した加工速度を維持できる。さらに図 2.3 に示したように、供給口より基板表面に供給されたエッチャントは基板表面に接触し反応した後、吸引口から外気とともに吸引され、循環されるため、石英ガラスと HF の反応により生成された副生成物である  $\text{H}_2\text{SiF}_6$  は基板表面に滞留することなく、基板表面には常に新鮮なエッチャントが供給される。よって、本手法は単なる浸漬エッチングとは異なり、長時間において安定した加工速度を得ることができる。

### 2.5.2 体積加工量の走査速度依存性

本手法において、加工精度を高めるためには加工時の体積加工量の安定性を向上することが重要である。体積加工量の走査速度依存性について PCVM と比較しながら説明する。LWE と PCVM の大きな違いは LWE がエッチャント温度を常温付近で制御可能であるのに対して、PCVM はプラズマからの熱流入による基板表面の温度上昇が不可避な点である。そこで、まず PCVM を用いてシリコンと合成石英ガラスを加工した際の体積加工量の走査速度依存性について説明し、その後、LWE を用いて合成石英ガラスを加工した際の走査速度依存性について説明する。

## 第2章 ローカルウェットエッチング（LWE：Local Wet Etching）による形状創成

図2.30にPCVMによるシリコン、合成石英ガラスの走査速度依存性を示す。表2.5にシリコンと合成石英ガラスの物性値を示す。PCVMではシリコンのように熱伝導率の高い材料を加工する場合、体積加工量と走査速度の逆数の関係は高い線形性を示すが、合成石英ガラスのように熱伝導率の低い材料を加工する場合は低走査速度域になるにつれて体積加工量が非線形に増加していく[21]。これは、熱伝導率の低い石英ガラスの場合、低速走査時はプラズマからの熱流入による基板温度上昇の影響が大きく、エッチング反応が促進されるためである。

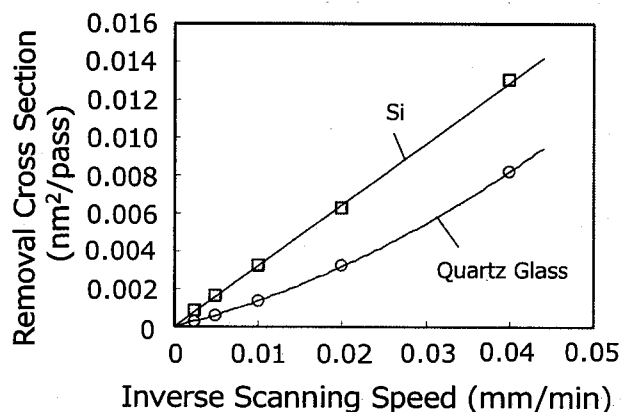


図2.30 PCVMによるシリコン、合成石英ガラス加工の走査速度依存性[21]

表2.5 シリコンと合成石英ガラスの物性

	シリコン	合成石英ガラス
熱伝導率 ( $\text{W} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ )	1.49	0.0135
ガス組成比( $\text{He}:\text{CF}_4:\text{O}_2$ )	99.4:0.3:0.3	99.4:0.3:0.3
投入電力(W)	140	500
ギャップ( $\mu\text{m}$ )	1000	750
電極周速度(m/s)	10	10

表2.6 加工条件

HF 濃度 (%)	20
HF 温度 ( $^\circ\text{C}$ )	25
流量 (L/h)	30
ギャップ ( $\mu\text{m}$ )	400
使用ノズル	二重パイプ型
走査速度 (mm/min)	100、133、200、400

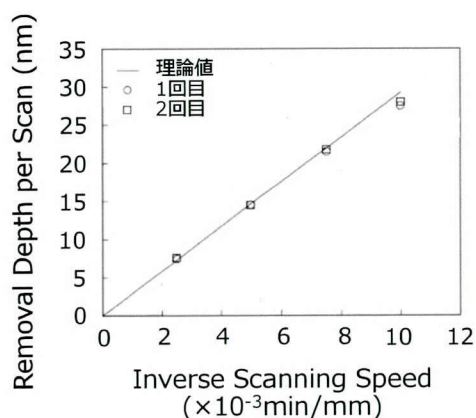


図 2.31 走査速度の逆数と加工深さの関係[13]

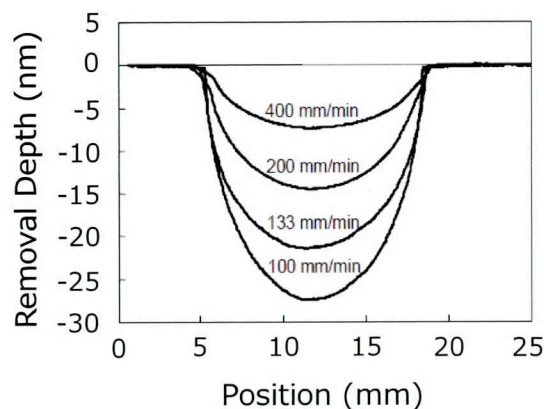


図 2.32 走査速度とライン加工断面形状の関係[13]

このように PCVM は加工する材料によって加工特性が大きく変化するため、熱伝導率の低い材料を加工する場合、試料全面にわたって体積加工速度を一定に保つのは難しい。それに対して LWE はウェットエッチングであるためエッチャントの温度制御は容易である。そこでエッチャント温度を常温の  $25^{\circ}\text{C}$  に制御した LWE を用いて合成石英ガラスを加工し、走査速度と加工量の関係を調べた。表 2.6 に実験条件を示し、図 2.31 に走査速度と加工量の関係、図 2.32 に走査速度とライン加工断面形状の関係を示す。加工量と走査速度の関係を調べる実験は再現性を確認するために 2 回おこなった。

LWE においては室温を  $25^{\circ}\text{C}$  に設定することでガラス基板の表面もエッチャントも同じ温度で加工することが可能であり、基板温度の変化による体積加工速度の変動を抑制することができる。そのため熱伝導率の低い合成石英ガラスに対しても走査速度の逆数、すなわちエッチャントの接触時間と体積加工量に非常に高い線形性が再現性よく得られ、理論値とも一致した。また、図 2.32 から走査速度によってライン加工断面形状幅は変わらず、加工深さだけが走査速度に単純に反比例していることが分かる。この結果から体積加工速度の走査速度依存性はほとんどなく、高い制御性を持って NC 加工がおこなえると考えられる。

### 2.5.3 体積加工速度の HF 濃度依存性

次に石英ガラスの加工における体積加工速度の HF 濃度依存性について述べる。LWE は化学反応を用いた加工であるため、エッチャント濃度が高くなるにつれて反応種が増加し、加工速度は大きくなる。しかしながら、HF の場合解離定数が極めて小さいため、反応のメカニズムは濃度によって大きく異なり、単純に濃度と加工速度は線形の関係にはならない。HF 濃度を変化させた場合の合成石英ガラスの加工特性について述べる。



## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

それぞれの加工速度を加工深さで比較するために表 2.7 に示す各濃度で静止加工痕を取得した。図 2.33 に HF 濃度と深さ方向のエッチングレートの関係を示す。

図 2.33 より HF 濃度とエッチングレートの関係は非線形であることがわかる。また活性化エネルギーは HF 濃度の増加に伴い短調に減少している。HF 濃度とエッチングレートの関係が線形な関係にならない理由としては、HF 濃度の増加にともない  $H^+$  イオン濃度が増加するためであると考えられる。この  $H^+$  イオンが熱シリコン酸化膜に対するエッチングの急激な上昇およびエッチング反応の活性化エネルギーの低下に影響していると考えられているため[14,19]、被加工物が合成石英の場合でも同様の現象が起こっていると考えられる。

また図 2.34 にエッチャント濃度の変動とエッチングレートの変動の関係を示す。初期加工 HF 濃度を 20 wt% に設定し、加工の安定性を考えた場合、加工速度を 1 % 以内で安定化させるためには、HF 濃度を  $\pm 0.11$  % 以内に維持する必要があることがわかる。

表 2.7 加工条件

HF 濃度 (wt%)	5、10、15、17.5、20、22.5、 25、27.5、30、35、40、50
HF 温度 (°C)	25
HF 流量 (L/h)	30
加工ギャップ ( $\mu m$ )	300
静止加工痕取得時間 (min)	10

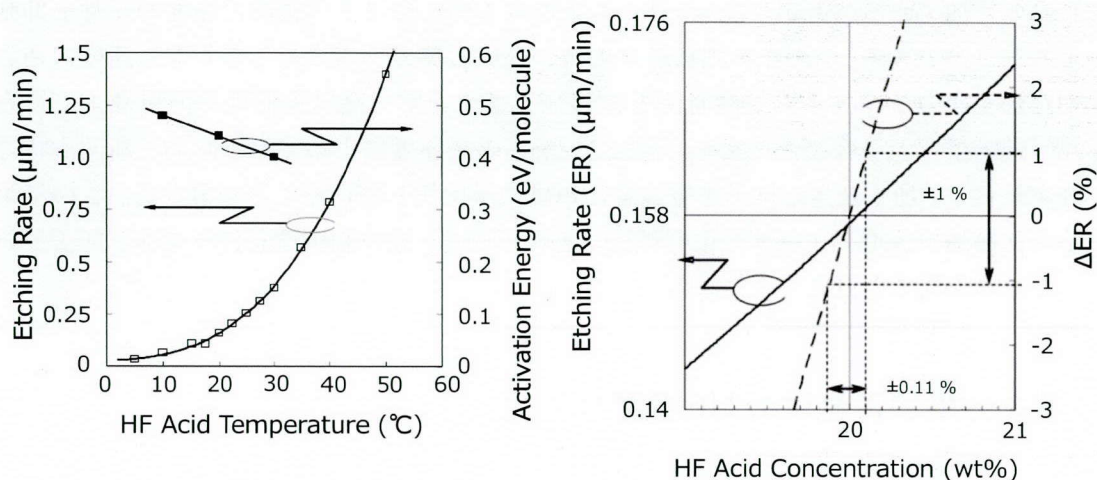


図 2.33 エッチャント濃度とエッチングレートの関係[13]

図 2.34 エッチャント濃度の変動とエッチングレートの変動の関係[13]

## 2.5.4 体積加工速度の HF 温度依存性

次に HF 温度と体積加工速度の関係について述べる。LWE は化学反応を用いた加工であるため、HF と石英ガラスの反応領域における温度が加工速度に大きく影響する。そこで、HF 温度を 15 °C、20 °C、25 °C、30 °C、35 °C、40 °C、50 °C と変化させて体積加工速度を比較した。さらに、それぞれの濃度におけるアレニウスプロットをとり、HF の石英ガラスに対する活性化エネルギーを求めた。表 2.8 に実験条件を示す。図 2.36 に HF 温度と深さ方向の加工速度の関係を示し、さらに指数関数の近似曲線から各濃度での HF の石英ガラスにおける活性化エネルギー  $\Delta E$  を求めた。

図 2.36 から、HF 温度と加工速度の関係は指数関数的に変化していることが確認できる。初期の HF 温度を 25°C に設定し、加工の安定性を考えた場合、加工速度を 1% 以内で安定化させるためには、HF 温度を  $\pm 0.18^\circ\text{C}$  以内に維持する必要があることがわかる。これに関しては、加工中常に HF 温度を白金測温体によりモニタリングすることにより、熱交換器を用いて HF 温度変化をフィードバック制御している。こちらに関しては、図 2.26 に示すように  $25 \pm 0.15^\circ\text{C}$  で制御可能である。

表 2.8 加工条件

HF 温度 (°C)	15、20、25、30、35、40、50
HF 濃度 (wt%)	20
流量 (L/h)	30
ギャップ ( $\mu\text{m}$ )	300
静止加工痕取得時間 (min)	15

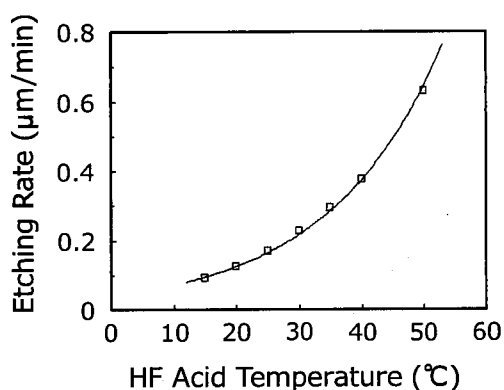


図 2.36 HF 温度と加工速度の関係

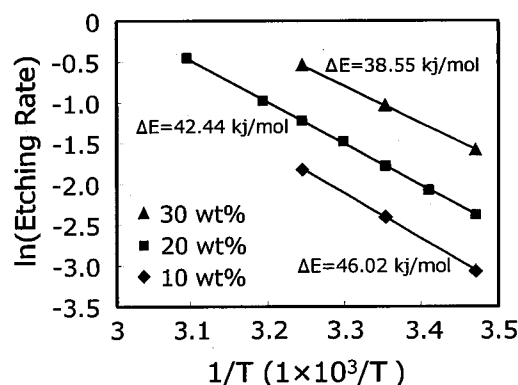


図 2.37 各濃度におけるアレニウスプロット

図 2.37 より濃度 10、20、30 wt% の HF の石英ガラスに対する活性化エネルギーはそれぞれ、 $\Delta E=46.02、42.44、38.55$  kJ/mol であると算出された。アレニウスプロットが高い線形性を有することから、LWE はエッチャントを循環することで常に新鮮なエッチャントを加工表面に滞留なく供給できており、加工表面では HF と石英ガラスが化学的に反応しエッチングが進行しているものであると考えられる。さらに図 2.36 より 20 wt% の HF でも 40 °C まで温度を上昇させることで 2 倍以上の体積加工速度が得られることがわかる。

### 2.5.5 共沸濃度の HF を用いた形状創成

共沸濃度とは、液相における HF と H<sub>2</sub>O の比率を保ったまま気化する濃度のことである。フッ化水素酸を共沸濃度に保つことで加工中のエッチャントの濃度変化を抑制することが可能である。本節では、共沸濃度を用いた際のエッチングレートの安定性について評価した結果について述べる。

図 2.38 に示すように HF の共沸濃度は 35 wt% 付近であることが報告されている[22]。共沸濃度とは、気相、液相ともに同じ比率の状態であり、その濃度はモル分率と同義である。ラウールの法則より、混合溶液の各成分の蒸気圧はそれぞれの純液体の蒸気圧と混合溶液中のモル分率の積で表され、気液平衡に達した際の成分  $i$  の蒸気圧  $P_i$  は

$$P_i = P_i^* \times \chi_i \quad (2.9)$$

となる。ここで  $P_i^*$  は成分  $i$  の純液体での蒸気圧、 $\chi_i$  はモル分率である。

また、物質が気液平衡の状態にあるとき温度、圧力、および気体、液体それぞれの体積の関係を表わしたクラウジウス-クラペイロン式から

$$\frac{dP}{dT} = \frac{L}{T(v_g - v_l)} \quad (2.10)$$

と表される。ここで、 $T$  は温度、 $P$  は圧力、 $v_g$  は気体のモル体積、 $v_l$  は液体のモル体積、 $L$  はモル蒸発熱である。これらの式から、共沸濃度がエッチャント温度と容器圧力に依存することがわかる。しかしながら、これらの式は、混合溶液中の物質が互いに相互作用しない理想溶液を仮定しており、HF のように HF と H<sub>2</sub>O が水素結合している溶液に適用・計算することは難しい。また LWE 装置においては、加工ノズル部とリザーブタンク部で圧力差が大きく、正確に圧力を定義できない。よって、今回開発した LWE 装置における共沸濃度を実験的に求め、その加工精度を評価した。

濃度の算出は、中和滴定によりおこなった。中和滴定は、酸と塩基の定量的な中和反応を利用した滴定であり、酸または塩基の試料に濃度が既知の塩基または酸の標準液を滴下していき、その消費量から試料の濃度を求める。中和反応においては、酸や塩基の濃度によって pH が変化し、理論的には当量点で終結する。当量点付近では急激な pH の変化が見られ、当量点を検出するため酸塩基指示薬を用いる。指示薬によって検出さ

## 第2章 ローカルウエットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

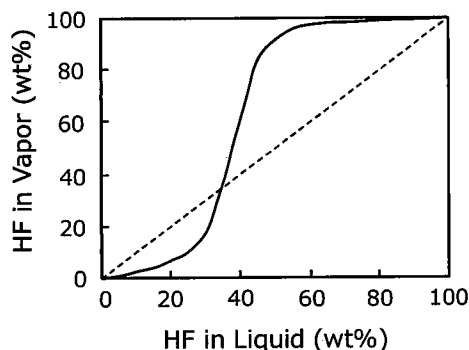


図 2.38 HF の気液平衡線図[22]

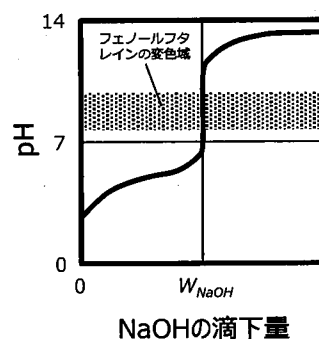


図 2.39 弱酸と強塩基の滴定曲線

れる滴定終点は当量点と区別され、指示薬としては滴定終点の pH において鋭敏に色調の変化するものを選択する。HF は結合距離が小さく、他の HF 分子、 $H_2O$  分子間で水素結合しているため、上述のように酸解離定数が小さく、弱酸である。よって、図 2.39 に示すように、滴定に用いる塩基には強塩基である水酸化ナトリウムを用い、指示薬には塩基側に変色域をもつフェノールフタレイン溶液を用いた。中和滴定の手順を以下に示す。

- ① 電子天秤上にビーカーAを設置する。
- ② 採取した HF 溶液  $W_{HF1}$  (約 10) g をビーカーA に入れ、電子天秤で計量する。
- ③ ビーカーA に超純水  $W_{H_2O1}$  (約 40) g を入れ、計量し、希釈する。
- ④ 電子天秤からビーカーA を移動し、ビーカーB を設置する。
- ⑤ ビーカーA からビーカーB に希釈した HF 溶液  $W_{HF2}$  (約 10) g を入れ、計量する。
- ⑥ ビーカーB に超純水  $W_{H_2O2}$  (約 40) g を入れ、計量し、希釈する。
- ⑦ 電子天秤からビーカーB を移動し、ビーカーC を設置する。
- ⑧ ビーカーB からビーカーC に希釈した HF 溶液  $W_{HF3}$  (約 10) g を入れ、計量する。
- ⑨ ピペットを用いてビーカーC にフェノールフタレイン溶液を 1 滴入れる。
- ⑩ マイクロピペットを用いて NaOH の滴下をおこなう。濃度が予想できる場合は、粗滴下用のマイクロピペットを用いる。
- ⑪ 溶液の色が変色した際の NaOH の滴下量( $W_{NaOH}$  g)から HF 濃度( $C_{HF}$ )を算出する。

以上から、採取した HF 溶液の濃度は

$$C_{W_{HF}} = \frac{W_{NaOH} \times 10^{-3} \times C_{m_{NaOH}}}{D_{NaOH}} \div \left( \frac{W_{HF1}}{W_{HF1} + W_{H_2O1}} \times \frac{W_{HF2}}{W_{HF2} + W_{H_2O2}} \times W_{HF3} \div M_{HF} \right) \times 100 \quad (2.9)$$

と算出される。ここで、 $C_{m_{NaOH}}$  は NaOH のモル濃度(1.005 mol/L)、 $D_{NaOH}$  は NaOH の密度(1.0410 g/mL)、 $M_{HF}$  は HF の分子量(20.01)である。

ビーカー、攪拌棒はフッ酸耐性、強アルカリ耐性のある PFA 製のものを用いた。中和滴定に用いた薬液、機器、器具の仕様を表 2.9 に示す。本条件によって、中和滴定をおこなうことで HF の濃度を 0.01 wt% 以下の精度で算出することが可能である。

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

表 2.9 中和滴定に用いた薬液、機器、器具の仕様

フェノールフタレイン溶液	キシダ化学社	1.0 wt/vol %, 無色 7.8 < pH < 10 紅色
水酸化ナトリウム水溶液	キシダ化学社	1.005 mol/L @20 °C
電子天秤	Mettler Toledo 社	秤量 ; 220 g、繰り返し性 ; 0.1 mg、 直線性 ; 0.2 mg
マイクロピペット(粗滴下)	アズワン社	容量範囲 ; 100-1000 $\mu$ L、絶対誤差 ; P1000N $\pm$ 3.0-8.0 $\mu$ L、再現性 ; 0.6-1.5 $\mu$ L
マイクロピペット	アズワン社	容量範囲 ; 0.2-2.0 $\mu$ L、絶対誤差 ; P2N $\pm$ 0.024-0.03 $\mu$ L、再現性 ; 0.012-0.014 $\mu$ L

市販の電子工業用 50 wt% HF を超純水で希釈することで 37 wt% に調合し、エッチャント温度を 23°C、リザーブタンク内の圧力は約-30 kPa として、24 時間塩ビ製のダミー基板上で走査した。その後、エッチャントを採取し、中和滴定により濃度を算出した結果、33.58 wt% であった。新たに 50 wt% HF を超純水で希釈し、33.58 wt % になるよう調合した。調合した HF を LWE 装置に導入し、0 min、10 min、30min、60 min、120 min、180 min、240 min、300 min、360 min、420 min、900 min において、それぞれ 10 min 静止加工痕を取得した。また 0 min、420 min、900 min においてエッチャントを採取し、中和滴定により濃度を算出した。図 2.40 に総加工時間に対するエッチングレートとエッチャント濃度の関係である。エッチングレート、エッチャント濃度ともに 900 min における値を 1 として変動を示した。0 min、420 min、900 min の HF 濃度はそれぞれ 34.090、33.586、33.575 wt% であった。0 min における初期濃度の誤差は装置内に残留していた HF の影響ならびに調合時の誤差であると考えられる。この結果から、7 時間以降ではエッチングレートは 0.1 % 以下の変動であり、エッチャント濃度の変動と一致する。

これらの結果から、エッチャント温度を 23°C、リザーブタンク内の圧力を約-30 kPa としたときの共沸濃度は 33.58 wt% であることがわかった。共沸濃度の HF を用いて形状創成をおこなうことで、加工中の濃度変動を 0.1 % 以下に抑制できることがわかった。

長時間におけるエッチングレートの安定性を評価するため、エッチャント温度を 40°C リザーブタンク内の圧力は約-30 kPa として図 2.41 に示すようにラスタースキャンにより等速面加工をおこなった。走査距離 120 mm、送りピッチ 0.2 mm、走査速度 60 mm/min

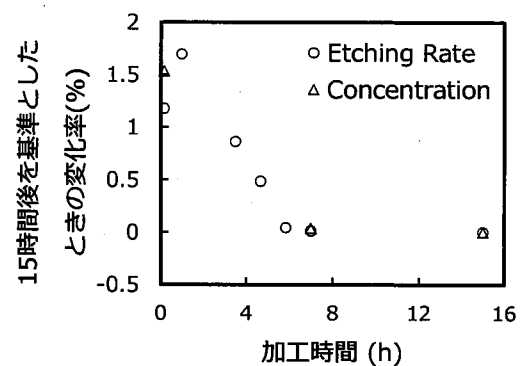


図 2.40 総加工時間に対するエッチングレートとエッチャント濃度の関係

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

とした。基板の材質は合成石英、サイズは L 152 mm×W 152 mm×T 6.35 mm で、総加工時間は約 12 時間である。加工前後の表面形状は NH-3SP で測定した。加工ノズルは  $\phi 15$  mm のものを持ちいた。

図 2.42 に等速面加工後の送り方向中央断面 (A-A') を示す。図 2.42(b) 中の直線は加工領域底部における近似直線であり、送り方向 60 mm に対して加工深さの平均変化量は 64 nm であった。平均加工深さに対する加工深さの変化量は 0.5 % 以下であり、総加工時間 12 時間にわたって、エッチャント濃度、エッチャント温度

が一定に保たれていたことがわかる。等速面加工中、エッチャント温度は設定温度に対して  $\pm 0.05$  °C に制御できており、恒温槽の応答に応じた 1-10 分程度の短時間における温度変動による加工量変化を考慮しても、総加工時間 24 時間程度の加工においてはエッチングレートの変動を 1 % 以下に抑制できることが確認された。面加工時におけるエッチャントの濃度変動の要因としては、反応種の消費と副生成物の生成、蒸発が挙げられる。反応種の消費と副生成物の生成に関しては、現在エッチャントは 3 kg を循環しており、それに対して本手法において 24 時間加工をおこなった場合の石英ガラスの溶出量は 0.6 g と大変微量であるため、これをエッチングレートの変化として概算すると 0.018 wt% であり、エッチングレートへの影響は非常に小さいことがわかる。蒸発による濃度変化に関しては、共沸濃度の HF を用いることで影響なく加工をおこなうことができる。

これらの結果より、本手法において共沸濃度の HF を一定温度に保つことで総加工時間 24 時間程度の加工においてはエッチングレートの変動を 1 % 以下に抑制できることが確認された。本手法は、PCVM、EEM 等の化学的加工法と比較して体積加工速度も非常に速く、また完全な化学エッチングであるのでダメージフリーかつ表面粗さも悪化させない。エッチングレートの変動を 1 % 以下に抑えることにより、数  $\mu\text{m}$  の形状誤差をトライ&エラーなしに 100 nm 以下に形状修正することが可能である。よって、本手法は中性子集光用楕円面ミラー基板のみならず、非球面レンズ、電子基板製造に用いられるフォトマスク等のナノメートルレベルの形状精度が求められる高精度光学素子に対して、高能率かつ高精度な加工法であることが証明された。

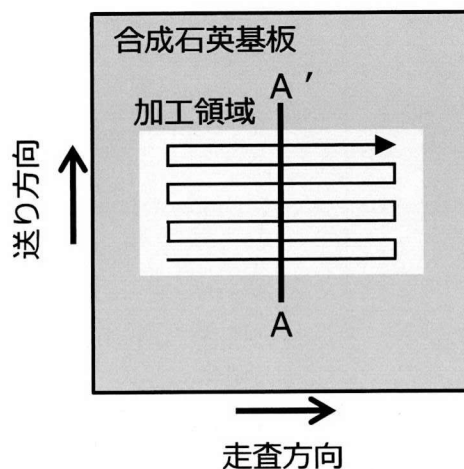


図 2.41 面加工図



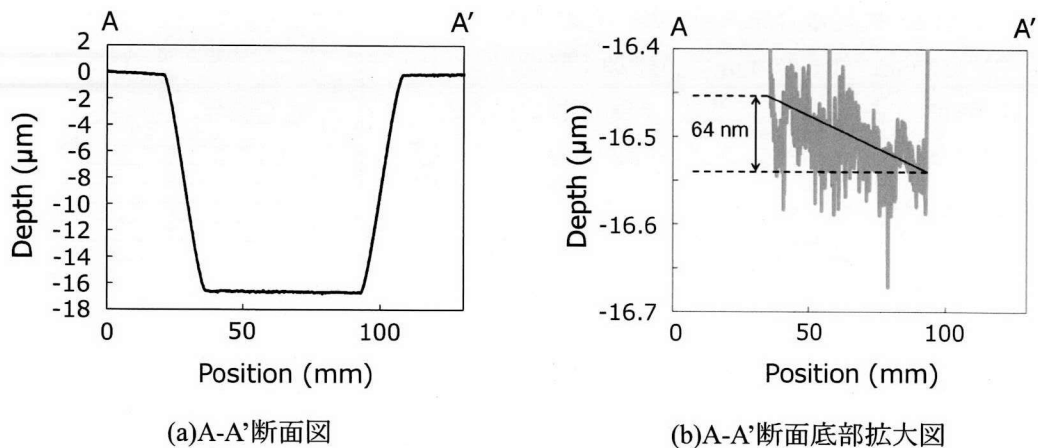


図 2.42 等速面加工後の送り方向中央断面

### 2.5.6 LWE 加工における表面粗さに関する考察

前節では LWE における石英ガラスの加工特性を主に体積加工速度の観点から述べた。本節では、LWE 加工における表面粗さについて調査した。中性子集光用ミラーでは  $m=4$  ( $m$  は Ni 単層膜の何倍の臨界角を有するかを示す) の反射臨界角にて 70 % 以上の高い反射率を実現するため、0.3 nm rms 以下の表面粗さが要求される。研削や切削といった強制加工においては、高い形状精度が得られる反面、10 nm rms 以下の優れた表面粗さを得るのは難しい。形状創成加工後、表面粗さ改善のための研磨工程を導入する場合、加工前の表面粗さが悪いと研磨における加工量が増大する。研磨工程においては、加工領域全体において加工量を一定に保つのは難しいため、加工量の増大は、形状精度の悪化に直接的に影響する。

LWE は非接触の化学エッチングを加工原理とした加工法であるので、基本的には加工前の基板表面のモフォロジーが加工後の表面に引き継がれる。本節では、各空間波長成分における LWE 加工前後の表面粗さを SWLI ならびに原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて測定し、比較した。

LWE 加工前の基板には  $152.4 \times 152.4 \times 6.35 \text{ mm}^3$  の合成石英製基板を用意した。LWE の加工条件を表 2.10 に示す。図 2.43、図 2.44 に、LWE 加工前後の基板の表面粗さ像を示す。

LWE により基板全面を約 30  $\mu\text{m}$  加工した結果、SWLI 低倍率観察像 ( $5.17 \times 3.88 \text{ mm}^2$ ) において基板由来のうねりの表出、ラスタースキャン方式でノズルを走査する NC-LWE 加工において原理的に生じる送りマークが観察された。これらの低周波粗さ成分については、次章で詳しく述べる。SWLI 高倍率観察像 ( $127 \times 95 \mu\text{m}^2$ ) においては、加工前の表面に観察された 50-100  $\mu\text{m}$  周期のうねりが強調され、加工変質層由来のスクラッチ、穴状の粗さ成分が観察された。AFM 像では、SWLI 高倍率観察像と同様に加工変質層由来

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

の穴状の粗さ成分が観察された。

浸漬エッチングにおけるエッチング後表面粗さの比較をおこなった。表 2.11 に浸漬条件を示す。図 2.45、図 2.46 に浸漬前後の基板の表面粗さ像を示す。

低倍率での SWLI 像を見ると、LWE 加工後同様に、基板の素材由来のうねりが表出し、AFM 像からは加工変質層由来の穴状の粗さ成分が観察された。しかし、高倍率での SWLI 像に見られる 70-100  $\mu\text{m}$  周期のうねりや AFM 像での p-v 値の大きな変化は、浸漬エッチング前の表面粗さ像から考えて、加工変質層の表出によるものではなく、浸漬エッチングそのものに由来すると考えられる。図 2.47 に LWE 加工前後ならびに浸漬エッチング前後の測定領域に応じた rms 表面粗さを示す。

合成石英の HF エッチングにおいては、エッチング後表面はエッチング前の表面のモフォロジーに強く依存する。今回 LWE 加工実験に使用した合成石英基板は、浸漬エッチング実験に使用したものと研磨状態が異なり、表面粗さが悪い。それにも関わらず、エッチング後は LWE 加工後の方が優れた表面粗さを達成していることが確認できる。また測定領域が大きくなるにつれ、浸漬エッチング後の表面粗さ悪化が著しい。HF 浸漬における数  $\mu\text{m}$  周期の高周波粗さ成分の増加は副生成物である  $\text{H}_2\text{SiF}_6$  の滞留が原因の一つと考えられる。浸漬エッチングでは、エッチング反応で発生する  $\text{H}_2\text{SiF}_6$  が基板表面上に滞留することで  $\text{H}_2\text{SiF}_6$  の濃度分布が生じ、基板表面に新たなエッチャントが均等に供給されずエッチングレートの分布が存在していると推察される。

以上の結果から、LWE はエッチャントを循環し、基板表面上に高い流速をもって接触し、副生成物が滞留することなくエッチング反応が進行することで、表面粗さの悪化は最小限に抑えられ、浸漬エッチングでは得られない優れた表面粗さを得ることがわかった。また LWE 加工後、目的の表面粗さを実現するための研磨工程を導入する際、非常に少ない加工量で目的の表面粗さを実現できることが示唆される。

表 2.10 LWE 加工条件

HF 温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	40
HF 濃度 (wt%)	37
流量 (L/h)	24
ギャップ ( $\mu\text{m}$ )	300
加工ノズル径 (mm)	15
エッチング深さ( $\mu\text{m}$ )	30
送りピッチ(mm)	0.5
走査速度(mm/min)	10



## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

表 2.11 浸漬エッチング条件

HF 温度(°C)	21
HF 濃度(wt%)	10
攪拌の有無	あり (スターラー)
エッチングレート( $\mu\text{m}/\text{min}$ )	0.06
エッチング深さ( $\mu\text{m}$ )	30

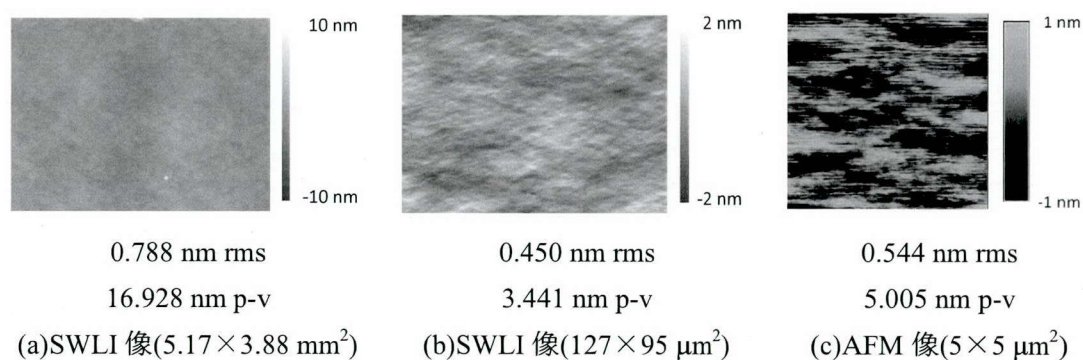


図 2.43 LWE 加工前表面粗さ

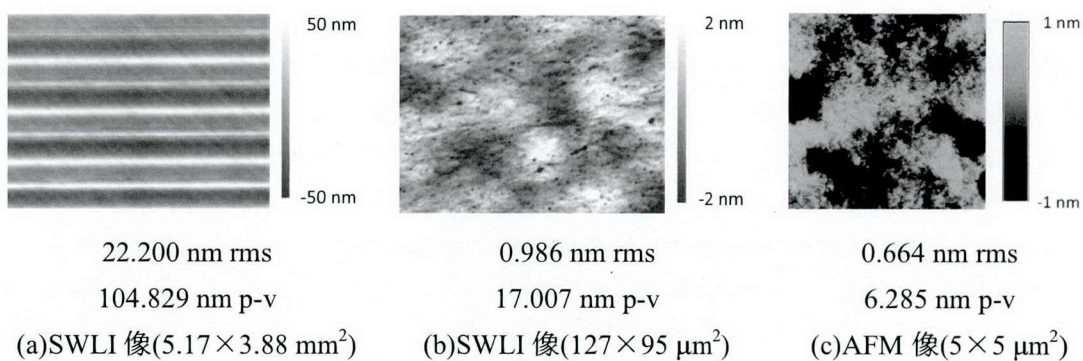


図 2.44 LWE 加工後表面粗さ

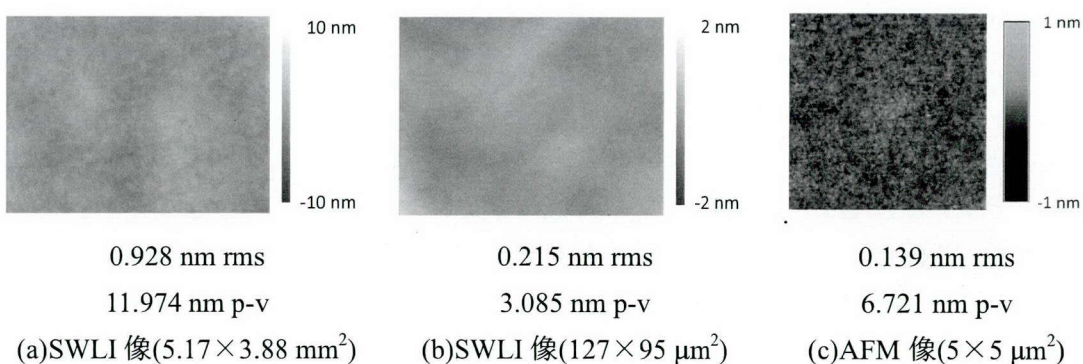


図 2.45 浸漬エッチング前表面粗さ

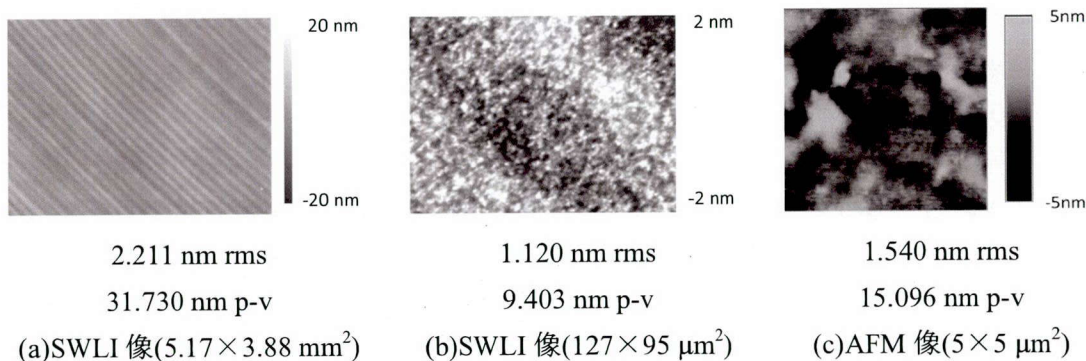


図 2.46 浸漬エッチング後表面粗さ

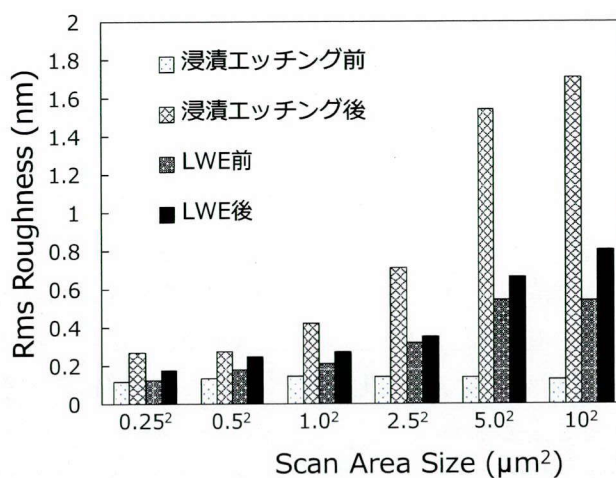


図 2.47 測定領域に応じた rms 表面粗さ

## 2.6 結言

第2章では、LWE の加工原理ならびに加工ノズルの滞在時間制御による形状修正加工理論について述べた。また HF を用いた石英ガラスの加工特性について述べ、共沸濃度の HF を用いた形状創成について検討した。以下に本章で得られた結果と知見をまとめる。

- (1) HF を用いた合成石英ガラスの LWE 加工では、吸引により気化したエッチャントによる加工痕周辺部の表面粗さ悪化を防ぐことができ、未加工面と比べて表面粗さを維持することのできる加工法であるといえる。
- (2) LWE は化学反応を利用した非接触加工であり、機械加工に見られる母性原理による加工精度の悪化などがない。また、エッチャントの組成やノズルの径を変えることで高い体積加工速度が得られる。

- (3) NC-LWE による形状創成理論について述べた。形状計測に用いたレーザーオートフォーカス式三次元形状測定器の測定再現性について検討し、0.5 mm ピッチで  $100 \times 100 \text{ mm}^2$  の領域を 1 回測定する際に要する 2 時間 40 分を暖機運転時間とし、未加工部分の任意の 3 点で平面補正をおこなうことで、 $100 \times 100 \text{ mm}^2$  の領域を 100 nm p-v 以下の測定再現性をもって測定可能であることがわかった。
  - (4) 5 軸制御 LWE 装置を設計し、大阪大学大学院工学研究科附属超精密科学研究センターのウルトラクリーン実験施設内に設置した。エッチャント温度を白金測温抵抗体により測定し、恒温槽と熱交換器を用いてフィードバックすることで  $25 \pm 0.15 \text{ }^\circ\text{C}$  に制御できることを示した。
  - (5) 加工量の走査速度依存性に関して、PCVM との比較をおこなった。PCVM ではプラズマからの熱流入により基板表面の温度が上昇するため、合成石英ガラスのように熱伝導率の低い材料を加工した場合、走査速度と加工速度とは非線形な関係となり、加工の制御性が低下する。それに対し、LWE はエッチャント温度の制御が非常に容易で、常温付近に設定することにより走査速度と加工速度は線形な関係を有することがわかった。このことより、LWE による形状創成においては、材料の熱伝導率に起因する加工精度の悪化がないことが確認された。
  - (6) HF 濃度と加工量の関係では、HF 濃度と単位加工深さの関係は非線形になることがわかった。また、初期加工 HF 濃度を 20 wt% に設定し、加工の安定性を考えた場合、加工速度を 1 % 以内で安定化させるためには、HF 濃度を  $\pm 0.11 \%$  以内に維持する必要があることがわかった。
  - (7) HF 温度と加工量の関係では、エッチャントの温度と加工速度は指数関数的な関係にあり、アレニウスプロットより LWE の加工は単純に化学反応だけによるものであることが確認された。さらに初期加工 HF 温度を  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  に設定し、加工の安定性を考えた場合、体積加工速度を 1 % 以内で安定化させるためには、HF 温度を  $\pm 0.18 \text{ }^\circ\text{C}$  以内に維持する必要があることがわかった。
  - (8) HF 水溶液には共沸濃度が存在する。共沸濃度の HF 溶液を用いて等速面加工をおこない、長時間の加工安定性について評価した結果、12 時間で 0.5 % 以下の加工量の変動であり、非常に安定した体積加工速度で長時間加工できることがわかった。この結果は、長時間の形状修正加工においてもトライアンドエラーなしに目的形状への形状修正が決定論的に可能であることを示している。
  - (9) LWE はエッチャントを循環し、基板表面上に高い流速をもって接触し、副生成物が滞留することなくエッチング反応が進行することで、表面粗さの悪化は最小限に抑えられ、浸漬エッチングでは得られない優れた表面粗さを得ることができるとわかった。また LWE 加工後、目的の表面粗さを実現するための研磨工程を導入する際、非常に少ない加工量で目的の表面粗さを実現できることが示唆された。
- 以上から、我々が開発した NC-LWE プロセスは、体積加工速度がエッチャント温度、

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

エッチャント濃度にのみ依存する非常にシンプルな加工法であり、加工能率、加工後形状精度、加工後表面粗さの観点からも我々が目的とする中性子集光用非球面スーパーミラーの形状創成に最適な加工法であるといえる。

### 参考文献

- [1] 松永正久, 井田一郎, 小川智哉, 高須新一郎編 : エレクトロニクス用結晶材料の精密加工技術, サイエンスフォーラム (東京) (1985) 577.
- [2] 森 勇藏, 津和秀夫, 杉山和久 : EEM (Elastic Emission Machining) の基礎研究 (第1報) — 極微小弾性破壊の概念とその可能性 —, 精密機械, **43** (1977) 542.
- [3] 森 勇藏, 井川直哉, 奥田徹, 杉山和久 : EEM (Elastic Emission Machining) による超精密数値制御加工法, 精密機械, **46** (1980) 1537.
- [4] 森 勇藏, 山内和人, 遠藤勝義 : 極限精密加工技術, 精密工学会誌, **57** (1991) 36.
- [5] Y. Mori, K. Yamauchi, K. Yamamura, Y. Sano : Development of plasma chemical vaporization machining, Rev. Sci. Instrum., **71** (2000) 4627.
- [6] Y. Mori, K. Yamamura, Y. Sano : The study of fabrication of the X-ray mirror by numerically controlled plasma chemical vaporization machining -development of the machine for the X-ray mirror fabrication, Rev. Sci. Instrum., **71** (2000) 4620.
- [7] K. Yamamura, S. Shimada, Y. Mori : Damage-free improvement of thickness uniformity of quartz crystal wafer by plasma chemical vaporization machining, Ann. CIRP, **57** (2008) 567.
- [8] 角田均 : シリコンウエハー表面マイクロラフネスの評価 — パワースペクトル解析の応用 —, 応用物理, **66** (1997) 1316.
- [9] 小澤 亮, 鈴木 豊, 森 尚子, 矢口 富雄, 伊藤 順司, 山本恵彦 : 表面粗さの評価 / パワースペクトル密度と傾きヒストグラム, 表面科学 **20** (1999) L49.
- [10] 佐藤 敦 : 白色干渉法を利用した最新の表面形状評価技術, 表面技術, **57** (2006) 554.
- [11] 三鷹光器社 HP:  
<http://www.mitakakohki.co.jp/mitaka/products/industry/2008/06/nh3sp.html>
- [12] M. C. Rushford, J. A. Britten, S. N. Dixit, C. R. Hoaglan, M. D. Aasen, L. J. Summers : Wet-etch Figuring for Precision Optical Contouring, Appl. Opt., **42** (2003) 5706.
- [13] K. Yamamura : Fabrication of Ultra Precision Optics by Numerically Controlled Local Wet Etching, Ann. CIRP, **56/1** (2007) 541.
- [14] 大見忠弘, 新田雄久, 三木正博 : フッ素化学が拓くプロセスイノベーション, サイペック株式会社.
- [15] 藪根辰弘 : 解離制御されたフッ酸系薬液による高精度ウェットエッチング技術に関

## 第2章 ローカルウェットエッチング (LWE : Local Wet Etching) による形状創成

する研究, 博士論文.

- [16] P. A. Giguere and S. Turrell : The Nature of Hydrofluoric Acid. A Spectroscopic Study of the Proton-Transfer Complex  $\text{H}_3\text{O}^+\text{-F}^-$ , J. Am. Chem. Soc., **102** (1980) 5473.
- [17] L. H. Jones and R. A. Penneman : Infrared Absorption Spectra of Aqueous  $\text{HF}_2^-$ ,  $\text{DF}_2^-$ , and  $\text{HF}$ , J. Chem. Phys., **22** (1954) 781.
- [18] H. H. Hyman, M. Kilpatrick and J. J. Katz : The Hammett Acidity Function  $H_0$  for Hydrofluoric Acid Solutions, J. Am. Chem. Soc., **79** (1957) 3668.
- [19] 大見忠弘 : ウェットサイエンスが拓くプロダクトイノベーション, サイペック株式会社.
- [20] T. A. O'Donnell, Fluorine, Comprehensive inorganic chemistry, Pergamon Press, New York, **2** (1973) 1009.
- [21] K. Yamamura, Y. Sano, M. Shiobahara, K. Yamamuchi, H. Mimura, K. Endo, Y. Mori : Ultraprecision Machining Utilizing Numerically Controlled Scanning of Localized Atmospheric Pressure Plasma, Jpn. J. Appl. Phys., **45** (2006) 8270.
- [22] Honeywell 社 HP : <http://www51.honeywell.com>

## 第3章 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの開発

### 3.1 緒言

大強度の微小中性子ビームを達成するため、中性子集光用非球面スーパーミラーには、大面積、大きな曲率を有しながらもサブマイクロメートルレベルの形状精度とサブナノメートルレベルの表面粗さが求められる。

米国の放射光施設 Advanced Light Source の研究者らによって板バネを利用したベンディングミラーシステムが開発され[1]、Oak Ridge 国立研究所では、本ミラーシステムを用いた中性子集光技術の開発が精力的に進められている[2,3]。ベンディングミラーの概念図を図3.1に示す。これはミラー両端に板バネを設置し、板バネとともにその下に設置した部材をミラー長手方向に移動させることによりミラー端部に力を加えミラーを変形させる機構である。現在、実際のビームラインにおいて形状測定器とこの機構を組み合わせたベンディングミラーシステムが試作され、集光能力の向上が図られている[4]。

しかしながら、中性子集光用スーパーミラーの設計  $m$  値( $m$  は Ni 単層膜の何倍の臨界角を有するかを示す)に見合った大きな見込み角を持たせるため変形量が大きくなることで、理想形状への変形は難しくなる。また、ミラーサイズが大きくなることで変形の制御が難しくなる。さらに、共用ビームラインにおいては中性子ビームの利用できる割当時間は限られており、ミラー形状のアライメントに時間がかかるとその分中性子ビームを用いた主実験に使用できる時間が短くなってしまうというのは大きな課題点である。そして、高精度化を図るための形状測定器設置等コスト面でも巨額なものとなり導入が難しい。

これに対して、我々が提案して開発するプロセスは高精度かつ高効率に理想形状を有した作り込みミラーを作製することを目標とし、最小限のアライメントのみで中性子ビームの集光を可能とするユーザーオリエンテッドなミラーデバイスを開発する。

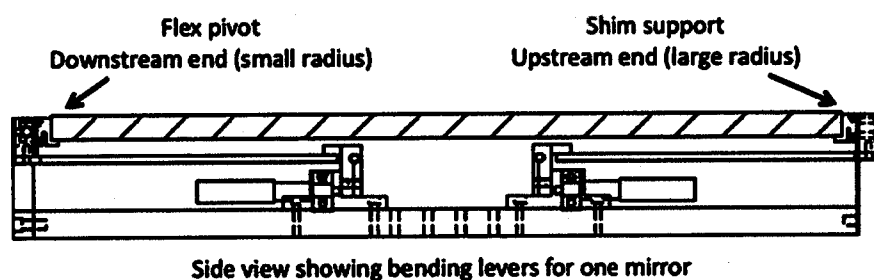


図 3.1 ベンディングミラーシステム [3]

## 3.2 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの概要

中性子集光用ミラー基板には、成膜するスーパーミラーに応じた大きな見込み角をとるために大きな曲率が必要とされる。そのため、長さ 100-500 mm のミラー基板においても、ミラーの最大加工深さは数十-数百  $\mu\text{m}$  以上となり、また強度増強のためにはミラー長さを長くする必要がある。そのため、量産の必要はないにしても、現実的な時間でミラー作製をおこなうために高能率なミラー作製プロセスが求められる。我々は、図 3.2 に示すプロセスで高効率かつ高精度な中性子集光用ミラー作製プロセスを構築する。

インゴットから切り出した合成石英基板を購入 [各工程における目標、目標値]

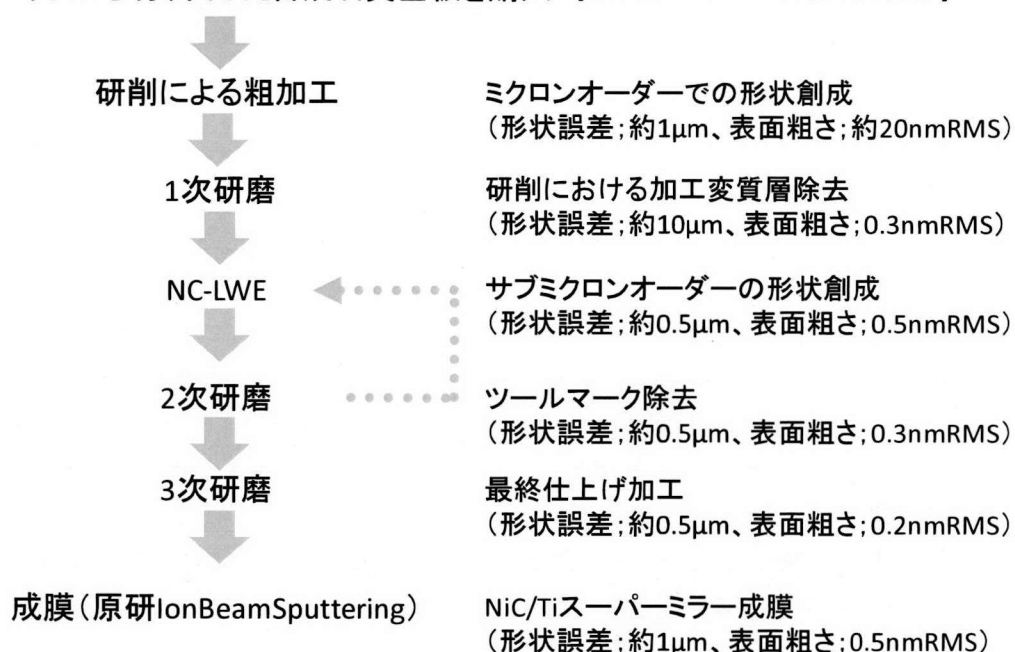


図 3.2 中性子集光用ミラー作製プロセスにおける目標、目標値

表 3.1 研削条件

砥石番手	砥石サイズ(mm)	砥石回転数(rpm)	総切り込み量(mm)	ステップ量(mm)
#325	$\phi$ 230x13	2400	0.632	3
#1200	$\phi$ 200x8	1200	0.005	1
#3000	$\phi$ 255x13	1000	0.004	0.5



### 3.3 研削による粗加工

研削加工は、砥粒を結合剤で固着した円柱状の砥石を高速回転させて被加工物の表面を砥粒の切削作用によって除去する加工法であり、短時間でマイクロメートルレベルの形状精度が得られる加工技術である。今回、ナガセインテグレックス株式会社にご協力いただき、平面研削盤を用いて NC 加工をおこなった。

図 3.3 に研削盤の外観を示す。砥石はレジン

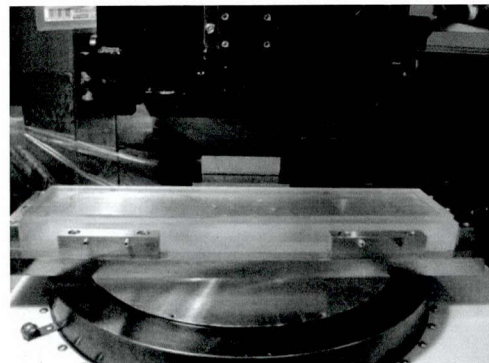


図 3.3 研削加工機外観

ボンドタイプのダイヤモンドホイール#325、#1200、#3000 を順に適用した。加工条件を表 3.1 に示す。レジンボンド砥石を用いることで砥粒の自生作用の進行が早く、鋭利な切れ刃を保って加工することが可能である。

### 3.4 HF 浸漬・低圧研磨による加工変質層除去

加工変質層除去のための HF 浸漬ならびに低圧研磨工程を適用した。図 3.4 に研磨装置外観を示す。スラリーは平均粒径  $1\text{ }\mu\text{m}$  のセリアスラリー（昭和電工社:SHOROX A-10）を用いて、形状を崩さないように発泡ポリウレタン製の  $\phi 15\text{ mm}$  の小径パッドを一定圧力（ $4.9\text{ N}$ ）で回転させ、等速でラスタースキャン（送りピッチ  $0.5\text{ mm}$ ）することにより研磨をおこなった。前述した研削加工は強制加工であり、被加工面には大きな加工圧力がかかり、加工後の表面下にはマイクロクラック等の加工変質層が導入される。加工変質層の除去をおこなわず、数値制御ローカルウェットエッチング、ローカル低圧研磨をおこない作製した楕円面基板上にイオンビームスパッタ成膜により  $m=4$  の NiC/Ti スーパーミラーを成膜した際、成膜室から取り出した直後にミラーが剥離する現象を確認している。この剥離現象の原因を検証するため、ミラー剥離後基板を硫酸浸漬により洗浄し、基板表面を光学顕微鏡で観察した。図 3.5 に光学顕微鏡像を示す。この像から、基板表面が貝殻状に破碎剥離している様子が確認できる。

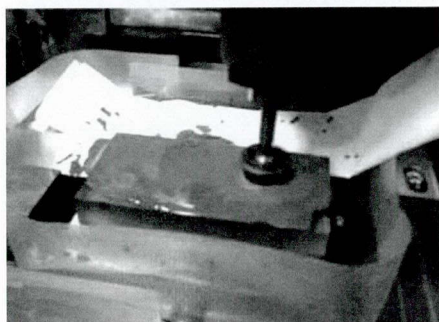


図 3.4 粗研磨加工機外観

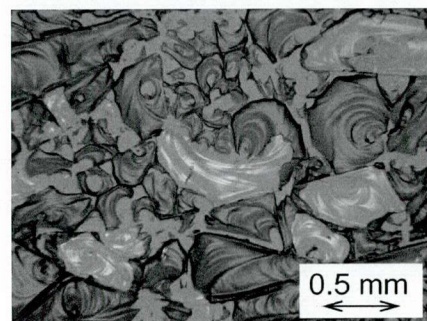


図 3.5 剥離後基板表面の光学顕微鏡像



### 第3章 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの開発

ネトロンスパッタ成膜と比較して、スパッタされる粒子の運動エネルギーが数 10 eV と我々の提案するプロセスにおいては、スーパーミラーの成膜技術としてイオンビームスパッタ成膜を適用している。イオンビームスパッタ成膜では、電子ビーム蒸着やマグ高く、高密着力の膜を成膜できる。そのため、膜総数 1000 層を超えるスーパーミラーを剥離することなく成膜可能である。高い密着力が得られる反面、成膜時に多層膜には大きな膜応力が導入される。 $m=4$  の NiC/Ti スーパーミラーを成膜した際には GPa レベルの圧縮応力が導入されることを確認している。膜応力の評価に関しては、次章で述べる。この GPa レベルの圧縮応力により、加工変質層部分が多層膜の圧縮膜応力に耐え切れず破砕したことが剥離の原因であると推察できる。

表 3.1 の条件で、長さ 400 mm、最大加工深さ 470  $\mu\text{m}$  の楕円面を研削により形状創成し、導入される加工変質層の深さを 10 wt% の HF 中に浸漬してエッチングし、その表面を観察することにより調査する。図 3.6 に各エッチング深さにおける表面の光学顕微鏡像を示す。研削後の基板には走査方向に研削痕が観察された。10  $\mu\text{m}$  エッチングすることで研削痕と同じ方向にエッチピットが表出し、200  $\mu\text{m}$  エッチングすることで基板表面全体にエッチピットが表出した。このエッチピットが全面に表出したミラー基板を低圧研磨により深さ方向に約 30  $\mu\text{m}$  研磨し、さらに 5  $\mu\text{m}$  エッチングして表面を観察した結果、図 3.6(d)に示すように新たな加工変質層の表出は見られなかった。

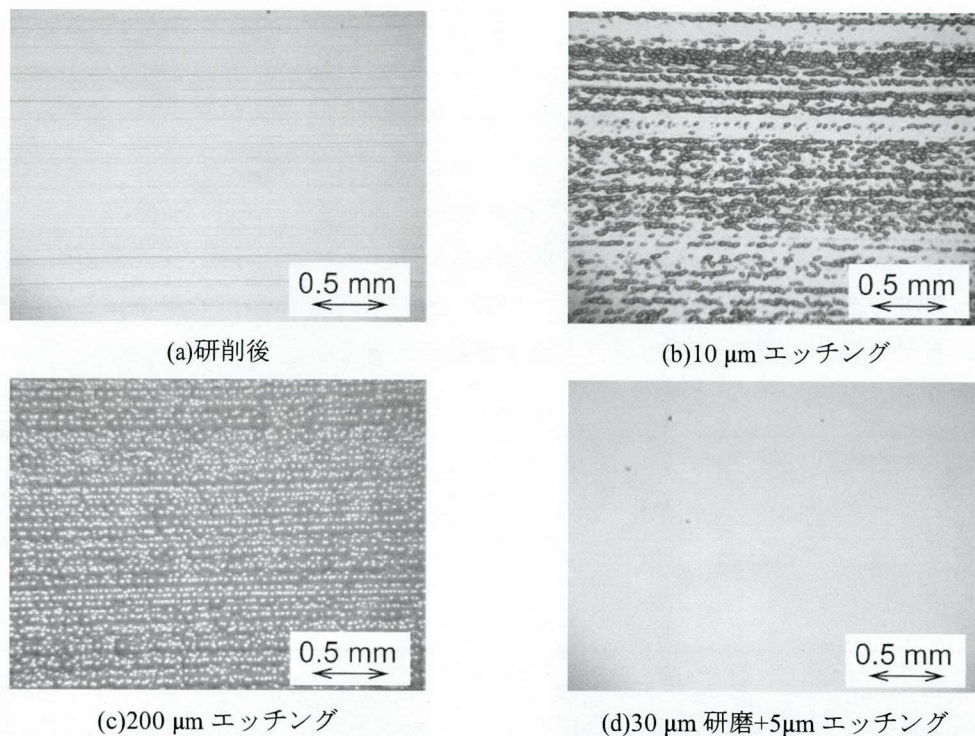


図 3.6 研削基板の浸漬エッチング後表面光学顕微鏡像

以上の結果から、本プロセスにより、研削時に導入された加工変質層を完全に除去し、ダメージフリーの合成石英製ミラー基板を作製することに成功した。本ミラー基板を非接触無歪加工法である NC-LWE を用いてダメージフリーに加工することで、表面下に加工変質層の存在しない強固なミラー基板上への成膜が可能となり、成膜したミラーが膜応力により剥離することなく高精度な楕円面スーパーミラーを作製できる。

### 3.5 低圧力研磨プロセスによる表面粗さ除去

#### 3.5.1 低圧力研磨の概要

中性子集光用高精度光学素子の作製において、形状精度と表面粗さの両方を高いレベルで実現する必要がある。形状精度の悪化は集光径の広がり、表面粗さの悪化は散漫散乱により中性子の反射強度が低下する原因となる。ミラー基板の形状誤差において、LWE に用いる加工ノズルの直径よりも空間波長が長い誤差成分に関しては、LWE による形状創成プロセスで修正することが可能であるが、空間波長の短い粗さ成分は LWE プロセスで改善することはできない。また、研磨加工のような平滑化作用はなく、LWE 加工後の表面粗さは前加工面の表面粗さに強く依存する。よって、加工変質層が導入されている基板に対し、LWE 加工をおこなうと、図 3.7(c)のようにエッチングによりピットやスクラッチなどの潜傷が表出し、加工後の表面粗さが著しく悪化する。合成石英基板には製法に由来した密度分布が存在するため、エッチングにより図 3.7(a)のように 0.1-1 mm 程度の空間波長のうねりが表出する傾向にある。また図 3.7(b)のように LWE 加工時のラスタースキャンに由来する送りピッチに応じたツールマークが発生する。

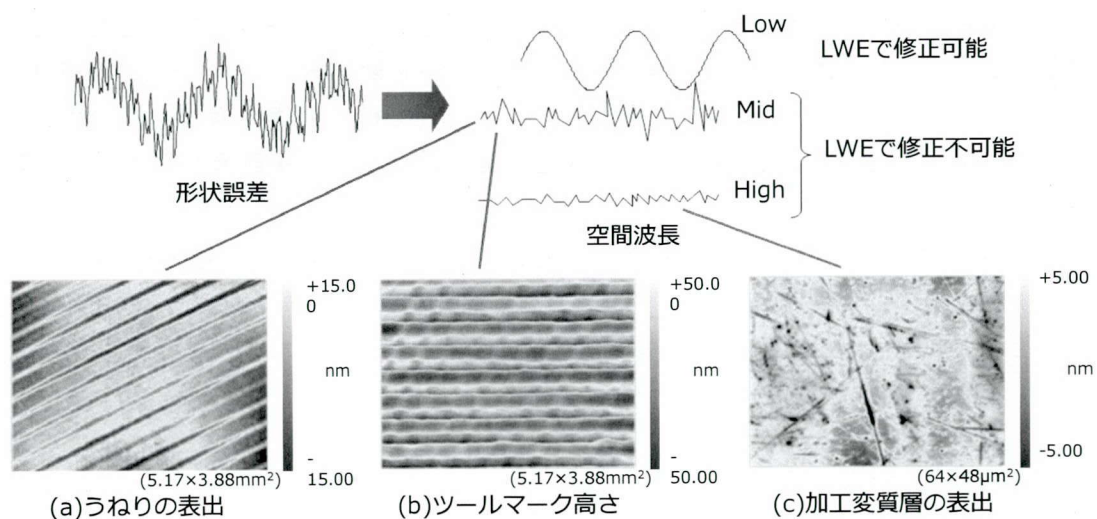


図 3.7 LWE 加工後に発生する表面粗さ成分



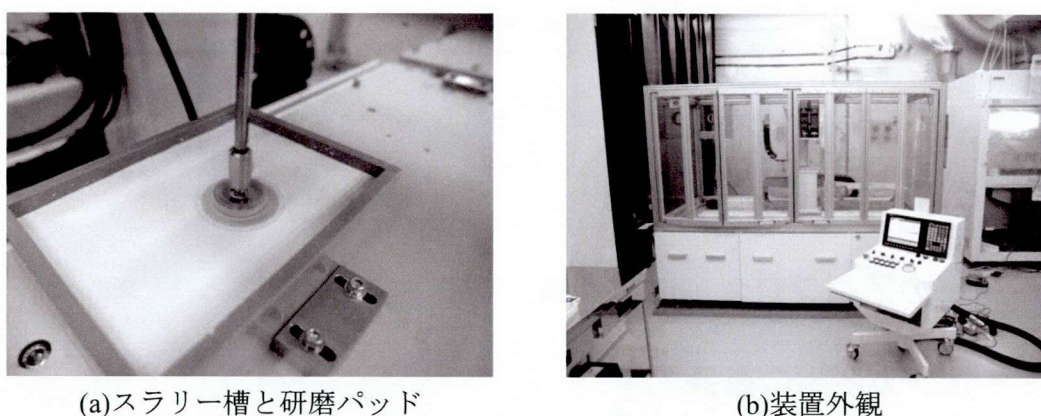


図 3.8 ローカル低圧研磨装置外観写真

以上から、LWE 加工後の表面粗さの改善を目的とする低圧力研磨プロセスを提案・開発した。研磨装置の外観写真を図 3.8 に示す。低圧力研磨プロセスは、加工対象物をスラリー中に浸漬させ、回転する小径研磨パッドを基板に一定圧力で接触させながらラスタースキャンにより走査することで形状精度を悪化させることなく表面粗さを改善することを目標としている。スラリーには酸化セリウム、研磨パッドには発泡ポリウレタン製の小径パッドを用いる。本プロセスでは、NC-LWE 加工で修正することが不可能な空間波長の粗さの改善を目的としており、LWE 加工後の表面粗さの改善プロセスの開発について報告する。

#### 3.5.2 硬質パッドを用いた LSFR 改善プロセス

NC-LWE による形状創成をおこなう場合、小径ノズルをラスタースキャンさせることで生じる送りピッチに応じたツールマークの発生は不可避である。また上述の基板材料の密度分布に由来したうねりの表出も LWE 加工後の低空間周波数粗さ成分(LSFR: Low-Spatial-Frequency-Roughness)を悪化させる要因となる。低圧研磨プロセスによる LSFR の除去を検討した。

LWE 装置において 42°C、37 wt%のフッ化水素酸を用いて、走査速度 50 mm/min、送りピッチ 0.5 mm で等速面加工し、ツールマークを形成した実験用基板を準備する。用意した基板の表面を走査型白色顕微干涉計 (Zygo 社 NewView 200CHR)を用いて測定する。表面粗さ像を図 3.9 に示す。

エッチング後の基板には高さ約 40 nm のツールマークが送りピッチに対応した 0.5mm ピッチで形成される。このツールマークが低圧力研磨プロセスによって除去可能であるか検討する。研磨条件を表 3.2 に示す。用いた研磨パッドの外観写真を図 3.10 に示す。研磨パッドには基板表面の凹凸に倣わないよう硬質のものを用了。

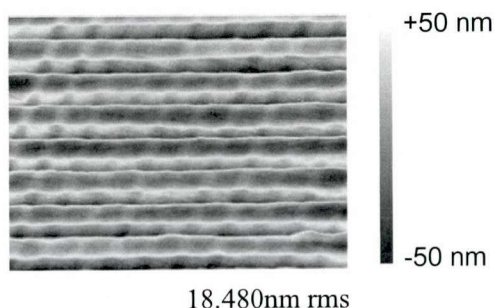


図 3.9 予備実験用基板 (5.12×3.88mm<sup>2</sup>)

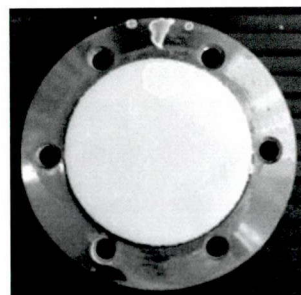


図 3.10 発泡ポリウレタンパッド

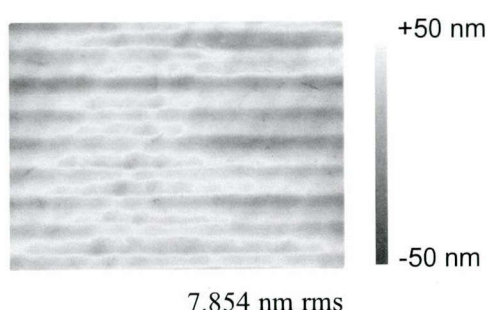


図 3.11 4 pass 加工後の表面 (5.12×3.88 mm<sup>2</sup>)

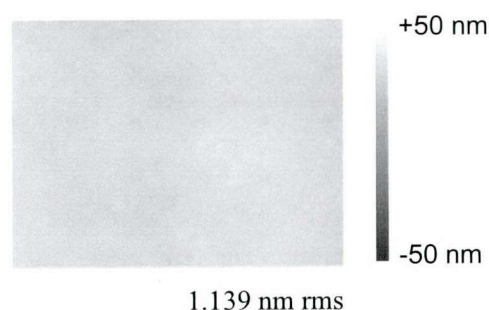


図 3.12 8 pass 加工後の表面 (5.12×3.88 mm<sup>2</sup>)

表 3.2 LSFR 除去研磨条件

研磨パッド	Φ10mm 発泡ポリウレタンパッド (ニッタハース社 IC1000)
硬度	58 [Shore-D]
スラリー	CeO <sub>2</sub> (0.19 μm) 0.5wt% 太陽鋳工社 L0
荷重 [g]	70
回転数 [rpm]	60
走査速度 [mm/min]	2
送りピッチ [mm]	0.2

図 3.11 に表 3.2 の条件で 4 pass 走査した後の表面粗さ像、図 3.12 に 8 pass 走査した後の表面粗さ像を示す。図 3.11 において、ツールマーク高さは約 10 nm に減少しており、さらに同条件で研磨をおこなうことでツールマーク等の LSFR 成分を完全に除去できる。今回用いた発泡ポリウレタンパッドは比較的硬質なものであり、研磨パッドが基板表面の凹凸に倣うことなく凸部から選択的に加工が進行することで、ツールマークに代表される LSFR を能率よく除去できたと考えられる。

以上の結果から、低圧力研磨プロセスにおける小径硬質パッドを用いた LSFR 除去の有用性が示された。

### 3.5.3 軟質パッドを用いた MSFR・HSFR 改善プロセス

ミラー基板には、散漫散乱を最小限にし、高い反射率を有したスーパーミラーを作製するため、優れた表面粗さが求められる。中性子スーパーミラーの反射率  $R$  は表面粗さ  $\sigma$  (RMS : Root Mean Square) を Debye-Waller 因子として利用し、

$$R = R_0 \exp\{-(4\pi\sigma \sin\theta/\lambda)^2\} \quad (3.1)$$

と表される。ここで、 $R_0$  は表面粗さがない場合の理想的な反射率であり、指数項が Debye-Waller 因子である。本プロセスの目標としては、 $m=4$  の立ち上がり臨界角で 70 % 以上の反射率を得ることを目標としている。よって、中空間周波数粗さ成分 (MSFR: Mid-Spatial-Frequency-Roughness)、高空間周波数粗さ成分 (HSFR: High-Spatial-Frequency-Roughness) を除去し、ミラー基板の表面粗さとして 0.3 nm rms 以下を達成する必要がある。[5, 6] 低圧研磨プロセスによる MSFR、HSFR の除去を検討する。パッドの硬度による研磨特性の違いを評価するため、3 種類のパッドを用いてそれぞれ面加工を行い、加工後の表面粗さ、加工レートを比較する。研磨条件を表 3.3、研磨後の加工領域中心の表面粗さ像を図 3.13 に示す。

条件 1-3 それぞれの加工前後の形状データを差し引いて算出した加工レートはそれぞれ、10、7.1、40 nm/pass である。また、図 3.13 からわかるように、条件 3 において一番優れた表面粗さが得られ、図 3.14 の PSD 解析結果からも条件 3 における研磨後の表面粗さが最も優れていることが確認できる。条件 3 で用いた研磨パッドの写真を図 3.15 に示す。条件 3 での研磨時に用いたパッドは硬質ベースの上に湿式凝固法により気孔が連続状に形成されたナップ層を有するスウェードタイプのパッドであり、高周波の表面粗さを効率よく改善することが可能である。このパッドは条件 1、2 で用いたパッドに比べて硬度が低く、基板の形状に倣って変形し、基板表面との接触面積が大きくなるため、研磨圧力が低くなり、スクラッチ等が導入されにくい研磨を実現できていると考えられる。また、パッド表面がスウェード状になっていることで、スラリー保持能力が高く、高い研磨レートが得られたと推察される。

表 3.3 仕上げ研磨条件

	条件 1	条件 2	条件 3
研磨パッド	Φ25mm 発泡ポリウレタンパッド		
硬度	76 [JIS-A]	58 [Shore-D]	82 [Asker-C]
	MH-C14A	IC1000	FILWEL 社 NP178
スラリー	CeO <sub>2</sub> (0.19 μm) 0.1wt%		
荷重 [g]	100		
回転数 [rpm]	300		
走査速度 [mm/min]	500		



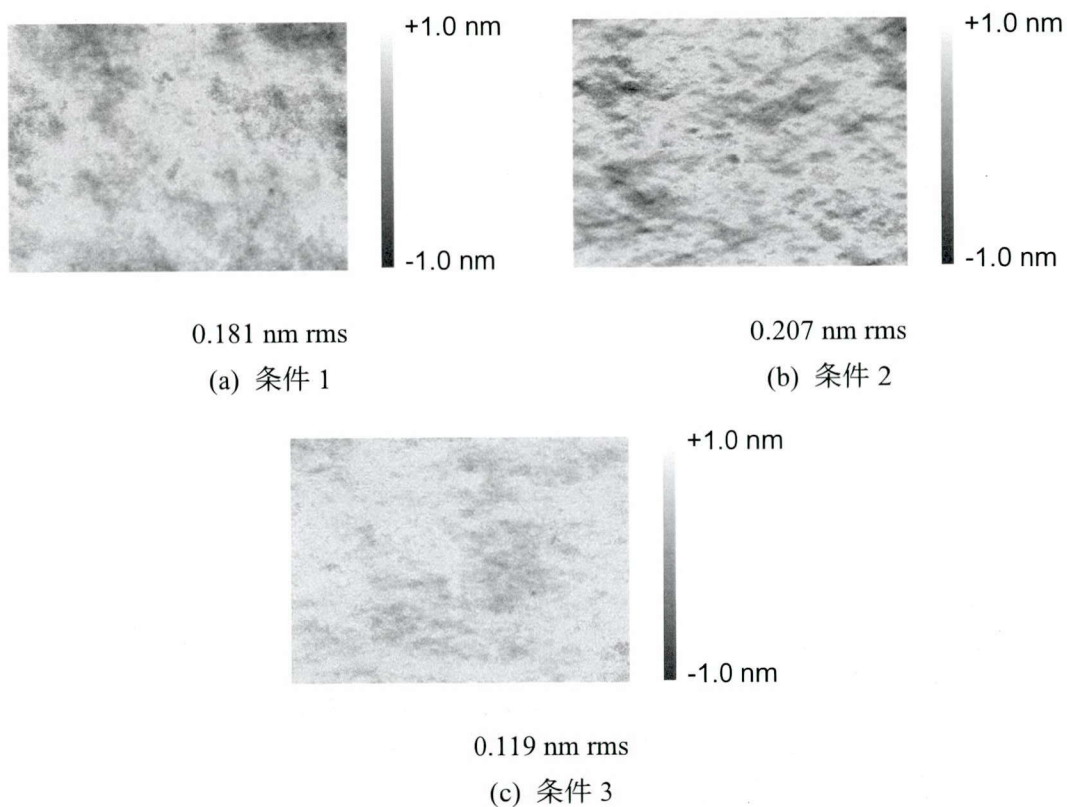


図 3.13 加工後の表面粗さ像( $64 \times 48 \mu\text{m}^2$ )

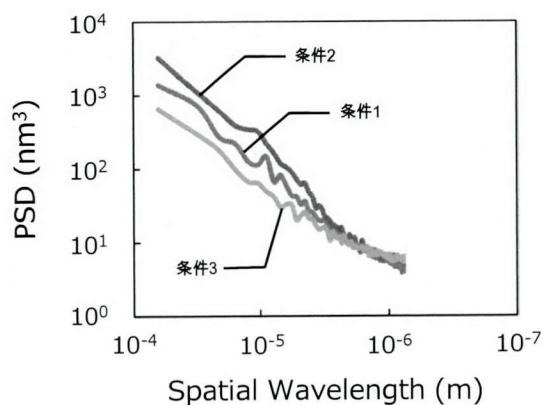


図 3.14 PSD 解析結果

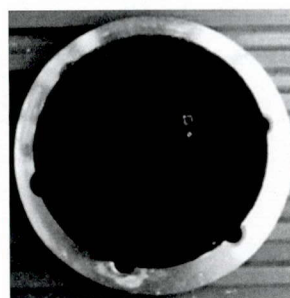


図 3.15  $\phi 25\text{mm}$  発泡ポリウレタン  
パッド

### 3.6 イオンビームスパッタによる NiC/Ti スーパーミラー成膜

前節までの研削、粗研磨、NC-LWE、低圧研磨の各工程によって作製したミラー基板

上に日本原子力研究開発機構で開発されたイオンビームスパッタ装置によって、NiC/Ti の多層膜を成膜し、スーパーミラーを作製する。スーパーミラーは中性子散乱長の大きな物質 (Ni 等) と小さな物質 (Ti 等) を対層とした人工多層膜で形成され、対層の周期を順に変化させ、これらがつくる人工結晶格子のブラッグ散乱により全反射臨界角を増加させるものである。図 3.16 にスーパーミラーの概念図を示す。スーパーミラーの開発課題としては、多層膜

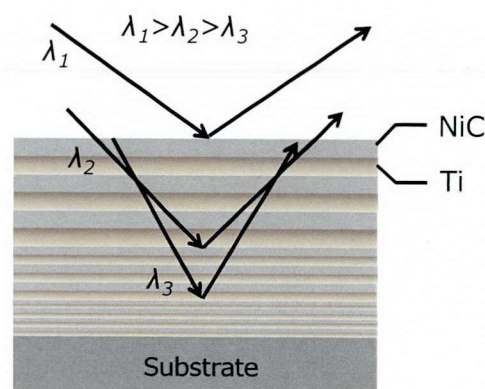


図 3.16 スーパーミラー概念図

を構成する Ni/Ti 界面粗さ、相互拡散による反射率低下が挙げられる。Ni は(111)面に強い配向を示すため、柱状成長し、界面に大きな結晶粒が形成されることで一番基板側になる最小周期領域でのミラー界面粗さが悪化するため、ミラー全体で界面粗さが増加する。これは入射角と反射角が等しくない散漫散乱の原因となる。図 3.17 に散漫散乱のイメージ図を示す。この対策として、Ni に C を混入し Ni<sub>3</sub>C の形で微結晶化することで、散漫散乱強度を低下させる技術が報告されている[5, 7-9]。図 3.18 に共同研究をおこなっている日本原子力研究開発機構の研究グループのイオンビームスパッタ成膜装置によって成膜した  $m=3$  の Ni/Ti スーパーミラーと NiC/Ti スーパーミラーのロッキングスキャン測定結果を示す。Ni に C を混入することで、散漫散乱強度を Ni/Ti と比較し、2 桁以上抑制することに成功している[10]。図 3.19 にイオンビームスパッタ装置の外観、図 3.20 に概略図を示す。ターゲットからミラーまでの距離を十分に取り、膜厚分布を均一化するためのマスクを設置しミラーを回転させることで成膜領域 (φ 500 mm) に渡り均一で良質な膜の成膜が可能である[6]。

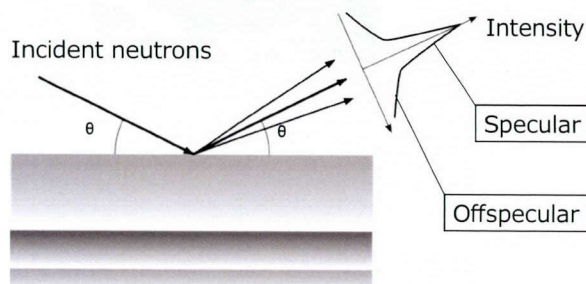


図 3.17 散漫散乱イメージ

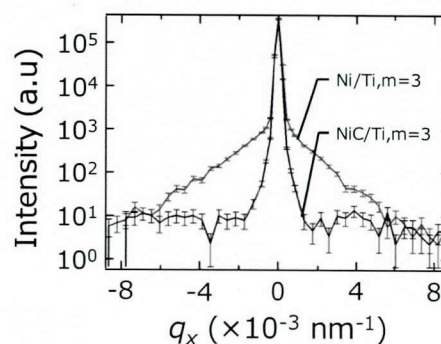


図 3.18  $m=3$  における Ni/Ti スーパーミラーと NiC/Ti スーパーミラーのロッキングスキャン測定結果[10]

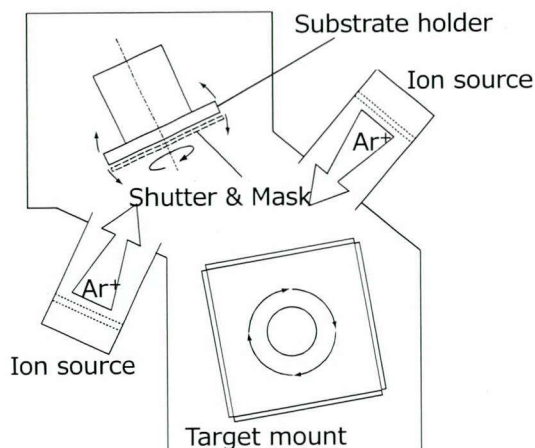
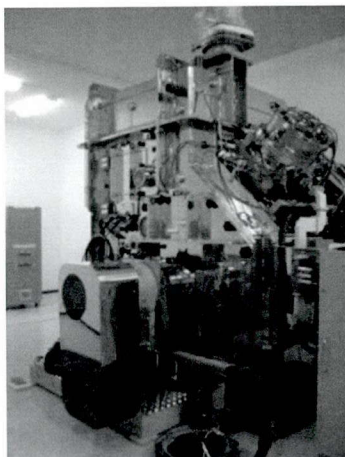


図 3.19 イオンビームスパッタ装置外観 図 3.20 イオンビームスパッタ装置概略図[6]

### 3.7 中性子集光用 400 mm 長さ楕円面スーパーミラーの作製と評価

中性子ビームを用いた計測実験において、なにより求められるのはビーム強度である。ビーム強度を増大させることは、直接的に測定時間の短縮につながる。反射光学系における中性子集光ゲイン増強のためには、ミラー有効領域の大面积（長尺）化、ミラーの多重化、ミラーの表面・界面ラフネスの改善による反射率の向上が必要となる。

本節では、前節までで述べた精密研削、HF 浸漬、NC-LWE、低圧研磨によるミラー基板の形状創成技術とイオンビームスパッタ成膜による多層膜成膜技術を組み合わせた非球面スーパーミラー作製プロセスにより、長さ 400 mm の楕円面スーパーミラーを作製・評価する。

集光径がサブミリメートルレベルの微小集光には、サブマイクロメートルレベルの形状精度が求められ、これを高い反射率で実現するためには、サブナノメートルレベルの表面粗さが必要となる。また中性子集光ミラーには、成膜するスーパーミラーに応じた大きな曲率が求められる。例えば、長さ 400 mm のミラーの場合、ミラーの最大加工深さは 0.5-1 mm 程度となり、平面から化学的な手法のみで加工しようとした場合、化学的手法の中では非常に体積加工速度の高い LWE を適用しても 3-6 ヶ月程度の加工時間を要し、現実的な加工プロセスとは言えない。しかしながら、研削等の強制加工のみで加工した場合、前節で述べたように加工変質層の導入は不可避であり、ミラー基板の表面粗さの悪化ならびに成膜した多層膜スーパーミラーの剥離が危惧される。そこで、我々は、図 3.2 に示す作製プロセスを適用して、長さ 400 mm の楕円面スーパーミラーを作製・評価する。



### 3.7.1 ミラーの作製

提案したミラー作製プロセスの有用性を検証するため、長さ 400 mm の楕円面スーパーミラーを設計、試作した。ミラー形状は多くのビームラインで適用可能なように焦点距離を 1050 mm と短くとした等倍光学系とした。一次元集光用長尺楕円ミラーを用いた集光光学系、ミラー形状を設計した。ミラー長 400 mm、幅 50 mm に対して、最大深さは 470  $\mu\text{m}$  である。長手方向の形状は、 $m=4$  のスーパーミラーの成膜を想定し、

$$\frac{x^2}{(1050.31)^2} + \frac{y^2}{(25.66)^2} = 1 \quad (\text{単位は mm}) \quad (3.2)$$

とした。

初めに、インゴットから切り出した合成石英基板を精密研削により、短時間においてマイクロメートルレベルでの形状創成を目指す。研削により導入された加工変質層を HF 浸漬ならびに 1 次研磨をおこなうことで除去する。NC-LWE による形状創成、ツールマーク除去のための 2 次研磨、最終仕上げのための 3 次研磨をおこなう。図 3.21 に各工程における基板形状、理想形状からの形状誤差を示す。基板の形状計測にはレーザーオートフォーカス式三次元形状測定器(三鷹光器社製 NH-5N)を用いる。

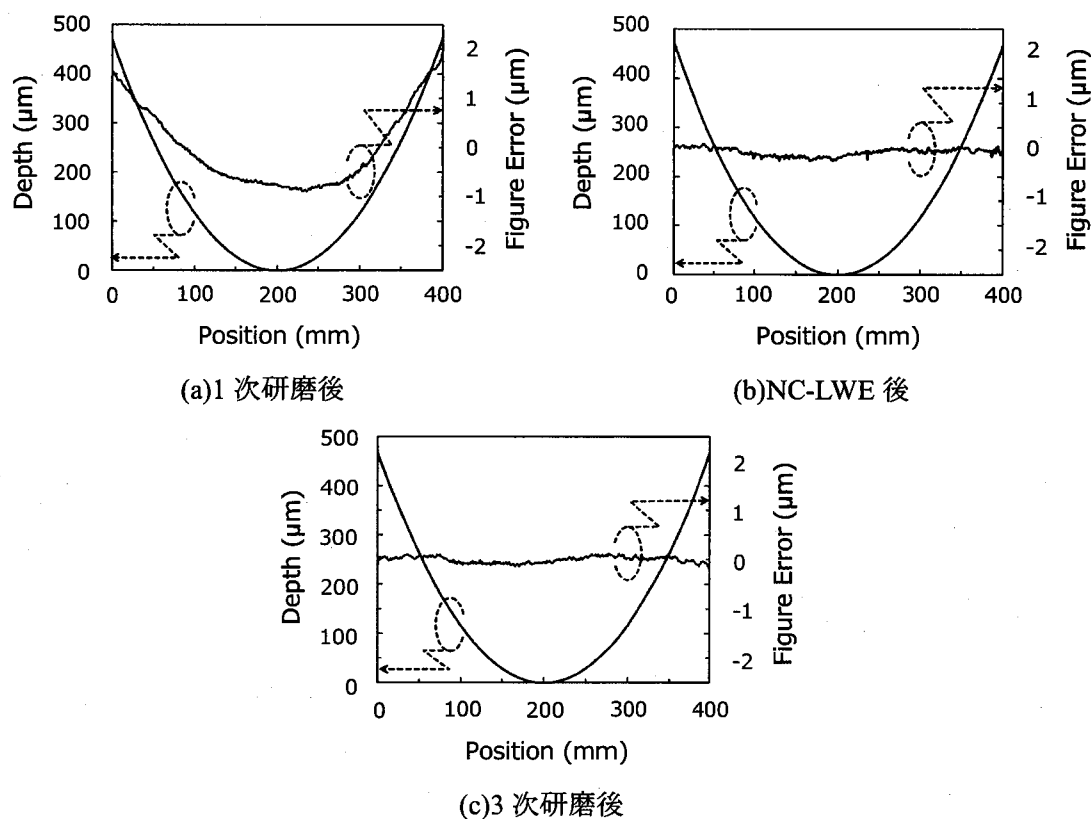


図 3.21 各工程におけるミラー形状と形状誤差

### 第3章 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの開発

精密研削では、前節で述べたようにレジンボンド砥石(#325、#1200、#3000)を用いて表 3.1 の条件でおこなう。砥石のドレッシングも含めた総加工時間は約 3 日である。浸漬エッチングにおけるエッチング条件を表 3.4、1 次研磨における研磨条件を表 3.5 に示す。HF 浸漬、1 次研磨後の形状においてもマイクロメートルレベルの形状精度を有していることから、精密研削によりマイクロメートルレベルの精度で形状創成に成功している。その後、HF 中で攪拌しながら浸漬エッチングすることで面内において均一なエッチングをおこなうことができ、1 次研磨においても小径パッドを低荷重で等速走査することで研磨領域において均一な加工深さを実現できたと考えられる。また、形状誤差が滑らかな曲率を有しているように見えるが、これは加工変質層を除去した際に残留応力が解放されたことが原因であると考えられる。

NC-LWE により修正加工をおこなった。NC-LWE 加工条件を表 3.6 に示す。修正加工後に得られた形状誤差は  $0.34\text{ }\mu\text{m p-v}$  である。NC-LWE における加工時間は暖機時間を含め 15 時間である。本加工においては、最大加工量は  $9.6\text{ }\mu\text{m}$  である。第 2 章で述べたように、共沸濃度のエッチャントの温度を加工中  $\pm 0.05\text{ }^{\circ}\text{C}$  に保つことで、エッチングレートの変動を 1%以下に抑えることができる。今回の修正加工においては、ミラー基板の曲率が大きく加工中ノズル-基板間距離がノズル内で不均一となり、エッチャントの流速の変動が大きい。その結果、エッチャント温度の制御が不安定になり、加工中の温度変動は  $\pm 0.15\text{ }^{\circ}\text{C}$  であった。設定温度  $45^{\circ}\text{C}$  に対する  $\pm 0.15\text{ }^{\circ}\text{C}$  の変化は 2.9%のエッチングレートの変動に対応する。NC-LWE における加工量は、エッチングレートと加工ノズルの滞在時間によって決まるので、エッチングレートの変動と最大加工量との積から  $0.27\text{ }\mu\text{m}$  程度の形状誤差が予想される。また形状測定に用いた NH-5N の測定再現性が  $0.1\text{ }\mu\text{m}$  程度であることから、得られた形状誤差は妥当であると考えられる。

表 3.4 HF 浸漬エッチング条件

HF 温度( $^{\circ}\text{C}$ )	21
HF 濃度(wt%)	10
攪拌の有無	あり (スターラー)
エッチングレート( $\mu\text{m}/\text{min}$ )	0.06

表 3.5 1 次研磨条件

スラリー	$\text{CeO}_2$ (平均粒径 $1\mu\text{m}$ ) SHOROX A-10
パッド径(mm)	15
回転数(rpm)	100
荷重(g)	350-400
送りピッチ(mm)	2

表 3.6 NC-LWE 加工条件

初期 HF 濃度(wt%)	37
HF 温度(°C)	45
ノズル基板間距離( $\mu\text{m}$ )	250
ノズル径(mm)	15
送りピッチ(mm)	0.5
加工時間(h)	8.7

表 3.7 2次研磨 3次研磨条件

	2次研磨(ツールマーク除去)	3次研磨(仕上げ研磨)
研磨パッド	IC1000( $\phi 20\text{mm}$ )	NP178( $\phi 25\text{mm}$ )
硬度	58 [Shore-D]	82 [Asker-C]
スラリー	CeO <sub>2</sub> (0.19 $\mu\text{m}$ ) 5wt% L0	CeO <sub>2</sub> (0.19 $\mu\text{m}$ ) 0.1wt% L0
荷重 (g)	240	100
回転数 (rpm)	300	300
走査速度 (mm/min)	500	400
送りピッチ(mm)	0.1	0.1
パス回数	3	1

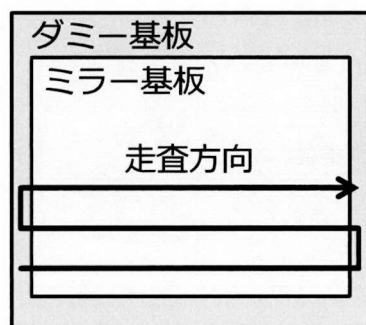


図 3.22 ラスタースキャン走査

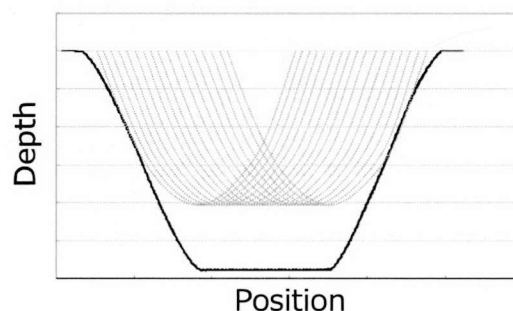


図 3.23 ツールマークの形成

以上の結果から、精密研削と NC-LWE を用いることでこのように大面積かつ大きな曲率を有したミラー基板に対しても、短時間でサブマイクロメートルレベルの形状精度で形状修正が可能である。また NC-LWE における修正加工では、加工ノズルを図 3.22 で示すラスタースキャン方式で走査するため、NC-LWE 加工後表面には図 3.23 に示す送りピッチに応じたツールマークが生成される。ツールマークの高さは、NC-LWE における加工量によって決まる。 $\phi 15\text{ mm}$  の加工ノズルを用いた場合の加工深さとツールマ

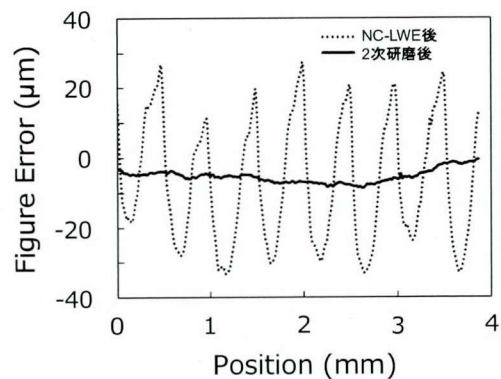
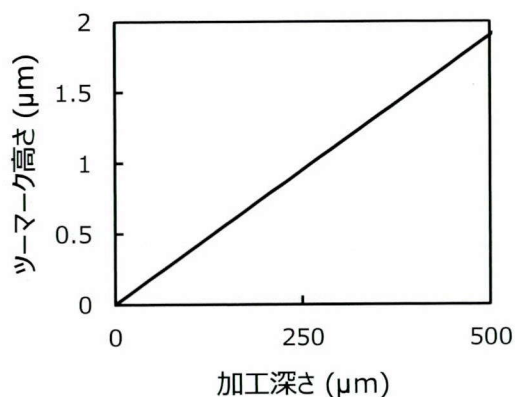


図 3.24 加工深さとツールマーク高さの関係 図 3.25 2 次研磨によるツールマーク除去

ーク高さの関係を図 3.24 に示す。ツールマークの高さは加工深さに比例する。今回、精密研削を適用することで NC-LWE における加工量を 1/150 以下にすることができたため、ツールマーク高さは NC-LWE のみで加工する場合と比較して 2 桁以上小さくなる。

ツールマーク等の LSFR を除去するための 2 次研磨、最終仕上げのための 3 次研磨をおこなった。図 3.25 に 2 次研磨前後の基板中央部の短手方向断面、図 3.26 に各工程に

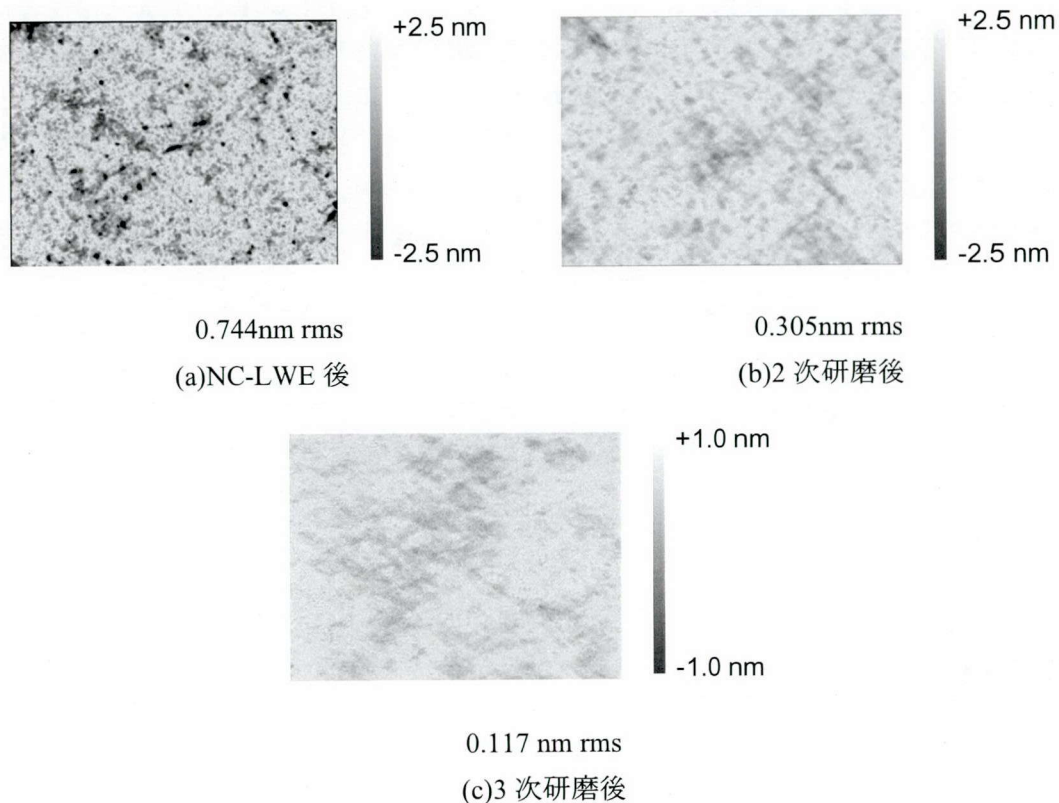


図 3.26 各工程における表面粗さ像 ( $64 \times 48 \mu\text{m}^2$ )

### 第3章 中性子集光用非球面スーパーミラー作製プロセスの開発

おける SWLI 像を示す。2 次研磨ならびに 3 次研磨の研磨条件を表 3.7 に示す。図 3.25 から、硬度 Shore-D58 の発泡ポリウレタンパッドを用いることでツールマーク形状に倣うことなく、効率的に LSFR が除去できている。また、MSFR の除去に関しては、 $64 \times 48 \mu\text{m}^2$  の評価領域における表面粗さは、NC-LWE 後の  $0.6\text{--}0.8 \text{ nm rms}$  から 3 次研磨後には  $0.2 \text{ nm rms}$  以下へと、評価した空間波長域全域にわたって大幅に改善できている。また、一般に圧力制御で加工をおこなう研磨工程においては、加工領域全体に渡って加工量を均一に保つのが困難であり、創成した形状を崩す可能性がある。3 次研磨後の形状誤差は  $0.39 \mu\text{m p-v}$  であり、本低圧研磨プロセスはミラー形状を崩すことなく表面粗さを改善する能力を有する。

本プロセスによって作製した楕円筒基板上にイオンビームスパッタ成膜により  $m=4$  の NiC/Ti の多層膜スーパーミラーを成膜する。成膜条件を表 3.8 に示す。HF 浸漬と 1 次研磨により加工変質層を除去し、NC-LWE によりダメージフリーに基板作製をおこなった結果、 $m=4$  の NiC/Ti スーパーミラーを剥離することなく成膜できている。

作製した楕円面スーパーミラーの中性子反射率を、日本原子力研究開発機構の冷中性子ビームライン Apparatus for Surface and Interface investigations with Reflection of Neutrons (SUIREN) で測定する。作製したミラーは長さ  $400 \text{ mm}$  の方向に曲率を有し、その直交方向の曲率は  $0$  である。そのため、中性子ビームの入射方向をミラーの光軸方向に対して直交するように設置し、スリットによりミラーの中心領域  $50 \text{ mm}$  に中性子ビームが当たるようにする。反射率測定については次章で詳しく述べる。反射率の測定結果を図 3.27 に示す。 $m=4$  に至るまで途切れることなく高い反射率が得られていることが確認でき、これは設計通りの膜厚分布で成膜ができていることを意味する。また臨界角付近での反射率は  $0.7$  以上であった。これはミラー基板、ミラー表面だけではなく、成膜したスーパーミラー 1200 層全層の界面において優れた界面粗さが実現されていることを示している。

表 3.8 成膜条件

ミラー材料	NiC/Ti
総積層数	1200
全膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	6
設計 $m$ 値	4

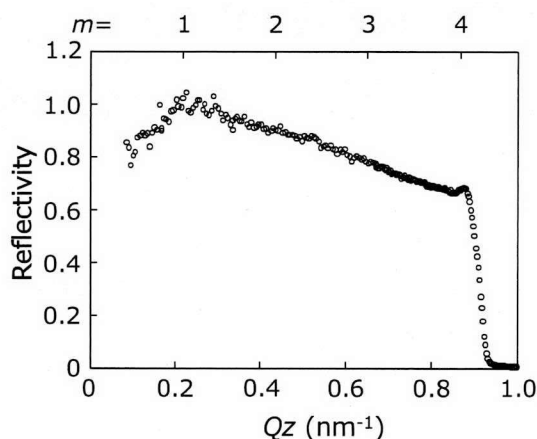


図 3.27 作製したミラーの反射率

### 3.7.2 BL10 における中性子集光特性の評価

超高压下での中性子散乱実験の実現に向けて、高压発生装置の開発と中性子集光技術が必要不可欠である。数 10 GPa もの超高压状態を再現する際、試料体積は  $1 \text{ mm}^3$  以下になり、一般的な中性子粉末回折実験で用いられる試料体積と比較して極めて小さい。短時間で測定を行うために、また S/N 比のよいデータを得るためには微少な試料からいかにして効率よく回折強度を得るかが課題となる。試料を加圧するアンビルに中性子が当たるとバックグラウンドが増大し、S/N 比が悪化する。しかし、アンビルや高压プレス装置等により、試料付近にスリットやコリメータを設置するのは困難であり、微小試料にのみ効率よく中性子を集光する技術が求められる。本集光ミラーを用いることで、高温高压実験装置における S/N 比の大幅な向上が見込まれ、含水鉱物やマグマなど水を含んだ地球深部物質の物質科学的研究を新たに展開し、地球深部の水に関連する理解を飛躍的に進展させることが期待できる。J-PARC、ISIS、SNS それぞれの超高压下での中性子散乱実験における試料窓サイズは、その圧力領域に応じて  $1 \times 1 \text{ mm}^2$ 、 $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ 、 $0.3 \times 0.3 \text{ mm}^2$  が開発目標として掲げられている。本研究では、集光幅として 0.3 mm 以下を目指し、各集光デバイスの開発をおこなう。

本ミラーを J-PARC の中性子源特性試験装置 NeutrOn Beam-line for Observation and Research Use (NOBORU) にて  $0.3 < \lambda < 0.9 \text{ nm}$  の波長のパルス中性子ビームを用いて集光性能を評価した。図 3.28 に集光実験をおこなった光学系、図 3.29 に集光実験のレイアウト写真を示す。入射側スリット幅を 0.1 mm として集光点位置にイメージングプレートを設置し、ビーム強度を測定する。ダイレクトビームに含まれる  $\gamma$  線はイメージングプレート[11]で測定をおこなう際の大きなバックグラウンドとなるため、 $m=3$  の平板スーパーミラーを用いて集光ビームをダイレクトビームから遠ざける。未集光時と集光時のビームプロファイルを図 3.30、集光プロファイル中央断面を図 3.31 示す。この結果、

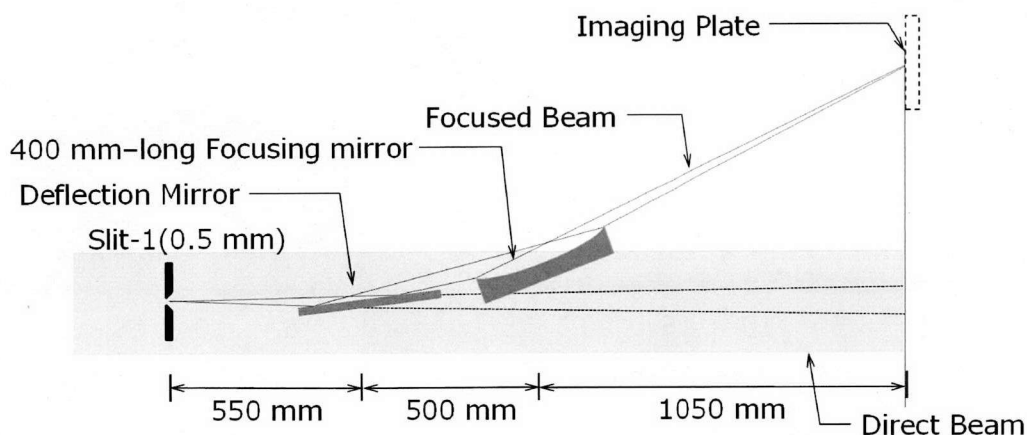


図 3.28 光学系



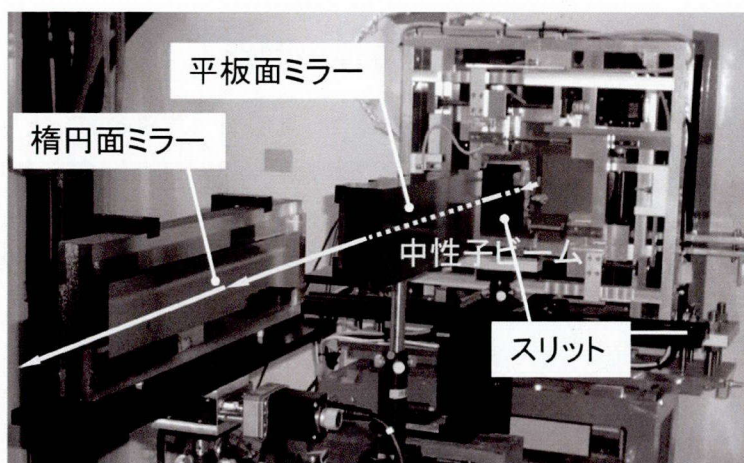
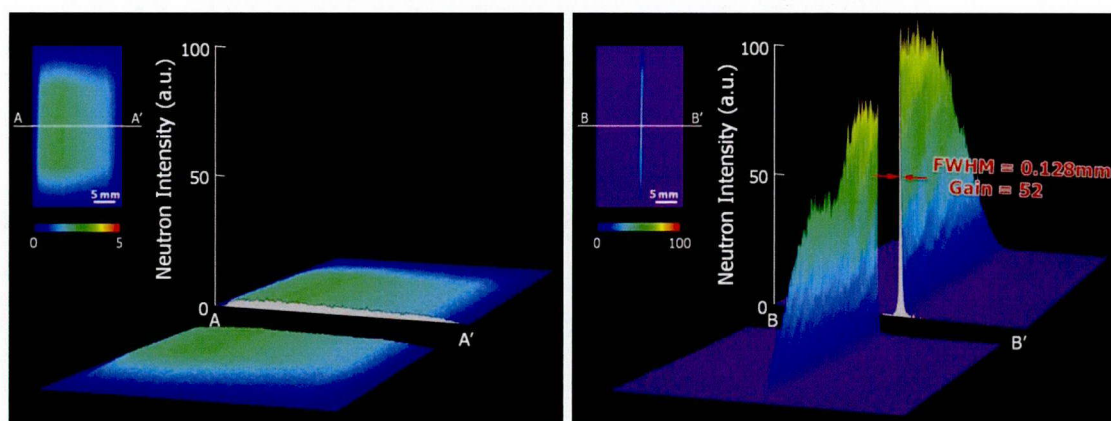


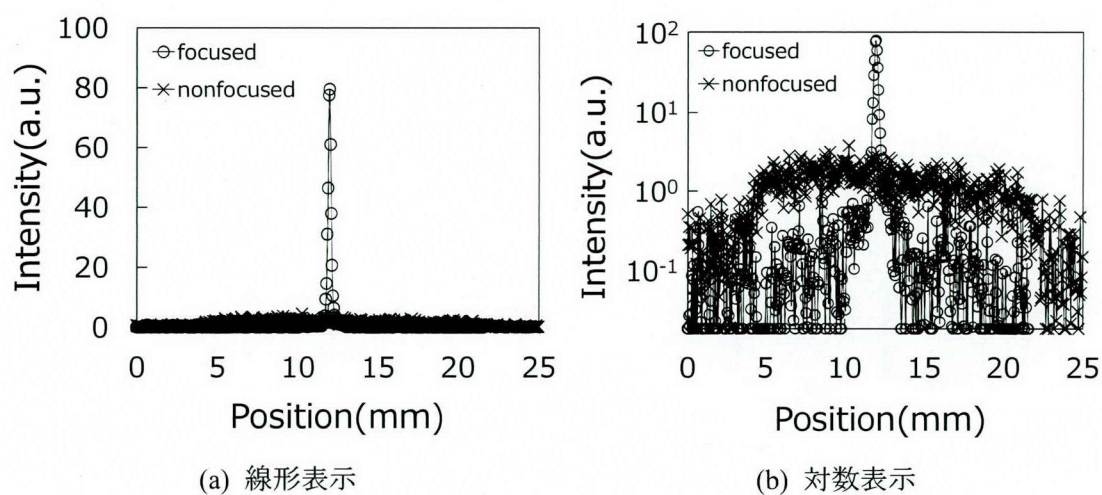
図 3.29 集光実験のレイアウト



(a)未集光時

(b)集光時

図 3.30 集光プロファイル



(a) 線形表示

(b) 対数表示

図 3.31 集光プロファイル中央断面

未集光に比べピーク強度で約 52 倍の集光ゲインを達成できた。また、図 3.31(b)に示した対数グラフから、集光ビームはバックグラウンドよりも 2 桁近く高いピーク強度を有することがわかる。

### 3.7.3 CHOP における中性子集光幅の評価

イメージングプレートは空間分解能が 0.05 mm 程度であるため、正確な集光幅をマイクロメートルレベルで評価することは困難である。そこで、作製した楕円面スーパーミラーの集光幅評価を、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3M の白色中性子ビームライン pulsed neutron instrument with dick CHOPper (CHOP) ( $0.3 < \lambda < 1.2$  nm) にてナイフエッジスキャンによりおこなった。図 3.32 に光学系を示す。3He の 0 次元検出器を用いて、集光点位置で  $150 \times 50 \times 0.5$  mm<sup>3</sup> の Cd 製のプレートを手動ステージにより 20  $\mu$ m ピッチでスキャンすることにより、プロファイルを取得する。ナイフエッジスキャン結果を図 3.33 に示す。ナイフエッジスキャンプロファイルを微分したものを図 3.34 に示す。ナイフエッジスキャンプロファイルに誤差関数をフィッティングした結果、ビームの半値幅は 0.128 mm と算出された。

以上の結果から、作製した楕円面スーパーミラーがサブミリメートルレベルの集光を実現する性能を有することが確認された。またナイフエッジスキャンプロファイルは集光ビーム全幅に対しておこなったため、幅 50 mm のミラー作製領域全域において高い集光性能が達成されていることがわかった。本集光ミラーを用いることで、位置敏感型の即発  $\gamma$  線分析における位置分解能の向上や高温高圧実験における微小サンプルへの集光等、既存の中性子計測技術への応用が期待される。

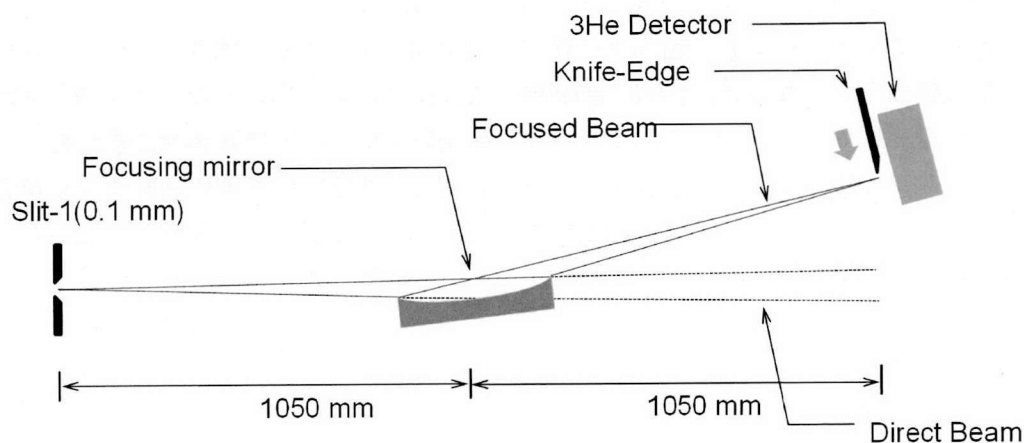


図 3.32 光学系



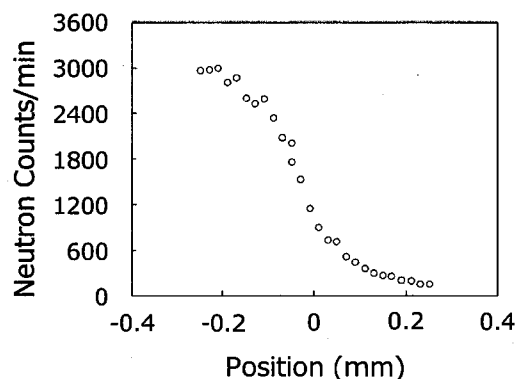


図 3.33 ナイフエッジスキャン結果

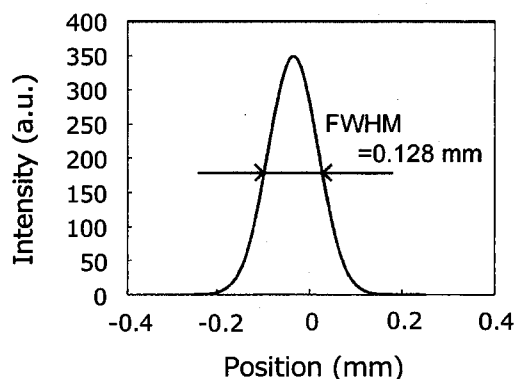


図 3.34 集光プロファイル

### 3.8 結言

第3章では、大強度の中性子ビーム集光のための大面積ミラー作製に向けて、精密研削、HF 浸漬、NC-LWE、低圧研磨、イオンビームスパッタ成膜を組み合わせた高能率かつ高精度な1次元楕円筒面スーパーミラー作製プロセスを開発した。開発したミラー作製プロセスにより、長さが400 mmの長尺楕円筒面スーパーミラーを試作した。作製したミラーの中性子反射率ならびに中性子集光特性を評価した。以下に本章で得られた結果と知見をまとめる。

- (1) J-PARC MLF のビームライン BL10(NOBORU)にて1次元集光実験をおこなうべく、長さが400 mmの長尺楕円筒面スーパーミラーを設計した。焦点距離1050 mm、等倍の光学系で、ミラーの最大深さは約470  $\mu\text{m}$  である。
- (2) 合成石英製ミラー基板の粗加工に精密研削を適用し、マイクロメートルレベルでの形状創成をおこなった。#325、#1200、#3000のレジンボンドのダイヤモンドホイールを順に用いて粗加工をおこなった。精密研削後、加工変質層除去をおこなわずにイオンビームスパッタ成膜をおこなった場合、基板表面で破砕剥離する現象を確認した。イオンビームスパッタ成膜によりスーパーミラーの成膜をおこなった場合、多層膜にはGPaレベルの膜応力が導入される。加工変質層部分がこの膜応力に耐え切れず、破砕剥離が起こったと推察される。よって、精密研削後、HF 浸漬にて200  $\mu\text{m}$  エッチングすることで加工変質層を完全に表出させ、1次研磨により表面粗さを低減することで完全にダメージフリーのミラー基板を作製することに成功した。1次研磨後の形状誤差は2.82  $\mu\text{m p-v}$  であった。
- (3) NC-LWE によって形状修正加工をおこなった。その結果、形状誤差0.34  $\mu\text{m p-v}$  を達成し、大面積かつ曲率が大きな試料に対しても決定論的かつダメージフリーにサブマイクロメートルレベルの形状創成に成功した。

- (4) 形状精度を悪化させることなく NC-LWE 後の表面粗さを改善するため、小径のポリウレタンパッドを用いた低圧研磨プロセスを適用した。硬質の研磨パッドを用いることで、LWE で導入されたツールマーク等の Low Spatial Frequency Roughness(LSFR)の除去を検討した。その結果、パッド形状が表面粗さの凹凸に倣うことなく 0.1 mm 以上の空間周波数粗さ成分を完全に除去できた。軟質の研磨パッドを用いることで、Mid Spatial Frequency Roughness(MSFR)、High Spatial Frequency Roughness(HSFR)の除去をおこない、ミラー中心部  $64 \times 48 \mu\text{m}^2$  における表面粗さとして 0.117 nm rms を達成した。さらに 3 次研磨後の形状誤差は  $0.39 \mu\text{m p-v}$  であり、NC-LWE によりサブマイクロメートルレベルの形状精度で作製したミラー形状を悪化させることなく、表面粗さを改善することに成功した。
- (5) 日本原子力研究開発機構 J-PARC センターが開発したイオンビームスパッタ成膜装置を用いた  $m=4$  の NiC/Ti スーパーミラーの成膜を検討した。ミラー基板をダメージフリーな加工プロセスで作製した結果、大面積かつ曲率が大きな非球面ミラー基板に関して成膜領域全体において剥離のない成膜に成功した。
- (6) J-PARC MLF のビームライン BL10 にて、集光特性を評価した。片方の焦点に仮光源となるスリットを 0.1 mm のサイズにして設置した。ダイレクトビームから集光ビームを分離するため、集光ミラーの上流に平板スーパーミラーを設置した。もう一方の焦点である集光点位置にイメージングプレートを設置し、未集光ビームならびに集光ビームのビームプロファイルを測定した。その結果、集光ビームは未集光ビームと比較してピーク強度で 52 倍の集光ゲインを得ることに成功した。
- (7) JRR-3M のビームライン CHOP にて、ナイフエッジスキャンによる集光幅の評価をおこなった。集光点位置で得られたビームプロファイルを誤差関数でフィッティングして求めた半値幅は 0.128 mm であった。本集光ミラーを用いることで、位置分解型即発  $\gamma$  線分析における位置分解能の向上や高温高圧実験における微小サンプルへの集光等、既存の中性子計測技術への応用が期待される。

## 参考文献

- [1] M. R. Howells, D. Cambie, R. M. Duarte, S. Irick, A. MacDowell, H. A. Padmore, T. Renner, S. Rah, R. Sandler: Theory and practice of elliptically bent X-ray mirrors, *Opt. Eng.* **39** (2000) 2748.
- [2] G. E. Ice, C. R. Hubbard, B. C. Larson, J. W. L. Pang, J. D. Budai, S. Spooner, S. C. Vogel: Kirkpatrick-Baez microfocusing optics for thermal neutrons, *Nucl. Instr. and Meth. A* **539** (2005) 312–320
- [3] G. E. Ice, J.-Y. Choi, P. Z. Takacs, A. Khounsary, Y. Puzyrev, J. J. Molaison, C. A. Tulk, K. H. Andersen, T. Bigault: Nested neutron microfocusing optics on SNAP, *Appl. Phys. A* **99**

- (2010) 635.
- [4] Y. S. Puzyrev, G. E. Ice, P. Z. Takacs: Long-trace profiler for neutron focusing mirrors, Nucl. Instr. and Meth. A **598** (2009) 515.
  - [5] M. Hino, H. Sunohara, Y. Yoshimura, R. Maruyama, S. Tasaki, H. Yoshino, Y. Kawabata: Recent development of multilayer neutron mirror at KURRI, Nucl. Instr. and Meth. A **529** (2004) 54.
  - [6] R. Maruyama, D. Yamazaki, T. Ebisawa, M. Hino, K. Soyama: Development of neutron supermirror with large-scale ion-beam sputtering instrument, Physica B **385–386** (2006) 1256.
  - [7] J. L. Wood: Status of supermirror research at OSMC, SPIE, **1738** (1992) 22.
  - [8] B. Vidal, Z. Jiang, F. Samuel: Reflectivity improvements for neutron mirrors and supermirrors, SPIE, **1738** (1992) 141.
  - [9] C. Majkrzak, J. Ankner: Supermirror neutron guide coatings, SPIE, **1738** (1992) 150.
  - [10] R. Maruyama, D. Yamazaki, T. Ebisawa, and K. Soyama: Effect of interfacial roughness correlation on diffuse scattering intensity in a neutron supermirror, J. Appl. Phys. **105** (2009) 083527.
  - [11] N. Niimura, Y. Karasawa, I. Tanaka, J. Miyahara, K. Takahashi, H. Saito, S. Koizumi, M. Hidaka: An imaging plate neutron detector, Nucl. Instr. and Meth. A **349** (1994) 521.
  - [12] G. E. Ice, C. R. Hubbard, B. C. Larson, J. W. L. Pang, J. D. Budai, S. Spooner, S. C. Vogel, R. B. Rogge, J. H. Fox, R. L. Donaberger: High-performance Kirkpatrick-Baez supermirrors for neutron milli- and micro-beams, Mat. Sci. Eng. A **437** (2006) 120.

## 第 4 章 ミリメートル厚さの楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイスの開発

### 4.1 緒言

大強度中性子ビーム集光のためには、ミラーの大面积化とミラーの多重化が挙げられる。前章では、非球面スーパーミラーの作製プロセスならびに本プロセスによる大面积ミラーの試作結果について述べた。円型加速器の接線方向に高い指向性をもって取り出される放射光施設の X 線ビームと異なり、中性子ビームは原子炉や核破砕ターゲットの中性子源中心から全方位に向かって発散するビームをガイド管やコリメータを用いて取り出す。そのため、高いビーム強度を得るためには必然的にビームラインは短くなり、ビームラインの有効利用のためビームラインを分岐する場合には、装置の小型化が必要不可欠となる。放射光施設と比較して、既存のビームラインにおいては光源から検出器までの距離は 10-20 m と短い。よって、測定試料からミラーまでの距離が決まっている場合、1 枚の集光ミラーを用いて集光する場合、ミラーが長くなればなるほど縮小倍率は小さくなり、単位面積当たりのビーム強度を上げることが困難である。ミラーを多重化することで、設計した光学系の縮小倍率を変えことなく大開口化が可能で、小型の集光デバイスが実現可能となる[1-3]。

ミラーの多重化においては、ミラー基板の厚さにおける吸収を抑えることが一番の課題になる。図 4.1 にミラーの多重化の概念図を示す。この図からわかるようにミラーの厚さが厚いと、図中下側の曲率の大きなミラーに入射する中性子ビームを遮る形になり、見かけ上の開口は大きくなるものの実効的な開口は小さく、集光効率は低くなる。よって、ミラーの多重化をおこなうにはミリメートル厚さの非球面ミラーを精密に多重配置することが必要不可欠である。中性子集光用多重ミラーデバイスの作製においては、平面 Si 基板上にスーパーミラーを成膜し、球面に NC 加工したアルミフレームでミラーをクランプした集光デバイスの開発が報告されている[4]。しかしながら、ミラーの形状誤差が原因でサブミリメートルレベルの集光には至っていない。そこで、本研究では高精

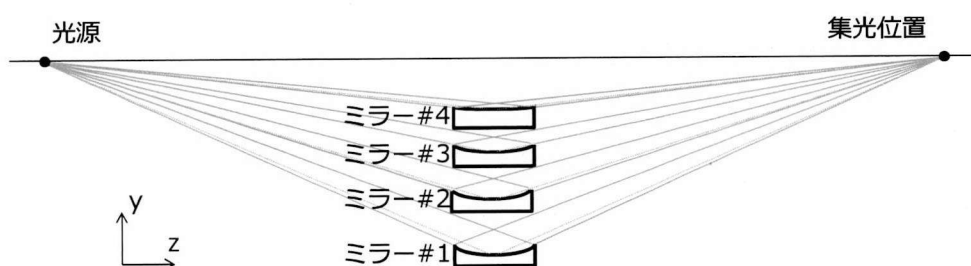


図 4.1 多重ミラー概念図

度なミリメートル厚さの作り込み非球面スーパーミラーを作製し、精度よく多重配置することで小型かつ大開口を有する集光デバイスの開発を目指す。

本章では、ミラーの多重化について、その実現に必要な不可欠なミリメートル厚さスーパーミラーの作製について検討し、その形状創成結果、スーパーミラー成膜結果、集光性能・反射特性評価結果から本プロセスの有用性を検証した結果を示す。また、多重ミラーアライメント機構を開発する。さらに、厚さ1 mmの楕円面スーパーミラーを多重配置した小型かつ大開口を有する集光デバイスを作製し、その集光特性を評価する。

### 4.2 中性子集光用薄型楕円面スーパーミラーの作製と評価

#### 4.2.1 ミラーの形状誤差が集光径に与える影響

ミラーの形状誤差が集光径に及ぼす影響を評価することで、サブミリメートルレベルの集光径を実現するために、各空間波長領域においてミラーに許容される誤差の許容値を算出する。また、我々が構築した NC-LWE と低圧研磨を併用した形状創成プロセスにより得られた各空間波長における誤差と光線追跡シミュレーションにより得られた誤差の許容値をそれぞれ PSD 解析して比較することで、本プロセスの有用性を評価する。

光線追跡シミュレーションは、ビームの波長を無限小とみなした幾何光学的な系におけるビームの振る舞いをシミュレーションする手法である。開発した光線追跡シミュレータについて説明する。図 4.2 に光学系の設定座標を示す。図 4.3 に示すように、任意のスリット幅、任意のビーム発散角を決定し、乱数を用いてその領域内から1点を中性子発生点と決定し、設定した発散角以下の方向余弦を持つ光線を生成する。形状測定により得たミラー形状は一定のデータ間隔を持った離散値であるので、データ点間を3次のスプライン関数で補間する。入射ビーム  $f(z)$  とミラー形状  $g(z)$  の交点における  $g(z)$  の法線を算出し、 $f(z)$  とその法線ならびに交点座標から反射ビーム  $h(z)$  を算出する。反射ビームの集光点  $z$  座標における  $y$  座標を計算し、これを十分な統計精度が得られるまで繰り返し、ヒストグラム化することで集光プロファイルを得ることができる。

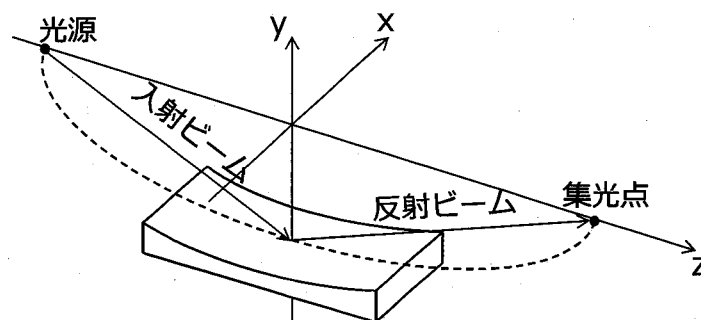


図 4.2 設定座標

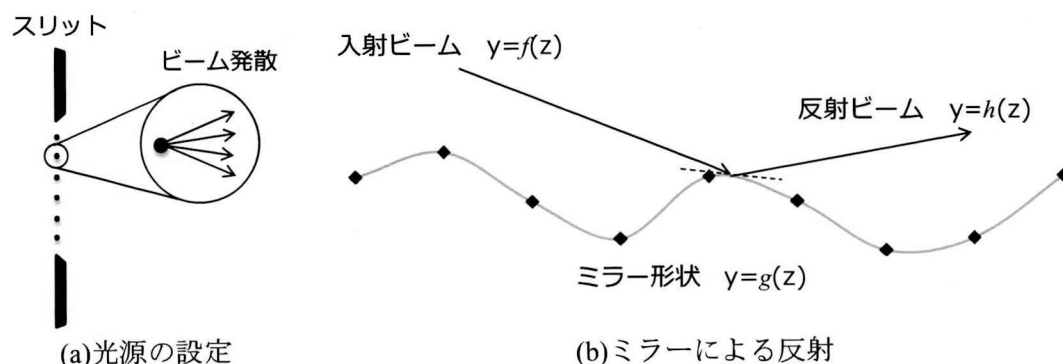


図 4.3 乱数を用いた光線追跡シミュレータ

開発した光線追跡シミュレータを用いて、ミラーの形状誤差が集光径に与える影響について考察する。ミラーの形状誤差は、様々な空間波長成分の誤差の重ね合わせで表される。形状誤差の空間波長の違いが集光径に及ぼす影響を評価するため、多重ミラーデバイスに用いる4枚のミラーに0.2-0.5、0.5-4.0、4.0-100 mmの空間波長をもつ誤差を仮定して光線追跡シミュレーションをおこない、得られた集光プロファイルを比較する。

長手方向100 mm、厚さ1 mmのミラーを多重配置した集光デバイスを設計した。本デバイスは焦点距離1050 mmの等倍光学設計であり、4枚の曲率の異なる楕円面ミラーを用いている。また、ミラーの多重化により、中性子取り込み角は $0.61^\circ$ となる。楕円の式を $(z/a)^2 + (y/b)^2 = 1$  (unit: mm)とした場合のそれぞれのミラーの楕円パラメータ $a$ 、 $b$ の値を表4.1に示す。各空間波長における誤差の振幅を変化させてシミュレーションをおこなう。集光幅が微小になるほどミラーの形状誤差が集光幅に与える影響は大きくなる。高温高圧実験、集光型小角散乱実験で目標としている集光径0.3 mmに対して半分の0.15 mmを許容値とし、ほぼ全ビームラインで実験可能な焦点距離1050 mm、等倍の光学系を設計する。光源幅を0.1 mmとして、4枚のミラーに対して各空間波長における誤差の許容値を算出する。表4.2に4枚のミラーに対する各空間波長における誤差の許容値を示す。表4.2より、ミラーの曲率が小さいほど許容される誤差の振幅は小さく、ミラー#4に最も高い形状精度が要求されることがわかる。本光学系においては、仮光源が0.1 mmという有限の大きさをもつため、楕円の焦点位置からずれて発射されるビームは楕円の幾何学的性質を正確には満たさない。設計した多重ミラーにおいて曲率の小さなミラーほど光路長が短く、光源位置の誤差による入射角の変動が大きく、曲率の小さなミラーほど形状誤差の影響を大きく受けると考えられる。また、空間波長が長いほど許容される誤差の振幅が大きいことがわかる。この結果は、同じ大きさの誤差であっても空間波長が長いほどスロープエラーの影響が小さくなることに起因する。図4.4(a)-(c)に表4.2に示したミラー#4における各空間波長の許容誤差、図4.5に、ミラー#4に図4.4(a)-(c)の誤差を仮定して光線追跡シミュレーションをおこなうことで得られた集光プロファイルを示す。図4.5より、空間波長の長い形状誤差は集光プロファイル

表 4.1 各ミラーの楕円パラメータ

	ミラー#1(mm)	ミラー#2(mm)	ミラー#3(mm)	ミラー#4(mm)
$a$	1050.31	1050.24	1050.18	1050.13
$b$	25.66	22.33	19.3	16.54

表 4.2 各空間波長における誤差の許容値

空間波長(mm)	ミラー#1(nm)	ミラー#2(nm)	ミラー#3(nm)	ミラー#4(nm)
0.2-0.5	7.5	7.2	7.0	7.0
0.5-4.0	39.5	38.7	38.0	38.0
4.0-10.0	1054.9	961.9	915.3	899.8

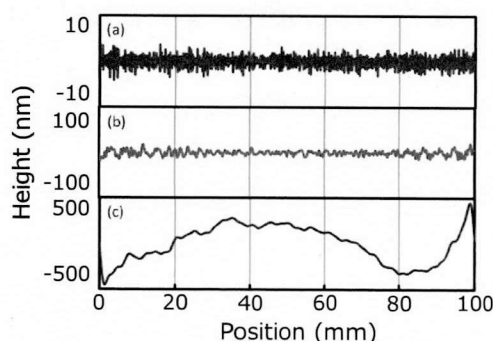


図 4.4 形状誤差プロファイル

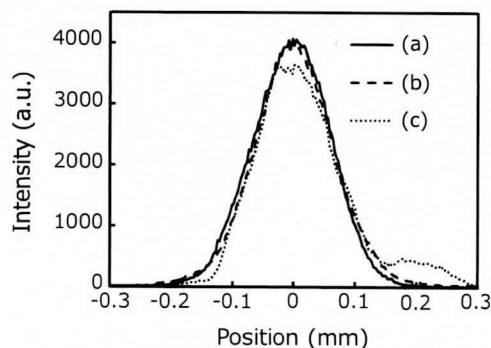


図 4.5 集光プロファイル

の形状に影響を及ぼし、形状誤差に起因したサブピークが形成されることでメインピークの強度が低下することがわかる。

前章で述べた非球面スーパーミラー作製プロセスの有用性を評価する。本プロセスでは NC-LWE により長波長領域の形状誤差を修正し、低圧研磨により NC-LWE によって得られた長波長領域の形状精度を悪化させることなく短波長領域の形状を修正する。NC-LWE による形状創成においては、加工に用いる加工痕形状が有する空間波長成分以下の形状誤差を修正することはできない。主に加工に用いている  $\phi 15$  mm の円形ノズルを一定時間基板上に滞在させて加工痕を取得し、取得した加工痕を用いた修正加工をシミュレーションする。シミュレーションにより得られた加工後の形状誤差を PSD 解析により評価する。また、その結果を、各空間波長における誤差の許容値の PSD 解析結果、低圧研磨後の表面形状の PSD 解析結果と比較することで、NC-LWE と低圧研磨を併用した薄型ミラー作製プロセスの有用性を評価する。なお、比較する誤差の許容値には図 4.4 に示す形状誤差データを用いる。図 4.6 に各空間波長領域において許容される形状誤差、NC-LWE 加工後形状誤差、低圧研磨後の表面形状の PSD 解析結果を示す。本結果より、 $\phi 15$  mm のノズルを用いた場合には、空間波長 4.0 mm 以上の形状誤差が

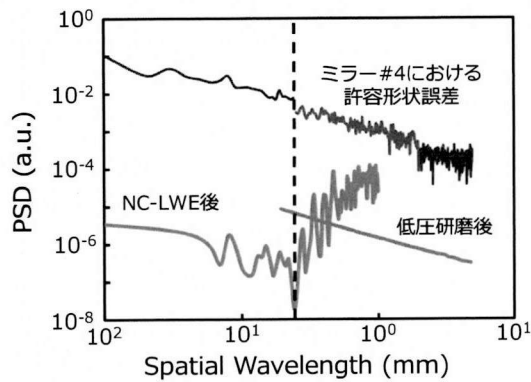


図 4.6 PSD 解析結果

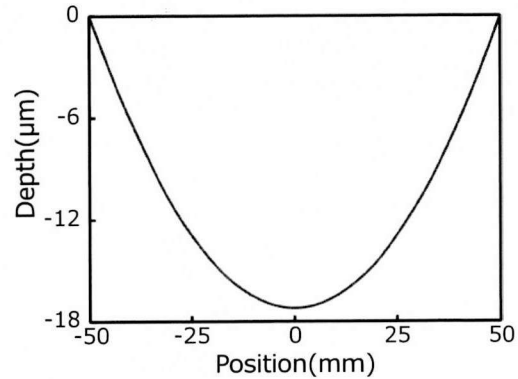


図 4.7 試作ミラー形状

修正されていることが確認され、形状誤差の許容値を満足することが示されている。また、低圧研磨後の表面形状からは 0.2-4.0 mm の空間波長領域においても誤差の許容値を満たす PSD 解析結果が得られている。以上の結果より、NC-LWE と低圧研磨を併用することにより各空間波長領域における誤差の許容値を十分に満たす形状創成が可能であることが示された。

## 4.2.2 ミラーの作製

前節では多重ミラーデバイスを設計し、各ミラーに要求される形状精度について検討した。本節では、設計したミラーの中で一番高い形状精度が必要とされる表 4.1 中のミラー#4 を理想形状として、薄型楕円面スーパーミラーを試作した。ミラー形状を図 4.7 に示す。最大加工深さは、17.2  $\mu\text{m}$  となっている。

前章では膜応力による破砕剥離を防ぐため、研削加工により基板に導入される加工変質層を HF 浸漬ならびに低圧研磨により除去する工程について述べた。接触加工により導入される加工変質層には残留応力が存在する。NC-LWE 法は非接触かつ完全なダメージフリーな加工であるので、新たに加工変質層を導入することはないが、基板厚さが薄い場合、基板を加工し、加工変質層を除去することで残留応力が解放され、基板が変形する原因になることが危惧される。よって、NC-LWE 加工に用いる基板には残留応力のないダメージフリー基板が必要とされる。

購入した研磨後の合成石英基板 (150 mm×150 mm×1.5 mm) をフッ化水素酸 (HF) に浸漬することで、HF 浸漬によるエッチング量と残留応力の解放による基板変形量の関係を調査する。その結果から加工変質層を十分に除去するために必要なエッチング量を評価する。

基板を 23  $^{\circ}\text{C}$ 、10 wt% の HF に浸漬させ、10  $\mu\text{m}$ 、20  $\mu\text{m}$ 、30  $\mu\text{m}$ 、40  $\mu\text{m}$  の各エッチング深さにおける基板の変形量を調査した。なお、23  $^{\circ}\text{C}$ 、10 wt% の HF による  $\text{SiO}_2$  のエッ



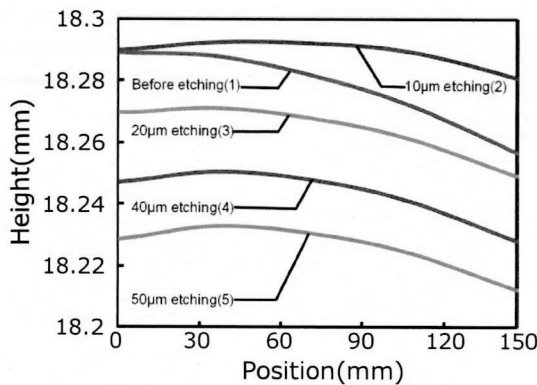


図 4.8 23°C, 5 wt% HF 浸漬エッチング後の  
基板中央断面形状

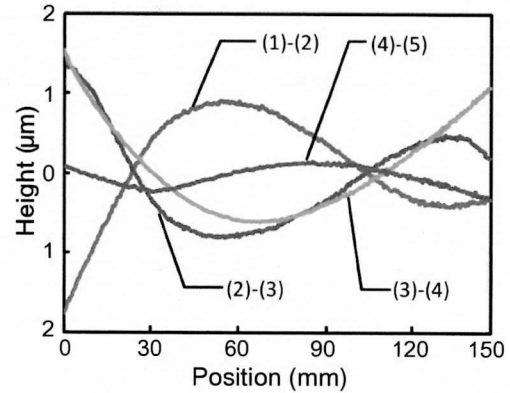


図 4.9 各エッチング深さにおける中央断面  
面での変形量の差分値

エッチングレートは  $0.06 \mu\text{m}/\text{min}$  である。各エッチング深さにおける基板の中央断面形状を図 4.8 に、各エッチング深さにおける中央断面での変形量の差分値を図 4.9 に示す。基板の形状計測にはレーザーオートフォーカス式三次元形状測定器(三鷹光器社製 NH-3SP)を用いる。加工変質層が存在し、それがエッチングによって除去されることで生じる残留応力の開放による基板の変形が確認される。また、 $40 \mu\text{m}$  エッチング後の基板の中央断面における変形量は  $0.5 \mu\text{m}$  と確認できる。1 回のエッチングプロセスにおいて基板両面で深さ  $20 \mu\text{m}$  のエッチングが行われていることを考慮すると、 $0.5 \mu\text{m}$  の形状変化は  $\pm 1.25\%$  であり、また、図 4.10 に示す各エッチング深さにおける変形量の差分値の P-V の変遷において  $30 \mu\text{m}$  エッチング後から  $40 \mu\text{m}$  エッチング後で P-V が大きく減少していることから、 $0.5 \mu\text{m}$  の形状変化はエッチングレートの面内分布によるものであると考えられる。以上より、今回ミラー作製に用いた合成石英基板には片面で深さ約  $40 \mu\text{m}$  の加工変質層が存在していること、HF 浸漬エッチングにより加工変質層の除去および残留応力の開放が可能である。

HF 浸漬エッチング前後における表面粗さの変化を評価する。エッチング前後の表面形状を走査型白色顕微干涉計 (Zygo 社製 NewView 200CHR) を用いて計測した結果を図 4.11(a)(b)に示す。エッチング後の表面は加工変質層が表出し、深さ約  $20 \text{ nm}$  の多数のピットが形成されていることが確認できる。エッチング前、エッチング後の表面粗さはそれぞれ、 $0.725 \text{ nm rms}$ 、 $2.283 \text{ nm rms}$  である。NC-LWE による形状創成では加工後の表面粗さは加工前の表

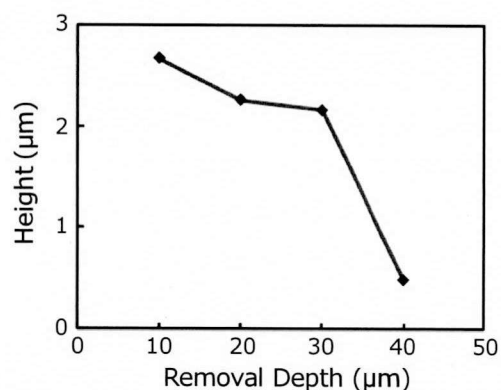


図 4.10 各エッチング深さにおける変形量の  
差分値の P-V の変遷

面粗さ、加工変質層の有無に依存するため、NC-LWE 前加工面には優れた表面粗さを有し、かつ加工変質層が導入されていない基板が求められる。そこで HF 浸漬エッチングによって加工変質層の除去と残留応力の解放を行った基板に対して低圧研磨をおこない、NC-LWE 前加工面の創成を試みる。研磨条件を表 4.3 に示す。研磨後の走査型白色顕微干涉像を図 4.11 (c)に示す。1 次研磨をおこなった結果、ピットは完全に除去され、表面粗さ 0.159 nm rms が得られた。次に適用した低圧研磨プロセスによる加工変質層導入について確認した。1 次研磨後の基板に対し、20 wt%の HF 浸漬エッチングをおこない、10  $\mu\text{m}$  エッチング後の表面粗さを調査した。エッチング後の白色顕微干涉像を図 4.11 (d)に示す。エッチング後の表面には深さ約 2 nm のピット状の粗さ成分が確認され、表面粗さは 0.390 nm rms を得た。しかしながら、購入後の基板を HF 浸漬した際に観察された、スクラッチ、ピット等の基板表面全体へのダメージではなく、これはスラリー中で凝集した砥粒による突発的な押し込みが原因であると考えられる。また、図 4.11 (b)と図 4.11 (d)の表面形状データを用いて PSD 解析をおこなう。その結果を図 4.12 に示す。1 次研磨プロセスにより加工変質層は導入されているが、購入後基板を HF 浸漬したものよりも全空間波長領域において表面粗さ成分は減少しており、NC-LWE 後における表面粗さの悪化が少ないことが期待される。

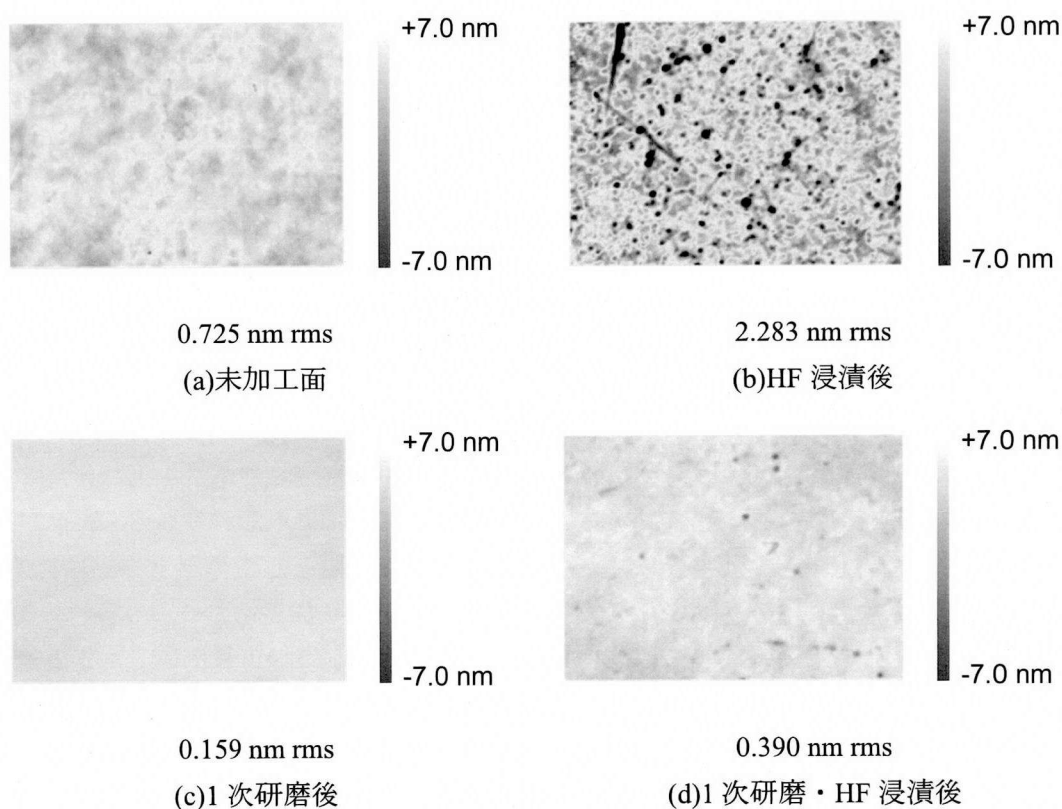


図 4.11 各工程における表面粗さ像 ( $64 \times 48 \mu\text{m}^2$ )

表 4.3 1 次研磨条件

荷重[g]	100
研磨パッド硬度	82[Asker-C] (FILWEL 社 NP178)
スラリー	CeO <sub>2</sub> (粒径 0.19 $\mu$ m) (太陽鋳工社 L0)
スラリー濃度[wt%]	0.01
パッド回転数[rpm]	300
走査速度[mm/min]	300
送りピッチ[mm]	0.1
加工深さ[ $\mu$ m]	0.04

従来の研削や切削といった強制加工において薄型基板を加工する場合、加工中はその加工圧力による位置ずれが生じないように基板の固定が必要となり、固定時の圧力により基板の変形が生じる。強制加工においては、工具刃先の位置制御によって形状創成をおこなうため、固定により変形した基板を加工し、固定ジグから取り外す際に変形するため、目的形状を得ることは難しい。またその加工圧力による変形、そのスプリングバックも形状精度を悪化させる原因となる。宇宙望遠鏡用の薄型 SiC 基板の ELID 加工において、加工圧力による変形を有限要素法により計算し、それを砥石接触点の走査軌跡にフィードバックする技術が報告されている[5,6]。しかしながら、接触加工による形状創成においては加工変質層の導入は避けられず、研削後におこなう低圧研磨プロセスにより加工変質層部分の残留応力が開放されることにより、基板の大きな変形が予想される。

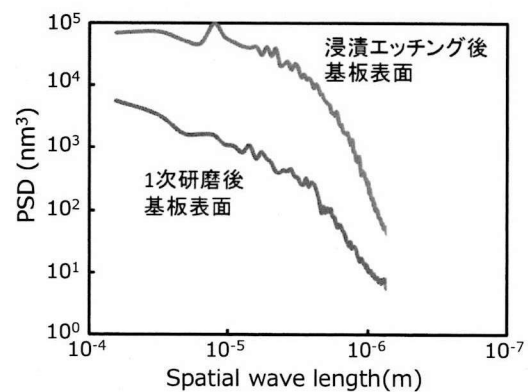


図 4.12 1 次研磨前後の基板表面 PSD 解析結果

NC-LWE プロセスにおけるミリメートル厚さ基板の形状創成について述べる。図 4.13 に薄型ミラーの形状創成プロセスの概念図を示す。ミリメートル厚さ基板を形状計測の際、任意の 3 点(図中では 2 次元図のため 2 点)で支持し、重力によるたわみも含んだ状態で形状計測をおこない、理想形状からの形状誤差を体積加工量として算出する。図中右上の点線が設計したミラーの理想形状を示している。NC-LWE 加工をおこなう際、基板を取り外し、LWE 加工用の治具に基板を固定し、算出した体積加工量に応じた走査速度で加工ノズルを走査する。加工後に基板を形状計測時と同じ 3 点の位置で支持し、重力によるたわみを再現することで、設計通りの理想形状を得ることができる。これは、残留応力を含まないダメージフリー基板を非接触無歪加工法である NC-LWE でダメージフリーに加工するからこそ実現できる加工プロセスである。今回作製するミラーは最大

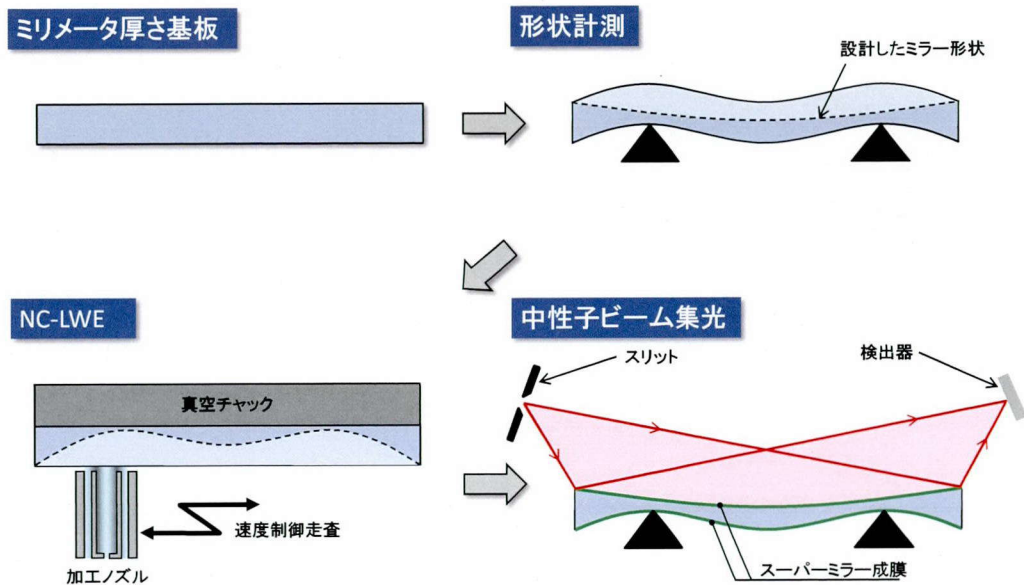


図 4.13 薄型ミラーの形状創成プロセスの概念図

表 4.4 NC-LWE 加工条件

HF 濃度(wt%)	37
HF 温度(°C)	40
ノズル基板間距離(μm)	300
ノズル径(mm)	15
送りピッチ(mm)	0.5

加工深さがすべて 100  $\mu\text{m}$  以下であるため、NC-LWE による形状創成のみでも十分能率的にミラー作製が可能である。よって、前章で述べた精密研削は適用せず、HF 浸漬エッチング、1 次研磨により得た基板を用いて、NC-LWE による楕円面形状創成をおこなう。表 4.4 に NC-LWE 加工条件、図 4.14(a) に NC-LWE 後の形状誤差分布 (100  $\times$  20  $\text{mm}^2$ )、図 4.14(b) に長手方向 A-A' 断面の形状誤差を示す。100  $\times$  20  $\text{mm}^2$  の領域において 0.460  $\mu\text{m}$  p-v、長手方向の 100 mm 区間において 0.186  $\mu\text{m}$  p-v の形状誤差を 1 回の加工プロセスにより達成している。また加工に要した時間は 18 時間である。この結果は、上述の薄型基板の形状創成プロセスを実現し、厚さ 1.5 mm の薄型基板においても、決定論的にサブマイクロメートルレベルの形状精度が形状創成可能であることを示す。

図 4.15(a)(b) に NC-LWE 加工後の基板中心の走査型白色顕微干涉像を示す。加工後には高さ 250 nm 程度のツールマークが 0.5 mm ピッチで形成された。これは NC-LWE 加工時のラスターキャンにより形成されたものである。また、64  $\times$  48  $\mu\text{m}^2$  の領域における加工後の表面粗さは 1.167 nm rms である。



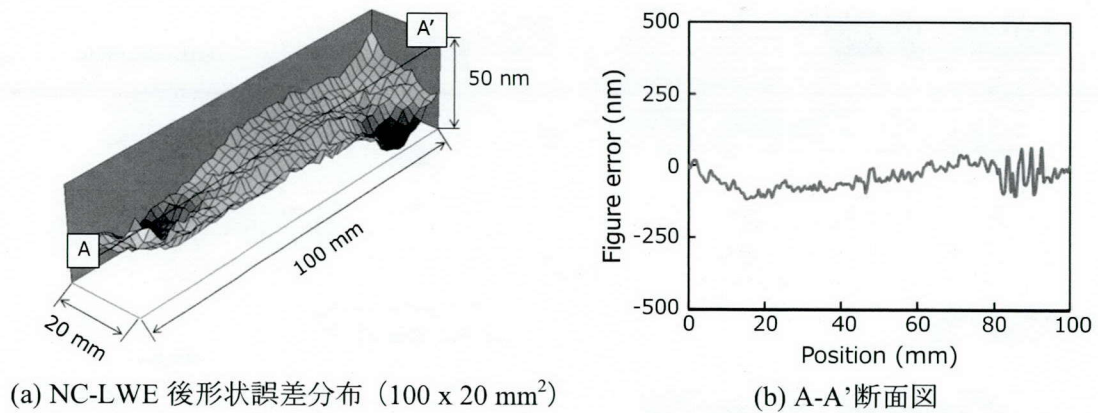


図 4.14 NC-LWE 後の形状誤差

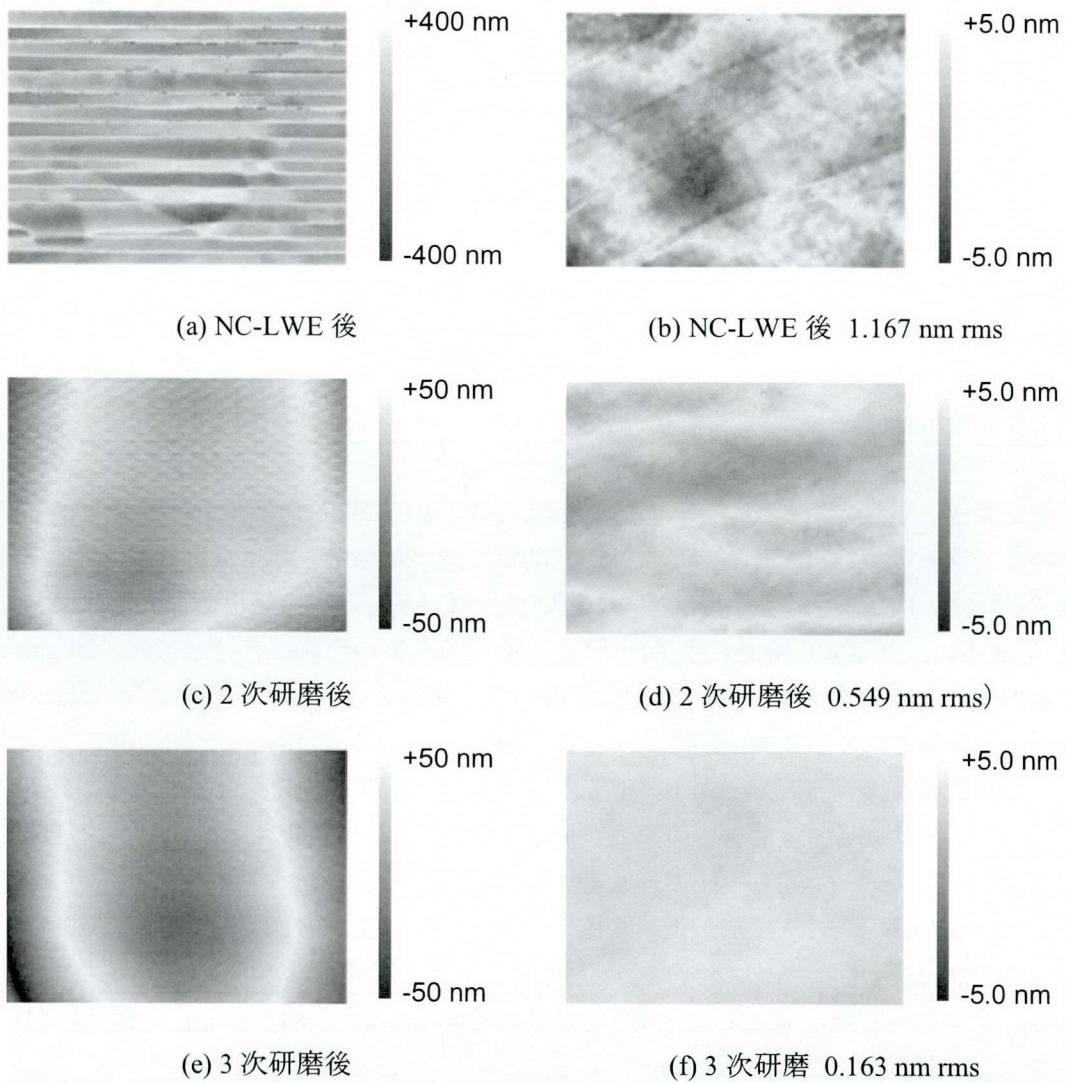


図 4.15 各工程における表面粗さ像((a)(c)(e) : 5.17×3.88 mm<sup>2</sup>、(b)(d)(f) : 64×48μm<sup>2</sup>)

NC-LWE による形状創成後には、低圧研磨によって表面粗さを改善する。硬質パッドを用いた 2 次研磨により、ツールマーク等の LSFR を除去する。表 4.5 に研磨条件、図 4.15(c)(d) に 2 次研磨後の走査型白色顕微干涉像、図 4.16 に 2 次研磨前後のツールマーク高さを示す。図 4.15(c)、図 4.16 から NC-LWE プロセスによって導入されたツールマークは 2 次研磨により完全に除去できる。また図 4.15(d) から、LSFR の除去と同時に  $64 \times 48 \mu\text{m}^2$  の領域における表面粗さも改善することに成功している。

次に軟質パッドを用いた 3 次研磨により MSFR、HSFR を除去した。図 4.15(e)(f) に 3 次研磨後の白色顕微干涉像を示す。図 4.15(f) から、 $64 \times 48 \mu\text{m}^2$  の領域における表面粗さは  $0.2 \text{ nm rms}$  以下を達成している。また図 4.15(e) の  $5.17 \times 3.88 \text{ mm}^2$  の領域においては、図 4.15(c) に示した 2 次研磨後と比較してパッドの軌跡に応じたクロスハッチ上の粗さ成分が滑らかになり、表面粗さが改善された様子が観察できる。

図 4.17 に各工程における表面形状の PSD 解析結果を示す。LWE 後、2 次研磨後、3 次研磨後と順に全空間周波数成分において粗さが改善された。図 4.18 に 3 次研磨前後の形状誤差変化を示す。変化量は約  $0.1 \mu\text{m p-v}$  程度であり、適用した低圧研磨プロセスはミリメートル厚さ基板においても形状精度の悪化なく、表面粗さの改善が可能である。

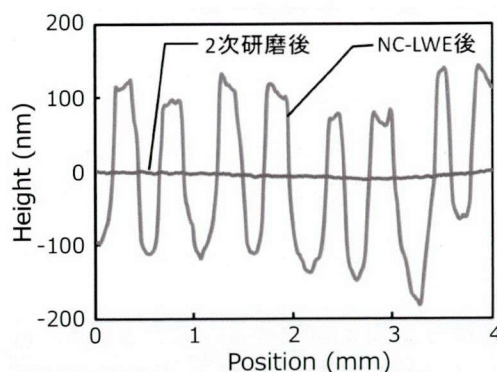


図 4.16 研磨前後における  
ツールマーク高さの変化

表 4.5 研磨条件

	2 次研磨	3 次研磨
	$\phi 20\text{mm}$	$\phi 20\text{mm}$
研磨パッド	発泡ポリウレタンパッド (ニッタハース社 IC1000)	発泡ポリウレタンパッド (FILWEL 社 NP178)
硬度	58 [Shore-D]	82 [Asker-C]
スラリー	$\text{CeO}_2$ ( $0.19 \mu\text{m}$ ) 5wt% (太陽鋳工社 L0)	$\text{CeO}_2$ ( $0.19 \mu\text{m}$ ) 0.1wt% (太陽鋳工社 L0)
荷重 (g)	240	100
回転数 (rpm)	300	300
走査速度 (mm/min)	100	300
送りピッチ(mm)	0.1	0.1
パス回数	1	1



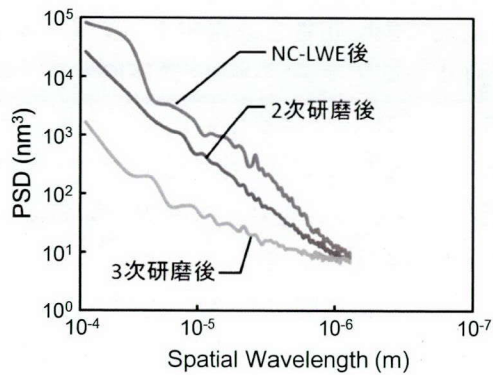


図 4.17 PSD 解析結果

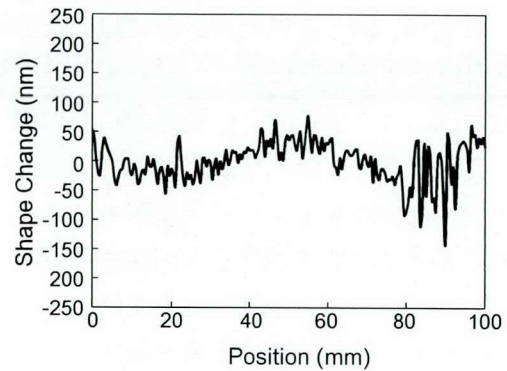


図 4.18 3 次研磨前後の形状変化

作製した 1.5 mm 厚さの楕円面基板上に、前章で述べた日本原子力研究開発機構のイオンビームスパッタ装置を用いて  $m=3$  の多層膜スーパーミラーを成膜した。成膜条件を表 4.6 に示す。

今回成膜した  $m=3$  の NiC/Ti スーパーミラーは積層数 402 層、全膜厚 3  $\mu\text{m}$  である。前章では、他の成膜方法との密着力の違いによる圧縮膜応力について述べ、以前作製した試作ミラーの変形量から、膜応力を概算した。膜応力  $\sigma$  は Stoney の式[7,8]

$$\sigma = \frac{Eb^2}{3(1-\nu)rd} \quad (4.1)$$

で見積もることができる。ただし、 $E$ 、 $\nu$ 、 $b$  はそれぞれ基板のヤング率、ポアソン比、厚さで、 $d$  は薄膜の膜厚、 $r$  は基板の反り（曲率半径）である。

表 4.6 成膜条件

ミラー材料	NiC/Ti
ミラー総積層数	402
全膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	3
設計 $m$ 値	3
膜厚アルゴリズム	Hayter and Mook

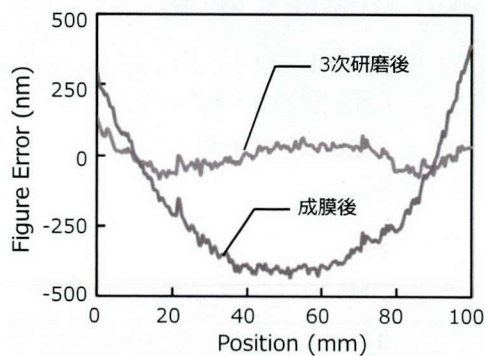


図 4.19 成膜前後の形状誤差

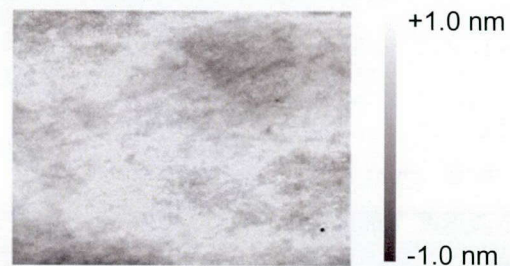


図 4.20 成膜後表面粗さ像



表 4.7 に示した各パラメータを用いて膜応力を算出する。これから膜応力  $\sigma$  は 1.95 GPa と見積もられ、この膜応力が 1.5 mm 厚さ基板に対して生じると、約 112.5  $\mu\text{m}$  p-v の変形が生じると概算される。したがって、膜応力を相殺し、膜応力による変形を緩和するため、基板両面への成膜を検討した。

成膜前後におけるミラーの形状誤差を図 4.19 に示す。本結果より、成膜後の形状誤差は、0.960  $\mu\text{m}$  p-v であることがわかる。こ

の変形量は片面にのみ成膜した際に予想される変形量に対して 0.8 % の値である。成膜に用いたイオンビームスパッタ成膜装置においては、ターゲットから基板表面までの距離を 1 m 以上設け、基板の前に成膜量を均一化するためのマスクを設置し、試料を回転させながら成膜することで成膜可能領域  $\phi$  500 mm 全面において 3-4 % の膜厚分布誤差を達成している。この膜厚分布誤差は成膜ホルダー中心部と成膜ホルダー外周部において決まっている。そのため、今回の成膜においては、成膜領域が 100 x 20  $\text{mm}^2$  と成膜領域が小さいためミラー基板を膜厚分布誤差の小さい成膜ホルダー中心から 100 mm の位置に設置し、表面、裏面成膜時ともに同じ位置に位置決めして成膜することで非常に高い膜応力の再現性をもって成膜ができたと考えられる。

成膜後のミラー表面の走査型白色顕微干涉像を図 4.20 に、成膜前後の PSD 解析結果を図 4.21 にそれぞれ示す。成膜後の表面粗さは 0.203 nm rms であり、表面粗さに悪化は見られない。PSD 解析の結果から、成膜前後で高周波粗さ成分の減少、低空間周波数粗さ成分の増加が見られる。高空間周波数粗さ成分の減少に関しては、スパッタされた粒子がミラー基板表面に到達した際、表面の凹凸による表面エネルギーの差から凹部から成膜されと考えられる。また低空間周波数粗さ成分の増加に関しては、3  $\mu\text{m}$  という厚い膜を成膜する際に生じる成膜分布の誤差が要因であると考えられる。以上の結果より、本プロセスで検討した両面成膜による膜応力の相殺でミラー基板の変形の緩和が可能であることが示され、1.5 mm という大変薄いミラー基板においても、 $m=3$  のスーパーミラーをサブマイクロメートルレベルの形状精度、サブナノメートルレベルの表面粗さを保ちながら成膜することに成功した。

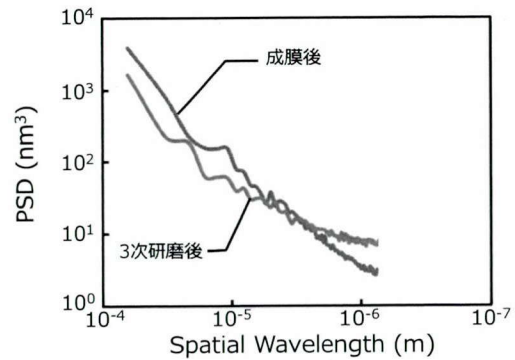


図 4.21 PSD 解析結果

表 4.7 膜応力算出計算に用いた各パラメータ

ヤング率 $E(\text{GPa})$	72
ポアソン比 $\nu$	0.17
基板厚さ $b(\text{mm})$	15
基板の反り(曲率半径) $r(\text{m})$	555.6
薄膜の膜厚 $d(\mu\text{m})$	6

### 4.2.3 MINE2 における中性子反射率の評価

作製した薄型楕円面スーパーミラーの反射特性の評価をおこなう。スーパーミラーの性能は、Ni の全反射臨界角の何倍の反射臨界角を有するかという  $m$  値、ならびに臨界角付近での立ち上がり反射率で評価される。まず、はじめに散乱ベクトルについて定義する。図 4.22 に散乱ベクトルのイメージ図を示す。横軸を  $x$ 、縦軸を  $z$  にとっており、

$$q_z = k(\sin\theta_i + \sin\theta_f) \quad (4.2)$$

$$q_x = k(\cos\theta_i - \cos\theta_f) \quad (4.3)$$

と示される。ここに、反射率測定 ( $\theta$ - $2\theta$  スキャン)、オフセットスキャン、ロックングスキャンという各反射特性評価と  $q_x$ - $q_z$  空間の関係について、図 4.23 に示す。 $q_z$  成分は多層膜における各層の面間の情報、 $q_x$  成分は各層の面内の情報を含んでいる。

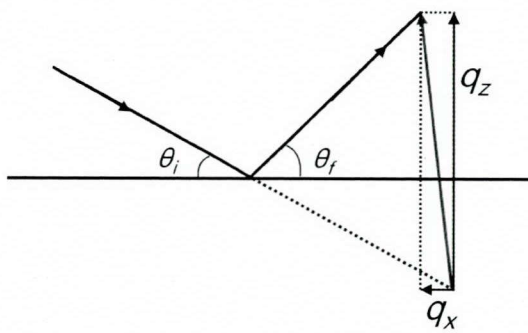


図 4.22 散乱ベクトル

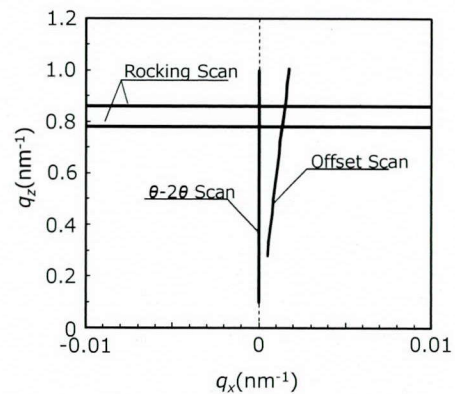


図 4.23 各測定で得られる  $q_x$ - $q_z$  情報

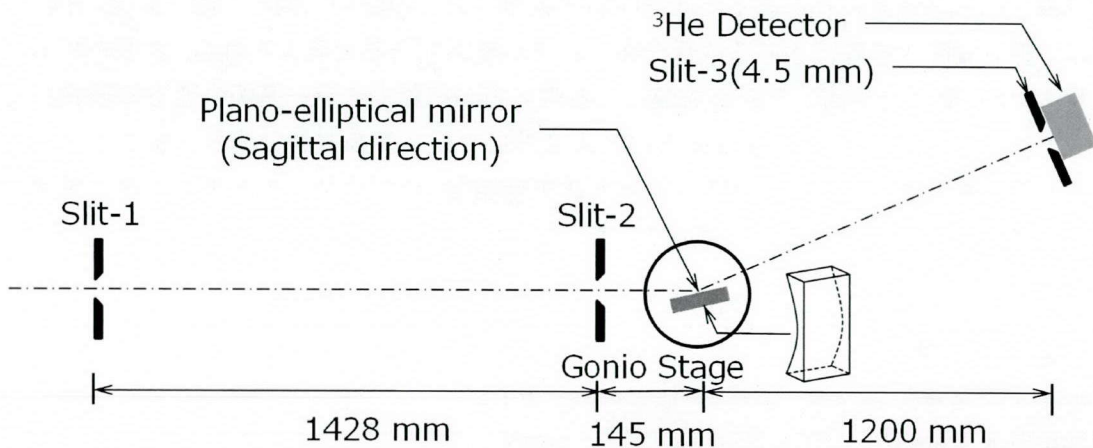


図 4.24 反射率測定光学系

JRR-3M の冷中性子ビームライン Multilayer Interferometer reflectometer for NEutron 2(MINE2)において、 $\theta$ - $2\theta$  スキャンにより反射率を測定した。MINE2 における中性子波長は 0.88 nm である。作製したミラーは長さ 100 mm の方向に曲率を有し、その直交方向の曲率は 0 であるため、図 4.24 に示す光学系のように中性子ビームの入射方向をミラーの光軸方向に対して直交するように設置し、スリットによりミラーの中心領域 30 mm に中性子ビームが当たるようにする。反射率測定結果を図

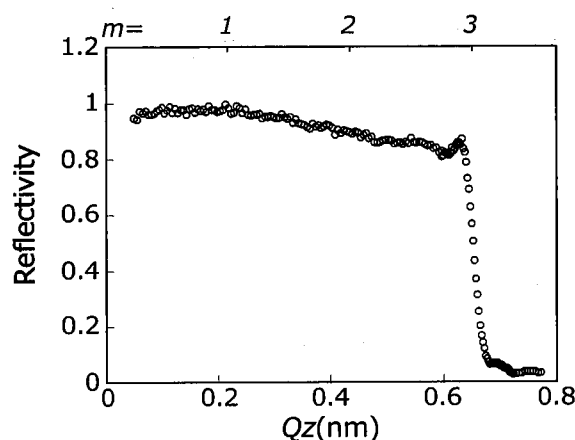


図 4.25 反射率測定結果

4.25 に示す。 $m=3$  まで連続して高い反射率が得られていることが確認でき、これは設計通りの膜厚分布で成膜ができていることを意味する。また臨界角付近での反射率は 0.8-0.9 であった。これはミラー基板表面、ミラー表面だけではなく、成膜したスーパーミラー 402 層全層の界面において優れた界面粗さが実現されていることを示している。

#### 4.2.4 CHOP における中性子集光特性の評価

作製した薄型楕円面スーパーミラーの集光性能評価を、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3M の白色中性子ビームライン pulsed neutron instrument with dick CHOPper (CHOP)にて冷中性子ビーム ( $0.3 < \lambda < 1.2$  nm) を用いておこなった。図 4.26 に光学系、図 4.27 にイメージングプレートにより測定した集光ビームプロファイルの中央断面を示す。縦軸は対数目盛である。仮光源となる位置でのスリットサイズは 0.25 mm とした、焦点距離 1050 mm の等倍光学系である。

図 4.27 より、未集光時に比べピーク強度で約 12 倍の集光ゲインと集光半値幅 0.21 mm を得ることに成功した。ダイレクトビームはバックグラウンドノイズと比較して、ピーク強度においても 1 桁程度しか強度差がないのに対して、集光ビームにおいては 2 桁以上高い強度が得られている。また、作製した集光ミラーで集光した中性子ビームの波長依存性について評価する。イメージングプレートの代わりに  $^3\text{He}$  の 0 次元検出器を設置し、スリット 1 の上流に設置されたチョッパーを回転させることで、集光ビームならびにダイレクトビームの中性子飛行時間(TOF: Time of Flight)を測定する。図 4.28 に TOF 法による波長分布測定結果、図 4.29 に測定光学系を示す。TOF 測定で得られた集光ビームの強度はダイレクトビームの 50-60 % しかない。MINE2 でおこなった反射率測定の結果から、ミラーの反射率は臨界角付近においても 80-90 % 以上あることから、作製したミラーの性能によるものではなく、作製した集光ミラーの開口よりも集光ミラー部分



におけるビームサイズが大きく、ダイレクトビームすべてをミラーで反射できていないことが原因であると推測される。また、集光ビームにおいては、波長 0.5 nm 付近に欠けが見られる。これは集光ビームの TOF 測定中にビームライン上流に設置された中性子 3 軸分光器 Low energy Triple-Axis Spectrometer (LTAS)において、この波長域の中性子がモノクロメータにより切り出されたことが原因である。しかしながら、ダイレクトビームと同様に  $0.3 < \lambda < 1.2 \text{ nm}$  の全波長領域の中性子ビームを反射できており、実際の集光光学系のセットアップにおいても成膜したスーパーミラーが正確な膜厚分布をもって成膜されていることが確認される。

これらの結果から、作製した薄型楕円面ミラーは我々が目的とするサブミリメートルレベルの集光性能を有しており、既存の中性子計測技術へ適用する際、高い位置分解能、高い S/N 比をもった測定が期待される。

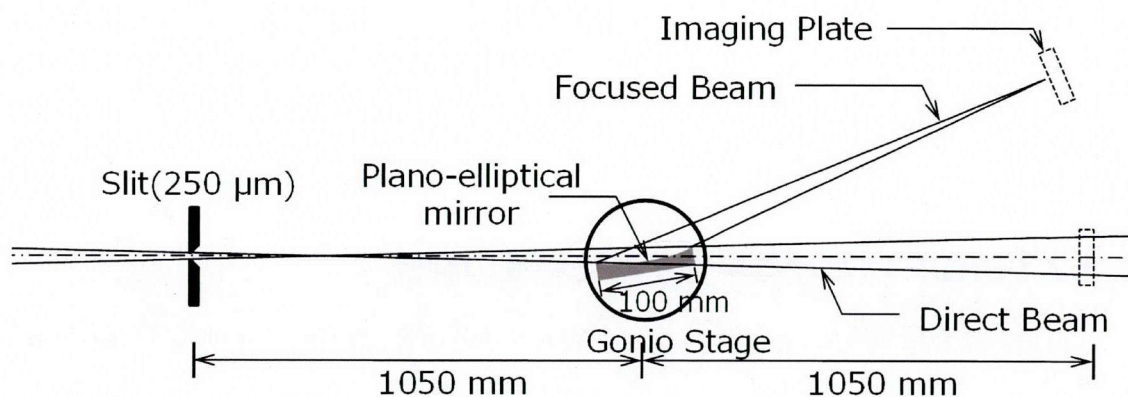


図 4.26 集光実験光学系

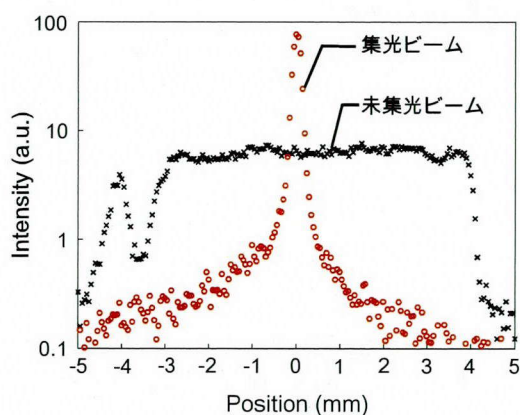


図 4.27 集光結果

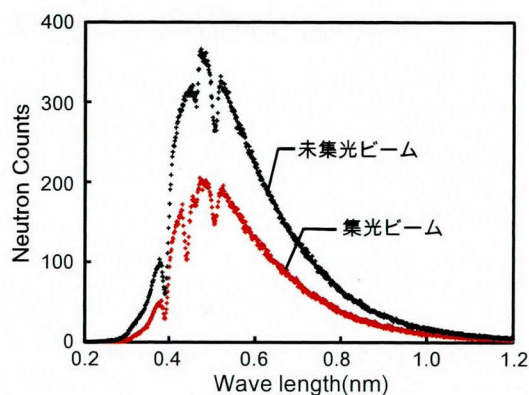


図 4.28 TOF による波長分布測定結果

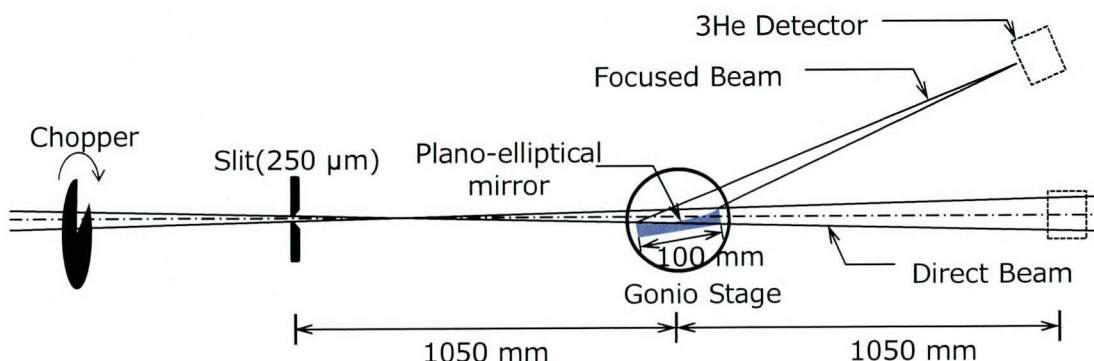


図 4.29 TOF 測定光学系

### 4.3 中性子集光用多重楕円面スーパーミラーデバイスの作製と評価

#### 4.3.1 光学系

J-PARC の中性子反射率計 Polarized Neutron Reflectometer with vertical sample-plane geometry (SHARAKU)での評価を目的として厚さ 1 mm の楕円面スーパーミラーを 4 枚多重配置する集光デバイスを設計した。図 4.30 に設計した光学系の概略図、表 4.8 に BL17 のビーム特性を示す。入射する中性子ビームの波長は  $\lambda < 0.88$  nm である。水銀ターゲットより 6.95 m の位置に設置されたスリット 1 を集光ミラーの楕円焦点位置（仮光源）と定め、この焦点位置からミラー中心までの距離は 7.43 m、ミラー中心からもう一方の焦点位置（集光点）までの距離 3.62 m の縮小倍率 0.49 倍の縮小光学系であり、本ミラーにより垂直方向のみのビームを集光する。設計指針としては、図 4.30 下側の開口の大きなミラーにおいて一番入射角が大きな箇所、つまり一番下流側において 0.2 nm の中性子ビームを  $m=3$  のスーパーミラーで反射できるように設計し、その入射、反射ビームを遮らないように次のミラーを同じ焦点距離、ワーキングディスタンスをもって設置する。

本光学系における 4 枚それぞれの 1 mm 厚さミラーは、 $150 \times 75$  mm<sup>2</sup> のミラー基板に対して、長さ 100mm、幅 20mm の楕円ミラー領域を持ち、それぞれの楕円形状パラメータ、 $m$  値は表 4.9 に示すとおりである。図 4.30 下側の開口の大きなミラーから順に #1-4 とする。表 4.9 中における総取り込み角は基板の側面に入射するビームも含めたミラーの取り込み角、 $\theta_i$  は各ミラーにおける反射面への取り込み角、 $sum\theta$  は  $\theta_i$  を順に足し合わせたものであり、取り込み効率は  $sum\theta$  を総取り込み角で割った値と定義する。設計した集光デバイスにおける 4 枚のミラーの総取り込み角は  $0.06^\circ$ 、中性子取り込み効率は 48.6 % である。

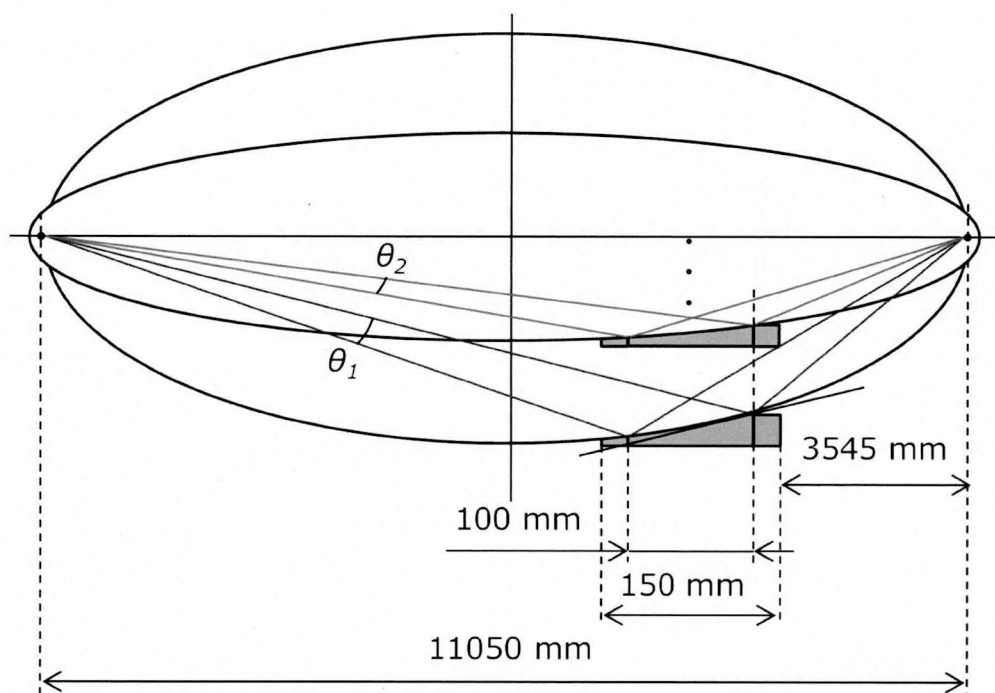


図 4.30 集光光学系@BL17

表 4.8 BL17 のビームライン特性

中性子波長 (nm)	0.22 < $\lambda$ < 0.9 (25Hz)
測定 $Q_z$ 範囲(nm <sup>-1</sup> )	0.05 < $Q_z$ < 25
モデレータ	Coupled hydrogen moderator

表 4.9 各ミラーの設計パラメータ

#	総取り込み角 (°)	$\theta_i$ (°)	Sum $\theta$ (°)	取り込み効率	縮小倍率	$a$ (mm)	$b$ (mm)
1	0.0079	0.0079	0.0079	-	0.4872	5525.255	53.051
2	0.0259	0.0075	0.0154	0.595	0.4872	5525.231	50.539
3	0.0434	0.0072	0.0226	0.520	0.4872	5525.209	48.095
4	0.0604	0.0068	0.0294	0.486	0.4872	5525.189	45.718

## 4.3.2 多重ミラーアライメント機構の開発

### 4.3.2.1 光線追跡シミュレーションによる必要アライメント精度の算出

多重配置楕円面集光ミラーシステムにおける各ミラーのアライメント誤差は、ミラーの形状精度と同様に、集光径を増大させる大きな要因であり、サブミリメートルレベルの集光を達成するためには、要求されるアライメント精度の算出と、その精度を達成するためのアライメント機構の開発が必要となる。そこで、光線追跡シミュレーションにより、アライメント誤差が集光径に与える影響について検討した。

今回、任意の大きさを有した光源から放射されるビームが、楕円面ミラーに反射され、集光位置に到達する系を想定する。なお、シミュレーションの際のミラー形状には4枚のミラーの中で一番開口が大きく、多重配置した際に集光幅に最も影響を与える表4.9中#1の成膜後の形状を用いる。用いた形状のデータピッチ、光源幅、中性子発散角は0.1 mm、3.0 mm、0.1°である。図4.32に集光位置・光源位置と座標系の関係を示す。ミラーに対して、光軸方向誤差 $\varepsilon_z$ と、ミラー鉛直方向誤差 $\varepsilon_y$ 、並びに3軸周りの回転誤差 $\varepsilon_{\theta x}$ 、 $\varepsilon_{\theta y}$ 、 $\varepsilon_{\theta z}$ を作用させてシミュレーションをおこない、アライメント誤差と集光幅の関係を評価する。

光源幅が3.0 mmである場合、理想的には集光幅は0.250 mmとなる。光線追跡シミュレーションの結果、集光幅は、 $\varepsilon_y=1.0$  mmの場合0.252 mm、 $\varepsilon_z=-10$  mmの場合0.260 mm、 $\varepsilon_{\theta x}=0.13^\circ$ の場合0.293、 $\varepsilon_{\theta y}=1^\circ$ の場合0.253 mm、 $\varepsilon_{\theta z}=1^\circ$ の場合0.255 mmであった。それぞれの誤差の値と集光幅の関係を図4.33に示す。以上の結果より $\varepsilon_{\theta x}$ が最も大きく集光径に影響を与えること、NC-LWEによって得られるミラー基板が、目的とする集光性能に対して十分な形状精度を有していることが明らかである。よって作製する多重ミラーデバイスによる集光幅0.3 mmを目標として $\varepsilon_{\theta x}<0.13^\circ$ を達成するミラー保持機構を作製する。長さ150 mmのミラー基板が0.13°の傾きを有しているとする、その両端の高さの差は0.340 mmである。したがって、ミラー底面を3点支持で保持する機構を想定すると、支持点の高さ制御分解能、置き直し測定再現性は0.1 mm程度を実現すれば目標とする集光径0.300 mmは十分に達成可能である。図4.33の各ビームプロファイルからもわかるように、1枚のミラーによる集光において、集光点位置を問題としなければ、 $\varepsilon_{\theta x}<0.13^\circ$ 以内のアライメント精度を実現すれば集光幅0.3 mmを達成可能である。しかし、ミラーの多重化をおこなう場合においては、アライメント誤差による合成集光位置の誤差も考慮する必要がある。1枚のミラーにおける集光幅が0.300 mm以内であったとしても、そのピーク位置が理想的な集光位置からシフトしている場合、多重化した際の集光幅はそれぞれのミラーによって得られる集光プロファイルの足し合わせで表されるため、集光点位置の誤差に伴い、多重ミラーデバイスによって得られる集光径は増大する。たとえば、 $\varepsilon_{\theta x}=0.13^\circ$ の場合、そのピーク位置は理想的な集光位置座標を0とすると-2.6 mm (図4.33 (b)) となり、ミラーを多重配置した際、目標の集光幅0.3 mm



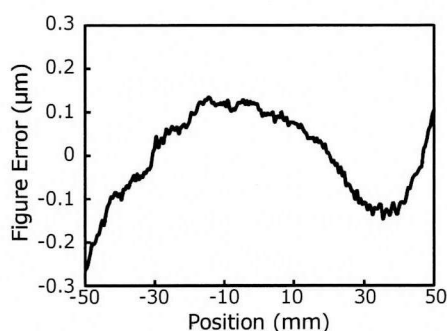


図 4.31 シミュレーションに用いた形状誤差

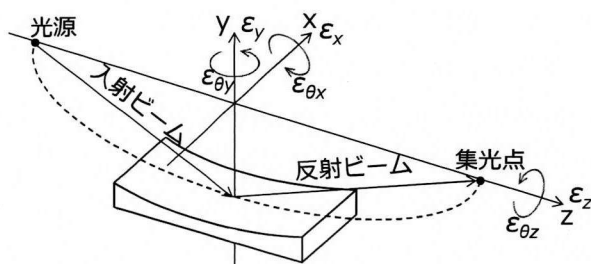


図 4.32 集光位置・光源位置と座標系の関係

は実現できない。よって、アライメント誤差と集光位置シフト量の関係性を評価し、多重ミラーデバイスにより合成集光幅 0.3 mm を達成するために必要なアライメント精度を算出する必要がある。

以下に集光幅 0.3 mm を達成するために必要なアライメント精度を光線追跡シミュレーションによって算出した結果を示す。#1 のミラーが一番開口が大きく、多重配置した際に#1 のミラーの集光点位置誤差が最も集光幅に影響を与える。よって、#1 のミラーによる集光ビームの足し合わせにより、多重配置する際の各ミラーにおける相対的な入射角のアライメント誤差許容値を算出する。 $\varepsilon_{\theta x}=0.003^\circ$ 、 $-0.003^\circ$  の場合の集光プロファイル、それぞれの集光プロファイルを足し合わせたプロファイルを図 4.34 に示す。 $\varepsilon_{\theta x}=0.003^\circ$ 、 $-0.003^\circ$  それぞれの場合の集光半値幅は 0.254 mm、0.255 mm であり、それぞれの集光プロファイルにおいては、理想的な集光ができる。しかし、そのピーク位置は  $\varepsilon_{\theta x}=0.003^\circ$ 、 $-0.003^\circ$  それぞれにおいて、-0.059 mm、0.061 mm であり、約 60  $\mu\text{m}$  の集光点位置の誤差が生じる。上記の 2 つのプロファイルを足し合わせたプロファイルのガウシアンフィッティングをおこない、その半値幅を算出した結果、半値幅は 0.295 mm であった。各ミラーにおける集光点位置を無視したアライメント誤差の許容値は、本シミュレーションで算出した多重配置する際の各ミラーにおける相対的な入射角のアライメント誤差許容値に比べ 2-3 桁大きいいため、一番開口が大きく最も集光点位置誤差が集光幅に影響を与える#1 のミラーにおけるアライメント誤差許容値として相対的な入射角を  $\pm 0.003^\circ$  の精度で各ミラーにおいて実現することで、目標とする 0.300 mm の集光幅を達成できる。

以上のシミュレーション結果から、設計した厚さ 1 mm の薄型ミラー基板をアライメントする際の設計指針として、多重配置する際の各ミラーにおける相対的な入射角のアライメント誤差を  $\pm 0.003^\circ$  以内にすることが必要であることがわかった。

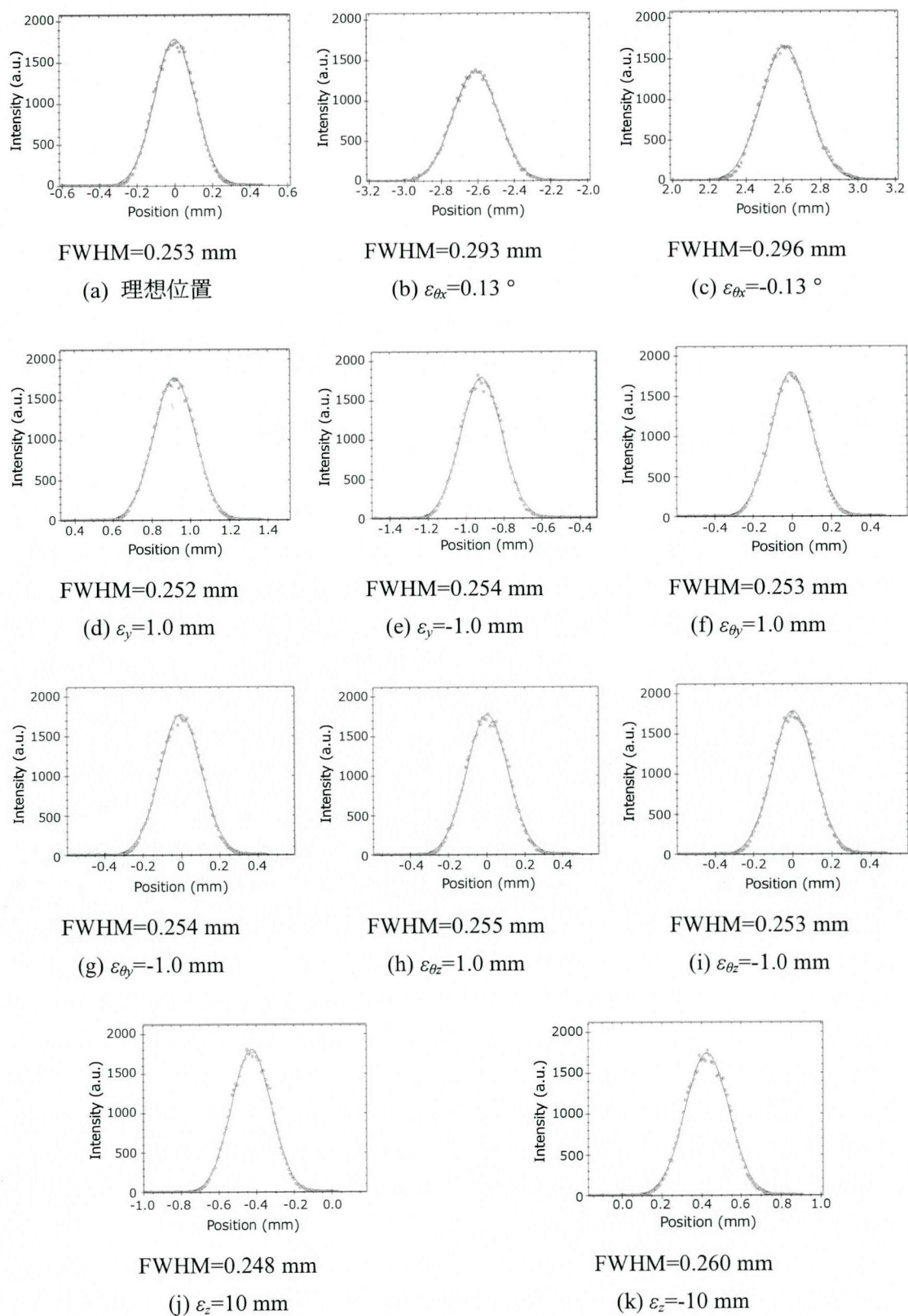


図 4.33 各アライメント誤差を与えた際の集光プロファイル

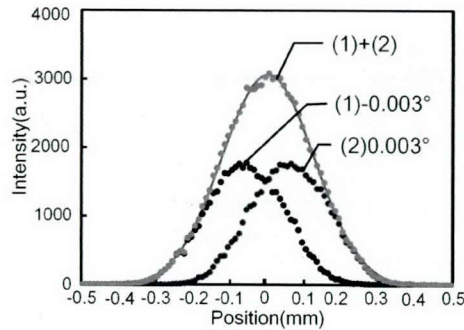


図 4.34 アライメント誤差と集光位置の関係

#### 4.3.2.2 くさび機構を用いた多重ミラーアライメント機構

ミラー1枚の場合の集光径、ミラーを多重配置した際の集光位置のシフトの2つの観点から多重ミラー保持機構に求められるアライメント精度を算出する。その結果、長さ150 mmのミラー基板が0.003°の傾きを有しているとする、ミラー底面を3点支持で保持する機構を想定すると、支持点の高さ制御分解能、置き直し測定再現性として5  $\mu\text{m}$ 程度を実現すれば目標とする集光幅0.3 mmは十分に達成できる。ここでは、そのアライメント精度を実現するための多重ミラー保持機構を設計・作製した結果を述べる。

長さ150 mmのミラー基板に対して $\varepsilon_{\theta x}$ を $\pm 0.003^\circ$ 以内とするためには、ミラー両端の高さを7.85  $\mu\text{m}$ 以内の精度で調節する必要がある。またアライメント機構によって中性子ビームが遮られないよう設計することも必要である。ミラー基板をアライメント機構上に設置すると自重による変形が生じるが、NC-LWEによる形状創成では、自重変形した形状を測定し、得られた測定形状を前加工面形状として修正加工することで設計形状を創成し、集光実験時にも同じ姿勢で支持することで、高い形状精度を維持したまま中性子を集光できる。薄型ミラーは、自重による変形量が大きいため、同じ姿勢を再現するためにはミラーを置き直した際の高い再現性が必要である。これらを設計指針として、4枚のミラーの裏面をそれぞれ3点で支持し、支持点の高さをくさび機構により高精度に調整可能なミラー保持機構を設計した。図4.35に支持点の高さ調整機構の詳細図を示す。本機構にはリニアガイドを3つ設けており、マイクロメータヘッドの突き出し量をくさび機構により支持点の鉛直方向の変位に変換することで支持点の高さを高精度に調整することが可能である。ミラー支持点には直径1 mmの剛球を圧入により設置しており、ミラー基板を点接触により保持することができる。本機構では、くさび機構の水平方向、鉛直方向の移動比を10:1としている。マイクロメータヘッドの1目盛りが10  $\mu\text{m}$ であるため、鉛直方向0.5-1  $\mu\text{m}$ の分解能が見込まれ、目標の7.85  $\mu\text{m}$ の精度を十分に達成できる。マイクロメータヘッド先端の接触部分には直径1 mmの剛球を圧入しており、また可動部にリニアガイドを設けることで、支持点の水平方向の移動が抑制さ



れるため、アライメントの際にガタツキがなく、目標とする精度で高さ方向の調整が可能である。図 4.36、図 4.37 に多重ミラー保持機構の CAD 図、作製した保持機構の写真を示す。各ミラーの水平方向の位置決めは位置決めピンに押し当てて決定する

設計となっており、高さ調整機構を図 4.37 に示したように設置し、各ミラーを独立した 3 点で支持する形になっている。

自重たわみによる変形量を有限要素法により計算した。基板は厚さ 1 mm の合成石英ガラスで、大きさは 150 mm×75 mm である。支持点の座標系を図 4.38 に示す。今回、ミラー#4 の変形量を計算した。ミラー#4 における支持点は  $P_1(2.5,5.0)$ 、 $P_2(118.5,5.0)$ 、 $P_3(60.5,70)$  である。図 4.39 に変形後の鉛直方向の変位量分布を示す。この結果から鉛直方向の変位は最大で 57.7  $\mu\text{m}$  であることが確認された。また図 3.40 に変位量分布の長手方向断面、短手方向断面を示す。以上の結果から、開発したジグを用いた場合の自重たわみによる変形は数十  $\mu\text{m}$  レベルであり、基板の厚さよりも 1 桁以上小さく、また NC-LWE で十分に修正可能な加工量であることが確認できた。

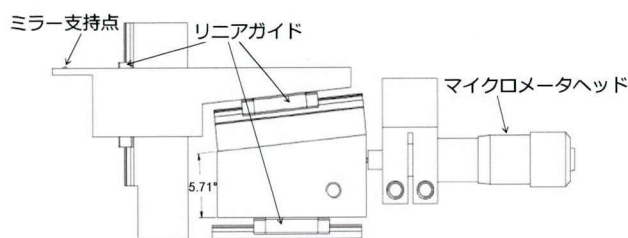


図 4.35 支持点の高さ調整機構

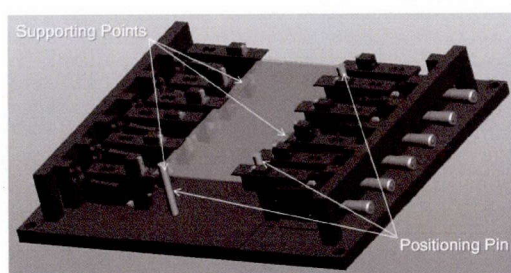


図 4.36 多重ミラー保持機構 (CAD 図)

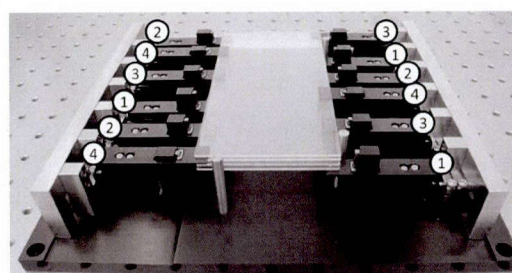


図 4.37 作製した多重ミラー保持機構

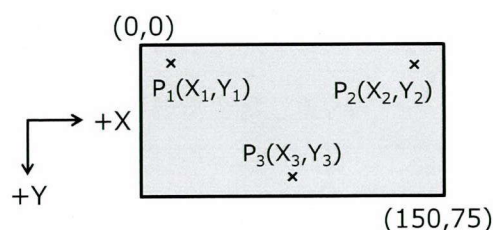


図 4.38 支持点の座標系

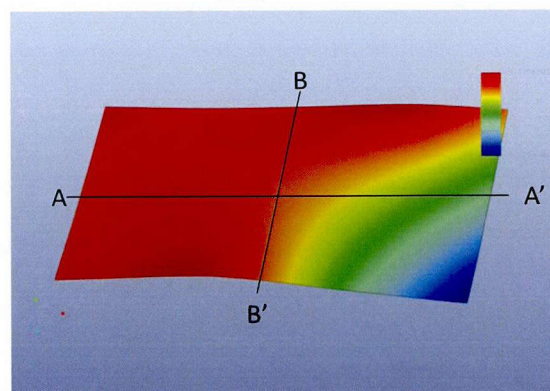


図 4.39 自重による変形シミュレーション

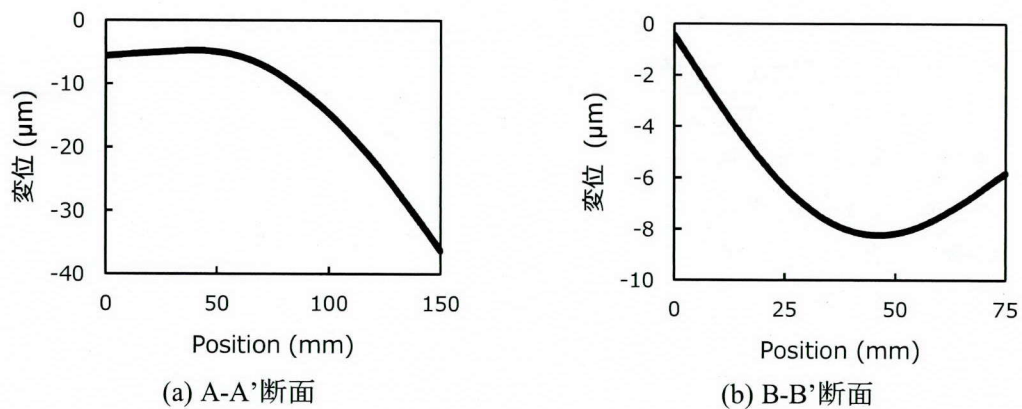


図 4.40 自重変形後の断面形状

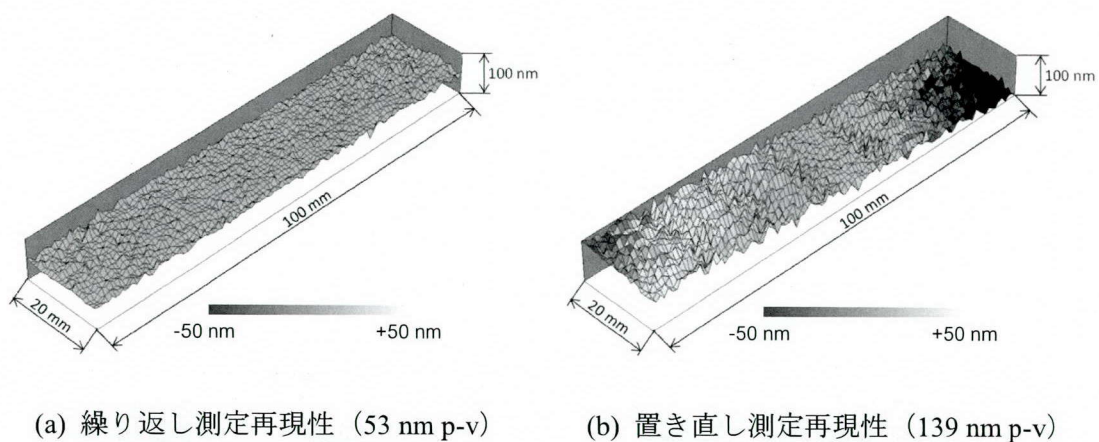


図 4.41 NH-3SP により評価した多重ミラー保持機構における測定再現性

#### 4.3.2.3 多重ミラー保持機構の測定再現性の評価

多重ミラーデバイスの最終的な形状精度、アライメント精度は多重ミラー保持機構の測定再現性に依存する。よって、多重ミラーデバイスによって目標の集光幅を実現するためには、本機構は前述の光線追跡シミュレーションによって算出されたアライメント精度を満たす測定再現性が必要である。そこで、作製した多重ミラー保持機構を用いて NH-3SP でミラーを

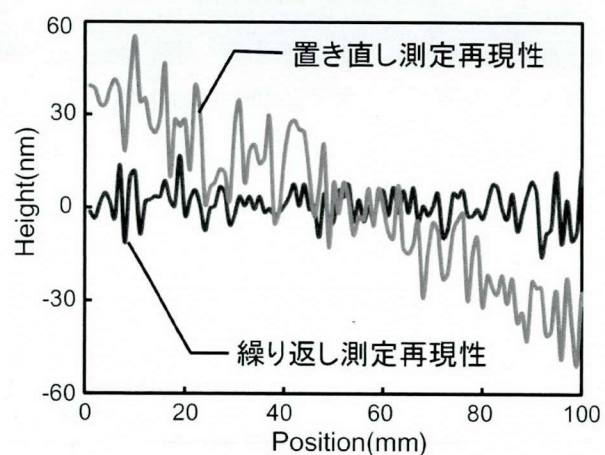
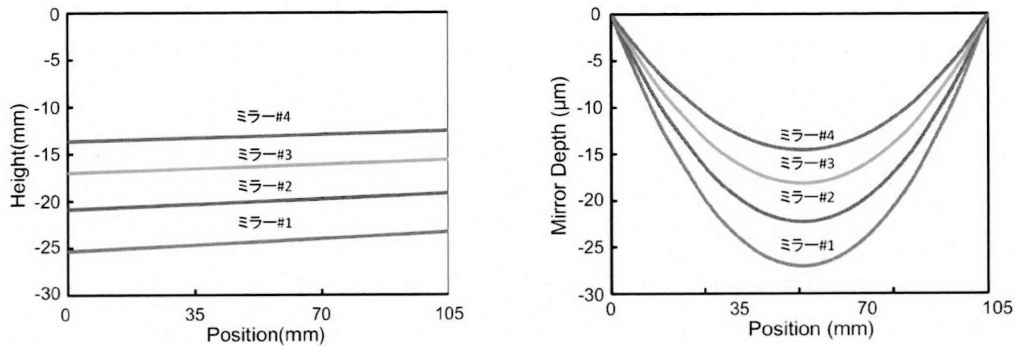


図 4.42 長手方向中央断面における測定再現性

測定する際の測定再現性を評価した。100×20 mm<sup>2</sup>の領域を10回連続で測定し、ミラー基板を取り外し、再度置き直し、10回連続で測定した。10回連続で測定した際の9回目と10回目の差分値を連続測定再現性、置き直し前後それぞれ10回目の差分値を置き直し測定再現性と定義して評価した。図4.41に繰り返し測定再現性、置き直し測定再現性を示す。また、それぞれの測定再現性の長手方向中央断面図を図4.42に示す。図4.41、4.42より100×20 mm<sup>2</sup>の領域における繰り返し測定再現性、置き直し測定再現性はそれぞれ53 nm p-v、139 nm p-v、長手方向中央断面においてはそれぞれ32 nm p-v、106 nm p-vであることがわかる。この結果は光線追跡シミュレーションによって算出された必要アライメント精度を十分に満たしており、また本機構を用いることでサブマイクロメートルレベルの形状創成が可能であることを示している。以上より、本保持機構により目標の集光幅を実現するミラーデバイスの作製が可能であることが示せた。



(a)多重配置した際の位置関係

(b)両端を0として1次関数で補正

図4.43 各ミラーの理想形状

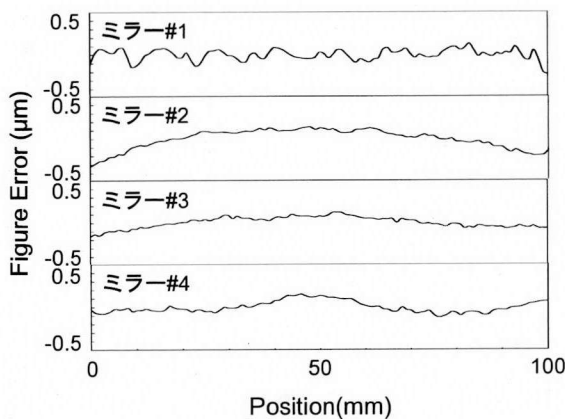


図4.44 四枚のミラーの形状誤差

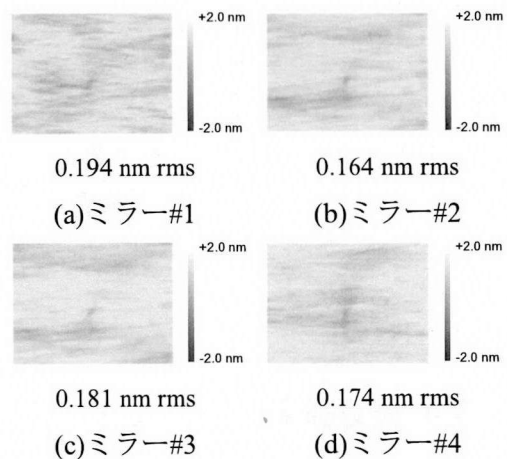


図4.45 四枚のミラーの表面粗さ  
(64×48μm<sup>2</sup>)

### 4.3.3 四枚の 1 mm 厚楕円面スーパーミラーの形状創成と評価

NC-LWE プロセスでは自重変形した状態の基板形状を測定し、得られた測定形状を前加工面形状として修正加工することで設計形状を創成するため、自重変形量の大きい薄型基板に対しても高精度な形状創成が可能である。また、多重ミラー保持機構をミラー作製時と集光実験時の双方において用いることで、NC-LWE によって得られた形状精度を保証した状態で集光実験をおこなえる。

開発した多重ミラー保持機構を用いて加工前後の形状計測をおこなうことで、中性子集光用多重楕円面スーパーミラーデバイスを作製した。4 枚のミラー形状は表 4.9 に示すそれぞれの  $a, b$  の値をパラメータとした  $(a/x)^2 + (b/y)^2 = 1$  の式で表される焦点距離 7500 mm の楕円形状を有し、ミラー領域は 100 mm×20 mm であり、ミラー中心は 2 つの焦点の中点から 3175 mm の位置にある。各ミラーの理想形状を図 4.43 に示す。なお、NC-LWE プロセスにおいては、まずミラー#1 の基板両端の傾きが 0 になるように保持し、加工量を最適化した状態で形状創成を行う。ミラー#2 以降は、支持点高さ調整機構により、ミラー#1 基板両端の傾きに対する各ミラーの基板両端の傾きで保持することで、全てのミラーの加工量を決定する。LWE 加工条件、研磨条件、成膜条件は先に示した表 4.4、4.5、4.6 と同じである。

成膜後の形状誤差を図 4.44 に、表面粗さを図 4.45 に示す。形状誤差はミラー#1 から順に、0.36  $\mu\text{m}$  p-v、0.46  $\mu\text{m}$  p-v、0.28  $\mu\text{m}$  p-v、0.27  $\mu\text{m}$  p-v であり、すべてのミラーにおいて、形状誤差 1  $\mu\text{m}$  p-v 以下を達成している。また、64×48  $\mu\text{m}^2$  の領域における表面粗さはすべてのミラーにおいて 0.2 nm rms 以下を得ている。図 4.44 において、ミラー#1 の形状誤差には 1-4 mm 周期の形状誤差が確認できる。これは NC-LWE 加工におけるシミュレーションの際、直径 15 mm の加工ノズルでは修正できない 1-4 mm 周期の形状誤差が加工前の基板形状に存在し、この形状誤差を形状修正シミュレーションに用いた結果、ステージの立ち上がり加速度等の問題から正確に走査できない走査速度分布を算出し、形状修正加工をおこなったことが原因であると考えられる。

以上の結果から、開発した多重ミラー保持機構は厚さ 1 mm の楕円面ミラーをサブマイクロメートルレベルの形状精度で作製するための高い測定再現性を有することが実証された。また厚さ 1 mm の楕円面ミラーを 4 枚すべてにおいて、目標精度で作製することに成功した。

### 4.3.4 光線追跡シミュレーションによる集光径の算出

光線追跡シミュレーションを用いて多重ミラーデバイスによって得られる合成集光幅の試算した。シミュレーションの際のミラー形状には図 4.44 に示す各ミラー形状誤差 (0.1 mm ピッチ) を用いる。また、ミラーのアライメント誤差にはミラー基板をミ



ラー保持機構に設置した状態でNH-3SPにて計測した形状から算出した入射角アライメント誤差  $\varepsilon_{\theta x}$  を用いる。以上のミラー形状、入射角アライメント誤差  $\varepsilon_{\theta x}$  を入力値として、図 4.30 に示した光学系において、光源幅 3.0 mm、発散角  $0.1^\circ$  を想定して光線追跡シミュレーションをおこなう。それぞれのミラーの入射角アライメント誤差  $\varepsilon_{\theta x}$ 、シミュレーションによって得られた集光プロファイル、それぞれのミラー集光径を表 4.10、図 4.46、表 4.17、図 4.47、表 4.12 に示す。

表 4.10 に示すように、各ミラーの入射角アライメント誤差は測定再現性から予測されるよりも大きな値となっている。これは形状計測、NC-LWE 加工、低圧研磨、成膜の各プロセスにおいて、位置決めピンに押し当て位置決めする際、ガラス基板の接触部が微小ながら破損したことが原因として考えられる。しかしながら、図 4.47、表 4.12 に示すアライメント誤差の無い理想位置での集光プロファイル、それぞれのミラーの集光径と比較すると、アライメント誤差の各ミラーの集光幅への影響は微小であり、多重ミラーデバイスによって得られる集光幅は 0.273 mm と、集光位置のずれを考慮してもアライメント誤差による集光径の増大は 5.0 % である。また、理想集光幅 0.250 mm に対する集光幅の増大は 9.2 % である。このように、本集光デバイスを用いることで、目標とする集光幅 0.3 mm を十分に達成する見込みを得た。

表 4.10 各ミラーにおける入射角アライメント誤差  $\varepsilon_{\theta x}$  [°]

ミラー#1	-0.00048
ミラー#2	0.00137
ミラー#3	0.00170
ミラー#4	0.00184

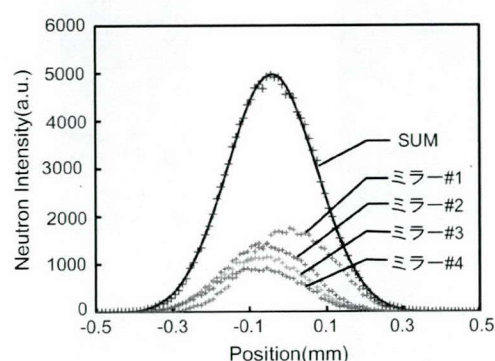


図 4.46 各ミラーの集光プロファイル

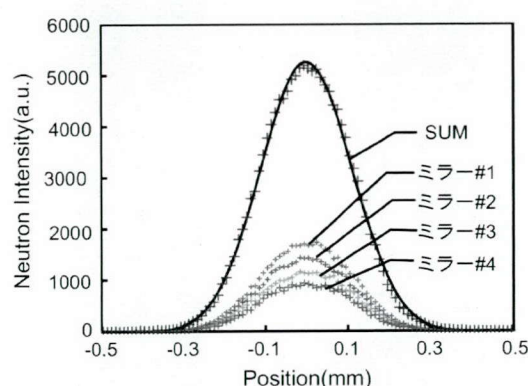


図 4.47 各ミラーの理想位置での集光プロファイル

表 4.11 各ミラーで  
得られる集光幅 [mm]

ミラー#1	0.260
ミラー#2	0.263
ミラー#3	0.260
ミラー#4	0.262
SUM	0.273

表 4.12 各ミラー(理想位置)で  
得られる集光幅 [mm]

ミラー#1	0.260
ミラー#2	0.260
ミラー#3	0.262
ミラー#4	0.260
SUM	0.260

### 4.3.5 BL17 における集光特性評価

開発した集光デバイスの集光特性を J-PARC のビームライン BL17 にて評価する。図 4.30 に示した光学系において、光源幅を 0.5 mm としておこなった。図 4.48 に集光点位置での各ミラーと多重配置した際のイメージングプレートによるビームプロファイル像を示す。また抵抗分割型 PMT により、取得したビームプロファイルを図 4.49 に示す。

多重配置したときの集光半値幅は 0.3 mm であり、前節で述べた光線追跡シミュレーションの結果と一致する。この結果から、開発した多重ミラーデバイスは目標精度を満たし、我々が提案する厚さ 1 mm の楕円面スーパーミラーを作り込みミラーとして作製し、変形応力のかからないアライメント機構により保持する本集光デバイスが小型かつ大開口でサブミリメートルの集光を実現する大変有用なものであることが示された。また本集光デバイスはビームの発散に応じてさらなる大開口化も可能であり、ビームラインに応じたミラーを設計し、作製することができる。

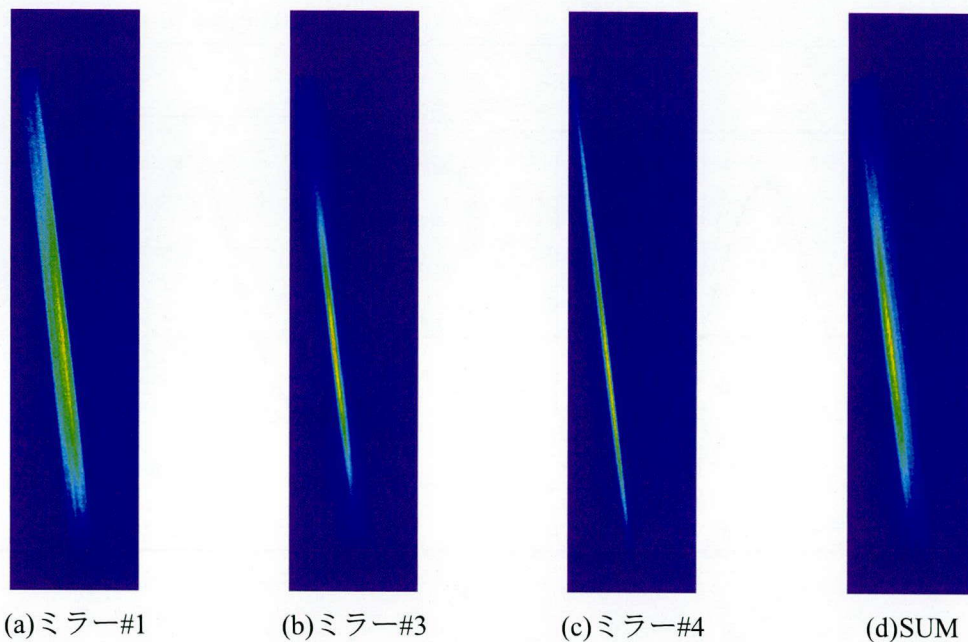


図 4.48 各ミラーによる集光プロファイル像

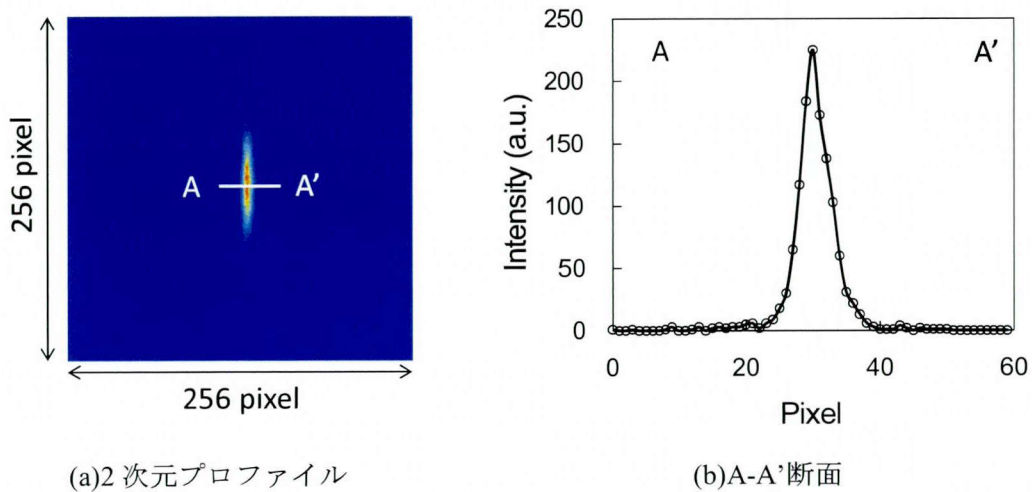


図 4.49 集光ビームプロファイル

#### 4.4 結言

第4章では、厚さが1 mmの楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイスの開発について述べた。大強度の中性子ビーム集光を実現する手段として、ミラーの大面积化とミラーの多重化が挙げられる。ミラーの多重化においては、基板の厚さ部分における吸収損失を極力抑えるためミリメートル厚の楕円面ミラーを高精度に作製する必要がある。工具の位置制御によって形状創成をおこなう通常の機械加工では固定時の変形、加工圧力による変形、スプリングバック等によりミリメートル厚さの基板をサブマイクロメートルレベルの形状精度で加工することは大変困難である。それに対して、加工圧力のかからない非接触無歪加工であるNC-LWE法を適用することで、ミリメートル厚さの基板においてもサブマイクロメートルレベルの形状精度で加工することが可能である。以下に、1.5 mm厚さミラーの先行試作結果、多重ミラーデバイス作製のためミラー保持機構の開発、多重化に用いる4枚の1 mm厚さ楕円面ミラーの作製、集光デバイスの中性子集光特性評価と得られた知見をまとめる。

- (1) 厚さが1.5 mmの合成石英基板を用いて楕円面スーパーミラーの試作をおこなった。NC-LWEでミリメートル厚さの基板を加工する際、前加工で導入された加工変質層部分での残留応力が問題となる。NC-LWEによって前加工で導入された加工変質層を除去した際、加工変質層部分で残留応力が解放されて10-100  $\mu\text{m}$  p-v オーダの基板の変形が生じる。ダメージフリーの基板を用意するため、残留応力除去による変形量がエッチングムラと同程度になるまでHF浸漬エッチングをおこない、加工変質層を完全に除去した。そして、粒径0.19  $\mu\text{m}$ の $\text{CeO}_2$ スラリーとポリウレタンパッ



ドを用いた1次研磨により表面粗さを0.39 nm rmsまで改善し、ダメージフリーな合成石英基板を用意した。NC-LWEプロセスにより、 $100 \times 20 \text{ mm}^2$ の有効ミラー領域を有する薄型楕円面ミラー基板を作製した。その結果、形状誤差0.43  $\mu\text{m}$  p-v、表面粗さ1.17 nm rmsを得た。この結果から、非接触加工法によりミリメートル厚さの合成石英基板の形状創成加工をおこなった際の加工変質層による残留応力の影響を明らかにした。また、非接触加工法によるミリメートル厚さの基板の高精度形状創成に関する知見を得た。

- (2) 粒径0.19  $\mu\text{m}$ の $\text{CeO}_2$ スラリーと硬質のポリウレタンパッドを用いた2次研磨、軟質のポリウレタンパッドを用いた3次研磨により各空間周波数粗さ成分を除去することで、3次研磨後の基板中心部における表面粗さとして0.163 nm rmsを達成した。
- (3) 作製したミラー基板に $m=3$ のNiC/Tiスーパーミラーを成膜した。片面に成膜をおこなった場合、その圧縮膜応力(GPaレベル)により最大60  $\mu\text{m}$  p-v程度の変形が予測された。この対策として基板両面への成膜をおこない、膜応力を相殺することで成膜後の形状誤差として0.96  $\mu\text{m}$  p-vを得た。この結果から、両面成膜による膜応力の相殺、基板の変形防止に関する知見を得た。
- (4) MINE2にて反射特性評価を行った結果、設計通り $m=3$ まで連続して高い反射率を有し、正確な膜厚分布であることを確認した。臨界角付近での反射率として90%を達成した。
- (5) CHOPにて集光実験をおこなった結果、集光幅0.16 mmのサブミリメートルレベルの集光に成功し、未集光に比べ12倍のゲインを達成した。
- (6) 大強度中性子ビーム集光実現のため、1mm厚さの楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイスを開発した。各ミラーの長さを100 mm、ミラー厚さ1 mmとして4枚垂直方向に多重配置した一次元集光用縮小光学系ミラーデバイスを設計した。
- (7) 光線追跡シミュレーションによりミラーのアライメント誤差が集光幅に及ぼす影響を評価し、集光幅0.3 mmを達成するために必要なアライメント精度を算出した。その結果、各ミラーの相対的な許容入射角誤差は $\pm 0.003^\circ$ 以内であることがわかった。
- (8) 算出したアライメント精度を達成するためのミラー基板保持機構を設計した。設計した保持具は4枚の各ミラーを3点支持で保持する機構を有し、高い測定再現性が見込まれる。また、各支持点の高さを1  $\mu\text{m}$ 程度の分解能で制御する機構を有するため、様々な光学設計のミラーデバイスに対応可能である。NC-LWEによる決定論的形状創成加工においては、ミラーの形状計測と集光実験時の保持姿勢を同じに保つ必要がある。ミリメートル厚さ基板の形状創成においては、開発した保持機構を用いて重力によるたわみも含んだ形状を計測する。NC-LWEによる修正加工後、保持

機構に置き直すことで重力によるたわみを再現し、理想通りの形状を達成できる。

- (9) 集光デバイスに用いるミラーを作製し、計測した各ミラー形状を考慮した光線追跡シミュレーションをおこなうことで、集光デバイスによって得られる集光幅を算出した。集光半値幅は 0.273 mm であった。集光デバイスの集光実験をおこなった結果、全ミラーにおいて集光幅 0.28 mm を達成した。

## 参考文献

- [1] P. Gorenstein, E. Whitbeck, K. Gerald, et al., “Lobster-eye X-ray telescope prototype,” in Multilayer and Grazing Incidence X-Ray/EUV Optics III, vol. 2805 of Proceedings of SPIE, p. 74, (1996).
- [2] V. Marsikova, “X-ray optics: wolter,” in Proceedings of the International Workshop on Astronomical X-Ray Optics, Prague, Czech Republic, December (2009).
- [3] R. Hudec, V. Marsikova, L. Pina, A. Inneman, M. Skulinova, International Conference on Space Optics (2010).
- [4] T. Osakabe, K. Soyama, Rev. Sci. Instrum. 76, 073102 (2005) .
- [5] 恵藤浩朗, 他, 加工変形シミュレーションを導入した SiC ミラーの超精密加工, 精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2005) K22
- [6] 戴玉堂, 他, 薄肉リブ構造を持つ SiC の ELID 研削変形, 精密工学会秋季大会学術講演論文集, (2002) I81.
- [7] G.G. Stoney, Proc. Roy Soc. A82 (1909) 172.
- [8] J. D. Finegan and R. W. Hoffman, AEC Tech. Rep. No. 15, Case Inst. Technol., Cleveland, (1961).

#### 第4章 ミリメートル厚さの楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイスの開発



## 第5章 集光デバイスの中性子計測技術への適用

### 5.1 諸言

前章までで、非球面スーパーミラーの作製プロセスならびに本プロセスで作製した長尺ミラー、多重ミラーによる1次元集光結果について述べた。本章では、集光デバイスを既存の中性子計測技術へ適用するにあたり、作製した作り込み非球面スーパーミラーを用いて即発 $\gamma$ 線分析、小角散乱実験をおこなう。また集光型小角散乱実験や位置分解型即発 $\gamma$ 線分析、高温高压実験におけるサンプルへの微小集光においては中性子ビームを2次元集光することが求められる。長さ400 mmと長さ100 mmの楕円面ミラーをKB配置した2次元集光デバイスを開発し、集光特性を評価する。

### 5.2 即発 $\gamma$ 線分析への適用

即発 $\gamma$ 線分析は、測定試料に中性子ビームを照射した際、測定試料中の原子核が中性子を捕獲し中性子過剰の不安定核種になった瞬間  $10^{-14}$  秒という極短時間に発する $\gamma$ 線のエネルギー、強度を測定し、元素分析をおこなう手法である。即発 $\gamma$ 線のエネルギーは原子核によって固有であり、エネルギー、強度を分析することで測定試料の元素分析を定量的におこなうことができる。即発 $\gamma$ 線分析には、物質中の透過力が大きい中性子と $\gamma$ 線を使用するため、蛍光X線分析や他の非破壊分析法と比較して、マトリックスの影響が少なく、試料のバルク分析をすることができる。さらに、即発 $\gamma$ 線分析は他の方法では困難なH、B、N、S、Si等の軽元素の分析に有効であり、試料の誘導放射能が無視できるほど少ない。これらの特徴から、考古学資料や古い美術品のように貴重な試料の分析および隕石、岩石、環境試料等のように分解が困難な試料の分析に有効である。

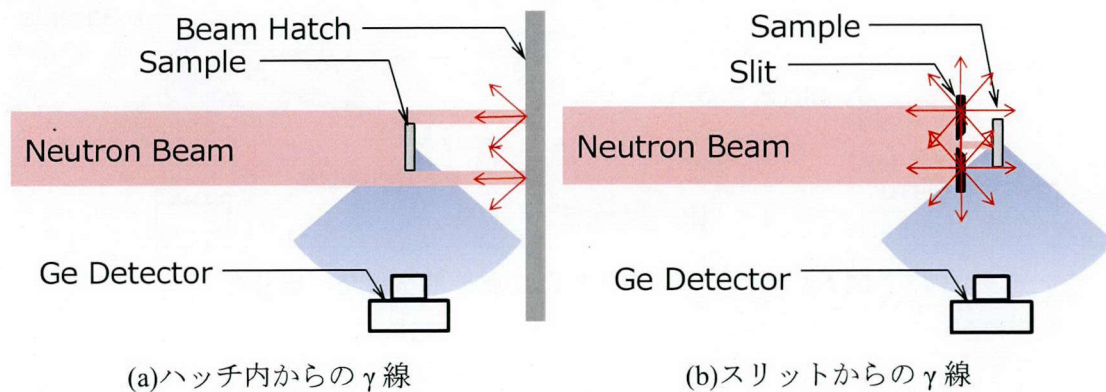


図5.1 位置分解能型即発 $\gamma$ 線分析におけるバックグラウンドノイズ

既存の即発ガンマ線分析においては、高い S/N 比を有した分析をおこなうため、原子炉上流において測定試料全体に中性子ビームを照射して、シグナルの強度を高めている[1-4]。また同時に装置を完全に遮蔽し、周囲からのノイズ除去をおこなっている。

位置分解能型即発 $\gamma$ 線分析を実現することで、測定試料の元素マッピングが可能となり、中性子を用いた計測技術が大きく飛躍する一歩となる。位置分解型即発 $\gamma$ 線分析においては、図 5.1 に示すように実験ハッチ内からのバックグラウンドノイズ、試料直前にスリットを設置した際のスリットからのバックグラウンドノイズを低減する必要がある。そこで、集光デバイスの即発ガンマ線分析への適用を検討する。図 5.2 に示すように、集光デバイスにより、高強度で中性子ビームを集光し、測定試料にのみ照射することで高い S/N 比、高い位置分解能をもった即発ガンマ線分析が可能となる。

J-PARC の中性子源特性試験装置 NeutrOn Beam-line for Observation and Research Use(NOBORU)にて、中性子ビームを用いた集光性能を評価した。図 5.3 に光学系を示す。長さ 400 mm の NiC/Ti のスーパーミラー ( $m=3$ )を用いて、集光ビームを高エネルギーの $\gamma$ 線を含むダイレクトビームから外れるように反射させて実験をおこなった。水平方向の集光をおこなう集光ミラーには、第3章で作製・評価した長さ 400 mm の楕円面スーパーミラーを用いた。表 5.1 に集光ミラーの性能についてまとめる。垂直方向に関しては、スリットによるコリメートによりビームを整形する。スリット 1 から 2100 mm の位置に測定試料を設置し、スリット 1 の水平方向サイズは 0.5 mm、垂直方向サイズは 1 mm、スリット 2 の垂直方向サイズを 0.43 mm として、測定試料位置にて水平方向 0.5 mm、垂直方向 1 mm のビーム径となるようビームを整形する。今回、測定試料には  $100 \times 100 \times 1 \text{ mm}^3$  のカドミニウムの板材を用いた。検出器として、ゲルマニウム検出器を用いた。表 5.2 に検出器の性能を示す。本光学系により、集光点に設置したカドミニウムに中性子ビームを照射し、試料直下に設置したゲルマニウム検出器により、即発 $\gamma$ 線分析をおこなった。

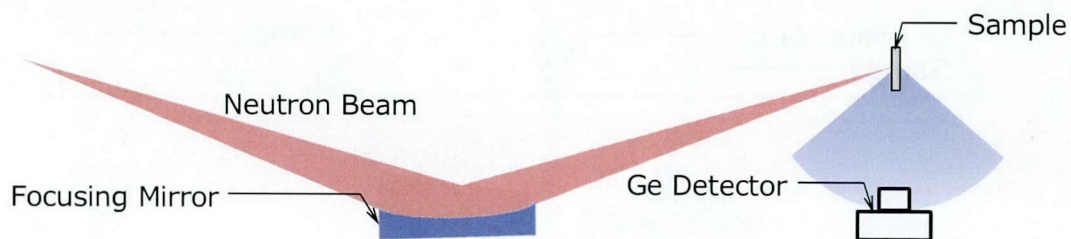
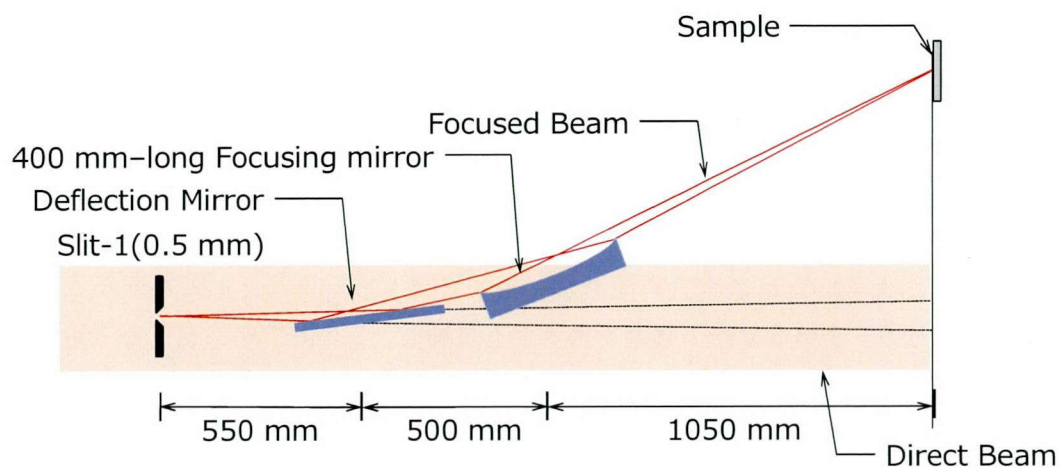
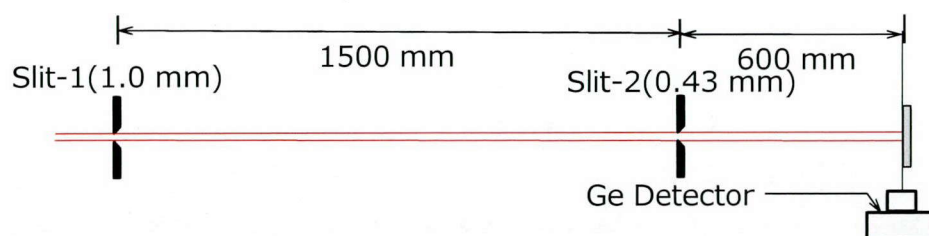


図 5.2 集光ミラーを用いた位置分解型即発 $\gamma$ 線分析





(a) TOP VIEW



(b) SIDE VIEW

図 5.3 光学系

表 5.1 集光ミラーの性能

焦点距離 $f$ (mm)	1050
楕円パラメータ (mm)	$a=1050.31$ $b=25.66$
縮小倍率	1
設計 $m$ 値	4
ミラー有効領域(mm <sup>2</sup> )	$400 \times 50$
形状誤差( $\mu\text{m p-v}$ )	0.39
中性子反射率	臨界角で約 70 %

表 5.2 ゲルマニウム検出器の性能

形式	N型ゲルマニウム検出器
効率(%)	15 (at 1.33 MeV)
エネルギー分解能(keV)	1.9 (at 1.33 MeV)

その結果、図 5.4 に示す測定結果を得た。558 keV の位置に Cd 由来のスペクトルが観測される。集光デバイスを適用することで、特別な遮蔽なしに S/N 比の高いスペクトルを得ることに成功した。478 keV、522 keV におけるピークはそれぞれ  $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ 、消滅  $\gamma$  線に由来するものである。スリットによるコリメートのみで本実験を再現しようとした際、測定試料直前にスリットを設置するとスリットからの即発  $\gamma$  線が大きなバックグラウンドノイズとなる。また測定試料からスリットを十分に離して照射する場合には、ビームの発散が大きいため測定試料でのビームサイズよりもさらに小さなスリットサイズが必要となり、十分なビーム強度を得ることは難しい。今回実験をおこなったビームライン NOBORU は、中性子源の特性評価用のビームポートであるため、即発  $\gamma$  線の測定に適した遮蔽がされておらず、ビームハッチ内の定盤、ビームハッチの壁面等はバックグラウンドノイズの発生原因となる鉄系材料が使われているため、即発  $\gamma$  線分析の測定環境として不適である。しかしながら、今回の優位な測定結果が得られたのは、微小集光ビームを用いることで測定試料のみにビームを照射し、測定試料位置での単位面積当たりのビーム強度を高め、測定試料付近にスリットを設置しないことでバックグラウンドノイズを低下させることができたことに起因する。

この結果から、集光デバイスによる微小集光ビームを用いることで高い位置分解能をもって即発  $\gamma$  線分析をおこない、測定試料を走査することで元素マッピングへの応用が期待される。また今回は 1 次元の集光のみであったが、2 次元集光をおこなうことで単位面積当たりのビーム強度を高め、さらなる S/N 比の向上が見込まれる。

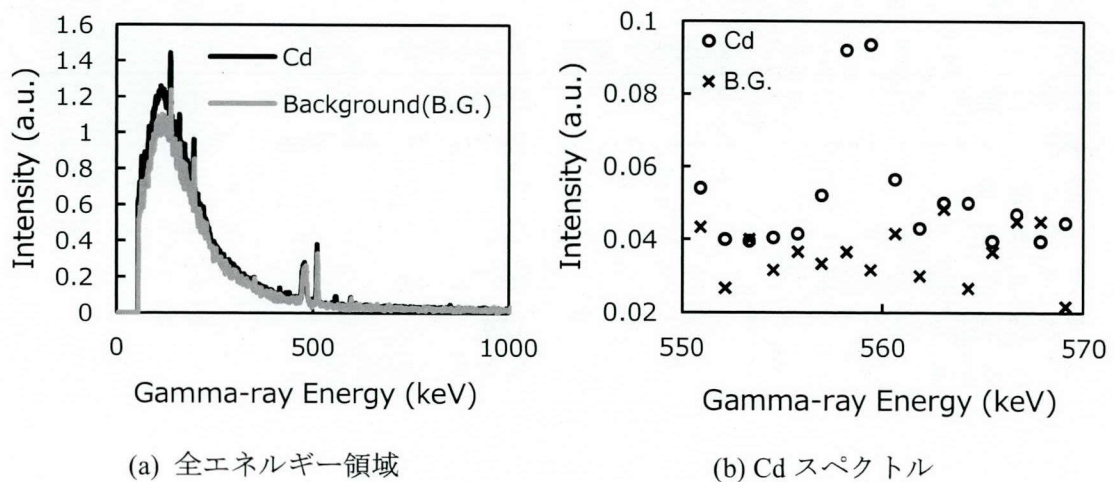


図 5.4 即発ガンマ線分析結果

### 5.3 小角散乱実験への適用

集光デバイスの小角散乱実験への適用を検討する。小角散乱実験はビームを測定試料に照射し、その後ろに設置した2次元検出器を用いて回折パターンを取得し、測定試料中の構造体の形状、サイズを解析する手法である。X線と比較し、中性子の入射強度は弱いため、中性子小角散乱実験ではこれを補うために試料を大きくし、必要な分解能を得るため散乱距離を長く、かつ検出器を大きくする必要がある[5]。集光デバイスを小角散乱実験に適用することで、ダイレクトビームを微小化し、より小角側の散乱成分を取得することが可能になる。また、ワーキングディスタンスを短縮することで、装置の小型化をおこなうことができる。さらに、高強度の中性子ビームを用いることで測定時間の大幅な短縮が見込まれる。原研の鈴木らは、物質レンズおよび磁気レンズの2つの中性子集光技術を活用することでダイレクトビームの拡がりを抑え、この集光素子を組み込んだ装置の小角分解能を  $0.002 \text{ nm}^{-1}$  程度へと大幅に向上させ、測定可能なスケール範囲を大幅に広げること成功している[6-9]。

J-PARC の NOBORU にて、前節と同様に表 5.1 に示す長さが 400 mm の楕円面ミラーにより水平方向の1次元集光をおこない、垂直方向に関しては、スリットによるコリメートによりビームを整形した。仮光源位置に設置したスリット 1 の水平方向サイズは 0.5 mm、垂直方向サイズは 1 mm、スリット 1 から 1700 mm の位置に設置したスリット 2 の垂直方向サイズを 0.24 mm として、測定試料位置にて水平方向 0.5 mm、垂直方向 1 mm のビーム径となるようビームを整形した。また、スリット 2 から 200 mm の位置に測定試料を設置し、測定試料から 600 mm の位置に検出器を設置した。前章までで集光ビームの評価に使用していた中性子イメージングプレートは、分解能が  $50 \mu\text{m}$  と他の検出器と比較して非常に高く、データの解析も簡便でわかりやすいが、積分型の中性子検出器であり、測定データには各中性子のエネルギー(波長)の情報は含まれない。J-PARC 等のパルス中性子源においては、中性子飛行時間法を用いてエネルギー毎にデータを解析することで効率的かつ高精度な実験ができる。今回の実験では、検出器としてシンチレータと光電子増倍管(PMT: Photomultiplier Tube)を組み合わせた抵抗分割型 PMT2 次元検出器を用いる。用いた検出器の性能を表 5.3 に示す。また本検出器を用いて、測定試料を設置しないダイレクトビームと測定試料を設置した際のビームを中性子飛行時間、波長に関して比較した。測定試料として、試料サイズ  $20 \times 20 \times 1 \text{ mm}^3$  の Fe-0.6at.%Cu (99.998%の高純度鉄を溶体化処理後に急冷し銅原子を一様に分散させたもの)を用いる。

表 5.3 抵抗分割型 PMT2 次元検出器の性能

シンチレータ	ZnS(Ag)/B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
測定領域	φ 3 inch
分解能	0.3 mm



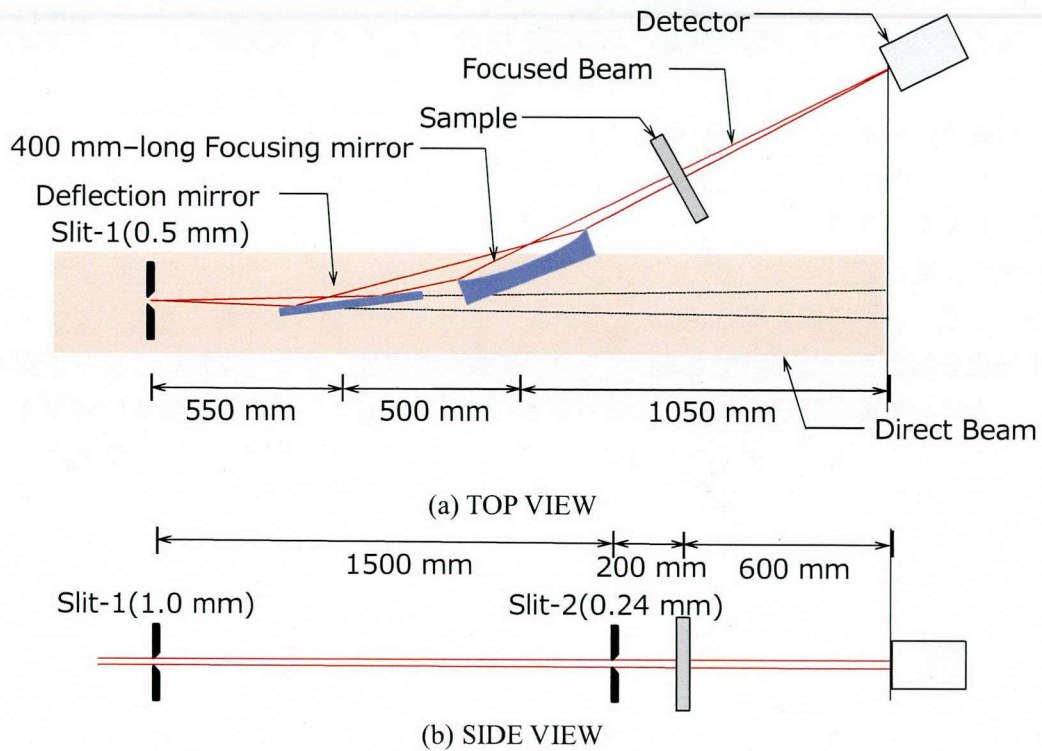


図 5.5 光学系

図 5.6 にダイレクトビーム、図 5.7 に測定試料を設置した場合のビームプロファイルを示す。測定試料を設置することで、小角散乱によりビームプロファイルが広がっていることが確認できる。図 5.8 に水平方向のビームプロファイルの中央断面を示す。横軸は散乱ベクトル  $Q_z$  である。一般に、ダイレクトビームよりも小角散乱後のビーム強度が強くなる  $Q_z$  値がその測定系の  $Q_z$  の検出限界とされる。通常の中性子小角散乱実験用ビームラインでは、測定試料-検出器間距離を長くすることで  $Q_z$  の検出限界を上げている。既存の小角散乱装置における測定試料-検出器間距離は、JRR-3M の小角散乱装置 SANS-U で 16 m ( $Q$ -range  $4 \times 10^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ - $0.35 \text{ \AA}^{-1}$ )、Laue-Langevin 研究所の小角散乱装置 D11 で 40 m ( $Q$ -range  $3 \times 10^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ - $1 \text{ \AA}^{-1}$ ) である。

以上の結果から、集光デバイスによる微小集光ビームならびに抵抗分割型 PMT2 次元検出器を用いることで、ワーキングディスタンスが 600 mm という大変コンパクトな光学系で小角散乱実験をおこなうことに成功した。今後、さらなる微小集光、2 次元集光をおこなうことで、スリットによるコリメートでは、測定不可能な low- $Q$  側のブラッグエッジの測定、測定時間の大幅な短縮が見込まれる。



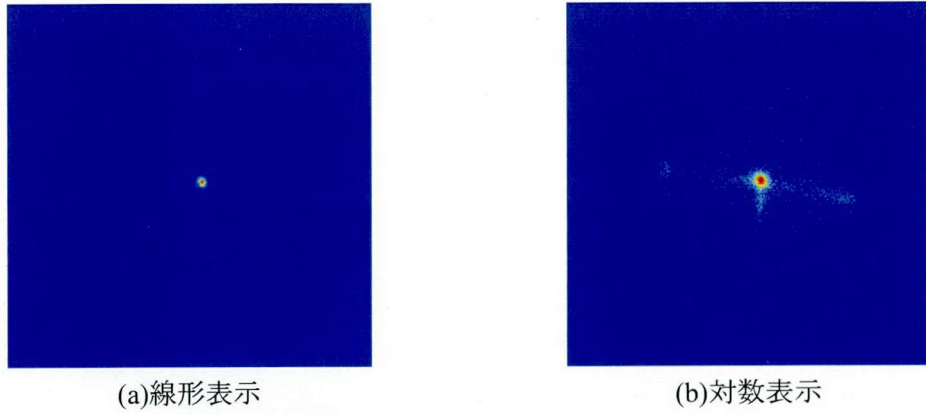


図 5.6 ダイレクトビームプロファイル

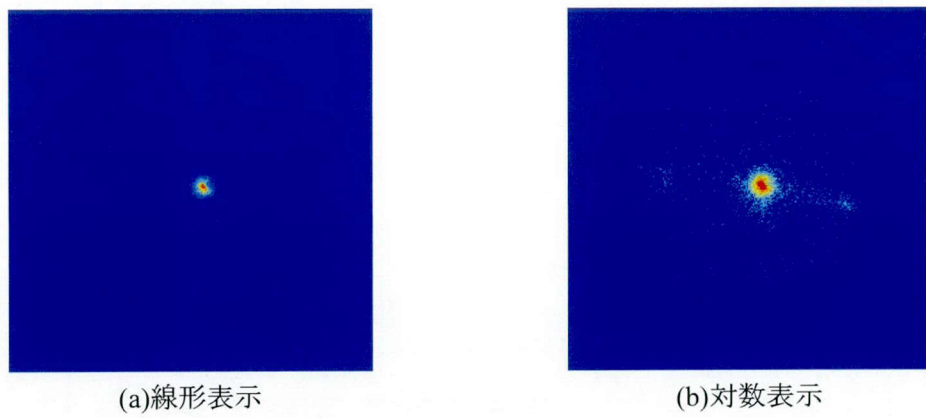


図 5.7 SANS ビームプロファイル

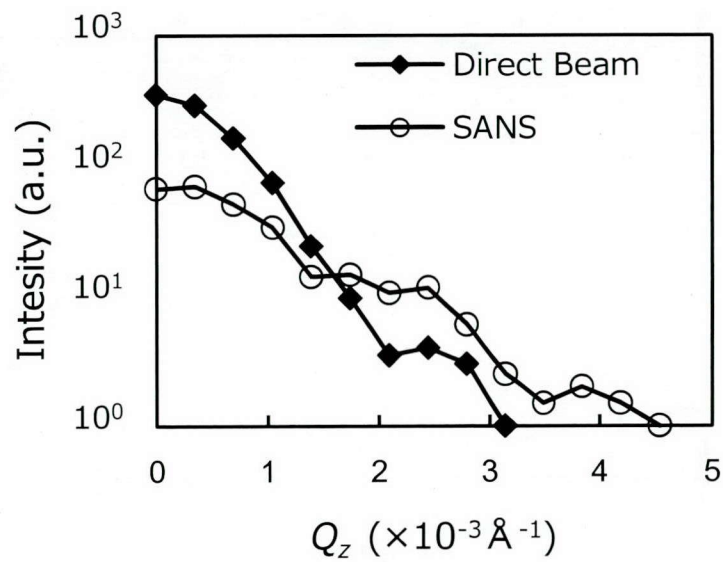


図 5.8 水平方向中央断面 SANS プロファイル

## 5.4 KB 配置による 2 次元集光デバイスの開発

前節までで、即発 $\gamma$ 線分析、小角散乱実験への集光デバイスの適用について述べた。それぞれの測定において、位置敏感型即発 $\gamma$ 線分析、集光型小角散乱実験への応用のためには、2次元微小集光の実現が求められる。また高温高压実験のように測定試料の近くにスリットが設置できない計測装置においては、2次元集光が必須となる。

2次元集光デバイスとして、1次元の楕円面または放物面ミラーを用いて、水平方向、垂直方向それぞれを1枚のミラーで集光する Kirkpatrick-Baez(KB)配置による集光デバイスが広く知られている。[10]

今回、J-PARC の NOBORU にて、前節の即発 $\gamma$ 線分析と同様に表 5.1 に示す長さ 400 mm の楕円面ミラーにより水平方向を集光し、新たに作製した長さ 100 mm の楕円面スーパーミラーにより垂直方向を集光し、集光特性を評価する。設計した光学系を図 5.9、各パラメータを表 5.4 に示す。本光学系は、仮光源位置に設置したスリット 1 の水平方向サイズは 0.5 mm、垂直方向サイズは 1 mm であり、同じ焦点をもった 2 枚の楕円面ミラーにより集光点にて  $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$  の 2 次元集光する。集光実験のレイアウト写真を図 5.10 に示す。

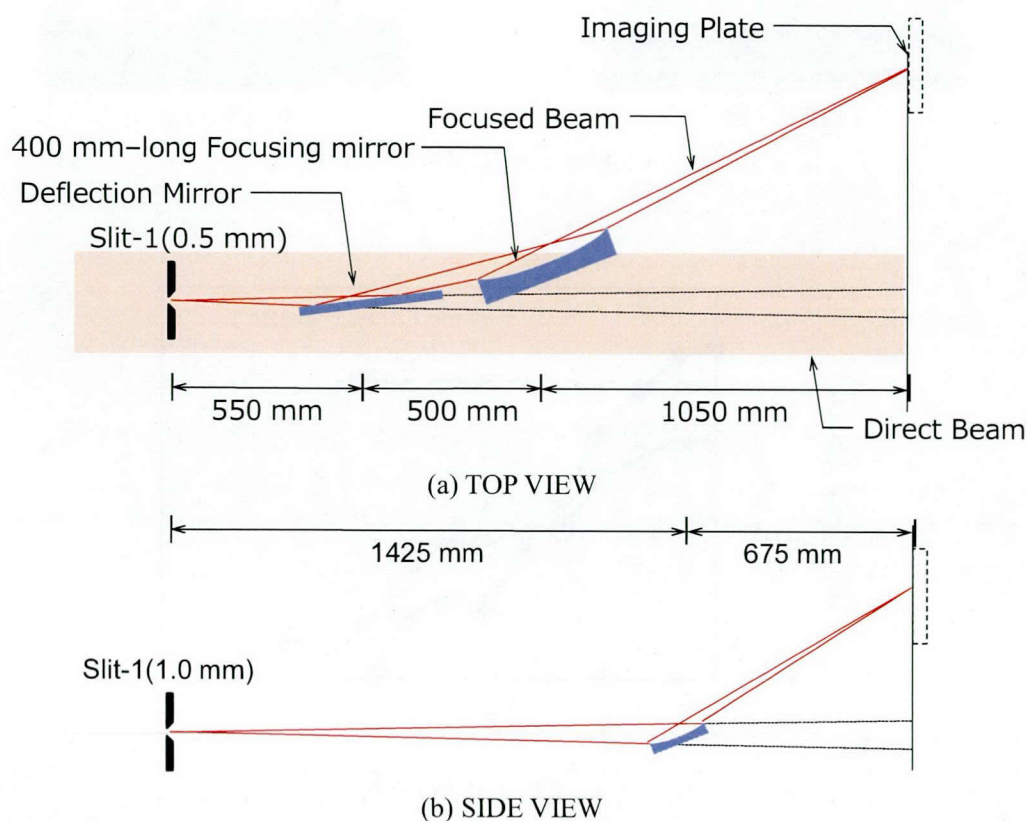


図 5.9 光学系

図 5.11 に集光点位置における集光ビームのイメージングプレート像、図 5.12 に中央断面プロファイルを示す。2次元集光において、集光径  $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$  を達成した。イメージングプレートを用いて集光プロファイル进行评估するため、集光ビームを $\gamma$ 線が含まれたダイレクトビームから逸らすために設置した平板スーパーミラーによる反射が強度低下の一因となっている。その結果、全体にノイズが多く含まれたビームプロファイルとなった。このノイズは $\gamma$ 線に起因するものであると考えられ、時間積分型の検出器であるイメージングプレートを用いる場合避けられない。実際の測定に应用する際は時間微分型の検出器を用いて中性子飛行時間法を用いてエネルギー毎にデータを解析することでノイズとなる $\gamma$ 線と中性子ビームとを分離することができる。

以上の結果から、第3章で述べたミラー作製プロセスにより作製した楕円面スーパーミラーをKB配置することにより、集光径  $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$  の2次元集光を実現した。各ビームラインでの測定に最適な集光ミラーを設計・作製することで、測定の位置分解能、S/N比の大幅な向上、測定時間の大幅な短縮が見込まれる。

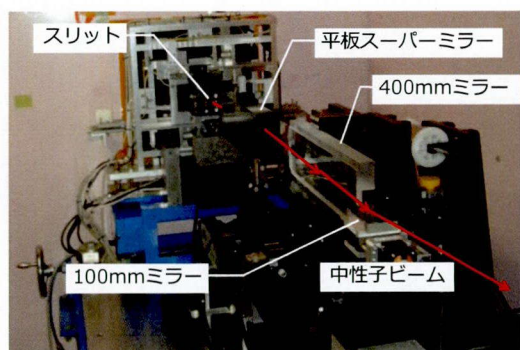


図 5.10 集光実験のレイアウト

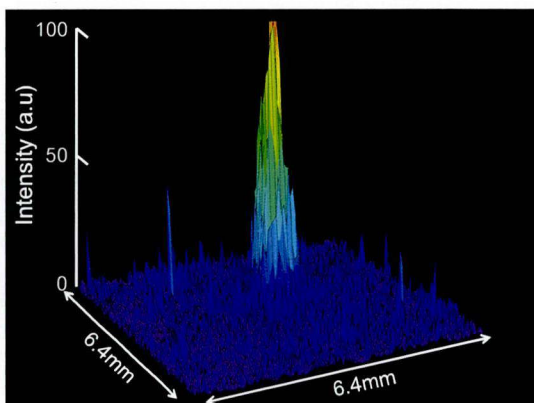
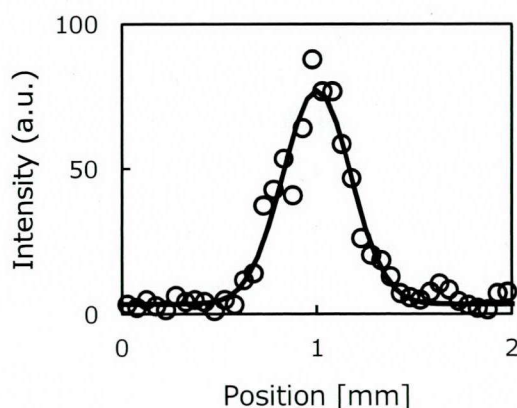
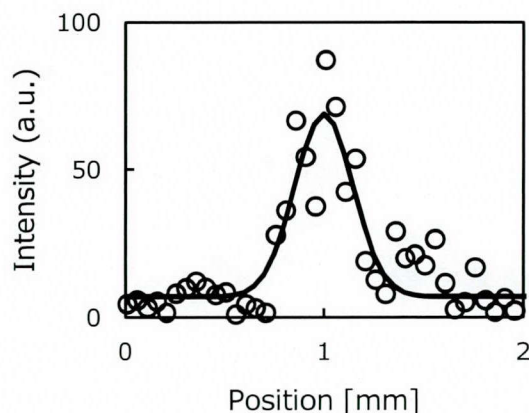


図 5.11 2次元集光プロファイル



(a) 水平方向



(b) 垂直方向

図 5.12 2次元集光プロファイル断面

表 5.4 集光実験パラメータ

ビームライン	NOBORU
仮光源-集光点(mm)	2100
水平方向集光用ミラー長さ(mm)	400
垂直方向集光用ミラー長さ (mm)	100
仮光源水平方向サイズ(mm)	0.5
仮光源垂直方向サイズ(mm)	1
水平方向集光用縮小倍率	1
垂直方向集光用縮小倍率	0.45

## 5.5 結言

第5章では、作製した各ミラーデバイスを位置分解型即発 $\gamma$ 線分析、集光型小角散乱実験へ適用し、楕円面ミラーをKB配置した2次元集光デバイスを開発した。以下に本章で得られた結果と知見をまとめる。

- (1) 長さ400 mmの楕円面スーパーミラーにより集光した中性子ビームを用いて、位置分解型即発 $\gamma$ 線分析を検討した。集光点位置にカドミウムの試料を設置し、試料直下にゲルマニウム検出器を置いて即発 $\gamma$ 線分析をおこなった。中性子ビームを $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ に集光し、大強度かつS/Nの高い高品位なビームを形成することで、特別な遮蔽をせず即発 $\gamma$ 線の測定に成功した。
- (2) 長さ400 mmの楕円面スーパーミラーにより集光した中性子ビームを用いて、集光型小角散乱実験を検討した。集光ミラーと集光点の間にFe-0.6at.%Cuのサンプルを設置し、小角散乱実験をおこなった。その結果、小角散乱による明確なブラッグエッジを確認することができた。
- (3) 長さ400 mmならびに100 mmの楕円面スーパーミラーをKB配置することにより、BL10にて2次元集光実験をおこなった。その結果、 $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ の集光径を達成し、開発した作り込みミラー作製プロセスにより作製した楕円面スーパーミラーをKB配置することによる2次元集光デバイスを実現した。

## 参考文献

- [1] S. Raman, *et. al.*, Nucl.Instr.Meth.Phys.Res., **A454** (2000) 389.
- [2] C. Yonezawa, *et. al.*, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., **A329** (1993) 207.
- [3] 米沢仲四郎, 他, Radioisotopes, **43** (1994) 50.
- [4] 米沢仲四郎, 他, Isotope News, **12** (1994) 2.

- [5] Y. Ishikawa, *et. al.*, J. Appl. Cryst. **19** (1986) 229.
- [6] J. Suzuki, *et. al.*, J. Appl. Cryst. **36** (2003) 795.
- [7] J. Suzuki, T. Oku, T. Adachi, H. M. Shimizu, Y. Kiyanagi, T. Kamiyama, *et. al.*, Nucl. Instrum. & Methods Phys. Res. A **529** (2003)120.
- [8] T. Oku, *et. al.*, Nucl. Instrum. & Methods Phys. Res. A **529** (2003) 116.
- [9] S. Koizumi, *et. al.*, Physica B, **385-386** (2006) 1000.
- [10] P. Kirkpatrick, A.V. Baez, J. Opt. Soc. Am. **38** (1948) 766.



## 第5章 集光デバイスの中性子計測技術への適用

## 第 6 章 総括

本研究では、従来の研削技術、非接触の化学的加工法であるローカルウェットエッチング(LWE : Local Wet Etching)法による形状創成技術とイオンビームスパッタ成膜による多層膜成膜技術を組み合わせた高能率かつ高精度な非球面スーパーミラー作製プロセスを開発した。また作り込み非球面スーパーミラーを適用した中性子集光デバイスを開発し、サブミリメートルレベルの微小集光技術を確立した。

第 1 章では本論文の背景及び目的について述べた。

第 2 章では、LWE の加工原理ならびに加工ノズルの滞在時間制御による形状修正加工理論について述べた。また HF を用いた石英ガラスの加工特性について述べ、共沸濃度の HF を用いた形状創成について検討した。以下に本章で得られた結果と知見をまとめる。

- (1) HF を用いた合成石英ガラスの LWE 加工では、吸引により気化したエッチャントによる加工痕周辺部の表面粗さ悪化を防ぐことができ、未加工面と比べて表面粗さを維持することのできる加工法であるといえる。
- (2) LWE は化学反応を利用した非接触加工であり、機械加工に見られる母性原理による加工精度の悪化などがない。また、エッチャントの組成やノズルの径を変えることで高い体積加工速度が得られる。
- (3) NC-LWE による形状創成理論について述べた。形状計測に用いたレーザーオートフォーカス式三次元形状測定器の測定再現性について検討し、0.5 mm ピッチで  $100 \times 100 \text{ mm}^2$  の領域を 1 回測定する際に要する 2 時間 40 分を暖機運転時間とし、未加工部分の任意の 3 点で平面補正をおこなうことで、 $100 \times 100 \text{ mm}^2$  の領域を 100 nm p-v 以下の測定再現性をもって測定可能であることがわかった。
- (4) 5 軸制御 LWE 装置を設計し、大阪大学大学院工学研究科附属超精密科学研究センターのウルトラクリーン実験施設内に設置した。エッチャント温度を白金測温抵抗体により測定し、恒温槽と熱交換器を用いてフィードバックすることで  $25 \pm 0.15 \text{ }^{\circ}\text{C}$  に制御できることを示した。
- (5) 加工量の走査速度依存性に関して、PCVM との比較をおこなった。PCVM ではプラズマからの熱流入により基板表面の温度が上昇するため、合成石英ガラスのように熱伝導率の低い材料を加工した場合、走査速度と加工速度とは非線形な関係となり、加工の制御性が低下する。それに対し、LWE はエッチャント温度の制御が非常に容易で、常温付近に設定することにより走査速度と加工速度は線形な関係を有

することがわかった。このことより、LWE による形状創成においては、材料の熱伝導率に起因する加工精度の悪化がないことが確認された。

- (6) HF 濃度と加工量の関係では、HF 濃度と単位加工深さの関係は非線形になることがわかった。また、初期加工 HF 濃度を 20 wt% に設定し、加工の安定性を考えた場合、加工速度を 1 % 以内で安定化させるためには、HF 濃度を  $\pm 0.11$  % 以内に維持する必要があることがわかった。
- (7) HF 温度と加工量の関係では、エッチャントの温度と加工速度は指数関数的な関係にあり、アレニウスプロットより LWE の加工は単純に化学反応だけによるものであることが確認された。さらに初期加工 HF 温度を 25 °C に設定し、加工の安定性を考えた場合、体積加工速度を 1 % 以内で安定化させるためには、HF 温度を  $\pm 0.18$  °C 以内に維持する必要があることがわかった。
- (8) HF 水溶液には共沸濃度が存在する。共沸濃度の HF 溶液を用いて等速面加工をおこない、長時間の加工安定性について評価した結果、12 時間で 0.5 % 以下の加工量の変動であり、非常に安定した体積加工速度で長時間加工できることがわかった。この結果は、長時間の形状修正加工においてもトライアンドエラーなしに目的形状への形状修正が決定論的に可能であることを示している。
- (9) LWE はエッチャントを循環し、基板表面上に高い流速をもって接触し、副生成物が滞留することなくエッチング反応が進行することで、表面粗さの悪化は最小限に抑えられ、浸漬エッチングでは得られない優れた表面粗さを得ることができるとわかった。また LWE 加工後、目的の表面粗さを実現するための研磨工程を導入する際、非常に少ない加工量で目的の表面粗さを実現できることが示唆された。

第3章では、大強度の中性子ビーム集光のための大面積ミラー作製に向けて、精密研削、HF 浸漬、NC-LWE、低圧研磨、イオンビームスパッタ成膜を組み合わせた高能率かつ高精度な 1 次元楕円筒面スーパーミラー作製プロセスを開発した。開発したミラー作製プロセスにより、長さが 400 mm の長尺楕円筒面スーパーミラーを試作した。作製したミラーの中性子反射率ならびに中性子集光特性を評価した。以下に本章で得られた結果と知見をまとめる。

- (1) J-PARC MLF のビームライン BL10(NOBORU)にて 1 次元集光実験をおこなうべく、長さが 400 mm の長尺楕円筒面スーパーミラーを設計した。焦点距離 1050 mm、等倍の光学系で、ミラーの最大深さは約 470  $\mu\text{m}$  である。
- (2) 合成石英製ミラー基板の粗加工に精密研削を適用し、マイクロメートルレベルでの形状創成をおこなった。#325、#1200、#3000 のレジンボンドのダイヤモンドホイールを順に用いて粗加工をおこなった。精密研削後、加工変質層除去をおこなわずにイオンビームスパッタ成膜をおこなった場合、基板表面で破碎剥離する現象を確

認した。イオンビームスパッタ成膜によりスーパーミラーの成膜をおこなった場合、多層膜には GPa レベルの膜応力が導入される。加工変質層部分がこの膜応力に耐え切れず、破碎剥離が起こったと推察される。よって、精密研削後、HF 浸漬にて 200  $\mu\text{m}$  エッチングすることで加工変質層を完全に表出させ、1 次研磨により表面粗さを低減することで完全にダメージフリーのミラー基板を作製することに成功した。1 次研磨後の形状誤差は 2.82  $\mu\text{m p-v}$  であった。

- (3) NC-LWE によって形状修正加工をおこなった。その結果、形状誤差 0.34  $\mu\text{m p-v}$  を達成し、大面積かつ曲率が大きな試料に対しても決定論的かつダメージフリーにサブマイクロメートルレベルの形状創成に成功した。
- (4) 形状精度を悪化させることなく NC-LWE 後の表面粗さを改善するため、小径のポリウレタンパッドを用いた低圧研磨プロセスを適用した。硬質の研磨パッドを用いることで、LWE で導入されたツールマーク等の Low Spatial Frequency Roughness(LSFR)の除去を検討した。その結果、パッド形状が表面粗さの凹凸に倣うことなく 0.1 mm 以上の空間周波数粗さ成分を完全に除去できた。軟質の研磨パッドを用いることで、Mid Spatial Frequency Roughness(MSFR)、High Spatial Frequency Roughness(HSFR)の除去をおこない、ミラー中心部 64×48  $\mu\text{m}^2$  における表面粗さとして 0.117 nm rms を達成した。さらに 3 次研磨後の形状誤差は 0.39  $\mu\text{m p-v}$  であり、NC-LWE によりサブマイクロメートルレベルの形状精度で作製したミラー形状を悪化させることなく、表面粗さを改善することに成功した。
- (5) 日本原子力研究開発機構 J-PARC センターが開発したイオンビームスパッタ成膜装置を用いた  $m=4$  の NiC/Ti スーパーミラーの成膜を検討した。ミラー基板をダメージフリーな加工プロセスで作製した結果、大面積かつ曲率が大きな非球面ミラー基板に関して成膜領域全体において剥離のない成膜に成功した。
- (6) J-PARC MLF のビームライン BL10 にて、集光特性を評価した。片方の焦点に仮光源となるスリットを 0.1 mm のサイズにして設置した。ダイレクトビームから集光ビームを分離するため、集光ミラーの上流に平板スーパーミラーを設置した。もう一方の焦点である集光点位置にイメージングプレートを設置し、未集光ビームならびに集光ビームのビームプロファイルを測定した。その結果、集光ビームは未集光ビームと比較してピーク強度で 52 倍の集光ゲインを得ることに成功した。
- (7) JRR-3M のビームライン CHOP にて、ナイフエッジスキャンによる集光幅の評価をおこなった。集光点位置で得られたビームプロファイルを誤差関数でフィッティングして求めた半値幅は 0.128 mm であった。本集光ミラーを用いることで、位置分解型即発  $\gamma$  線分析における位置分解能の向上や高温高压実験における微小サンプルへの集光等、既存の中性子計測技術への応用が期待される。

第4章では、厚さが 1 mm の楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイ

スの開発について述べた。大強度の中性子ビーム集光を実現する手段として、ミラーの大面積化とミラーの多重化が挙げられる。ミラーの多重化においては、基板の厚さ部分における吸収損失を極力抑えるためミリメートル厚の楕円面ミラーを高精度に作製する必要がある。工具の位置制御によって形状創成をおこなう通常の機械加工では固定時の変形、加工圧力による変形、スプリングバック等によりミリメートル厚さの基板をサブマイクロメートルレベルの形状精度で加工することは大変困難である。それに対して、加工圧力のかからない非接触無歪加工である NC-LWE 法を適用することで、ミリメートル厚さの基板においてもサブマイクロメートルレベルの形状精度で加工することが可能である。以下に、1.5 mm 厚さミラーの先行試作結果、多重ミラーデバイス作製のためミラー保持機構の開発、多重化に用いる 4 枚の 1 mm 厚さ楕円面ミラーの作製、集光デバイスの中性子集光特性評価と得られた知見をまとめる。

- (1) 厚さが 1.5 mm の合成石英基板を用いて楕円面スーパーミラーの試作をおこなった。NC-LWE でミリメートル厚さの基板を加工する際、前加工で導入された加工変質層部分での残留応力が問題となる。NC-LWE によって前加工で導入された加工変質層を除去した際、加工変質層部分で残留応力が解放されて 10-100  $\mu\text{m}$  p-v オーダの基板の変形が生じる。ダメージフリーの基板を用意するため、残留応力除去による変形量がエッチングムラと同程度になるまで HF 浸漬エッチングをおこない、加工変質層を完全に除去した。そして、粒径 0.19  $\mu\text{m}$  の  $\text{CeO}_2$  スラリーとポリウレタンパッドを用いた 1 次研磨により表面粗さを 0.39 nm rms まで改善し、ダメージフリーな合成石英基板を用意した。NC-LWE プロセスにより、 $100 \times 20 \text{ mm}^2$  の有効ミラー領域を有する薄型楕円面ミラー基板を作製した。その結果、形状誤差 0.43  $\mu\text{m}$  p-v、表面粗さ 1.17 nm rms を得た。この結果から、非接触加工法によりミリメートル厚さの合成石英基板の形状創成加工をおこなった際の加工変質層による残留応力の影響を明らかにした。また、非接触加工法によるミリメートル厚さの基板の高精度形状創成に関する知見を得た。
- (2) 粒径 0.19  $\mu\text{m}$  の  $\text{CeO}_2$  スラリーと硬質のポリウレタンパッドを用いた 2 次研磨、軟質のポリウレタンパッドを用いた 3 次研磨により各空間周波数粗さ成分を除去することで、3 次研磨後の基板中心部における表面粗さとして 0.163 nm rms を達成した。
- (3) 作製したミラー基板に  $m=3$  の NiC/Ti スーパーミラーを成膜した。片面に成膜をおこなった場合、その圧縮膜応力(GPa レベル)により最大 60  $\mu\text{m}$  p-v 程度の変形が予測された。この対策として基板両面への成膜をおこない、膜応力を相殺することで成膜後の形状誤差として 0.96  $\mu\text{m}$  p-v を得た。この結果から、両面成膜による膜応力の相殺、基板の変形防止に関する知見を得た。
- (4) MINE2 にて反射特性評価を行った結果、設計通り  $m=3$  まで連続して高い反射率を



## 第6章 総括

有し、正確な膜厚分布であることを確認した。臨界角付近での反射率として 90% を達成した。

- (5) CHOP にて集光実験をおこなった結果、集光幅 0.16 mm のサブミリメートルレベルの集光に成功し、未集光に比べ 12 倍のゲインを達成した。
- (6) 大強度中性子ビーム集光実現のため、1mm 厚さの楕円面ミラー基板を多重配置した小型大開口集光デバイスを開発した。各ミラーの長さを 100 mm、ミラー厚さ 1 mm として 4 枚垂直方向に多重配置した一次元集光用縮小光学系ミラーデバイスを設計した。
- (7) 光線追跡シミュレーションによりミラーのアライメント誤差が集光幅に及ぼす影響を評価し、集光幅 0.3 mm を達成するために必要なアライメント精度を算出した。その結果、各ミラーの相対的な許容入射角誤差は $\pm 0.003^\circ$ 以内であることがわかった。
- (8) 算出したアライメント精度を達成するためのミラー基板保持機構を設計した。設計した保持具は 4 枚の各ミラーを 3 点支持で保持する機構を有し、高い測定再現性が見込まれる。また、各支持点の高さを 1  $\mu\text{m}$  程度の分解能で制御する機構を有するため、様々な光学設計のミラーデバイスに対応可能である。NC-LWE による決定論的形狀創成加工においては、ミラーの形状計測と集光実験時の保持姿勢を同じに保つ必要がある。ミリメートル厚さ基板の形状創成においては、開発した保持機構を用いて重力によるたわみも含んだ形状を計測する。NC-LWE による修正加工後、保持機構に置き直すことで重力によるたわみを再現し、理想通りの形状を達成できる。
- (9) 集光デバイスに用いるミラーを作製し、計測した各ミラー形状を考慮した光線追跡シミュレーションをおこなうことで、集光デバイスによって得られる集光幅を算出した。集光半値幅は 0.273 mm であった。集光デバイスの集光実験をおこなった結果、全ミラーにおいて集光幅 0.28 mm を達成した。

第 5 章では、作製した各ミラーデバイスを位置分解型即発  $\gamma$  線分析、集光型小角散乱実験へ適用し、楕円面ミラーを KB 配置した 2 次元集光デバイスを開発した。以下に本章で得られた結果と知見をまとめる。

- (1) 長さ 400 mm の楕円面スーパーミラーにより集光した中性子ビームを用いて、位置分解型即発  $\gamma$  線分析を検討した。集光点位置にカドミウムの試料を設置し、試料直下にゲルマニウム検出器を置いて即発  $\gamma$  線分析をおこなった。中性子ビームを  $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$  に集光し、大強度かつ S/N の高い高品位なビームを形成することで、特別な遮蔽をせず即発  $\gamma$  線の測定に成功した。
- (2) 長さ 400 mm の楕円面スーパーミラーにより集光した中性子ビームを用いて、集光型小角散乱実験を検討した。集光ミラーと集光点の間に Fe-0.6at.%Cu のサンプルを

設置し、小角散乱実験をおこなった。その結果、小角散乱による明確なブラッグエッジを確認することができた。

- (3) 長さ 400 mm ならびに 100 mm の楕円面スーパーミラーを KB 配置することにより、BL10 にて 2 次元集光実験をおこなった。その結果、 $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$  の集光径を達成し、開発した作り込みミラー作製プロセスにより作製した楕円面スーパーミラーを KB 配置することによる 2 次元集光デバイスを実現した。

本研究では、中性子集光用非球面スーパーミラーを高能率に作製するプロセスを開発した。本プロセスでは、精密研削、数値制御ローカルウエットエッチング、小径パッドによる低圧研磨によるミラー基板作製技術とイオンビームスパッタ成膜による多層膜成膜技術を組み合わせることで、サブマイクロメートルレベルの形状精度、サブナノメートルレベルの表面粗さを有しながらも大面積かつ大きな曲率の非球面スーパーミラーを非常に高能率に作製することができる。また本プロセスはダメージフリーな加工プロセスであり、従来の機械加工では困難なミリメートル厚さの基板においても、サブマイクロメートルレベルの形状精度で作製可能である。1 mm 厚楕円面ミラー基板を多重配置することで、開発が待ち望まれていた小型大開口集光デバイスを実現した。また、各ミラーデバイスを集光型小角散乱実験、位置分解型即発ガンマ線分析への適用を検討した結果、高い S/N 比での測定、位置分解能の高精度化、中性子ビームによるマイクロメートルオーダーの構造解析の実現の可能性が示唆された。

本研究で提案・開発したミラー作製プロセスならびに集光デバイスは、長期的な安定性、アライメントの容易さからも、世界中の中性子ビームラインへの導入が可能であり、中性子科学、ひいては物性研究の飛躍的な発展において大きな役割を果たすことが期待される。

## 研究業績目録

### [論文(筆頭著者)]

1. **M. Nagano**, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, One-dimensional neutron focusing with large beam divergence by 400mm-long elliptical supermirror, J. Phys. Conf. Ser. **340** (2012)012034.
2. **M. Nagano**, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, High-precision figured thin elliptical supermirror for multiple neutron focusing device, J. Phys. Conf. Ser. **340** (2012)012016.
3. **M. Nagano**, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura, Quadruple stacked elliptical supermirror device for one dimensional neutron focusing, Key Engineering Materials 523-524 (2012) 272-275.
4. **M. Nagano**, F. Yamaga, K. Yamasaki, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Evaluation of Surface Roughness of Quartz Glass Substrate in Fabrication Process for Neutron Focusing Mirror, Advanced Materials Research, **325** (2011) 647-652.
5. **M. Nagano**, F. Yamaga, K. Yamasaki, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura, Noncontact figuring of millimeter-thick elliptical mirror substrate by numerically controlled local wet etching, Key Engineering Materials, 516 (2012) 361-366.
6. **M. Nagano**, F. Yamaga, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Development of fabrication process for aspherical neutron focusing mirror using numerically controlled local wet etching with low-pressure polishing, Nucl. Instr. and Meth. A, **634** (2011) S112-S116.
7. **M. Nagano**, H. Takai, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of plano-elliptical neutron focusing supermirror by numerically controlled local wet etching with ion beam sputter deposition, J. Phys. Conf. Ser. **251** (2010) 012077\_1\_4.
8. **M. Nagano**, H. Takai, K. Yamamura, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, Figuring of Elliptical Neutron Focusing Mirror Using Numerically Controlled Local Wet Etching, Key Engineering Materials, **407-408** (2009) 376-379.
9. **M. Nagano**, T. Mitani, K. Ueda, N. Zettsu, K. Yamamura, Improvement of Thickness Uniformity of Bulk Silicon Wafer by Numerically Controlled Local Wet Etching, J. Cryst. Growth, **311** (2009) 2560-2563.

### [論文(筆頭以外)]

1. R. Maruyama, D. Yamazaki, S. Okayasu, M. Takeda, N. Zettsu, **M. Nagano**, K. Yamamura,

- H. Hayashida, and K. Soyama Effect of Si interlayers on the magnetic and mechanical properties of Fe/Ge neutron polarizing multilayer mirrors, *J. Appl. Phys.*, **111** (2012) 63904.
2. Y. Yamamoto, M. Hosoda, **M. Nagano**, K. Yamamura, A Study on Surface Roughness of Curved Silicon Crystal Spectrometer Fabricated by Plasma Chemical Vaporization Machining, *Key Engineering Materials*, 516 (2012) 522-526.
  3. X. Shen, Y. Dai, W. Peng, **M. Nagano**, K. Yamamura, The improvement of removal function in local wet etching by using eccentric rotation system, *Key Engineering Materials*, 516 (2012) 504-509.
  4. X. Shen, **M. Nagano**, W. Peng, Y. Dai, K. Yamamura, A Simulation Study on Figure Error Correction Using Near-Gaussian Removal Function in Numerical Controlled Local Wet Etching, *Key Engineering Materials* 523-524 (2012) 276-280.
  5. N. Shimozono, **M. Nagano**, T. Tabata, K. Yamamura, Study on in situ Etching Rate Monitoring in Numerically Controlled Local Wet Etching, *Key Engineering Materials* 523-524 (2012) 34-39.
  6. T. Tabata, **M. Nagano**, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Figuring of Aspherical Metal Mirror Substrate for Neutron Focusing by Numerically Controlled Electrochemical Machining, *Key Engineering Materials* 523-524 (2012) 29-33.
  7. D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, H. Takai, **M. Nagano**, K. Yamamura, Neutron beam focusing using large-m supermirrors coated on precisely-figured aspheric surfaces, *J. Phys. Conf. Ser.* **251** (2010) 012076\_1\_4.
  8. F. Yamaga, **M. Nagano**, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of Ultraprecision Millimeter-thick Elliptical Neutron Focusing Mirror Substrate by Local Wet Etching, *Key Engineering Materials*, **447-448** (2010) 208-212.
  9. M. Hosoda, K. Ueda, **M. Nagano**, N. Zettsu, S. Shimada, K. Taniguchi, K. Yamamura, Fabrication of Damage-free Curved Silicon Crystal Substrate for a Focusing X-ray Spectrometer by Plasma Chemical Vaporization Machining, *Key Engineering Materials*, **447-448** (2010) 213-217.
  10. K. Yamamura, **M. Nagano**, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama and K. Soyama, High-reflectivity ( $m=4$ ) elliptical neutron focusing supermirror fabricated by numerically controlled local wet etching with ion beam sputter deposition, *Nucl. Instr. and Meth. A*, **616** (2010) 193-196.
  11. K. Yamamura, K. Ueda, **M. Nagano**, N. Zettsu, S. Maeo, S. Shimada, T. Utaka and K. Taniguchi, Fabrication of damage-free Johansson-type doubly curved crystal spectrometer substrate by numerically controlled local wet etching, *Nucl. Instr. and Meth. A*, **616** (2010) 281-284.

12. K. Yamamura, T. Mitani, K. Ueda, M. Nagano, N. Zettsu, Improvement of Thickness Uniformity of Bulk Silicon Wafer by Numerically Controlled Local Wet Etching, Key Engineering Materials, **407-408** (2009) 372-375.
13. K. Yamamura, M. Nagano, H. Takai, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, S. Shimada, Figuring of plano-elliptical neutron focusing mirror by local wet etching, Opt. Express, **17** (2009) 6414-6420.

[国際学会(筆頭著者)]

1. M. Nagano, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura, Quadruple stacked elliptical supermirror device for one dimensional neutron focusing, International Conference on Precision Engineering (14th ICPE), (Nov. 8-10(Nov. 9), Awaji, Japan) (2012) 272-275.
2. M. Nagano, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura, Development of Stacking Mirror Device Using Millimeter-Thick Elliptical Supermirrors for Neutron Beam Focusing, Fifth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 22-24(Oct. 23), Osaka, JAPAN) (2012) 196-197.
3. M. Nagano, K. Yamamura, Ultra-precision figuring of elliptical quartz glass substrate by numerically controlled local wet etching using HF solution at azeotropic concentration, 10th International Conference on Progress of Machining Technology (10th ICPMT) (Sep. 25-27, Tsubame, Japan) (2012). **【Best Presentation Award】**
4. M. Nagano, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Stacking mirror device using millimeter-thick elliptical supermirrors fabricated by numerically controlled local wet etching for focusing neutron beam, 12th International Conference of the European Society for Precision Engineering and Nanotechnology (June 4-8(June 7), Stockholm, Sweden) (2012) 497-500V2.
5. M. Nagano, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura, Development of neutron focusing device using stacked millimeter-thick elliptical supermirror substrates, 1st Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering, (Nov. 20-24, Tsukuba, Japan) (2011) 110.
6. M. Nagano, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura, Evaluation of focusing performance of elliptical neutron focusing supermirror by ray-tracing simulation, 1st Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering, (Nov. 20-24, Tsukuba, Japan) (2011) 444.
7. M. Nagano, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Noncontact figuring of millimeter-thick elliptical mirror substrate by numerically controlled local wet etching, 4th International Conference of Asian Society for Precision



Engineering and Nanotechnology (ASPEN2011) (Nov. 16-18, Hong Kong) (2011) 72.

8. **M. Nagano**, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Development of multiply-arranged elliptical neutron focusing supermirror device, -Fabrication Process of High-Precision Thin Elliptical Supermirror-, Fourth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 31- Nov. 2, Osaka, JAPAN) (2011) P-3, S1-3, 80-81. **【Best Poster Award】**
9. **M. Nagano**, F. Yamaga, K. Yamasaki, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Evaluation of Surface Roughness of Quartz Glass Substrate in Fabrication Process for Neutron Focusing Mirror, The International Symposium on Advances in Abrasive Technology (Sep. 18-21, Stuttgart, Germany) (2011).
10. **M. Nagano**, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, One-dimensional neutron focusing with large beam divergence by 400mm-long elliptical supermirror, 5th European Conference on Neutron Scattering (Jul. 17-22, Prague, Czech) (2011) P-171, 172.
11. **M. Nagano**, F. Yamaga, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, High-precision figured thin elliptical supermirror for multiple neutron focusing device, 5th European Conference on Neutron Scattering (Jul. 17-22, Prague, Czech) (2011) 348.
12. **M. Nagano**, F. Yamaga, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of High-Precision Elliptical Neutron Focusing Supermirror with Large Clear Aperture, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Nov. 24-26, Osaka, JAPAN) (2010) P-11, 80-81.
13. **M. Nagano**, F. Yamaga, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Figuring of Millimeter-Thick Elliptical Mirror Substrate Using Numerically Controlled Local Wet Etching With Low-Pressure Polishing, 25th Annual Meeting of the ASPE (Oct. 31 - Nov. 4, Atlanta) (2010) 21-24.
14. **M. Nagano**, F. Yamaga, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of 400 mm-long elliptical neutron focusing supermirror by local wet etching with ion beam sputter deposition, International Workshop on Neutron Optics (Mar. 17-19, Alpe d'Huez) (2010).
15. **M. Nagano**, F. Yamaga, Y. Yamamoto, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of thin plano-elliptical neutron focusing mirror substrate by numerically controlled local wet etching, 3rd International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology(ASPEN2009)(Nov. 11-13, Kitakyushu, Japan) (2009) 2C-8.
16. **M. Nagano**, F. Yamaga, Y. Yamamoto, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of high-precision elliptical mirror substrate for neutron focusing

by numerically controlled local wet etching, Second International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Nov. 25-26, Osaka, JAPAN) (2009) PO.74, 182-183.

17. **M. Nagano**, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, High-reflectivity ( $m=4$ ) elliptical neutron focusing supermirror fabricated by numerically controlled local wet etching with ion beam sputter deposition, The international workshop on X-ray mirror design, fabrication and metrology (Sep. 22-23, Osaka, Japan) (2009) 48-49.
18. **M. Nagano**, H. Takai, K. Yamamura, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, Figuring of Elliptical Neutron Focusing Mirror Using Numerically Controlled Local Wet Etching, 9th International Conference on Progress of Machining Technology (9th ICPMT) (April 25-28, Kunming, China) (2009).
19. **M. Nagano**, H. Takai, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Development of plano-elliptical neutron focusing supermirror by numerically controlled local wet etching, First International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology -Surface and Thin Film Processing - (Feb 16-17, Osaka, JAPAN) (2009) P2.18
20. **M. Nagano**, H. Takai, N. Zettsu, K. Yamamura, Figuring of plano-elliptical hard X-ray focusing mirror by 1-dimensional numerically controlled local wet etching, First International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology -Surface and Thin Film Processing - (Feb 16-17, Osaka, JAPAN) (2009) P2.19.

#### [国際学会(筆頭以外)]

1. K. Yamasaki, **M. Nagano**, N. Mitsushima, R. Maruyama, H. Hayashida, D. Yamazaki, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of Spheroidal Supermirror for Neutron Beam Focusing -Figure Correction of Glass Mandrel using Spherical Polishing Pad-, Fifth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 22-24(Oct. 23), Osaka, JAPAN) (2012)198-199.
2. N. Shimozone, **M. Nagano**, K. Yamamura, Development of in situ Monitoring System for HF Concentration using Raman Spectroscopy in Numerically Controlled Local Wet Etching, Fifth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 22-24(Oct. 23), Osaka, JAPAN) (2012) 126-127.
3. X. Shen, **M. Nagano**, W. Peng, Y. Dai, K. Yamamura, A Simulation Study on Figure Error Correction Using Near-Gaussian Removal Function in Numerical Controlled Local Wet Etching, The 14th International Conference on Precision Engineering(ICPE2012)(Nov. 8-10(Nov. 10), Awaji, Japan) (2012) 276-280.
4. N. Shimozone, **M. Nagano**, T. Tabata, K. Yamamura, Study on in situ Etching Rate Monitoring in Numerically Controlled Local Wet Etching, The 14th International

- Conference on Precision Engineering(ICPE2012)(Nov. 8-10(Nov. 8), Awaji, Japan) (2012) 34-39.
5. T. Tabata, **M. Nagano**, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Figuring of Aspherical Metal Mirror Substrate for Neutron Focusing by Numerically Controlled Electrochemical Machining, The 14th International Conference on Precision Engineering(ICPE2012)(Nov. 8-10(Nov. 8), Awaji, Japan) (2012) 29-33.
  6. R. Maruyama, D. Yamazaki, H. Hayashida, **M. Nagano**, N. Zettsu, K. Yamamura, M. Takeda, S. Okayasu, K. Soyama, Supermirror Coatings for the J-PARC/MLF, Neutron Delivery Systems 2012 (July 9-11(July 9), Grenoble, France) (2012)
  7. K. Soyama, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, **M. Nagano**, N. Zettsu, K. Yamamura, A Spheroidal Supermirror, 1st Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering, (Nov. 20-24, Tsukuba, Japan) (2011) 446.
  8. D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Hayashida, K. Soyama, M. Takeda, **M. Nagano**, F. Yamaga, K. Yamamura, 1st Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering, (Nov. 20-24, Tsukuba, Japan) (2011) 449.
  9. Y. Yamamoto, M. Hosoda, **M. Nagano**, K. Yamamura, A Study on Surface Roughness of Curved Silicon Crystal Spectrometer Fabricated by Plasma Chemical Vaporization Machining, 4th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology(ASPEN2011)(Nov. 16-18, Hong Kong) (2011) 51.
  10. X.-M. Shen, Y.F. Dai, W.Q. Peng, **M. Nagano**, K. Yamamura, The Improvement of Removal Function in Local Wet Etching by using Eccentric Rotation System, 4th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology(ASPEN2011)(Nov. 16-18, Hong Kong) (2011) 104. **【Best Paper Award】**
  11. F. Yamaga, **M. Nagano**, K. Yamasaki, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Estimation of Alignment Tolerance for Multiply-Arranged Elliptical Neutron Focusing Supermirror Device by Ray-Tracing Simulation, Fourth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 31- Nov. 2, Osaka, JAPAN) (2011) P-4, 82-83.
  12. M. Hosoda, **M. Nagano**, Y. Yamamoto, Y. Hata, K. Yamamura, Effect of Shield Gas on Surface Roughness in Processing of Silicon by Open-air Type Plasma Chemical Vaporization Machining, Fourth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 31- Nov. 2, Osaka, JAPAN) (2011) P-31, 136-137.
  13. Y. Yamamoto, **M. Nagano**, M. Hosoda, Y. Hata, K. Yamamura, Real Time Monitoring and Control of Etching Rate in Open-air Type Plasma Chemical Vaporization Machining using Optical Actinometry, Fourth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Oct. 31- Nov. 2, Osaka, JAPAN) (2011) P-69, 212-213.

14. F. Yamaga, M. Nagano, K. Yamasaki, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of Ultraprecision Millimeter-thick Neutron Focusing Supermirror by Numerically Controlled Local Wet Etching and Low-pressure Polishing, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Nov. 24-26, Osaka, JAPAN) (2010) P-3, 64-65.
15. M. Hosoda, M. Nagano, N. Zettsu, S. Shimada, K. Taniguchi, K. Yamamura, Figuring of Damage-Free Cylindrical Silicon Crystal Substrate for a Focusing X-ray Spectrometer by Plasma Chemical Vaporization Machining, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Nov. 24-26, Osaka, JAPAN) (2010) P-7, 72-73.
16. M. Hosoda, K. Ueda, M. Nagano, N. Zettsu, S. Shimada, K. Taniguchi, K. Yamamura, Fabrication of Damage-free Curved Silicon Crystal Substrate for a Focusing X-ray Spectrometer by Plasma Chemical Vaporization Machining, International Conference on Precision Engineering (ICoPE2010& 13th ICPE) (28-30 July, Singapore) (2010).
17. F. Yamaga, M. Nagano, N. Zettsu, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, K. Yamamura, Fabrication of Ultraprecision Millimeter-thick Elliptical Neutron Focusing Mirror Substrate by Local Wet Etching, International Conference on Precision Engineering (ICoPE2010& 13th ICPE) (28-30 July, Singapore) (2010).
18. K. Soyama, D. Yamazaki, R. Maruyama, M. Nagano, F. Yamaga, N. Zettsu, K. Yamamura, Neutron Focusing Devices using Spheroidal Supermirrors, International Workshop on Neutron Optics (Mar. 17-19, Alpe d'Huez) (2010).
19. M. Ueda, M. Nagano, N. Zettsu, M. Shibahara, K. Yamamura, High-precision correction of thickness distribution of AT-cut quartz crystal wafer by pulse-modulated atmospheric pressure plasma etching, Second International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Nov. 25-26, Osaka, JAPAN) (2009) PO.72, 178-179.
20. K. Ueda, M. Hosoda, M. Nagano, N. Zettsu, K. Yamamura, Improvement of thickness uniformity of thick-SOI by numerically controlled local wet etching, Second International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (Nov. 25-26, Osaka, JAPAN) (2009) PO.73, 180-181.
21. M. Ueda, M. Nagano, N. Zettsu, M. Shibahara, K. Yamamura, High-precision finishing of AT-cut quartz crystal wafer by plasma chemical vaporization machining, 3rd International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology(ASPEN2009)(Nov. 11-13, Kitakyushu, Japan) (2009) 1P2-6.
22. K. Ueda, M. Hosoda, M. Nagano, N. Zettsu, K. Yamamura, Improvement of Thickness Uniformity of SOI Layer by Numerically Controlled Local Wet Etching, 3rd International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology(ASPEN2009)(Nov. 11-13, Kitakyushu, Japan) (2009) 2C-12.

23. K. Ueda, **M. Nagano**, N. Zettsu, S. Maeo, S. Shimada, T. Utaka, K. Taniguchi K. Yamamura, Fabrication of Damage-Free Johansson-Type Doubly Curved Crystal Spectrometer Substrate by Numerically Controlled Local Wet Etching, The international workshop on X-ray mirror design, fabrication and metrology(Sep. 22-23, Osaka, Japan) (2009) 46-47.
24. D. Yamazaki, M. Takeda, K. Soyama, R. Maruyama, **M. Nagano**, K. Yamamura, Design Concept of the J-PARC Polarized Neutron Reflectometer, GISAS2009(Conference on neutron and X-ray based grazing incidence small-angle scattering, satellite to XIII SAS conference) (Sep. 20-23, Hamburg, Germany)(2009).
25. K. Yamamura, K. Ueda, **M. Nagano**, N. Zettsu, S. Maeo, S. Shimada, T. Utaka and K. Taniguchi, Fabrication of High-Precision Curved Crystal Substrate for Johansson-Type Doubly Curved Crystal by Numerically Controlled Local Wet Etching, 58th Annual Conference on Applications of X-ray Analysis (Denver X-ray Conference 2009) (Jul. 27-31, Colorado Springs, USA) (2009) 52.
26. K. Yamamura, **M. Nagano**, H. Takai, D. Yamazaki, R. Maruyama and K. Soyama, Two-stage figuring using numerically controlled local wet etching for high-efficiency fabrication of plano-aspherical mirror, 9th International Conference of the European Society for Precision Engineering and Nanotechnology (June 2-5, San Sebastian, Spain) (2009) 30-33.
27. K. Yamamura, T. Mitani, K. Ueda, **M. Nagano**, N. Zettsu, Improvement of Thickness Uniformity of Bulk Silicon Wafer by Numerically Controlled Local Wet Etching, 9th International Conference on Progress of Machining Technology (9th ICPMT) (April 25-28, Kunming, China) (2009).
28. T. Mitani, **M. Nagano**, K. Ueda, N. Zettsu, K. Yamamura, Improvement of thickness distribution of bulk silicon wafer and SOI by numerically controlled local wet etching, First International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology -Surface and Thin Film Processing -, Feb 16-17, Osaka, JAPAN) (2009) P2.17.
29. K. Ueda, **M. Nagano**, N. Zettsu, S. Maeo, S. Shimada, T. Ueda, K. Taniguchi, K. Yamamura, Development of Johansson-type doubly-curved-crystal by numerically controlled local wet etching, First International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology -Surface and Thin Film Processing - (Feb 16-17, Osaka, JAPAN) (2009) P2.20.
30. M. Ueda, T. Morikawa, **M. Nagano**, N. Zettsu, M. Shibahara, K. Yamamura, Improvement of the Thickness Distribution of AT-cut Quartz Crystal Wafer by Pulse-Modulated Atmospheric Pressure Plasma, 22nd Symposium on Plasma Science for Materials (June 15-16, 2009, Tokyo, Japan) 64.



[国内学会(筆頭著者)]

1. 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 非球面スーパーミラーを KB 配置した 2 次元集光デバイスの開発, 日本中性子科学会第 12 回年会論文集(2012) 54. **【優秀ポスター賞】**
2. 永野幹典, 田畑雄壮, 山村和也, 数値制御電解加工による金属ミラーの形状創成加工 (第 2 報) -同軸ノズル電極の基礎加工特性-, 2012 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集(2012) 343-344.
3. 永野幹典, 山村和也, 数値制御ローカルウエットエッチング法による高精度光学素子の作製 (第 9 報) -共沸濃度のフッ化水素酸を用いた合成石英基板の高精度加工-, 2012 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集(2012) 407-408.
4. 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 多重配置した中性子集光用楕円面スーパーミラーデバイスの開発-4 枚の 1mm 厚ミラー基板のアライメント機構 -2012 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集(2012)
5. 永野幹典, 山家史也, 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 山村和也, 数値制御ローカルウエットエッチングによるミリメートル厚さの中性子集光用楕円面ミラーの作製, 2011 年度砥粒加工学会学術講演会講演論文集(2011) 401-402.
6. 永野幹典, 山崎健太, 田畑雄壮, 山村和也, 市川豪, 南雄人, 駒宮幸男, 重力場における超冷中性子の量子状態観測のための高精度中性子拡大鏡の開発, 2011 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2011) 481-482.
7. 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 山崎 大, 丸山龍治, 曾山和彦, 中性子集光用ミラー作製プロセスにおける合成石英製基板の表面粗さ評価, 精密工学会 2011 年度関西地方定期学術講演会講演論文集 (2011) 60-61.  
**【ベストポスタープレゼンテーション賞】**
8. 永野幹典, 山家史也, 是津 信行, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 多重配置した中性子集光用楕円面スーパーミラーデバイスの開発 -ミリメートル厚さの高精度楕円面スーパーミラーの作製-, 2011 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 (2011) 501-502.
9. 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 高性能大面積楕円面スーパーミラーの開発, 日本中性子科学会第 10 回年回講演概要集 (2010) 99.
10. 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 多重ミラーシステム開発に向けた高精度薄型非球面スーパーミラーの作製, 日本中性子科学会第 10 回年回講演概要集 (2010) 100.
11. 永野幹典, 山家史也, 山崎健太, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎 大, 曾山和彦, 中性子集光用大面積非球面ミラー作製プロセスの開発, 2010 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2010) 725-726.
12. 永野幹典, 山家史也, 山崎健太, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎 大, 曾山和

彦, 中性子集光用高精度ミラー基板の高能率作製プロセスの開発, 精密工学会 2010 年度関西地方定期学術講演会講演論文集(2010) 78-79.

【ベストポスタープレゼンテーション賞】

13. 永野幹典, 山家史也, 山本悠人, 是津信行, 山村和也, 山崎 大, 丸山龍治, 曾山和彦, 中性子集光用楕円面スーパーミラーの作製と反射特性の評価, 日本中性子科学会第9回年回講演概要集 (2009) 63.
14. 永野幹典, 山家史也, 山本悠人, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎大, 曾山和彦, 数値制御ローカルウェットエッチング法による高精度光学素子の作製 -中性子集光用ミラーの作製 第V報-, 2009年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2009) 153-154.
15. 永野幹典, 高井宏之, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎大, 曾山和彦, 中性子集光用楕円筒スーパーミラーの作製とその反射特性の評価, 精密工学会 2009 年度関西地方定期学術講演会講演論文集(2009) 59-60.

【ベストポスタープレゼンテーション賞】

16. 永野幹典, 高井宏之, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎大, 曾山和彦, 数値制御ローカルウェットエッチング法による高精度光学素子の作製 -中性子集光用楕円面ミラーの作製 第IV報-, 2009 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 (2009) 261-262.
17. 永野幹典, 高井宏之, 山村和也, 山崎 大, 丸山龍治, 曾山和彦, 数値制御ローカルウェットエッチングによる中性子集光用楕円面ミラーの作製とその評価, 日本中性子科学会第8回年回講演概要集 (2008) 86.
18. 永野幹典, 高井宏之, 是津信行, 山村和也, ローカルウェットエッチングにより加工した表面の評価, -加工後表面の表面粗さ悪化の原因解明-, 2008 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2008) 317-318.
19. 永野幹典, 是津信行, 山村和也, ローカルウェットエッチングにより加工した表面の評価-加工後残留物による表面粗さへの影響-, 精密工学会 2008年度関西地方定期学術講演会講演論文集 (2008) 23-24.

【招待講演】

1. 永野幹典, 中性子集光用非球面スーパーミラーデバイスの開発-J-PARC における2次元集光デバイス開発の現状-, MIEZE/N(R)SE 分光器で目指すサイエンスV (2012年2月28日, 京都大学原子炉実験所)
2. 永野幹典, 中性子集光用非球面スーパーミラーデバイスの開発, 「MIEZE/N(R)SE 分光器で目指すサイエンスIV」 (2011年2月24日, 京都大学原子炉実験所)
3. 永野幹典, 山村和也, 中性子集光用高性能楕円面スーパーミラーデバイスの開発, 「中性子制御デバイスとその応用Ⅲ」 (2010年2月4日, 京都大学原子炉実験所)

[国内学会(筆頭以外)]

1. 山崎健太, 永野幹典, 光嶋直樹, 山村和也, 丸山龍治, 林田洋寿, 山崎 大, 曾山和彦, 中性子集光用回転楕円ミラーの作製 第IV報-小径球面パッドを用いた形状修正研磨における体積加工速度の安定化-, 2012 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集(9.14@九州工業大学) (2012) 409-410.
2. 山家史也, 永野幹典, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 中性子集光用楕円面スーパーミラーデバイスの開発 -ミラーの形状誤差が集光径に与える影響-, 2011 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2011) 479-480.
3. 細田真央, 永野幹典, 山本悠人, 畑裕輝, 山村和也, 数値制御プラズマ CVM によるヨハンソン型 Si(111)二重湾曲分光結晶のダメージフリー加工 (第6報) -ガス流体解析を用いた表面粗さ生成要因の考察-, 2011 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2011) 483-484.
4. 丸山龍治, 山崎大, 岡安悟, 武田全康, 是津信行, 永野幹典, 山村和也, 林田洋寿, 曾山和彦, Si 界面層が Fe/Ge 中性子偏極ミラーの磁気特性に与える影響, 日本原子力学会 2011 年秋の大会(2011) I31.
5. 山崎健太, 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 中性子集光用回転楕円ミラーの作製 -高精度円筒基板作製プロセスの開発-, 精密工学会 2011 年度関西地方定期学術講演会講演論文集 (2011) 54-55.
6. 山家史也, 永野幹典, 山村和也, 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 多重配置した中性子集光用楕円面スーパーミラーデバイスの開発 -多重化のためのミラー保持機構の開発-, 精密工学会 2011 年度関西地方定期学術講演会講演論文集 (2011) 58-59.
7. 細田真央, 永野幹典, 山本悠人, 山村和也, 数値制御プラズマ CVM によるヨハンソン型 Si(111)二重湾曲分光結晶のダメージフリー加工 (第5報) -シールドガスのガス種・流量の検討-, 精密工学会 2011 年度関西地方定期学術講演会講演論文集 (2011) 62-63.
8. 山家史也, 永野幹典, 是津信行, 山崎 大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 山村和也, 多重配置した中性子集光用楕円面スーパーミラーデバイスの開発 -光線追跡シミュレーションによるアライメント精度の検討, 2011 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 (2011) 503-504.
9. 細田真央, 永野幹典, 是津信行, 山村和也, 島田尚一, 谷ロー雄, 数値制御プラズマ CVM によるヨハンソン型 Si(111)二重湾曲分光結晶のダメージフリー加工 (第4報) -表面粗さの生成要因に関する検討-, 2011 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 (2011) 505-506.
10. 山崎 健太, 永野 幹典, 山家 史也, 是津 信行, 山村 和也, 丸山 龍治, 山崎 大, 林田 洋寿, 曾山 和彦, 中性子集光用回転楕円ミラーの作製 -回転楕円基板の形状創成と修正研磨-第II報, 精密工学会第 18 回学生会員卒業研究発表講演会講演

論文集 (2011) 103-104.

11. 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 高精度 1 次元楕円スーパーミラーによる白色中性子集光 (II), 日本中性子科学会第 10 回年回講演概要集 (2010) 95.
12. 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 高精度楕円スーパーミラーによる白色中性子集光 (II), 日本物理学会秋季大会 (2010) 24pWZ6.
13. 山崎大, 丸山龍治, 林田洋寿, 曾山和彦, 永野幹典, 山家史也, 山村和也, 大型中性子集光スーパーミラーの開発, 日本原子力学会 2010 年秋の大会(2010) I55.
14. 山家史也, 永野幹典, 山崎健太, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎 大, 曾山和彦, 数値制御ローカルウエットエッチング法による中性子集光用楕円面ミラーの作製 (第 8 報) -薄型多重ミラーシステム作製のためのダメージフリー加工プロセスの開発-, 2010 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2010) 727-728.
15. 山崎健太, 永野幹典, 山家史也, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎 大, 曾山和彦, 中性子集光用回転楕円ミラーの作製 -回転体基板に対する研磨特性の評価 第 I 報-, 2010 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2010) 729-730.
16. 山家史也, 永野幹典, 山崎健太, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎 大, 曾山和彦, 数値制御ローカルウエットエッチング法による中性子集光用楕円面ミラーの作製 (第 7 報) -低圧均等研磨によるツールマーク除去における最適条件の検討-, 精密工学会 2010 年度関西地方定期学術講演会講演論文集(2010) 80-81.
17. 山家史也, 永野幹典, 山本悠人, 是津信行, 山村和也, 丸山龍治, 山崎大, 曾山和彦, 数値制御ローカルウエットエッチングによる中性子集光用楕円面ミラーの作製 (第 6 報) -ミラー多重化のためのミリメータ厚さ基板の高精度加工-, 精密工学会第 17 回学生会員卒業研究発表講演会講演論文集 (2010) 19-20.
18. 曾山和彦, 丸山龍治, 山崎 大, 永野幹典, 山村和也, 回転楕円スーパーミラーによる中性子収束デバイスの開発, 日本原子力学会 2009 年秋の大会(2009) I49.
19. 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 永野幹典, 山村和也, 高精度 1 次元楕円スーパーミラーによる白色中性子集光, 日本中性子科学会第 9 回年回講演概要集 (2009) 91.
20. 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 永野幹典, 山村和也, 高精度楕円面上スーパーミラーによる白色中性子集光, 日本物理学会秋季大会(2009) 27pYK-7.
21. 植田和晃, 細田真央, 永野幹典, 是津信行, 山村和也, 数値制御ローカルウエットエッチングによる SOI 膜厚の均一化加工 (第二報), 2009 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2009) 157-158.
22. 植田和晃, 三谷卓朗, 永野幹典, 是津信行, 山村和也, 数値制御ローカルウエットエッチングによる厚膜 SOI 厚さの均一化 (第一報), 精密工学会 2009 年度関西地方定期学術講演会講演論文集 (2009) 55-56.
23. 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 高井宏之, 永野幹典, 山村和也, 高精度非球面基板上

の高性能中性子スーパーミラーによる中性子集光と斜入射小角散乱, 日本物理学会第 64 回年次大会(2009) 30pRE-10.

24. 植田和晃, 永野幹典, 是津信行, 山村和也, 前尾修司, 島田尚一, 宇高忠, 谷口一雄, 数値制御ローカルウエットエッチングによるヨハンソン型二重湾曲分光結晶の加工, 2009 年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 (2009) 265-266.
25. 山崎大, 丸山龍治, 曾山和彦, 高井宏之, 永野幹典, 山村和也, 高精度非球面基板上の高性能スーパーミラーによる中性子集光, 日本中性子科学会第 8 回年回講演概要集 (2008) 65.
26. 曾山和彦, 丸山龍治, 山崎 大, 永野幹典, 山村和也, 高臨界角スーパーミラーを用いた多重チャンネル中性子収束デバイスの開発, 日本中性子科学会第 8 回年回講演概要集 (2008) 89.
27. 高井宏之, 永野幹典, 山村和也, 丸山龍治, 山崎 大, 曾山和彦, 数値制御ローカルウエットエッチング法による高精度光学素子の作製, -中性子集光用ミラーの作製 第三報-, 2008 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2008) 805-806.
28. 曾山和彦, 丸山龍治, 山崎 大, 山村和也, 高井宏之, 永野幹典, 多重チャンネル中性子収束ミラーの開発, 日本原子力学会「2008 年秋の大会」(2008) I12.



**[受賞]**

- ・ 精密工学会 2009 年度関西地方定期学術講演会 (2009 年 5 月 13 日 千里ライフサイエンスセンター)  
**【ベストポスタープレゼンテーション賞】**
- ・ 精密工学会 2010 年度関西地方定期学術講演会 (2010 年 5 月 28 日 京都大学吉田キャンパス)  
**【ベストポスタープレゼンテーション賞】**
- ・ 精密工学会 2011 年度関西地方定期学術講演会 (2011 年 6 月 30 日 兵庫県立大学姫路書写キャンパス)  
**【ベストポスタープレゼンテーション賞】**
- ・ Fourth International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology (2011) (Oct. 31-Nov.2(Oct. 31), Osaka, JAPAN) (2011)  
**【Best Poster Award】**
- ・ 4th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (2011) (16-18 Nov.(Nov. 16,17), Hon Kong) (2011)  
**【Best Paper Award】**
- ・ 10th International Conference on Progress of Machining Technology (ICPMT 2012) (Sep. 25-27(Sep. 27), Tsubamesanjo, Japan) (2012)  
**【Best Presentation Award】**
- ・ 日本中性子科学会第 12 回年会(2012 年 12 月 10 日 京都大学吉田キャンパス) (2012)  
**【優秀ポスター賞】**

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり、終始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 山村和也准教授に深甚なる謝意を表します。また、日頃の御指導並びに有益な御助言をいただきました大阪大学大学院工学研究科 遠藤勝義教授に厚く御礼申し上げます。また、有益な御教示を賜りました安武潔教授、森田瑞穂教授、桑原裕司教授、山内和人教授、森川良忠教授、渡部平司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。また、本研究を遂行するにあたり御助言をいただきました名古屋大学工学研究科 是津信行准教授、大阪大学大学院工学研究科 松山智至助教、北海道大学電子科学研究所 木村隆志助教に深く感謝いたします。

本研究を遂行するにあたり、JRR-3M、J-PARC を利用したすべての研究、実験において適切な指導とご助言を賜りました日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 曾山和彦研究主幹に心から感謝いたします。中性子ミラーの設計、評価、スーパーミラー成膜において多くのご助言とご協力をいただきました本原子力研究開発機構 J-PARC センター 山崎大研究副主幹、丸山龍治研究員、林田洋寿研究員に厚く御礼申し上げます。また、有益な御助言を賜りました京都大学原子炉実験所 日野正裕准教授、北口雅暁助教、京都大学大学院工学研究科 田崎誠司准教授に深く感謝いたします。

本研究において、LWE による石英ガラス加工に関して数々の御助言、御協力をいただきました東ソー株式会社 岡村敏彦氏に心より感謝いたします。また、LWE 加工装置ならびに低圧研磨装置の設計・製作にあたり労を厭わず終始有益な御助言、御援助を戴きました明昌機工株式会社 岡本利樹代表取締役社長、足立真士氏、古林孝元氏、及び吉住崇氏に心から謝意を表します。また、長尺ミラーの研削加工においてご協力いただきましたナガセインテグレーション株式会社 山口政男専務取締役に謝意を表します。また、長尺ミラーの研磨加工において多くのご助言とご協力をいただきました株式会社ジェイテック津村尚史代表取締役、岡田浩巳氏、城間晋作氏に感謝の意を表します。

また、日頃より本研究の遂行にあたり労を厭わず御協力をいただきました山崎健太氏、下園直樹氏、光嶋直樹氏をはじめとする中性子ミラー研究グループ、ならびに高井宏之氏、三谷卓朗氏、瀧口達也氏、植田和晃氏、山家史也氏、内田修平氏を始めとする超精密科学研究センターの卒業・修了生及び在学中の諸兄、諸氏に深く感謝いたします。また、日頃の事務的な御支援を頂きました超精密科学研究センター 宮崎祐子秘書に深く感謝いたします。

本研究の一部は、科学技術振興機構 先端計測分析技術・機器開発プログラム「中性子集光用非球面スーパーミラーデバイスの開発」、グローバル COE プログラム「高機能化原子制御製造プロセス教育研究拠点」、及び日本学術振興会科学研究費補助金（特別研究員奨励費）の支援により行われました。ここに感謝いたします。

最後に、本研究の遂行にあたっては家族と友人の終始変わらぬ温かい励ましがあったことを記し、ここに感謝の意を表します。

