Osaka University Knowledge Archive

Title	X線励起超高速ダイナミクス測定のための硬X線分割・遅延光学系の開発
Author(s)	大坂, 泰斗
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/55928
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　大　坂　泰　斗　）	
論文題名	X線励起超高速ダイナミクス測定のための 硬X線分割・遅延光学系の開発

論文内容の要旨

本論文では，2つのX線パルスを用いた電子・原子の超高速ダイナミクスの測定を目的とした，硬X線領域において機能する分割・遅延光学系の開発に向けて取り組んだ研究をまとめた．

第1章では，X線顕微技術が時間分解研究と結びつくまでの歴史を簡単に紹介した後，硬X線に対して提案されている，各種分割・遅延光学系の特徴や利点をまとめた．また，本研究において開発を目指す，結晶素子に基づいた分割・遅延光学系の概要について述べ，他の光学系からの利点を示した．主要な光学素子である，ビームスプリッタ結晶やチャネルカット結晶の世界的な開発動向に触れつつ，未だ抱えている課題を指摘した．そして本研究の目的，意義，概略について述べた．

第2章では，提案した新たな光学配置と特徴，利点について述べた．また，小型の装置系において得られる遅延時間範囲やスループット，原理的な時間分解能に基づいて，利用する回折面をSi(220)と決定した．チャネルカット結晶の設計指針を示し，構築したステージ系に基づいたX線エネルギー許容幅，遅延時間範囲，遅延時間ステップ等の，光学系としての性能を示した．また，X線回折の動力学理論に基づき，ビームスプリッタ結晶として機能する為に要求される結晶の厚みや許容誤差に関して述べた．導き出した各種パラメータを用い，分割・遅延光学系のスループットや実効時間分解能を計算した．

第3章では，主要光学素子である，薄いビームスプリッタ結晶，チャネルカット結晶の作製プロセスに関して述べた．加工手法として用いた，Plasma Chemical Vaporization Machining (PCVM) の基礎概念を紹介し，達成可能な加工の空間分解能や加工後表面粗さ等の加工特性に関して述べた．そしてPCVMを用いたビームスプリッタ結晶加工プロセスの詳細を示し，放射光X線を用いて行った結晶性評価結果を記述した．また，X線照射による結晶性悪化を抑制する為のHeパージの有効性を示した．最後に，簡単にではあるが，チャネルカット結晶の内壁面PCVM加工の概念を紹介し，X線による評価結果を示した．

第4章では，分割されたX線同士を空間的に重複させる為の，光学素子のアライメント手法に関して述べた．幾何学的な視点からX線の集光を考え，光学素子のアライメント誤差に対する影響と，集光位置の変位とを結びつけた．あらゆるアライメント誤差の影響を検討し，必要最低限の調整軸によって達成可能なアライメント手順を開発した．幾何学，光線追跡を用いて回転ステージに要求される分解能，精度を見積もった．波動光学的に集光面近傍のビームプロファイルを計算し，幾何学的な見積もりの有効性を実証した．

第5章では，本研究において開発した分割・遅延光学系の性能評価実験に関して述べた．放射光施設において考案したアライメント手法の有効性を実証し，200 nm以下へ集光可能な光学系を用いた際に，30 nmの精度で分割ビームを空間的に重複させることに成功した．また，ビームスプリッタ結晶中の格子面歪による，スループットや集光プロファイルへの影響を検討した．そしてX線自由電子レーザー施設，SACLAにおいて，ショット毎の強度診断や遅延時間測定の実現可能性，精度を検討した．1 μm集光ミラー光学系を用いて集光特性を評価し，ビームスプリッタ結晶によって反射されたビームにおいて，3-4 μm径への集光を達成した．

第6章では，本論文で得られた結果をまとめ，本論文の結論並びに将来展望に関して述べた．

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　大　坂　　泰　斗　）			
論文審査担当者		（職）	氏　　名
	主 査	教授	山内　和人
	副 査	教授	安武　潔
	副 査	准教授	佐野　泰久
	副 査	教授	森田　瑞穂
	副 査	教授	桑原　裕司
	副 査	教授	森川　良忠
	副 査	教授	遠藤　勝義
	副 査	教授	渡部　平司

論文審査の結果の要旨

超高ピーク輝度，ほぼ完全な空間コヒーレンス，そして 10 fs 以下の超短パルス幅等の特徴を併せ持つ硬 X 線自由電子レーザー（XFEL）の発振により，原子空間分解能，フェムト秒時間分解能を有する時間分解計測が実現している．加速器技術の発展によりフェムト秒オーダーの時間差を有する 2 つの XFEL 発振が実現しており，XFEL 照射後の放射線損傷過程の解明も進んでいる．しかし，材料物性と関わりの深い原子や分子の自発的な揺らぎの生じる，ピコ秒からナノ秒の時間差を有する XFEL パルスの生成は実現していない．本論文は，数百ピコ秒に及ぶ時間差を生成可能な，結晶素子を利用した分割・遅延光学系の設計，光学素子開発から性能評価に至る一連の研究成果をまとめたものである．

多岐に渡る応用展開の為には広い波長範囲が求められるが，調整自由度の増大を余儀無くし，光学系の煩雑化，安定性の低下につながる．X 線ビームの角度を保存しつつ遅延生成の可能なチャネルカット結晶を利用する事で，広い波長範囲と高い安定性を両立した光学系を設計している．また，回折効率や到達可能遅延時間，パルス幅の拡大等を考慮の上利用する結晶面を決定し，動力学理論に基づき，ビームスプリッタ結晶に求められる結晶厚みを導出している．

本光学系の実現において，無歪みな厚み約 10 μm の極薄結晶やチャネルカット結晶の作製が最重要課題と言える．大気圧プラズマを用いた局所的エッチング手法である PCVM（Plasma Chemical Vaporization Machining）を利用し，プラズマ発生条件，加工手法の最適化を行うことで，世界最高性能の極薄結晶の作製に成功している．また，チャネルカット結晶に対しても PCVM を行う事で結晶ダメージを除去し，波面の乱れの無い反射 X 線の供給に成功している．

集光した分割ビームの空間的な重複は必要不可欠であるが，多くの素子を有する本光学系によって達成する事は困難である．幾何，波動光学計算を駆使し，効率的な調整法を考案，要求精度を導出している．そして第 3 世代放射光施設である SPring-8 において実証し，集光径約 200 nm の分割ビーム同士を 30 nm の精度で重複させることに成功している．また，27%のスループットを得ており，硬 X 線分割・遅延光学系として世界最高効率を達成している．

本光学系を用いた時間分解計測において，パルス毎の強度や遅延時間は重要なパラメータであるが測定は困難である．XFEL 施設において，各遅延パスに配置した検出器とビームライン常設の検出器とを用いる事で，誤差±10%の精度で絶対強度測定が可能である事，また，X 線ストリークカメラの利用により 100 fs の精度で遅延時間を調整可能である事を実証している．そして SPring-8 に対して一桁厳しい調整精度の要求される XFEL においても，集光ビームの効率的な空間的重複に成功している．

以上のように，本論文は分割・遅延光学系の設計，無歪み結晶素子の作製を行い，時間分解計測に必要となる要素技術の確立を行ったものである．ここで構築した分割・遅延光学系は，未踏時間領域であるピコ秒からナノ秒の電子・原子挙動の解明に大いに貢献するものと期待されており，精密科学の発展に寄与する所が大きい．よって本論文は博士論文として価値あるものと認める．