



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	

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

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

大坂 泰斗

2016 年 1 月

大阪大学大学院工学研究科 精密科学・応用物理学専攻

謝辞

本研究を遂行するにあたり、終始御指導並びに御鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科 山内和人教授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頂きました大阪大学大学院工学研究科 佐野泰久准教授、理化学研究所放射光科学総合研究センター XFEL 研究開発部門ビームライン研究開発グループ 矢橋牧名グループディレクター、理論支援チーム 玉作賢治チームリーダー、高輝度光科学研究センターXFEL 利用研究推進室先端光源利用研究グループ 登野健介博士、犬伏雄一博士、東京大学理学系研究科 佐藤堯洋助教に厚く御礼申し上げます。数々の有益な御助言を頂きました大阪大学大学院工学研究科 高橋幸生准教授、松山智至助教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大阪大学大学院工学研究科 安武潔教授、森田瑞穂教授、桑原裕司教授、森川良忠教授、渡部平司教授、遠藤勝義教授をはじめとする精密科学教室の諸先生方に深く感謝致します。

本研究を遂行する上で、数々の御助言を頂きました理化学研究所放射光科学総合研究センター 石川哲也センター長に深く感謝致します。また、SPring-8, SACLA における実験に関して多くの御助言、御指導を頂きました理化学研究所放射光科学総合研究センター 香村芳樹博士、高輝度光科学研究センター 大橋治彦博士、東京大学大学院工学系研究科 三村秀和准教授、北海道大学電子科学研究所 木村隆志助教、東京大学大学院新領域創成科学研究科 井上伊知郎氏に深く感謝致します。SACLA における実験に際して、数々の御教示、御鞭撻頂きました SLAC National Accelerator Laboratory, LCLS, Dr. Aymeric Robert, Prof. Jerome B. Hastings, Dr. Diling Zhu, Dr. Mthieu Chollet に深く感謝致します。また、LCLS における先駆的な分割・遅延光学系のコミッションング実験に御招待頂いた DESY, Prof. Gerhard Grübel, Dr. Wojciech Roseker, Dr. Felix Lehmkuehler 並びに LCLS, Dr. Yiping Feng, Dr. Marcin Sikorski, Dr. Sanghoon Song に深く感謝致します。

結晶や電極等を製作して頂いた菊先正信社長、菊先貴晶部長をはじめとする株式会社サートンワークスの諸氏、足立真士部長をはじめとする株式会社明昌機工の諸氏、釜石雅史氏をはじめとするシャランインスツルメンツ株式会社の諸氏に深く感謝致します。

日頃の研究活動の遂行にあたり、労を厭わず御協力頂きました平野嵩氏に深く感謝いたします。

また、日頃より御指導頂きました金岡政彦博士、岡本武志博士、定國峻博士、中森紘基氏、横山光氏をはじめとする山内研究室の卒業生の諸兄に心より感謝致します。また、日頃の事務的な御支援を頂きました山内研究室 橘弓子秘書、久保英理子秘書、寺井嘉奈子秘書に深く感謝致します。そして日頃より研究活動に留まらず私生活に関する事まで相談に乗って頂きました浅野博弥氏、今井将太氏、北村真一氏、金章雨氏、鈴木明大氏、西川央明氏に深く感謝致します。

本研究の一部は、文部科学省グローバル 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)、日本学術振興会特別研究員奨励費(25-898)、理化学研究所(SACL A 利用装置提案課題)及び科学技術振興機構科学技術イノベーション創出基盤構築事業(X 線自由電子レーザー施設重点戦略課題推進事業)の助成を受けて行われました。ここに深く感謝致します。

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暖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。

2016 年 1 月 14 日

大塚 泰斗

目次

謝辞	iii
図目次	ix
表目次	xiii

1. 序論 1

1.1 研究背景	1
1.2 硬 X 線領域における分割・遅延光学系	3
1.2.1 多層膜ミラー	3
1.2.2 回折格子	4
1.2.3 結晶素子	5
1.3 主要光学素子の開発動向	7
1.4 本論文の目的と構成	8

2. 分割・遅延光学系の設計 11

2.1 緒言	11
2.2 分割・遅延光学系の結晶配置	11
2.2.1 回折面の検討	12
2.2.2 チャンネルカット結晶寸法の検討	14
2.3 遅延時間範囲・分解能	16
2.4 極薄結晶の要求パラメータ	18
2.4.1 結晶厚みの検討	18
2.4.2 許容厚みムラの検討	20
2.5 分割・遅延光学系の性能見積もり	21

2.5.1	Si(111) モノクロメータに対する検討	21
2.5.2	SASE に対する検討	25
2.6	結言	29
3.	主要光学素子の作製	31
3.1	緒言	31
3.2	Plasma Chemical Vaporization Machining	31
3.2.1	基礎特性と装置系	31
3.2.2	加工特性	34
3.2.2.1	加工条件と空間分解能の評価	34
3.2.2.2	結晶面依存性評価	36
3.2.2.3	表面粗さの評価	39
3.3	ビームスプリッタ結晶の作製	40
3.3.1	結晶デザインと前加工	40
3.3.2	加工手順	41
3.3.2.1	基本方針	41
3.3.2.2	テーパー面加工	42
3.3.2.3	裏面加工	45
3.3.2.4	薄化加工	47
3.3.3	加工結果と結晶性評価	50
3.3.4	有効な利用法の検討	59
3.4	チャネルカット結晶の内壁面ダメージ除去	62
3.5	結言	65
4.	アライメント手法	67
4.1	緒言	67
4.2	集光の原理とアライメント誤差の影響	67
4.3	アライメント手順	71

4.3.1	調整軸の検討	71
4.3.2	アライメント手順の検討	73
4.4	回転ステージの要求分解能	75
4.4.1	幾何学による見積もり	75
4.4.2	光線追跡計算による見積もり	76
4.4.3	波動光学計算による見積もり	79
4.5	結言	84
5.	分割・遅延光学系の性能評価実験	85
5.1	緒言	85
5.2	SPring-8 における性能評価	85
5.2.1	実験配置	85
5.2.2	アライメント	86
5.2.3	遅延時間調整の影響評価	89
5.2.4	スループットの評価	91
5.2.5	発散角変化による集光プロファイルへの影響	92
5.3	SACLA における性能評価	94
5.3.1	ショット毎の強度診断	95
5.3.2	絶対遅延時間と線形性測定	97
5.3.3	集光特性評価	98
5.4	結言	101
6.	総括	103
	参考文献	111
	研究業績	117
	付録 A X 線回折の動力学理論	127

図目次

1. 序論

2. 分割・遅延光学系の設計

2.1	Schematic diagram of the optical layout of the split-and-delay optics.	12
2.2	Dimensions of CC1.	15
2.3	Mechanics of the split-and-delay optics.	17
2.4	Delay-time ranges and resolutions as a function of photon energies in the split branches.	18
2.5	Thickness dependence of Si(220) diffraction at 10 keV.	19
2.6	Estimation of phase errors due to thickness variations.	21
2.7	Throughputs for plane-wave 10 keV X-rays from a Si(111) DCM as a function of energy deviations of the split branches.	23
2.8	Calculation of throughputs taking into account a beam divergence.	24
2.9	Throughputs as a function of beam divergence at 10 keV.	24
2.10	Simulated SASE pulse.	26
2.11	Calculation of impulse response of Si(220) diffraction at 10 keV.	26
2.12	Calculation of throughputs for SASE pulses at 10 keV.	28
2.13	Throughputs for SASE pulses as a function of photon energy.	29

3. 主要光学素子の作製

3.1	Picture of PCVM chamber.	33
-----	-------------------------------	----

3.2	Schematic diagram of the equipment for thin crystals.	33
3.3	Schematic diagram of the equipment for channel-cut crystals.	34
3.4	Typical removal footprints with an electrode of diameter of 0.3 mm under different removal conditions.	35
3.5	Removal characteristics with various flow rates of reactive gas and gaps between the electrode and sample.	35
3.6	Distribution of removal rate under an optimized condition.	35
3.7	Removal volume as a function of plasma dwelling time.	36
3.8	Removal characteristics for various lattice planes.	38
3.9	Surface morphologies at several removal depths.	39
3.10	Schematic diagrams of the window-shaped beam splitter crystal (Type I).	40
3.11	Pre-fabrication procedure for crystal Type I.	40
3.12	PCVM processes for fabricating a Type I crystal.	41
3.13	Examples of X-ray reflection topograph from a thin Si(511) crystal without the PCVM process at tapered surface measured with a (+, -) parallel arrangement.	42
3.14	Influence of scratches existing on rear surface of a thin crystal.	42
3.15	Results of an electrostatic calculation with a process configuration for the tapered-surface PCVM.	43
3.16	Picture of plasma during the tapered-surface PCVM.	43
3.17	Pictures of tapered surface of a Type I crystal before (a) and after (b) the PCVM process.	43
3.18	Conceptual image of the electrode-scanning method for removing crystal strains on tapered surface.	45
3.19	Pictures of thin crystals with different removal methods for treating tapered surface.	45
3.20	Effect of surface flattening for realizing uniform PCVM process on the rear surface.	46
3.21	Example of measured thickness distribution.	47
3.22	Flow chart of PCVM processes for fabricating thin crystals.	49
3.23	Results of SM01.	51
3.24	Results of SM02.	52
3.25	Results of SM03.	53
3.26	Results of SM04.	54

3.27 Results of SM05.	55
3.28 Results of SM06.	56
3.29 Results of SM07.	57
3.30 Results of SM08.	58
3.31 Transition of Si(440) reflection topograph measured with a 16.325 keV X-ray probe.	60
3.32 Picture of sample holder implementing water cooling and He purge capabilities.	60
3.33 Transition of reflection topograph from a thin Si(440) crystal operated under several conditions.	61
3.34 Measured thickness of SiO ₂ layer on several Si crystals.	61
3.35 Concept of a PCVM process at an inner-wall diffraction surface of a channel-cut crystal.	63
3.36 Examples of removal profile.	63
3.37 Experimental setup for evaluation of channel-cut crystals.	63
3.38 Four-bounced reflection topograph from a pair of channel-cut crystals measured with 10 keV X-rays.	64

4. アライメント手法

4.1 Side view of conceptual diagram of source imaging with a thin lens combined with the split-and-delay optics (SDO).	68
4.2 Expected beam paths at different angular mismatches between $2\theta_1$ and $2\theta_2$	72
4.3 Influence of mismatch between χ_{BR1} and χ_{BR2}	72
4.4 Alignment procedure.	74
4.5 Coordinate system employed in ray-trace calculations.	77
4.6 Results of ray-trace calculations.	78
4.7 Examples of results wave-optical simulations at 10 keV.	80
4.8 Results of wave-optical simulations with the 1 μ m focusing system at 6.5 keV.	82
4.9 Results of wave-optical simulations with the 50 nm focusing system at 6.5 keV.	83

5. 分割・遅延光学系の性能評価実験

5.1	Experimental setup for performance test at BL29XUL of SPring-8.	86
5.2	Results of positional correction in the vertical direction with adjustment of $2\theta_2$	87
5.3	Transition of horizontal focal profile during the ‘parallel shift’.	88
5.4	Focal profiles after fine adjustments.	89
5.5	Focal profiles after small change of delay time of 1 ps.	90
5.6	Horizontal focal profiles after large change of delay time (> 10 ps).	90
5.7	Comparison of beam profiles measured with CCD2.	91
5.8	Influence of divergence change on focal profiles.	93
5.9	Normalized FWHM and d_{fy}/z_R as a function of N	94
5.10	Experimental setup for performance test at BL3 of SACLA.	95
5.11	Correlations between several BIMs.	96
5.12	Results of delay-time measurements with an X-ray streak camera.	97
5.13	Averaged profiles of the split beams.	99
5.14	Focal profiles of the split beams.	100
5.15	Averaged upper beam profiles with illuminating a thick part of BS.	100

表目次

1. 序論

1.1 Comparison of reported split-and-delay optics.	7
---	---

2. 分割・遅延光学系の設計

2.1 Characteristics of SACLA XFELs at BL3.	13
2.2 Comparison of various diffraction planes at 10 keV.	13
2.3 Resolutions of stages operated with half-step feed mode.	17
2.4 Required crystal thickness for various orders of diffraction at 10 keV.	20

3. 主要光学素子の作製

3.1 Experimental condition for investigating lattice dependence of removal rate.	37
3.2 List of samples and evaluation conditions.	50

4. アライメント手法

4.1 Parameters of two focusing systems installed at BL3 of SACLA.	70
--	----

5. 分割・遅延光学系の性能評価実験

5.1 Experimental conditions during investigation of intensity correlations.	96
5.2 Experimental conditions during focusing characterization.	99

第 1 章

序論

1.1 研究背景

人類の歴史上, “見えなかったものを見る”という知的好奇心の追求によって科学技術は大きな発展を遂げてきた. 特に, Galilei による天体の観察, Leeusenhoeck による微生物の観察等に代表される, 光学望遠・顕微技術の発展による天文学, 生物学, 化学や材料科学に至る幅広い科学領域への貢献は計り知れない. 1960 年の Maiman によるルビーレーザーの発明 [1] を契機として, 光源性能の発達も著しく, ピコ秒(10^{-12} s)やフェムト秒(10^{-15} s)という極めて短いパルス時間幅を有するレーザーの利用も可能となった. これら超短パルスレーザーの登場により, 可視化技術の対象はxyzの空間3次元に加え, 時間(t)軸をも加えた4次元空間へと拡張され, 超高速時間分解研究 [2] が盛んに行われている.

一方で, 1895 年の Röntgen による X 線の発見 [3] 以降, 物質に対する高い透過性, 原子スケールの短波長性を生かし, 物質内部の構造の可視化, 元素識別, 生体分子や結晶構造の原子空間分解能測定等, X 線顕微技術もまた科学技術の発展に欠かせない技術となっている. 第 3 世代放射光施設等, 光源性能の発展に伴ってその測定対象も広がり続けている.

近年, アメリカのスタンフォード国立加速器研究所に位置する Linac Coherent Light Source (LCLS) [4] や日本の理化学研究所放射光科学総合研究センターに位置する SPring-8 Angstrom Compact free-electron LAsers (SACLA) [5] が線形加速器と長尺アンジュレータを用いて, 自己増幅自然放射(self-amplified spontaneous emission, SASE)の原理に基づき硬 X 線領域の X 線自由電子レーザー(X-ray free-electron lasers, XFELs)の発振に成功し, ユーザー利用が始まっている. XFEL は第 3 世代放射光施設と比べ約 10 億倍の輝度, ほぼ完全な空間コヒーレンスを有する, パルス時間幅が約 10 fs の超短パルス光源である. このような極めて短いパルス時間幅においては, サンプル中の原子はほとんど動かないという事が分子動力学計算により予測されており [6], 放射線損

傷による分解能の制限を突破したタンパク質の構造決定 [7, 8], 非晶質生体試料やナノ材料のナノメートル分解能における可視化 [9–12] 等, X 線顕微技術に更なる発展がもたらされている. 更に, 高精度集光ミラーの利用により 10^{20} Wcm^{-2} を超えるパワー密度も実現しており [13, 14], 2 光子吸収 [15] や可飽和吸収 [16], 原子準位レーザーの発振 [17] 等, X 線領域における非線形光学現象の観察にも至っている.

化学反応や格子振動, 相転移中に生じるフェムト秒からナノ秒スケールにおける電子・原子の超高速ダイナミクスの解明は, XFEL の応用研究として最も期待されている対象の一つである. XFEL を用いた時間分解研究に対する実験手法として, これまで“光学ポンプ・XFEL プロブ”手法が広く利用されている. 近赤外から近紫外域の波長を有する光学ポンプパルスによって価電子帯の電子状態の変化を誘起し, そのダイナミクスを, 時間遅延を有して照射した XFEL プロブパルスによって追跡する手法である [18–20]. その他のアプローチとして, 2 つの XFEL パルスを用いた“XFEL ポンプ・XFEL プロブ”手法も考えられる. 本手法により, クーロン爆発等, 内殻励起やその後生じる多重イオン化に起因したダイナミクスの測定が可能となる [21]. 更に, 2 つの XFEL パルスを用いることで, 例えば X 線光子相関分光法 (X-ray photon correlation spectroscopy, XPCS) を利用して, 固体やプラズマ中の自発的な原子の揺らぎを直接的に測定可能となる [22].

ここで, 2 つの XFEL パルスを発生させる為の 2 つのアプローチを紹介する. 1 つは加速器ベースの手法であり, もう一方は光学ベースの手法である. 加速器ベースの手法として, 2 つのアンジュレータ区画間に電子バンチ迂回用のシケインを配置することで, 1 つの電子バンチから遅延時間可変な 2 つの XFEL の発生を可能とした“split-undulator”手法 [23, 24] と, 遅延を有する 2 つの光学パルスレーザーを用い, フォトカソードによって 2 つの電子バンチを発生させる“twin-bunch”手法 [25] が挙げられる. “split-undulator”手法は原理的に線形加速器によるジッターの影響を受けない為, アト秒 (10^{-18} s) の時間精度が得られるものの, アンジュレータ長が本来の半分となる為, 高強度かつ安定な XFEL の発振が難しい. “twin-bunch”発振は高強度な 2 つの XFEL パルスが得られるが, 線形加速器のジッターの影響が避けられず, 時間精度は数 fs に制限される. いずれの手法においても波長の異なる 2 つの XFEL パルスの発振が可能である. しかしながら, 相対論的な速度で飛来する電子バンチの, 遅延発生の為の迂回距離が制限されることや, 2 つの電子バンチを同時に加速可能な遅延時間が制限される事により, 現状 100 fs を超える遅延時間の生成は報告されていない. 1 つの電子バンチ中にマイクロバンチを発生させる“バーストモード”によってナノ秒の遅延時間の発生が計画されているが [26, 27], ピコ秒からナノ秒のギャップを埋める必要がある.

光学ベースの手法である XFEL パルスの分割・遅延光学系は, 2 つの XFEL 発生に対して一味違った可能性を有している. 分割・遅延光学系はビーム分割素子と 2 つの遅延パス, そしてビーム結

合素子とで構成される。遅延時間は 2 つの遅延パスの光路長差を変化させることで制御される為、“split-undulator”手法と同様、原理上究極的な時間精度が達成される。可視光域においては一般的な光学系であり、マッハツェンダー型の干渉計等、広く利用されているものの、極端紫外以下の、物質の屈折率が負となる波長域においては特別な素子が用いられている。

極端紫外から軟 X 線までの波長域においては、反射型の素子を利用した分割・遅延光学系が報告されており [28–30], ここではドイツの軟 X 線 FEL 施設である FLASH に導入されている、斜入射型の全反射ミラーを用いた分割・遅延光学系 [29] に関して簡単に触れる。入射パルス光はミラーのエッジにおいて反射光と透過光とに空間的に分割(波面分割)され、光路長可変パスと固定パスとを通過して、同じくミラーエッジ部を利用して同一光軸上に再結合される。全反射を利用した波面分割により、元々の光学パラメータを保存したまま可干渉な 2 つのパルスに分割される為、時間コヒーレンス等の光子診断にも用いられている [29, 31]。硬 X 線域において、全反射が生じる臨界角は数 mrad と小さくなることから、大きな遅延時間を実現するには非常に巨大な光学系が必要となる。従って、新たな光学素子、光学配置を用いた分割・遅延光学系の開発が必要不可欠である。

1.2 硬 X 線領域における分割・遅延光学系

本節において、硬 X 線への適用を目指して提案された分割・遅延光学系を紹介する。これまで提案された分割・遅延光学系は、多層膜ミラーに基づく系、回折格子に基づく系、そして結晶素子に基づく系の 3 種類に大別される。それぞれのメリット・デメリットを解説する。

1.2.1 多層膜ミラー

本項では、Röling らによって提案された、斜入射型の多層膜ミラーに基づいた分割・遅延光学系 [32] に関して解説する。本光学系は前述した全反射ミラーに基づく分割・遅延光学系と基本的には同じ原理、光学配置を適用し、硬 X 線パルスの分割、同一光軸上への再結合を行う。ミラー表面に多層膜をコーティングすることで、Bragg 条件、

$$2d \sin \theta_B = n\lambda \quad (1.1)$$

を満たすように、全反射と比べより大きな入射角において反射が生じる。ここで、 d は多層膜の周期(結晶の場合、格子面間隔)、 θ_B は Bragg 角、 n は Bragg 回折の次数、 λ は波長を示す。多層膜ミラ

ーはこれまで、高フラックスなモノクロメータ [33] や sub 10 nm 集光 [34] に用いられており、硬 X 線に対しても一般的な光学素子となりつつある。本光学系では最大 64 mrad (3.6°) の Bragg 角が用いられている。この大きな反射角によって、比較的小型の光学系でもピコ秒を超える遅延時間の生成が可能となる。更に、それぞれのミラー上に様々なエネルギー範囲に最適化したいくつかの多層膜を構築することで、1 つのシステムで 5–20 keV に渡る広い波長範囲をカバーすることが計画されている。Bragg 条件を満たすバンド幅は有限となるものの、通常、典型的な SASE XFEL のバンド幅である $\Delta E/E_0 \sim 5 \times 10^{-3}$ よりも広いバンド幅で条件が満たされる為、全反射ミラー利用時と同等の効率が実現される。ただし、ミラーエッジ部からの散乱波との干渉や、平面ミラー上の形状誤差による空間プロファイルへの影響が懸念されている。

1.2.2 回折格子

本項では、David らによって開発された回折格子に基づく分割・遅延光学系 [35] を紹介する。本光学系はわずかに格子間隔の異なる数多くの回折格子(分割格子)を用いることで、0 次(透過)の高強度なポンプパルスと、それぞれの分割格子において発生する ± 1 次の回折プローブパルスとに分割する。 $+1$ 次の分割パルスは、対応する分割格子の半分の格子間隔を有する回折格子(結合格子)によってサンプル上においてポンプパルスと空間的に再結合される。それぞれの分割パルスは有意な角度差を有しており、シグナルの分離が可能となる。また、わずかに間隔の異なる結合格子を -1 次の分割パルスに対して適用することで、ポンプパルスとは異なるサンプル領域へと供給され、ポンプされていない“参照データ”として利用可能となる。本光学系では 1 つの入射 XFEL パルスから複数の遅延時間におけるデータが取得可能である。それぞれの遅延時間精度は回折格子の作製精度によって決定され、誤差 0.5% 以下という高い時間精度が保証される。また、構造的に XFEL パルスの時間プロファイルへの影響も無く、回折による実効的な時間分解能の低下(パルス時間幅の拡大)が生じないという利点も有している。ただし、本光学系は最適化された実験セットアップが必要不可欠であり、集光ミラー等との共用が困難である。また、測定可能な遅延時間はセットアップと X 線の波長によって決定され、原理上遅延時間ゼロへのアクセスは不可能である。最大遅延時間は回折格子の最小格子間隔に依存しており、現状 15–20 nm が限界であることから、10 keV 付近の波長域においては 1 ps の遅延時間は実現していない。

1.2.3 結晶素子

本項では、結晶素子に基づく分割・遅延光学系に関して解説する。格子面間隔がオングストロームスケールの完全結晶による Bragg 回折によって、式(1.1)から 10° を越える Bragg 角が実現し、100 ps を超える大きな遅延時間を生成可能である。このような大きな反射角によって、分割された光子ビームの特性評価をそれぞれ独立的に測定可能となり、精密な実験データの解析が実現される。また、本光学系は単色性の高い(バンド幅の狭い)2 つの XFEL パルスを発生可能である為、X 線回折実験の分解能の向上や、XPCS 実験において、回折パターンの高角領域におけるビジビリティの向上が期待される。

これまで提案されている光学系は薄い結晶による回折波と屈折波(もしくは透過波)へのビーム分割に基づいている Bragg (反射)型の結晶素子を用いることで、原理上回折による波面の影響はほとんど無く、X 線の進入深さが深いことから、ミラーと異なり形状誤差の影響も小さい。また、バンド幅の広い回折面を適用することで、パルス時間幅の拡大も最小限に抑制可能である。本項では世界に先駆けて報告された Roseker らによる分割・遅延光学系 [36–38] と、Stetsko らによる後方散乱結晶を用いた光学系 [39] とを紹介する。

Roseker らによって開発された分割・遅延光学系は 8 つの独立した結晶素子によって構成されており、結晶の Bragg 回折によって鉛直散乱構造を実現することで、限られたスペース内で最も大きな遅延時間を生成可能である。各分割パルスはそれぞれの遅延パス内において同回数の反射、屈折(もしくは透過)を経て、元々の光軸と平行な同一光軸上に再結合されることから、強度の等しい分割パルスが得られ、他の光学系との共用も可能である。各遅延パスの光路長は 4 つの結晶(各パスから 2 つずつ)が固定された“I”字の直進ステージを鉛直方向に移動させることで調整される。開発された装置において、最大で約 2.6 ns の時間差を有する 2 つの X 線パルスの発生が確認されている。当初、ビーム分割には Laue(透過)型の結晶が用いられていたが、Bragg 型結晶との Bragg 角の誤差や、波面への影響を考慮し、現在では全ての結晶に Bragg 型を採用している。

シンプルな遅延時間調整を可能とする鉛直散乱構造を実現する為、X 線のエネルギーとバンド幅は利用する格子面によって離散的に限定される。例えば、Si(511) 利用時は X 線のエネルギー 8.39 keV、バンド幅 $\Delta E/E_0 \approx 8.3 \times 10^{-6}$ となり、Si(422) 利用時はそれぞれ 7.91 keV、 $\Delta E/E_0 \approx 1.4 \times 10^{-5}$ となる。これらの高い単色性は大きなコヒーレンス時間をもたらすことから、より広い散乱角範囲において高いビジビリティを有する回折パターンを発生可能であり [40]、XPCS 実験に対して有効である。ただし、8 つの独立した結晶によって構成されていることから、アライメントやオペレーションが複雑となり、小さなバンド幅も同様に、効率という面では妥協せざるを得ない。

Stetsko らによって, Bragg 角が 90° 近い格子面を利用することで, 3 つの結晶により構成される分割・遅延光学系が提案されている. ビームの分割, 再結合を担う結晶 C_0 によって反射波と屈折波とに分割されたパルスは, それぞれ結晶 C_1 , C_2 による後方散乱によって再び C_0 へと戻され, 元々の光軸とは異なる光軸上へ再結合される. 結晶材料としてダイヤモンドを選ぶことで, 反射率の向上並びに, 比較的厚い結晶においても Bragg 条件を満たさない波長域の X 線に対して高い透過率が得られ, 他の実験との同時利用が可能である.

本光学系においても, 高次の回折面が利用されている(回折バンド幅が小さい)ことから効率の低下は免れない. Stetsko らはより高い効率を得るため, スペクトルの重複しない 2 つの分割パルスを発生させる 2 色分割を提案している. また, スペクトルの重複した分割パルスを発生させる単色分割の場合, 結晶 C_0 に高い厚み精度が要求されるが, 2 色分割の場合は, Bragg 回折バンド幅内において高い反射率, それ以外の波長域に対して高い透過率さえ得られれば良い為, 広い厚み範囲が許容され, 厚み分布に対しても影響が小さい.

単色分割の為には, 結晶 C_1 と C_2 に対して Bragg 角 90° が求められるが, 2 色分割を実現する為には, 90° からわずかに Bragg 角をずらす必要がある. 同一の結晶, 光学配置において両分割原理を実現する為, 彼らは結晶 C_1 と C_2 の温度を調整し, 格子定数をわずかに変化させることを提案している. ただし, 90° からわずかにずれた反射角は遅延変更時にビームの位置ずれを生じさせる. 論文の中では問題視されていないが, 共用する集光光学系に制限をもたらす.

これら結晶素子を用いる光学系において考慮すべき事として, バンド幅の制限によるパルス時間幅の拡大が挙げられる. バンド幅(周波数)と時間とはフーリエ関係が成り立ち, Bragg 回折のバンド幅に対する時間不確定性の関係により,

$$\Delta t \approx \frac{2.76\hbar}{\Delta E} \quad (1.2)$$

から, 回折によるパルス時間幅の拡大が見積もられる [41]. 例えば, 8.39 keV に対する $\text{Si}(511)$ バンド幅 $\Delta E \approx 70 \text{ meV}$ に対しては $\Delta t \approx 26 \text{ fs}$, 8.51 keV に対する $\text{C}(422)$ バンド幅 $\Delta E \approx 44 \text{ meV}$ に対しては $\Delta t \approx 41 \text{ fs}$ となり, XFEL のパルス時間幅と同等, もしくはより大きな時間幅となり, 実効的な時間分解能の低下が生じる. 時間幅の拡大を 10 fs 以下に抑える為には, $\Delta E > 200 \text{ meV}$ を満たす回折面を利用することが望ましい. また, そのような広いバンド幅は, SASE XFEL のような比較的広いバンド幅を持つ光源に対して, 効率の向上ももたらす.

Table 1.1. Comparison of reported split-and-delay optical systems.

	Multilayer mirrors	Gratings	Crystals	
	Roling <i>et al.</i>	David <i>et al.</i>	Roseker <i>et al.</i>	Stetsko <i>et al.</i>
Delay-time range	○ ^a	△	◎	◎
Throughput	◎	○ ^b	△	△
Spatial profile	△	○	○	○
Temporal profile	○	◎	△	△
Wavelength tunability	◎	○ ^c	△	△
Setup flexibility	◎	△	◎	○
Merit of self-seeding	△	△	◎	◎

^aThe maximum range is ± 20 ps at $E_0 = 5$ keV.

^bThe throughput becomes lower with larger delay times.

^cA delay time being larger than 1 ps can be accessed only at $E_0 < 5$ keV.

各分割・遅延光学系の特徴を Table 1.1 にまとめる. 本研究では, 大きな遅延時間に注目し, 結晶素子に基づく新たな分割・遅延光学系を提案する. 結晶材料として, 高品質かつ大きな単結晶が入手可能なシリコンを用いる. Roseker らの光学系と同様に高い汎用性は確保しつつ, チャンネルカット結晶を利用することで構造的に安定な光学系を構築し, 光学素子のアライメントやオペレーションの簡易化を実現する. また, あらゆる軸に対して調整自由度を許す事で, 波長やバンド幅の自由度を高める. この調整自由度により 10 keV 付近のエネルギー範囲に対しても低次の回折面が利用でき, 効率の向上, パルス時間幅拡大の抑制が可能となる. 低次の回折面を利用したとしても, SASE 利用時には数桁の効率低下は免れないが, 昨今, セルフシーディングと呼ばれる手法により, LCLS において単色性の高い XFEL の発振に成功している [42]. そのバンド幅は $\Delta E/E_0 \sim 5.0\text{--}14 \times 10^{-5}$ と, 結晶による Bragg 回折バンド幅と同等な値が報告されている [43]. 強度安定性等の課題は残っているものの, 将来的には一般的に利用されと考えられ, 結晶素子を用いた光学系に対する貢献は大きい.

1.3 主要光学素子の開発動向

提案する分割・遅延光学系の実現には, 高い結晶完全性を有する, 極薄シリコン結晶とチャンネルカット結晶が必要不可欠である. 本節において, それぞれの素子の世界的な開発動向を紹介する.

研磨技術の向上により厚み数 μm のシリコンウエハが市場に見られるが、全面が薄い場合、自重でさえも歪んでしまい、反射波に対して大きな波面の乱れがもたらされる。また、機械的な作用の働く加工法では結晶性の乱れを完全に防ぐことは困難であり、純化学的なエッチング手法の利用が大前提となる。

Roseker らは保持用の厚い領域は確保しつつ、ある一面のみをウェットエッチングにより楔形に薄化した [37]。しかし、厚み $20\ \mu\text{m}$ 以下の領域においては高い結晶完全性は実現されておらず、また原理的に厚み分布の抑制も不可能である。

Feng らは Norcada Inc. との共同研究により、SOI (silicon-on-insulator) 製造技術を応用した、厚いサポート領域を有するシリコンメンブレンを開発した [44]。熱酸化膜層を介してサポートウエハとスプリッタウエハとを張り合わせる。スプリッタウエハ部を研磨により目的厚みまで薄化した後、サポートウエハの一部をウェットエッチングにより除去する。最後に残った酸化膜層をフッ酸処理により除去する。Laue 配置の白色 X 線トポグラフィーにより欠陥の導入が無いことは示されているが、残留した酸化膜層由来の膜応力によってわずかに歪んでいることが確認されている。

チャネルカット結晶は 1 つの素子中に対向した 2 つの面を持つ結晶素子である。それぞれの格子面には完全な平行性が保証されている為、偶数回反射された X 線の光軸は入射 X 線の光軸と完全に平行となる。その利便性故に、様々な実験においてモノクロメータとして利用されている [45]。しかし、一般的に反射面となる内壁部にはスクラッチや欠陥等の多数の歪みが残存していることが多く、また過分なエッチングによる表面平坦性の悪化も確認される。そのような結晶学的ダメージや表面粗さは反射 X 線に対して波面やスペクトルの乱れをもたらす為、XPCS やコヒーレント回折イメージング (coherent diffractive imaging, CDI) 等、正しく規定された波面を要求するコヒーレント回折実験には用いられてこなかった。

近年、高品質チャネルカット結晶モノクロメータを導入したコヒーレント回折実験用ビームライン [46] や、チャネルカット結晶専用の高精度研磨技術 [47] が報告されているものの、いずれにおいても結晶学的なダメージの完全除去には至っていない。

本研究では、大気圧プラズマを用いた独自の加工手法に基づき、オールシリコンの薄い完全結晶の開発を試みる。また、本手法をチャネルカット結晶の内壁面加工へと拡張させ、表面平坦性、粗さの悪化無く、残存する結晶学的ダメージの除去を行う。

1.4 本論文の目的と構成

本研究では、2 つの XFEL パルスを用いて、フェムト秒から数百ピコ秒に渡る時間領域のダイナ

ミクス測定を実現する為、主要な結晶素子も含め、新たな分割・遅延光学系の包括的な開発を目的とする。シンプルかつ安定な光学配置を考案し、広い X 線波長域をカバーする。集光光学系と共用した際にも、簡易に分割ビームの空間的な重複を達成する為のアライメントに関して議論し、素子のアライメント、オペレーションの容易なシステムとしての確立を目指す。本論文はこれらの目的を達成する為に行われた一連の研究をまとめたものであり、全 6 章で構成されている。

第 2 章において、提案する分割・遅延光学系の結晶配置や設計指針、特徴を示す。そして結晶素子への要求に関して記載し、分割・遅延光学系の性能の見積もりを行う。

第 3 章において、独自の結晶加工手法である PCVM (Plasma Chemical Vaporization Machining) に関して特徴を解説する。そして極薄オールシリコン結晶の開発やチャネルカット結晶の内壁処理の具体的なプロセスに関して述べ、SPring-8 における結晶性評価結果を示す。

第 4 章において、光学素子の容易かつ精密なアライメント、オペレーションを目指し、集光光学系と共用時の有効なアライメント手法に関して議論する。各調整ステージに求められる分解能を、幾何学、光線追跡計算を用いて導出する。そして波動光学計算によって幾何学的視点からの見積もりの有効性を示す。

第 5 章において、開発した分割・遅延光学系の性能評価実験に関して記述する。SPring-8 において考案したアライメント手法を実証し、遅延時間調整の影響や光学系のスループットを調査する。また、SACLA において行った実験に関しても紹介する。分割・遅延光学系を用いた時間分解測定に向け、強度や遅延時間測定の実現可能性を検討し、分割ビームの集光特性を示す。

最後に第 6 章において、本研究で得られた成果を総括し、将来展望を述べる。

第 2 章

分割・遅延光学系の設計

2.1 緒言

Roseker らにより開発された分割・遅延光学系 [36, 37] は既に LCLS においてコミッショニングが行われているが [38], 難航が続いている. 要因の 1 つとして, 8 個もの独立した結晶を用いている事, また光路長変更の際に両遅延パスに渡る 4 つの結晶を動かす点が挙げられる. 全ての素子が独立していることから, アライメントの際の“基準”を失うこととなる. また, ステージによる移動は結晶角度の変化を余儀なくし, 再アライメントが必要となる. 両遅延パスの結晶を動かすことで, 再び基準を失い, アライメントやオペレーションが混迷を極める. 提案する光学系において, チャンネルカット結晶を用いることで基準を確保し, 光路長の調整は 1 つの遅延パスのみに対して行うことでアライメント, オペレーションの簡略化を達成する. 本章では分割・遅延光学系の光学配置を示し, 特徴や設計指針を示す. そして本光学系を構築する為に必要不可欠な結晶素子, 特にビームスプリッタとして機能する極薄結晶に対する要求を動力学理論(付録 A, もしくは [48, 49] を参照)に基づき検討する. 実際に制御系を構築した上で, 期待される性能を紹介する.

2.2 分割・遅延光学系の光学配置

提案する光学配置を Fig. 2.1 に示す. 光路長可変(upper)パスにはビームスプリッタ・ビームマージャー(BS・BM)として機能する 2 つの極薄結晶と 2 つの厚い結晶(BR1・BR2)が配置されている. 光路長固定(lower)パスには 2 つのチャンネルカット結晶(CC1・CC2)が用いられている. 2 つの BR 結晶をそれぞれ X 線パスと平行にセットされた $2\theta_1$, $2\theta_2$ 軸に沿って直線的に移動させることで, upper パスの光路長を変化させ, 2 つの分割パルス間の時間差を調整する. 本光学配置の最大の特徴として, lower パスをチャンネルカット結晶で構成した点が挙げられる. チャンネルカット結晶により偶数回反

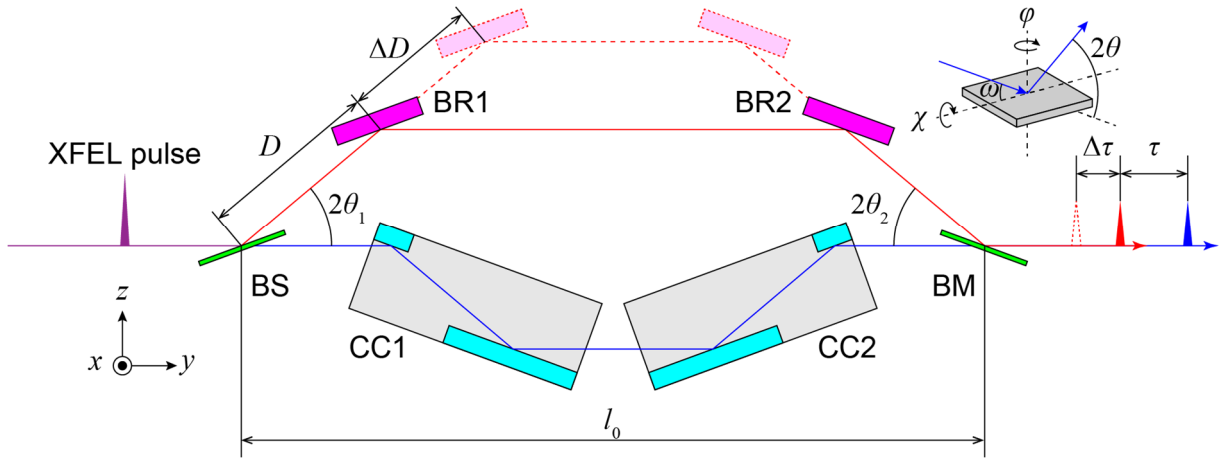


Fig. 2.1. Schematic diagram of the optical layout of the split-and-delay optical system. Crystals BS, BRs, BM, and CCs represent the beam splitter, the beam reflectors, the beam merger, and the channel-cut crystals. Angles of linear translation arms to mount BR1 and BR2 are shown as $2\theta_1$ and $2\theta_2$, respectively. Right-upper figure shows the major four rotation axes in X-ray diffraction.

射された X 線の進行方向は、完全に平行性の保証された格子面を基準に反射が生じる為、入射 X 線との平行性が保たれる。また、Fig. 2.1 のように 2 つのチャネルカット結晶を $(+, -, -, +)$ 配置とすることで、lower ビームの光軸位置も保存させることが可能である。光学素子のアライメントの際、lower パスに対して最初の調整以降の再アライメントは行う必要が無い。従って、実験期間中常に“基準”となり得るビームが安定的に供給される事となり、upper パスのアライメントや光学系のオペレーションの劇的な簡略化が可能である。

結晶 BR1, BR2 の移動軸角度である $2\theta_1, 2\theta_2$ も含め、全結晶の角度 (ω, χ) を調整可能とする。この角度の自由度はこれまで提案されている結晶素子に基づく分割・遅延光学系 [36–39] には無い特徴であり、利用可能な X 線の波長やそのバンド幅に対して、幅広い選択肢が許容される。更に、本光学系において両遅延パスは互いに独立している為、加速器ベースの手法との共用により、大きな時間差を有する 2 色 XFEL の生成が可能である。

2.2.1 回折面の検討

Table 2.1 に SACLA BL3 の主要なパラメータをまとめる [50]。SACLA は 10 keV を基準として、4.5 から 20 keV に渡る幅広い波長域において XFEL の発振が可能である。本項では 10 keV にター

Table 2.1. Characteristics of SACLA XFEL pulses at BL3 [50].

Photon energy range	4.5–20 keV
Pulse energy	0.31–0.78 mJ/pulse @10 keV
Divergence	1.9 μ rad FWHM @10 keV
Beam size	190 μ m FWHM @EH1, 10 keV
Pulse duration	6–30 fs FWHM
Bandwidth ($\Delta E/E_0$)	$1\text{--}5 \times 10^{-3}$

Table 2.2. Comparison of various diffraction planes at 10 keV.

Diffraction plane	Bragg angle	Bandwidth	Expansion of duration ^a	Delay on upper branch ($D = 0.5$ m)
Si(111)	11.4°	1300 meV	1.4 fs	0.26 ns
Si(220)	18.8°	560 meV	3.2 fs	0.70 ns
Si(311)	22.2°	270 meV	6.6 fs	0.96 ns
Si(400)	27.2°	240 meV	7.4 fs	1.39 ns
Si(331)	29.8°	130 meV	14 fs	1.65 ns
Si(422)	34.0°	140 meV	13 fs	2.09 ns
Si(511)/(333)	36.4°	83 meV	21 fs	2.35 ns
Si(440)	40.2°	91 meV	20 fs	2.78 ns

^a The expansions were calculated from the Fourier relation between time and frequency, Eq. (1.2).

ゲットを設定し, 利用する回折面, そして分割・遅延光学系の許容波長域に深く関連するチャネルカット結晶の寸法を決定する.

各回折面利用時の 10 keV における Bragg 角とバンド幅 (Darwin 幅), 式 (1.2) から見積もられる時間幅の拡大時間を Table 2.2 に示す. SACLA のパルス時間幅は, SASE スペクトルのスパイク幅から 10 fs 以下である事であることが予想されており, 更に約 4.5 fs までは圧縮が可能であると見積もられている [51]. また, パルス強度の統計評価から, 8 keV において 5.2 fs という報告もある [52]. 従って, パルス時間幅の拡大は 5 fs 以下であることが望ましく, Si(111) もしくは Si(220) に絞られる. ここで, 達成可能な遅延時間に関しても検討する. 直進する光に対する upper ビームの遅延時間は以下のように見積もられる.

$$\Delta\tau_{\text{up}} = \frac{2D(1 - \cos 2\theta_{\text{B}})}{c} \quad (2.1)$$

ここで、 $c = 2.998 \times 10^8$ m/s は光速であり、 D は隣接する極薄結晶と厚い結晶との間の距離である。大きな遅延時間は D を大きくすることで得られるが、ビームラインへの導入を考慮する際、コンパクトな光学系であることが重要である。ここでは BS-BM 間の距離 l_0 が 1 m 以下である光学系を考え、最大の D を 0.5 m とした際に得られる最大遅延時間を Table 2.2 に示す。Si(111) と Si(220) を比較すると、400 ps 以上の開きがある。また、1 ns の遅延を達成する為には、Si(111) の場合最低でも $D = 1.9$ m が必要であるのに対し、Si(220) の場合 $D = 0.7$ m で十分である。実際には lower パスにおいても遅延が生じる為、更に大きな D が必要となり、将来性を考慮すると Si(111) は適さない。

Si(220) を利用する際、効率という面でもメリットは大きい。Roseker らや Stetsko らによる分割・遅延光学系 [36–39] はバンド幅 100 meV 以下の回折面を利用しているが、Si(220) のバンド幅は 10 keV において約 560 meV であり、単純に考えて 5 倍以上の効率が得られる。また、Stetsko らが提案する 2 色分割による高効率なビーム分割も、放射光施設で広く使用されている Si(111) モノクロメータやセルフシーディングにより得られるバンド幅 $\Delta E \sim 0.5\text{--}1.4$ eV FWHM [43] の X 線に対しても十分適用可能である。

2.2.2 チャネルカット結晶寸法の検討

以上の理由から、本研究では Si(220) 回折の利用を検討する。その際、lower パスの許容可能な X 線エネルギー範囲はチャネルカット結晶の寸法によって決定される。ここで、Fig. 2.2 のように寸法に制限を設ける。短辺中心を回転軸に取ることで、利用可能な X 線エネルギーの下限(E_{min})、上限(E_{max})は式(1.1)よりそれぞれ

$$E_{\text{min(max)}} = \frac{hc}{2d \sin \theta_{\text{max(min)}}} \quad (2.2)$$

と求められる。ここで h はプランク定数、 $\theta_{\text{max}}(\theta_{\text{min}})$ は最大(最小)Bragg 角であり、 d は 1.9202 Å となる。チャネルカット結晶は結晶性の極めて高い FZ (floating zone) 法で成長されたシリコンインゴットから切り出される。一般的な FZ インゴットの径は約 4 インチ (~ 100 mm) である。紙面奥行き方向となるチャネルカット結晶の高さを H とおき、インゴットの最外部 5 mm を使用しないとすると、ギャップ幅 G の制限として以下が与えられる。

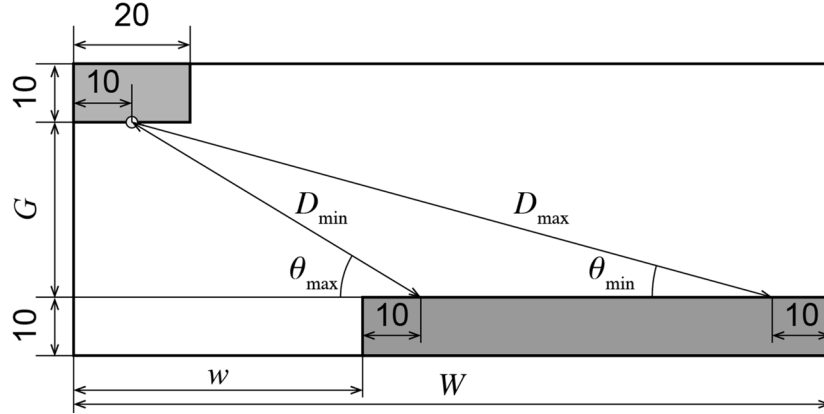


Fig. 2.2. Dimensions of CC1. Those of CC2 are mirror symmetry. Unit is mm.

$$(G + 20)^2 < 90^2 - H^2 \quad (2.3)$$

結晶の保持等を考慮し, H は 70 mm とした. 従って $G < 36$ mm の制限が生じ, 本研究では $G = 30$ mm を採用した. また, 全波長範囲に渡って遅延時間 0 を生成する為には, D を CC 内の反射点間の最小距離 $D_{\min}$ 以下に設定する必要がある. しかし, D が小さすぎる場合, 極薄結晶の制御系と BR 結晶の制御系との干渉が問題となるため, $D_{\min} > 60$ mm が望ましい. 従って $G = 30$ mm より, 結晶端から長辺部までの長さ $w > 52$ mm という制限が設けられ, $w = 55$ mm を採用した. 長手方向の結晶長さ W に関しては, インゴットからの制約により今回は 130 mm が限界であった為, $\theta_{\max}$, $\theta_{\min}$ はそれぞれ 28.6° , 15.3° となった. 従って, lower パスの許容波長範囲は, 式(2.2)より, $6.74 \text{ keV} < E_0 < 12.27 \text{ keV}$ と求まる. 第 3 章で詳細を記すが, チャンネルカット内壁面の大気圧プラズマ処理時の技術的制約等により, 実際は

$$6.5 \text{ keV} < E_0 < 11.5 \text{ keV}$$

となった. この波長範囲は SACLA の主要なエネルギー範囲をカバーしている. 更に, 同じ結晶を用いて高次の回折面である Si(440) を利用することで, $13 \text{ keV} < E_0 < 23 \text{ keV}$ をカバーでき, SACLA の特徴の一つである短波長領域においても本光学系は有効である.

2.3 遅延時間範囲と分解能

神津精機製の自動ステージを用い, 分割・遅延光学系を組み上げた. 写真と概略図を Fig. 2.3 に示す. 全コンポーネントは安定な石定盤の上に配置されている. 極薄結晶 (BS・BM) とチャネルカット結晶 (CC1・CC2) の X 線入射角 (ω) を高耐荷重の xz 直進ステージ (KHI-4SK) に固定された高分解能 ω - 2θ ゴニオメータ (KTG-22) によって調整する. BR 結晶の ω 調整用回転ステージ (RA04A-W) は, 極薄結晶用ゴニオメータの 2θ 面に接続している直進ステージ (XA07A-L2) に固定した. 極薄結晶並びに BR 結晶の χ は, 各 ω ステージの上に固定されたスイベルステージ (SA05B-RB, SA04A-RT) により調整する. チャネルカット結晶の χ は水平方向にわずかなビーム位置の変動 (< 0.1 mm) しかもたらさない為, 手動で調整した. 各ステージの分解能を Table 2.3 に示す.

生成可能な遅延時間範囲に直結するパラメータは, 2θ 軸に沿った直進ステージの移動範囲である. 今回使用した直進ステージの稼動範囲は 70 mm であり, 6.5–11.5 keV の範囲で遅延時間 0 を生成する為, $57 \text{ mm} < D < 127 \text{ mm}$ となるよう配置した. 分割ビームが理想的な光路をとる場合, lower ビームに対する upper ビームの遅延時間は以下のように表される.

$$\begin{aligned} \tau &= t_{\text{up}} - t_{\text{lo}} \\ &= \frac{2D(1 - \cos 2\theta_{\text{B}}^{\text{up}}) - 2D_{\text{lo}}(1 - \cos 2\theta_{\text{B}}^{\text{lo}})}{c} \end{aligned} \quad (2.4)$$

ここで, t_{up} , t_{lo} は upper ビーム, lower ビームの到達時間, D_{lo} は CC1・CC2 における反射点間の距離, $\theta_{\text{B}}^{\text{up}}$, $\theta_{\text{B}}^{\text{lo}}$ は upper パス, lower パスの Bragg 角を示している. なお, D_{lo} はチャネルカット結晶のギャップ幅 $G = 30 \text{ mm}$ を用いて, $0.03 / \sin \theta_{\text{B}}^{\text{lo}} \text{ [m]}$ となる. 式 (2.4) の通り, D の範囲が固定されている為, 遅延時間範囲は両分割ビームの波長に依存する. 最大, 最小遅延時間の波長依存性を Fig. 2.5a に示す. 準単色の XFEL に対して使用する場合 ($\theta_{\text{B}}^{\text{up}} \approx \theta_{\text{B}}^{\text{lo}}$), 遅延時間範囲は典型的に 45 ps に達する. 例を挙げると, 10 keV における遅延時間範囲は -50 から +47 ps となる. 加速器ベースの 2 色発振利用時は, 遅延時間 0 の生成が不可能となる場合があることに注意したい. 例えば, upper ビーム, lower ビームそれぞれの X 線エネルギーを 7 keV, 9 keV と設定した場合, 遅延時間 0 は生成されない.

遅延時間の変化 $\Delta\tau$ は, 式 (2.1) を用いて以下のように表される.

$$\Delta\tau = \frac{2\Delta D(1 - \cos 2\theta_{\text{B}}^{\text{up}})}{c} \quad (2.5)$$

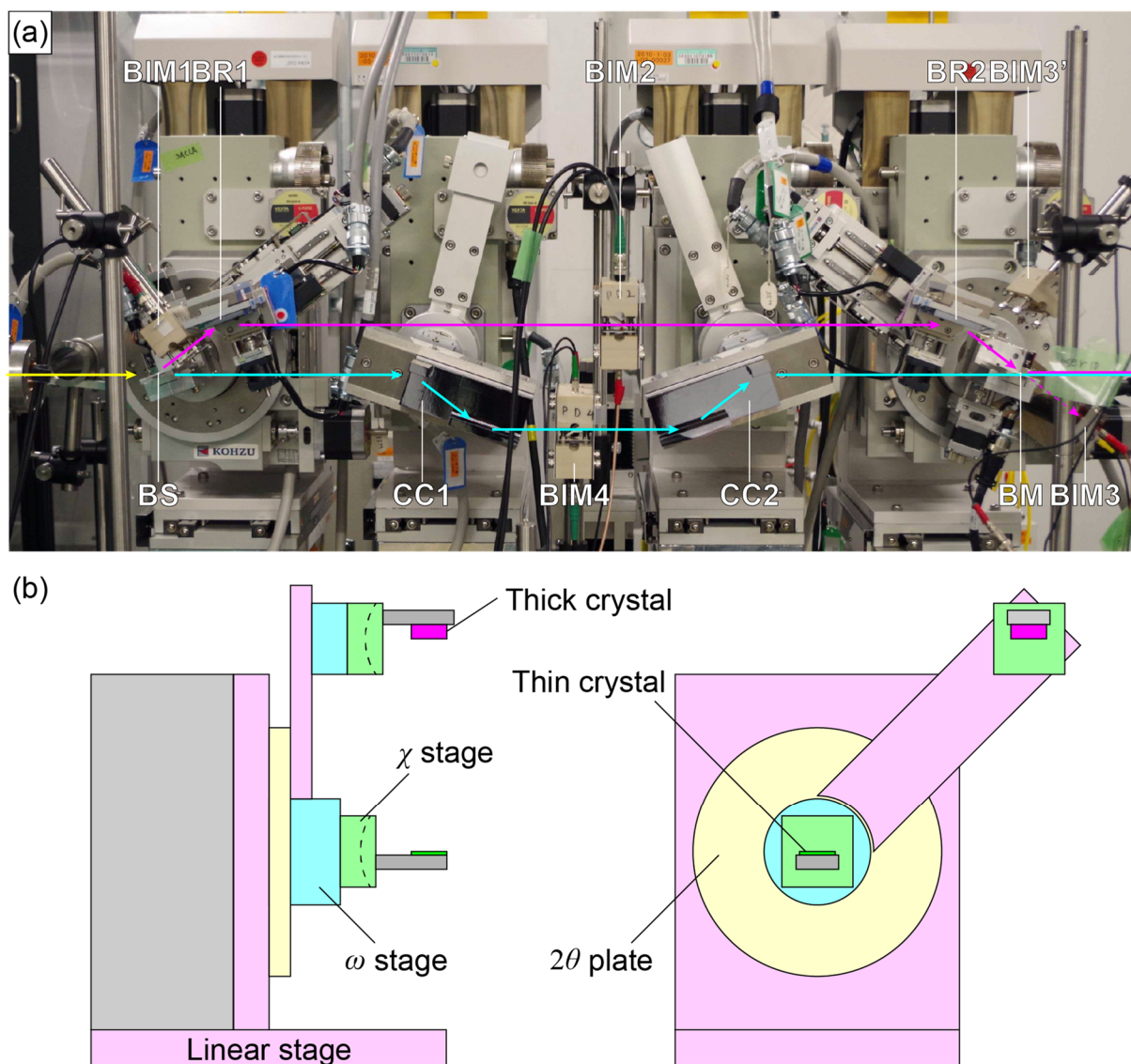


Fig. 2.3. Mechanics of the split-and-delay optics. (a) Picture and (b) schematic view of the mechanics for BS and BR1. BIMs represent beam intensity monitors.

Table 2.3. Resolutions of stages operated in half-step feed mode.

Axis	Stage	Resolution
x, z	KHI-4SK	1.0 μm
D	XA07A-L2	0.25 μm
$\omega_{\text{BS}}, \omega_{\text{BM}}, \omega_{\text{CCs}}$	KTG-22	0.024 μrad
ω_{BRs}	RA04A-W (w/ harmonic gear)	0.70 μrad (0.0004°)
$\chi_{\text{BS}}, \chi_{\text{BM}}$	SA05B-RB	8.4 μrad
χ_{BRs}	SA04A-RT	23 μrad
$2\theta_1, 2\theta_2$	KTG-22	35 μrad (0.002°)

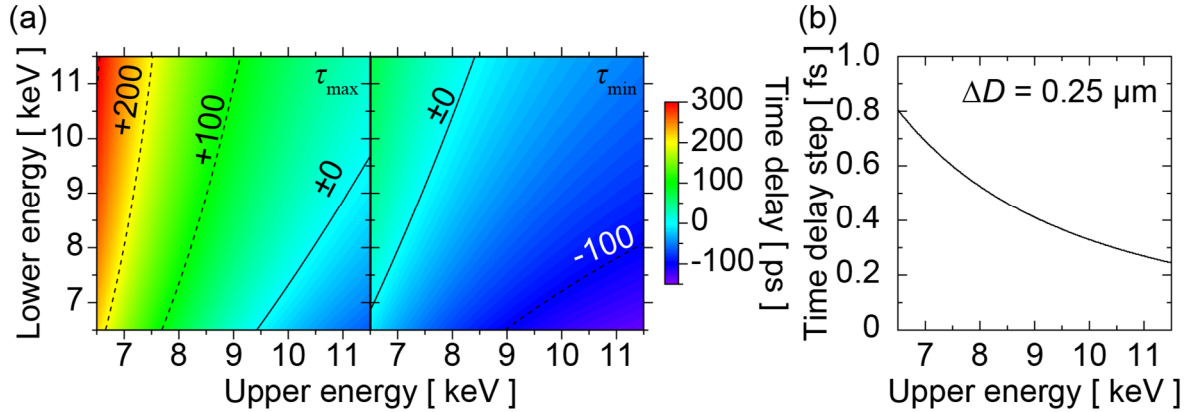


Fig. 2.4. Delay-time ranges and resolutions as a function of photon energies in the split branches. (a) Maximum (left) and minimum (right) delay times with a linear translation range of $57 \text{ mm} < D < 127 \text{ mm}$. (b) Delay-time resolution with the minimum translational deviation $\Delta D = 0.25 \mu\text{m}$.

ここで、 ΔD は BR 結晶の移動量である。Table 2.3 から最小の ΔD は $0.25 \mu\text{m}$ である為、遅延時間ステップは $6.5\text{--}11.5 \text{ keV}$ の範囲において 1 fs 以下となる (Fig. 2.4b)。ただし、分割・遅延光学系により得られる実効的な時間分解能は、分割ビームのパルス時間幅となる。Table 2.2 に示すように、Si(220) 回折によって 10 keV において約 3 fs のパルス幅の拡大が見込まれる。従って、実質の時間分解能は約 10 fs になると見積もられる。

2.4 極薄結晶の要求パラメータ

本節において、極薄結晶に要求される各種パラメータを検討する。最も重要なパラメータは厚みである。動力学理論に基づきビーム分割に求められる厚みと許容幅を見積もる。また、透過光に対する影響として、厚みムラによる位相変化が懸念される。位相差が十分無視可能な厚みムラを空間周波数と含め議論する。

2.4.1 結晶厚みの検討

各回折面における反射、屈折強度、透過率の結晶厚み依存性を調査した。 10 keV における Si(220) 回折の結晶厚み依存性を Fig. 2.5 に示す。完全単色平行光を 1:1 に分割 (単色分割) 可能な結晶厚みを t_{split} と定義する。また、誤差 $\pm 10\%$ を許容可能とすると、Si(220) 回折利用時は X 線の

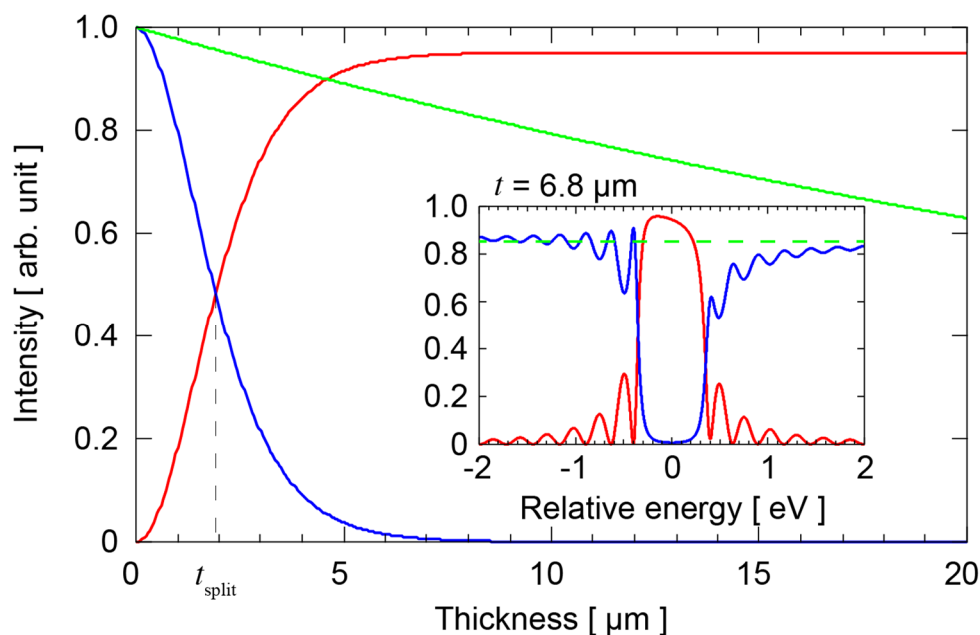


Fig. 2.5. Thickness dependence of Si(220) diffraction at 10 keV. Red and blue show reflection and refraction intensities at the exact Bragg angle, respectively. Green presents transmissivity for a Si plate with a thickness of $t/\sin\theta_B$. Inset shows Si(220) Darwin curves at a thickness of 6.8 μm .

波長に依らず $1.91 \pm 0.16 \mu\text{m}$ の厚みが求められる。様々な結晶面に対して求められる t_{split} とその許容値、そして Si(111) のバンド幅を有する平行入射光に対するスループットを Table 2.4 に示す。Si(220) の場合、両遅延パス合わせて約 17% のスループットとなる。本手法では、ビームスプリッタ結晶に極めて薄い厚みかつ高い厚み均一性が要求される。

ここで、より大きなスループットを得る手法として 2 色分割を紹介する。本手法はビームシェアリング [44] 等を目的として検討されていた手法であるが、我々のグループや Stetsko らによって分割・遅延光学系への有効性が検討された [39]。2 色分割において、スペクトルに重複を持たない 2 つの分割パルスが生成され、単色分割と比べ大きなスループットが得られる。重要な点は、ビームスプリッタ結晶によって、回折バンド幅内において十分な反射を得る事、そして回折バンド幅外において十分な透過を得る事である。従って許容される厚みは単色分割と比べ厚くなり、厚みムラに対しても分割ビーム強度は鈍感となる。ここで、極薄結晶の反射率が厚い結晶の反射率の 80% 以上、10 keV においてバンド幅外の光に対する透過率 T_{out} (Fig. 2.5 緑) が 75% 以上という条件を設ける。透過率 T_{out} は以下のように考える。

Table 2.4. Required crystal thickness for various orders of diffraction at 10 keV. Throughputs were calculated for an X-ray incidence with a Si(111) bandwidth by applying single-color splitting (SCS) and dual-color splitting (DCS) methods. Values in parentheses present throughputs of the upper branch.

hkl	$t_{\text{split}} [\mu\text{m}]$	$t_{\text{DCS}} [\mu\text{m}]$	Throughput w/ SCS	Throughput w/ DCS
111	1.35 ± 0.11	2.2–7.6	35.0% (17.5%)	-
220	1.92 ± 0.16	3.1–12.4	16.7% (8.36%)	52% (30%) @6.5 μm
311	3.41 ± 0.28	5.5–14.6	6.93% (3.47%)	22% (12%) @10.4 μm
400	3.21 ± 0.27	5.2–17.6	6.74% (3.37%)	22% (12%) @10.4 μm
331	5.21 ± 0.44	8.4–19.1	3.25% (1.62%)	10% (5.7%) @15.0 μm
422	4.50 ± 0.38	7.3–21.5	3.77% (1.88%)	12% (6.6%) @13.4 μm
511/333	7.08 ± 0.61	11.4–22.8	1.88% (0.942%)	5.7% (3.3%) @18.9 μm
440	5.90 ± 0.51	9.5–24.8	2.38% (1.19%)	7.5% (4.2%) @17.1 μm

$$T_{\text{out}} = \exp\left(-\frac{t/\sin\theta_B^{\text{up}}}{\mu}\right) \quad (2.6)$$

ここで μ はシリコンの吸収係数であり, $\mu = 133.7 \mu\text{m}$ [53] を用いた. 許容される厚み範囲, そして期待されるスループットを Table 2.4 に示す. スループットを計算する際, 各分割ビームの中心エネルギーは $10000 \pm 0.35 \text{ eV}$ に固定した. Si(220) 回折において, 3.1–12.4 μm の厚みが許容され, 6.5 μm の結晶を用いた際 50%を越えるスループットが得られた. これは Si(422) や(511) を用いる Rosekerらの分割・遅延光学系と比べ 4 から 9 倍高い値となる. ただし, lower ビームの強度は結晶の厚みや X 線のエネルギーに大きく依存する. 特にエネルギーが低い場合, 吸収の影響を大きく受ける.

2.4.2 許容厚みムラの検討

厚み分布による透過光の位相変化を検討する. 計算モデルを Fig. 2.6a に示す. X 線に対する物質の線形屈折率 n を $n = 1 - \delta - i\beta$ と置く. 厚みの異なる 2 点を通じた X 線の位相差 α は

$$\alpha = -2\pi\delta \frac{\delta}{\lambda \sin\theta_B} \quad (2.6)$$

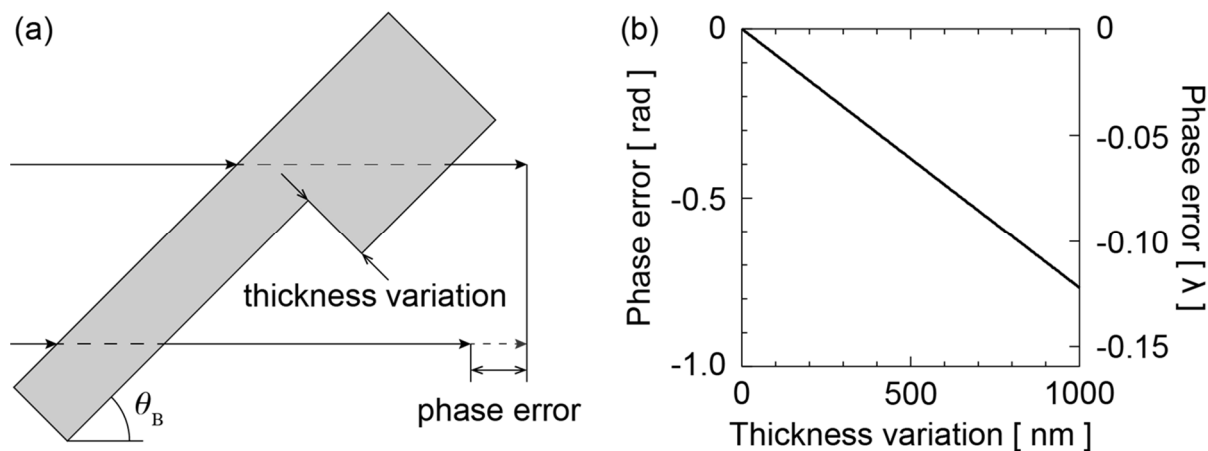


Fig. 2.6. Estimation of phase errors due to thickness variations.

(a) Calculation model and (b) results at 10 keV.

と表される. ここで, δt は 2 点間の厚み差である. 10 keV における位相変化の厚みムラ依存性を Fig. 2.6b に示す. なお, 他の波長においてもほぼ同様の結果を示す. 許容位相変化を $\pi/5 (= \lambda/10)$ とすると, 許容される厚みムラは約 820 nm と見積もられる. ただし, 空間波長としては XFEL の照射領域よりも十分小さい, もしくは十分大きい必要がある. SACLA におけるビームサイズが約 200 μm FWHM であることから 6.5 keV における照射領域は光軸方向に約 400 μm となる. 従って, 0.4–1.6 mm の空間波長 (空間周波数 0.6–2.5 mm^{-1}) 成分の厚みムラを取り除く必要がある.

2.5 分割・遅延光学系の性能見積もり

本節において, Si(220) 結晶を用いた分割・遅延光学系により得られるスループットやパルス時間幅の数値解析的な見積もりを行う. まずは放射光施設や XFEL 施設においても一般的に用いられる Si(111) モノクロメータ利用時のスループットを, DuMond 図 [54] に基づき計算する. 2 色分割を行う際, それぞれの分割ビームの中心エネルギーのズレ量に対する影響も調査する. そしてランダムな時間, 周波数構造を有する SASE パルスに対して分割・遅延光学系を用いた場合に関しても, フーリエ解析に基づき見積もる. なお, 極薄結晶の厚みは全ての計算に対して 10 μm とした.

2.5.1 Si(111) モノクロメータに対する検討

最適な中心エネルギーのズレ量を求める為, 平行光におけるスループットを計算した. X 線のエネルギーは 10 keV とし, Si(111) 2 結晶分光器 (double-crystal monochromator, DCM) により単色化

された入射 X 線に対して, upper, lower ビームの中心エネルギーをそれぞれ変化させながらスループットを求めた. 計算結果を Fig. 2.7 に示す. Upper パスは lower パスから独立している為, lower ビームの中心エネルギー E_{l0} には影響を受けないが, 入射光スペクトルの非対称性に起因した upper ビームの中心エネルギー E_{up} 依存性を示している (Fig. 2.7a). また, 厚み $10\ \mu\text{m}$ の結晶では回折バンド幅内の X 線はほとんど反射される為, 単色分割条件となる $E_{up} \approx E_{l0}$ の領域において最も lower パスのスループットが小さくなっている (Fig. 2.7b). ここで, upper ビームのスペクトル範囲が Si(111) バンド幅内の高エネルギー側, 低エネルギー側のどちらに位置しているかによって lower パスのスループットが大きく影響を受けていることが見て取れる. これは入射光スペクトルの非対称性の影響のみならず, 異常吸収効果 (Borrmann 効果 [55]) にも起因している. そもそも Darwin カーブの非対称性の要因でもあるが, Bragg 条件近傍において吸収係数が変化する現象であり, Fig. 2.5 のように低エネルギー側の透過率が上がる. 従って, 同じ量だけ中心エネルギーをずらした場合においても, upper ビームを高エネルギー側, lower ビームを低エネルギー側と設定した方がトータルのスループットは向上する (Fig. 2.7c). この結果を基に, Si(111) DCM 利用時は, upper ビームの中心エネルギーを $(1 + 3.5 \times 10^{-5})E_0$, lower ビームの中心エネルギーを $(1 - 3.5 \times 10^{-5})E_0$ と設定した.

これまでの議論は平行光に対して行ってきた. 実際は入射 X 線の発散角によってスループットは影響を受ける. ここでは平行光がある矩形開口を有するスリットを通過し, そのサイズに応じた回折限界発散角を有した入射光を想定する. 開口 $30\ \mu\text{m}$ の際の入射光, upper, lower ビームの DuMond 図ならびにスペクトルを Fig. 2.8 に示す. この時, 入射光の発散角は $1.83\ \mu\text{rad}$ FWHM となり, SACLA と同等の値となる (ただし, 矩形開口の為 sinc 関数的な角度プロファイルとなる). この時のスループットは upper, lower ブランチそれぞれ 28.8%, 19.4% となり, 平行入射光に対するスループット (30.5%, 20.6%) よりも小さくなった. スループットの発散角依存性を Fig. 2.9 に示す. 発散角の増大と共にスループットは低下するが, 第3世代放射光や XFEL の発散角は $10\ \text{keV}$ において一般的に $4\ \mu\text{rad}$ FWHM 以下であるため, 大きな問題とはならないと考えられる.

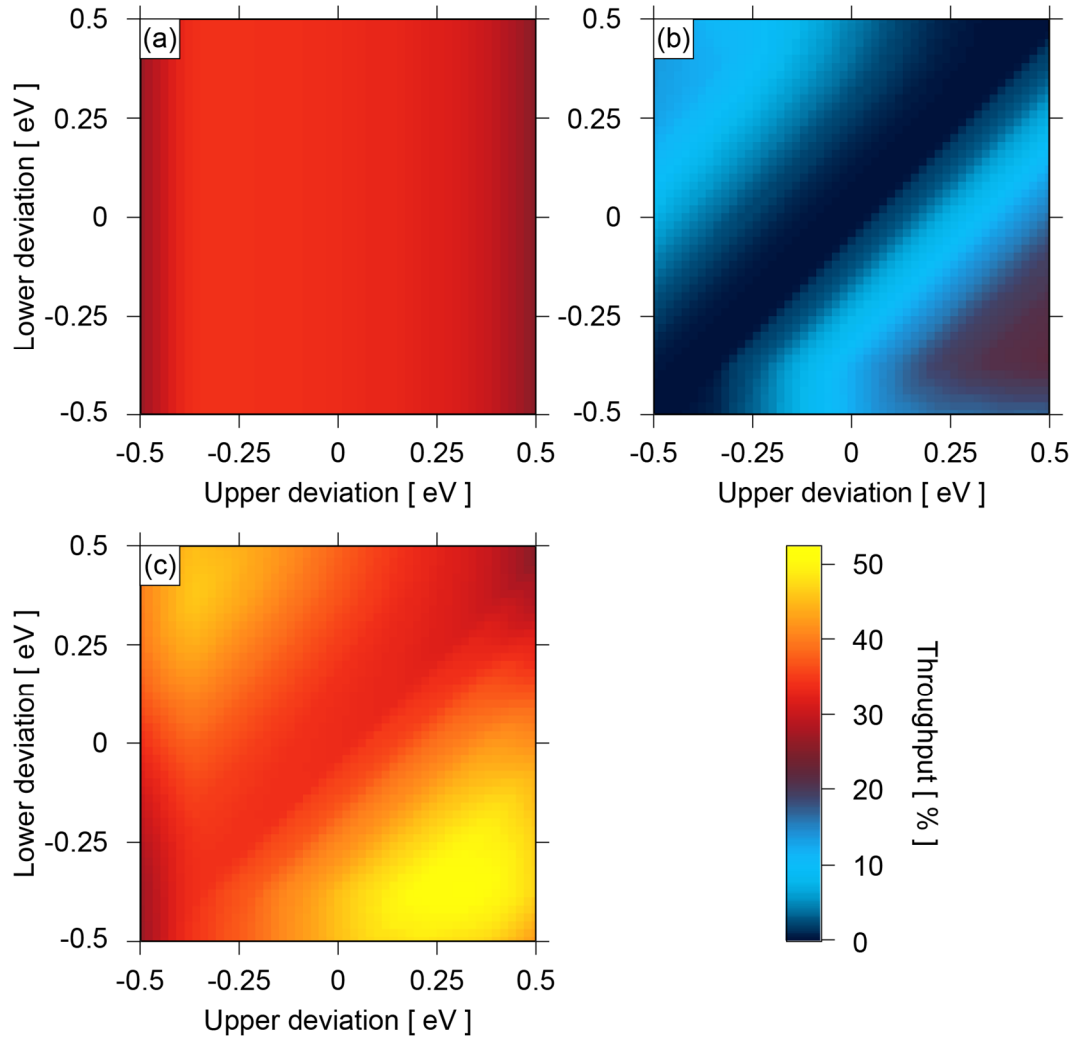


Fig. 2.7. Throughputs for plane-wave 10 keV X-rays from a Si(111) DCM as a function of energy deviations of the split branches. Throughputs of the upper branch (a), the lower branch (b), and sum of them (c).

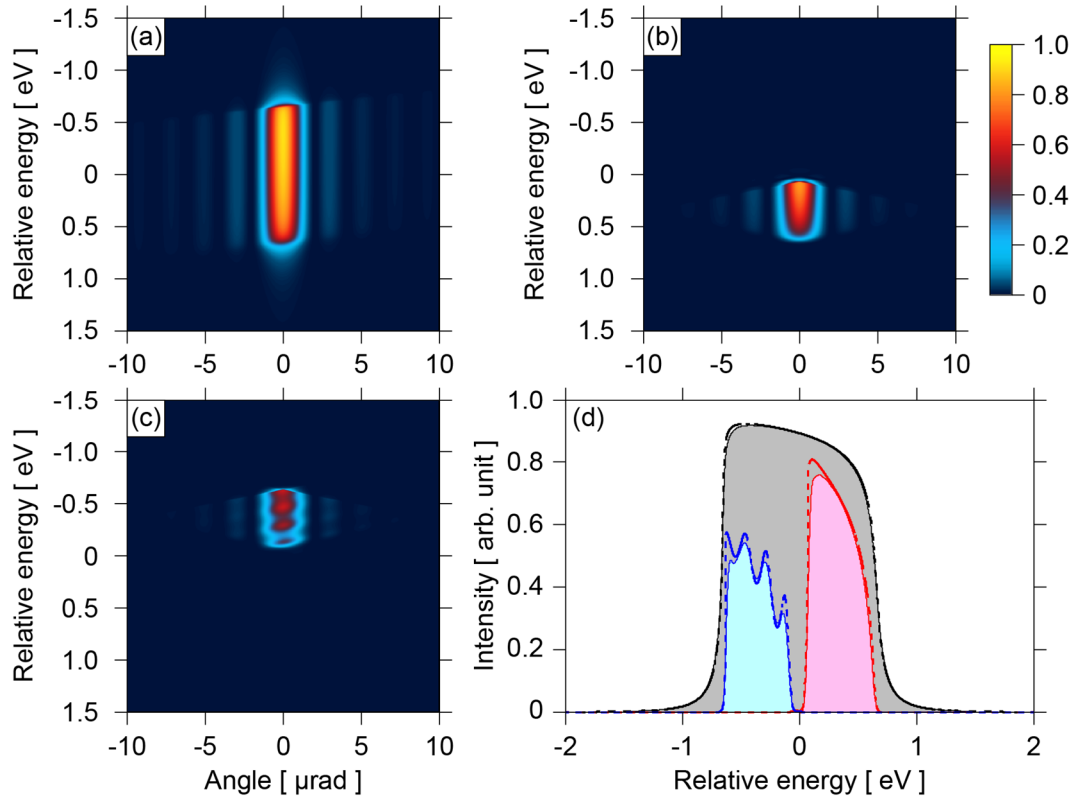


Fig. 2.8. Calculation of throughputs taking into account a beam divergence. DuMond diagrams of an incident 10 keV X-ray beam from a 30 μm aperture (a), the upper beam (b), and the lower beam (c). (d) Calculated spectra. Black, red, and blue show the spectra of the incident beam, the upper beam, and the lower beam, respectively. Dashed lines represent the spectra obtained for a plane beam.

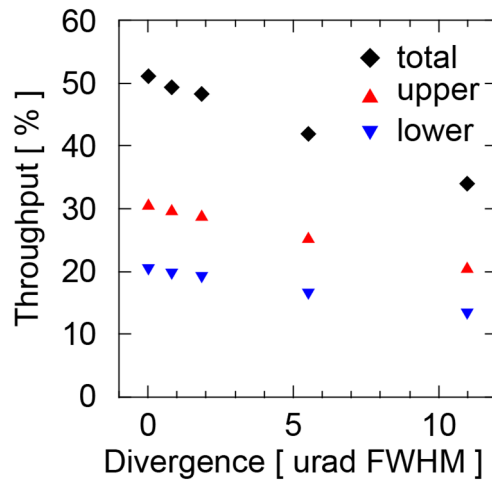


Fig. 2.9. Throughputs as a function of beam divergence at 10 keV.

2.5.2 SASE に対する検討

本項において、現在 XFEL の発振原理として一般的に用いられている SASE における分割・遅延光学系のスループットやパルス時間幅に関して検討する。SASE は電子銃から生じた低エミッタンスな電子バンチを線形加速器によって相対論的な速度まで加速させ、長尺のアンジュレータに通すことでレーザー発振を実現する手法である。原理上電子バンチの統計論的なエネルギー分布の影響を大きく受けるため、時間、スペクトルプロファイルはショット毎に大きく変動し、多くのスパイク構造を示す。従って空間コヒーレンス長はビームサイズと同程度となるが [31, 52, 56–58]、時間コヒーレンス長はパルス時間幅と比べ極めて小さい [29]。まず、このようなショット毎にランダムな構造を示す SASE パルスを数値解析的に再現した。

SASE パルスの電場 $E_{\text{in}}(t)$ を以下のように置く。

$$E_{\text{in}}(t) = \sum_{i=1}^N A_i \exp\left(-\frac{t^2}{\delta\tau^2}\right) \exp\left(-\frac{(t-t_i)^2}{\sigma^2}\right) \exp[-i(\omega_0 + \omega_i)t] \quad (2.8)$$

ここで、 N は入力スパイク数、 A_i , t_i , ω_i はそれぞれスパイク i の振幅、中心時間、 ω_0 からの周波数のズレ、 $\delta\tau$ は SASE パルスの時間幅、 σ は各スパイクの時間幅である。ここでは ω_i をランダムに取ったが、チャープパルスを想定する場合は時間の変数とすればよい。この時、 σ はコヒーレンス時間に相当し、Refs. [32, 52] 等を参考に 10 keV において 0.1 fs FWHM とし、エネルギーに対して反比例とした。また、 $\delta\tau$ は 5 fs FWHM とした。時間と周波数とはフーリエ関係にあるため、角周波数分布 $E_{\text{in}}(\omega)$ は

$$E_{\text{in}}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{in}}(t) \exp(-i\omega t) dt \quad (2.9)$$

となる。従って、それぞれの強度は $I_{\text{in}}(t) = |E_{\text{in}}(t)|^2$, $I_{\text{in}}(\omega) = |E_{\text{in}}(\omega)|^2$ となる。10 keV において再現した SASE パルスを Fig. 2.10 に示す。時間、スペクトル構造共にランダムなスパイク構造となっていることがわかる。スペクトルのスパイク幅は 300–600 meV 程度となっており、実測値と良く一致する [51]。また、 ω_i の範囲を $\pm 0.002\omega_0$ とすることで約 50 eV FWHM のバンド幅を再現した。

結晶による Bragg 回折の時間プロファイルへの影響を Shastri らが採用したフーリエ解析に基づ

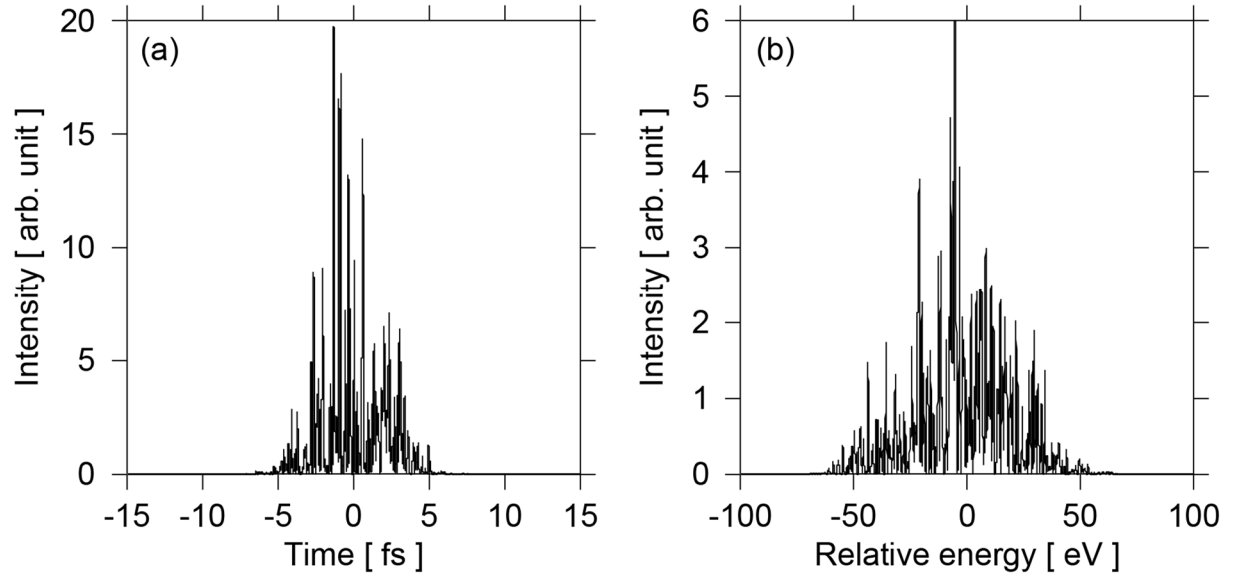


Fig. 2.10. Simulated SASE pulse. (a) Temporal profile and (b) spectrum.

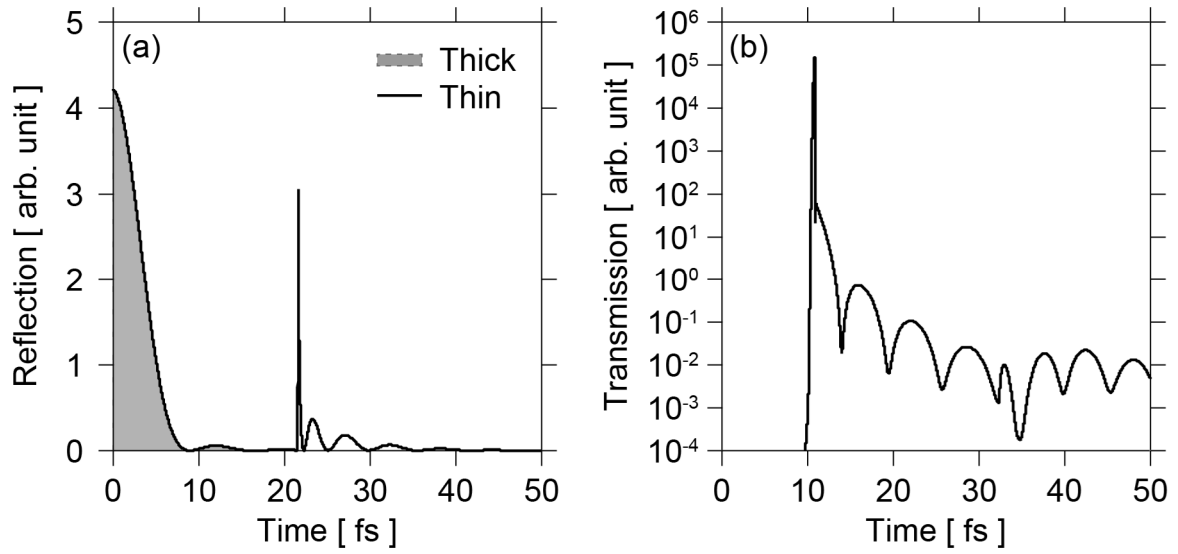


Fig. 2.11. Calculation of impulse response of Si(220) diffraction at 10 keV.

(a) $|G_R(t)|^2$ and (b) $|G_T(t)|^2$. Thickness of the thin crystal was 10 μm .

いて検討する [41, 59]. 結晶回折の複素振幅反射率, 透過率をそれぞれ $R(\omega)$, $T(\omega)$ と置く. そのインパルス応答 $G_{R(T)}(t)$ は以下のように書ける.

$$G_{R(T)}(t) = \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} R(T)(\omega) \exp(i\omega t) d\omega \quad (2.10)$$

ここで, $\int_{-\infty}^{\infty} \delta(t) \exp(-i\omega t) dt = 1/2\pi$ を用いた. $\delta(t)$ は Dirac のデルタ関数である. 典型的な $|G(t)|^2$ を Fig. 2.11 に示す. この $|G(t)|^2$ が結晶回折におけるパルス時間幅の拡大を意味しており, 入射 XFEL パルスに対して畳み込み積分を行うことで, 反射パルスの時間構造が以下のように見積もられる.

$$I_{\text{ref}}(t) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{in}}(\tau) G_R(t - \tau) d\tau \right|^2 = |E_{\text{in}}(t) * G_R(t)|^2 \quad (2.11)$$

従ってパルス時間幅の拡大は $|G_R(t)|^2$ の半値半幅から見積もられ, 10 keV において約 3.7 fs となる. これは式 (1.2) の不確定性原理から見積もられた値と比較的良く一致する. 複結晶配置の場合は式 (2.10) に結晶による反射, 透過の数だけ $R(\omega)$ と $T(\omega)$ を掛ければよい.

以上の式を用いて SASE に対する分割・遅延光学系のスループットを見積もった. なお, 計算負荷を低減させるため発散角は考慮していない. 統計的な評価を行う為, 6.5–11.5 keV の範囲において 1000 ショットずつ計算を行った. ここで, SASE は Si(220) 回折に対して十分広いバンド幅を有している為, upper, lower ビームの中心エネルギーをそれぞれ $\pm 5 \times 10^{-5} E_0$ だけずらした. 10 keV における計算結果を Fig. 2.12 に示す. 1000 ショットの平均により入射 XFEL パルスの時間プロファイル, スペクトルは滑らかなガウス関数となる. 分割パルスの平均時間プロファイルも同様にガウス関数のようになり, 時間幅は約 8 fs FWHM であった. しかし, Si(220) 回折のバンド幅とスパイク幅とが同等となる為, ショット毎に時間プロファイルが大きく変化し, 中にはマルチピークとなるパルスも確認された.

スループットは upper, lower パスそれぞれ $0.82 \pm 0.69\%$, $0.53 \pm 0.43\%$ となった. ショット毎のスパイク位置がランダムに変化する SASE パルスに対しては非常に大きなスループットのバラつきが確認された. 更に, 本計算において各スパイク間に相関が無い為, upper ビームと lower ビームとの間にも強度相関は全く見られない (Fig. 2.12c). これらの特性は実験を行う上で大きな妨げと成り得るが, それぞれの強度をショット毎に測定し, データの取捨選択を行うことで, 精密な実験データの解

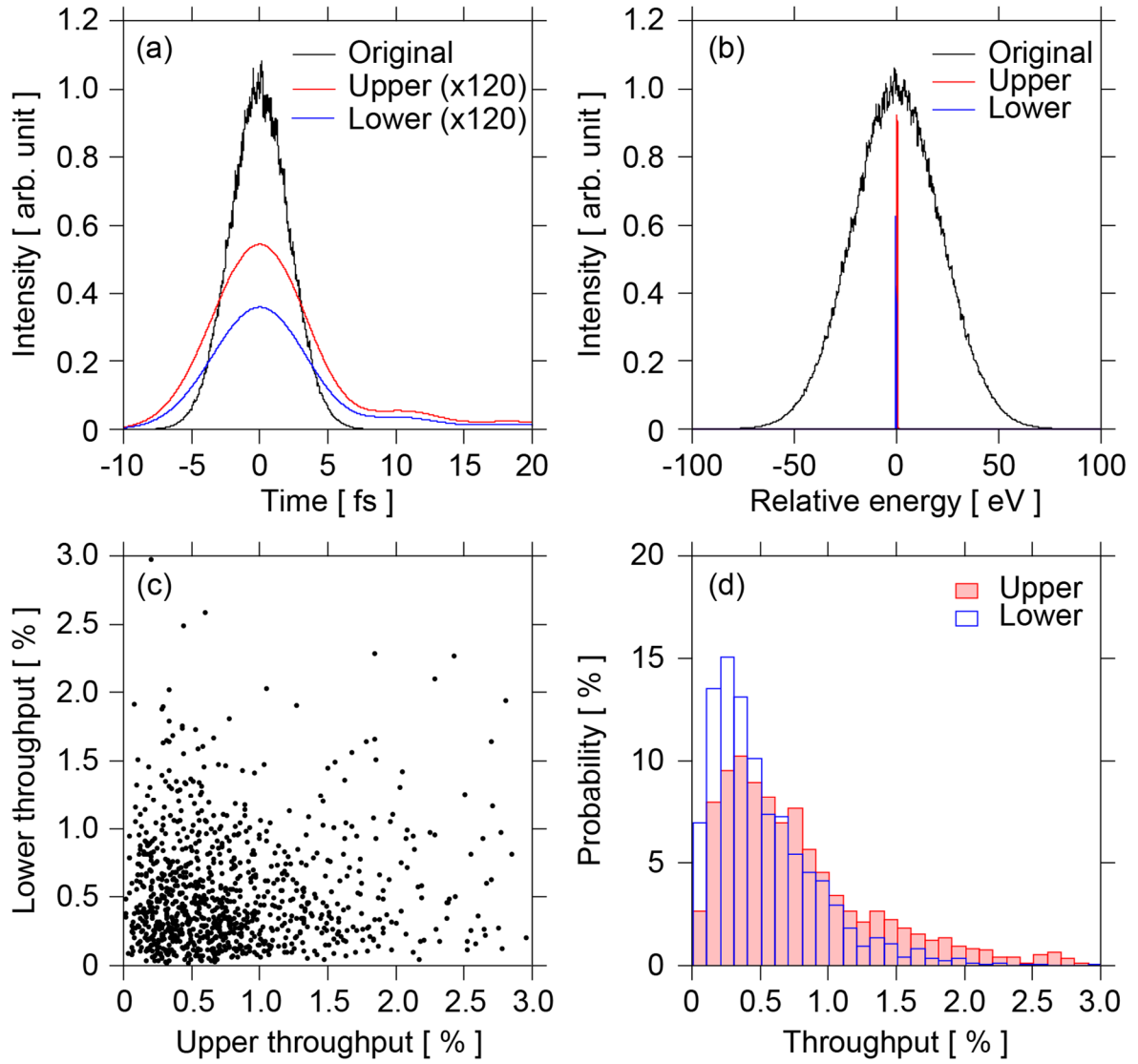


Fig. 2.12. Calculation of throughputs for SASE pulses at 10 keV. Averaged temporal profile (a) and spectra (b). (c) Correlation of throughputs between the upper and the lower branches. (d) Histograms of throughputs with a sampling number of 1000.

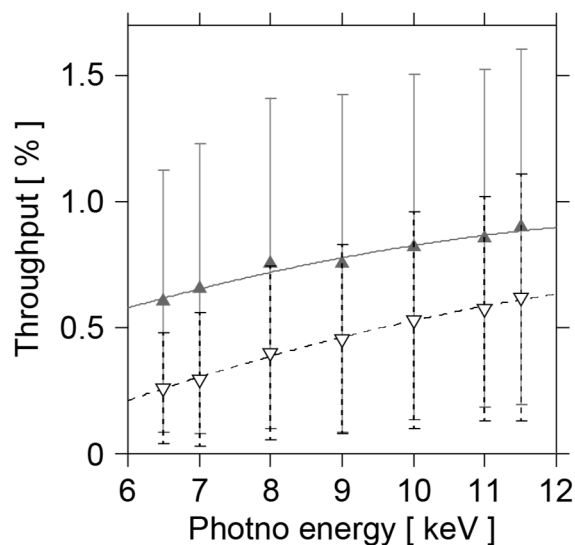


Fig. 2.13. Throughputs for SASE pulses as a function of photon energy. Upward and downward triangles represent averaged throughputs of the upper and the lower branches, respectively. Error bars correspond to the standard deviation in 1000 events.

析が可能だと考えられる。

Fig. 2.13 に各 X 線エネルギーにおけるスループットを示す。6.5 keV において最も低く、それぞれ $0.60 \pm 0.52\%$, $0.26 \pm 0.22\%$ となった。入射パルスエネルギーを 300 μJ とすると、各分割パルスの強度は平均で 1.8 $\mu\text{J/pulse}$, 0.8 $\mu\text{J/pulse}$ となる。この強度は 1 μm 集光光学系を用いた際、重元素材料においてアブレーションが生じる強度であり [60], アブレーションや生体試料の放射線損傷過程の測定への適用も期待出来る。

2.6 結言

本章において、高い安定性、調整自由度を得るため、結晶素子による Bragg 回折に基づいた波長可変硬 X 線分割・遅延光学系を提案し、各種パラメータの設計を行った。また、動力学理論に基づき、極薄結晶に対する要求を見積もった。そして予想されるスループットや分割パルスの時間プロファイル等を、DuMond 図やフーリエ解析を用いて計算した。以下に要点をまとめる。

- (1) 光路長可変パスと固定パスとが独立した光学配置の採用により、遅延時間変更の際の調整軸の削減や、加速器ベースの 2 色 XFEL との共用を可能とした。

- (2) 光路長固定パスに2つのチャネルカット結晶を導入することで、調整軸の削減、アライメント基準となるビームの供給を可能とした。
- (3) Bragg 回折バンド幅におけるフーリエ限界時間幅が XFEL 固有のパルス時間幅に対し十分小さく、1 m 程度のスペースにおいても数百ピコ秒の遅延を生成可能とする為、Si(220) 回折を採用した。
- (4) SACLA の主要な X 線エネルギー範囲をカバーしつつ、遅延時間ゼロの生成や、表面計測が可能なチャネルカット結晶を設計した。Si(220) 回折利用時に許容される X 線エネルギー幅は 6.5–11.5 keV となった。
- (5) 制御系を構築し、遅延時間範囲、時間ステップを見積もった。10 keV においてそれぞれ、−50 から+47 ps と約 0.3 fs となった。
- (6) ビームスプリッタ結晶に要求される厚みと許容誤差を、X 線回折の動力学理論に基づき検討した。高いスループットが得られる 2 色分割手法の適用により、Si(220) 結晶において、3.2–12.4 μm の厚みが求められ、許容誤差 820 nm と見積もられた。
- (7) DuMond 図に基づき、分割・遅延光学系のスループットを計算した。Si(111) のバンド幅を有する入射光に対して、10 keV においてトータル 50%となった。また、発散角の影響も調査し、XFEL のような平行性の高い光源に対してはほとんど無視できる事を示した。
- (8) フーリエ解析に基づき、SASE 光源に対するスループット分布やパルスの時間拡大幅を計算した。平均スループットはトータルで 1.0–1.5%と見積もられ、パルス時間幅が 3–4 fs 拡大する事を導き出した。

第 3 章

主要光学素子の作製

3.1 緒言

本章において、分割・遅延光学系の性能に大きく作用する光学素子、ビームスプリッタとしての薄い結晶とチャネルカット結晶の作製に関して解説する。第 1 章で述べた通り、湾曲も含めた高い結晶完全性を有する極薄結晶や、結晶歪みを有しないチャネルカット結晶は未だ報告されていない。本研究では、大気圧プラズマを用いたエッチング技術である PCVM (plasma chemical vaporization machining) [61] に基づき、結晶の無歪み薄化並びにチャネルカット結晶内壁面の歪み除去を試みた。本章では PCVM の基礎概念や開発した電極による加工特性を紹介する。そして極薄結晶、チャネルカット結晶内壁面処理の詳細を記述し、SPring-8 における結晶性評価結果を示す。

3.2 Plasma Chemical Vaporization Machining

3.2.1 基礎特性と装置系

PCVM とは、大気圧雰囲気下において電極と被加工物との間に、高周波電場を印加することで発生させた弱電離プラズマを利用した加工手法である。弱電離プラズマ中では気体分子の大部分は中性粒子となって存在している。ハロゲン等の電気陰性度の大きな分子を弱電離プラズマ中で活性な中性ラジカルへと分解し、被加工物表面の原子と結合させ、反応生成物を雰囲気中へ拡散させることで材料除去が進行する。反応ガスとしては、被加工物(ここではシリコン)と反応を起こしやすく、生じた反応生成物が蒸気圧の高い揮発性物質である必要がある。本研究では、過去の研究において実績のある CF_4 と SF_6 を用い、発生する F^* ラジカルと Si との以下のような化学反応を利用した。



大気圧における SiF_4 の沸点は約 160 K であり、常温において揮発性物質である。このように、加工の素過程は溶液エッチングと同様に原子単位の化学反応によるものである為、材料本来の性質を損なうことなく、結晶学的観点からも優れた加工面の創成が期待される。なお、電極材料としてアルマイト処理を施したアルミニウム系の材料を用いることで、電極の侵食を防ぐことが可能である。

プラズマ中には活性化した中性ラジカル他に、電子やイオンといった荷電粒子も存在している。それらの荷電粒子が大きな運動エネルギーを有して加工物に衝突すると、スパッタリングによる物理的な材料除去や加熱作用により加工変質層が形成される可能性がある。印加する高周波電場の周波数を上げることで、プラズマ中に存在する荷電粒子は限定空間に捕捉される。プラズマ状態は荷電粒子の衝突による電離、あるいは励起作用によって維持される為、荷電粒子の捕捉はプラズマ領域の局在化を可能とする。大気圧雰囲気下のように気体密度が高い場合、プラズマ外に拡散した中性ラジカルは基底状態にある分子との相互作用によってただちに不活性となる。これは PCVM による加工領域は発生させるプラズマ領域内に限定される事を意味しており、電極形状の工夫により複雑形状材料への局所的な加工が可能となる。また、高い加工の空間分解能により、広い空間周波数領域に渡る形状誤差の修正も可能となる。

本研究で使用した PCVM 装置の概観写真を Fig. 3.1 に示す。本装置はドライポンプ、ターボ分子ポンプにより 10^{-6} Torr 以下にまで真空排気が可能であり、高純度の He や SF_6 , CF_4 等、様々なガスが供給可能である。一旦真空排気した後、He、もしくは反応ガスとの混合ガスを導入し大気圧雰囲気とすることで、安定なプラズマ発生や大気中不純物の影響の抑制が可能である。プラズマ発生用の電源として 150 MHz の高周波電源を利用しており、インピーダンス整合用のマッチング回路を介して電極に電力が供給される。また、ガス供給路を複数有しており、電極を介してプラズマ領域中に常に新鮮な反応ガスを供給することが可能である。サンプル側に xy (水平面) ステージを、電極側に z (鉛直) ステージを備えており、全軸コンピュータ制御が可能であることから、局在化させたプラズマを速度制御して走査させることで、広い範囲の形状修正も行える。

極薄結晶の作製、チャネルカット結晶の内壁加工に用いた装置セットアップの概略図をそれぞれ Fig. 3.2, Fig. 3.3 に示す。極薄結晶の作製には、先端径の小さな電極を用い、電極中央部にガス導入路を設けることで、プラズマ領域に新鮮な反応ガスを供給した。また、チャネルカット内壁加工には、円柱状の先端部を有する電極を使用し、反応ガスとの混合雰囲気中で電極を高速回転させることで、プラズマ領域への新鮮ガスの供給、反応生成物の拡散を行った。詳細は後述する。



Fig. 3.1. Picture of PCVM chamber.

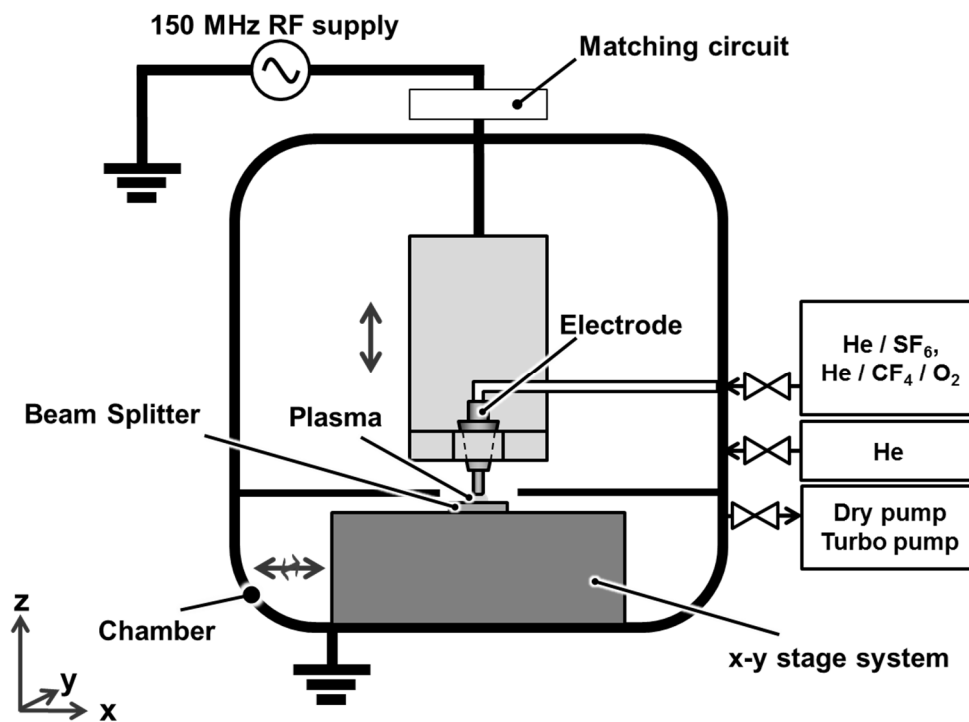


Fig. 3.2. Schematic diagram of the equipment for thin crystals.

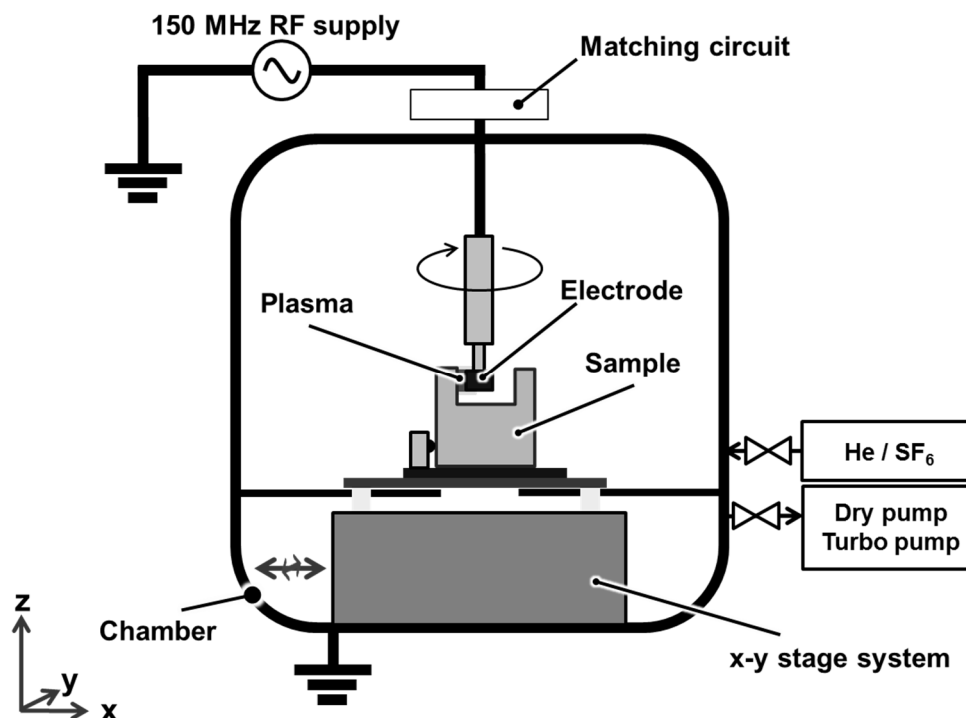


Fig. 3.3. Schematic diagram of the equipment for channel-cut crystals.

3.2.2 加工特性

3.2.2.1 加工条件と空間分解能の評価

高い加工の空間分解能を得るためにはプラズマの局在化が必須である。プラズマ発生領域は高電場領域に限られる為、電極面積を小さくすることで局在化が達成されと考えられ、先端径 0.3 mm の電極を設計、製作した。薄い結晶作製のセットアップを用いて Si(100) 試料に対して得られる典型的な加工痕を Fig. 3.4 に示す。反応ガスは SF_6 である。プラズマの発生条件によって加工痕形状や加工後表面特性は大きく影響を受ける。Fig. 3.4a のような加工痕となる条件では、表面粗さの悪化や、等速走査においても大きな加工量分布を生じさせる一方で、Fig. 3.4b のような加工痕となる条件では極めて平滑な表面と均一な加工量が実現される。基本的に過剰な投入電力印加時や反応ガス濃度が高い時は表面特性を悪化させることが経験的に知られている為、その他の条件である電極、試料間のギャップと混合ガス投入流量を変化させ、加工痕プロファイル、加工量、加工痕幅を調査した。その際の反応ガス濃度は 0.5%，投入電力は 18 W，加工時間は 5 秒とした。結果を Fig. 3.5 に示す。加工量はギャップを変化させても大差なく、投入流量に対してほぼ線形的に変化したことから、いずれのギャップにおいてもラジカルの消費率に大差ないと言える。加工痕幅に関しては、

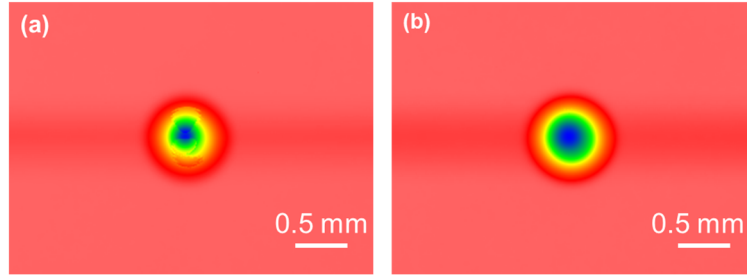


Fig. 3.4. Typical removal footprints with an electrode of diameter of 0.3 mm under different removal conditions. Surface roughness becomes worse under the condition (a), while that becomes better under the condition (b).

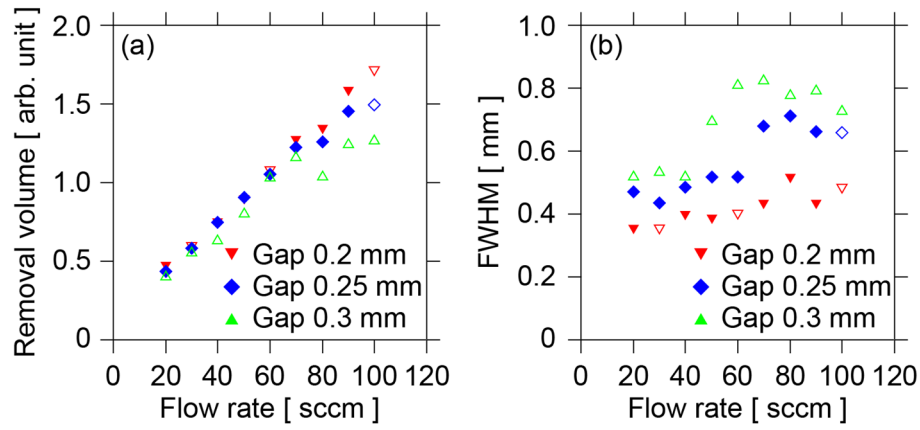


Fig. 3.5. Removal characteristics with various flow rates of reactive gas and gaps between the electrode and sample. Dependence of removal volume (a) and FWHM of removal footprint (b). Distorted profiles are obtained at open symbols.

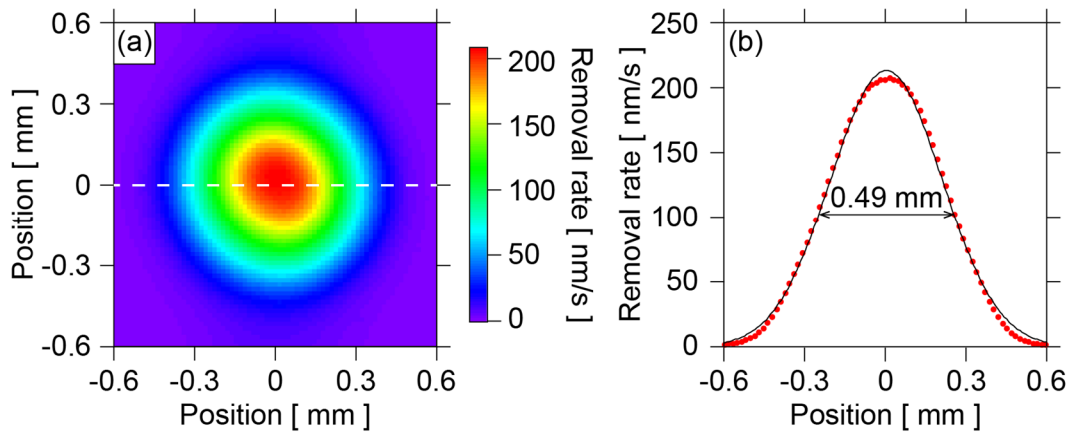


Fig. 3.6. Distribution of removal rate under an optimized condition. (a) Two-dimensional distribution and (b) line profile along the white dashed line in Panel (a).

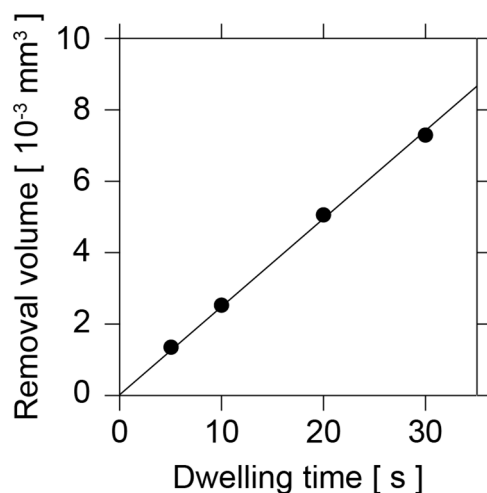


Fig. 3.7. Removal volume as a function of plasma dwelling time.

ギャップを小さくした時、より細い加工痕が得られた。このことから、加工痕プロファイルは電場分布に依存していると言える。ギャップが小さい方が電極直下に高電場領域が集中し、より微小な加工痕が得られたと考えられる。ただし、加工痕のプロファイルに注目した際、調査したギャップの中では 0.25 mm が最も安定して良好なプロファイルが得られた。従って、良好なプロファイルと十分な加工速度を安定的に得るために、ギャップ 0.25 mm、流量 90 sccm を最適値とした。

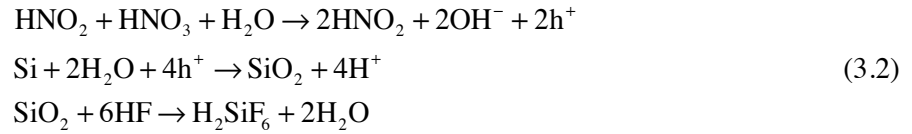
前述した通り、加工特性は投入電力に大きく依存する。過大な投入電力は表面粗さの悪化を招き、過小な投入電力はプラズマの不安定化をもたらす。電力が過小な場合はプラズマの発光強度、スペクトル分布が明確に変化する為、プラズマが安定化する必要最低限の電力投入が望ましい。この電極に対しては約 16 W であり、その際の加工速度分布を Fig. 3.6 に示す。ガウス関数に近い滑らかな分布が得られ、その幅は約 0.5 mm FWHM であった。従って、空間周波数 2 mm^{-1} 以下の厚み分布修正能力を有していることが確認された。

次に、プラズマ滞在時間に対する加工量の線形性を調査した。結果を Fig. 3.7 に示す。非常に良い線形性が確認され、誤差は 2% 以下であった。平板試料に対してプラズマの等速走査により約 280 μm 加工した際の表面プロファイルが 6–7 $\mu\text{m PV}$ であったことから、本手法は 2–3% の加工安定性を有していることが確認された。

3.2.2.2 結晶面依存性評価

あらゆる結晶面に対する適用性は X 線用結晶素子加工法として重要である。溶液によるシリコンのエッチングは一般的に結晶面に対して異方性を示す。特に最表面原子の結合手が少なく不安定

な (100) 面や (110) 面と、最安定な (111) 面とのエッチングレートの差は顕著である. このような異方性は適用可能な結晶面の制限や, 表面特性の悪化につながる. 一般的に KOH 等のアルカリ溶液を用いると異方性は増し, HNO_3 等の酸性溶液を用いると等方的になる. 酸性溶液によるエッチングは主に HF や HNO_3 の混合溶液を用いて行われ, 以下のような化学反応が生じることで加工が進行すると考えられている.



HNO_3 は亜硝酸 (HNO_2) と反応してホール (h^+) を形成し, 生じたホールが Si を酸化させる. そして HF によって SiO_2 が除去される. これら 2 段階のプロセスを経るため, 完全に等方的なエッチングを実現する為には極めて精密な濃度, 温度制御が求められる. また, 溶液の滞留等によっても影響を受けるため, 加工の不安定化が懸念される.

PCVM による加工は式 (3.1) のような Si と F^* (もしくは SF_x^*) との単純な化学反応に基づいている. F^* の反応性の高さ, Si-F 結合の安定性等から各結晶面に対して等方的なエッチングが期待され, さらに気体 F^* との化学反応であることから, ラジカル密度分布も均一になると考えられる.

これらの理由から, PCVM はシリコンに対して完全に等方的なエッチングが可能だとされてきたが, 実験的に示された例は無い. ここでは, CZ-Si(100), (110), (111), FZ-Si(511), (211) 面に対して加工速度の絶対評価を行った. 先端径 0.5 mm の電極を用い, プラズマを 1 軸走査させた際の加工痕断面プロファイルから評価を行った. 評価実験は 2 日に分けて行い, それぞれ 2 ラインずつ加工痕を取得した. 加工条件を Table 3.1 に, 結果を Fig. 3.8 に示す. 加工痕の断面プロファイル (Fig. 3.8a) からは結晶面に対して目立った加工速度の違いは見られない. また, 加工痕深さが大きくなるにつれ, 加工痕幅は小さくなるという相関が見られた (Fig. 3.8b). ここでパラメータ A_p を以下のように

Table 3.1. Experimental condition for investigating lattice dependence of removal rate.

Etchant gas	Electrode diameter (mm)	Flow rate (sccm)	Electric power (W)	Gap (mm)	Scan speed (mm/min)	Number of scans
He:SF ₆ = 99.5:0.5	0.5	100	17	0.3	10	4 (2/day)

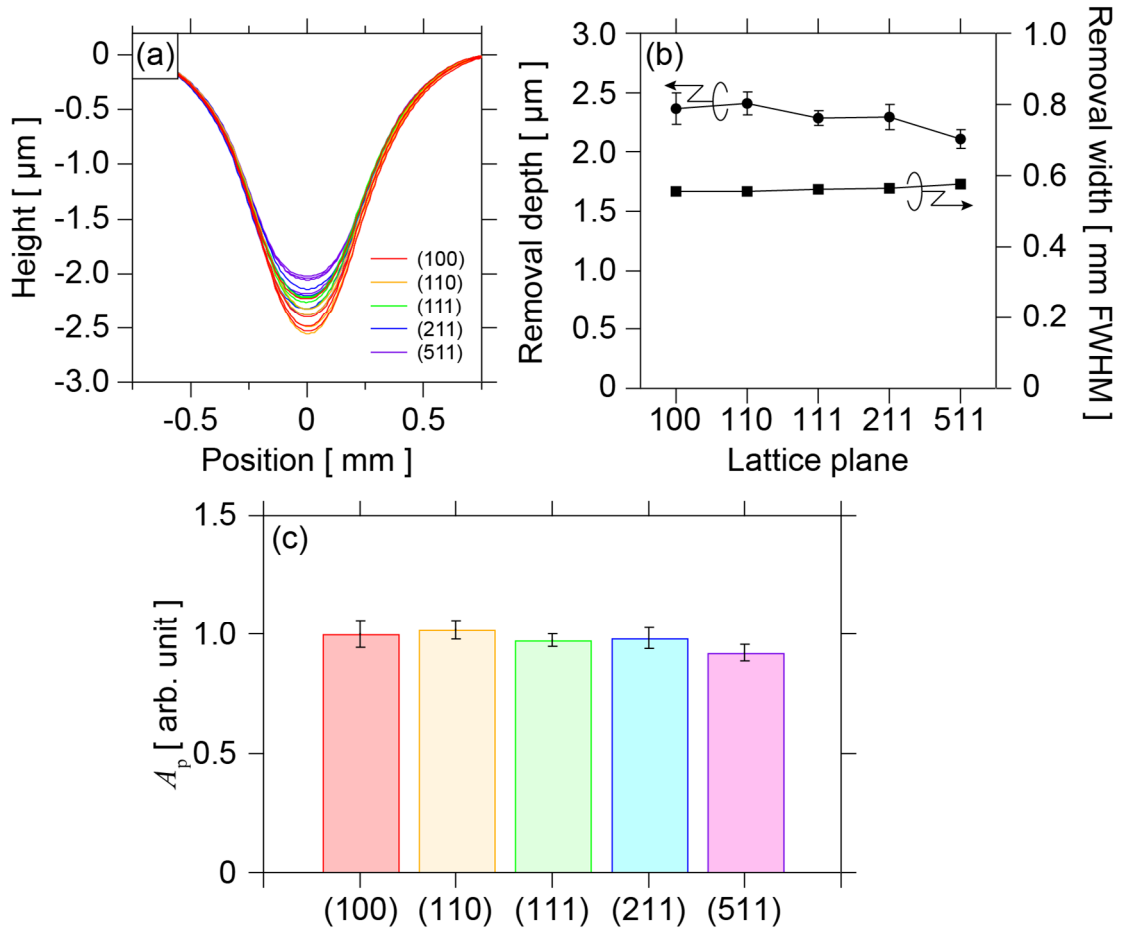


Fig. 3.8. Removal characteristics for various lattice planes. (a) Cross-sectional removal profiles, (b) depth and width of the cross sections, and (c) parameter A_p normalized by that of Si(100). Error bars show the standard deviation.

定義する.

$$A_p = RD \times RW \quad (3.3)$$

RD , RW はそれぞれ加工痕深さ, 幅の平均値である. 各結晶面に対する A_p を Si(100) の A_p で規格化したものを Fig. 3.8c に示す. Si(511) 以外は誤差 $\pm 2\%$ の範囲に収まっており, 極めて高い等方性が確認された. Si(511) に関しては, サンプルに比較的大きなうねりが確認されており, サンプルの電位が不均一であったことから, 大きな誤差の要因になったと考えられる. より精密な測定には, FZ シリコンの球体に対して PCVM 加工を施す必要があるが, 本論文ではここまでに留めておく.

3.2.2.3 表面粗さの評価

PCVM 加工により得られる表面平滑性を評価する為、表面の粗い FZ-Si(110) 結晶に対して先端径 0.3 mm 電極を用いて加工を施し、除去深さと表面粗さとの関係を調査した。表面粗さは走査型白色干渉計(ZYGO, NewView200HR)を用いて測定した。測定範囲は $64\ \mu\text{m} \times 48\ \mu\text{m}$ である。結果を Fig. 3.9 に示す。多くのスクラッチを有する初期表面から PCVM により 1–2 μm 除去した際、表面粗さが増大した。初期表面はスクラッチや欠陥等の結晶性の乱れを多く有していると考えられる。格子の整った結晶面に対しては加工速度の等方性を確認したものの、結晶性の乱れた領域は優先的に加工が進行し、その結果表面が荒れたものと考えられる。しかし、表面に局在する結晶学的ダメージを除去した後は、徐々に表面粗さは低下していき、最終的には約 0.1 nm rms という超平滑面が得られた。PCVM は F*ラジカル拡散によって加工が律速されていることから、原子スケールの平滑化が実現したものと考えられる。

本実験から、結晶学的ダメージが表面近傍に局在していると仮定すると、平滑面が得られた際、結晶ダメージは完全に除去されたと言える。FZ シリコンは結晶内にほとんど欠陥を含んでおらず、結晶ダメージは主に研磨などの機械的プロセスによるものである。従って、PCVM 加工によって結晶ダメージは完全に除去可能であり、新たな欠陥等を導入することなく薄化が可能であると考えられる。

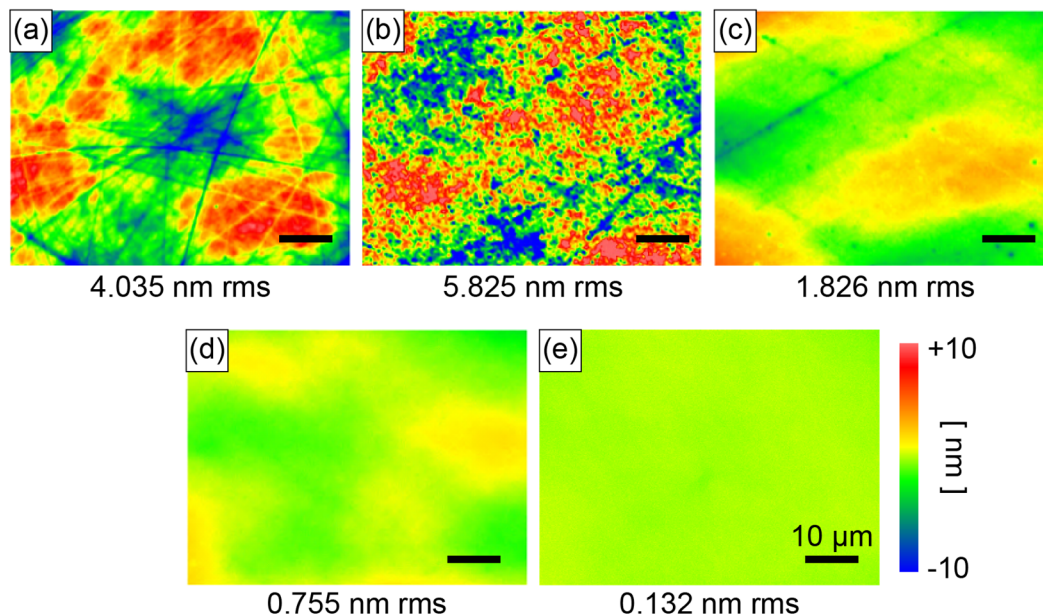


Fig. 3.9. Surface morphologies at several removal depths. (a) 0 μm , (b) 1–2 μm , (c) 8–10 μm , (d) 12–15 μm , (e) $\sim 200\ \mu\text{m}$.

3.3 ビームスプリッタ結晶の作製

本節において, PCVM によるビームスプリッタとしての極薄結晶の作製に関して記述する. 加工手順と各プロセスの詳細を紹介し, 各種サンプルの作製結果ならびに SPring-8 における結晶性評価結果を示す. また, 極薄結晶の回折特性は使用環境に大きく依存する. 有効な使用方法についても紹介する.

3.3.1 結晶デザインと前加工

本研究では, 極薄結晶の構造的安定性を確保する為, Feng らの開発した SOI ベースのメンブレン構造 [44] と同様に, 厚い保持部の中心部のみを薄くした窓型構造を採用する. ただし取り扱いを容易とする為, より厚い保持部を確保する. 提案する結晶形状 (Type I) を Fig. 3.10 に示す. 保持部は 25 mm 角, 厚み 1.5 mm とし, 中心部直径 5 mm もしくは 6 mm の領域を薄くする. X 線の透過パスを確保する為, 保持部と薄い領域とは 15° (or 20°) のテーパで接続する.

このような形状を PCVM のみで形成することは多大な時間を要する為, Fig. 3.11 のように機械的に前加工を施した. まず, 25 mm 角, 厚み数 mm の平板結晶を FZ インゴットから切り出す. 次に研削加工により, 中央のテーパ形状を形成する. 研削によって生じた加工変質層を溶液エッチング

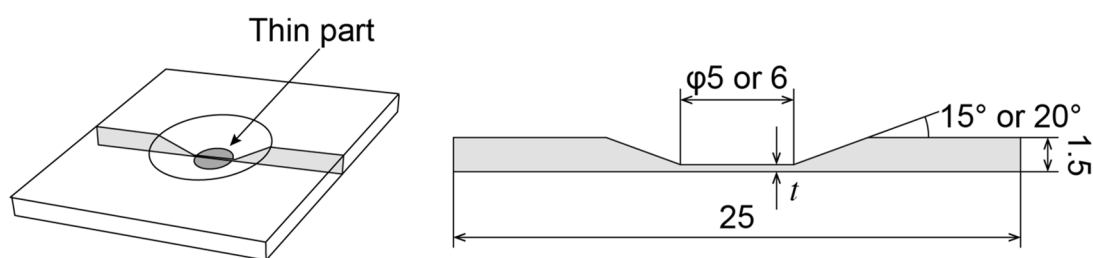


Fig. 3.10. Schematic diagrams of the window-shaped beam splitter crystal (Type I).

Unit is mm.

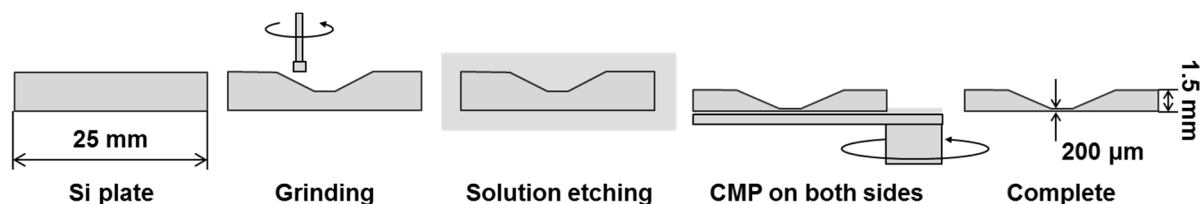


Fig. 3.11. Pre-fabrication procedure of crystal Type I.

により除去する. そして上下面ともに Chemical Mechanical Polishing (CMP)を施し平滑化すると共に, 薄い領域の厚みを $200\text{ }\mu\text{m}$ まで薄化する. この結晶 Type I の場合, 最終的に得られる有効分割領域は初期の薄い領域の広さ(直径 $5\text{--}6\text{ mm}$)によって制限され, 技術的制約によりこれ以上広くすることは困難である. 典型的に, 最終的な有効分割領域は $\sim 2\text{--}3\text{ mm}$ 角となる.

より広い有効領域を得るため, 平板結晶から PCVM のみによる薄化も試みた (Type II). ただし, 1.5 mm 厚の結晶から中心部の厚みを $10\text{ }\mu\text{m}$ 程度にまで薄化することは時間的に非現実的である為, 0.6 mm 厚の平板結晶を用意した.

3.3.2 加工手順

本項において, ビームスプリッタ結晶, 特に様々なプロセスを必要とする結晶 Type I の加工手順の詳細を記す. 結晶 Type II の作製時は, 第3.3.2.4「薄化加工」のプロセスを上下両面に対して行う.

3.3.2.1 基本方針

加工手順の詳細に入る前に, 基本方針を示す. 結晶 Type I の加工プロセスは大きく3段階に分けられる (Fig. 3.12). 機械加工に基づく前加工終了時, 溶液エッチングを施してはいるものの, テーパー面には厚い加工変質層が存在しており, その残留応力によって結晶全体に大きな格子面の湾曲をもたらしている (Fig. 3.13). 加工変質層の厚みは数十から数百 μm だと考えられる為, 薄い領域とは独立に PCVM 加工を施した (Fig. 3.12a). また, テーパー部とは反対側の平坦面 (以後‘裏面’と呼ぶ) は CMP によって研磨が施されているものの, プロセス中に混入した微小粒子等の影響でスクラッチや欠陥が導入されている. 極めて微小な結晶ダメージではあるものの, 薄い領域の厚みが $10\text{ }\mu\text{m}$ 程度となると格子面に対して深刻な影響を及ぼす (Fig. 3.14a). 従って, 裏面も PCVM によって

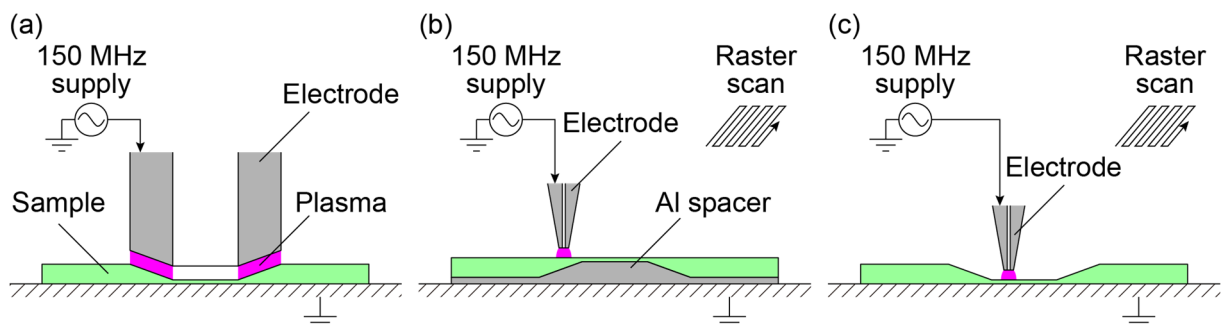


Fig. 3.12. PCVM processes for fabricating a Type I crystal. Conceptual images of PCVM at the tapered surface (a), the rear surface (b), and for thinning.

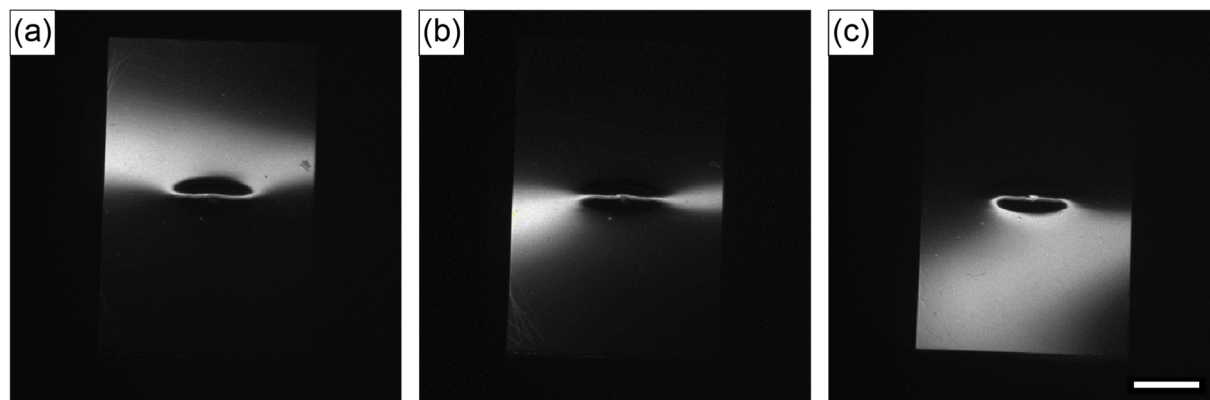


Fig. 3.13. Examples of X-ray reflection topograph from a thin Si(511) crystal without the PCVM processes measured with a (+, -) parallel arrangement. Topographs measured at relative rotation angles of $-6 \mu\text{rad}$ (a), $0 \mu\text{rad}$ (b) and $+6 \mu\text{rad}$ (c). Scale bar represents a length of 2 mm.

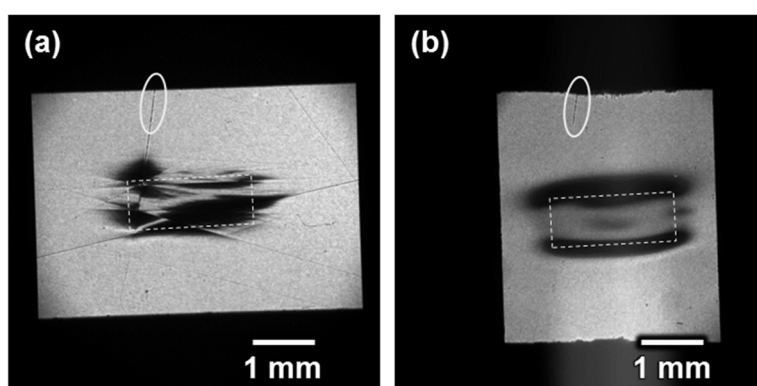


Fig. 3.14. Influence of scratches existing on rear surface of a thin crystal. Topographs from the same Si(511) crystal taken before (a) and after (b) the rear-surface PCVM.

処理を行う (Fig. 3.12b). この際, Al のスペーサーを用いることで電極とアース板との間の空気層を埋め, プラズマの安定発生を実現する. そして最後に薄い領域を, 局在化プラズマをラスタ走査させることで目的厚みまで薄化する (Fig. 3.12c). 厚み誤差分布を測定し, その誤差を打ち消すような速度分布によってプラズマを走査させ, 厚みの均一化も行う.

3.3.2.2 テーパー面加工

テーパー面加工の詳細を示す. テーパー面を薄い領域とは独立かつ一括で PCVM 加工を行う

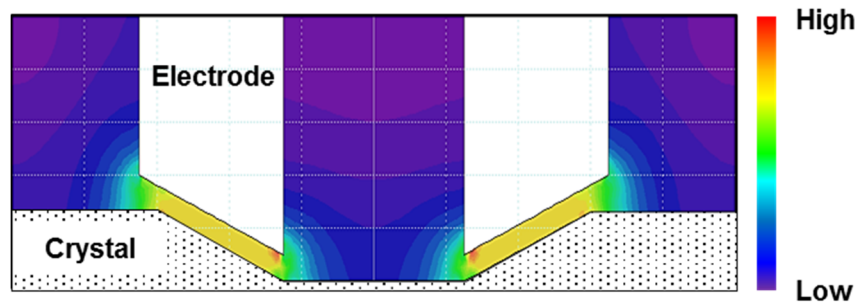


Fig. 3.15. Results of an electrostatic calculation with a process configuration for the tapered-surface PCVM.

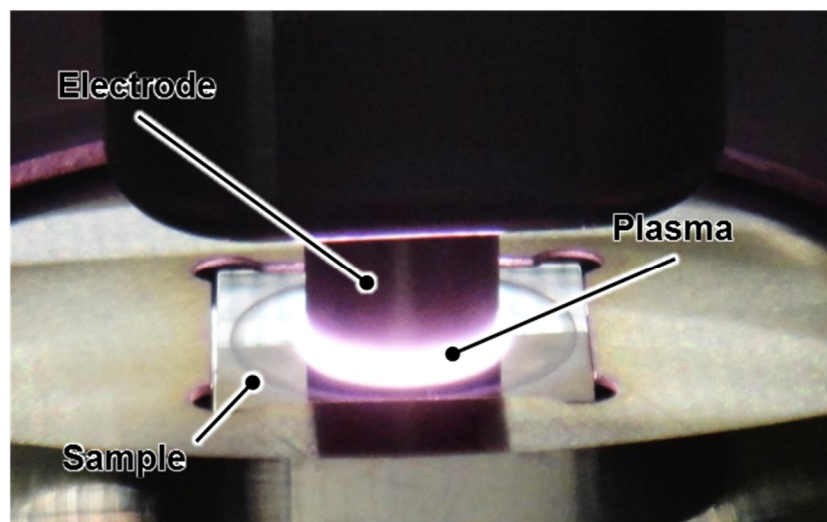


Fig. 3.16. Picture of plasma during the tapered-surface PCVM.

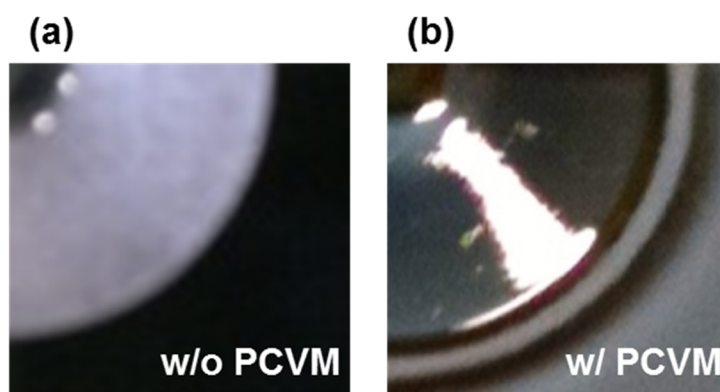


Fig. 3.17. Pictures of tapered surface of a Type I crystal before (a) and after (b) the PCVM process.

為、薄い領域と同径のガス導入口を有するレプリカ電極を製作した。静電場解析プログラム(Field Precision, SATE 7.0 [62])を用いて電場分布を計算した結果、Fig. 3.15 に示すようにテーパー面上のみに高電場領域が集中したことから、テーパー面の独立加工が可能であることが示唆された。

本プロセスにおいて、プラズマのテーパー面上への局在化だけでなく、広範囲に渡って均一なプラズマを発生させることが重要である。そこで、 SF_6 よりも絶縁性が低く、プラズマ領域が広がりやすい CF_4 を反応ガスとして用いた。 CF_4 を用いたプラズマエッチングにおいて、分解された炭素がサンプル面上に付着することを防ぐ為、 O_2 の導入が有効であることが知られている [63]。種々の濃度を試した結果、 CF_4 と O_2 の濃度をそれぞれ 1%, 2% とすることで安定なプラズマの生成に成功した。プラズマの様子を Fig. 3.16 に示す。電極のテーパー面と結晶のテーパー面との平行性が悪く、一括でのテーパー面全面加工は困難であった。電極の z 位置を変えることで加工領域の制御が可能であった為、随時電極の z 位置を調整することで、テーパー面全面の PCVM 加工を実現した。

テーパー面の PCVM 加工では加工量の見積もりが困難であり、テーパー面の加工変質層が除去された事を示す基準が必要となる。ここでテーパー面の平滑性に着目した。前節での記述の通り、PCVM 加工では結晶性が大きく乱れた面を加工した際平滑性の改善は見られず、そのような乱れが取り除かれた後に平滑性が向上する。従って、加工前と比べ十分平滑性の高いテーパー面が得られていれば、加工変質層の除去が完了していると考えられる。テーパー面の PCVM 加工前後の写真を Fig. 3.17 に示す。加工前は非常に粗いテーパー面が、PCVM 加工によって鏡面にまで平滑性が向上しており、加工変質層は完全に除去されたと考えられる。ただし、テーパー面と薄い領域との接続領域の加工変質層除去が達成されているかは明らかではなく、別途局在化プラズマの走査による処理が必要である。

本手法は、薄い領域の直径 5 mm、テーパー角 20° の結晶に対しては極めて有効であったものの、分割・遅延光学系への利用を前提として製作した直径 6 mm、テーパー角 15° の結晶に対しては、テーパー面全面の均一加工は困難であった。これは、テーパー面積の拡大や電極の傾きによるプラズマの偏在化が原因であり、有効な解決策が見つけられなかった。また、テーパー面の一括処理時、反応生成物の薄い領域への再付着を防ぐ為、10 slm という大流量で反応ガスを導入した。その結果薄い領域への再付着の抑制、テーパー面の加工時間の短縮へとつながったが、保持領域上への再付着が確認された (Fig. 3.17b, Fig. 3.19a)。確認はとれていないものの、この再付着層はシリコンとの熱膨張率の違いによる膜応力を発生させ、歪みの要因となり得る。

以上の問題を解決する為、先端径 1.2 mm 電極を用い、局在化プラズマを同心円走査させることで、テーパー面の加工変質層除去を試みた (Fig. 3.18)。その結果、Fig. 3.19b に示すように、保持領域への過剰な反応副生成物の付着を抑制することに成功した。この電極走査型テーパー面加工で

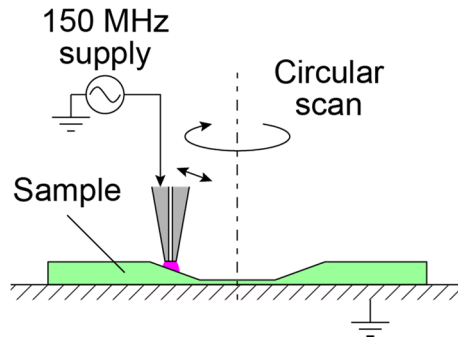


Fig. 3.18. Conceptual image of the electrode-scanning method for removing crystal strains on tapered surface.

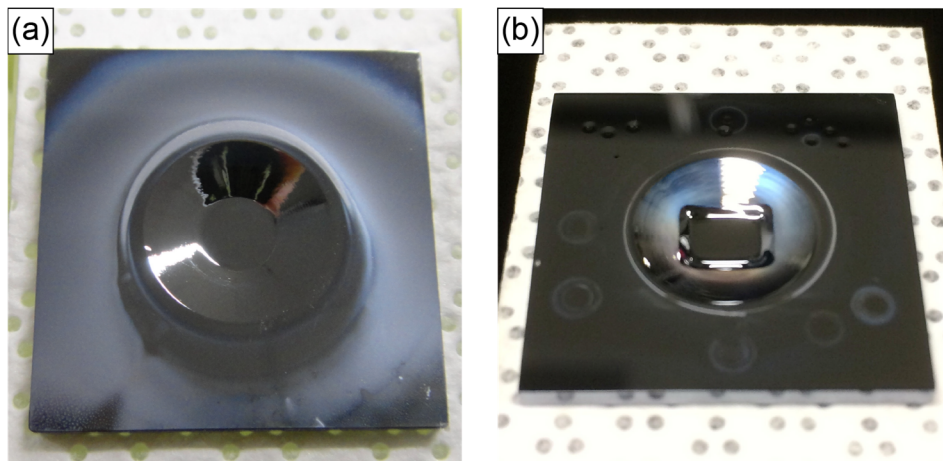


Fig. 3.19. Pictures of thin crystals with different removal methods for treating tapered surface. Crystals treated with the initial method (a) and the electrode-scanning method (b).

は、テーパー面と薄い領域との接続領域も同一プロセス内で処理することが可能である。プロセス時間自体は増大するものの、1 バッチ内で行えることから、パージ用ガスの節約にもつながる。

3.3.2.3 裏面加工

裏面 PCVM 加工の詳細を示す。前述の通り、CMP 面である裏面においても多数のスクラッチ、欠陥が確認され、結晶の厚みが薄くなった際に深刻な格子面の歪みをもたらす (Fig. 3.14a)。裏面に対して PCVM 加工を施すことで、Fig. 3.14b のように、薄い結晶の回折特性を劇的に向上させることに成功した。この結晶の場合、薄化後に裏面 PCVM 加工を施したが、加工の均一性を保つことが困難であるため、薄化前に行うことが望ましい。

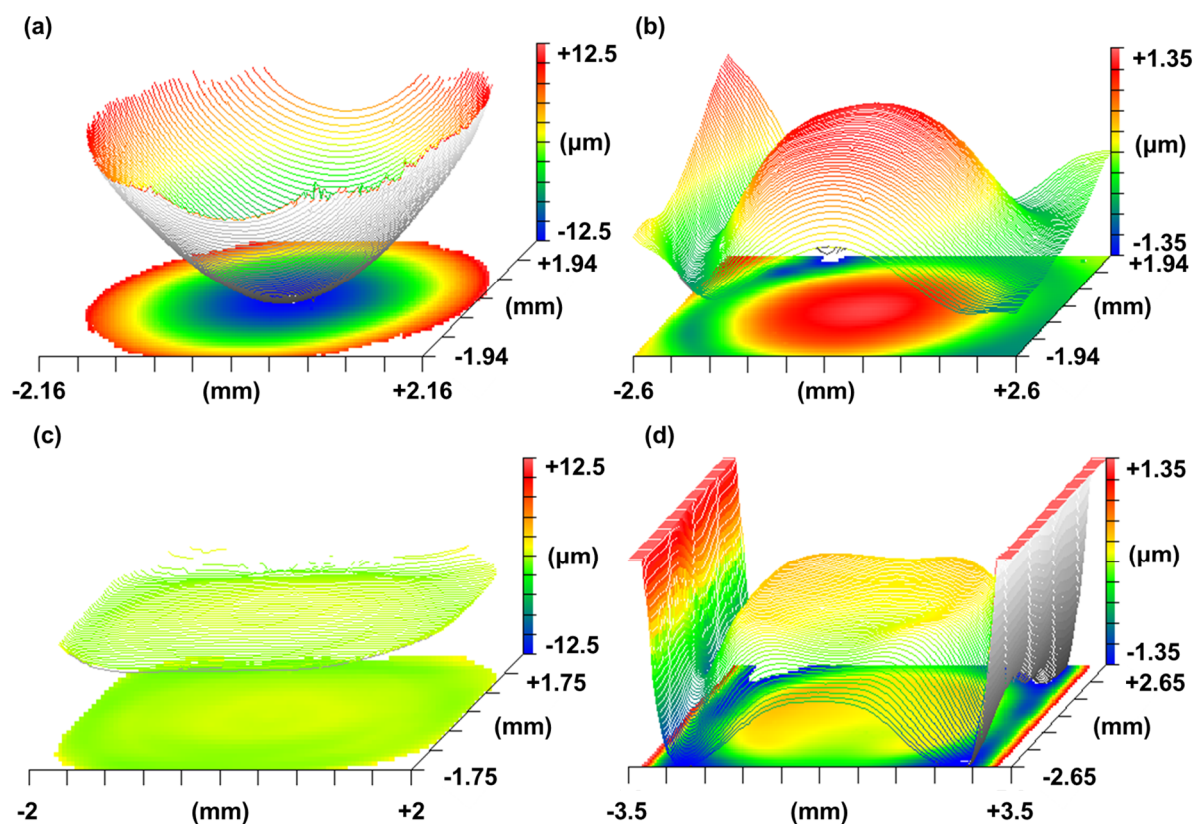


Fig. 3.20. Effect of surface flattening for realizing uniform PCVM process on the rear surface. (a) Typical surface profile on the thin part of an as-received crystal and (b) the profile on the rear surface after a PCVM process. (c) Example of surface profile on the thin part after flattening with PCVM and (d) the profile on the rear surface.

裏面 PCVM 加工には、空気層を埋める為の Al スペーサーの利用が不可欠である。これは空気層がコンデンサーとして機能することで、結晶表面の電位が不均一となり、プラズマが不安定となる為である。前加工後の結晶は薄い領域に 20–30 μm の高低差を有している (Fig. 3.20a)。そのような結晶に対して裏面 PCVM 加工を施すと、スペーサーを用いたとしても Fig. 3.20b のように裏面の平坦性が著しく悪化し、回折特性に対しても悪影響を及ぼす。

薄い領域を平坦化した上で裏面 PCVM 加工を行うことでこの問題を解決した。平坦化後の表面形状とその際の裏面加工後形状を Fig. 3.20c, d に示す。裏面の平坦性が改善されていることが明らかである。このプロセスの導入により極薄結晶に対しても高い回折特性を得ることが可能となった。

結晶 Type I において、裏面の平坦性は薄い領域の平坦性に強く依存する。また、スペーサーのエッジ部において電界集中が生じており、裏面の平坦領域周辺において大きな加工速度の増大が

確認される. このような表面形状によって極薄結晶の有効分割領域は更に制限される. 平板結晶から PCVM 加工のみによって薄化する結晶 Type II においてスペーサーは必要なく, これらの問題は全て解決され, 極めて平坦性の高い裏面形状を得ることが可能である.

3.3.2.4 薄化加工

目的厚みへの薄化は, 等速ラスタ走査による粗い薄化と, 走査速度を制御した精密厚み均一化の 2 段階によって行った. その際, 常に表面特性を悪化させないよう必要最低限の投入電力において加工を行う為, 薄化効率はプラズマの大きさに依存する. 能率的に薄化を行う為, 等速ラスタ走査は先端径 1.2 mm の電極を用いて行い, 精密厚み均一化においては先端径 0.3 mm の電極を用いて, 前節で紹介したような超局在化プラズマを発生させた.

結晶の厚み分布を制御する為には, 正確な厚み分布を知る必要がある. 厚み分布は広帯域赤外干渉分光計 (KEYENCE, SI-F80R) と 2 次元制御系 (KEYENCE, KS-1100) とを組み合わせたシステムを用いて測定した. 測定の横分解能はプローブレザーのスポット径によって決定され, 約 50 μm である. 本システムはシリコンに対して 7–300 μm の測定範囲を有しており, ターゲットである 10 μm を十分にカバーしている. 厚みの出力分解能は 1 nm であるが, 屈折率の入力が必要であることや信号伝達の際に誤差が乗ること, 表面形状に影響を受ける等の理由により, 絶対精度としては 0.05–0.1 μm となる. また, 平坦性が高くなければ正確な測定が難しく, 出力データには多くのノイズが生じる.

本研究では, 走査型白色干渉計によって測定した表面形状と組み合わせた厚み導出方を考案

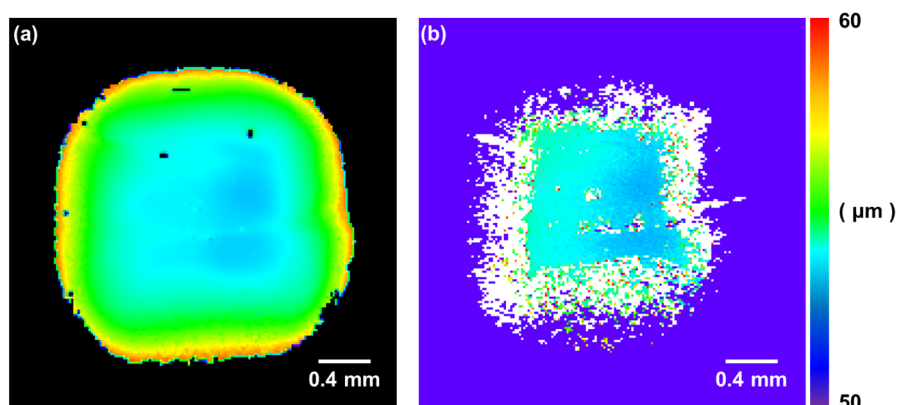


Fig. 3.21. Example of measured thickness distribution. (a) Distribution measured by a combination of a broadband IR spectro-interferometer (SI-F80R) with a Michelson-type interferometer (NewView 200HR), and (b) only by SI-F80R.

した。走査型白色干渉計は高い横、縦分解能を有し、比較的急峻な形状でも測定可能である。しかし、測定対象はあくまで表面であり、試料の傾きなどの影響を顕著に受ける。ここで、裏面は十分な平坦性を有している為、厚み分布は表面形状と高い相関を示す。従って赤外分光干渉計により測定した厚み分布を用いて表面形状の傾斜補正を行い、相対高さを絶対厚みへと焼き直すことが可能である。提案手法により導出した厚み分布と赤外干渉分光計により測定した厚み分布との比較を Fig. 3.21 に示す。両者のプロファイルは良く一致しており、提案手法によってより高い空間分解能、より広い測定範囲が実現した。また、データのノイズも少なく、十分速度分布導出に利用可能な厚み分布の導出に成功した。

この測定手法において、表面形状測定時に試料の面内回転が加工ステージ軸と一致する必要がある。我々は、加工ステージ基準で相対位置の既知な保持領域上の3箇所加工痕スポットを打つことでこの課題を克服した。このスポットにより測定領域との相対位置も決定することが可能である為、位置誤差による加工精度の低下も防ぐことが可能である。

測定した厚み分布を用いてプラズマの走査速度分布を計算し、厚み均一化を行う。幾度か繰り返すことで高い厚み均一性を得る。実際は目的厚みよりも比較的大きな厚みを有している時に厚みの均一化を行い、等速走査によって厚みの微調整を行った。これにより使用した装置の測定範囲以下の厚みを有する結晶も作製可能となる。PCVMの加工精度は誤差2%程度であるため、等速走査によって5 μm 除去したとしても、100 nm 以下の誤差しか生じないため問題ない。

以上、加工手順を Fig. 3.22 にまとめる。本手法により最終的に得られる有効分割領域の大きさは走査型白色干渉計の測定可能範囲に制限される。結晶 Type I の場合、薄い領域とテーパ面との境界領域においては、急激な表面形状の変化によりプラズマが不安定となる。その結果干渉計では測定不可能な表面の傾きが生じ、最終的な測定可能範囲は ~ 3 mm 角となる。測定範囲のエッジ周辺も Fig. 3.21a のように急峻な形状を有している為、厚みの均一化は困難であり、有効領域は更に制限される。結晶 Type II の場合は薄化領域の大きさを自由に設定できる為、7 mm $\times$ 3 mm といった広い有効領域が実現可能である。ただし、そのような広い領域を約 600 μm 除去する為には非常に多くの時間と労力を要する。

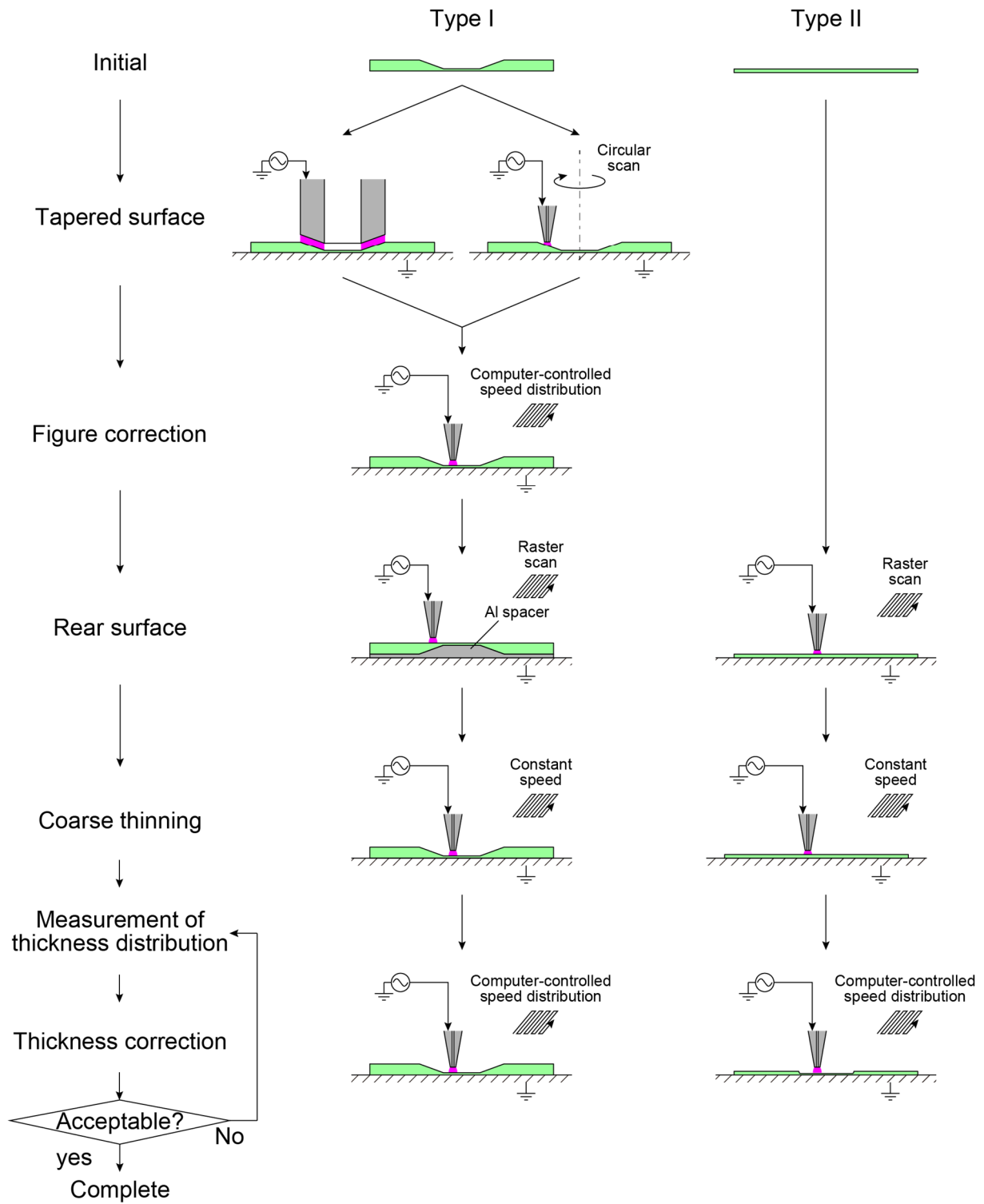


Fig. 3.22. Flow chart of PCVM processes for fabricating thin crystals.

3.3.3 加工結果と結晶性評価

本節において、作製した各種サンプルの加工結果と SPring-8 の 1 km ビームライン BL29XUL [64] において実施した結晶性評価結果を示す。サンプルリストを Table 3.2 に示す。結晶性評価のために、(+,-,-,+) に配置した 2 つの Si(444) チャンネルカット結晶(CC)を利用したセットアップと、同結晶面のコリメータ結晶とサンプル結晶とを(+,-)に配置したセットアップとの 2 種類の実験配置を用いた。前者において、2 つの Si(444) CC の利用や、X 線を 1 km 伝播させスリットでビームサイズを制限することで、高い単色性、平行性を有する X 線プローブがサンプル結晶へと入射される。高感度な評価が可能であり、薄い結晶のロッキングカーブに現れるフリンジ構造 (*Pendellösung fringe*) も解像され、厚みの評価も行うことが出来る。後者は結晶性評価に広く利用されている配置であり、(+,-) 平行配置によって分散 (バンド幅) の影響を抑制することが可能である。詳細は付録 A に示す。それぞれのセットアップにおいて反射 X 線トポグラフとロッキングカーブを測定し、結晶性の評価を行った。また、SM03–08 に対しては、様々な角度において測定したトポグラフを用いてピクセル毎のロッキングカーブを導出し、半値幅分布と中心角分布を取得した。

PCVM による極薄結晶作製の有効性を示す為、3 つの極薄結晶 (SM01–03) を作製した。ここで、SM01 のテーパー角は 20°, 前加工後の薄い領域は直径 5 mm である。そして分割・遅延光学系に使用するための結晶として、これまで 5 つの Si(220) 結晶 (SM04–08) を作製してきた。SM04, 05 のテーパー角は 15°, 前加工後の薄い領域は直径 6 mm である。以下、PCVM 加工後の厚み分布、結晶性評価結果を Fig. 3.23–30 に示す。

Table 3.2. List of samples and evaluation conditions.

Sample	Crystal design	hkl	Thickness	Setup	E_0	θ_B
SM01	Type I	440	$< 7 \mu\text{m}$	w/ Si(444) CC	9.13 keV	45.0°
SM02	Type II	333	$\sim 20 \mu\text{m}$	w/ Si(444) CC	8.39 keV	45.0°
SM03	Type II	422	$\sim 14 \mu\text{m}$	w/ Si(444) CC	8.70 keV	40.0°
SM04	Type I	220	$\sim 10 \mu\text{m}$	(+, -)	10.0 keV	18.8°
SM05	Type I	220	$\sim 10 \mu\text{m}$	(+, -)	10.0 keV	18.8°
SM06	Type II	220	$\sim 10 \mu\text{m}$	(+, -)	10.0 keV	18.8°
SM07	Type II	220	$\sim 12 \mu\text{m}$	(+, -)	10.0 keV	18.8°
SM08	Type II	220	$\sim 12 \mu\text{m}$	(+, -)	10.0 keV	18.8°

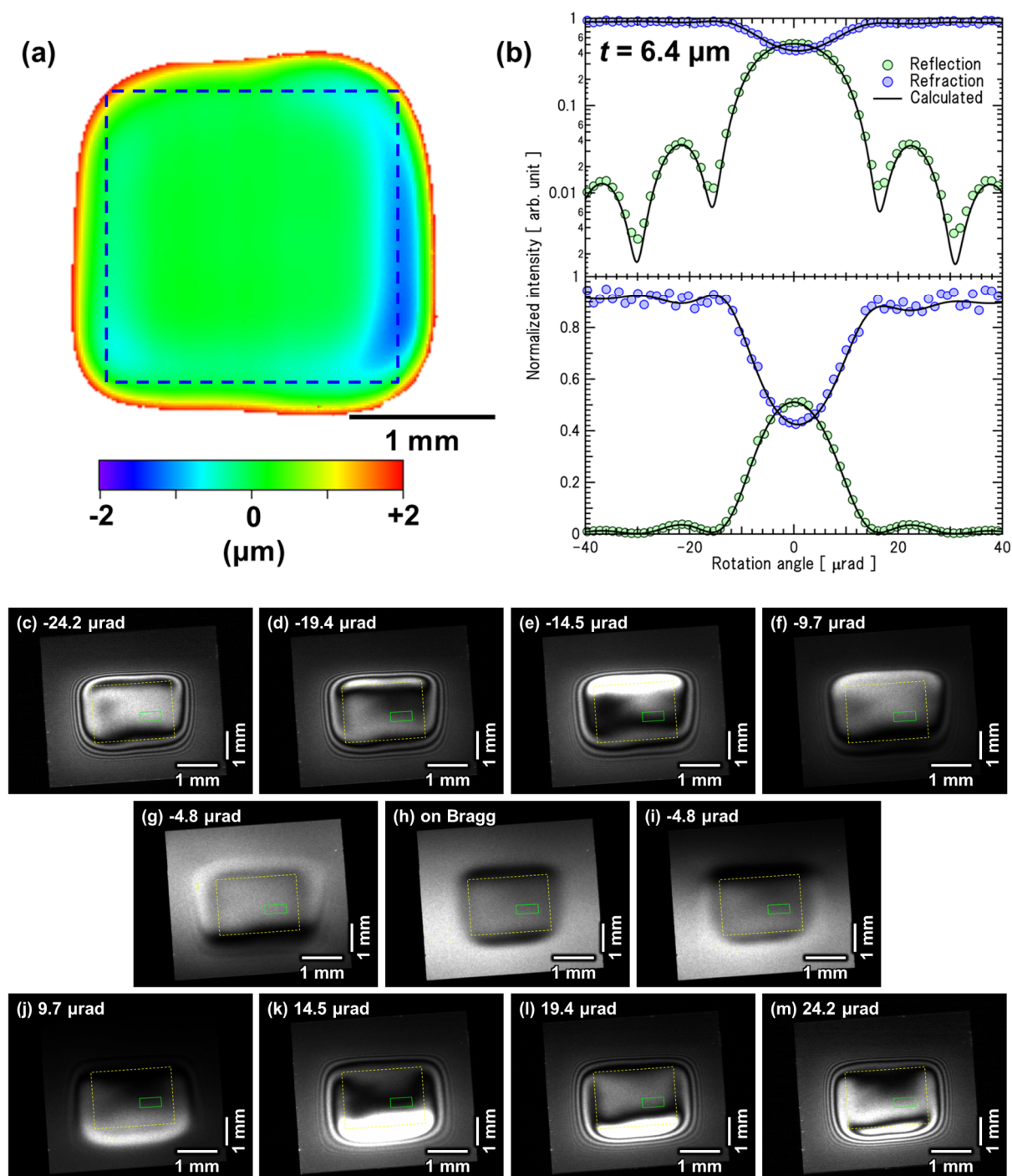


Fig. 3.23. Results of SM01. (a) Surface profile on the thin part and (b) measured rocking curves with Si(440) diffraction plane. (c)–(m) Reflection topographs at various rotation angles. Green rectangular area represents the X-ray illumination area during the rocking curve measurement.

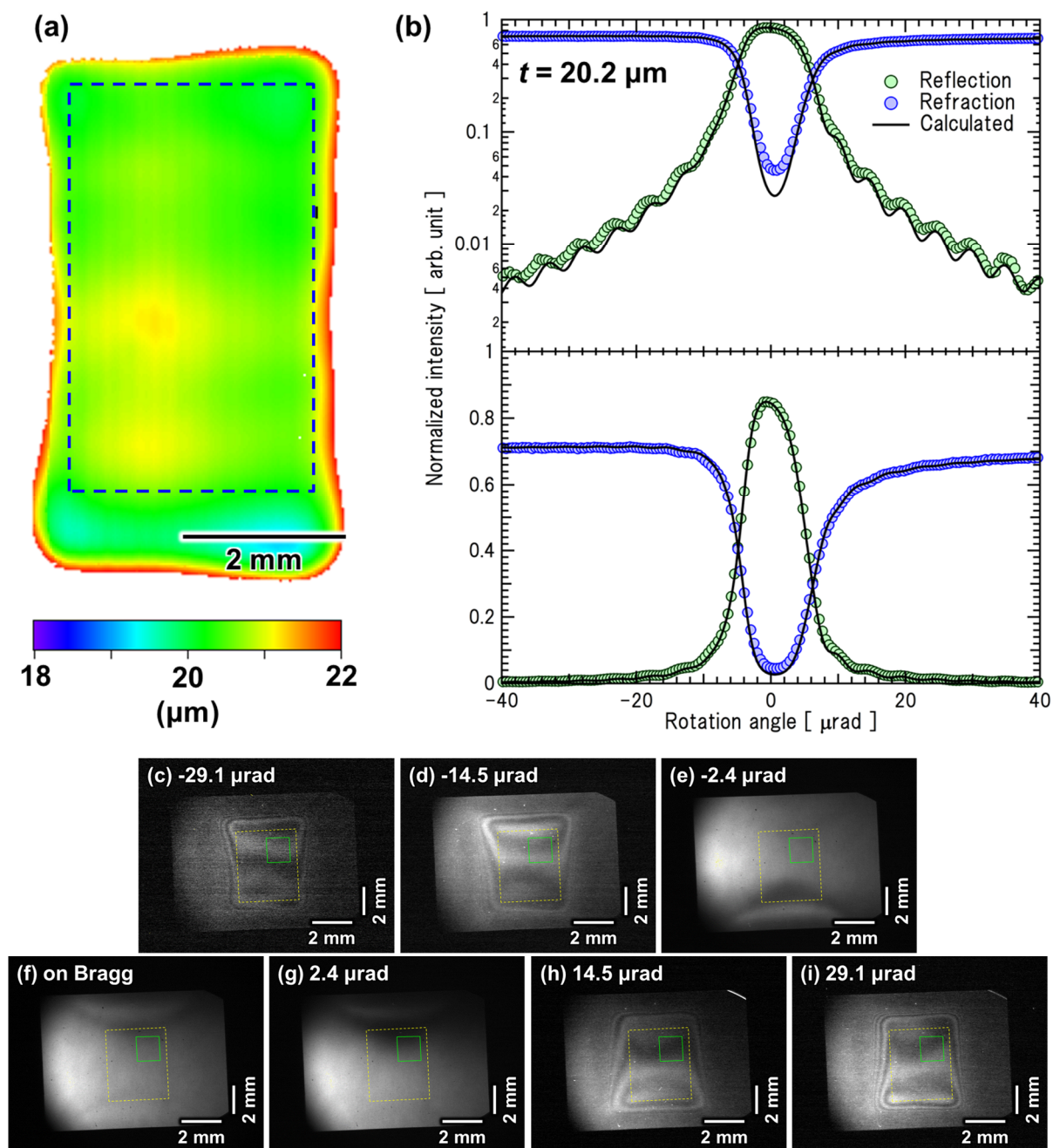


Fig. 3.24. Results of SM02. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(333) diffraction plane. (c)–(i) Reflection topographs at various rotation angles. Green rectangular area represents the X-ray illumination area during the rocking curve measurement.

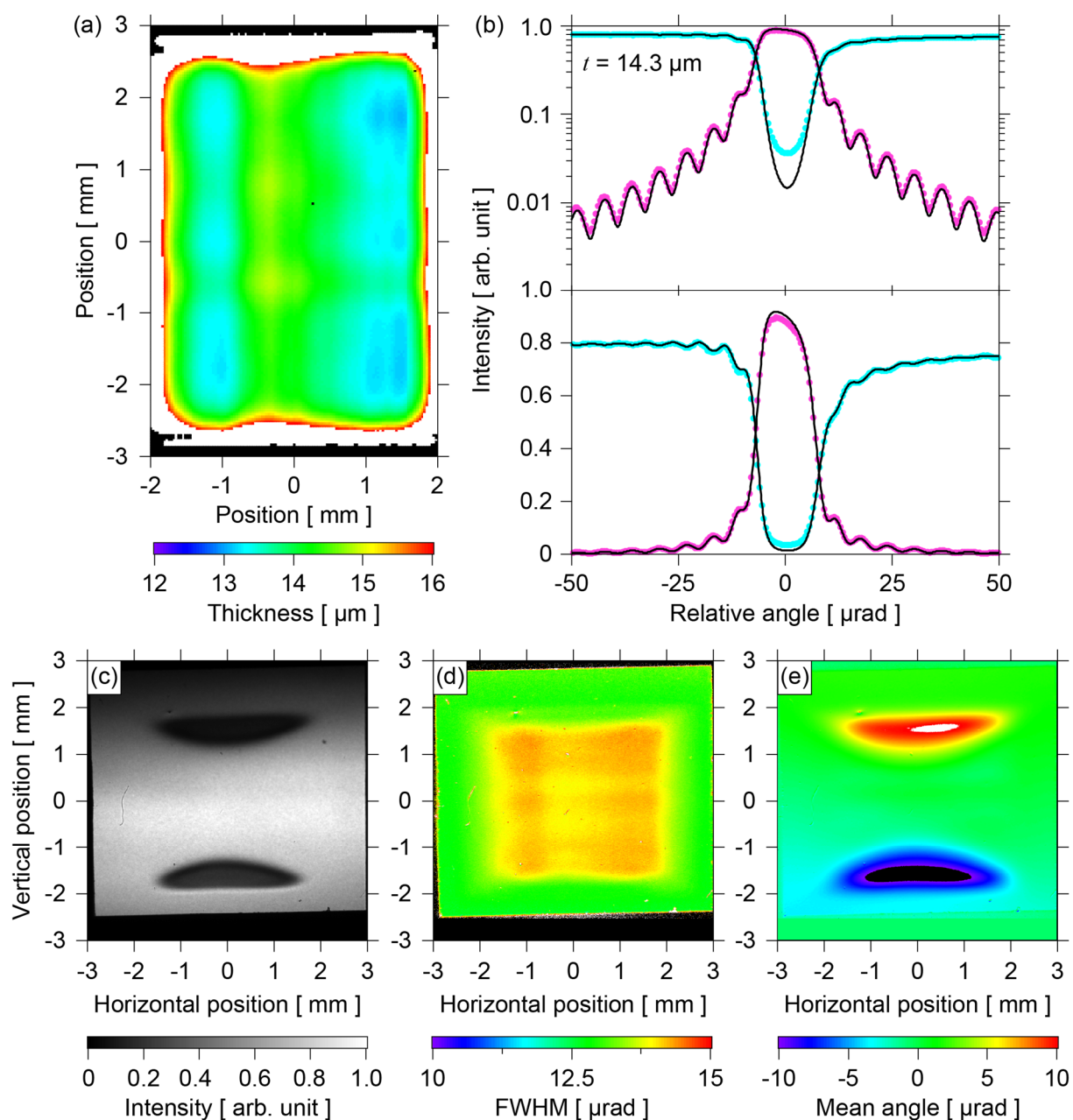


Fig. 3.25. Results of SM03. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(422) diffraction plane. (c) Reflection topograph on near the exact Bragg condition. Distributions of FWHM (d) and central angle (e) of rocking curves calculated from topographs taken at various rotation angles.

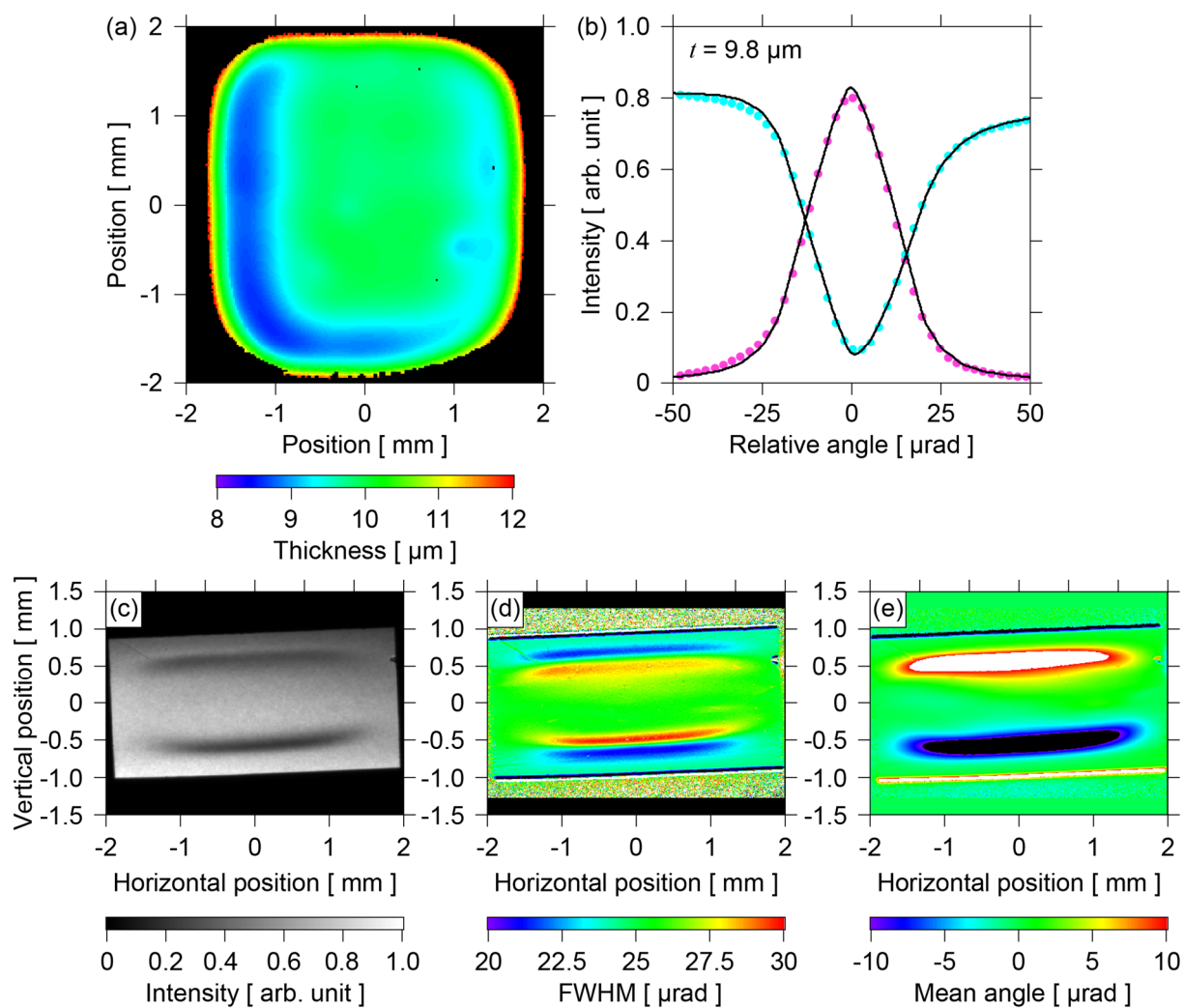


Fig. 3.26. Results of SM04. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(220) diffraction plane. (c) Reflection topograph on near the exact Bragg condition. Distributions of FWHM (d) and central angle (e) of rocking curves calculated from topographs taken at various rotation angles.

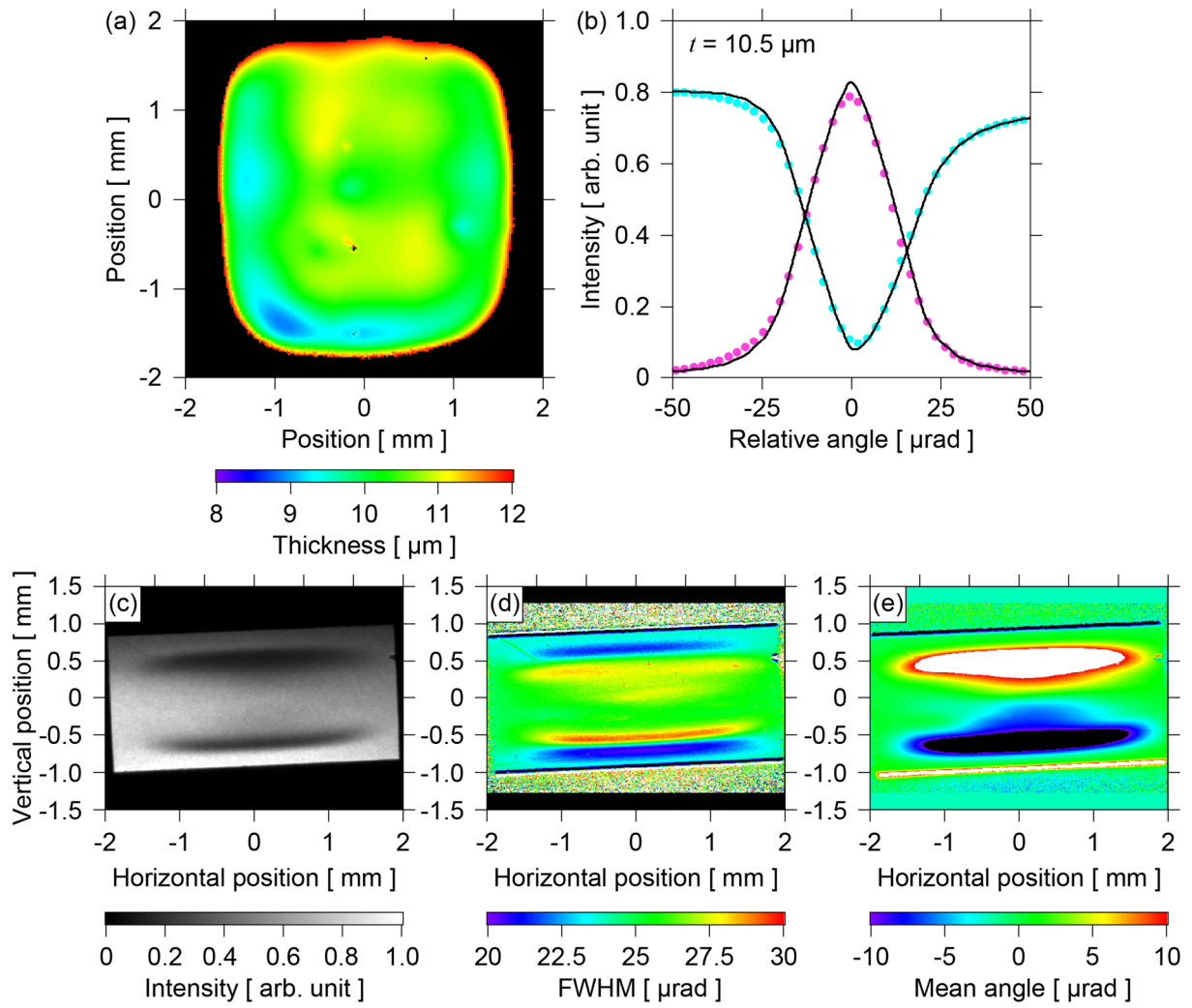


Fig. 3.27. Results of SM05. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(220) diffraction plane. (c) Reflection topograph on near the exact Bragg condition. Distributions of FWHM (d) and central angle (e) of rocking curves calculated from topographs taken at various rotation angles.

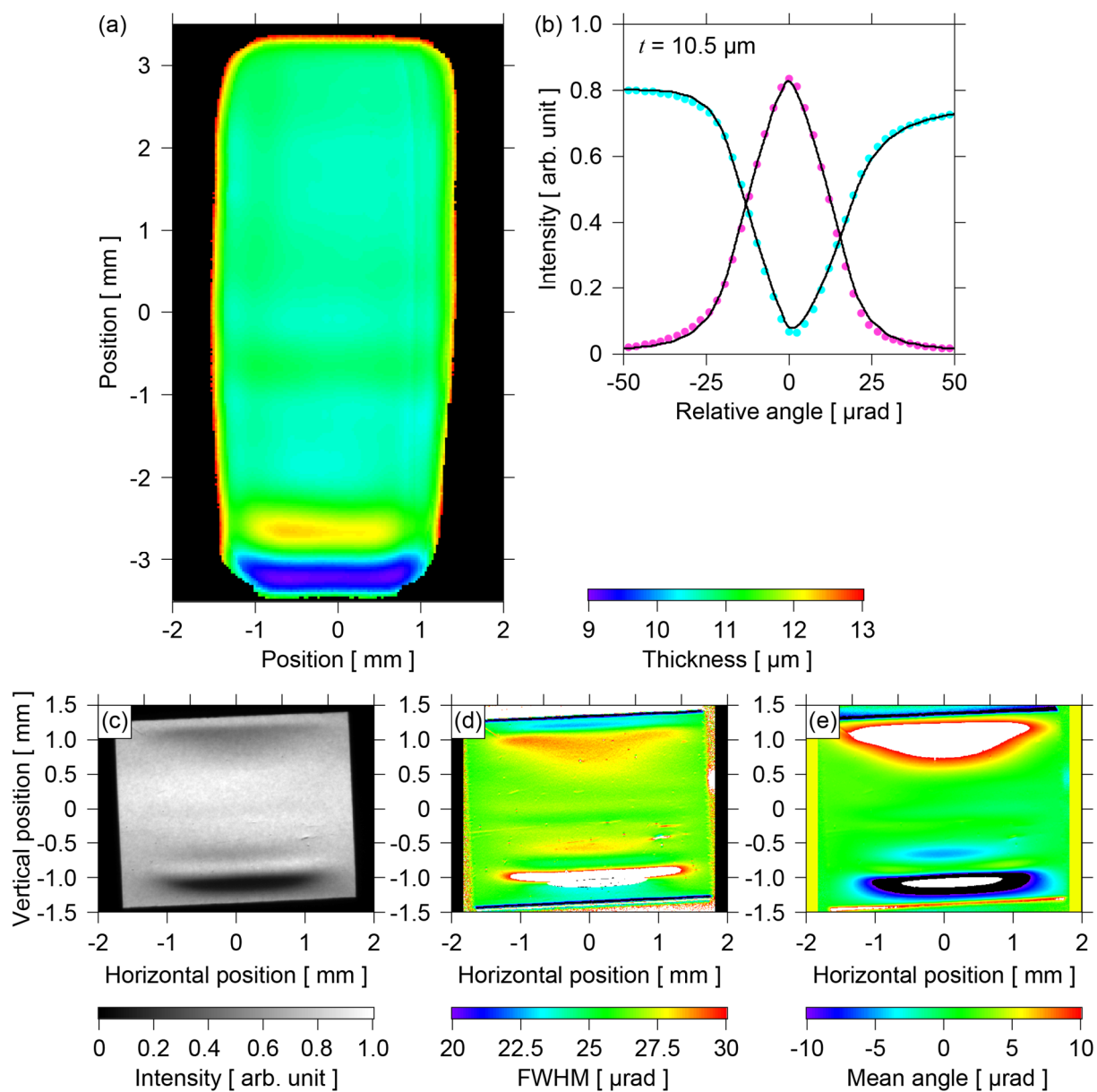


Fig. 3.28. Results of SM06. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(220) diffraction plane. (c) Reflection topograph on near the exact Bragg condition. Distributions of FWHM (d) and central angle (e) of rocking curves calculated from topographs taken at various rotation angles.

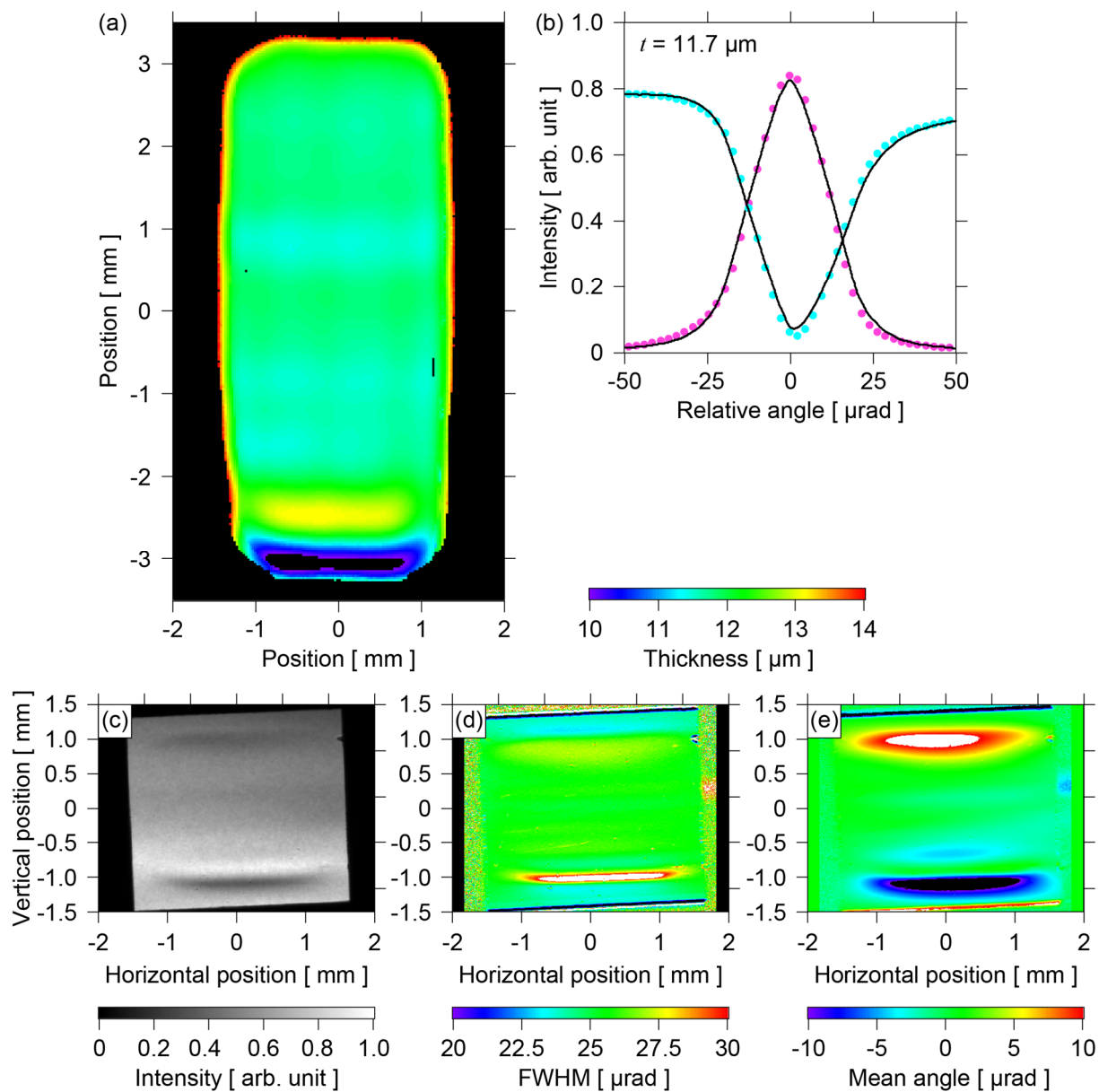


Fig. 3.29. Results of SM07. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(220) diffraction plane. (c) Reflection topograph on near the exact Bragg condition. Distributions of FWHM (d) and central angle (e) of rocking curves calculated from topographs taken at various rotation angles.

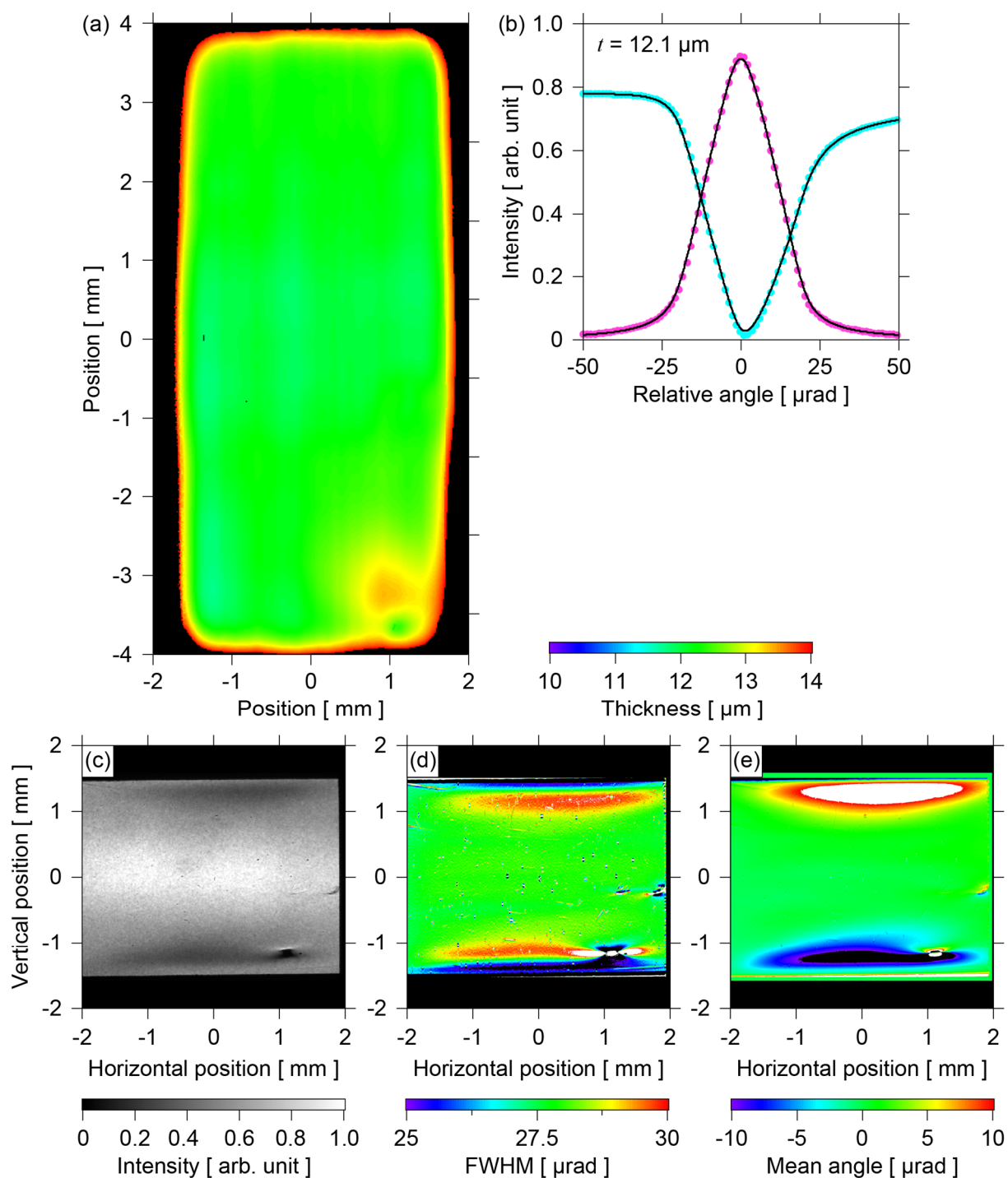


Fig. 3.30. Results of SM08. (a) Thickness distribution and (b) measured rocking curves with Si(220) diffraction plane. (c) Reflection topograph on near the exact Bragg condition. Distributions of FWHM (d) and central angle (e) of rocking curves calculated from topographs taken at various rotation angles.

SM01 は厚み 10 μm 以下において、初めて理想的な高次の Bragg 回折に成功した結晶である。明瞭な *Pendellösung* フリンジが観察でき、フィッティングにより厚みは 6.4 μm であることが確認された。また、SM02, SM03 は広い有効分割領域を有しており、結晶 Type II の有効性が示された。ロッキングカーブの角度幅は結晶完全性だけでなく厚みにも依存する。SM03 において結晶の厚み分布と良く相関のとれた角度幅分布が確認され (Fig. 3.25d), 高い結晶完全性を有していることが示された。SM03 は Roseker らのグループに提供されている。

SM04–08 は分割・遅延光学系への利用に向けて作製された結晶である。SM04, 05 は SPring-8 における光学系の性能評価実験に使用された結晶であり、SM01 よりも広い有効分割領域を有している。しかし、Si(220) 回折の Bragg 角は許容波長範囲において約 20° と小さく、更なる有効領域の拡大が不可欠であった。結晶 Type I においてこれ以上の有効領域の拡大は困難であった為、結晶 Type II を採用し、有効領域の拡大に成功した (SM06–08)。ここで、ロッキングカーブの中心角分布に注目する。この分布は格子面の傾斜分布に相当しており、反射 X 線の発散、収縮を生じさせる要因となる。測定された分布は厚み分布 (= 表面形状) との間に相関を示した。X 線の入射面は平坦性の高い裏面としており、また 10 μm という厚みは Si(220) 回折において十分厚いと言える為、透過側の表面の起伏に反射 X 線が影響を受けることは直感的には想像し難い。今後も解析を進める必要がある。ただし、PCVM 加工プロセスの改善により、現在では SM08 のように厚み均一性が高く、鉛直方向に対して 1 mm を超える有効分割領域を有する結晶の作製に成功しており、均一な中心角分布 (鉛直方向 1 mm の領域で 0.5 μrad PV 以下) が得られている。

3.3.4 有効な利用法の検討

本項では、薄い結晶を利用する際の He パージの有効性を示す。簡易的な結晶性評価の為に大気雰囲気下に結晶を配置していたが、X 線の露光時間が長くなるにつれ反射トポグラフに格子歪みの影響が確認された (Fig. 3.31)。要因として、1) X 線吸収による局所的な温度分布の発生、2) 不純物付着による膜応力の発生、の 2 つを検討した。

温度の均一化、熱伝導の向上を目的として水冷機構を導入し、大気中の不純物濃度を抑制する為結晶雰囲気を He でパージ可能なサンプルホルダを製作した (Fig. 3.32)。空気よりも熱伝導率が高いことから、He パージにより雰囲気中への熱伝導の向上も期待される。実験はこれまでと同様に SPring-8 BL29XUL の 1 km ハッチにおいて行った。サンプル結晶への X 線入射フラックスを上げるため、サンプルを第 1 結晶とする (+, -) 平行配置を用いて、反射 X 線トポグラフの経時変化を観察した。2 時間水冷+He パージ環境下において X 線を照射し続け、その後冷却を止め、ヒーター

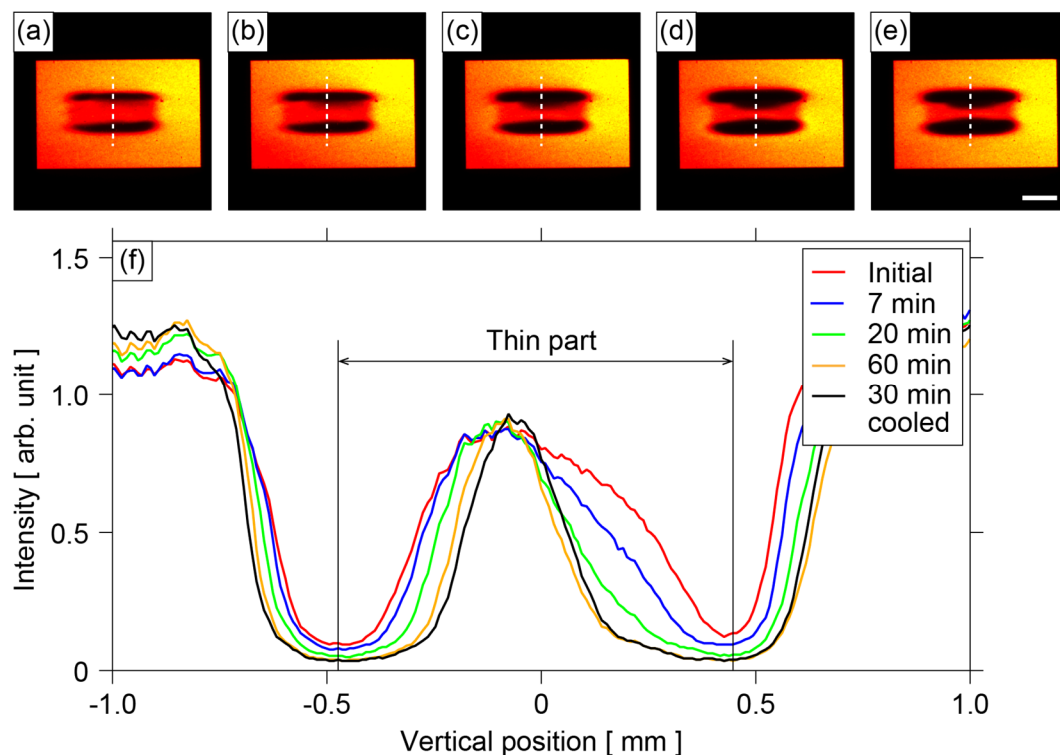


Fig. 3.31. Transition of Si(440) reflection topograph measured with a 16.325 keV X-ray probe. Topographs at (a) initial, (b) after 7 min, (c) 20 min, and (d) 60 min exposure. (e) Topograph after 30 min cooling (without X-ray exposure). Scale bar shows 1 mm length. (f) Line profiles along each white dashed lines.

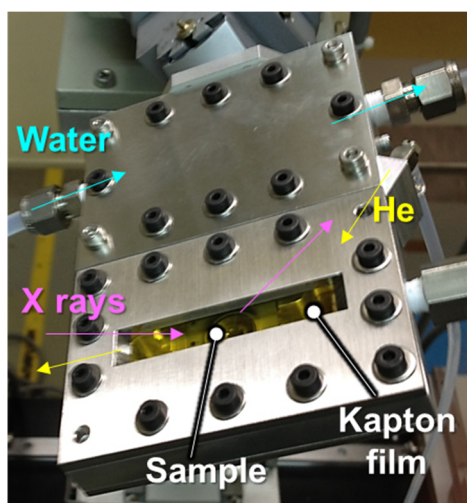


Fig. 3.32. Picture of sample holder implementing water cooling and He purge capabilities.

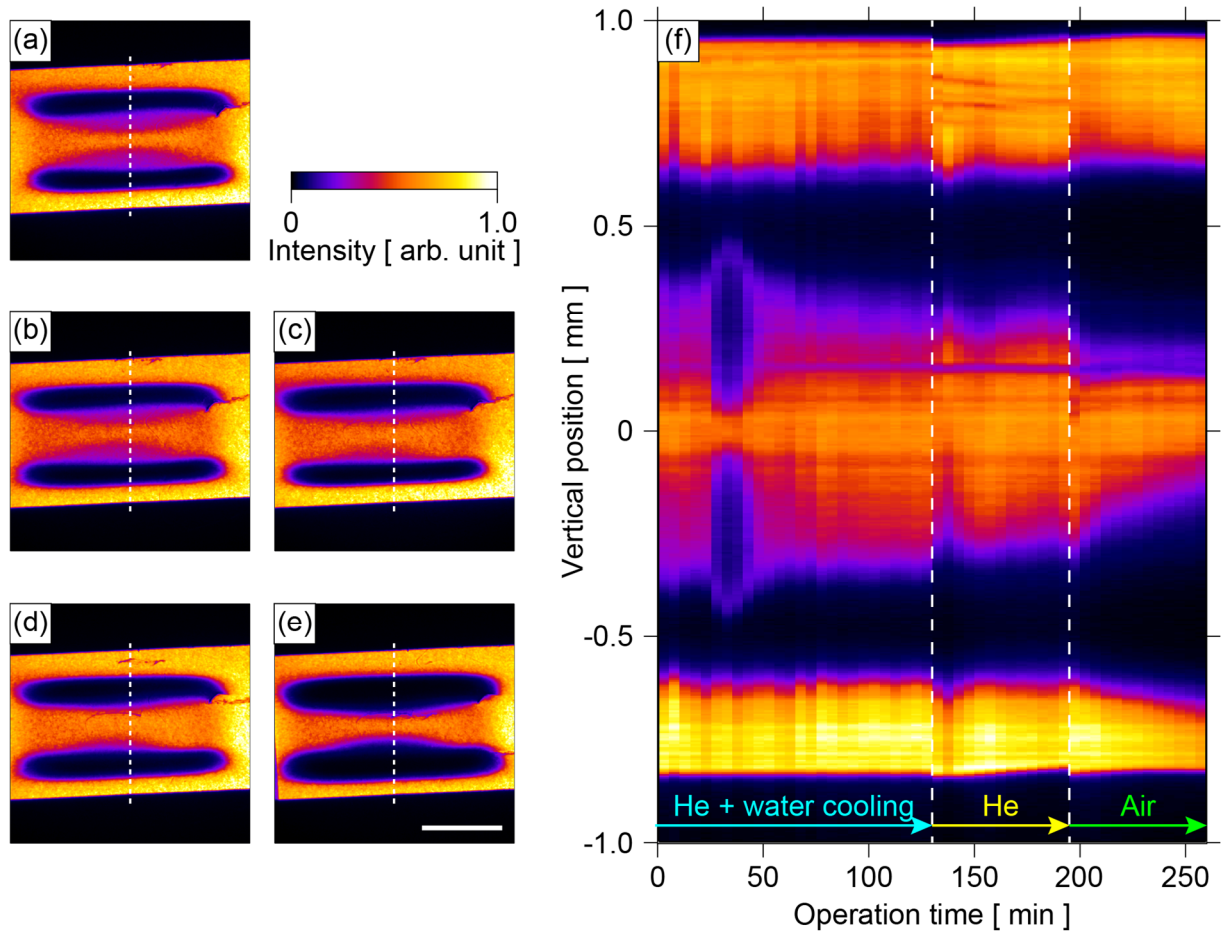


Fig. 3.33. Transition of reflection topograph from a thin Si(440) crystal operated under several conditions. Reflection topographs measured at operation times of 0 (a), 60 (b), 120 (c), 180 (d), and 240 min (e). (f) Vertical line profiles in the white dashed lines displayed in Panels (a)–(e) as a function of operation time.

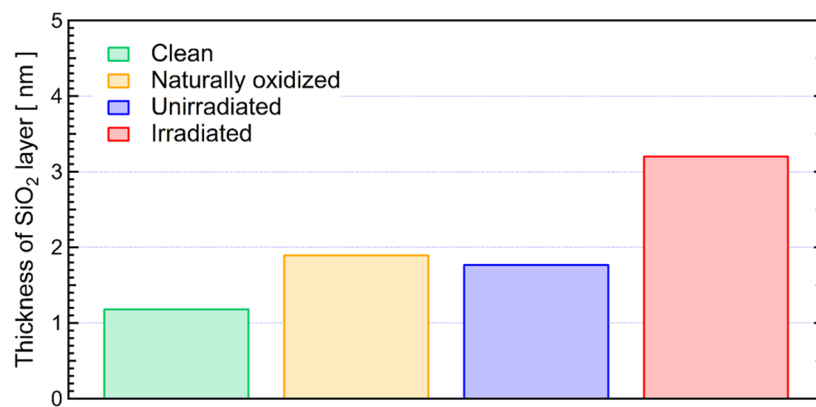


Fig. 3.34. Measured thickness of SiO₂ layer on several Si crystals.

によって1時間徐々に加熱した。そして最後の1時間は大気に開放した。

結果を Fig. 3.33 に示す。X 線の照射時間 30 分辺りにおいてトポグラフの変化が確認されたが、すぐに安定した。冷却を止めた後もトポグラフは安定し続け、大気開放後初めて歪みの成長が確認された。この結果から、歪みの成長は大気中に浮遊する不純物が X 線照射によって励起され、結晶表面に付着、その膜応力によって発生したと考えられる。付着物は目で確認することは出来なかったが、成長した歪みは硫酸過水洗浄や HF 洗浄を行うことで回復することは確認している。

X 線照射によって表面酸化が進行することが報告されていることから [65]、シリコン結晶表面の酸化膜を分光エリプソメトリによって測定した。比較対象として、洗浄直後の結晶、長時間大気中に置いて自然酸化膜が付着している結晶、そして同じ結晶の X 線照射を受けていない領域も同時に測定した。結果を Fig. 3.34 に示す。X 線を照射した領域において、他のサンプルよりも 1 nm 以上厚く酸化膜が成長していることが示唆された。測定誤差が大きく、絶対値としての信頼性は無いが、少なくとも表面状態は変化していることが確認された。不純物の付着による結晶面への歪みの導入は照射フラックスが増すにつれ大きくなると考えられるが、He パージによって抑制が可能であり、XFEL 等の高輝度光源における薄い結晶の利用において、極めて有効であると考えられる。

3.4 チャネルカット結晶の内壁面ダメージ除去

本節において、チャネルカット結晶の内壁面に存在する結晶学的ダメージを除去する為に行った PCVM 加工とその効果に関して記述する。なお、加工プロセスに関しては概略にとどめ、筆者が主体的に行った X 線による評価に関して詳細を示す。

内壁面の平坦性は既存プロセスによって十分達成され则认为される為、本プロセスの目的は表面近傍に含まれるダメージの除去であり、形状修正は行わない。極薄結晶作製の経験上、4–5 μm の除去量が必要であり、表面特性を悪化させる事なく要求除去量を達成する事が求められる。そこで Fig. 3.35 に示すような概念のもと、内壁面加工を行った。形状修正を行わないことから、1 軸走査による加工が許される。そこで円柱状の先端部を有する電極によって線状のプラズマを発生させた。反応ガス雰囲気中で電極を回転させることで、新鮮な反応ガスを常にプラズマ発生領域へ供給することが可能であり、また反応生成物は雰囲気中へと拡散される。直径 10 mm、幅 5 mm の円柱電極を用いることで、Fig. 3.36 に示すような加工痕が得られた。走査加工痕 (Fig. 3.36b) の底面部の高低差は 100 nm PV 以下であり、X 線の進入深さ ($\sim 2 \mu\text{m}$) よりも十分小さい。幅 5 mm は水平方向の空間許容幅に相当する。結晶のミスカット等の影響によりチャネルカット結晶の 2 回の反射間で水平方向にビームの位置ずれが生じる可能性があるが、2 つのチャネルカット結晶が同じ方向に 0.1° のミス

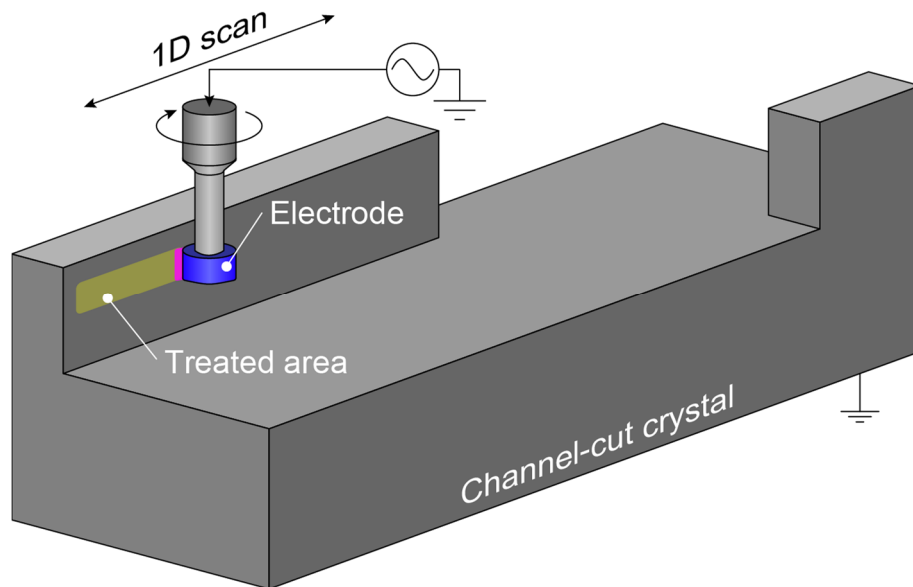


Fig. 3.35. Concept of a PCVM process at an inner-wall diffraction surface of a channel-cut crystal.

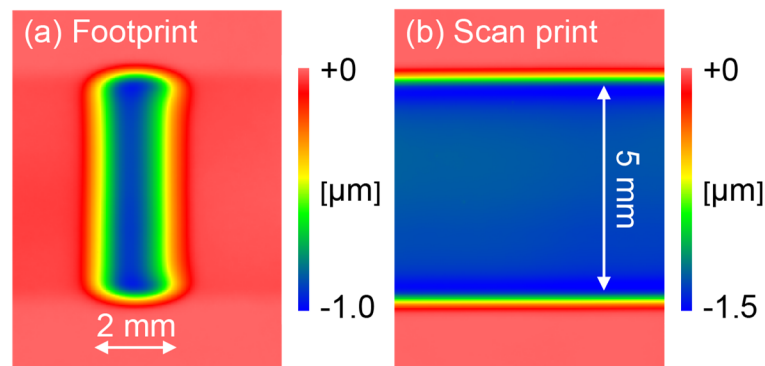


Fig. 3.36. Examples of removal profile. (a) Removal footprint and (b) scan print.

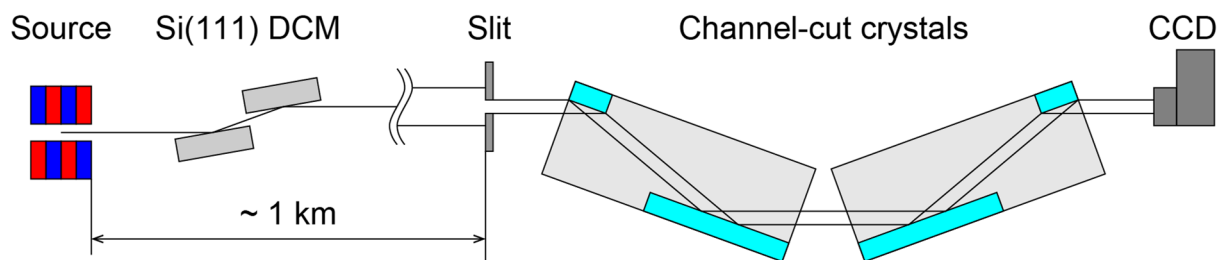


Fig. 3.37. Experimental setup for evaluation of channel-cut crystals.

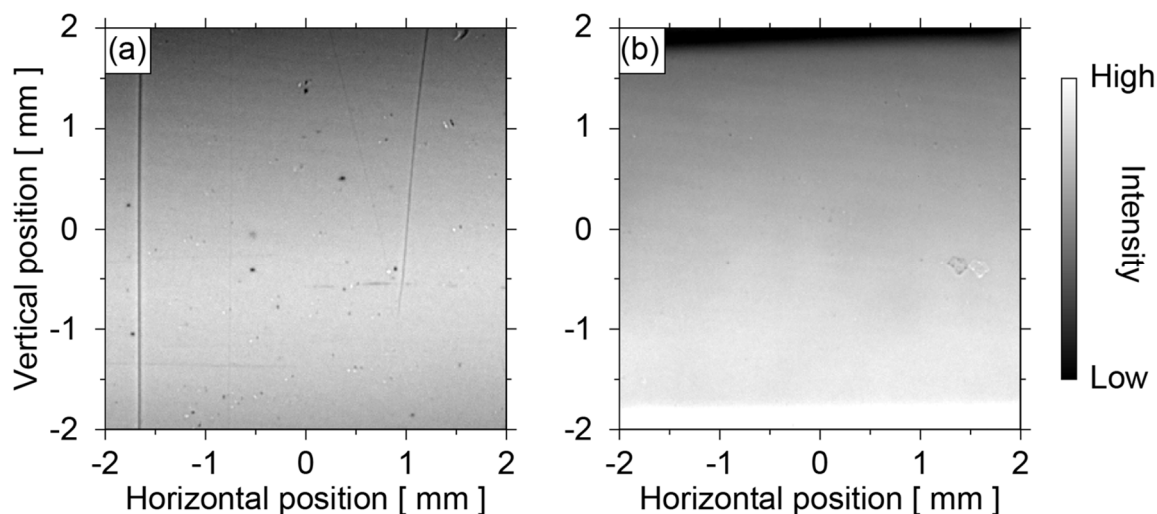


Fig. 3.38. Four-bounced reflection topograph from a pair of channel-cut crystals measured with 10 keV X-rays. (a) As-received crystals and (b) crystals after the inner-wall PCVM process. Pairs of dark and bright features originate from dusts on polyimide films lying on the beam path.

カットを有していたとしても、ビームの位置ずれ量は 1–2 mm であり、十分許容可能である。

PCVM による内壁面加工前後での回折特性を SPring-8 において評価した。実験セットアップを Fig. 3.37 に示す。分割・遅延光学系と同様に (+, -, -, +) 配置を用い、2 つのチャネルカット結晶による 4 回反射後の X 線トポグラフを CCD により取得した。なお、本セットアップでは CCD を動かすことなくダイレクトビームプロファイルを取得することが可能であり、4 回反射トポグラフの規格化に用いた。

X 線エネルギー 10 keV において取得したトポグラフを Fig. 3.38 に示す。観察領域は同一である。PCVM 加工前には数多くのスクラッチや欠陥が確認出来る。このような格子歪みは X 線の波面を乱す要因となる。一方で PCVM 加工後は歪みの影響の全く無いトポグラフが得られた。このことから、PCVM による内壁面加工によって表面近傍のスクラッチや欠陥が完全に除去されており、PCVM 加工の有効性が示された。なお、6.5–12 keV の X 線エネルギー範囲で同様の測定を行っており、6.5–11.5 keV において作製したチャネルカット結晶が使用可能である事を確認した。

本手法は電極形状を工夫することで、2 次元的な形状修正やチャネルカット結晶の薄化も可能である。更なる技術の向上により、構造的に安定なビームスプリッタ結晶や光子–光子散乱の探索に用いられる光子コライダー結晶 [66]、 μeV オーダーへの単色化が可能な Fabry–Pérot ベースの櫛結晶 [67] 等、複雑形状を有する一体型素子の作製も可能だと考えられる。

3.5 結言

本章では、極薄結晶やチャネルカット結晶の作製に用いた PCVM 加工法の基礎概念や加工特性を紹介した。そして高い構造安定性を有するビームスプリッタ結晶を 2 タイプ提案し、それぞれの加工プロセスの詳細を紹介した。試作した 8 つのサンプル結晶の加工結果と、SPring-8 において行った結晶性評価結果を示した。また、チャネルカット結晶の内壁面 PCVM 加工に関して、基礎概念と X 線の回折特性改善への有効性を実証した。以下に要点をまとめる。

- (1) 高い加工の空間分解能を得るため、先端径 0.3 mm の電極を製作し、加工条件の最適化を行った。そして半値幅 0.5 mm の静止加工痕の取得に成功し、プラズマ滞在時間に対する除去体積の高い線形性を確認した。
- (2) 様々な結晶面のシリコンウエハに対して PCVM 加工を行い、加工速度は結晶面に依存しない事を実証した。
- (3) PCVM 加工において、優先的に結晶歪みが除去され、その後加工が進行するにつれ平滑性が向上する事を示した。最終的には約 0.1 nm rms の超平滑面が得られる事を実証した。
- (4) 機械加工と組み合わせた、窓型構造を有するビームスプリッタ結晶作製プロセスを提案し、各プロセスの必要性、有効性を示した。特に、研磨時にわずかに導入される結晶学的ダメージが、極薄領域に対して致命的な影響を与える事を発見し、極薄完全結晶作製に対する実現可能性を示した。
- (5) 厚い加工変質層を有するテーパ面に対して一括 PCVM 処理可能な電極を製作し、プロセスの有効性を示した。また、テーパ面積の広い結晶に対しては、先端径の細いパイプ電極を同心円走査することで、加工生成物の再付着の無い加工変質層除去に成功した。
- (6) 裏面加工時の表面形状の重要性を示し、一旦平坦化を行うことで、均一な裏面 PCVM 加工に成功した。
- (7) 走査型白色干渉計と広帯域赤外分光干渉計を組み合わせた、縦、横両方向の分解能の高い

厚み分布測定法を開発し、高精度な厚み制御を実現した。

- (8) PCVM 加工により、高次回折面において理想的な回折特性を有する、厚み 10 μm 以下の結晶の作製に世界で初めて成功した。
- (9) 結晶 Type II の採用によって、広い範囲で良好な回折特性を示す薄い結晶の作製に成功した。
(333) や (422) 等、あらゆる結晶面に対する適用性の高さを示した。
- (10) ロッキングカーブ中心角分布と表面起伏との相関を発見し、比較的厚い結晶においても、高い平坦性が要求される事を発見した。
- (11) X 線照射によって付着するわずかな不純物膜が極薄結晶の回折特性に影響する事を発見した。
そして He パージによって抑制が可能である事を実証した。
- (12) 円柱型の回転電極を用い、チャンネルカット結晶内壁面の表面歪み除去を試みた。X 線を用いた評価によって、内壁面 PCVM 処理の有効性を示した。

第 4 章

アライメント手法

4.1 緒言

本章において、分割・遅延光学系として機能させる為に重要な、分割パルスの空間的な重複を達成する為のアライメント手法に関して記述する。分割パルスの光路は素子の姿勢誤差の影響を受け、理想的な光路から外れる可能性がある。分割・遅延光学系下流のある面において両分割パルスを空間的に重複させることは、2次元検出器を用いたトライ&エラーの繰り返しにより比較的容易に達成されるが、高い光子密度や、XPCS 実験において大きな個々のコヒーレントスペckルを得る為、XFEL パルスの集光は必須であり、集光した XFEL パルスを 2 次元検出器によって観察することは現実的ではない。更に、光学素子の姿勢調整に対して、分割パルスの位置は集光面において直感とは異なる動きをすることがある。本章では、あらゆる集光素子利用時において有効なアライメント手法を、主に幾何学的な視点から考察する。また、光線追跡を用いて、素子の回転ステージに要求される分解能を調査する。そして波動光学計算により裏付けを得る。

4.2 集光の原理とアライメント誤差の影響

第 2 章で述べたように、2 つのチャネルカット結晶を通った lower ビームの光軸に対して、入射光との平行性が保証される。また、遅延変更の際に lower パスの調整は行わないため、lower ビームの光軸をアライメントの際の参照軸として利用出来る。従って、アライメントの目標は、upper ビームの光軸を調整し、集光面において分割ビームを空間的に重複させる事である。ここで、2 枚目の極薄結晶である BM における upper ビームの位置誤差を $\Delta_{x,z}$ 、分割・遅延光学系下流における角度誤差を $\Delta'_{x,z}$ と置く。下付き文字は方向を示し、 x, z はそれぞれ水平、鉛直方向となる。本節ではこれらのパラメータと集光面における位置誤差との関係を幾何学的な視点から明らかにする。

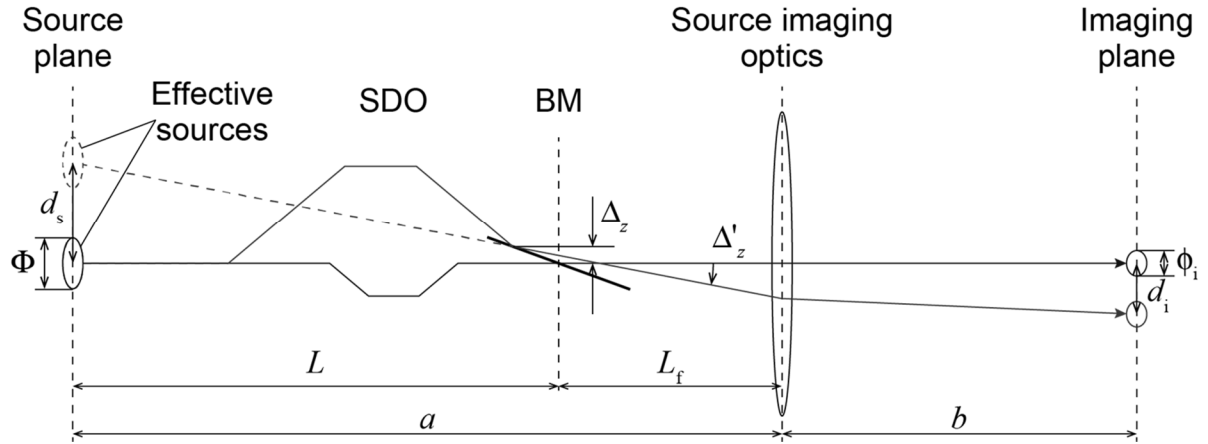


Fig. 4.1. Side view of conceptual diagram of source imaging with a thin lens combined with the split-and-delay optics (SDO). Effective source position of the upper beam is assumed to be located on the intersection between a back-propagating beam path from BM (red dashed line) and the source plane.

X線の集光には、一般的に“光源の縮小結像”が用いられる。薄レンズを用いた縮小結像の概念図を Fig. 4.1 に示す。結像素子の幾何倍率 M は以下ようになる。

$$M = b/a \quad (4.1)$$

ここで、 a は光源から素子までの距離、 b は素子から結像面までの距離である。幾何学的視点から、結像面におけるビームサイズ ϕ_i は、 $\phi_i = \Phi M$ となる (Φ は光源サイズ)。従って、 $a > b$ となるように結像素子を配置することで、X線の集光が達成される。なお、実際の集光サイズは結像素子の開口数 (numerical aperture, NA) にも依存するが、幾何倍率以下への集光は不可能である為、 ϕ_i が達成可能な最小ビームサイズとなる。

分割・遅延光学系の upper パス内の素子のアライメント誤差により Δ と Δ' が導入されたとする。これらビームの位置、角度変化は実効的な光源位置を変動させる。実効的な光源位置を、BM から後方に進行するビーム光路と光源面との交点と考えると、upper ビームの光源位置誤差 $d_s^{x,z}$ は、

$$d_s^{x,z} \approx \Delta_{x,z} - L\Delta'_{x,z} \quad (4.2)$$

と近似出来る。ここで、光源面から BM 中心までの距離を L と置いた。このような光源の位置誤差を

有する upper ビームは, 結像面においても同様に, lower ビームとは異なる位置に集光される. 結像面における位置誤差 $d_i^{x,z}$ は幾何学的に

$$d_i = \pm d_s M \quad (4.3)$$

となる. 符号は使用する結像素子に依存し, Fig. 4.1 の場合はマイナスとなる. 各分割ビームの光源は同様な振幅, 位相分布を有していると考えられる為, それぞれが干渉しない場合, 式(4.3)の関係は NA に依存することなく満たされる. 式(4.2)を(4.3)に代入すると,

$$d_i^{x,z} \approx \pm M (\Delta_{x,z} - L \Delta'_{x,z}) \quad (4.4)$$

が得られる. 精密な実験を行う為には, $|d_i|$ が集光ビーム径 ϕ_i よりも十分小さい必要がある. ここで, 以下のような目標値を設定する.

$$|d_i| < \phi_i / 4 \quad (4.5)$$

発散角が極めて小さい(光源サイズが大きい)場合, “後ろ焦点面”における集光も有効である. 幾何学的に, 同一角度で結像素子に入射した光線群は全て後ろ焦点面上の一点に集まる. 幾何学的集光サイズ ϕ_{bf} は, $\phi_{bf} = f \Omega$ となる. ここで f は結像素子の焦点距離, Ω はビームの発散角である. 後ろ焦点面上での位置誤差 $d_{bf}^{x,z}$ は, Δ に依存せず,

$$d_{bf}^{x,z} = \mp f \Delta'_{x,z} \quad (4.6)$$

と表される. 本論文ではこれ以上言及しない.

更なる現実的な基準として, X 線フラックスの取りこぼしを防ぐ為, 結像素子位置における upper ビームの位置誤差 $|d_f^{x,z}|$ を素子の開口よりも十分小さくする必要がある. 位置誤差 $d_f^{x,z}$ は以下のよう
に書ける.

$$d_f^{x,z} \approx \Delta_{x,z} + L_f \Delta'_{x,z} \quad (4.7)$$

ここで, L_f は BM から素子までの距離である. 集光面における完全空間重複を達成した場合 ($d_i = 0$ μm), 式(4.4), (4.7), そして $a = L + L_f$ から,

$$d_f^{x,z} \approx \frac{a}{L} \Delta_{x,z} \approx a \Delta'_{x,z} \quad (4.8)$$

となる. 開口サイズ $W_f^{x,z}$ の素子に対する目標値を以下のように設定する.

$$|d_f^{x,z}| < W_f^{x,z} / 4 \quad (4.9)$$

SACLA の BL3 [68] に常設されている, 全反射楕円集光ミラーに基づく2つの集光光学系(集光サイズ 1 μm [69] と 50 nm [13])に関して, 要求される Δ と Δ' の精度を簡単に見積もる. それぞれの光学系のパラメータを Table 4.1 にまとめる. 幾何倍率は光学系によって大きく異なるものの, $|d_i| < \phi_i / 4$ を満たすために要求される $|d_s|$ の値はいずれも 15–20 μm となった. ここで, 目標(4.5)に関して, 分割パルス間に角度誤差が無い場合 ($\Delta' = 0$) と位置誤差が無い場合 ($\Delta = 0$) を考える. 前者において, $\Delta_{x,z} = d_s^{x,z}$ と置ける為, $|\Delta|$ は 15 μm 以下とする必要がある. また後者において, $L \sim 100$ m とすると, $|\Delta'| < 0.15$ μrad を満たす必要がある. 式(4.4)に着目すると, 位置, 角度誤差は, もう一方の調整により補完可能である為, これらの値は分解能に対する要求とみなせる. 一方で, 目標(4.9)に対して, $a \sim 120$ m である為, 絶対値として $|\Delta| < 125$ μm , $|\Delta'| < 1.25$ μrad を満たす必要がある.

Table 4.1. Parameters of two focusing systems installed at BL3 of SACLA.

System	Direction	a (m)	b (m)	M	$W_f^{x,z}$ (μm)	ϕ_i	Tolerated $ d_s $
1 μm	V	~ 120	2.00	$\sim 1/60$	632	1 μm	15 μm
	H	~ 120.45	1.55	$\sim 1/78$	615	1 μm	20 μm
50 nm	V (1st)	~ 120	6.52	$\sim 1/2300$	585	30 nm	17 μm
	V (2nd)	72.780	0.582		2275		
	H (1st)	~ 120.45	6.07	$\sim 1/1285$	585	55 nm	18 μm
	H (2nd)	72.247	1.115		2695		

4.3 アライメント手順

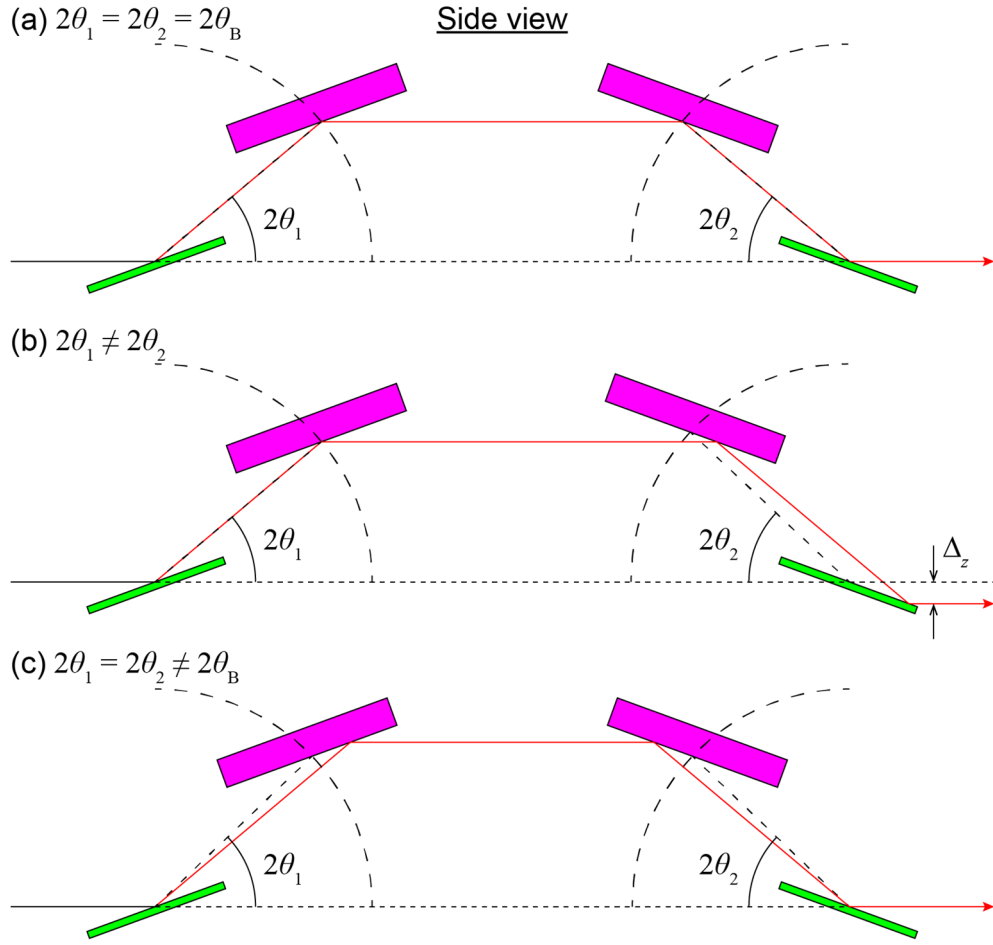
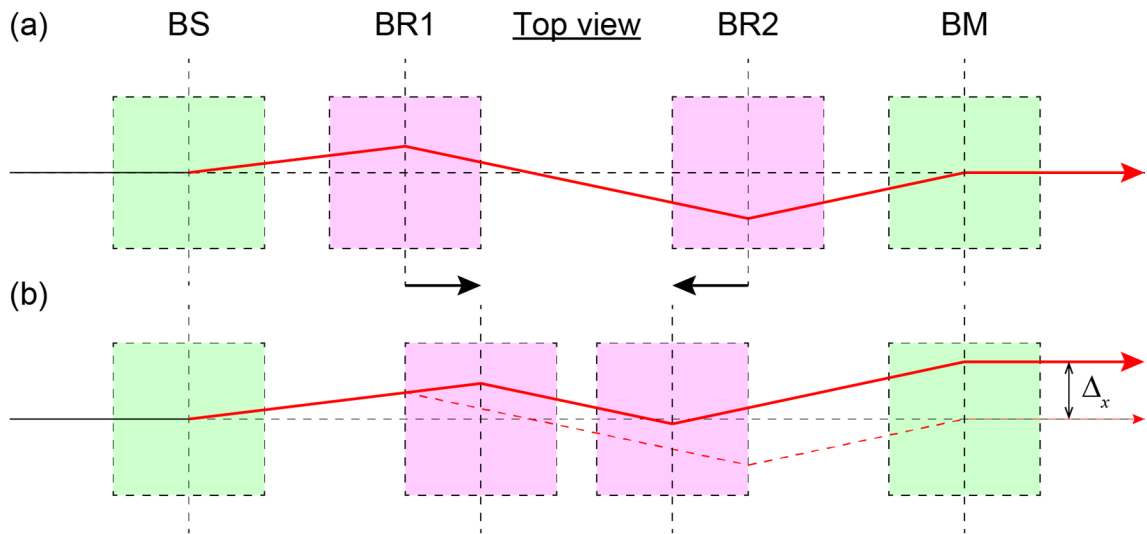
4.3.1 調整軸の検討

Upper ビームの方向は、各結晶素子の χ 軸, ω 軸 (Fig. 2.1 を参照) 回転によって水平, 鉛直方向に変化させられる。ただし, Bragg 回折による反射強度は ω の誤差に極めて敏感であり, ω の誤差は慎重な調整により自ずと数 μrad 以下に抑制される。BS から BM 間の距離 l_0 は約 1 m であることから, ω 誤差起因の Δ_z は数 μm に留まると考えられる。ただし, 遅延変更の際の移動軸となる $2\theta_1$ と $2\theta_2$ との間に差がある場合も BM 位置において鉛直方向のビーム位置誤差が生じる (Fig. 4.2)。この時, $2\theta_1 = 2\theta_2$ でさえあればよく, X 線のパス ($2\theta_B^p$) と平行である必要は無い (Fig. 4.2c)。従って, $2\theta_1$ か $2\theta_2$ のいずれかの調整で十分であり, 下流側の $2\theta_2$ の調整による Δ_z の抑制が最も効率が良い。

水平方向に関して, 反射強度は χ 誤差に鈍感な為比較的大きな χ の調整が許される。逆に言うと, Bragg 条件を合わせ, 十分な反射強度を得たとしても χ 誤差の抑制にはならず, 大きな誤差が残存する可能性がある。しかし, 比較的大きな, なおかつ未知の χ 誤差を全ての結晶が有していたとしても, Δ_x の抑制は BS, BR1, BR2 のいずれかの結晶の χ の調整だけで可能である (Fig. 4.3a)。この時, χ の回転量に対する Δ_x の変化は調整した結晶後の光路長が長いほど大きくなる。反射強度が χ 誤差に鈍感とは言え, 大きな χ 誤差は好ましくない。従って, 最も光路長の長くなる BS 結晶の χ を調整することが望ましい。また, χ 調整による他の軸への影響を考慮した際, 高安定なゴニオメータに固定された BS 結晶を調整する事で, 影響を最小限に抑えることが可能である。

Δ が十分抑制された場合, 残存する角度誤差 Δ' は水平, 鉛直両方向とも BM 結晶の調整のみで除去可能である。分割ビームの集光位置を確認しながら微調整することで, 集光面における空間的重複が達成される。

ここで, 遅延時間を変更 (BR 結晶を移動) する場合を考える。もし初期位置において χ_{BS} の調整により $\Delta_x = 0$ を実現 (Fig. 4.3a) したとしても, 遅延時間変更時に新たな Δ_x が生じ得る (Fig. 4.3b)。これは BR1 結晶と BR2 結晶の χ に差がある場合に生じる。 $\chi_{BR1} = \chi_{BR2}$ の時, χ_{BS} の調整により $\Delta_x = 0$ を実現すると upper ビームの光路は台形となる (top view)。そのような台形パスが実現された際は, 遅延変更時でも水平方向のビーム位置の変位は生じない。この調整も 2θ と同様に, 下流側の BR2 結晶の調整が最も効率が良い。

Fig. 4.2. Expected beam paths at different angular mismatches between $2\theta_1$ and $2\theta_2$.Fig. 4.3. Influence of mismatch between χ_{BR1} and χ_{BR2} . Example of beam path before (a) and after (b) delay change ($\chi_{BR1} \neq \chi_{BR2}$).

4.3.2 アライメント手順の検討

ここでは具体的なアライメント手順を紹介する. 実際の実験した経験を踏まえて記述する事になる為, 読み飛ばしてもらって構わない.

まず, チャンネルカット結晶を含め, 全結晶の位置を調整する. 第 3 章で記述の通り, 本光学系で用いられる極薄結晶は中央部のみ薄い構造となっており, 基本的な方針として X 線の光軸がその中央部に来るように配置すればよい. 従って透過光強度の結晶位置依存性を測定し, その重心位置に結晶を配置する. チャンネルカット結晶に関しては, 水平, 鉛直方向のエッジ位置を同様に測定し, その位置を基準として配置する. チャンネルカット結晶は正しい位置に配置後すぐに ω を調整し, 基準となる lower ビームの光軸を出す. その lower ビームの光軸を基準として BM を配置する. なお, 結晶の有効領域はビームサイズに対して十分大きい為, これらの手法による精度は十分要求を満たす.

全結晶の ω を調整し, upper ビームを分割・遅延光学系下流まで通す. ここで, 分割・遅延光学系のすぐ下流に 2 次元検出器を配置し, 両分割ビームの位置を確認する. 大まかに平行性を出す為, さらに下流にもう 1 つ 2 次元検出器を配置することが望ましい. 初期の状態では upper パス結晶の χ 誤差が未知である為, 非常に大きな水平方向のビーム位置誤差が生じている可能性がある. BM を透過した X 線強度を測定する BIM3 (Fig. 2.3 を参照) の強度基準で χ_{BS} を大まかに調整する (この時 BM の ω は大きくずらしておく). また, 1 つ目の検出器における分割ビーム間の位置誤差 Δ_{Det1} が

$$\Delta_{Det1} \approx \Delta \quad (4.10)$$

とみなせる程度に 2 つの検出器を用いて平行化しておく. その際の精度は BM から 1 つ目の検出器までの距離に依存する. ω の誤差 (Δ'_ω) は十分抑制されているため, 水平方向に関してのみ平行化を行う. 2 つ目の検出器の位置にもよるが, BM から十分離れているのであれば, lower ビームの水平位置に upper ビームを調整するだけでよい.

ここから前項で検討した軸を調整する. これまでの過程で Δ_ϵ の抑制は行えていない為, まず $2\theta_2$ の調整を行う. この時, 1 つ目の検出器において大きな鉛直方向のビーム位置誤差が生じている場合は注意が必要となる. 作製した極薄結晶の有効領域は, 鉛直方向に対しては比較的小さく, また有効領域エッジ部において大きな波面の乱れが生じる可能性がある. 従って, 必要に応じて $2\theta_2$ 調整用のダミー結晶を用いる (ただし, $2\theta_2$ の回転量に対する Δ_ϵ の線形性を求めない場合は特に必要ない). 次に, 2 次元検出器を用いて χ_{BS} を調整する. この時, 式 (4.10) を満たす程度に χ_{BM} も同時に

1. Positional adjustment
 - 1-1. BS, CCs w/ original beam path
 - 1-2. ω_{CCs} adjustment
 - 1-3. BM w/ lower beam path
2. Observation at Det1
 - 2-1. ω adjustment (BS, BRs)
 - 2-2. Rough χ_{BS} adjustment w/ BIM3
 - 2-3. ω_{BM} adjustment
3. Minimization of Δ
 - 3-1. $2\theta_2$ adjustment w/ optional dummy
 - 3-2. Rough parallelization w/ Det2 (H)
 - 3-3. χ_{BS} adjustment w/ Det1
4. Spatial overlap at focal plane
 - 4-1. Alignment of focusing system w/ lower beam
 - 4-2. BM adjustment
5. Time-delay change
 - 5-1. Linearity check of Δ_x
 - 5-2. χ_{BR2} adjustment

Fig. 4.4. Alignment procedure.

調整する必要がある。

これら Δ の抑制は、理想的には検出器のピクセルサイズスケールまで行いたいところではあるが、実際にはビームサイズの 1/10 程度が限界である。スリット等のエッジを用いればピクセルサイズレベルの調整は可能となるものの、そのような調整は多くのデータ取得や解析を必要とし、非常に手間がかかる。前節での議論の通り、光源からの距離 L が大きい場合は $50\ \mu\text{m}$ を目安とし、比較的ラフな調整で構わない。 L の小さな光学系においても、後述する反復法を用いることで Δ の抑制は可能である為、ピクセルサイズレベルの調整は必要ない。

Δ の抑制が完了した後、集光面における各分割ビームの位置を確認し、BM 結晶のみの調整により upper ビームを lower ビームと重複させる。その際の ω の調整量は $1\ \mu\text{rad}$ 以下と考えられる為、強度への影響は極めて小さい。

以上の手順で集光面における重複は達成されるものの、前項で述べたように、 χ_{BR} 間の誤差によ

る水平方向のビーム位置ずれが遅延時間変更時に生じる可能性が高い。BR 結晶の移動量 ΔD に対する水平方向のビーム位置ずれは線形的となる為、その傾きを測定する。この時、 χ_{BR2} を調整するたびに χ_{BS} の調整により $\Delta_x = 0$ を実現しなければ、 $\Delta_x \neq 0$ の位置に収束する可能性がある。ただし、BR 結晶の移動に伴うピッチング、ヨーイング、ローリングによる結晶の姿勢変化の影響が懸念される為、現実的には χ_{BR} の調整は難しい。実際に、これまで姿勢変化が支配的であり、 χ_{BR} の調整は行っていない。

以上、アライメント手順を Fig. 4.4 にまとめる。現状直進ステージの安定性が不十分である為、プロセス 5-1, 5-2 は行わずに、プロセス 4-2, もしくは必要に応じて 3 を行うこととなる。

4.4 回転ステージの要求分解能

本節において、前述のアライメント手法を達成する為に要求される回転ステージの分解能を幾何学、光線追跡に基づいて検討し、波動光学計算との比較を行う。

4.4.1 幾何学による見積もり

本項では、幾何計算に基づき要求分解能を簡単に見積もる。本光学系において、upper ビームの方向は各結晶の χ , ω 回転によって以下のように変化する。

$$\begin{aligned}\delta\Delta'_x &= 2\delta\chi \sin\theta_B^{\text{up}} \\ \delta\Delta'_z &= 2\delta\omega\end{aligned}\tag{4.11}$$

ここで、 $\delta\Delta'_{x,z}$ は角度の変化量である。また、 χ_{BS} , $2\theta_2$ の調整により、BM 位置におけるビーム位置の変化 $\delta\Delta_{x,z}$ は以下ようになる。

$$\begin{aligned}\delta\Delta_x &\approx 2\delta\chi_{BS} \sin\theta_B^{\text{up}} l_{\text{up}} \\ \delta\Delta_z &\approx -\delta 2\theta_2 D \sin 2\theta_B^{\text{up}} \cot\theta_B^{\text{up}}\end{aligned}\tag{4.12}$$

ここで、 $\delta\chi_{BS}$, $\delta 2\theta_2$ はそれぞれ χ_{BS} , $2\theta_2$ の調整角度である。また、 l_{up} は upper ブランチの光路長であり、以下のように書ける。

$$l_{\text{up}} \approx l_0 + 2D(1 - \cos 2\theta_B) \quad (4.13)$$

l_0 は約 1 m である. また, BR 結晶を ΔD 移動させた際のビーム位置の変化は

$$\delta\Delta_x \approx 2\left\{2(1 - \cos 2\theta_B^{\text{up}})\chi_{\text{BS}} + (1 - 2\cos 2\theta_B^{\text{up}})\chi_{\text{BR1}} + \chi_{\text{BR2}}\right\}\sin\theta_B^{\text{up}}\Delta D \quad (4.14)$$

となり, 3 つの χ 軸の絡んだ非常に複雑な形をとる. ここで BR の稼動範囲全域をスキャンさせた際に生じるトータルの水平変位量 Δ_x^{total} を導入する. χ_{BR2} を変化させた際の Δ_x^{total} の変化量 $\delta\Delta_x^{\text{total}}$ は, 本光学系における D の稼動範囲 70 mm を用いて以下のように書ける.

$$\delta\Delta_x^{\text{total}} \approx 0.14\sin\theta_B\delta\chi_{\text{BR2}} \quad (4.15)$$

式(4.11)–(4.15)から, $|\delta\Delta_{x,z}| < 15 \mu\text{m}$, $|\delta\Delta'_{x,z}| < 0.15 \mu\text{rad}$ を 10 keV において満たすには, $\delta\chi_{\text{BS}} < 22 \mu\text{rad}$, $\delta\chi_{\text{BM}} < 0.23 \mu\text{rad}$, $\delta\chi_{\text{BR2}} < 330 \mu\text{rad}$, $\delta 2\theta_2 < 66 \mu\text{rad}$, $\delta\omega_{\text{BM}} < 0.075 \mu\text{rad}$ が必要である. なお, 式(4.12)の計算において, $D = 127 \text{ mm}$ とした. これらが 10 keV において要求されるステージ分解能となる.

分割・遅延光学系の許容エネルギー範囲である 6.5–11.5 keV において要求される分解能が最も厳しくなる X 線エネルギーは, χ_{BS} , χ_{BM} , χ_{BR2} に関しては 6.5 keV, $2\theta_2$ に関しては 11.5 keV となる. それぞれ計算し直すと, $\delta\chi_{\text{BS}} < 13 \mu\text{rad}$, $\delta\chi_{\text{BM}} < 0.15 \mu\text{rad}$, $\delta\chi_{\text{BR2}} < 220 \mu\text{rad}$, $\delta 2\theta_2 < 64 \mu\text{rad}$ となる. これが幾何学的に見積もられる要求分解能となる.

4.4.2 光線追跡計算による見積もり

本項において, 光線追跡計算に基づきより現実的な系において要求分解能を見積もる. 光線追跡計算により, 各結晶素子後の upper ビームの伝播ベクトル $\mathbf{X}_{\text{crystal}}$ (単位ベクトル) と各結晶表面における位置ベクトル $\mathbf{P}_{\text{crystal}}$, そして実効的光源の位置ベクトル $\mathbf{P}_s$ を求めた. 光線追跡計算に用いた系を Fig. 4.5 に示す. Lower ビームは理想的な光路を伝播し, BM 表面と (0, 0, 0) で交差すると仮定した. 各結晶の格子面の法線ベクトルを以下のように設定した.

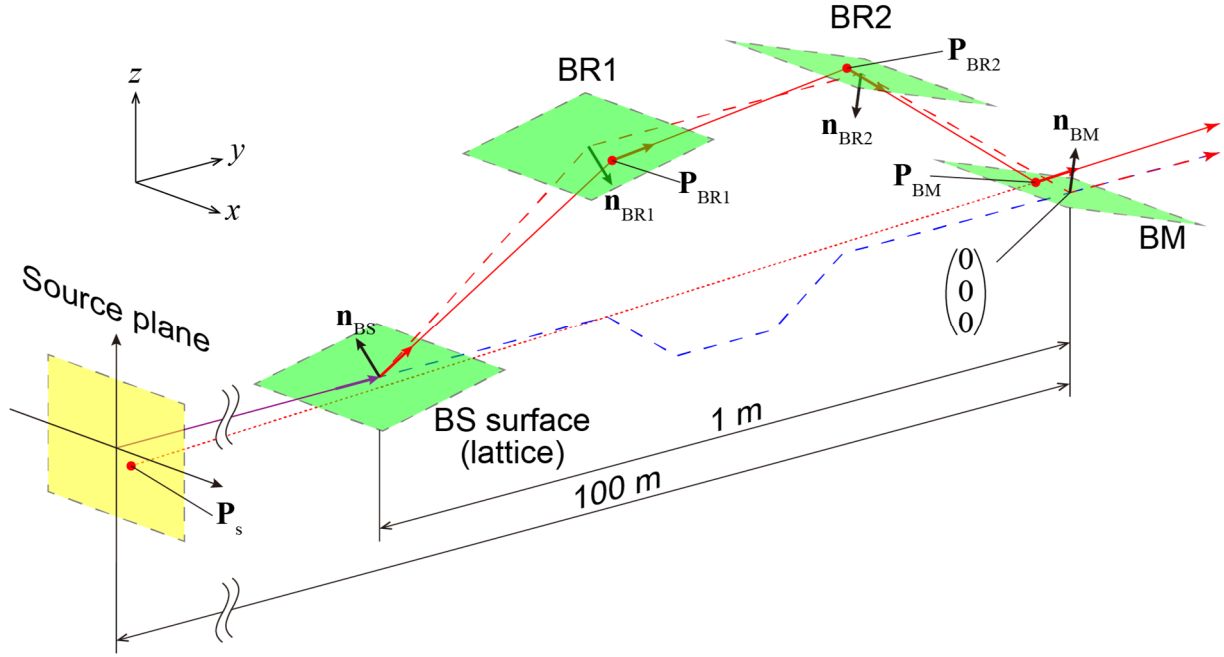


Fig. 4.5. Coordinate system employed in ray-trace calculations. Dashed and solid lines represent the ideal and practical beam paths, respectively.

$$\begin{aligned}
 \mathbf{n}_{BS} &= \begin{pmatrix} \sin \chi_{BS} \\ -\cos \chi_{BS} \sin \theta_B \\ \cos \chi_{BS} \cos \theta_B \end{pmatrix}, \quad \mathbf{n}_{BR1} = \begin{pmatrix} \sin \chi_{BR1} \\ \cos \chi_{BR1} \sin \theta_B \\ -\cos \chi_{BR1} \cos \theta_B \end{pmatrix}, \\
 \mathbf{n}_{BR2} &= \begin{pmatrix} \sin \chi_{BR2} \\ -\cos \chi_{BR2} \sin \theta_B \\ -\cos \chi_{BR2} \cos \theta_B \end{pmatrix}, \quad \mathbf{n}_{BM} = \begin{pmatrix} \sin \chi_{BM} \\ \cos \chi_{BM} \sin \theta_B \\ \cos \chi_{BM} \cos \theta_B \end{pmatrix}
 \end{aligned} \tag{4.16}$$

これは BS への入射光ベクトル $(0, 1, 0)$ に対して、全結晶が Bragg 条件を満たすことを意味している。ここで θ_B と動力学理論における確かな Bragg 角との誤差は $30 \mu\text{rad}$ 以下と極めて小さいと考慮しない。式(4.4)はこの系において以下のように書き換えられる。

$$\mathbf{P}_s = \mathbf{P}_{BM} - l\mathbf{X}_{BM} \tag{4.17}$$

ここで、 l は $\mathbf{P}_{BM}$ と $\mathbf{P}_s$ 間の距離である。集光位置は式(4.3)に従うものと仮定する。

各回転軸に対する計算結果を Fig. 4.6 に示す。ここで、対象とする軸以外に誤差は与えず、X 線のエネルギーなどの条件は最も厳しい条件とした。この場合、前項における幾何計算と同様の計算

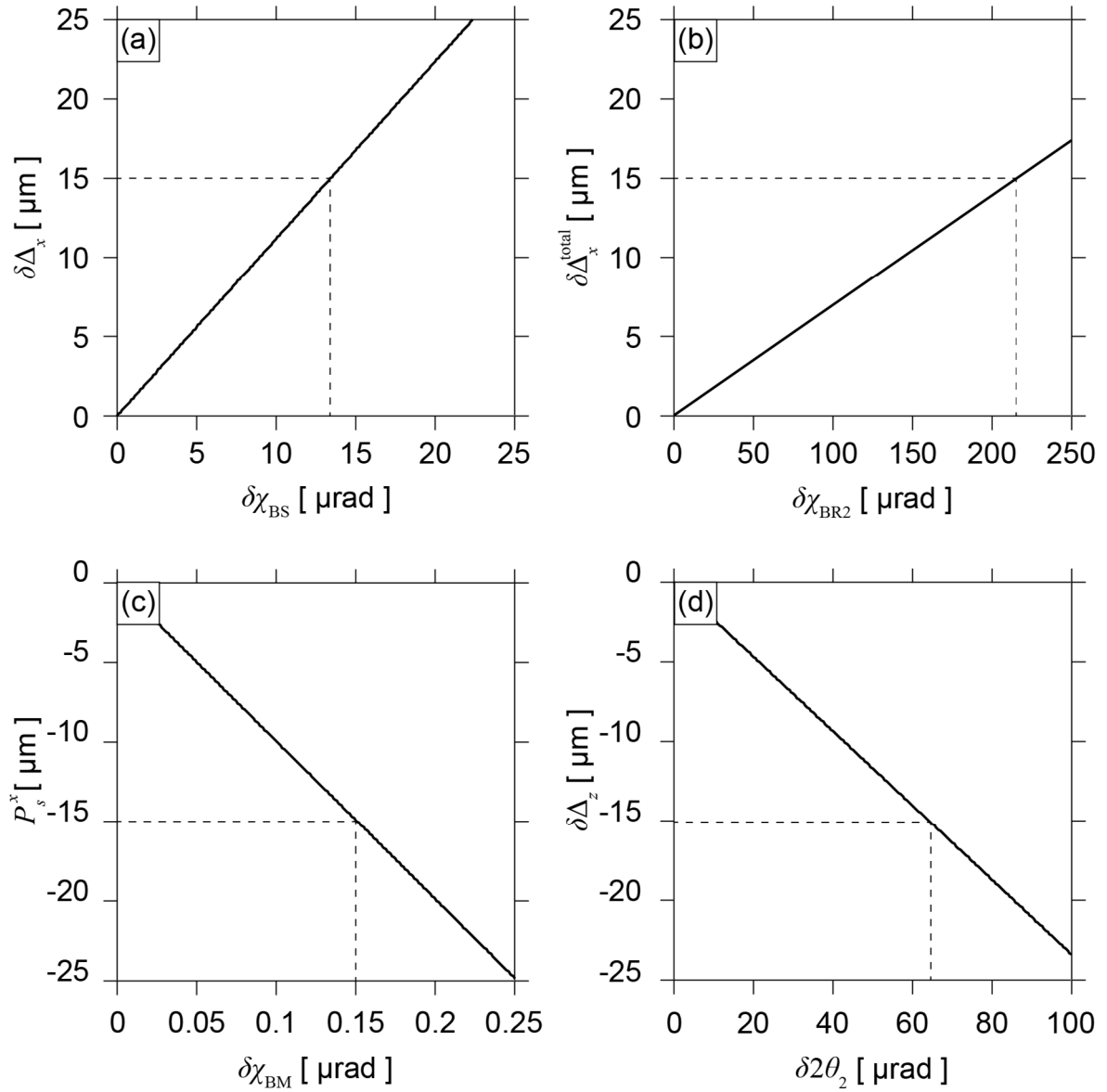


Fig. 4.6. Results of ray-trace calculations.

が光線追跡計算内で行われていることになり、同一の要求分解能が導出された。

光線追跡計算の最大の特徴はあらゆる誤差の影響を容易に調査できる点にある。この光線追跡計算では、結晶の格子面と表面とをそれぞれ別に定義することによって、それらの間のミスカットの影響が調査可能である。ミスカットを有する場合、各 $\mathbf{P}_{\text{crystal}}$ が理想系からずれる。ただし、一般的にミスカットは 0.1° 以下であり、 $\mathbf{P}_{\text{crystal}}$ の理想からのずれはナノメートルオーダーであったため、無視可能である。

機械的に制御される遅延時間の決定精度は極めて重要である。議論してきたアライメント手法に

よって, upperビームの光路を理想状態にすることは困難であるため, 狙い通りの遅延時間にセットすることが難しいと考えられる. ここではその影響を調査する. まず, それぞれの結晶の χ を大きく調整した場合を考える. BS, BR1, BR2, BM の χ をそれぞれ -0.2° , 0.2° , 0.2° , -0.2° にセットした際, 10 keV において目標の遅延時間とのずれは 1–2 fs であり, ΔD に対する線形性の誤差はわずか 0.007 fs/mm と, 角度調整による影響はほとんど見られなかった. 絶対遅延時間, 線形性に最も大きな影響を与えるものは, 移動軸の角度である $2\theta_1$ と $2\theta_2$ との $2\theta_B$ からの誤差である. 考案したアライメント手法によって, $2\theta_1 = 2\theta_2$ が満たされているとし, それぞれ 0.1° ずらした場合, 10 keV において最大 900 fs の理想状態からのずれが生じる. ただしこの場合でも, 線形性のずれはわずか 3.05 fs/mm と, 0.2% 程度の誤差に留まると期待される.

4.4.3 波動光学計算による見積もり

これまでは幾何学的な視点に基づき, 式 (4.3) が満たされる事を前提としてきた. しかし, 集光特性は位相を含めた光の波動性に強く影響を受ける. XFEL に対しては, フラックスの取りこぼしをなくすよう十分大きな NA を有する素子が用いられることが多く, 式 (4.3) は十分満たされると考えられるが, 自明ではない. 本項では, 以下のように示される Fresnel–Kirchhoff 回折公式に基づき, 波動光学的に集光位置を計算し, 幾何学的な見積もりの有効性を示す事を目的とする.

$$U(P_0) = \frac{A}{i\lambda} \iint_{\Sigma} \frac{\exp[ik(r_{21} + r_{01})]}{r_{21}r_{01}} \left[\frac{\cos(\mathbf{n}, \mathbf{r}_{01}) - \cos(\mathbf{n}, \mathbf{r}_{21})}{2} \right] ds \quad (4.18)$$

詳細は Ref. [70] に任せるが, 光源の波動場 $U(P_2)$ が開口 P_1 を介して観測面 P_0 に作り出す波動場 $U(P_0)$ を示す式である. その際, 光源やスクリーン上の波動場 U をそれぞれの位置での振幅, 位相を初期振幅・位相とする点光源の集合とみなしている. これは光散乱の本質とも言える性質であり, 回折, 反射を議論する上で広く用いられている概念である. 全反射ミラーによる集光の際は, 開口 P_1 をミラー表面に置き換えることで集光面上の波動場を良く再現することが可能である [71].

計算を行う際光源の設定が重要となる. ガウスビームと仮定すると, 光源サイズ Φ (FWHM) と発散角 Ω (FWHM) との間には以下の関係が成り立つ.

$$\Omega = \frac{2\ln(2)\lambda}{\pi\Phi} M^2 \quad (4.15)$$

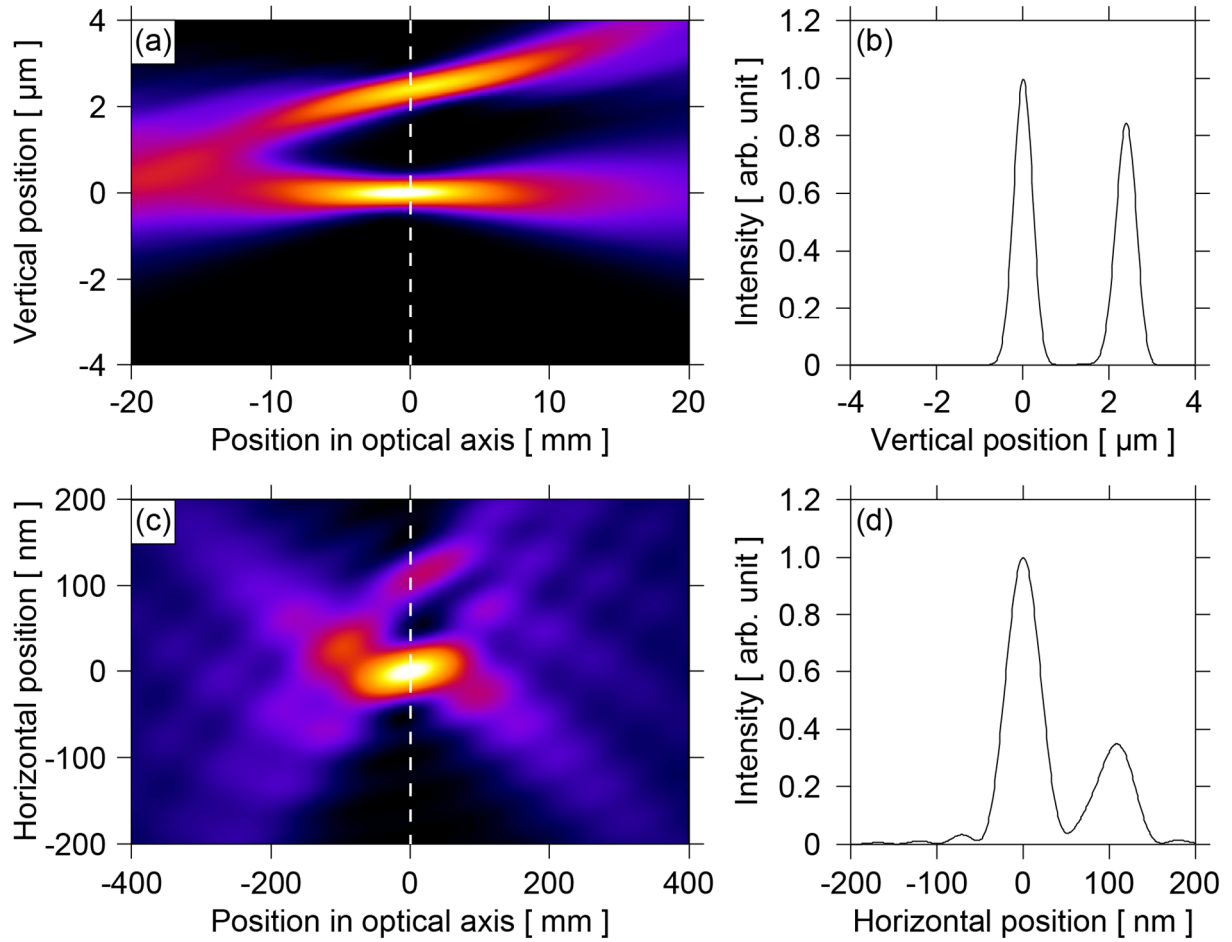


Fig. 4.7. Examples of results of wave-optical simulations at 10 keV. (a) Beam waist and (b) line profile along white dashed line in the vertical direction calculated with the 1 μm focusing system. (c) Beam waist and (d) the line profile in the horizontal direction calculated with the 50 nm focusing system.

ここで M^2 はビームの品質を表すパラメータであり, $M^2 = 1$ の時, 理想的なガウスビームとなる. SACLA は $M^2 = 2\text{--}3$ と言われており [69], 発散角 $\Omega \sim 1.9 \mu\text{rad FWHM}$ であることから, 光源サイズ Φ は $\sim 57\text{--}86 \mu\text{m FWHM}$ と見積もられる. ただし M^2 の影響を計算上で正確に再現することは難しい事, また集光径ではなく集光位置に注目している事から, 今回 $M^2 = 1$ の $\Phi = 30 \mu\text{m FWHM}$ を採用した. この時の発散角は $\Omega = 1.82 \mu\text{rad FWHM}$ となる. SACLA に常設されている集光光学系に対して行った計算結果例を Fig. 4.7 に示す. 両分割ビームの光源強度を等しくし, 角度誤差 $\Delta' = 0$, 光源位置誤差 $d_s = +150 \mu\text{m}$ とした. それぞれは可干渉性を持たない. 両分割ビームの集光位置が分離されていることが明確である. ここでは点光源集光面における各分割ビームプロファイルをガウスフ

ィットすることで、それぞれの位置誤差 d_i を算出する。なお、 Δ' 導入時は式(4.17)の $\mathbf{P}_s$ ではなく、光源・BM 間の距離 L を固定させ、軸の傾いた光源を設定した。従って集光面近傍のビームウエストは単に光源位置をずらした場合と多少様子が異なる。

1 μm 集光光学系に対して行った計算結果を Fig. 4.8 に示す。 χ_{BM} の影響を最も厳しくする為、X 線のエネルギーは 6.5 keV とした。光源から BM までの距離 L は 100 m とした。前述の通り、 $M^2 = 1$ の際に実際の発散角を合わせるため、光源サイズ Φ には実際よりも小さい 30 μm を採用した。その為集光径 ϕ_i は水平、鉛直それぞれ約 500 nm, 600 nm FWHM と 1 μm よりも小さくなっているが、分解能の見積もりの際は $\phi_i = 1 \mu\text{m}$ として考えた。

Fig. 4.8a–d は水平集光ミラー、Fig. 4.8e–h は鉛直集光ミラーに対して行った計算結果である。それぞれ前半 2 つが Δ のみ導入した際の結果であり、後半 2 つが BM の角度のみ調整した際の結果である。式(4.3)から幾何倍率 M を算出すると、水平、鉛直それぞれ 78.94, 60.75 となり、いずれも光学配置から導出される幾何倍率と良い一致を示した (Fig. 4.8)。しかし、いずれも若干大きな値を示している。本集光光学系はビームサイズ 200–300 μm FWHM に対して十分大きな開口を有している (約 600 μm)。そのような場合、点光源の集光位置よりも若干上流側に集光されることが知られている [72, 73]。事実、Fig. 4.7a において多少の集光位置のずれが確認される。幾何倍率の誤差はこの確かな集光面とはわずかに異なる面において算出したことが原因だと考えられる。また、計算結果より $d_i < \phi_i/4$ を満たすために要求されるステージの分解能は χ_{BM} に対しては 0.20 μrad 、 ω_{BM} に対しては 0.75 μrad と求まり、幾何学的な見積もりの有効性が実証された。この結果は式(4.3)が十分満たされる事を意味しており、波長や NA 等の波動光学的な性質はビームの集光位置に対してはほとんど影響を及ぼさない。

50 nm 集光光学系に対する波動光学計算結果を Fig. 4.9 に示す。この光学系は、発散角の小さな XFEL に対しても大きな NA を得るため、1 度集光、発散させ、その集光点を新たな光源としてもう一度集光を行う 2 段集光システムとなっている。それぞれの幾何倍率を m_1 , m_2 と置くと、 $M = m_1 m_2$ となり、水平、鉛直それぞれの実効的幾何倍率は 1/1285, 1/2300 となる (Table 4.1)。本光学系において、集光点近傍のビームウエストはミラーの矩形開口の影響を受け、sinc 関数に近いプロファイルとなる (Fig. 4.7c)。従って、1 μm 集光光学系よりも波動性の影響が大きいと考えられる。計算された幾何倍率は水平、鉛直それぞれ 1/1329, 1/2504 と、ガウスビームの集光点シフトの影響が見られるものの、見積もられた幾何倍率と非常に良く一致する。従って要求分解能も幾何学的見積もりと良く一致し、 χ_{BM} , ω_{BM} それぞれ 0.182 μrad , 0.092 μrad となった。ただし、節 4.2 において許容されるとした 0.5 μrad の角度誤差においても、鉛直方向においてはコマ収差の影響が見て取れる (Fig. 4.9g)。これはより高い X 線エネルギーにおいて顕著となり、高精度なアライメントが要求される。

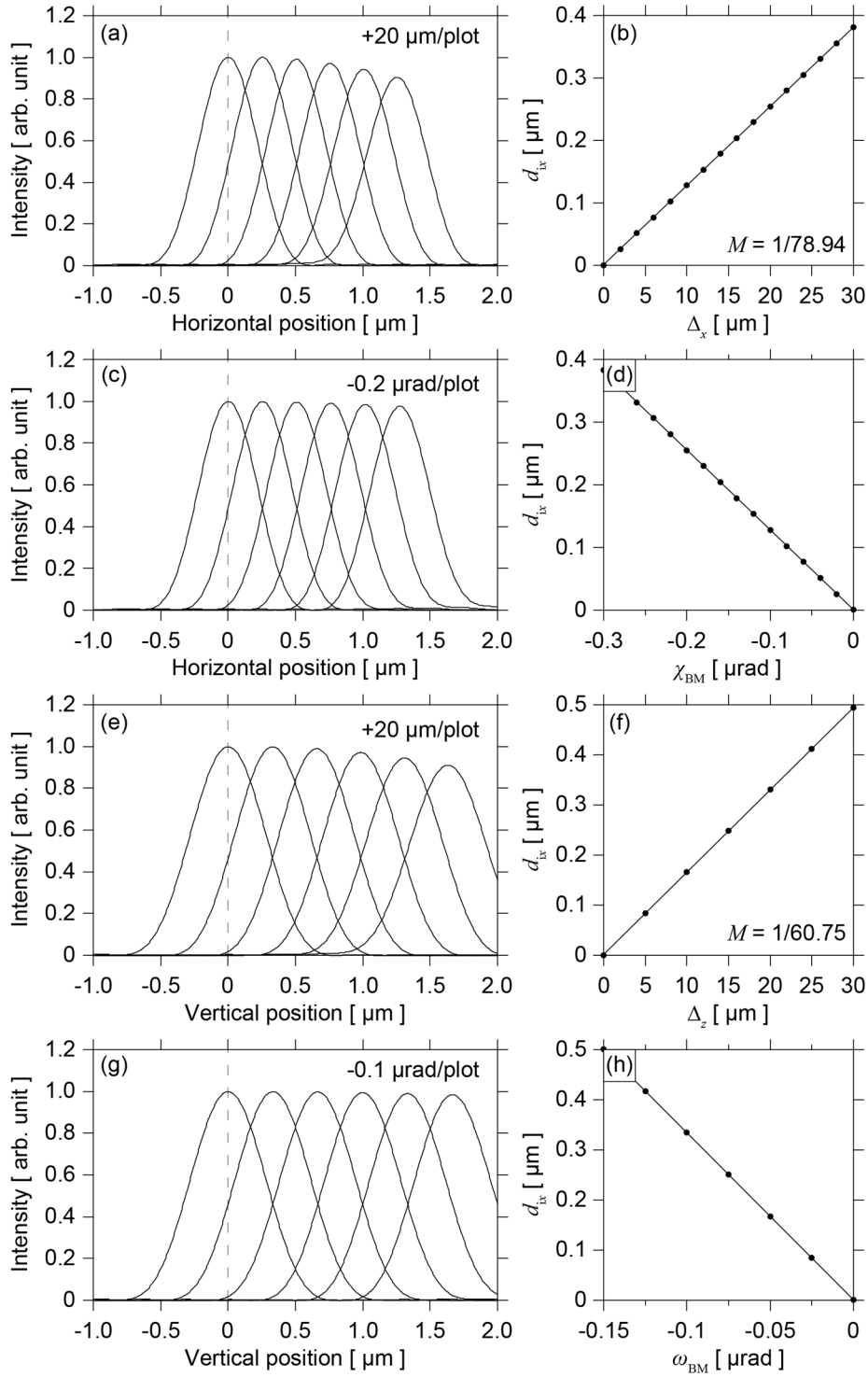


Fig. 4.8. Results of wave-optical simulations with the 1 μm focusing system at 6.5 keV. (a)–(d) In the horizontal and (e)–(h) in the vertical directions. Panels (a), (b), (e), and (f) are results with $\Delta' = 0$ μrad (only positional deviation), while Panels (c), (d), (g), and (h) results with $\Delta = 0$ μm (only angular deviation).

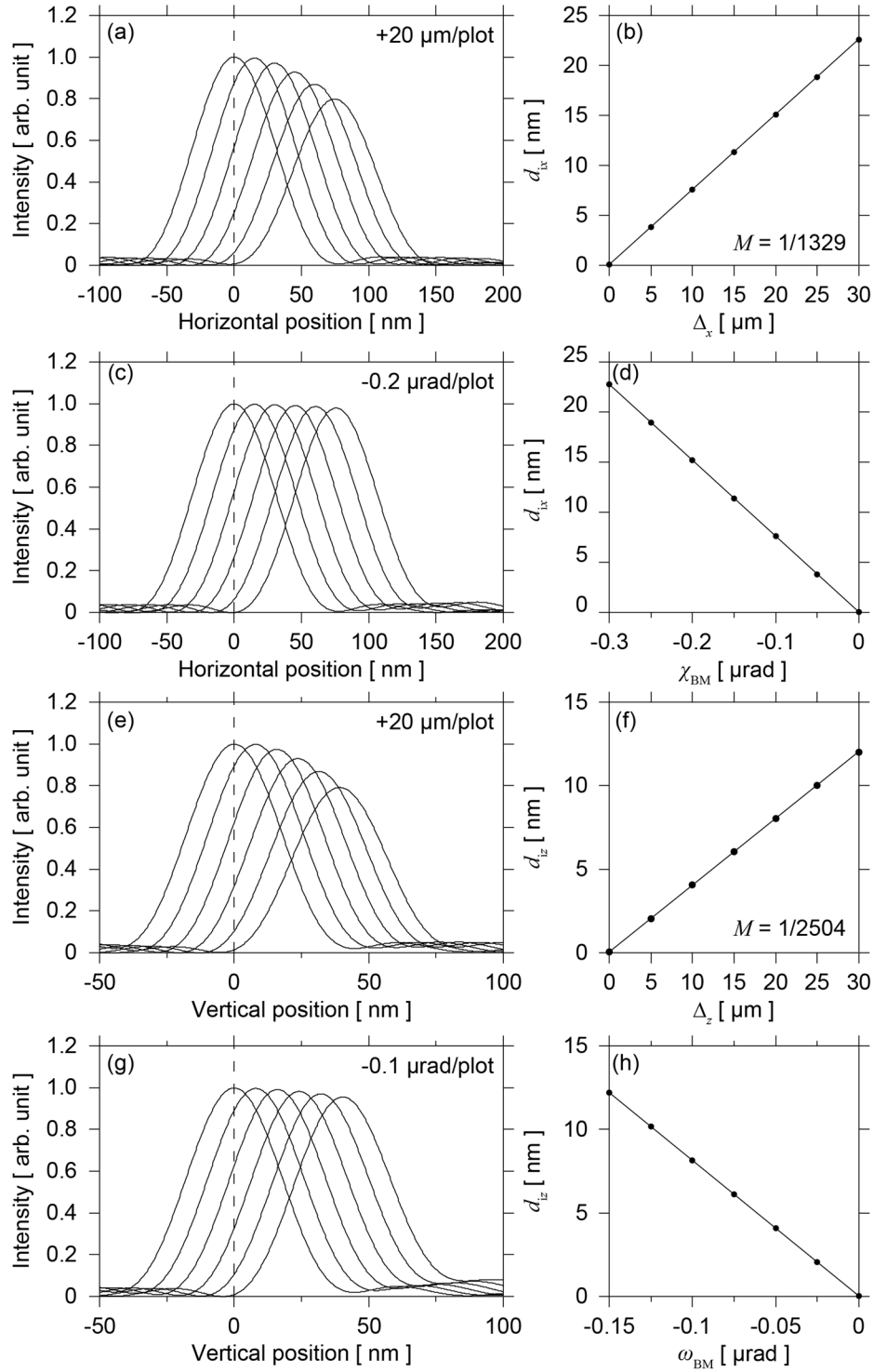


Fig. 4.9. Results of wave-optical simulations with the 50 nm focusing system at 6.5 keV. (a)–(d) In the horizontal and (e)–(h) in the vertical directions. Panels (a), (b), (e), and (f) are results with $\Delta' = 0 \mu\text{rad}$ (only positional deviation), while Panels (c), (d), (g), and (h) show results with $\Delta = 0 \mu\text{m}$ (only angular deviation).

4.5 結言

本章において、分割ビームの空間的重複を目指し、アライメント手法を検討した。幾何学的な視点から X 線の集光を検討し、アライメント誤差によって生じる upper ビームの位置、角度誤差と、集光位置の変位量との相関を結びつけた。そして幾何学、光線追跡計算を用いて、各回転ステージに求められる角度分解能を導出した。波動光学計算によって、幾何学的な見積りの正しさを実証した。以下に要点をまとめる。

- (1) 光源の結像に基づく X 線集光光学系において、光源の変位と集光点の変位が幾何倍率によって接続されている事を示し、アライメント誤差と結びつけた。
- (2) SACLA に常設されている集光光学系に関して検討を行い、upper ビームの位置を $15\ \mu\text{m}$ 、角度を $0.15\ \mu\text{rad}$ 以下の精度で調整する必要がある事を導き出した。また、フラックスの取りこぼしを防ぐ為、位置、角度誤差の絶対値をそれぞれ $125\ \mu\text{m}$ 、 $1.25\ \mu\text{rad}$ 以下に調整する必要がある事を示した。
- (3) あらゆる角度誤差の影響を検討し、必要最低限の調整軸数によるアライメント手法を開発した。具体的には、BM 結晶表面における分割ビーム間の位置ずれを補正する為に BS の χ , $2\theta_2$ を調整し、角度ミスマッチの抑制のために、BM 結晶のみを調整した。
- (4) 幾何学に基づき、各角度誤差の影響を数式化し、要求分解能を導出した。最も厳しい調整軸は ω_{BM} であり、 $0.075\ \mu\text{rad}$ の分解能が要求された。
- (5) あらゆる角度誤差の影響を即座に評価可能な光線追跡計算の座標系を考案し、幾何学による見積りと良く一致する要求分解能を導出した。また、BR 結晶の移動軸角度である $2\theta_1$, $2\theta_2$ が X 線の散乱角 $2\theta_{\text{B}}$ と異なる場合、遅延時間の絶対時間精度に大きな影響を与える事を示した。
- (6) 波動光学計算を行い、光の波動性の及ぼす影響を調査した。ガウスビームの集光点シフトの影響が多少あるものの、基本的には幾何学的な視点に従う事を実証した。
- (7) $50\ \text{nm}$ 集光光学系のような、ナノメートルオーダーへの集光の際は、収差の影響によって、より高いアライメント精度が要求される事を示した。

第 5 章

分割・遅延光学系の性能評価実験

5.1 緒言

本章において, SPring-8 や SACLA において実施した分割・遅延光学系の性能評価実験に関して紹介する. SPring-8 において分割ビームの空間的重複へ向けたアライメント手順の確認やスループット, ビームプロファイル等を評価した. そして SACLA において, 分割・遅延光学系を用いた時間分解実験実現へ向けた各種パラメータ診断の実現可能性の検討を行った. また, 各分割ビームの集光特性を評価した.

5.2 SPring-8 における性能評価

5.2.1 実験配置

SPring-8 BL29XUL に分割・遅延光学系を構築し, 10 keV の X 線を用いて性能評価実験を行った. 薄い結晶には BS として SM05 を, BM として SM04 を用いた. 実験配置を Fig. 5.1 に示す. Si(111) DCM によって単色化された X 線をアンジュレータ出口から約 52 m 下流に配置した 4 象限スリットにより $10\text{ }\mu\text{m} \times 10\text{ }\mu\text{m}$ (H $\times$ V) に切り出し, 仮想光源として用いた. 仮想光源から約 9 m 下流に分割・遅延光学系を配置した. BS, BM 間の距離 l_0 は 0.97 m とし, 極薄結晶と厚い結晶間の距離 D はほぼ最大値の 125 mm とすることで, アライメント要求精度の厳しい条件とした. ここで upper, lower ビームのスペクトル中心は 10 keV からそれぞれ $\pm 0.35\text{ eV}$ ずらした (確かな Bragg 角からそれぞれ $\mp 12\text{ }\mu\text{rad}$. BM 結晶の下流約 7 m, 37 m の位置に 2 つの CCD を配置した (CCD1, HAMAMATSU, ORCA-R11, $3.1\text{ }\mu\text{m/pixel}$; CCD2, BITRAN, CS-52M, $1.25\text{ }\mu\text{m/pixel}$). これら 2 つの CCD により分割ビーム間の位置, 角度誤差である Δ と Δ' を見積もった. この時, それぞれのビー

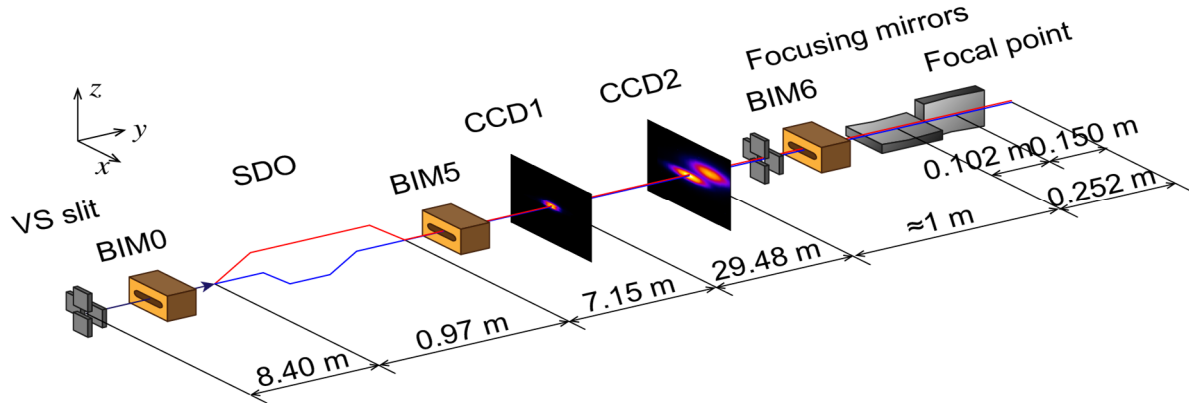


Fig. 5.1. Experimental setup for performance test at BL29XUL of SPring-8.

Ion chambers were used as BIMs (beam intensity monitors).

μ位置は強度分布の重心と定義した。そして仮想光源から約 47 m 下流にある集光ミラー光学系 [74] によって両分割ビームを集光した。ミラーの開口を外れるX線を取り除く為、約 1 m 上流に $W_f^{x,z} \sim 180 \mu\text{m} \times 380 \mu\text{m}$ (H × V) のミラー開口スリットを設けた。分割・遅延光学系より下流の素子、検出器等は全て lower ビーム基準で配置、調整された。

使用した集光光学系の幾何倍率は水平、鉛直それぞれ $\sim 1/310$, $1/190$ であり、光源サイズから幾何学的に集光サイズを見積もると $\sim 30 \text{ nm} \times 50 \text{ nm}$ (H × V) FWHM となる。しかし実測された lower ビームの集光サイズはミラーの NA による制限によって $\sim 200 \text{ nm} \times 150 \text{ nm}$ (H × V) FWHM となった。ただし、この場合においても式 (4.2) と (4.3) は満たされるため、実測の集光サイズを ϕ_i と考え実験を行った。従って、式 (4.6) から要求分解能 $\delta\Delta_{x,z}$, $\delta\Delta'_{x,z}$ はそれぞれ $15 \mu\text{m} \times 7.5 \mu\text{m}$, $1.6 \mu\text{rad} \times 0.8 \mu\text{rad}$ (H × V) となり、構築したステージ系により満たされる。一方で、式 (4.9) から絶対精度として $|\Delta_{x,z}| < 9.0 \mu\text{m} \times 19 \mu\text{m}$ (H × V), $|\Delta'_{x,z}| < 1.0 \mu\text{rad} \times 2.0 \mu\text{rad}$ (H × V) も満たす必要がある。

5.2.2 アライメント

本節において、集光面における分割ビームの空間重複を目指したアライメント過程と結果を示す。各光学素子の位置調整ならびに ω 調整後、CCD1 において分割ビーム間の大きな鉛直方向位置誤差が確認された (Fig. 5.2a, b)。これは $2\theta_1$ と $2\theta_2$ との間に角度差があることを示している。従って、まず $2\theta_2$ の調整を行った。この時、BM 結晶の結晶性による影響を避ける為、平板であるダミー結晶を用いた。 $\delta 2\theta_2$ に対して upper ビームの z 位置は線形に応答し、その傾きは $-0.227 \pm 0.003 \text{ mm/mrad}$ であった。これは光線追跡計算によって得られる -0.224 mm/mrad と非常に良く一致し、光線追跡計

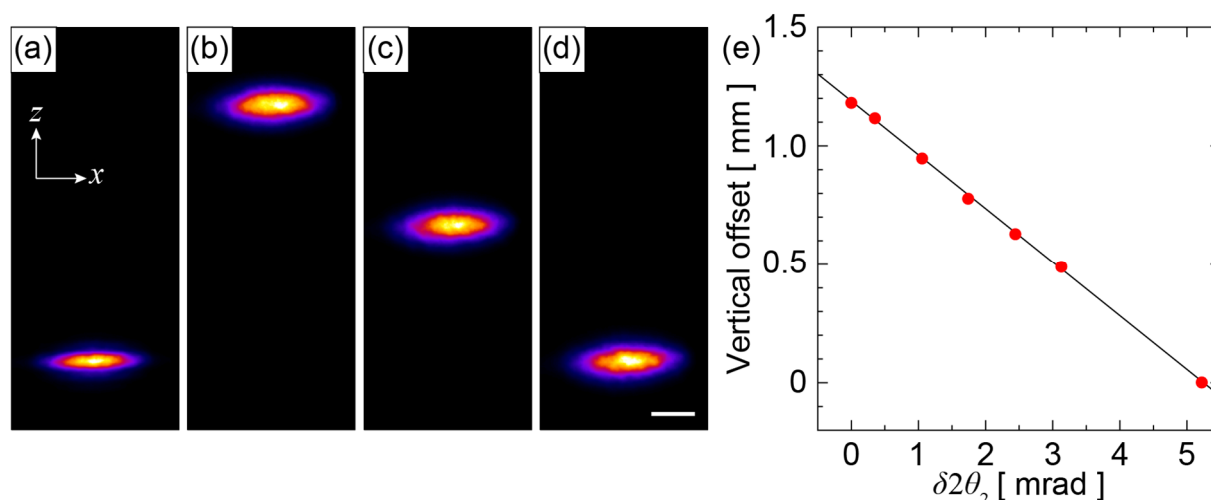


Fig. 5.2. Results of positional correction in the vertical direction with adjustment of $2\theta_2$.

Scale bar shows 0.2 mm. Positions of the lower beam (a) and the upper beam at $\delta 2\theta_2 = 0$ (b), +2.44 (c), and +5.24 mrad (d). (e) Vertical offset as a function of $\delta 2\theta_2$.

算による検討の有効性が示された。

BS, BM 結晶の χ を調整し、水平方向のビーム位置を約 50 μm 、角度誤差を数 μrad にまで抑制した後、集光位置を確認しながら BM 結晶の角度調整のみによって集光面における空間重複を試みた。その際、upper ビームの大きな強度低下がミラー下流において確認された。これは前項において示した絶対精度としての目標値を満たせていなかった為、開口制限スリットによって大きなフラックスの取りこぼしが生じたものと考えられる。ここで、第 4 章で述べたように、慎重な ω の調整によって $|\Delta'_x|$ は 1–2 μrad に抑制可能である。従って、 $2\theta_2$ の微調整とそれに伴う ω の再調整によってミラー開口スリットのすぐ下流に位置する BIM6 における強度を最大化することで、位置、角度共に高精度に調整可能であった。本項では以降、主に水平方向に関して議論する。

本セットアップにおいて 2 つの CCD 間の距離が約 30 m あることから水平方向に関しても Δ'_x を 1 μrad 以下に調整することは比較的容易に達成されるが、 Δ'_x の更なる抑制はビームサイズが 200–300 μm FWHM であることから困難である。ここで、 χ_{BS} と χ_{BM} とを反対方向に同量回転させることで(例えば $\chi_{\text{BS}} + 1 \mu\text{rad}$, $\chi_{\text{BM}} - 1 \mu\text{rad}$)、upper ビームの角度を変化させることなくビーム位置のみを調整することが可能である。以後このプロセスを“パラレルシフト”と呼ぶ。仮に分割ビーム間に角度ミスマッチが無いとすると、パラレルシフトによって空間重複を達成することで、 Δ_x , Δ'_x 共に 0 とすることが出来る。

パラレルシフトを行った際の集光プロファイルの変遷を Fig. 5.3 に示す。角度の調整と比べ、強度の低下を抑える事に成功した。しかし、重複時の強度は依然として最大値の半分以下となった。

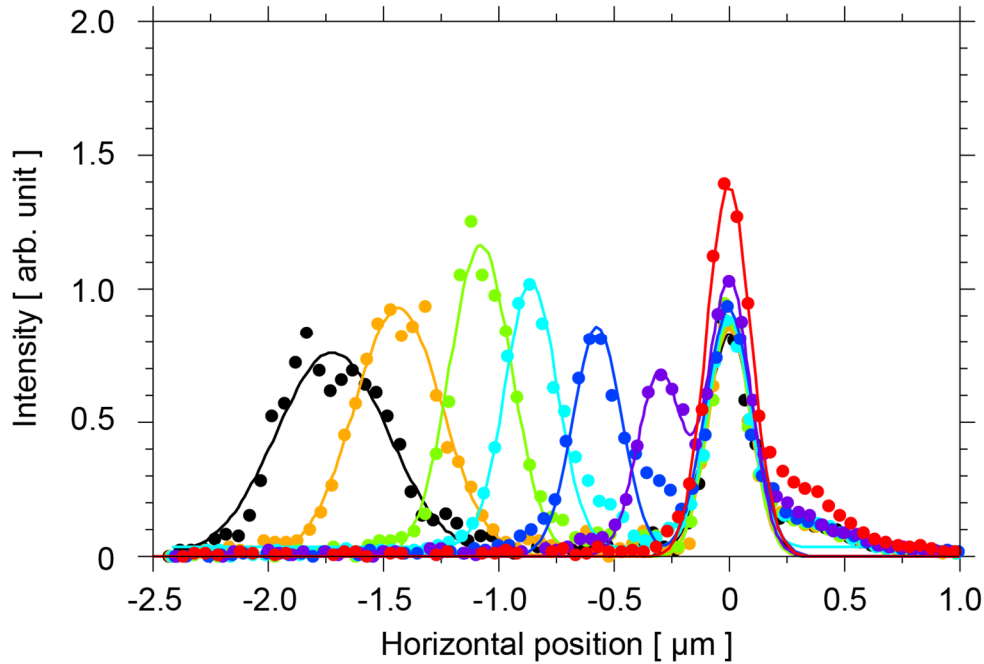


Fig. 5.3. Transition of horizontal focal profile during the ‘parallel shift’. The position of the lower beam is set as 0.

更なる誤差の抑制を目指し、以下に示すような反復手法を試みた。

まず、ビーム角度調整によって BIM6 における強度を最大化させる。この時、upper ビームはミラー開口スリットの中心を通っていると仮定できる。そしてパラレルシフトによって集光面において分割ビーム同士を空間的に重複させる。これら 2 つのプロセス後のビーム位置、角度誤差は以下のように考えられる。

$$\begin{aligned}\Delta_x &\sim \Delta_x^0 \left(-\frac{L}{L_f} \right) \\ \Delta'_x &\sim -\frac{\Delta_x^0}{L_f}\end{aligned}\tag{5.1}$$

ここで Δ_x^0 はプロセス前のビーム位置誤差であり、 L_f として BM からミラー開口スリットまでの距離（～38 m）を用いた。本セットアップのように、 $L < L_f$ の場合、プロセスの反復によって位置、角度誤差が共に抑制されることが期待できる。

2 回反復後の水平方向集光プロファイルならびに直後に測定された鉛直方向集光プロファイルを Fig. 5.4 に示す。いずれの方向に関しても約 30 nm の精度で空間重複を達成した。この際のミラー

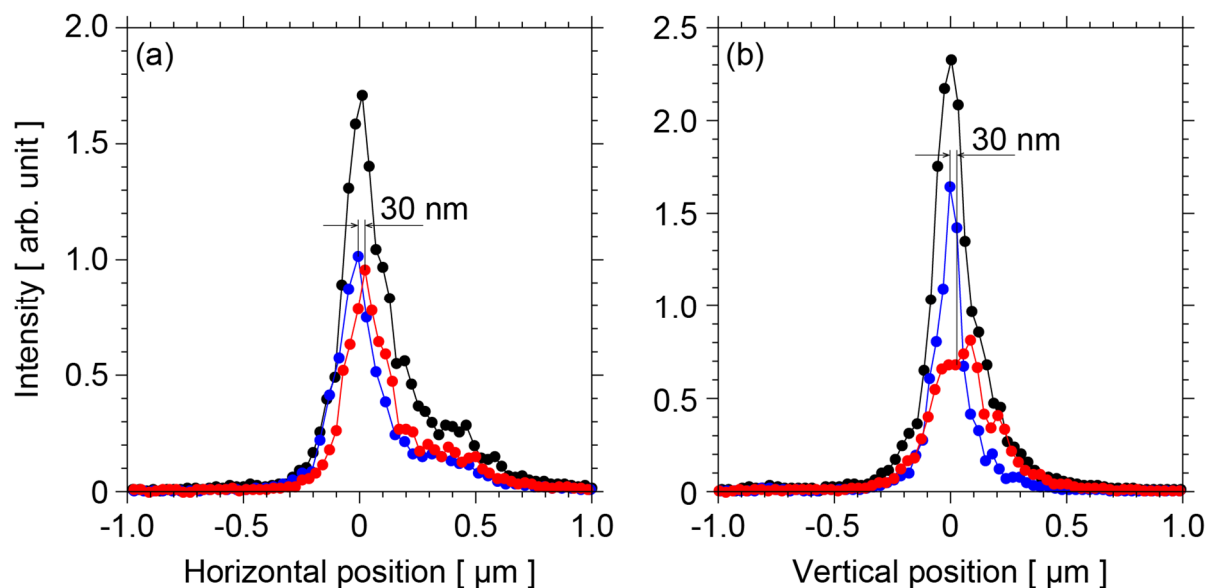


Fig. 5.4. Focal profiles after fine adjustments. (a) Horizontal and (b) vertical focal profiles. Black, red, and blue points show profiles of double beams, the upper beam, and the lower beam, respectively.

下流における upper ビームの強度はほぼ最大値と一致した。CCD により取得したプロファイルから、 $|\Delta l|$ は両方向とも $10 \mu\text{m}$ 以下、 $|\Delta l'|$ は $0.1 \mu\text{rad} \times 0.3 \mu\text{rad}$ ($H \times V$) 以下まで抑制された事を確認した。

今回、 L が約 10 m と比較的小さかった為、CCD による粗調整に高い精度が要求された(特にビーム位置)。そこでパラレルシフトや反復プロセス等の手法を用いて高精度な空間重複を達成したものの、XFEL 施設において L は 100 m 以上と大きく、第 4 章での記述の通り、よりシンプルなアライメント手順によって空間重複が達成されと考えられる。

5.2.3 遅延時間調整の影響評価

本項において、遅延時間を調整した際の直進ステージの姿勢変化に関して報告する。直進ステージによる移動の際、軸の歪みに由来する姿勢変化が生じる。いわゆるピッチング、ヨーイング、ローリングである。ここで、ヨーイングが ω 、ローリングが χ に相当する。本光学系のようにナノラジアンオーダーの角度精度が要求される光学系において、これらの姿勢変化は重大なアライメント誤差の要因となり得る。

姿勢変化の影響を確認する為、遅延時間を変更した際の upper ビームの強度、集光位置を調査した。遅延時間を 1 ps 変化 ($\Delta D = 0.72 \text{ mm}$) させた際の集光プロファイルを Fig. 5.5 に示す。わずか

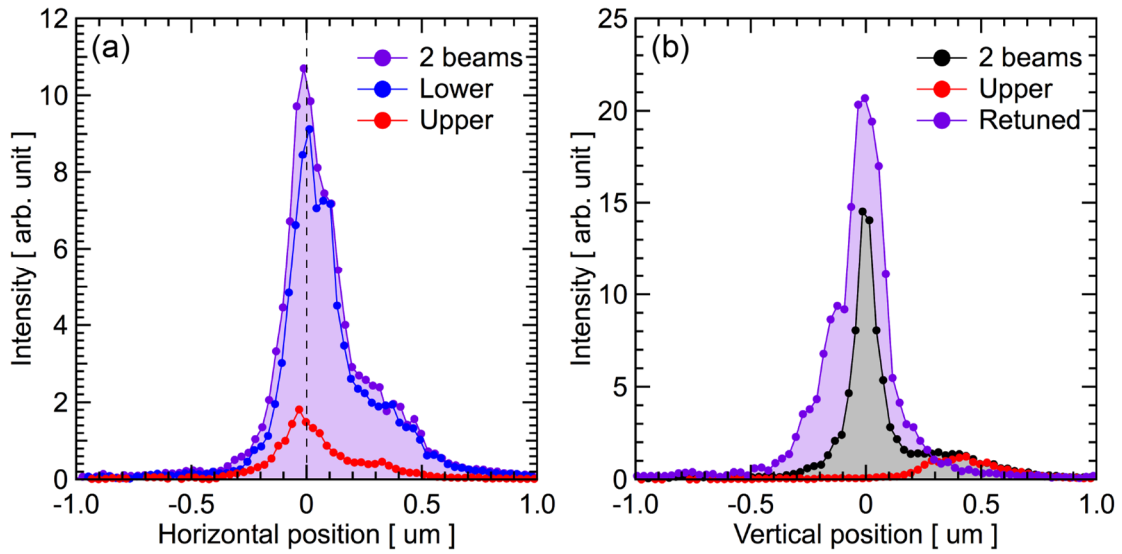


Fig. 5.5. Focal profiles after small change of delay time of 1 ps.

(a) Horizontal and (b) vertical focal profiles.

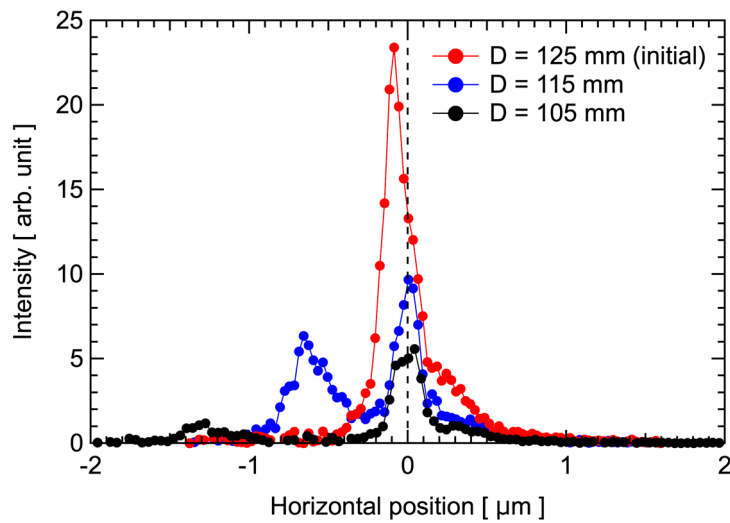


Fig. 5.6. Horizontal focal profiles after large change of delay time (> 10 ps).

1 ps の調整においても, upper ビームの強度は激減し, 鉛直方向集光位置の大きな変位が確認された (Fig. 5.5b). ただし, 水平方向においては集光位置の変化はほとんど確認されなかった. この結果より, ステージの移動により BR 結晶の ω が大きくずれたことが示唆された (ヨーイング). BR 結晶の ω を, Bragg 条件を満たすよう再調整したところ, 強度, 集光位置ともに回復した. 従って, 1 ps 程度の小さな遅延時間調整であれば, 迅速に再調整が可能であることが示された.

大きく遅延時間を調整した際には($\Delta D = 10$ mm), 水平方向にも集光位置の変位が確認された (Fig. 5.6). 今回のセットアップにおいては L が小さいことから, 水平方向の再調整には反復プロセスを行う必要があり, 時間を要する. しかし, XFEL においては BM 結晶の χ を調整するだけで即座に空間重複の回復が可能だと考えられる.

5.2.4 スループットの評価

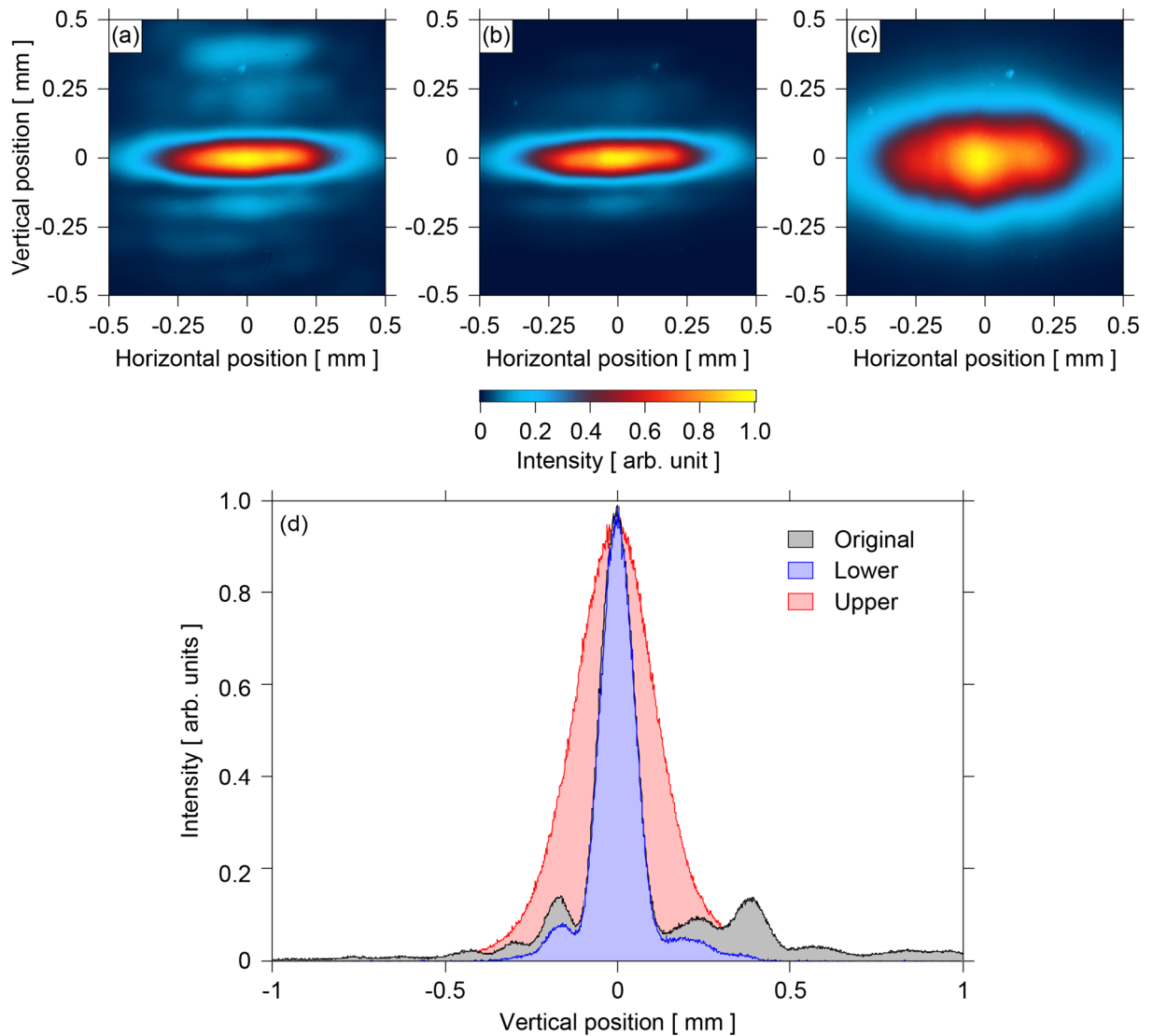


Fig. 5.7. Comparison of beam profiles measured with CCD2. Two-dimensional profiles of the incident beam (a), the lower beam (b), and the upper beam (c). (d) Line profiles in the vertical direction at a horizontal position of 0.

BIM5 と BIM0 を用いて分割・遅延光学系の各遅延パスのスループットを評価した。この時、SACLA の条件と近づけるため鉛直方向の VS スリット幅を $30\text{ }\mu\text{m}$ とし、入射光の発散角を約 $1.8\text{ }\mu\text{rad}$ FWHM まで低減させた。スループットは upper パス, lower パスそれぞれ 12.6%と 13.8%であり、計算値である 28.8%, 19.4%よりも低い値となった。ここで CCD2 において取得されたビームプロファイルの比較を Fig. 5.7 に示す。入射ビームは中心部から外れた領域に比較的強い寄生構造を有していることが確認された (Fig. 5.7a)。そのような寄生構造は lower ビームプロファイルには確認されない (Fig. 5.7b)。寄生構造の全体に対する強度比は約 30%であり、lower パスのスループットの計算値からの減少量と一致する。XFEL は TEM_{00} モードに近い空間(角度)プロファイルを有しているため、lower パスのスループットはほぼ計算値どおりになることが期待される。

一方で, upper ビームは入射ビーム, lower ビームと比べ大きく発散していた (Fig. 5.7c)。これは極薄結晶の格子面が湾曲している為だと考えられる。このような格子面の湾曲は回折効率の低下を招き、スループット低下の主要因となっていると考えられる。

以上のように課題はあるものの、得られたスループットは Roseker らによる分割・遅延光学系よりも 10 倍以上高い。既に今回の評価に用いた極薄結晶よりも回折特性の高い結晶の作製にも成功しており、今後より計算値に近いスループットが得られることが期待される。

5.2.5 発散角変化による集光プロファイルへの影響

前項での記述の通り, upper ビームの発散角は入射ビームや lower ビームに対して約 2.4 倍となっていた。このような発散角の拡大はスループットの低下だけでなく、実効的な光源位置の光軸方向の変位をもたらす。同様に集光位置も光軸方向にずれ、サンプルが配置される lower ビームの集光面においてはデフォーカスとなることが予想される。実際に、鉛直方向の集光プロファイルを確認すると lower ビームが約 150 nm FWHM であるのに対し、upper ビームは約 310 nm FWHM となっていた (Fig. 5.4b)。

発散角変化の影響を簡単に見積もる。BM 結晶によって発散角が N 倍になったと仮定する。これは波面の曲率が $1/N$ になったことに相当する為、光源との距離も $1/N$ になると考えられる。従って実効的な光源距離を L' と置くと、

$$L' \approx L/N \quad (5.2)$$

となる。ここで、発散角変化後の集光光学系に対する光源距離 a' は

$$a' = L' + L_{MS} \quad (5.3)$$

と置けるため, L/L_{MS} の大きな光学系では影響が顕著になることが直感的にわかる. 今回のセットアップで例えると, $N = 2.4$ であるため, $L' \approx 4$ m, $a' \approx 41$ m となる. 従って a'/a は 0.87 となり, 1 割強の変化ではあるものの集光径は 2 倍以上となった. このことから, a'/a は 1 ± 0.05 程度に抑える必要があると考えられる.

ここで, SACLA に常設されている $1 \mu\text{m}$ 集光光学系に関して検討する. $L = 100$ m, $L_{MS} = 20$ m と仮定すると, $0.943 < N < 1.064$ である必要がある. Lower ビームの発散角を $2 \mu\text{rad}$ FWHM と仮定すると, 反射光の発散角は $1.89 \mu\text{rad}$ FWHM から $2.13 \mu\text{rad}$ FWHM である必要があり, 発散角の変

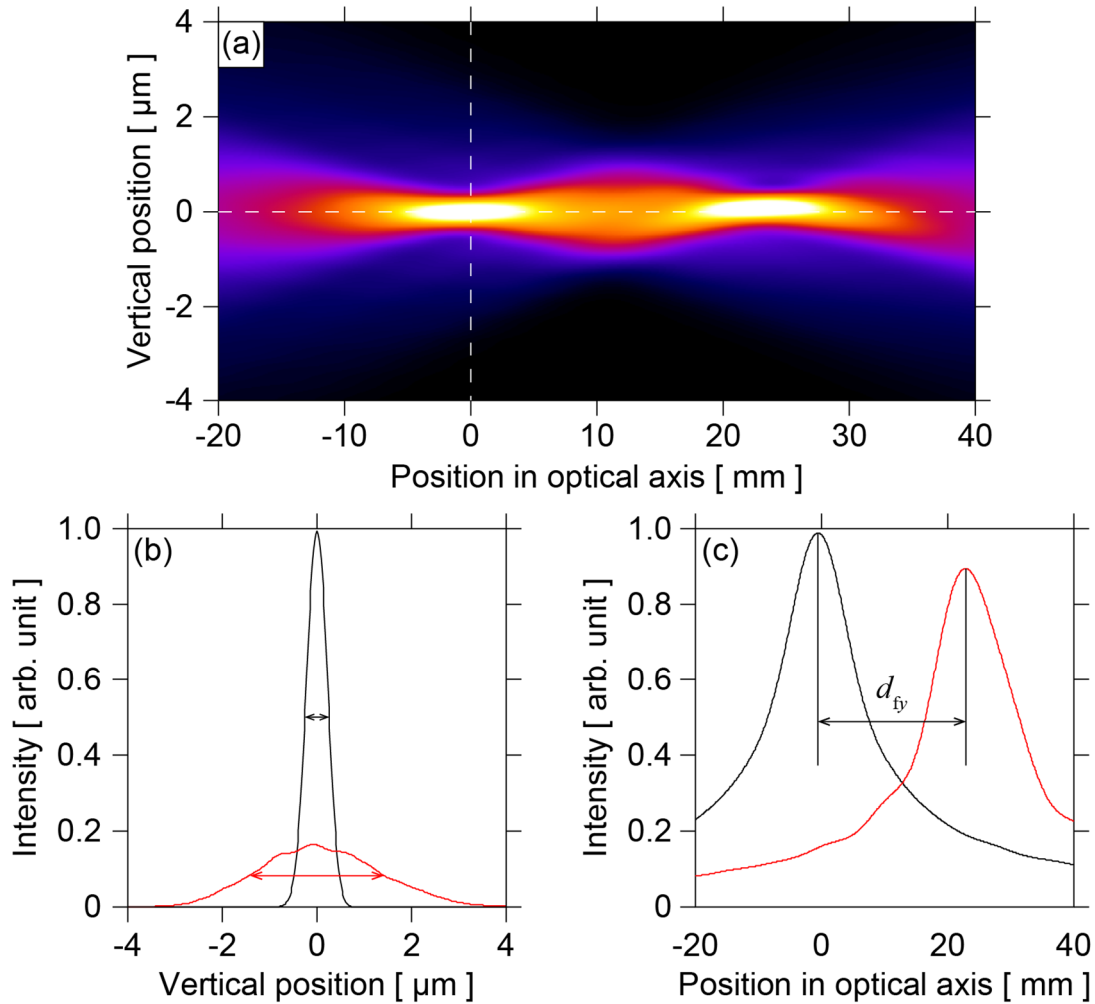


Fig. 5.8. Influence of divergence change on focal profiles. Beam waist (a), and line profiles in the vertical direction (b) and the optical axis (c) calculated with a photon energy of 10 keV, $N = 2$, and the $1 \mu\text{m}$ focusing system.

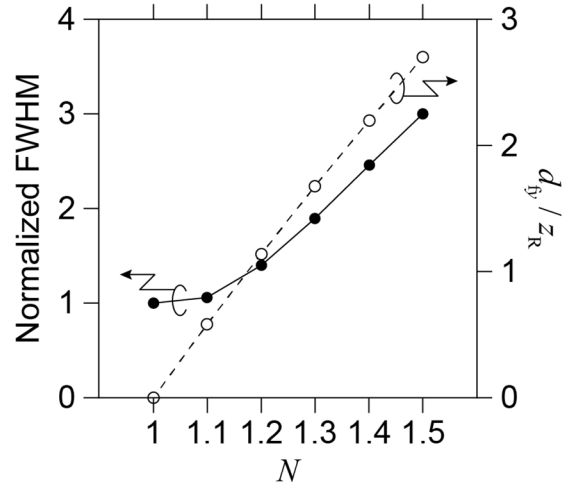


Fig. 5.9. Normalized FWHM and d_{fy}/z_R as a function of N .

化は $0.1 \mu\text{rad}$ 程度しか許容されない. 実際には焦点深度等も関わってくることで, $1 \mu\text{m}$ 集光に対して制約はゆるくなる可能性がある. しかし, 将来的には 50 nm 集光光学系や, 現在開発中の $\text{sub } 10 \text{ nm}$ 集光光学系の利用も視野に入れており, より平坦性の高い格子面が要求されることが考えられる.

波動光学計算を用いて, より詳細に検討した. 発散角の変化は **BM** 結晶のみによって生じると仮定し, 元々の光源が **BM** 位置において作り出すビームサイズと発散角 N 倍となる新光源が作り出すビームサイズとが一致するように新光源を配置した. $N=2$ における計算結果例を Fig. 5.8 に示す. ここでは, 点光源の集光面における半値全幅, 集光面の光軸方向の変位量 d_{fy} に注目して検討を行った. $1 \mu\text{m}$ 集光光学系に対する計算結果を Fig. 5.9 に示す. X 線のエネルギーは 10 keV , $N=1$ における光源サイズ $\Phi = 30 \mu\text{m}$ FWHM とした. ここで, 各 N における集光サイズを $N=1$ における集光サイズで規格化し, 集光位置の変位量 d_{fy} を以下で示されるレイリー長 z_R で規格化した.

$$z_R = \frac{\pi d_i^2}{2 \ln 2 \lambda} \quad (5.4)$$

本計算上では $z_R = 4.81 \text{ mm}$ であった. 許容変位量をレイリー長と定義すると, 許される N は $\sim 1 \pm 0.18$ となる. これは $0.33 \mu\text{rad}$ の発散角変化に相当し, 極めて厳しい要求となる.

5.3 SACLA における性能評価

本節では, SACLA BL3 において行った性能評価実験に関して報告する. X 線のエネルギーは

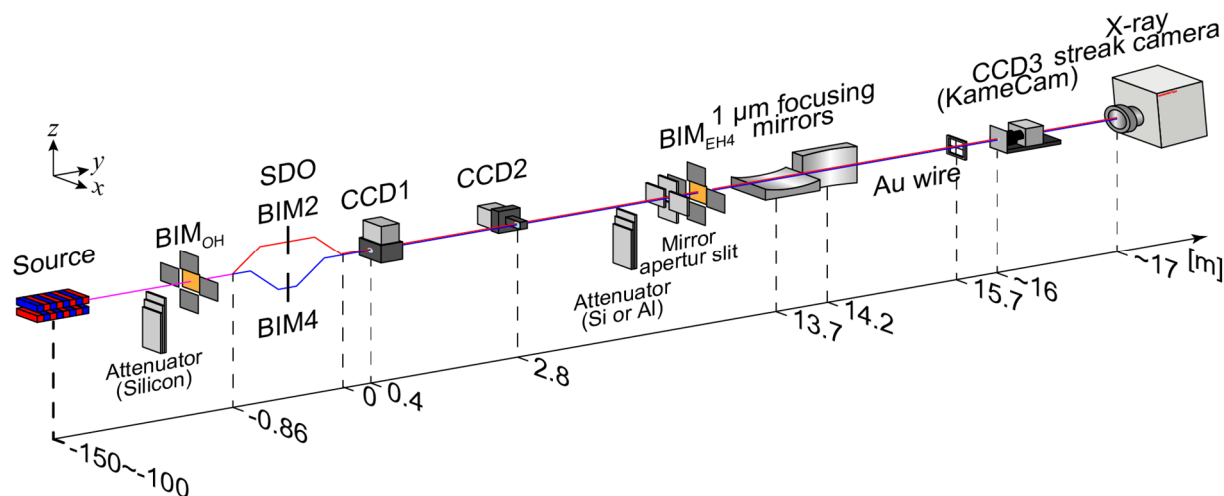


Fig. 5.10. Experimental setup for performance test at BL3 of SACLA.

10 keV とし, Fig. 5.10 に示すセットアップを用いた. X 線ビームの分割・遅延光学系の特徴の一つである, 分割ビームの光子診断の実現可能性, 精度に関して議論する. 具体的には, 分割ビームそれぞれに対するショット毎の強度診断と, X 線ストリークカメラを用いた遅延時間の測定を行った. 次に, 前節において懸念事項として上がった, 発散角変化による集光プロファイルへの影響を調査した.

5.3.1 ショット毎の強度診断

第 2.5 節においても触れたが, SASE の原理を用いた XFEL は, 電子バンチの統計論的なエネルギー分布の影響でショット毎の光子パラメータが大きく異なる. 特にスペクトル分布は, Si(220) 回折のバンド幅と同等な幅を有する個々のスペクトルスパイクが乱雑に分布した構造となっており, バンド幅を制限するような素子を用いた際に大きな強度のばらつきが生じる. 更に, スループットの向上を目的とした 2 色分割を用いることで, 異なるスペクトルスパイクを切り出すこととなり, 分割ビームの強度に相関は見られない(Fig. 5.11a). 従って, いかなる実験に対しても, 分割ビームそれぞれの独立測定は必要不可欠となる.

SACLA においてショット毎のパルスエネルギーを測定する為に, カプトンやナノ結晶ダイヤモンド等の薄膜が用いられている(BIM_{OH}, BIM_{EH4}) [75]. X 線パルスが薄膜を通過する際に生じる散乱 X 線を上下左右に配置したダイオードによって検出する. カロリメータ [76] 等の絶対強度測定の可能な素子を用いたキャリブレーションが行われており, ショット毎の絶対強度を測定可能である. 開発した分割・遅延光学系は, Fig. 2.4a に示すように, 各光学素子の下流に強度モニタを配置可能であ

り, カプトンフィルムを利用した同様の強度モニタを用いた. この BIM は SACLA の DAQ (data acquisition) システムに接続されており, 相対値ではあるものの, 全 XFEL ショットのデータがシステム上に蓄積される.

BR1 と BR2 との間に設置した BIM2 と, チャンネルカット結晶間に配置した BIM4, そして $1\text{ }\mu\text{m}$ 集光ミラー光学系の上流に設置されている BIM_{EH4} との相関を確認することで, 各分割ビームに対してのショット毎の強度診断が可能かどうか調査した. 測定条件を Table 5.1 に, 結果を Fig. 5.11 に示す. なお, BIM2 と BIM_{EH4} , BIM4 と BIM_{EH4} との相関を調査する際は, それぞれ lower ビーム, upper ビームを鉛板によって止めた. BIM2, BIM4 と BIM_{EH4} との間にはいずれも相関が確認されるが, 特に BIM4 と BIM_{EH4} との間に強い相関が見られる. これは CC1 と CC2 との ω に誤差がほとんど無く, lower ビームの方向やプロファイルも安定している事を示している. フィッティング直線からの誤差分布を解析した結果, BIM4 を用いて lower ビームの強度を誤差 $\pm 6.7\%$ の精度で決定できることが確認された. BIM_{EH4} によって 2 つの分割ビームの強度和が測定されるため, これら 2 つの BIM によって upper ビーム強度も見積もることが可能である.

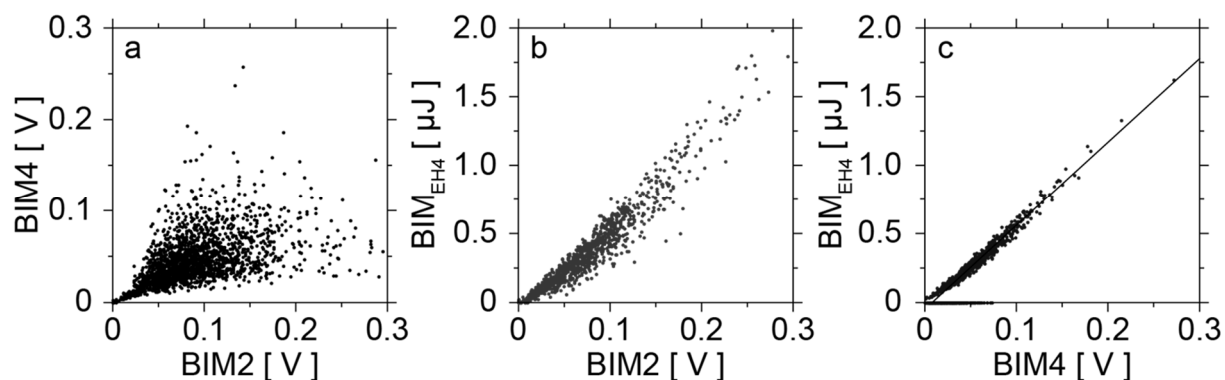


Fig. 5.11. Correlations between several BIMs. (a) BIM2 and BIM4, (b) BIM2 and BIM_{EH4} , and (c) BIM4 and BIM_{EH4} .

Table 5.1. Experimental conditions during investigation of intensity correlations.

Incidence	Crystal		$E - E_0$ (eV)	
	BS	BM	upper	lower
Pink	SM06	SM07	+1	-1

5.3.2 絶対遅延時間と線形性測定

時間分解測定において、2つの分割パルス間の到達時間差は最も重要なパラメータの1つである。分割・遅延光学系は加速器のジッターの影響を受けず、機械的に光路長を調整することでアト秒オーダーにおける時間精度を可能とする。しかし、アライメント誤差等、様々な要因で遅延時間に誤差が生じる。本光学系においては、第4.4.2項で述べたように、BR結晶の移動軸の角度である $2\theta_1$ 、 $2\theta_2$ の誤差により、ピコ秒オーダーの絶対遅延時間誤差が生じる可能性がある。また、アト秒やフェムト秒の時間精度を達成する為には、アライメントの影響によって生じるわずかな線形性の誤差をも評価する必要がある。本項では、X線ストリークカメラ(HAMAMATSU1, C4575-03)を用いることで、絶対遅延時間、BR結晶の移動量に対する線形性を調査し、精度を見積もる。

X線ストリークカメラを集光ミラー下流に配置し、集光面において空間重複を達成した上で、分割ビーム間の遅延時間を測定した。測定条件は強度相関測定と同様であり、初期状態での遅延時間ターゲットは -5 psとした。測定結果をFig. 5.12に示す。初期位置における遅延時間は約 -10 psであり、目的時間から 5 psの絶対遅延時間誤差が生じていた。しかし、BR結晶の移動量に対する遅延時間変化の線形性は非常に高く、フィッティング直線からの誤差は約 ± 0.1 psであった。この誤差はストリークカメラのインパルス応答である実効時間分解能 $2-3$ ps FWHMやピクセル分解能 0.5 psよりも十分小さい値であり、ストリークカメラのシステムエラーに起因すると考えられる。フィッティング直線の傾きは 1.41 ps/mmであり、理論値である 1.39 ps/mmとよく一致した。従って、相対遅延時間

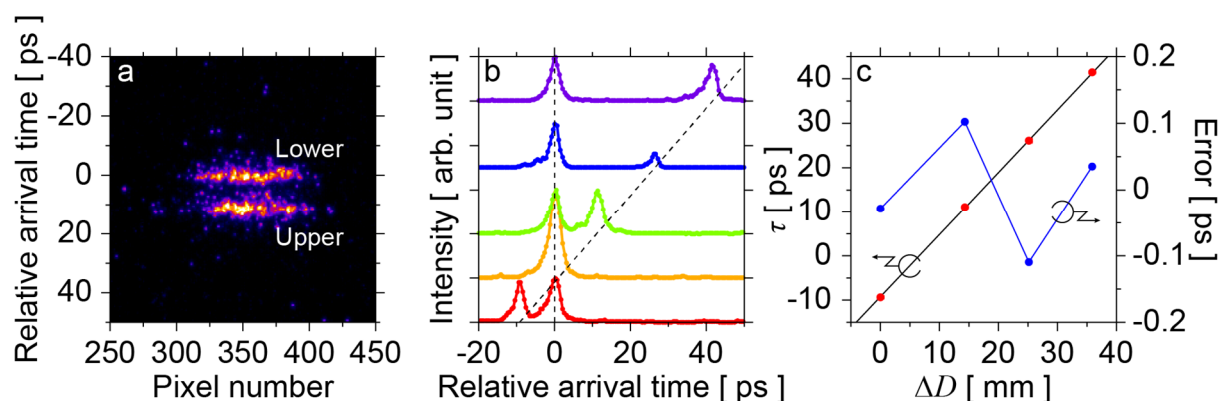


Fig. 5.12. Results of delay-time measurements with an X-ray streak camera. (a) Example of streak image. (b) Line profiles in the temporal axis at several delay times. (c) 10-shot averaged delay time as a function of ΔD (red). Blue shows errors from the fitted linear function.

はストリークカメラによる測定無しでも、誤差 $\pm 1.4\%$ の精度が達成される。しかし、前述の通り数 ps の絶対値誤差を有している可能性があるため、サブピコ秒の絶対時間精度が必要な場合は、ストリークカメラによる測定が不可欠となる。また、ストリークカメラによる測定では数フェムト秒の絶対精度は期待できない。そのような超高時間精度を要求する実験においては、別の高精度測定手法を利用する必要がある。手法に関しては現在検討中である。

5.3.3 集光特性評価

分割ビームの集光特性を評価した。測定条件を Table 5.2 に示す。ここでは薄い結晶への不必要な照射フラックスを抑制する為、Si(111) DCM により単色化した XFEL を用いた。また、結晶雰囲気 He パージも実施した。まず、BM の 0.4 m 下流に配置した CCD1 と 16 m 下流の CCD3 により各分割ビームのプロファイルを取得したが、upper ビームと lower ビームとの間に明瞭な違いは確認できなかった (Fig. 5.13)。ここで、upper ビームプロファイル上に確認される構造は BS 結晶として用いた SM07 の裏面に残存した欠陥等の歪みに由来している。これは SM07 (SM06) の裏面加工プロセスにおいて、除去量 1–2 μm と不足していた為であり、SM08 に対しては 7–8 μm 除去することで改善した。

第 5.2.5 項での見積もりの通り、SACLA においては 0.5 μrad 以下の発散角の変化でも問題となると考えられる。そのようなわずかな発散角の変化をビームプロファイルから確認することは難しい。しかし、Fig. 5.14 に示すように、集光プロファイルには大きな影響が確認された。集光径 $\sim 1 \mu\text{m}$ FWHM の理想的な集光が達成されている lower ビームに対し、upper ビームの集光径は水平、鉛直両方向共に 3–4 μm FWHM となった。

回折特性の違いから、この集光プロファイルの乱れは主に SM07 に由来するものだと考えられる。そこで、変則的ではあるものの、BS (SM07) の厚い保持領域に X 線を照射し、発散角変化の要因を品質の高い BM だけに制限した。非集光のビームプロファイル、集光プロファイルを Fig. 5.15 に示す。非集光プロファイル上にはほとんど影響は確認できないものの、鉛直方向の集光径が 1.95 μm FWHM となり、集光特性に対する明らかな改善が見られた。なお、SM07 の極薄分割領域、もう一方の結晶の厚い保持領域に X 線を照射した際は、鉛直方向の集光径約 5 μm FWHM が得られている。この結果から、PCVM 加工プロセスの精度を向上させ、より平坦な極薄分割領域を創成することで、近い将来、いずれの分割ビームに対しても理想的な集光が実現されることが考えられる。

Table 5.2. Experimental conditions during focusing characterization.

Incidence	Crystal		$E - E_0$ (eV)	
	BS	BM	upper	lower
Si(111) DCM	SM07	SM08	+0.35	-0.35

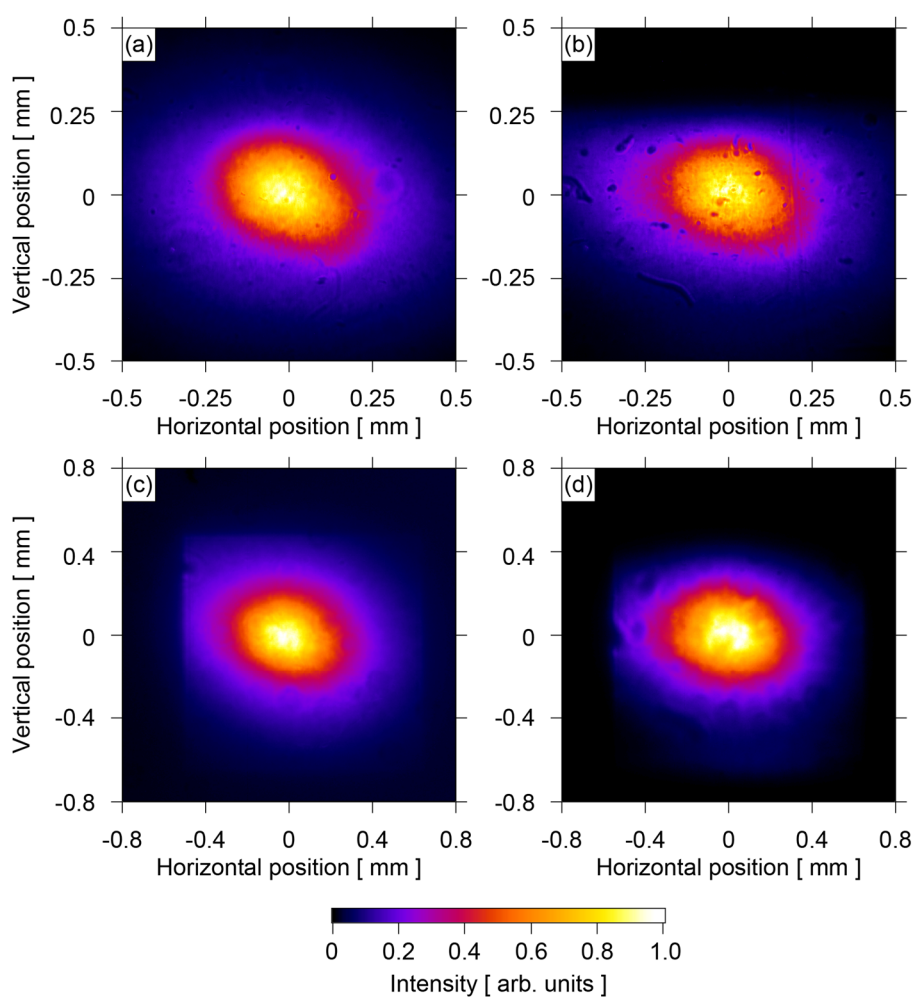


Fig. 5.13. Averaged profiles of the split beams. (a) The lower beam and (b) the upper beam measured at CCD1. (c) The lower beam and (d) the upper beam at CCD3.

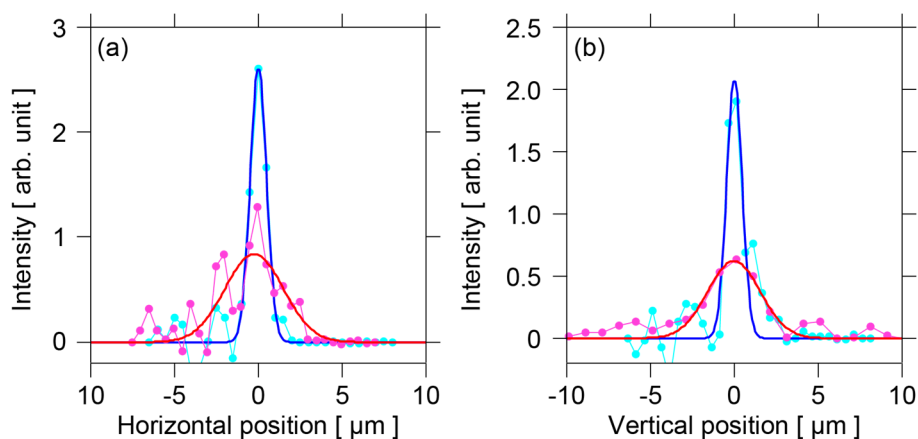


Fig. 5.14. Focal profiles of the split beams. (a) Horizontal and (b) vertical profiles. Red and blue represent the upper and the lower beams, respectively.

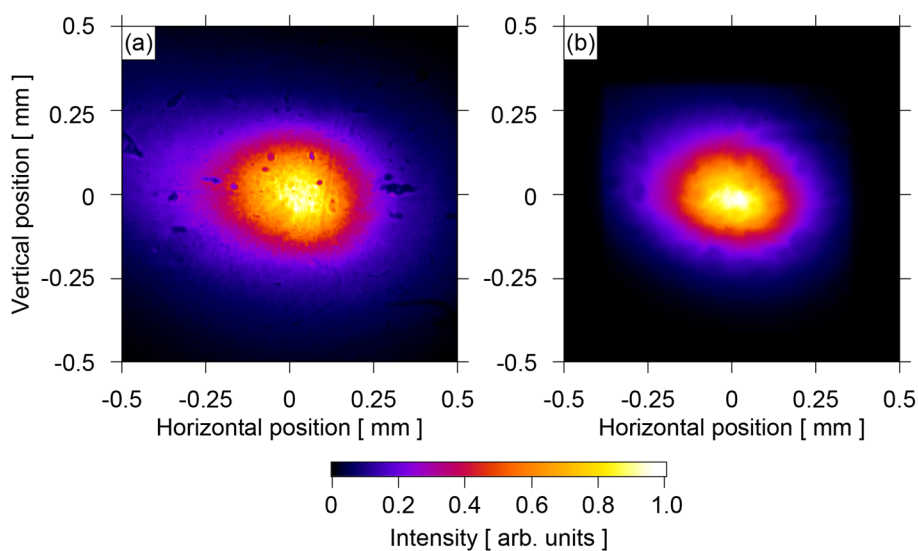


Fig. 5.15. Averaged upper beam profiles with illuminating a thick part of BS. (a) At CCD1 and (b) CCD3. (c) Horizontal and (d) vertical focal profiles.

5.4 結言

本章では、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。SPring-8 において、考案したアライメント手法の有効性を示し、また、反復法を適用することで、30 nm の精度で分割ビームの空間重複に成功した。遅延時間調整の為に、BR 結晶の直進移動の影響を調査した。また、極薄結晶の格子面の湾曲によってビームの発散角が変化し、集光プロファイルに対して悪影響を及ぼす事を示した。SACLA においても性能評価を行い、各種診断法や、理想集光の実現可能性を検討した。以下に要点をまとめる。

- (1) $2\theta_2$ の調整において、光線追跡計算と良く一致するビーム位置挙動を確認し、光線追跡計算の有効性を実証した。
- (2) 光源から BM 結晶までの距離が短い光学系において有効な“パラレルシフト”によって、フラックスの取りこぼしを抑制しつつ空間重複を達成した。また、反復法を採用することによって、0.3 μrad 以下にまで角度ミスマッチを抑制し、水平、鉛直両方向において 30 nm の精度で空間的に重複させることに成功した。
- (3) 遅延時間調整によって、特に ω の姿勢変化がもたらされることを明らかにした。調整時間 1 ps 程度であれば、水平方向への影響が小さいことを示した。ただし、大きな遅延時間調整は χ の姿勢変化も生じさせることを確認し、構造的に安定な制御系の必要性を示した。
- (4) トータルで約 28%のスループットを確認した。Lower パスに関して、計算値からの低下は入射ビームの角度構造に依存しており、TEM₀₀ モードの入射光に対してはほぼ計算値通りのスループットが得られる事を示した。また、upper パスに関しては、ビームプロファイルに発散角の拡大が確認され、格子面が湾曲している事を確認した。理想格子面からの乱れによってスループットが低下したと考えられる。
- (5) 確認された発散角変化の集光プロファイルへの影響を検討した。SACLA においては 0.3 μrad 程度の発散角の変化によっても、集光径は敏感に影響を受ける事を示した。
- (6) SASEを用いたXFELに対して必要不可欠な、ショット毎の強度診断の実現可能性を検討した。

BIM4 と BIM_{EH4} との間に良い相関を確認し、誤差 $\pm 6.7\%$ の精度で強度測定が可能である事を示した.

- (7) X 線ストリークカメラを用いて、分割ビーム間の絶対遅延時間を測定した. ターゲットとした遅延時間から約 5 ps の遅延時間誤差を確認し、遅延時間測定の必要性を示した. 光線追跡による見積もりどおり、BR 結晶の移動量に対する遅延時間変化は計算値と良く一致した.
- (8) SACLA においても lower ビームに対して理想的な集光が実現する事を実証した. Upper ビームに対しても、3–4 μm FWHM の集光径を達成した. 厚み均一性の高い BM 結晶のみ極薄分割領域において反射させた際、2 μm FWHM 以下の集光径が得られ、極薄結晶作製技術を更に向上させることで、将来的には理想的な集光が行える事を示した.

第 6 章

総括

本研究では, 2 つの X 線パルスを用いて電子・原子の超高速ダイナミクスを測定することを目標とし, 加速器ベースの手法では到達困難な, ピコ秒からナノ秒の時間差を有する 2 つの X 線パルスを生成可能な分割・遅延光学系の開発を目的とした. 光学配置の設計から主要素子の作製, 有効なアライメント手法までも含め, 包括的なシステム開発を行った. そして第 3 世代放射光施設である SPring-8 や, X 線自由電子レーザー施設である SACLA における性能評価にまでつなげた.

第 1 章では, 本論文の歴史的背景に触れ, これまで提案された硬 X 線分割・遅延光学系に関して, それぞれの特徴を解説した. また, 提案する光学系において必要不可欠な, 極薄ビームスプリッタ結晶やチャンネルカット結晶の世界的な開発動向を述べた. それらを踏まえ, 本研究において開発を目指した光学系の概略, 克服すべき課題を示した.

第 2 章では, 高い安定性, 調整自由度を得るため, 結晶素子による Bragg 回折に基づいた波長可変硬 X 線分割・遅延光学系を提案し, 各種パラメータの設計を行った. また, 動力学理論に基づき, 極薄結晶に対する要求を見積もった. そして予想されるスループットや分割パルスの時間プロファイル等を, DuMond 図やフーリエ解析を用いて計算した. 以下に要点をまとめる.

- (1) 光路長可変パスと固定パスとが独立した光学配置の採用により, 遅延時間変更の際の調整軸の削減や, 加速器ベースの 2 色 XFEL との共用を可能とした.
- (2) 光路長固定パスに 2 つのチャンネルカット結晶を導入することで, 調整軸の削減, アライメント基準となるビームの供給を可能とした.
- (3) Bragg 回折バンド幅におけるフーリエ限界時間幅が XFEL 固有のパルス時間幅に対し十分小さ

- く、1 m 程度のスペースにおいても数百ピコ秒の遅延を生成可能とする為、Si(220) 回折を採用した。
- (4) SACLA の主要な X 線エネルギー範囲をカバーしつつ、遅延時間ゼロの生成や、表面計測が可能なチャンネルカット結晶を設計した。Si(220) 回折利用時に許容される X 線エネルギー幅は 6.5–11.5 keV となった。
 - (5) 制御系を構築し、遅延時間範囲、時間ステップを見積もった。10 keV においてそれぞれ、−50 から+47 ps と約 0.3 fs となった。
 - (6) ビームスプリッタ結晶に要求される厚みと許容誤差を、X 線回折の動力学理論に基づき検討した。高いスループットが得られる 2 色分割手法の適用により、Si(220) 結晶において、3.2–12.4 μm の厚みが求められ、許容誤差 820 nm と見積もられた。
 - (7) DuMond 図に基づき、分割・遅延光学系のスループットを計算した。Si(111) のバンド幅を有する入射光に対して、10 keV においてトータル 50%となった。また、発散角の影響も調査し、XFEL のような平行性の高い光源に対してはほとんど無視できる事を示した。
 - (8) フーリエ解析に基づき、SASE 光源に対するスループット分布やパルスの時間拡大幅を計算した。平均スループットはトータルで 1.0–1.5%と見積もられ、パルス時間幅が 3–4 fs 拡大する事を導き出した。

第 3 章では、極薄結晶やチャンネルカット結晶の作製に用いた PCVM 加工法の基礎概念や加工特性を紹介した。そして高い構造安定性を有するビームスプリッタ結晶を 2 タイプ提案し、それぞれの加工プロセスの詳細を紹介した。試作した 8 つのサンプル結晶の加工結果と、SPring-8 において行った結晶性評価結果を示した。また、チャンネルカット結晶の内壁面 PCVM 加工に関して、基礎概念と X 線の回折特性改善への有効性を実証した。以下に要点をまとめる。

- (1) 高い加工の空間分解能を得るため、先端径 0.3 mm の電極を製作し、加工条件の最適化を行った。そして半値幅 0.5 mm の静止加工痕の取得に成功し、プラズマ滞在時間に対する除去体積の高い線形性を確認した。

- (2) 様々な結晶面のシリコンウエハに対して PCVM 加工を行い, 加工速度は結晶面に依存しない事を実証した.
- (3) PCVM 加工において, 優先的に結晶歪みが除去され, その後加工が進行するにつれ平滑性が向上する事を示した. 最終的には約 0.1 nm rms の超平滑面が得られる事を実証した.
- (4) 機械加工と組み合わせた, 窓型構造を有するビームスプリッタ結晶作製プロセスを提案し, 各プロセスの必要性, 有効性を示した. 特に, 研磨時にわずかに導入される結晶学的ダメージが, 極薄領域に対して致命的な影響を与える事を発見し, 極薄完全結晶作製に対する実現可能性を示した.
- (5) 厚い加工変質層を有するテーパ面に対して一括 PCVM 処理可能な電極を製作し, プロセスの有効性を示した. また, テーパー面積の広い結晶に対しては, 先端径の細いパイプ電極を同心円走査することで, 加工生成物の再付着の無い加工変質層除去に成功した.
- (6) 裏面加工時の表面形状の重要性を示し, 一旦平坦化を行うことで, 均一な裏面 PCVM 加工に成功した.
- (7) 走査型白色干渉計と広帯域赤外分光干渉計を組み合わせた, 縦, 横両方向の分解能の高い厚み分布測定法を開発し, 高精度な厚み制御を実現した.
- (8) PCVM 加工により, 高次回折面において理想的な回折特性を有する, 厚み 10 μm 以下の結晶の作製に世界で初めて成功した.
- (9) 結晶 Type II の採用によって, 広い範囲で良好な回折特性を示す薄い結晶の作製に成功した. (333) や (422) 等, あらゆる結晶面に対する適用性の高さを示した.
- (10) ロッキングカーブ中心角分布と表面起伏との相関を発見し, 比較的厚い結晶においても, 高い平坦性が要求される事を実証した.

- (11) X 線照射によって付着するわずかな不純物膜が極薄結晶の回折特性に影響する事を発見した. そして He パージによって抑制が可能である事を実証した.
- (12) 円柱型の回転電極を用い, チャンネルカット結晶内壁面の表面歪み除去を試みた. X 線を用いた評価によって, 内壁面 PCVM 処理の有効性を示した.

第 4 章では, 分割ビームの空間的重複を目指し, アライメント手法を検討した. 幾何学的な視点から X 線の集光を検討し, アライメント誤差によって生じる upper ビームの位置, 角度誤差と, 集光位置の変位量との相関を結びつけた. そして幾何学, 光線追跡計算を用いて, 各回転ステージに求められる角度分解能を導出した. 波動光学計算によって, 幾何学的な見積りの正しさを実証した. 以下に要点をまとめる.

- (1) 光源の結像に基づく X 線集光光学系において, 光源の変位と集光点の変位が幾何倍率によって接続されている事を示し, アライメント誤差と結びつけた.
- (2) SACLA に常設されている集光光学系に関して検討を行い, upper ビームの位置を $15\ \mu\text{m}$, 角度を $0.15\ \mu\text{rad}$ 以下の精度で調整する必要がある事を導き出した. また, フラックスの取りこぼしを防ぐ為, 位置, 角度誤差の絶対値をそれぞれ $125\ \mu\text{m}$, $1.25\ \mu\text{rad}$ 以下に調整する必要がある事を示した.
- (3) あらゆる角度誤差の影響を検討し, 必要最低限の調整軸数によるアライメント手法を開発した. 具体的には, BM 結晶表面における分割ビーム間の位置ずれを補正する為に BS の χ , $2\theta_2$ を調整し, 角度ミスマッチの抑制のために, BM 結晶のみを調整した.
- (4) 幾何学に基づき, 各角度誤差の影響を数式化し, 要求分解能を導出した. 最も厳しい調整軸は ω_{BM} であり, $0.075\ \mu\text{rad}$ の分解能が要求された.
- (5) あらゆる角度誤差の影響を即座に評価可能な光線追跡計算の座標系を考案し, 幾何学による見積りと良く一致する要求分解能を導出した. また, BR 結晶の移動軸角度である $2\theta_1$, $2\theta_2$ が X 線の散乱角 $2\theta_{\text{B}}$ と異なる場合, 遅延時間の絶対時間精度に大きな影響を与える事を示した.

- (6) 波動光学計算を行い、光の波動性の及ぼす影響を調査した。ガウスビームの集光点シフトの影響が多少あるものの、基本的には幾何学的な視点に従う事を実証した。
- (7) 50 nm 集光光学系のような、ナノメートルオーダーへの集光の際は、収差の影響によって、より高いアライメント精度が要求される事を示した。

第 5 章では、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。SPring-8 において、考案したアライメント手法の有効性を示し、また、反復法を適用することで、30 nm の精度で分割ビームの空間重複に成功した。遅延時間調整の為に、BR 結晶の直進移動の影響を調査した。また、極薄結晶の格子面の湾曲によってビームの発散角が変化し、集光プロファイルに対して悪影響を及ぼす事を示した。SACLA においても性能評価を行い、各種診断法や、理想集光の実現可能性を検討した。以下に要点をまとめる。

- (1) $2\theta_2$ の調整において、光線追跡計算と良く一致するビーム位置挙動を確認し、光線追跡計算の有効性を実証した。
- (2) 光源から BM 結晶までの距離が短い光学系において有効な“パラレルシフト”によって、フラックスの取りこぼしを抑制しつつ空間重複を達成した。また、反復法を採用することによって、0.3 μrad 以下にまで角度ミスマッチを抑制し、水平、鉛直両方向において 30 nm の精度で空間的に重複させることに成功した。
- (3) 遅延時間調整によって、特に ω の姿勢変化がもたらされることを明らかにした。調整時間 1 ps 程度であれば、水平方向への影響が小さいことを示した。ただし、大きな遅延時間調整は χ の姿勢変化も生じさせることを確認し、構造的に安定な制御系の必要性を示した。
- (4) トータルで約 28%のスループットを確認した。Lower パスに関して、計算値からの低下は入射ビームの角度構造に依存しており、 TEM_{00} モードの入射光に対してはほぼ計算値通りのスループットが得られる事を示した。また、upper パスに関しては、ビームプロファイルに発散角の拡大が確認され、格子面が湾曲している事を確認した。理想格子面からの乱れによってスループットが低下したと考えられる。

- (5) 確認された発散角変化の集光プロファイルへの影響を検討した. SACLA においては $0.3 \mu\text{rad}$ 程度の発散角の変化によっても, 集光径は敏感に影響を受ける事を示した.
- (6) SASEを用いた XFEL に対して必要不可欠な, ショット毎の強度診断の実現可能性を検討した. BIM4 と BIM_{EH4} との間に良い相関を確認し, 誤差 $\pm 6.7\%$ の精度で強度測定が可能である事を示した.
- (7) X 線ストリークカメラを用いて, 分割ビーム間の絶対遅延時間を測定した. ターゲットとした遅延時間から約 5 ps の遅延時間誤差を確認し, 遅延時間測定の必要性を示した. 光線追跡による見積もりどおり, BR 結晶の移動量に対する遅延時間変化は計算値と良く一致した.
- (8) SACLA においても lower ビームに対して理想的な集光が実現する事を実証した. Upper ビームに対しても, $3\text{--}4 \mu\text{m FWHM}$ の集光径を達成した. 厚み均一性の高い BM 結晶のみ極薄分割領域において反射させた際, $2 \mu\text{m FWHM}$ 以下の集光径が得られ, 極薄結晶作製技術を更に向上させることで, 将来的には理想的な集光が行える事を示した.

本研究は, 主要素子である高品質ビームスプリッタ結晶やチャネルカット結晶の作製, SPring-8 や SACLA における性能評価によって一区切りを迎え, 応用へ向けた検討の段階へと移ることとなる. しかし, 光学系としていくつかの課題が残されていることも事実である. 以下に例を挙げる.

- (1) 波面に乱れをもたらさないビームスプリッタ結晶の作製による理想集光の実現.
- (2) 高強度, 高繰り返しレート光源に対する適用可能性の検討.
- (3) 単色分割の実現による分割パルス間の可干渉性の確保と量子光学分野への展開.

(1) に関しては喫緊の課題と言える. これまで作製してきた中で最も品質の高い結晶を用いたとしても, 未だ理想集光は実現していない. (2) とも関連するが, 高い透過性を得るために $10 \mu\text{m}$ 程度の厚みが求められるシリコンにおいては, より高強度な光源が登場した際, 材料物性的な限界を迎える可能性がある. 高品質な結晶が入手可能となった [77] ことから, XFEL においてもダイヤモンドが広く使われ始めている [42, 78]. ダイヤモンドを利用することで, $50\text{--}100 \mu\text{m}$ という厚みにおいても, $10 \mu\text{m}$ 厚のシリコンと同程度の透過性を示す. PCVM は原理上ダイヤモンドに対しても無歪み加工

が可能であり、主に産業応用へ向け、既に検討が始まっている。シリコンと比べ著しく低い加工レートや、結晶面に対する加工の異方性等課題も多いが、X 線用ダイヤモンド素子の作製という観点から、検討を始めるべき時期が訪れたのかもしれない。

(2) に関して、LCLS においてフルパワー、120 Hz モードで供給された XFEL が薄いシリコン結晶に入射された際、寿命がパルス時間間隔(約 8 ms)よりも長いフォノンが励起され、反射 X 線の波面が乱されることが報告されている [44]。まだ詳細な検討が行われていない為、本論分には示していないが、SACLA のフルパワー照射によっても同様の兆候が見え始めている。European XFEL や LCLS II 等、電子バンチのマイクロバンチングによって高繰り返しレートでパルス X 線が供給される光源との併用は、分割・遅延光学系において重要であるが、フォノン励起は懸念事項である。原子同士の結合力が強いダイヤモンドを用いることで、励起されたフォノンの振幅、寿命の抑制が可能となる。また、高い熱伝導性から、X 線照射による熱の発生も解決する方向へと向かうと考えられ、ダイヤモンド結晶への PCVM 技術の適用は急務と言える。

(3) に関しては、既に Si(440) や Si(511) 等の高次回折面に対して実現しているものの、回折バンド幅の広い低次回折面に対しては未だ実現していない。原理上、応力の発生源が存在しなければ、PCVM 加工による薄化によってどれだけ薄い結晶でも作製は可能なはずである。結晶作製プロセスをもう一度見返し、応力の発生源さえつかむことが出来れば、Si(111) 結晶に対しても十分実現は可能だと考えられる。極薄結晶による単色分割が実現すれば、時空間モードの同一な、‘レプリカ’パルスが生成される。可干渉性を生かした新たな展開や、X 線領域における量子光学的な現象の観察等、様々な可能性を秘めている。

軟 X 線用分割・遅延光学系 [29] に用いられているような、素子エッジ部を利用した波面分割を、結晶素子によって実現することで、単色分割は比較的容易に達成される。厚い結晶であるため、フォノン励起等の懸念も無く、実現可能性は高いと考えられるが、エッジ部の結晶完全性を保つことが技術的に困難であること、エッジ部からの散乱によりスペックルが生じること等、空間モードは乱される。また、分割ビームを空間的に重複させる為には角度のミスマッチが欠かせず、利用には慎重な検討が必要である。

複数の X 線パルスを用いた超高速ダイナミクス研究はまだ始まったばかりの、発展途上の研究領域である。本研究において開発した分割・遅延光学系によって、探索可能な時間領域の拡大という新たな可能性を切り拓き、将来的に広く人類の発展へ貢献することを期待する。

参考文献

- [1] T. H. Maiman, "Stimulated optical radiation in ruby," *Nature* **187**, 493–494 (1960).
- [2] A. H. Zewail, "Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond," *J. Phys. Chem. A* **104**, 5660–5694 (2000).
- [3] W. C. Röntgen, "On a new kind of ray: A preliminary communication," *Würzburger Physik-medice* (1895). This paper was translated by A. Stanton, "On a new kind of rays," *Nature* **53**, 274–276 (1896).
- [4] P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt *et al.*, "First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser," *Nat. Photon.* **4**(9), 641–647 (2010).
- [5] T. Ishikawa, H. Aoyagi, T. Asaka, Y. Asano, N. Azumi *et al.*, "A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångström region," *Nat. Photon.* **6**(8), 540–544 (2012).
- [6] R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert and J. Hajdu, "Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses," *Nature* **406**, 752–757 (2000).
- [7] M. Suga, F. Akita, K. Hirata, G. Ueno, H. Murakami *et al.*, "Native structure of photosystem II at 1.95 Å resolution viewed by femtosecond X-ray pulses," *Nature* **517**, 99–103 (2015).
- [8] K. Yamashita, D. Pan, T. Okuda, M. Sugahara, A. Kodan *et al.*, "An isomorphous replacement method for efficient *de novo* phasing for serial femtosecond crystallography," *Sci. Rep.* **5**, 14017 (2015).
- [9] M. M. Seibert, T. Ekeberg, F. R. N. C. Maia, M. Svenda, J. Andreasson *et al.*, "Single mimivirus particles intercepted and imaged with an X-ray laser," *Nature* **470**, 78–81 (2011).
- [10] T. Kimura, Y. Joti, A. Shibuya, C. Song, S. Kim *et al.*, "Imaging live cell in micro-liquid enclosure by X-ray laser diffraction," *Nat. Commun.* **5**, 3052 (2014).
- [11] Y. Takahashi, A. Suzuki, N. Zettsu, T. Oroguchi, Y. Takayama *et al.*, "Coherent Diffraction Imaging Analysis of Shape-Controlled Nanoparticles with Focused Hard X-ray Free-Electron Laser Pulses," *Nano Lett.* **13**(12), 6028–6032 (2013).
- [12] R. Xu, H. Jiang, C. Song, J. A. Rodriguez, Z. Huang *et al.*, "Single-shot three-dimensional structure determination of nanocrystals with femtosecond X-ray free-electron laser pulses," *Nat. Commun.* **5**, 4061 (2014).
- [13] H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, T. Koyama, K. Tono *et al.*, "Generation of 10^{20} Wcm⁻² hard X-ray laser pulses with two-stage reflective focusing system," *Nat. Commun.* **5**, 3539 (2014).
- [14] M. Fuchs, M. Trigo, J. Chen, S. Ghimire, S. Shwartz *et al.*, "Anomalous nonlinear X-ray Compton scattering," *Nat. Phys.* **11**, 964–970 (2015).
- [15] K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, T. Katayama, K. Sawada *et al.*, "X-ray two-photon absorption competing against single and sequential multiphoton processes," *Nat. Photon.* **8**, 313–316 (2014).

- [16] H. Yoneda, Y. Inubushi, M. Yabashi, T. Katayama, T. Ishikawa *et al.*, "Saturable absorption of intense hard X-rays in iron," *Nat. Commun.* **5**, 5080 (2014).
- [17] H. Yoneda, Y. Inubushi, K. Nagamine, Y. Michine, H. Ohashi *et al.*, "Atomic inner-shell laser at 1.5-ångström wavelength pumped by an X-ray free-electron laser," *Nature* **524**, 446–449 (2015).
- [18] J. N. Clark, L. Beitra, G. Xiong, A. Higginbotham, D. M. Fritz *et al.*, "Ultrafast Three-Dimensional Imaging of Lattice Dynamics in Individual Gold Nanocrystals," *Science* **341**, 56–59 (2013).
- [19] M. C. Newton, M. Sao, Y. Fujisawa, R. Onitsuka, T. Kawaguchi *et al.*, "Time-Resolved Coherent Diffraction of Ultrafast Structural Dynamics in a Single Nanowire," *Nano Lett.* **14**(5), 2413–2418 (2014).
- [20] K. H. Kim, J. G. Kim, S. Nozawa, T. Sao, K. Y. Oang *et al.*, "Direct observation of bond formation in solution with femtosecond X-ray scattering," *Nature* **518**, 385–389 (2015).
- [21] I. Inoue, Y. Inubushi, T. Sato, K. Tono, T. Katayama *et al.*, "Observation of femtosecond X-ray interactions with matter using an X-ray–X-ray pump–probe scheme," to be published in *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*.
- [22] G. Grübel, G. B. Stephenson, C. Gutt, H. Sinn and Th. Tschentscher, "XPCS at the European X-ray free electron laser facility," *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B* **262**, 357–367 (2007).
- [23] A. A. Lutman, R. Coffee, Y. Ding, Z. Huang, J. Krzywinski *et al.*, "Experimental Demonstration of Femtosecond Two-Color X-Ray Free-Electron Laser," *Phys. Rev. Lett.* **110**, 134801 (2013).
- [24] T. Hara, Y. Inubushi, T. Katayama, T. Sato, H. Tanaka *et al.*, "Two-colour hard X-ray free-electron laser with wide tunability," *Nat. Commun.* **4**, 2919 (2013).
- [25] A. Marinelli, D. Ratner, A. A. Lutman, J. Turner, J. Welch *et al.*, "High-intensity double-pulse X-ray free-electron laser," *Nat. Commun.* **6**, 6369 (2015).
- [26] M. Altarelli, R. Brinkmann, M. Chergui, W. Decking, B. Dobson *et al.*, "XFEL: The European X-Ray Free-Electron Laser Technical design report," DESY 2006-097 (DESY, 2006).
- [27] See website of the LCLS, https://portal.slac.stanford.edu/sites/lcls_public/lcls_ii/Pages/default.aspx
- [28] H. N. Chapman, S. P. Hau-Riege, M. J. Bogan, S. Bajt, A. Barty *et al.*, "Femtosecond time-delay X-ray holography," *Nature* **448**, 676–679 (2007).
- [29] R. Mitzner, B. Siemer, M. Neeb, T. Noll, F. Siewert *et al.*, "Spatio - temporal coherence of free electron laser pulses in the soft x-ray regime," *Opt. Express* **16**(24), 19909–19919 (2008).
- [30] R. Moshhammer, Th. Pfeifer, A. Rudenko, Y. H. Jiang, L. Foucar *et al.*, "Second-order autocorrelation of XUV FEL pulses via time resolved two-photon single ionization of He," *Opt. Express* **19**(22), 21698–21706 (2011).
- [31] A. Singer, F. Sorgenfrei, A. P. Mancuso, N. Gerasimova, O. M. Yefanov *et al.*, "Spatial and temporal coherence properties of single free-electron laser pulses," *Opt. Express* **20**, 17480–17495 (2012).
- [32] S. Roling, H. Zacharias, L. Samoylova, H. Sinn, Th. Tschentscher *et al.*, "Time-dependent wave front propagation simulation of a hard x-ray split-and-delay unit: Towards a measurement of the temporal coherence properties of x-ray free electron lasers," *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **17**, 110705 (2014).

- [33] A. Rack, T. Weitkamp, M. Riotte, D. Grigoriev, T. Rack *et al.*, "Comparative study of multilayers used in monochromators for synchrotron-based coherent hard X-ray imaging," *J. Synchrotron Rad.* **17**, 496–510 (2010).
- [34] H. Mimura, S. Handa, T. Kimura, H. Yumoto, D. Yamakawa *et al.*, "Breaking the 10 nanometer barrier in hard X-ray focusing," *Nat. Phys.* **6**(2), 122–125 (2010).
- [35] C. David, P. Karvinen, M. Sikorski, S. Song, I. Vartiainen *et al.*, "Following the dynamics of matter with femtosecond precision using the X-ray streaking method," *Sci. Rep.* **5**, 7644 (2015).
- [36] W. Roseker, H. Franz, H. Schulte-Schrepping, A. Ehnes, O. Leupold *et al.*, "Performance of a picosecond x-ray delay line unit at 8.39 keV," *Opt. Lett.* **34**, 1768–1770 (2009).
- [37] W. Roseker, H. Franz, H. Schulte-Schrepping, A. Ehnes, O. Leupold *et al.*, "Development of a hard X-ray delay line for X-ray photon correlation spectroscopy and jitter-free pump–probe experiments at X-ray free-electron laser sources," *J. Synchrotron Rad.* **18**, 481–491 (2011).
- [38] W. Roseker, S. Lee, M. Walther, H. Schulte-Schrepping, H. Franz *et al.*, "Hard x-ray delay line for x-ray photon correlation spectroscopy and jitter-free pump-probe experiments at LCLS," *Proc. SPIE* **8504**, 85040I (2012).
- [39] Y. P. Stetsko, Yu. V. Shvyd'ko and G. B. Stephenson, "Time-delayed beam splitting with energy separation of x-ray channels," *Appl. Phys. Lett.* **103**, 173508 (2013).
- [40] S. Lee, W. Roseker, C. Gutt, Z. Huang, Y. Ding *et al.*, "High wavevector temporal speckle correlations at the Linac Coherent Light Source," *Opt. Express* **20**, 9790–9800 (2012).
- [41] S. D. Shastri, P. Zambianchi and D. M. Mills, "Dynamical diffraction of ultrashort X-ray free-electron laser pulses," *J. Synchrotron Rad.* **8**, 1131–1135 (2001).
- [42] J. Amann, W. Berg, V. Blank, F.-J. Decker, Y. Ding *et al.*, "Demonstration of self-seeding in a hard X-ray free-electron laser," *Nat. Photon.* **6**, 693–698 (2012).
- [43] L. B. Fletcher, H. J. Lee, T. Döppner, E. Galtier, B. Nagler *et al.*, "Ultrabright X-ray laser scattering for dynamic warm dense matter physics," *Nat. Photon.* **9**, 274–279 (2015).
- [44] Y. Feng, D. Zhu, A. Robert, H. T. Lemke, M. Chollet *et al.*, "Ultra-thin Bragg crystals for LCLS beam-sharing operation," *Proc. SPIE* **8504**, 85040V (2012).
- [45] T. Nonaka, K. Dohmae, T. Araki, Y. Hayashi, Y. Hirose *et al.*, "Quick-scanning x-ray absorption spectroscopy system with a servo-motor-driven channel-cut monochromator with a temporal resolution of 10 ms," *Rev. Sci. Instrum.* **77**, 103102 (2006).
- [46] A. Z. Zozulya, A. Shabalin, H. Schulte-Schrepping, J. Heuser, M. Spiwek *et al.*, "Wavefront preserving channel-cut optics for coherent x-ray scattering experiments at the P10 beamline at PETRAIII," *J. Phys.: Conf. Ser.* **499**, 012003 (2014).
- [47] E. Kasman, M. Erdmann and S. Stoupin, "The best of both worlds: automated CMP polishing of channel-cut monochromators," *Proc. SPIE* **9590**, 95900D (2015).

- [48] B. W. Batterman and H. Cole, “Dynamical Diffraction of X Rays by Perfect Crystals,” *Rev. Mod. Phys.* **36**, 681–717 (1964).
- [49] A. Authier, *Dynamical Theory of X-Ray Diffraction, IUCr Monographs on Crystallography Vol. 11* (Oxford Univ. Press, 2001).
- [50] see website of SACLA, <http://xfel.riken.jp/index.html>
- [51] Y. Inubushi, K. Tono, T. Togashi, T. Sato, T. Hatsui *et al.*, “Determination of the Pulse Duration of an X-Ray Free Electron Laser Using Highly Resolved Single-Shot Spectra,” *Phys. Rev. Lett.* **109**, 144801 (2012).
- [52] F. Lehmkuhler, C. Gutt, B. Fischer, M. A. Schroer, M. Sikorski *et al.*, “Single Shot Coherence Properties of the Free-Electron Laser SACLA in the Hard X-ray Regime,” *Sci. Rep.* **4**, 5234 (2014).
- [53] B. L. Henke, E. M. Gullikson and J. C. Davis, “X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E = 50\text{--}30000$ eV, $Z = 1\text{--}92$,” *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **54**(2), 181–342 (1993) or http://henke.lbl.gov/optical_constants/
- [54] J. W. M. DuMond, “Theory of the Use of More Than Two Successive X-Ray Crystal Reflections Obtain Increased Resolving Power,” *Phys. Rev.* **52**, 872–883 (1937).
- [55] G. Borrmann, “Die Absorption von Röntgenstrahlen im Fall der Interferenz,” *Z. Phys.* **127**, 297–323 (1950).
- [56] I. A. Vartanyants, A. Singer, A. P. Mancuso, O. M. Yefanov, A. Sakdinawat *et al.*, “Coherence Properties of Individual Femtosecond Pulses of an X-Ray Free-Electron Laser,” *Phys. Rev. Lett.* **107**, 144801 (2011).
- [57] C. Gutt, P. Wochner, B. Fischer, H. Conrad, M. Castro-Colin *et al.*, “Single Shot Spatial and Temporal Coherence Properties of the SLAC Linac Coherent Light Source in the Hard X-Ray Regime,” *Phys. Rev. Lett.* **108**, 024801 (2012).
- [58] I. Inoue, K. Tono, Y. Joti, T. Kameshima, K. Ogawa *et al.*, “Characterizing transverse coherence of an ultra-intense focused X-ray free-electron laser by an extended Young’s experiment,” *IUCrJ* **2**, 620–626 (2015).
- [59] S. D. Shastri, P. Zambianchi and D. M. Mils, “Femtosecond x-ray dynamical diffraction by perfect crystals,” *Proc. SPIE* **4143**, 69–77 (2001).
- [60] T. Koyama, H. Yumoto, Y. Senba, K. Tono, T. Sato *et al.*, “Investigation of ablation thresholds of optical materials using 1- μm -focusing beam at hard X-ray free-electron laser,” *Opt. Express* **21**, 15382–15388 (2013).
- [61] Y. Mori, K. Yamamura and 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**, 4620–4626 (2000).
- [62] <http://www.fieldp.com/sate.html>

- [63] C. J. Mogab, A. C. Adams and D. L. Flamm, “Plasma etching of Si and SiO₂—The effect of oxygen additions to CF₄ plasmas,” *J. Appl. Phys.* **49**, 3796–3803 (1978).
- [64] K. Tamasaku, Y. Tanaka, M. Yabashi, H. Yamazaki, N. Kawamura *et al.*, “SPRING-8 RIKEN beamline III for coherent X-ray optics,” *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **467–468**, 678–681 (2001).
- [65] H. Ohashi, E. Ishiguro, T. Sasano and K. Shobatake, “Synchrotron radiation excited etching of diamond,” *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3713–3715 (1996).
- [66] T. Inada, T. Yamaji, S. Adachi, T. Namba, S. Asai *et al.*, “Search for photon-photon elastic scattering in the X-ray region,” *Phys. Lett. B* **732**, 356–359 (2014).
- [67] Y. Cai, “Conceptual Design Report for the Inelastic X-ray Scattering (IXS) Beamline at NSLS-II,” LT-XFD_CDR_IXS-00123 (2009).
- [68] K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Sato, T. Katayama *et al.*, “Beamline, experimental stations and photon beam diagnostics for the hard x-ray free-electron laser of SACLA,” *New J. Phys.* **15**, 083035 (2013).
- [69] H. Yumoto, H. Mimura, T. Koyama, S. Matsuyama, K. Tono *et al.*, “Focusing of X-ray free-electron laser pulses with reflective optics,” *Nat. Photon.* **7**, 43–47 (2012).
- [70] J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics, Third edition* (Roberts & Company Publishers, 2005).
- [71] K. Yamauchi, K. Yamamura, H. Mimura, Y. Sano, A. Saito *et al.*, “Nearly diffraction-limited line focusing of a hard-X-ray beam with an elliptically figured mirror,” *J. Synchrotron Rad.* **9**, 313–316 (2002).
- [72] W. H. Carter, “Focal shift and concept of effective Fresnel number for a Gaussian laser beam,” *Appl. Opt.* **21**, 1989–1994 (1982).
- [73] Y. Li and E. Wolf, “FOCAL SHIFT IN FOCUSED TRUNCATED GAUSSIAN BEAMS,” *Opt. Commun.* **42**, 151–156 (1982).
- [74] S. Matsuyama, H. Mimura, H. Yumoto, Y. Sano, K. Yamamura *et al.*, “Development of scanning X-ray fluorescence microscope with spatial resolution of 30 nm using K-B mirrors optics,” *Rev. Sci. Instrum.* **77**, 103102 (2006).
- [75] K. Tono, T. Kudo, M. Yabashi, T. Tachibana, Y. Feng *et al.*, “Single-shot beam-position monitor for x-ray free electron laser,” *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 023108 (2011).
- [76] T. Tanaka, M. Kato, T. Kurosawa, Y. Morishita, N. Saito *et al.*, “Improvement of a cryogenic radiometer for XFEL absolute intensity measurement,” *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **659**, 528–530 (2011).
- [77] Y. Shvyd’ko, S. Stoupin, V. Blank and S. Terentyev, “Near 100% Bragg Reflectivity of X-rays,” *Nat. Photon.* **5**, 539–542 (2011).
- [78] Y. Feng, R. Alonso-Mori, V. Blank, S. Boutet, M. Chollet *et al.*, “Recent development of thin diamond crystals for X-ray FEL beam-sharing,” *Proc. SPIE* **8778**, 87780B (2013).

研究業績

主たる研究論文

- [1] **T. Osaka**, T. Hirano, Y. Sano, Y. Inubushi, S. Matsuyama, K. Tono, T. Ishikawa, K. Yamauchi and M. Yabashi
“Wavelength-tunable split-and-delay optical system for hard X-ray free-electron lasers”
submitted.

- [2] **T. Osaka**, T. Hirano, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, K. Ogawa, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Development of split-delay x-ray optics using Si(220) crystals at SACLA”
Proceedings of SPIE **9210**, 921009 (2014).

- [3] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, K. Ogawa, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Thin crystal development and applications for hard x-ray free-electron lasers”
Proceedings of SPIE **8848**, 88480S (2013).

- [4] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“A Bragg beam splitter for hard x-ray free-electron lasers”
Optics Express **21**, 2823–2831 (2013).

- [5] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of a Bragg beam splitter for hard x-ray free-electron lasers”
Journal of Physics: Conference Series **425**, 052014 (2013).
- [6] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of ultrathin Bragg beam splitter by plasma chemical vaporization machining”
Key Engineering Materials **523–524**, 40–45 (2012).

主たる国際会議報告

- [1] **T. Osaka** (invited)
“Current status on x-ray split-and-delay optics using Si(220) crystals at SACLA”
7th Ringberg Workshop on Science with FELs, Ringberg, Germany, February 7–10, 2016
(Oral presentation).
- [2] **T. Osaka**, T. Hirano, Y. Inubushi, Y. Sano, S. Matsuyama, K. Tono, T. Katayama, T. Ishikawa, K. Yamauchi and M. Yabashi
“Demonstration of Feasibility of X-ray Pump–X-ray Probe Experiments Using Hard X-ray Split-and-Delay Optics Combined with Focusing Mirrors”
The 12th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI 2015), New York, NY, USA, July 6–10, 2015 (Oral presentation, Thu-F-3).
- [3] **T. Osaka** (invited)
“Current status of a hard x-ray split-and-delay scheme at SACLA”
Pre-conference satellite meeting on dynamic imaging: from AMO/Chemistry to Bio. (HeKKSaGOn University Consortium The 4th Japanese–German University Presidents’ Conference), Miyagi, Japan, April 16, 2015 (Oral presentation).

- [4] **T. Osaka**, T. Hirano, Y. Inubushi, M. Yabashi, Y. Sano, S. Matsuyama, K. Tono, T. Sato, K. Ogawa, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Development of Hard X-Ray Split-Delay Optics Based on Si(220) Crystals”
JSAP-OSA Joint Symposia 2014 (The 75th JSAP Autumn Meeting 2014),
Hokkaido, Japan, September 17–20, 2014 (Oral presentation, 17p-C4-3).
- [5] **T. Osaka** (invited), T. Hirano, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, K. Ogawa, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Development of split-delay x-ray optics using Si(220) crystals at SACLA”
SPIE Optics+Photonics 2014, San Diego, CA, USA, August 17–21, 2014
(Oral presentation, 9210-8).
- [6] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of Thin Si Crystal for X-Ray Beam Splitter”
28th The American Society for Precision Engineering Annual Meeting,
Saint Paul, MN, USA, October 20–25, 2013 (Poster presentation, 3778).
- [7] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, K. Ogawa, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Thin crystal development and applications for hard x-ray free-electron lasers”
SPIE Optics+Photonics 2013, San Diego, CA, USA, August 26–29, 2013
(Oral presentation, 8848-3).
- [8] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of ultrathin Bragg beam splitter by plasma chemical vaporization machining”
14th International Conference on Precision Engineering (ICPE 2012),
Hyogo, Japan, November 8–10, 2012 (Oral presentation, A13).

- [9] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of a Bragg Beam Splitter Based on Ultrathin Silicon Single Crystal”
5th International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology,
Osaka, Japan, October 22–24, 2012 (Poster presentation, P31).
- [10] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of a Bragg beam splitter for hard X-ray free-electron laser”
The 11th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI 2012),
Lyon, France, July 9–13, 2012 (Poster presentation, WE-E-P-37).
- [11] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Fabrication of a Bragg beam splitter for an X-ray autocorrelator”
International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering (Coherence 2012),
Fukuoka, Japan, June 18–21, 2012 (Poster presentation, PS-17).
- [12] **T. Osaka**, M. Yabashi, Y. Sano, K. Tono, Y. Inubushi, T. Sato, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Thin-crystal & auto-correlator development at SPring-8,”
4th XFEL 3-site meeting, Hyogo, Japan, October 30–November 3, 2011 (Oral presentation).

その他国際会議報告

- [1] T. Hirano, **T. Osaka**, Y. Inubushi, Y. Sano, S. Matsuyama, K. Tono, T. Ishikawa, K. Yamauchi and M. Yabashi
“Development of split-delay optics with wide range of photon energy for XFEL pump/XFEL probe experiments”
SPIE Optics+Photonics 2015, San Diego, CA, USA, August 9–13, 2015.

- [2] T. Hirano, **T. Osaka**, Y. Inubushi, M. Yabashi, Y. Sano, S. Matsuyama, K. Tono, K. Ogawa, T. Ishikawa and K. Yamauchi
“Development of Autocorrelator for Hard X-ray Free-Electron Laser”
The 1st International Symposium on Interactive Materials Science Cadet Program (iSIMSC), Osaka, Japan, November 16–19, 2014.
- [3] W. Roseker, S. Lee, M. Walther, H. Schulte-Schrepping, **T. Osaka**, M. Sikorski, S. Song, P. H. Fuoss, G. B. Stephenson, A. Robert and G. Grübel
“Hard X-ray Delay Line for X-ray Photon Correlation Spectroscopy”
International Conference on Phase Retrieval and Coherent Scattering (Coherence 2014), Evanston, IL, USA, September 2–5, 2014.

主たる国内会議報告

- [1] **大坂泰斗**, 平野嵩, 犬伏雄一, 佐野泰久, 松山智至, 登野健介, 石川哲也, 山内和人, 矢橋牧名
“XFEL 用分割・遅延光学系の開発—SACLA における性能評価—”
第 29 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 千葉, 2016 年 1 月 9–11 日
(口頭発表, 3D002).
- [2] **大坂泰斗**, 平野嵩, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 佐野泰久, 松山智至, 登野健介, 佐藤堯洋, 小川奏, 石川哲也, 山内和人
“結晶光学素子に基づく X 線分割・遅延光学系の開発—集光光学系併用時の空間的重複の実現—”
2015 年度精密工学会春季大会学術講演会, 東京, 2015 年 3 月 17–19 日(口頭発表, R30).
- [3] **大坂泰斗**, 平野嵩, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 佐野泰久, 松山智至, 登野健介, 佐藤堯洋, 小川奏, 石川哲也, 山内和人
“XFEL 用オートコリレータの開発; KB ミラー光学系併用時の空間的重複の実現”
第 28 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 滋賀, 2015 年 1 月 10–12 日
(口頭発表, 2B002).

- [4] 大坂泰斗, 平野嵩, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 小川奏, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“XFEL 用オートコリレータの開発; チャネルカット結晶内壁部の無歪み・平滑化”
第 27 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 広島, 2014 年 1 月 11-13 日
(口頭発表, 3D003).
- [5] 大坂泰斗, 平野嵩, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 小川奏, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“大気圧プラズマによるチャネルカット単結晶シリコンの内壁エッチングの検討”
2013 年度精密工学会秋季大会学術講演会, 大阪, 2013 年 9 月 12-14 日
(口頭発表, L33; ポスター発表, P-113).
- [6] 大坂泰斗, 佐藤堯洋, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“ビームスプリッタを利用したその場 XFEL タイミングジッター計測システムの開発”
第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2013 年 3 月 27-30 日
(口頭発表, 28p-B1-8).
- [7] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 小川奏, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“XFEL 用オートコリレータの開発; Si(220)ビームスプリッタの作製”
第 26 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 愛知, 2013 年 1 月 12-14 日
(ポスター発表, 14P023).
- [8] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“大気圧プラズマエッチングを用いたブラッグビームスプリッタの作製”
2012 年度精密工学会秋季大会学術講演会, 福岡, 2012 年 9 月 14-16 日 (口頭発表, F13).

- [9] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“ブラッグ結晶による硬 X 線自由電子レーザー用ハーフビームスプリッタ”
第 59 回応用物理学関係連合講演会, 東京, 2012 年 3 月 15–18 日 (口頭発表, 18p-B5-1).
- [10] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“硬 X 線 FEL 用オートコリレータの開発—ビームスプリッタの作製—”
第 25 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 佐賀, 2012 年 1 月 6–9 日
(ポスター発表, 9P005).
- [11] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 小川奏, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“Plasma Chemical Vaporization Machining による硬 X 線自由電子レーザー用オートコリレータのためのブラッグ結晶ビームスプリッタの作製”
精密工学会 2011 年度関西支部地方定期学術講演会, 兵庫, 2011 年 6 月 30 日
(ポスター発表, P-17).
- [12] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“硬 X 線自由電子レーザー用オートコリレータに用いる Si ビームスプリッタの作製・評価”
2011 年度精密工学会春季大会学術講演会, 東京, 2011 年 3 月 14–16 日 (口頭発表, G15).
- [13] 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“XFEL 用オートコリレータに用いる窓型 Si ビームスプリッタの加工・評価”
第 24 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 茨城, 2011 年 1 月 8–10 日
(口頭発表, 3B006).

その他国内会議報告

- [1] 平野嵩, 大坂泰斗, 佐野泰久, 犬伏雄一, 松山智至, 登野健介, 石川哲也, 山内和人, 矢橋牧名
“XFEL 用分割・遅延光学系の開発—波面分割型ビームスプリッタの検討—”
第 29 回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 千葉, 2016 年 1 月 9–11 日.
- [2] 平野嵩, 大坂泰斗, 佐野泰久, 犬伏雄一, 松山智至, 登野健介, 石川哲也, 山内和人, 矢橋牧名
“硬 X 線自由電子レーザー用分割・遅延光学系の開発(第 3 報) –SACLA における性能評価–”
2015 年度精密工学会秋季大会学術講演会, 宮城, 2015 年 9 月 4–6 日.
- [3] 平野嵩, 大坂泰斗, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 佐野泰久, 松山智至, 登野健介, 佐藤堯洋, 小川奏, 石川哲也, 山内和人
“XFEL 用オートコリレータの開発; 幾何・波動光学計算に基づくアライメント手法の検討”
第 28 回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム, 滋賀, 2015 年 1 月 10–12 日.
- [4] 平野嵩, 大坂泰斗, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 佐野泰久, 松山智至, 登野健介, 佐藤堯洋, 小川奏, 石川哲也, 山内和人
“硬 X 線自由電子レーザー用オートコリレータの開発—アライメント手法の検討—”
2014 年度精密工学会秋季大会学術講演会, 鳥取, 2014 年 9 月 16–18 日.
- [5] 平野嵩, 大坂泰斗, 犬伏雄一, 矢橋牧名, 佐野泰久, 松山智至, 登野健介, 佐藤堯洋, 小川奏, 石川哲也, 山内和人
“硬 X 線自由電子レーザー用オートコリレータの開発— χ 軸回転に対する許容角度誤差の検討—”
精密工学会関西支部 2014 年度関西地方定期学術講演会, 大阪, 2014 年 7 月 4 日.

- [6] 平野嵩, 大坂泰斗, 矢橋牧名, 佐野泰久, 登野健介, 犬伏雄一, 佐藤堯洋, 小川奏, 松山智至, 石川哲也, 山内和人
“大気圧プラズマによるチャネルカット単結晶シリコンの内壁エッチング”
2014 年度精密工学会春季大会学術講演会, 東京, 2014 年 3 月 18–20 日.

受賞

- [1] 大坂泰斗
“JSR2016 学生発表賞”
公益社団法人 日本放射光学会, 2016 年 1 月 18 日
- [2] 大坂泰斗
“2011 年度精密工学会秋季大会学術講演会ベストプレゼンテーション賞”
公益社団法人 精密工学会, 2011 年 9 月 22 日.
- [3] 大坂泰斗
“精密工学会 2011 年度関西地方定期学術講演会ベストポスタープレゼンテーション賞”
公益社団法人 精密工学会関西支部, 2011 年 6 月 30 日.

付録A

X 線回折の動力学理論

A-1. 動力学理論の導入

X 線回折技術は、結晶材料や結晶化された生体分子の構造決定など、あらゆる分野において広く用いられている技術である。それらの多くは 1912 年に Laue によって発表された運動学的理論 [A1] に基づいている。この理論は周期的に配置された原子によって散乱された X 線波動場同士の光路長の差のみを考慮している。回折 X 線強度は、1 つの単位格子からの回折強度に X 線照射ボリューム内の単位格子の数を単純に掛け合わせた値として表現される。つまり、1 つの X 線光子は媒質中で 1 回だけ相互作用を行う“1 回散乱近似”を適用しており、複数回の相互作用や異なる単位格子間の干渉は無視されている。X 線と物質との相互作用は一般的に非常に弱いことから、ほとんどのアプリケーションに対してこの理論は正しく機能する。しかし、シリコンやダイヤモンド等、巨視的な結晶完全性を有する媒質における回折特性はこの理論では説明しきれない。そこで各単位格子から回折された X 線波動場同士の干渉をも考慮した（いわゆる、“多重散乱”）、“動力学理論”が導入された。この理論は、Darwin [A2] や Ewald [A3], Laue [A4] 等を代表とする多くの物理学者によって洗練され、Batterman と Cole によってレビュー論文 [A5] が発表されたことで世界中に広まった。本付録では、Authier によって執筆されたテキスト [A6] に基づき X 線の動力学理論の解説、そして結晶の Darwin カーブの計算や複結晶配置に関してまとめる。

動力学理論では媒質境界における屈折の効果を考慮している。境界条件を視覚的に理解する為に、逆空間での分散球が用いられる。この考え方は鏡面反射における境界条件を検討する際にもよく用いられる (Fig. A-1)。点線、実線面の半径はそれぞれ真空における波数 ($K = 1/\lambda$)、媒質内の波数 ($k = nK$) である。ここで λ と n はそれぞれ波長と媒質の屈折率を示している。ベクトル $\mathbf{K}_0$, $\mathbf{k}_0$, $\mathbf{K}_s$ と $\mathbf{K}_c$ はそれぞれ入射波、屈折波、反射波と斜入射角が臨界角 (ω_c) の時の入射波の波数ベクトルを示している。各分散面の中心点 I と、 $\mathbf{K}_0$ と点線面との交点を通る境界の法線ベクトル $\mathbf{n}$ と実線面と

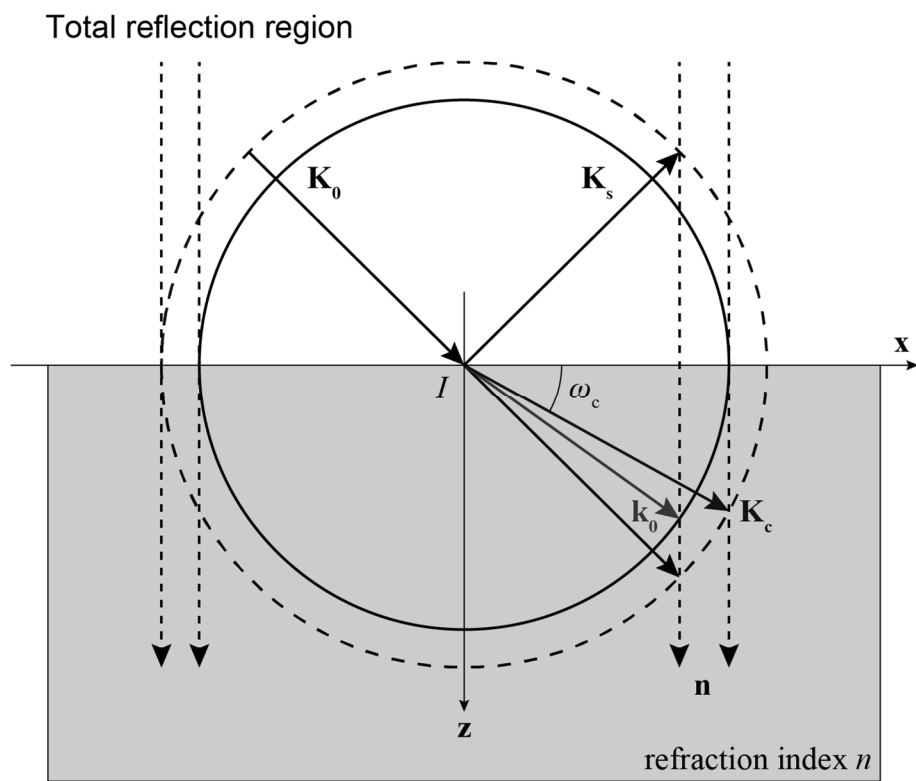


Fig. A-1. Schematic of refraction and specular reflection at a boundary of different media in reciprocal space.

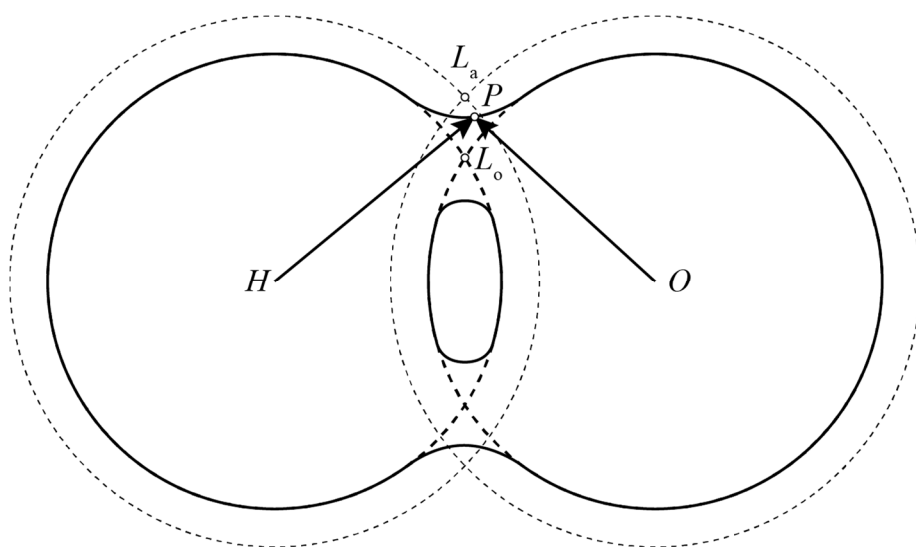


Fig. A-2. Dispersion surface utilized in dynamical theory.

の交点を結んだベクトルが $\mathbf{k}_0$ となる. 入射ベクトル $\mathbf{Kc}$ に対する屈折波数ベクトル $\mathbf{k}$ は境界面と平行となる. 従って, 斜入射角が臨界角よりも小さいとき, 媒質内で $\mathbf{k}$ が表現できなくなる(実部が 0 となる)ため全反射が生じる.

動力学理論で用いられる分散面の概略図を Fig. A-2 に示す. ここで, 2 方向に進行する単色平面波である屈折波(O 波)と回折波(H 波)のみによる波動場を考える(2 波近似). 点 O と H を中心とするそれぞれの真空(媒質内)における分散面を $T'_O(T_O)$ と $T'_H(T_H)$ と定義する. ここで $\mathbf{OH}$ は注目する格子面の逆格子ベクトル $\mathbf{h}$ となる. それぞれ波が密接に関係していることを示す共通端点 P は Ewald によって *tiepoint* と名づけられた(Laue は *Anregungspunkt* と呼んだが, ここでは *tiepoint* を採用する). X 線波動場の回折, 伝播, 結晶内での干渉の全ての性質は波動場と分散面との関係から記述できる.

屈折の効果を無視する運動学的理論において, Bragg 条件は *tiepoint* P が T'_O と T'_H との交点(Laue point, L_a)に位置するときに満たされる. L_a は周囲に有効領域を有しており, その領域内に P が位置する際も Bragg 回折が生じる. 有効領域の大きさは結晶粒の大きさとフーリエ関係で結ばれる. 従って, モザイク結晶のように有限の結晶粒を有する系において, 運動学的理論は有限の角度範囲において Bragg 条件が満たされる事を導く一方で, 半無限の厚みを有する完全結晶において有効領域は点となる. しかしながら, 実際には半無限結晶に対しても, 有限の角度範囲においてのみ Bragg 条件は満たされる. 屈折のみを考慮しても同様であり, P が T_O と T_H との交点である Lorentz point (L_o) に位置するときのみ Bragg 条件が満たされることになる. 動力学理論では, L_o 周辺において分散面の接続領域を導入することでこの問題を克服した. 導入の為の理論は本研究の範疇を越えるため割愛するが, 接続領域上に P が位置する際, 以下の関係が満たされる.

$$OL_o + L_oP = HL_o + L_oP \quad (\text{A-1})$$

この接続領域の導入により, 半無限結晶に対する有限の Bragg 領域は明瞭に説明される.

A-2. 透過・反射構造

X 線の動力学的回折は格子面と結晶表面とのミスマッチ角, α , によって透過(Laue)ケースと反射(Bragg)ケースとに大別される. それぞれの結晶構造を Fig. A-3 に示す. 屈折波, 回折波, そして干渉により生じる波動場の Poynting ベクトルを $\mathbf{s}_o$, $\mathbf{s}_h$, $\mathbf{s}$ と置く. ここで, $\mathbf{s}$ の方向は格子面と平行になる. それぞれの Poynting ベクトルと, 結晶内部に向いた表面の法線ベクトル $\mathbf{n}$ との角度を ψ_o , ψ_h , ψ_s

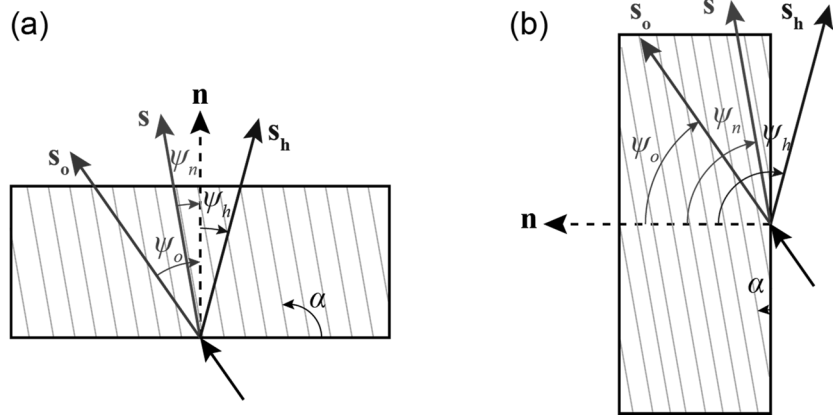


Fig. A-3. Conceptual diagrams of Laue-case (a) and Bragg-case diffraction.

と置き、以下のように定義する.

$$\begin{aligned}\psi_o &= (\mathbf{n}, \mathbf{s}_o) \\ \psi_h &= (\mathbf{n}, \mathbf{s}_h) \\ \psi_n &= (\mathbf{n}, \mathbf{s})\end{aligned}\tag{A-2}$$

それぞれ以下の関係を満たす.

$$\begin{aligned}\psi_n &= -\pi/2 + \alpha \\ \psi_o &= \psi_n + \theta_B \\ \psi_o &= \psi_n - \theta_B\end{aligned}\tag{A-3}$$

ミスマッチ角度が $-\pi/4 < \alpha < \pi/4$ の時 Bragg ケースと, $\pi/4 < \alpha < 3\pi/4$ の時 Laue ケースと呼ばれる. これらの関係式は, Bragg ケースにおいては回折波が入射面から結晶外部へと伝播していき, Laue ケースでは結晶内部へと伝播していくことを意味している. 従って, それぞれ反射, 透過ケースと呼ばれる事もある. ここで $\gamma_o = \cos\psi_o$, $\gamma_h = \cos\psi_h$ と定義すると, それぞれの比である非対称比, γ , は

$$\gamma = \frac{\gamma_h}{\gamma_o} = \frac{\cos(\psi_n - \theta_B)}{\cos(\psi_n + \theta_B)}\tag{A-4}$$

と示される. $\gamma = \pm 1$ の場合, 正負それぞれ対称 Laue, 対称 Bragg ケースと呼ばれる.

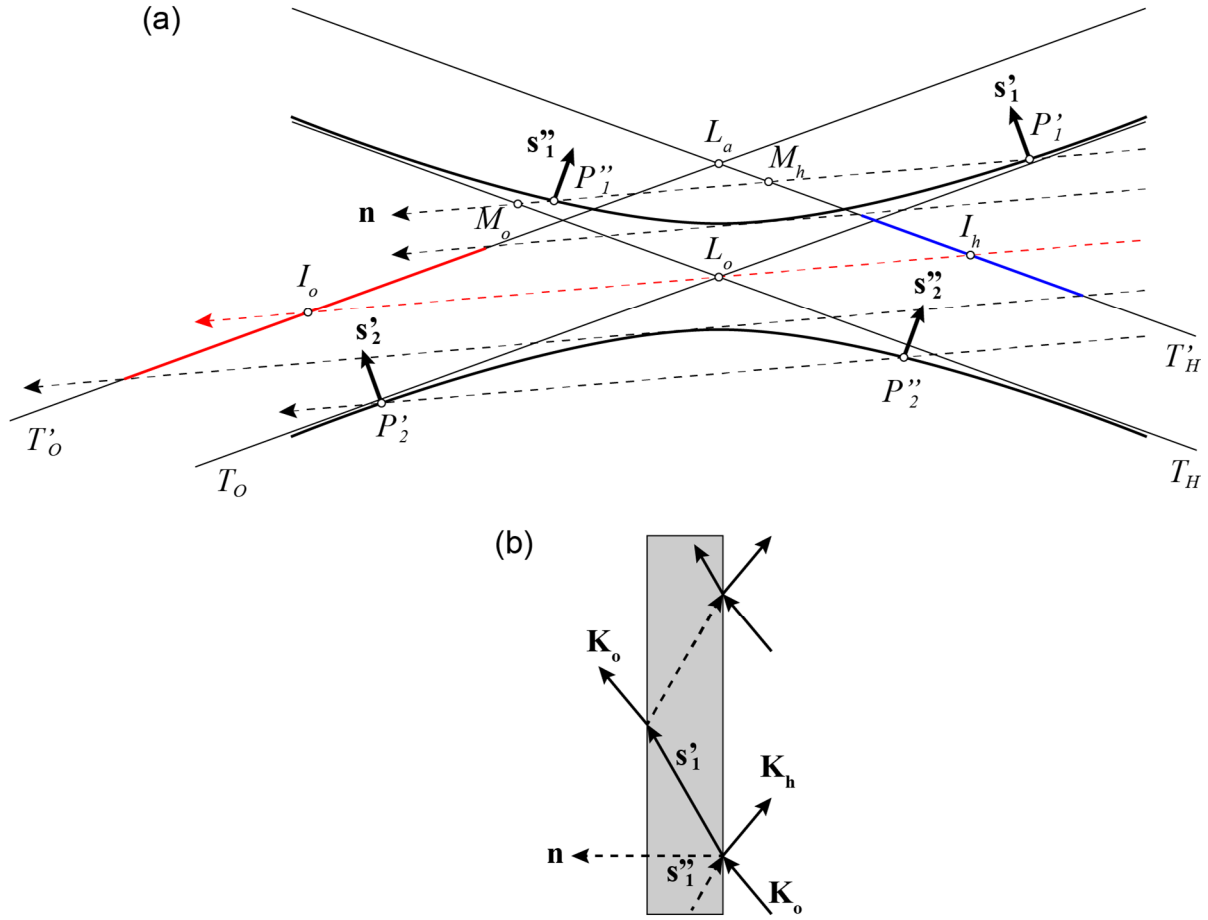


Fig. A-4. Wavefields in a Bragg-case crystal. (a) Reciprocal space and (b) real space.

Bragg ケース結晶中で生じる波動場に関して考える. Lorentz point 近傍の分散面を Fig. A-4a に示す. 分散球の半径の相対差 $(K - k)/k$, は極めて小さい為, 各々の分散面は接線として近似出来る. $\mathbf{s}'_j$ と $\mathbf{s}''_j$ はそれぞれ O 波と H 波の Poynting ベクトルを示しており, 接続領域に対して垂直となる. 下付き文字 $j = 1$ or 2 は L_o に対して上側の接続領域, 下側の接続領域を示しており, それぞれブランチ 1 or 2 と定義する. 入射波の波数ベクトルが $\mathbf{OM}_o$ である時, tiepoint P は M_o を通過する法線ベクトル $\mathbf{n}$ と接続領域との交点に位置する. 従って, $\mathbf{OP}_j$ と $\mathbf{HP}_j$ は結晶中での O 波, H 波の波数ベクトルに相当する. Bragg ケースにおいては, 法線ベクトルはいずれかのブランチと 2 点で交わる. T_o に近い方を P'_j , T_H に近い方を P''_j と表記しており, それぞれ入射面からの波動場との相互作用, 裏面側からの波動場との相互作用を示している (Fig. A-4b). 半無限結晶に対しては裏面からの波動場は存在しない為, P'_j のみを考慮するだけでよい.

M_o が Fig. A-4a 内の赤で示した領域に位置する場合, 法線ベクトルはいずれのブランチとも交わ

らない。これは鏡面反射で言うところの全反射領域に相当しており、この角度範囲においては全反射が生じ、有限の **Bragg** 領域を明瞭に示している。吸収の無い結晶に対して、反射率曲線は **Darwin** ハットとして有名なシルクハット形状をしている (Fig. A-5)。ここで **Laue** ケースにおいては、法線ベクトルは常に両ブランチと交差する為、**Bragg** ケースのような全反射は生じない。また、結晶中の波動場は様々な波との干渉を受けるため、回折、屈折波の強度曲線はマルチピークを示す。本項では入射角度に対してのみ議論しているが、X 線のエネルギーに対しても同様である。空間と時間はそれぞれ角度、周波数(エネルギー)とフーリエ関係で結ばれる為、**Laue** ケースの X 線回折によって複雑な時空間プロファイルの乱れがもたらされる [A7]。

A-3. 半無限結晶に対する **Darwin** カーブの計算

動力学理論の解は *deviation parameter*, η , の導入により上手く記述できる。 η は以下のように示される。

$$\eta = \frac{\Delta\theta \sin 2\theta_B + \chi_o(1-\gamma)/2}{|C|\sqrt{\gamma}\sqrt{\chi_h\chi_{\bar{h}}}} = \frac{(\Delta\theta - \Delta\theta_{os})}{\omega_{os}/2} \quad (\text{A-5})$$

ここで、

$$\begin{aligned} \Delta\theta_{os} &= \frac{\overline{L_a I_o}}{k} = -\frac{\chi_o(1-\gamma)}{2 \sin 2\theta_B} \\ \omega_{os} &= \frac{2C\sqrt{|\gamma|\chi_h\chi_{\bar{h}}}}{\sin 2\theta_B} = \frac{2\lambda}{\Lambda_B} \frac{|\gamma_h|}{\sin 2\theta_B} \\ \Lambda_B &= \frac{\lambda\sqrt{\gamma_o|\gamma_h|}}{C\sqrt{\chi_h\chi_{\bar{h}}}} = \frac{\pi V\sqrt{\gamma_o|\gamma_h|}}{r_e\lambda C\sqrt{F_h F_{\bar{h}}}} \end{aligned} \quad (\text{A-6})$$

である。点 I_o は L_o を通過する法線ベクトルと T'_o との交点、 χ_o は線形電気感受率であり、

$$\chi_o \approx 2(n-1) \quad (\text{A-7})$$

で与えられる. C は偏光因子であり, σ 偏光 (電場ベクトルが格子面と平行) に対しては 1, π 偏光 (電場ベクトルが格子面と垂直) に対しては $\cos 2\theta_B$ が適用される. $r_e = 2.817940 \times 10^{-15} \text{ m}$ は古典電子半径, V は単位格子の体積, そして $\Delta\theta$ は入射角 θ と Bragg 角 θ_B との差 ($\Delta\theta = \theta - \theta_B$) である. χ_h は感受率 χ のフーリエ級数であり, 以下のように表される.

$$\chi = \sum_{\mathbf{h}} \chi_{\mathbf{h}} \exp(2\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{r}) \quad (\text{A-8})$$

また, F_h は結晶構造因子のフーリエ級数であり,

$$F_h = \sum_j f_j \exp(-M_j - 2\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{r}_j) \quad (\text{A-9})$$

で与えられる. ここで, f_j は単位格子内の原子 j の原子散乱因子, M_j は熱振動による原子位置の不確定性の影響を考慮する為の Debye-Waller 因子であり, 実効的な結晶構造因子の低下をもたらす. 動力的な回折における種々の特性は式 (A-6) のパラメータで与えられる. $\Delta\theta_{os}$ は Darwin カーブ中心角と θ_B との偏差であり, $2\omega_{os}$ の実部は Darwin 幅に, Λ_B は消衰距離 (O 波の振幅が $1/e$ になるまでの距離) に相当する. Bragg ケースにおいて, γ は常に負となるため, $\Delta\theta_{os}$ が 0 となることはなく, 運動学的な Bragg 角よりも高角側に Darwin カーブの中心が位置することになる. これが Roseker らの分割・遅延光学系 [A8] において問題として挙げられた, Laue 結晶と Bragg 結晶との mismatch 角度の原因である. ここで Darwin 幅は非対称比 γ に依存することに注目する. このことは Fig. A-4a より視覚的に理解できる. 非対称比の変化は法線ベクトルの角度変化に相当しており, 赤と青で示した領域の幅が変化することが容易に見て取れる. 非対称な回折の場合, Darwin 幅と θ_B からの偏差が入射波動場と回折波動場とでそれぞれ異なり, 以下のように示される.

$$\begin{aligned} \omega_{hs} &= \frac{2r_e \lambda^2}{\pi V \sin 2\theta_B} \frac{1}{\sqrt{|\gamma|}} |C| \sqrt{F_h F_{\bar{h}}} \\ \Delta\theta_{hs} &= -\frac{r_e \lambda^2 F_o}{2\pi V \sin 2\theta_B} \left(1 - \frac{1}{\gamma} \right) \end{aligned} \quad (\text{A-10})$$

これは結晶の非対称比を制御することで, 回折波の性質を大きく変化させることが出来る事を示している. 非対称回折を用い, 平行光の生成 [A9] や超高分解能なモノクロメータの構築 [A10] 等が

実現されてきた。

これらのパラメータを用いて、半無限結晶に対する Darwin カーブは

$$I_h = \left| \eta - S(\eta_r) \sqrt{\eta^2 - 1} \right|^2 \quad (\text{A-11})$$

と計算される。ここで、 $S(\eta_r)$ は η の実部の符号に相当する。全てのパラメータを実数として計算した場合、吸収の無い媒質に対する Darwin カーブが導出される。その際、 $-1 \leq \eta \leq +1$ の範囲では全反射が生じ、 $I_h = 1$ となり、シルクハット形状を取る (Fig. A-5)。また、吸収を考慮する場合、全てのパラメータは複素数となる。従って単純に式 (A-11) を計算することで Darwin カーブを導出可能である。振幅反射率 ξ は絶対値の内部のみを計算することで導き出される。ここで、吸収を考慮した際の Darwin カーブが非対称な形状となっている事に注目する。これは異常吸収 (もしくは異常透過) [A11], [A12] の効果であり、結晶内で生じた定在波の腹と節が格子面 (原子配置) に対してどこに位置しているかに依存している。 P がブランチ 1 に位置する、 η_r が負の場合、格子面上には定在波の節が存在する。従って波動場と媒質との相互作用が弱く、吸収係数が通常よりも低下する。一方で η_r が正の場合、 P はブランチ 2 に位置し、格子面上には定在波の腹が存在する。従って吸収係数が通常よりも大きくなり、その結果反射率の低下が生じる。

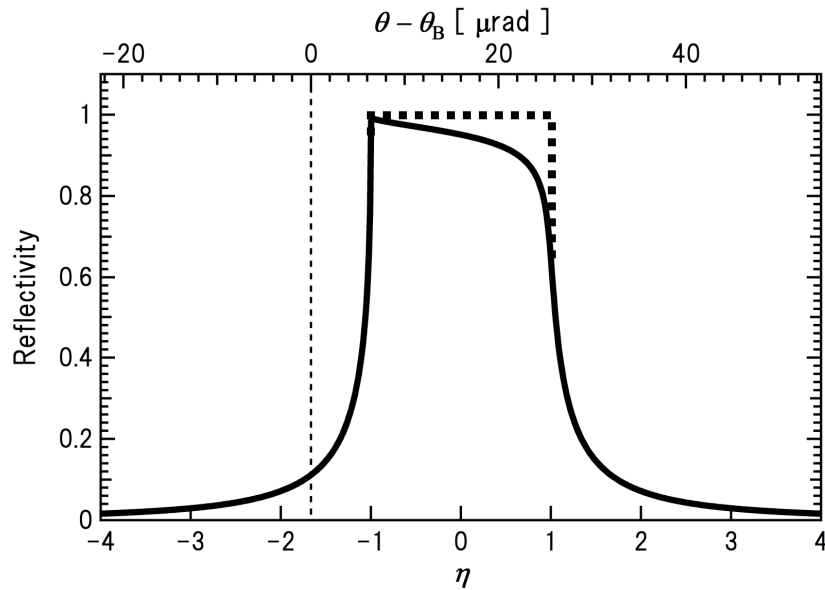


Fig. A-5. Darwin curve with a semi-infinite Si(220) crystal at 10 keV. Solid and dashed curves were calculated with absorbing and non-absorbing crystals.

A-4. 薄い結晶に対する Darwin カーブの計算

前項では裏面からの波動場を考慮しない、半無限結晶に対して取り扱ってきた。一般的には結晶の厚み t が Λ_B の 10 倍以上大きければ、半無限結晶として取り扱っても問題ないとされている。本項では薄い結晶に関して検討する。ここで薄い結晶とは、 $t \sim \Lambda_B$ となるような結晶であり、裏面からの波動場を考慮する必要がある。入射面、裏面の境界条件は以下のように書ける。

1. 入射面：

$$\begin{aligned} D_{o'} + D_{o''} &= D_o^{(a)} \\ D_{h'} + D_{h''} &= D_h^{(a)} \end{aligned} \quad (\text{A-12})$$

2. 裏面：

$$\begin{aligned} D_{o'} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_{o'} \cdot \mathbf{r}) + D_{o''} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_{o''} \cdot \mathbf{r}) &= D_o^{(d)} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_o^{(d)} \cdot \mathbf{r}) \\ D_{h'} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_{h'} \cdot \mathbf{r}) + D_{h''} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_{h''} \cdot \mathbf{r}) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A-13})$$

ここで、 $D_o^{(d)} = \mathbf{D}_o^{(d)} \exp(-2\pi i \mathbf{K}_o^{(d)} \cdot \mathbf{r})$ は裏面からの波動場を示す。

Fig. A-4a より、 $\mathbf{K}_{o'} = \mathbf{K}_o^{(a)} + \mathbf{MP}'_j$ 、 $\mathbf{K}_{o''} = \mathbf{K}_o^{(a)} + \mathbf{MP}''_j$ 、 $\mathbf{K}_{h'} = \mathbf{K}_h^{(a)} + \mathbf{MP}'_j$ 、 $\mathbf{K}_{h''} = \mathbf{K}_h^{(a)} + \mathbf{MP}''_j$ が満たされる必要がある。これらの関係から、式 (A-13) は次のように書き換えられる。

$$\begin{aligned} D_{o'} \exp(-2\pi i \overline{\mathbf{MP}'_j} t) + D_{o''} \exp(-2\pi i \overline{\mathbf{MP}''_j} t) &= D_o^{(d)} \\ D_{h'} \exp(-2\pi i \overline{\mathbf{MP}'_j} t) + D_{h''} \exp(-2\pi i \overline{\mathbf{MP}''_j} t) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A-14})$$

ここで次のように置く。

$$\rho^2 \exp(2i\omega) = \eta^2 - 1 \quad (\text{A-15})$$

式 (A-15) は ω に関して 2 つの解、 ω' と $\omega'' = \omega' + \pi$ 持つ。これにより、 $\overline{\mathbf{MP}'_j}$ と $\overline{\mathbf{MP}''_j}$ は次のように記述できる。

$$\begin{aligned}\overline{MP'}_j &= \frac{k\chi_o}{2\gamma_o} - \frac{\eta}{2\Lambda_B} - \frac{\rho}{2|\Lambda_B|} \exp[i(\beta + \omega')] \\ \overline{MP''}_j &= \frac{k\chi_o}{2\gamma_o} - \frac{\eta}{2\Lambda_B} - \frac{\rho}{2|\Lambda_B|} \exp[i(\beta + \omega'')]\end{aligned}\quad (\text{A-16})$$

式(A-12)と式(A-13)の境界条件は振幅反射率 $\xi_j (=D_{hj}/D_{oj})$ を用いることで解くことが可能であり、入射面における回折波 $D_h^{(a)}$ と裏面における屈折波 $D_o^{(d)}$ が次のように得られる。

$$\begin{aligned}D_h^{(a)} &= \frac{\xi'_j \xi''_j \left[\exp(-2\pi i \overline{MP'}_j t) - \exp(-2\pi i \overline{MP''}_j t) \right]}{\xi'_j \exp(-2\pi i \overline{MP'}_j t) - \xi''_j \exp(-2\pi i \overline{MP''}_j t)} D_o^{(a)} \\ D_o^{(d)} &= \frac{(\xi'_j - \xi''_j) \exp(-2\pi i [\overline{MP'}_j + \overline{MP''}_j] t)}{\xi'_j \exp(-2\pi i \overline{MP'}_j t) - \xi''_j \exp(-2\pi i \overline{MP''}_j t)} D_o^{(a)}\end{aligned}\quad (\text{A-17})$$

最終的に、 $\varepsilon_{1,2} = \exp(\pm \pi i t / \Lambda)$ と $\Lambda = \Lambda_B / \sqrt{\eta^2 - 1}$ とを用いて、反射率、透過率は次のように得られる。

$$\begin{aligned}I_h^{(a)} &= \left| \gamma \frac{D_h^{(a)}}{D_o^{(a)}} \right|^2 = \left| \frac{\chi_h}{\chi_{\bar{h}}} \frac{|\varepsilon_1 - \varepsilon_2|^2}{\eta(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \sqrt{\eta^2 - 1}(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)} \right|^2 \\ I_o^{(d)} &= \left| \frac{D_o^{(d)}}{D_o^{(a)}} \right|^2 = \frac{4|\eta^2 - 1| \exp[-(\mu_0/2)(1/\gamma_0 + 1/\gamma_h)t]}{\left| \eta(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \sqrt{\eta^2 - 1}(\varepsilon_1 + \varepsilon_2) \right|^2}\end{aligned}\quad (\text{A-18})$$

式(A-18)は Fig. A-6 のように、角度範囲 $|\eta| > 1$ において Darwin カーブが振動することを示している。これは波動場 $D^{(a)}$ と $D^{(d)}$ とが干渉し合う為であり、*Pendellösung* フリンジと呼ばれる [A13]。このフリンジの周期を精密に測定することで、結晶の厚みを導出可能である。

Pendellösung フリンジは屈折波側にも確認できる。屈折波の周波数に対する複素振幅反射率をフーリエ変換した際、新たなピークがわずかな時間遅延を持って生じる。このことから、十分広いバンド幅を有する X 線を薄い結晶に入射した場合、単色化された前方回折波が単なる透過光から遅延して生じる事が予測され、セルフシーディング [A14] への適用が Geloni らによって提案された [A15]。Lindberg と Shvyd'ko によって解析的にも解かれ [A16]、LCLS において薄いダイヤモンド結晶を用いたセルフシーディングが実現した [A17]。

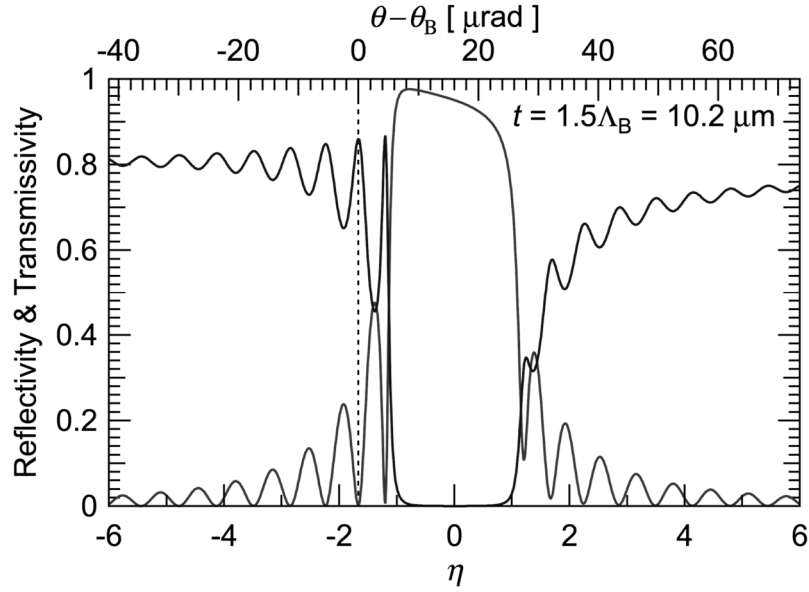


Fig. A-6. Darwin curves of Si(220) diffraction with a $10.2 \mu\text{m}$ ($= 1.5\Lambda_B$) thick crystal at 10 keV.

A-5. 複結晶配置と DuMond 図

これまでは単色平面波に対する 1 つの結晶による X 線回折を取り扱ってきたが、実際には入射 X 線は有限のバンド幅と発散角を有しており、モノクロメータとして、分割・遅延光学系と同様に、複数の結晶素子が用いられることが多い。本項では、そのような複結晶配置による光学系の特性を評価する為の有効な手法を紹介する。

複結晶配置光学系の特性を視覚的に理解する為、DuMond は Bragg の式 (A-1) を θ - λ 空間上に表現し [A18] (Fig. A-7), このような表記法は DuMond 図と呼ばれるようになった。Bragg の式はある d に対して 1 つの曲線を与えるが、前述の通り、実際には有限の幅を有しており、Darwin カーブの中心角は θ_B よりも高角側に来る (Fig. A-7b, c)。

有限のバンド幅と発散角を有する X 線の角度、波長分布を考えた際、強度は単純に積分値、 $\int I(\theta, \lambda) d\theta d\lambda$, で表される。従って Bragg 条件を満たす際、回折波、屈折波の強度も同様に、

$$\begin{aligned} I_{\text{rf}} &= \int I_{\text{in}}(\theta, \lambda) R(\delta\theta, \delta\lambda) d\theta d\lambda \\ I_{\text{tr}} &= \int I_{\text{in}}(\theta, \lambda) T(\delta\theta, \delta\lambda) d\theta d\lambda \end{aligned} \quad (\text{A-19})$$

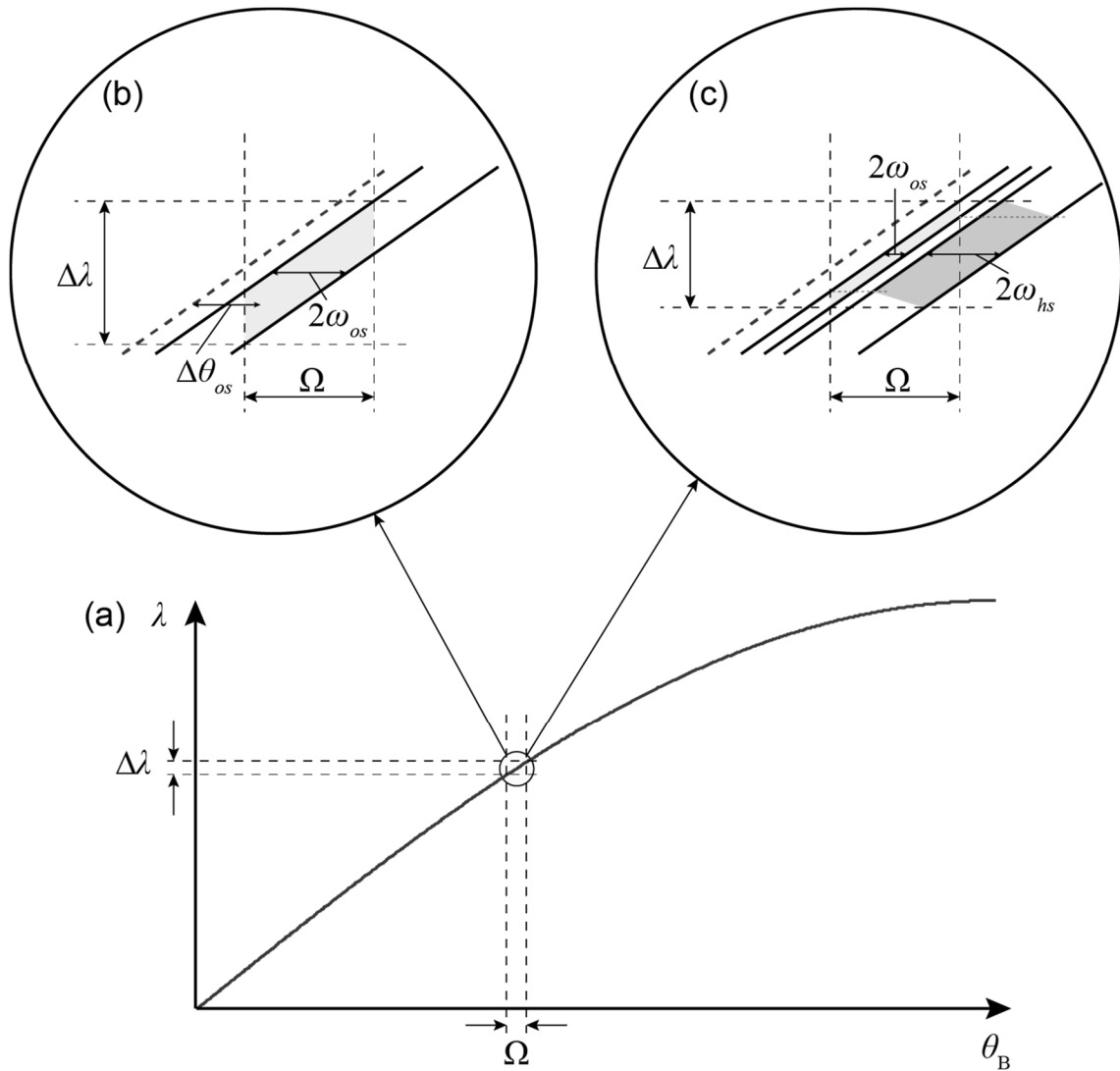


Fig. A-7. (a) Bragg's condition expressed with DuMond diagram. Magnified images for symmetric (a) and asymmetric (b) cases. Ω represents the beam divergence.

と得られる。ここで I_{rf} , I_{tr} はそれぞれ回折波, 屈折波の強度, R , T は結晶の反射率分布, 透過率分布を示している。 $\delta\theta$, $\delta\lambda$ はそれぞれ中心波長に対する Darwin カーブの中心角からの偏差, 中心波長からの偏差を示している。

複結晶系を考える際, 連続する 2 つの結晶がどのように配置されているかを考慮する必要がある。 (+,+) 配置 (Fig. A-8a) と (+,-) 配置 (Fig. A-8b) とに大別される。それぞれの結晶が X 線の変化を同じ方向に変化させる (+,+) 配置では, 第 1 結晶に角度 $\eta = +\varphi$ で入射された X 線は第 2 結晶においては $\eta = -\varphi$ で入射される。従って, 第 2 結晶からの回折波強度分布は以下のように表される。

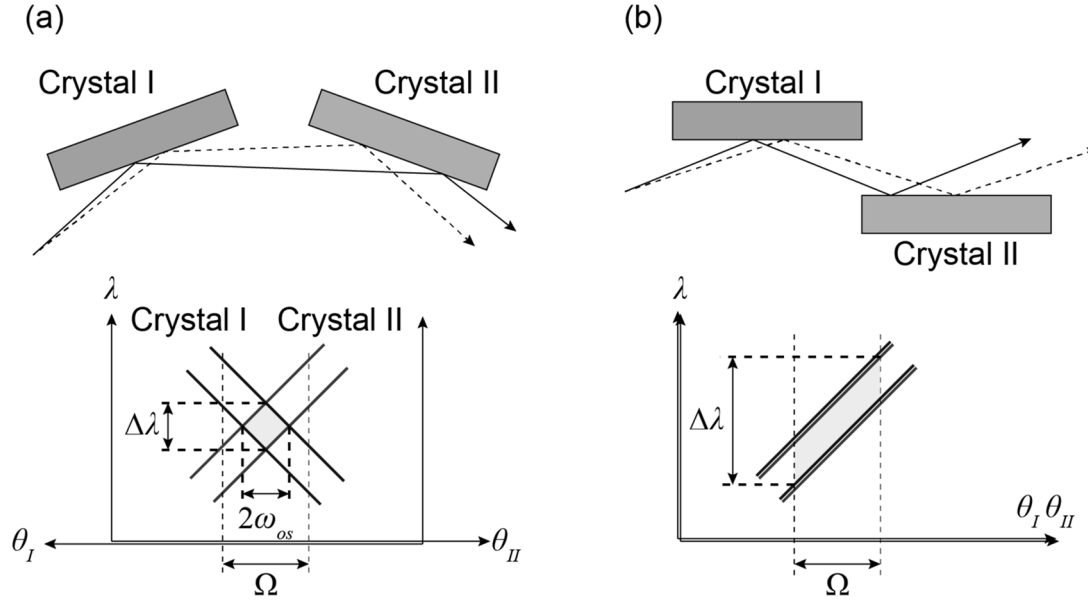


Fig. A-8. (a) (+,+) arrangement and (b) (+,-) arrangement. Uppers and lowers represent crystal configurations and DuMond diagrams, respectively.

$$I_{\text{rf}}^{(2)}(\theta, \lambda) = I_{\text{in}}(-\theta, \lambda) R^{(1)}(-\delta\theta, \delta\lambda) R^{(2)}(\delta\theta, \delta\lambda) \quad (\text{A-20})$$

この(+,+)配置は、バンド幅、発散角の広い入射 X 線に対して高い単色化、平行化性能を有していることがわかる。ただし、X 線の光軸が大きすぎる為に 2 結晶配置ではあまり汎用的ではない。

一方で、(+,-)配置では角度の逆転が生じず、回折波の強度分布は

$$I_{\text{rf}}^{(2)}(\theta, \lambda) = I_{\text{in}}(\theta, \lambda) R^{(1)}(\delta\theta, \delta\lambda) R^{(2)}(\delta\theta, \delta\lambda) \quad (\text{A-21})$$

と表される。平行化の性能は有していないものの、同一の格子面を用いることで回折波の方向は元々の光軸と平行に戻すことが可能である。第 3 世代放射光や XFEL の発散角は十分小さい為、(+,-)配置においても(+,+)配置と同等の単色化性能が期待され、汎用的なモノクロメータとして広く用いられている [A19]。また、分散の影響を除外出来ることから、結晶性評価にもよく用いられる。

より多くの結晶を用いる光学系においても同様に表現される。(+,+)配置での角度の逆転は、解析上どちらの結晶に対して行っても問題ないが、本論文では式(A-20)のように光学系の最後の結晶を基準に決定している。

A-6. 結晶性評価のための実験配置

本節において、実際に結晶性評価に使用した 2 つのセットアップ、サンプル結晶と同一回折面を有するコリメータ結晶を用いた (+, -) 平行配置と、(+, -, -, +) 配置の Si(444) チャネルカット結晶をモノクロメータとして使用したセットアップに関して、それぞれの目的、特徴を示す。

(+, -) 平行配置のセットアップを Fig. A-9 に示す。本セットアップにおいて、X 線はサンプル直前に配置されたコリメータ結晶によって単色化され、サンプル結晶へと照射される。そしてサンプル結晶からの反射 X 線プロファイルを用いた評価(トポグラフィー)や、サンプル結晶の回転角に対する反射強度曲線、透過強度曲線を取得するロッキングカーブ評価を行う。ここで、測定される反射率、透過率は、以下に示すように、入射光の角度・スペクトル分布とサンプル結晶の反射率、透過率分布との角度方向のコンボリューションとなる。

$$I_m(\theta) = \frac{\iint I_{in}(\varphi, \lambda) R_s(\varphi - \theta, \lambda) d\varphi d\lambda}{\iint I_{in}(\varphi, \lambda) d\varphi d\lambda} \quad (\text{A-21})$$

ここで、 I_m は測定されるロッキングカーブ、 I_{in} は入射 X 線の角度・スペクトル分布、 R_s はサンプル結晶の Darwin カーブである。前節で述べた通り、分散(バンド幅)の影響を抑制した評価が可能であり、セットアップの容易性から広く結晶性評価に用いられている。

(+, -, -, +) 配置の Si(444) チャネルカット結晶モノクロメータを用いた際のセットアップを Fig. A-10 に示す。Si(444) チャネルカット結晶モノクロメータを用いることで、単色性の高いプローブ X 線が得られる。測定されるロッキングカーブは式 (A-21) のように、コンボリューションで表される為、単色性の高いプローブ光を用いることで、より固有な Darwin カーブに近い反射率、透過率曲線が測定可能である。従って、極薄結晶の Darwin カーブに現れる *Pendellösung* フリンジの分解も可能となり、結晶厚みの絶対測定が実現される。

それぞれのセットアップにおいて得られるプローブ X 線の DuMond 図を Fig. A-11a, b に示す。また、10 μm 厚の Si(440) 結晶を測定した際に得られるロッキングカーブを Fig. A-11d に示す。チャネルカット結晶モノクロメータを利用した際、*Pendellösung* フリンジが明瞭に分解されていることがわかる。Darwin カーブの分解能力という意味では、チャネルカット結晶モノクロメータの利用は魅力的である。一方で、格子面の傾斜分布を測定する為、あらゆる角度におけるトポグラフを取得し、ピクセル単位のロッキングカーブを解析する手法がある。この手法においては、細かな構造を分解するより

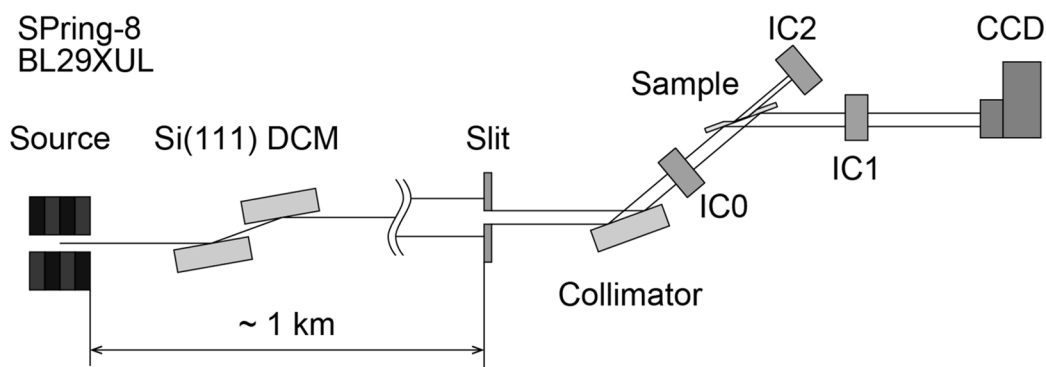


Fig. A-9. (+,-) parallel arrangement. ICs correspond to ion chambers.

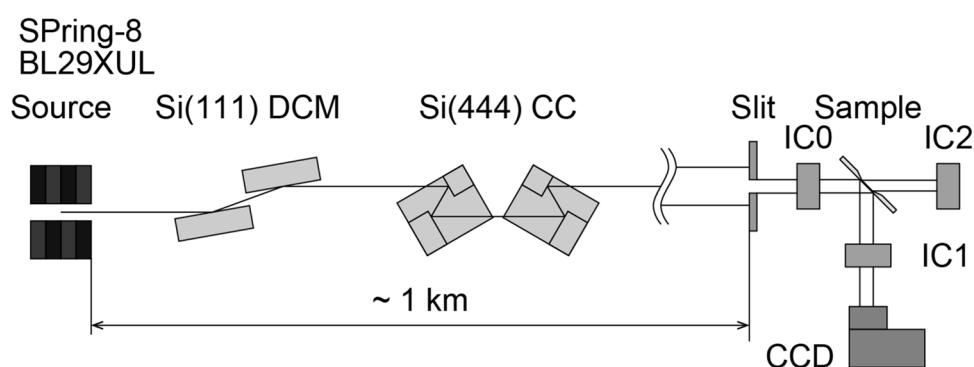


Fig. A-10. Experimental setup with Si(444) channel-cut crystals.

も、よりガウシアンに近いロッキングカーブを取得することが望ましく、(+,-) 平行配置の方がより正確な分布を測定することが可能である。

その他、サンプル結晶の前後にコレメータ結晶とアナライザ結晶を配置した(+,-,+)の三結晶配置等が歪みや欠陥の可視化には良いとされるが、本研究で議論すべきは欠陥等の局所的な構造ではなく、 $1\ \mu\text{rad}$ 以下の格子面の傾斜である為、前述した(+,-)平行配置によるトポグラフ解析が最も適していると言える。

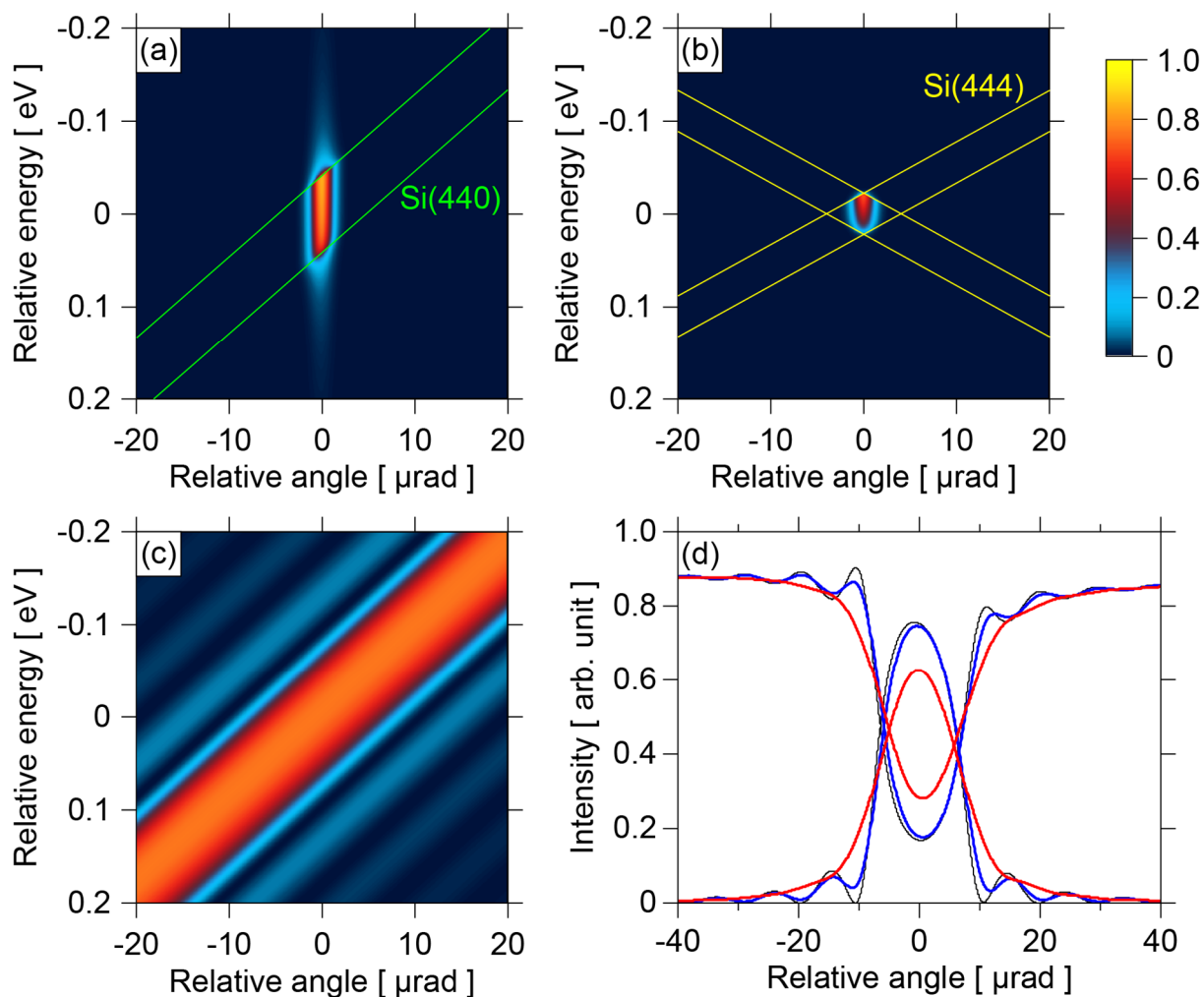


Fig. A-11. Comparison of the two setups. DuMond diagrams of probe X-ray beam with (+, -) parallel arrangement (a) and Si(444) channel-cut crystal monochromator (b). (c) Intrinsic reflectivity distribution of 10 μ m thick Si(440) crystal. (d) Measured rocking curves with intrinsic (black), (+, -) parallel arrangement (red), and Si(444) channel-cut crystals (blue) at 9.13 keV.

参考文献

- [A1] W. Friedrich, P. Knipping and M. von Laue, "Interferenz-Erscheinungen bei Röntgenstrahlen," Sitzungsberichte der Kgl. Bayer. Akad. Der Wiss., 303–322 (1912), reprinted in Ann. Phys. **41**, 971 (1913).
- [A2] C. G. Darwin, "The Theory of X-ray Reflection," Phil. Mag. **27**, 315–333 (1914), and C. G. Darwin, "The Theory of X-ray Reflection Part II," Phil. Mag. **27**, 675–690 (1914).
- [A3] P. P. Ewald, "Zur Begründung der Kristalloptik III Die Kristalloptik der Röntgenstrahlen," Ann. Physik **54**, 519–597 (1917).
- [A4] M. von Laue, "Die dynamische Theorie der Röntgenstrahlinterferenzen in neuer Form," Ergeb. Exakt. Naturwiss. **10**, 133–158 (1931).
- [A5] B. W. Batterman and H. Cole, "Dynamical Diffraction of X Rays by Perfect Crystals," Rev. Mod. Phys. **36**, 681–717 (1964).
- [A6] A. Authier, *Dynamical Theory of X-Ray Diffraction*, IUCr Monographs on Crystallography Vol. 11 (Oxford Univ. Press, 2001).
- [A7] V. A. Bushuev, "Diffraction of X-ray free-electron laser femtosecond pulses on single crystals in the Bragg and Laue geometry," J. Synchrotron Rad. **15**, 495–505 (2008).
- [A8] W. Roseker, H. Franz, H. Schulte-Schrepping, A. Ehnes, O. Leupold *et al.*, "Development of a hard X-ray delay line for X-ray photon correlation spectroscopy and jitter-free pump–probe experiments at X-ray free-electron laser sources," J. Synchrotron Rad. **18**, 481–491 (2011).
- [A9] T. Ishikawa, "Measurement of the Coherence Length of Highly Collimated X-rays from the Visibility of Equal-Thickness Fringes," Acta Cryst. **A44**, 496–499 (1988).
- [A10] M. Yabashi, K. Tamasaku and T. Ishikawa, "Intensity interferometry for the study of x-ray coherence," Phys. Rev. A **69**, 023813 (2004).
- [A11] M. von Laue, "Die Absorption der Röntgenstrahlen in Kristallen im Interferenzfall," Acta Cryst. **2**, 106–113 (1949).
- [A12] G. Borrmann, "Die Absorption von Röntgenstrahlen im Fall der Interferenz," Z. Phys. **127**, 297–323 (1950).
- [A13] B. W. Batterman and G. Hildebrandt, "X-Ray Pendellösung Fringes in Darwin Reflection," Acta Cryst. **A24**, 150–157 (1968).

- [A14] J. Feldhaus, E. L. Saldin, J. R. Schneider, E. A. Schneidmiller and M. V. Yurkov, “Possible application of X-ray optical elements for reducing the spectral bandwidth of an X-ray SASE FEL,” *Opt. Commun.* **140**, 341–352 (1997).
- [A15] G. Geloni, V. Kocharyan and E. Saldin, “A Cascade self-seeding scheme with wake monochromator for narrow-bandwidth X-ray FELs,” DESY 10-080 (2010).
- [A16] R. R. Lindberg and Yu. V. Shvyd’ko, “Time dependence of Bragg forward scattering and self-seeding of hard x-ray free-electron lasers,” *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **15**, 050706 (2012).
- [A17] J. Amann, W. Berg, V. Blank, F.-J. Decker, Y. Ding *et al.*, “Demonstration of self-seeding in a hard X-ray free-electron laser,” *Nat. Photon.* **6**, 693–698 (2012).
- [A18] J. W. M. DuMond, “Theory of the Use of More Than Two Successive X-Ray Crystal Reflections to Obtain Increased Resolving Power,” *Phys. Rev.* **52**, 872–883 (1937).
- [A19] M. Yabashi, H. Yamazaki, K. Tamasaku, S. Goto, K. Takeshita, T. Mochizuki, Y. Yoneda, Y. Furukawa and T. Ishikawa, “SPring-8 standard x-ray monochromators,” *Proc. SPIE* **3773**, X-Ray Optics Design, Performance, and Applications, 2 (1999); doi:10.1117/12.370098