



# 1/100秒以下に平行化された X線束の作成とその応用

高エネルギー物理学研究所

石川 哲也

## Applications of Extremely Collimated X-rays

Tetsuya Ishikawa

Photon Factory, National Laboratory for High Energy Physics

Collimated X-rays with less than 0.01 arcsec angular divergence was produced by using successive asymmetric diffractions at  $\lambda=0.7 \text{ \AA}$ . Coherent length of this beam was directly measured from visibility of equal-thickness fringes, giving values of  $>20 \mu\text{m}$  (transverse) and  $>41 \mu\text{m}$  (longitudinal). Topographic image of dislocations with this beam revealed the fine structures which had not been observed before.

### 1. はじめに

シンクロトロン放射光が利用されるようになって以来、その高強度、指向性の良さ、偏光性及び波長連続性等の特徴を活かして、VUVから硬X線領域の光を用いた種々の研究の進展にはめざましいものがある。筆者は、高エネルギー物理学研究所放射光実験施設（フォトン・ファクトリー）で、精密X線光学実験ステーションを担当しているが、この分野にとっても上記のシンクロトロン放射光の諸特徴がもたらしたものは、おそらく他の多くの分野と同様に、はかりしれないものがある。それに加えて、シンクロトロン放射光での実験では、従来のX線源（特に大強度の回転対陰極型）では大きな問題であった実験環境の温度変化や、振動に悩まされることもなく、「気軽に」精密実験を行なうことが可能になっている。

光源強度が増大すると、同じ実験であればデータ収集時間が短縮され、場合によっては膨大なデータをかかえこむことになる。一方では、より弱い相互作用の追求が可能となるし、また高分解能を追求することもできる。ここでは、高分解能化の一例として、1/100秒以下に平行化されたX線束の作成と、そのようなX線束を用いた2つの応用例、(a) X線可干渉長の測定<sup>1)</sup>及び(b) X線ト

ポグラフィへの応用<sup>2)</sup>、を紹介する。

### 2. 平行X線束の作成

実験は、高エネルギー物理学研究所・放射光実験施設のBL-15Cで、水平多軸精密回折計<sup>3)</sup>を用いて行なわれた。実験配置を図1に示すが、四結晶配置の最初の3つが平行X線束を作るためのものであり、最後の結晶が試料になっている。最初の結晶(C<sub>1</sub>)は、BL-15Cに入ってくる白色放射光X線を粗く分光するためのものであり、(111)Fz-シリコンが用いられている。白色X線照射による熱的な不安定を除くために水冷された銅ブロック(H)に固定されている。この結晶で、 $\lambda=0.70 \text{ \AA}$  (aの場合)、 $0.72 \text{ \AA}$  (bの場合)のX線を、111対称反射を用いて取り出している。単色化されたX線は、スリットにより巾35mm、高さ0.5mmに整形されて、第2の結晶(C<sub>2</sub>)に入射する。第2及び第3結晶は、Fz-シリコン単結晶から作られたもので、非対称220, 220反射により、X線束を試料位置に導く。これらの結晶の非対称因子

$$b = \frac{\sin(\theta_B - \alpha)}{\sin(\theta_B + \alpha)}, \quad (1)$$

$\theta_B$  : ブラッグ角

$\alpha$  : 結晶表面と格子面とのなす角

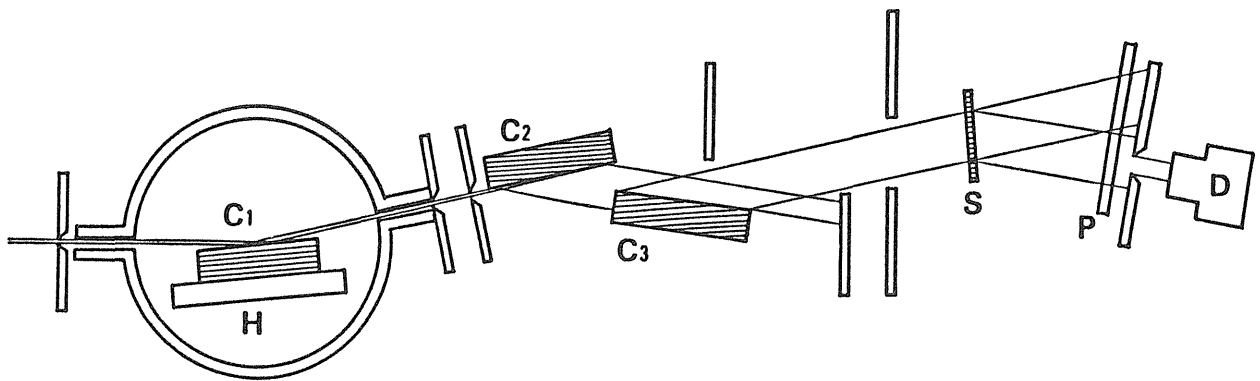


図1 実験配置(正面図)。C<sub>1</sub>: プリモノクロメーター結晶、(111)シリコン、111 対称反射。C<sub>2</sub>及びC<sub>3</sub>: コリメータ結晶、220非対称反射。S: 試料結晶、ラウエケース 220 対称反射。H: 水冷結晶台。P: 真写乾板。D: 角度位置モニター用シンチレーションディテクタ。

は (a) の場合 1/40, (b) の場合 1/36 となっている。

試料 (S) に入射する X 線束の角度拡がり,  $\Delta\theta$ , は第 2 結晶の非対称因子を  $b_2$ , 第 3 結晶の非対称因子を  $b_3$ , Si 220 対称反射のイントリンシックな回折角度巾を  $\omega_s$  として

$$\Delta\theta = \sqrt{b_2 b_3} \omega_s, \quad (2)$$

となる<sup>4)</sup>。したがって  $\Delta\theta$  は (a) では, イントリンシックな角度巾の 1/253, すなわち 0.008 秒, (b) では, 1/216, すなわち 0.01 秒となっている。試料では, 220 対称反射 (ラウエケース) を用いているので, 入射 X 線束の平行性は, 試料の回折角度巾の 1/200 以下になっていることになる。

### 3. X線可干渉長の測定<sup>1)</sup>

現在までの大抵の X 線回折理論, 実験では, 可干渉長の影響は殆んど考慮されていないが, 実際上 X 線束は, その波長拡がりや角度拡がりに対応して時間的にも空間的にも有限な可干渉長をもつ。ここで作られたような, 非常に平行な X 線束が, 通常より長い時間的・空間的可干渉長をもつことは, 当然予想されていたが, 従来の X 線源では直接可干渉長を測定するには不十分な強度しか得られなかったために, 実験的な検証は行なわれていない。

ところが, 放射光を用いると, かなり無茶な単色化・平行化を行なっても十分な強度を持つ X 線束を取り出すことが可能となり, 楔形試料の等厚干渉縞のコントラストから, X 線の可干渉距離を見積ることができる様になった。

#### 3.1 測定の原理

動力的回折理論<sup>5-7)</sup>によれば, 非常に単色, 平行化された入射 X 線束によって, 完全結晶でラウエケースの回折がおこっている時, 結晶内での波動場はほとんど平面波からなり, 分散面上の非常に小さな領域が励起される。分散面上側の分枝 (1) と下側の分枝 (2) に属する波動場のポイントングベクトルは, 分散面の法線方向を向き, ブラッグ条件が正確に満足されている場合以外には異なる方向に向かう<sup>8) 9)</sup> (図 2)。平面波入射の場合の動力的回折理論では, 一般に入射 X 線は, 無限に広い波面と無限に長い波連をもつことが仮定されていて, X 線出射表面上の点 P での X 線強度は, 2つの波動場の干渉の結果として与えられる (図 3)。分散面の分枝 1 に属する波動場は, 入射表面上の点 A から S<sub>1</sub> に沿って伝播し, 分枝 2 に属する波動場は点 B から S<sub>2</sub> に沿って進む。しかしながら, 実際には波面は有限な巾しかもたないし, 波連も有限な長さしかもたない。したがって, 入射表面上の点 A, B の間の距離がある臨

界値を越えると、 $S_1$ と $S_2$ に沿って伝播してきた2つの波動場は、P点でもはや干渉しえない。AB間の距離dは、対称反射の場合、結晶の厚さをt、 $S_1$ と $S_2$ のなす角を $2\Omega$ とすると

$$d = 2t \tan \Omega \quad (3)$$

で与えられる。 $\Omega$ は、ブラッグ条件からのはずれの関数として、吸収を無視した場合に

$$\tan \Omega = \frac{|W| \tan \theta_B}{\sqrt{1+W^2}} \quad (4)$$

で与えられる。ここでWはブラッグ条件からのはずれをあらわすパラメーターであり

$$W = \frac{2(\theta_0 - \theta_B)}{\omega_s} \quad (5)$$

$\theta_0$  : 反射面への照射角

として与えられる。

2つの波動場がP点で干渉しているか否かは、

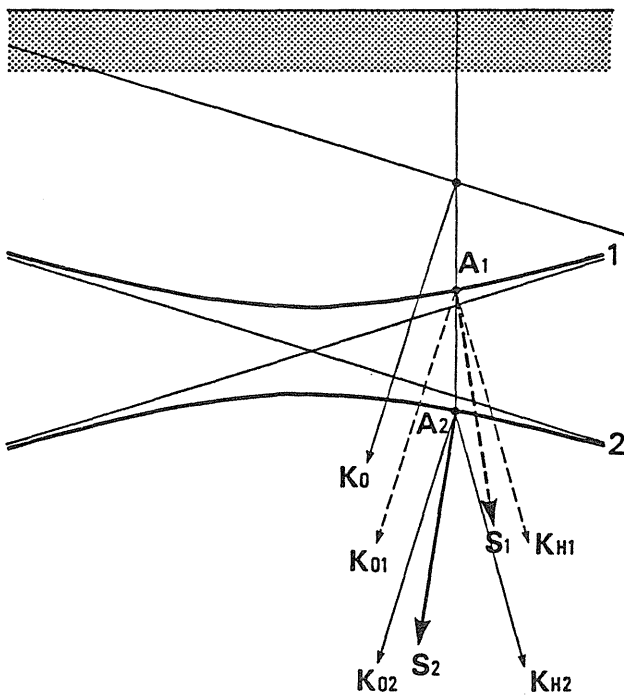


図2 1つの偏光状態(今の場合 $\sigma$ -偏光)での分散面。平面波の場合には、タイポイント $A_1$ と $A_2$ からの2つの波動場が干渉する。分枝1及び2の波動場のポインティングベクトル $S_1$ 、 $S_2$ は、各々の分枝の法線方向を向き一般には異なる方向に向かう。

等厚干渉縞のビジビリティが判断基準となる。この等厚干渉縞を観察するために、試料として楔型結晶を用いるわけである。分散面の分枝1、2が異なる吸収を受けることによって、等厚干渉縞はぼけるが、結晶のどこまでの厚さで等厚干渉縞が観察できるかが、平行化されたX線の可干渉長の「ものさし」になる。この方法では、時間的干渉長と空間的干渉長を分離して測定することはできないが、あるWの値で結晶の厚さ $t_{\text{limit}}$ まで等厚干渉縞が観測されたとすれば、時間的干渉長、 $d_l$  (lはlongitudinalの略)と、空間的干渉長 $d_t$  (tはtransverseの略)は、次式で与えられる長さよりも長いということが結論できる。

$$d_l = \frac{2 t_{\text{limit}} |W| \tan \theta_B \sin \theta_B}{\sqrt{1+W^2}} \quad (6)$$

$$d_t = \frac{2 t_{\text{limit}} |W| \sin \theta_B}{\sqrt{1+W^2}} \quad (7)$$

### 3.2 実験結果及び解析

試料結晶は前述したように楔形をしており、その形状を図4に示す。この試料を用いて、(A)W=

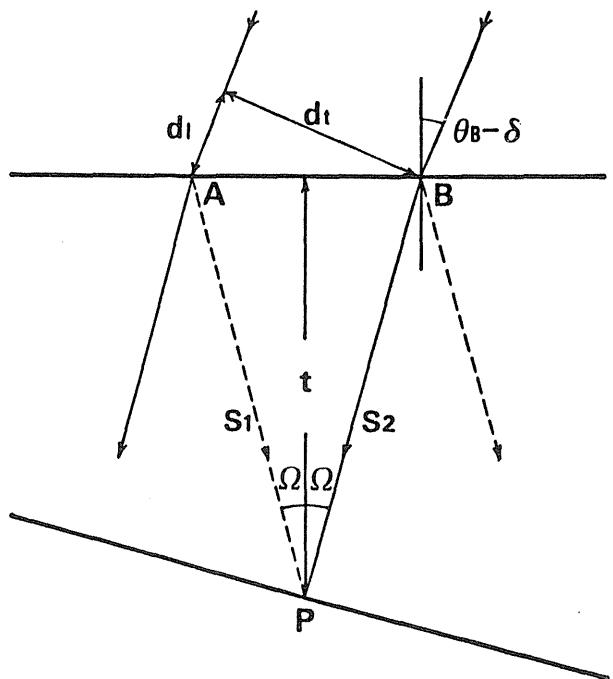


図3 X線出射表面上の点Pでの干渉をおこす、分枝1と分枝2のX線束の光路

-2.39, (B)  $W = -1.13$ , (C)  $W = 0$ , (D)  $W = 1.07$ 及び (E)  $W = 2.28$  の5つの角度位置で、トポグラフを撮った。使用した原子核乾板は、Ilford L4, 50  $\mu\text{m}$  厚であり、露光時間は $W$ によって変化するが、リングのパラメタ 2.5 GeV, 150 mA で換算して15分から80分である。

図5に、(A)~(E)の $W$ 値での回折波中に観察される等厚干渉縞を示す。ラウエケースでの平面波入射X線に対する回折強度は、 $W$ 及び $t$ の関数として、

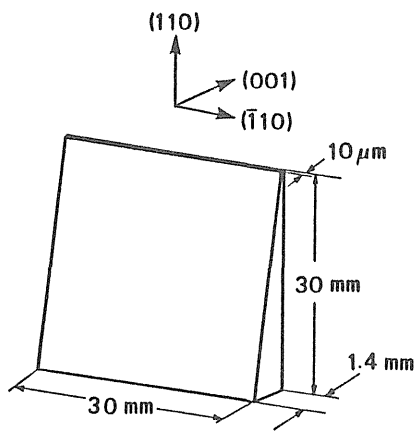


図4 試料結晶。Fz-シリコン・インゴットより切り出し、メカノケミカル研磨により表面処理。220反射がトポグラフに使用された。

$$R_L(W) = \frac{\sin^2(\pi t \sqrt{1 + W^2} / \Delta_0)}{1 + W^2} \quad (8)$$

: 吸収のない場合

として与えられる。この実験ではシンクロトロン放射光を用いているので、 $\sigma$ -偏光のみとなっており、いわゆるフェーディングは観測されない。 $\Delta_0$ は、 $W = 0$ のときの等厚干渉縞の間隔であり、計算値は36.51  $\mu\text{m}$ である。(8)式から、ブラッグ条件からはずれた時の等厚干渉縞の間隔は

$$\Delta W = \frac{\Delta_0}{\sqrt{1 + W^2}} \quad (9)$$

で与えられることがわかる。したがって図5の写真で、 $|W|$ が小さい時には、フリンジ間隔は大きく、 $|W|$ が大きくなるにしたがって細かいフリンジになる。

3.1で予想した様に、ブラッグ条件からのはずれ、 $|W|$ が大きくなると、等厚干渉縞が観察しうる最大の厚さ、 $t_{\text{limit}}$ は小さくなる。各々の $W$ の値で測定された $t_{\text{limit}}$ の値と、それらを(6)式、(7)式に入れて計算した $d_j, d_t$ の値を表1にまとめておく。もちろんこの程度の値は、X線モノクロメータの後方に細いスリットを入れて、その1 km程度後方で観測すれば得られる、が、現

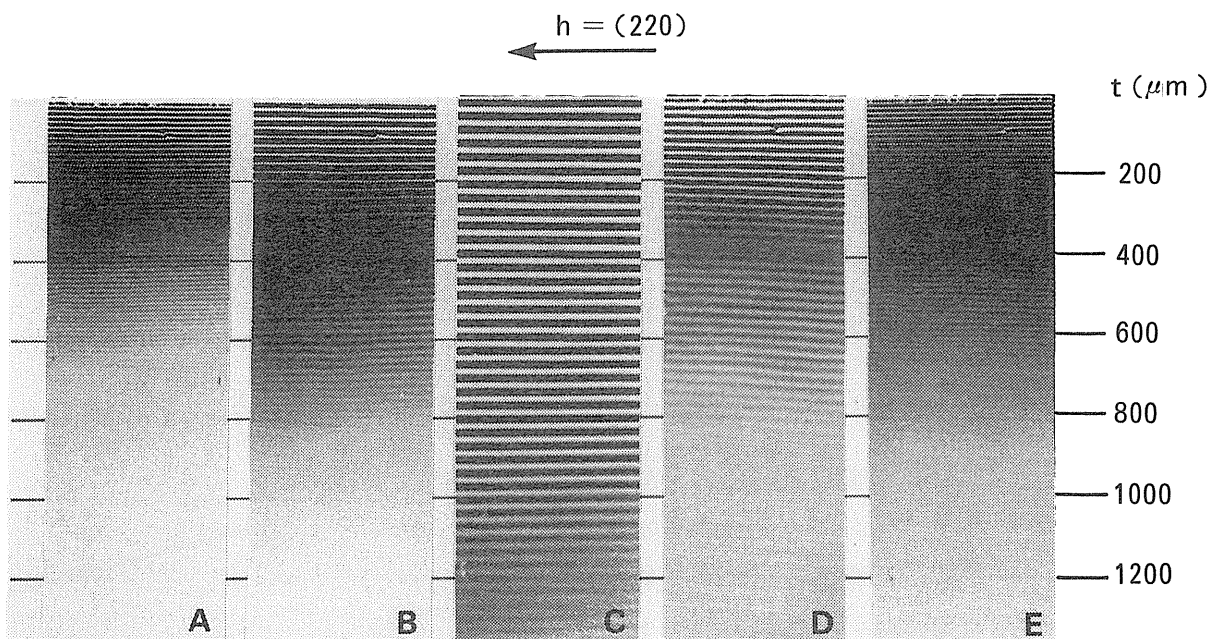


図5 楔型試料での等厚干渉縞：入射条件 $W$ は、(A) -2.39, (B) -1.13, (C) 0, (D) 1.07及び (E) 2.28

表 1 時間的干渉長  $d_l$  と空間的干渉長  $d_t$

W	$t_{\text{limit}} (\mu\text{m})$	$d_l (\mu\text{m})$	$d_t (\mu\text{m})$
-2.39	640	220	41
-1.13	780	220	41
0.0	>1400	-	-
1.07	810	220	41
2.28	650	220	41

在の実験は、光源から 30 m の地点で行なわれており、原理的には、更に光源点に近づいても同様な干渉長の長い X 線束を得ることができる。また、異なる W の値での測定結果が、極めて良く一致することは、フリッジのビジビリティが分枝 (1), (2) の吸収のちがいによるものではないことを示している。

#### 4. X 線トポグラフィへの応用<sup>2)</sup>

今まで、平面波 X 線トポグラフィは、一枚の非対称反射コリメータを用いて、試料結晶の回折角度巾の 1/5~1/10 に平行化された入射 X 線束を用いて行なわれてきた<sup>10)-14)</sup>。しかしながら、石田たち<sup>14)</sup>による実験と計算の比較によれば、入射 X 線束を回折角度巾の 1/5 としても、角度拡がりの影響によって格子欠陥像の細かい干渉パターンはぼかされてしまう。また計算機実験の結果によるとこのぼけが目立たなくなるのは、入射 X 線束を回折角度巾の 1/100 以下にしなければならぬことがわかった。

したがって、2. で述べられた光学系を用いると真の意味での平面波 X 線トポグラフィ実験を行なうことが可能となる。

##### 4.1 平行平板シリコン単結晶内の転位像

平面波 X 線トポグラフィの最初の例として、厚さ約 330  $\mu\text{m}$  になる様に、両面メカノケミカル研磨で鏡面にした平行平板シリコン単結晶内の転位例の例を紹介する。この実験は、1988 年 3 月に行な

われたものであり、細かい解析はまだ済んでいないが、従来この結晶配置による平面波 X 線トポグラフィにはみられなかったいくつかの特徴がある。

実際には、ブラッグ条件からのはずれ角、 $\Delta\omega$  が  $0^\circ$ ,  $\pm 0.75^\circ$ ,  $\pm 1.50^\circ$ ,  $\pm 2.25^\circ$  の 7 つの点でトポグラフィが撮られたが、紙数の関係からここではその一部分のみを紹介することにしたい。個々のトポグラフィ撮影の前に、入射条件を決めるために回折強度曲線が測定された。この測定には、転位列から離れた完全結晶部分からの回折 X 線が 1 mm  $\times$  1 mm のスリットで切りとられて用いられた。この実験でも、3. と同様に、50  $\mu\text{m}$  膜厚の Ilford, L4 原子核乾板が用いられ、ストレージングの運転条件 2.5 GeV, 250 mA で 15 分 - 50 分の露光時間を要した。

平行平板結晶での回折強度曲線は、(8) 式で結晶の厚さ  $t$  を一定としたものであり、振動的なプロファイルを持つ。したがって、 $|\Delta\omega|$  が小さい時には、入射条件のほんの少しのちがいが、回折強度の大きな差となって出てくる。露光中にも、原子核乾板を透過してくる X 線束を用いて、入射条件のドリフトをチェックしているが、今の場合にはフィードバック系を使用しないで  $0.01^\circ$  以下のドリフトに抑えられている。

図 6 に、回折強度曲線の計算値と実測値とを示す。(8) 式からわかる様に、結晶の厚さ  $t$  の誤差がプロファイルを大きく変化させる。計算では、 $t$  をパラメータとしてプロファイル全体と、ピーク間隔が実験値と合うものを探し、 $t = 334 \mu\text{m}$  で良い一致をみた。計算には、(8) 式ではなく、吸収を含む式を用い、入射波は完全な平面波と仮定している。実験値は、ピーク間の谷が計算値ほど深くないが、これは、(a) 実際の入射波には、小さいとはいえ有限な発散があること、及び後にみる様に (b) 転位列の歪場が非常に遠くまで及んでいること、の二つの理由によると考えられる。

図 7 に、 $\Delta\omega = -2.25^\circ$  でのトポグラフィを示す。この写真の下方に十数本のほぼ平行な直線状の像がみえるが、この 1 つ 1 つが転位である。これら

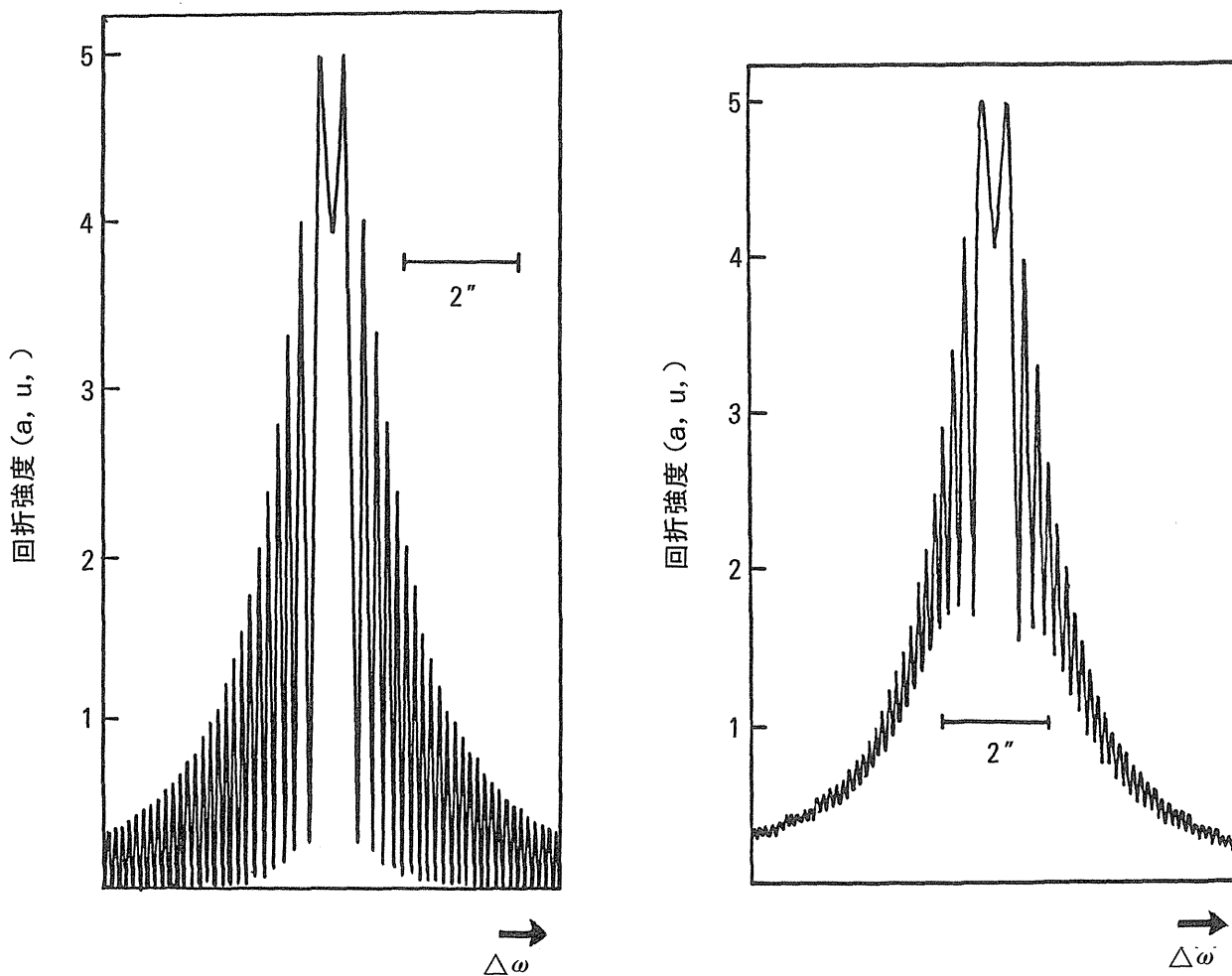


図6 平行平板結晶からの回折強度曲線：(A)  $t = 334 \mu\text{m}$  での計算値、(B) 実測値。縦軸は任意尺度であるが、計算値と実測値のピーク強度が同じになる様に規格化してある。

の転位は、同じバーガーズベクトルを持つ刃状転位であり、余分な格子面は全て結晶の片側にある。このために転位列の近傍では、結晶のバックリングがおこっており、1本1本の転位ごとに異なる入射条件となっている。直線状の転位像の中に、フリッジ構造が観られるが、この写真では、左側の転位でのフリッジ間隔が右側の転位での間隔にくらべて短くなっている。この間隔は、結晶内部での等厚干渉縞の間隔、 $\Delta\omega$  ((9)式参照) に対応しており、これから局所的な入射条件、すなわち  $W$  の値を決定することができる。右側にいくに従って、ブラッグ条件に近くなっているが、ここには、丁度ブラッグ条件を満足した像 ( $W=0$ ) はみられない。

このトポグラフには、転位像の他に試料全体に

広がったフリッジがみられる。このフリッジは、転位と結晶表面との交点の近くから、湧き出して他の交点で終わっている。これは、以前楔型結晶で等厚干渉縞の異常として観察されたもの<sup>12)</sup>が、入射X線束の平行性を高めたことによって、平行平板結晶でも観察されていると理解できる。ブラッグ条件から離れた入射条件で、転位と結晶表面との交点で湧き出すフリッジの数は、2本であり、 $|\underline{g} \cdot \underline{b}|$  と一致している。このフリッジ系は、以前に結晶平面波X線トポグラフィで同じ試料を観察した時にはみられなかったものであり、現在解析が進められている。

## 5. おわりに

本稿では、1/100秒以下に平行化されたX線束

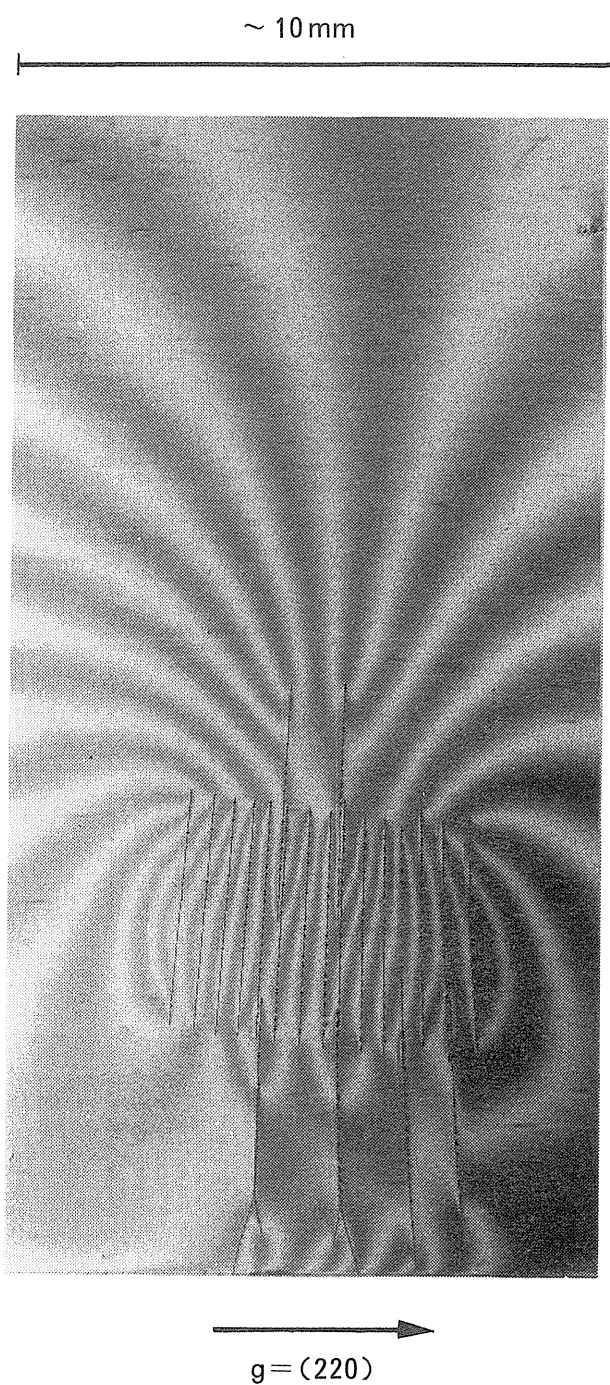


図7  $\Delta\omega = -2.25^\circ$ での平面波X線トポグラフ。  
真写下方に十数本のほぼ平行な転位の像  
がみえる。これらの転位は、結晶表面に対  
して、 $5^\circ$ 傾いて入っており、真写の上側で  
X線入射側の表面と交わり、下側で出射側  
の表面と交わる。

の作成とその応用とを紹介したが、ここで作られ  
たような可干渉長の長いX線束を用いると、硬X  
線領域でのホログラフィの可能性が展けてくる。  
今の場合には、空間的な可干渉長は、0.1mmのオ

ーダーであるが、現在得られているX線強度を考  
えれば、フォトン・ファクトリーの普通のビーム  
ラインでも更に1~2桁可干渉長の長いX線束を  
作成し、実際に実験に用いることが可能であるし  
また現在建設中のマルチポールウィグフービーム  
ライン(BL-16)では、3~4桁のばすことも夢で  
はない。更に次世代リングでのアンジュレータX  
線を考えると、ホログラフィックな構造解析も夢  
でなくなるような気がしている。

### 謝辞

本研究を進めるにあたり、高エネルギー物理学  
研究所放射光実験施設元施設長 高良和武 名誉教  
授に数々の御指導をいただいた。また放射光実験  
施設の安藤正海教授、松下正教授、東大工学部の  
菊田惺志教授には、いくつかの点で議論していた  
だいた。

この実験の実際上の遂行には、安定で寿命の長  
い放射光が不可欠であり、それを作るために、日  
夜努力しておられる放射光実験施設の入射器、光  
源系スタッフに感謝する。

### 参考文献

- 1) T. Ishikawa: to be published in Acta Crystallogr.,  
A44 (1988).
- 2) T. Ishikawa: in preparation.
- 3) T. Ishikawa, J. Matsui and T. Kitano: Nucl.  
Instrum. Methods, A246, 613 (1986).
- 4) K. Kohra and S. Kikuta: Acta Crystallogr., A24,  
200 (1968).
- 5) 三宅静雄: X線の回折, 朝倉書店, 東京,  
(1969).
- 6) 高良和武: X線結晶学(仁田勇編), 丸善,  
東京, p. 850, (1961).
- 7) B.W. Batterman and H. Cole: Rev. Mod. Phys.,  
36, 681 (1964).
- 8) N. Kato: Acta Crystallogr., 11, 885 (1958).
- 9) P.P. Ewald: Acta Crystallogr. 11, 888 (1958).
- 10) M. Renninger: Z. Naturforsch., 19a, 783 (1964).

- 11) M. Renninger: Z. ang. Phys., **19**, 20 (1965).
- 12) H. Ishida, N. Miyamoto and K. Kohra: J. Appl. Crystallogr., **9**, 24 (1976).
- 13) S. Takagi, K. Ishida and A. Ootuka: J. Phys. Soc. Jpn., **45**, 1067 (1978).
- 14) H. Ishida, N. Miyamoto, T. Ishikawa and K. Kohra: Z. Naturforsch., **37a**, 650 (1982).