

## 研究

## 中空石英ファイバの軟X線透過特性および透過率の限界

渡辺 正信・日高 建彦・三橋 慶喜

電子技術総合研究所 〒305 茨城県新治郡桜村梅園 1-1-4

(1986年2月17日受理)

## Soft X-Ray Transmission Characteristics and the Upper Limits of Transmission Factors for Hollow-Core Fused-Quartz Fibers

Masanobu WATANABE, Takehiko HIDAHA and Yoshinobu MITSUHASHI

Electrotechnical Laboratory, 1-1-4, Umezono, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki 305

Transmission factors of hollow-core fused-quartz fibers were measured as a function of curvature angle ( $0-90^\circ$ ) and photon wavelength ( $25-75 \text{ \AA}$ ). They were compared with the results by a calculation based on geometrical optics. Both of the measured and calculated transmission factors decreased exponentially with increasing curvature angle and showed a slight dependence on the wavelength. Furthermore, output beam patterns were observed by exposing resist films. The output energy distribution patterns were not uniform possibly because of the inner surface roughness of the fibers. Finally, the upper limits of transmission factors were calculated based on the atomic scattering factors of silicon and oxygen.

## 1. ま え が き

可視光や赤外光を伝送する光ファイバはすでに完成域にあるが、軟X線を効率よく伝送できるフレキシブルな導波路に関してはあまり報告されていない。軟X線の方角を変えるのには、通常、ミラーによる小斜入射角の反射が使われている。ところが、大きな斜入射角の反射率は非常に小さいので、軟X線の方角を大きく変えることは困難である。

石英の屈折率の実部は軟X線領域では1より小さいので、小斜入射角における反射率は大きいことが期待される。これを利用して、中空ガラスパイプで真空紫外光や軟X線を導くことが試みられてきた<sup>1-3)</sup>。Mosherらはガラスパイプを束ねたものを用い、爆発するワイヤからの軟X線像を捕えた。彼らの実験では、金属パイプよりガラスパイプのほうが効率よく軟X線を導いた<sup>2)</sup>。これは、ガラスのほうが内面が滑らかであるためと思われる。中沢は、X線源と検出器の距離が遠い場合に、ガラスパイプにより検出量を大幅に増大させられることを示した<sup>3)</sup>。日高は、軟X線に対しては価電子が自由電子のように振舞うという仮定のもとに計算を行ない、中空石

英ファイバで軟X線を低損失に導けることを示した<sup>4)</sup>。しかしながら従来の報告は、主として直線状ファイバに関するものである。

筆者らはシンクロトロン放射光を光源として利用し、フレキシブルな中空石英ファイバの軟X線透過特性を調べた。すなわち、中空石英ファイバの透過率を曲げ角度( $0-90^\circ$ )と波長( $25-75 \text{ \AA}$ )の関数として実験的に求めた<sup>5)</sup>。一方、幾何光学的な計算を行ない、実験結果と比較した<sup>5)</sup>。さらに、レジストの露光により、出射パターンを観測した<sup>6)</sup>。最後に、珪素と酸素の原子散乱因子から出発して、透過率の限界値を計算により求めた。

## 2. 実 験 系

Fig. 1に透過率測定実験系のブロック図を示す。軟X線源として、電総研の蓄積リング<sup>7)</sup>からのシンクロトロン放射光を平面回折格子で単色化して用いた<sup>8)</sup>。分光された軟X線は、スペクトル純度を上げるために挿入したフィルタを通った後、ファイバ(内径0.2mm、長さ229mm)に入射し、出射光はセラミックチャネル型電子増倍管(EMS 6081 B; 村田製作所)で検出される。その出力信号は増幅され、シングルチャネルアナライザで雑

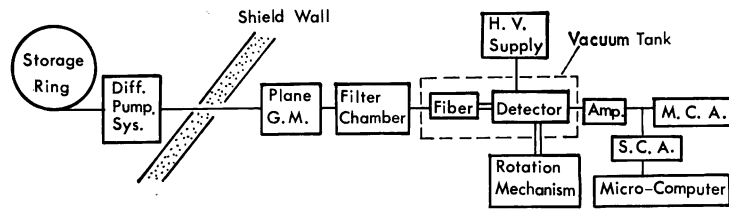


Fig. 1 Block diagram of the experimental setup. G. M.: grating monochromator, S. C. A.: single channel analyzer, M. C. A.: multi-channel analyzer.

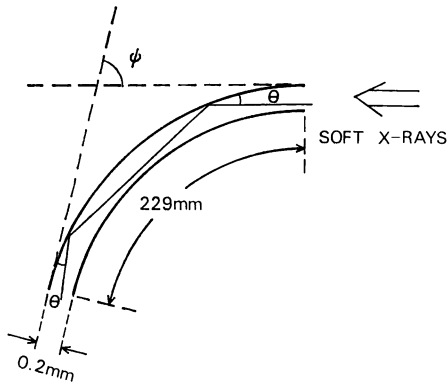


Fig. 2 Schematic diagram of the soft x-rays reflected at the out-side inner wall of the curved fiber.  $\psi$ : curvature angle of the fiber,  $\theta$ : incidence and reflection angle.

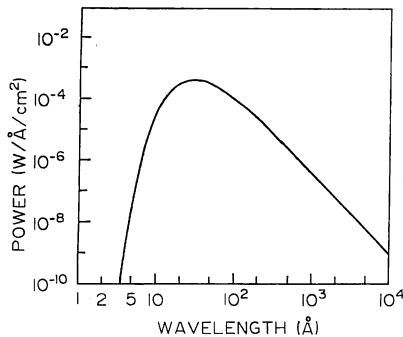


Fig. 3 Calculated wavelength dependence of synchrotron radiation intensity.

音と分離された後、マイクロコンピュータ (HP-9816) に貯蔵される。信号パルスの高さ分布は常にマルチチャンネルアナライザ (C Canberra-40) でモニタしている。軟X線のビーム広がり約  $10^{-20}$  なので、ほぼ平行ビームと考えてよい。Fig. 2 のように、ファイバの入射端面をビームと垂直になるようにし、ビームの中央に固定している。ファイバの出射端と検出器を真空チェンバの外側から回転することにより、曲げ角度  $\psi$  を  $0^\circ$  から  $90^\circ$  まで変化させた。

出射パターンの観測では検出器としてレジストフィルム (polytrifluoroethyl  $\alpha$ -chloroacrylate: EBR-9) を用いた。ファイバからの出射X線をレジストに照射して露光した後、 $25^\circ\text{C}$  のイソプロピルアルコールとメチルイソブチルケトンの溶液 (30:70) 中で現像した。EBR-9 はポジ型レジストなので、露光量が多いほど深く掘れる。ファイバは 80mm のものを使用し、軟X線は分光せず、Fig. 3 のような広いスペクトルのものを用いた。

### 3. 透過率の計算方法

ファイバの内径は軟X線の波長と比べて十分長いので、幾何光学的に透過率を計算すればよい。簡単のため、ファイバのコア断面は  $0.2\text{mm} \times 0.2\text{mm}$  の正方形と仮定する。Fig. 2 に示したように、軟X線は外側の内壁でのみ反射され、斜入射角と反射角は最初から最後まで等しい。この角度を  $\theta$  と定義する。軟X線は毎回の反射によって進行方向が  $2\theta$  だけ変わる。したがって、反射回数  $N(\theta, \psi)$  は

$$N(\theta, \psi) = \psi / 2\theta \quad (1)$$

となる。斜入射角  $\theta$ 、波長  $\lambda$  に対する反射率を  $R(\theta, \lambda)$  とすると、ファイバの透過率  $T(\lambda, \psi)$  は

$$T(\lambda, \psi) = \frac{1}{S} \int R(\theta, \lambda)^{\psi/2\theta} dS \quad (2)$$

と表わされる。ここで、 $S$  はコアの断面積で、 $dS$  はそ

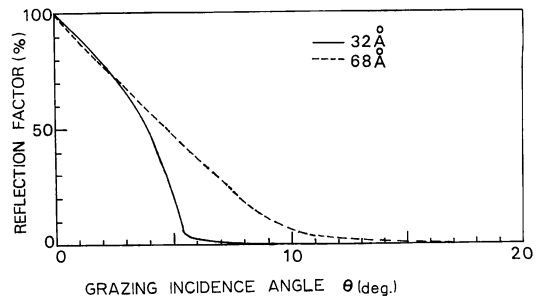


Fig. 4 Reflection factors of fused quartz vs. grazing incidence angle.

の微分である。例として、波長  $32 \text{ \AA}$  と  $68 \text{ \AA}$  の場合の  $\text{SiO}_2$  の反射率を Fig. 4 に示す<sup>9)</sup>。  $25 \text{ \AA}$  から  $100 \text{ \AA}$  の領域では、小さな  $\theta$  に対しては短波長ほど反射率が大きく、大きな  $\theta$  に対しては長波長ほど反射率が大きい。

#### 4. 透過率の測定および計算結果と考察

##### 4.1 曲げ角度依存性

透過率の測定結果および、式(2)から計算した結果を Fig. 5 に示す。実験の相対誤差は 20% 以下である。測定および計算結果は曲げ角度に対して同様の依存性をもっており、透過率は  $\psi$  に対してほぼ指数関数的に減少している。ただし、大きい  $\psi$  に対して、傾きがやや急になっている。これらのことは次のように説明される。もし反射率  $R(\theta, \lambda)$  が  $\theta$  の一次関数として

$$R(\theta, \lambda) \cong 1 - a(\lambda)\theta \quad (3)$$

と近似されるならば、式(2)は

$$\begin{aligned} T(\lambda, \psi) &\cong \frac{1}{S} \int \{1 - a(\lambda)\theta\}^{\psi/2\theta} dS \\ &\cong \frac{1}{S} \int \exp\{-a(\lambda)\psi/2\} dS \\ &\cong \exp\{-a(\lambda)\psi/2\} \quad (4) \end{aligned}$$

となる。今回の実験の範囲では、斜入射角  $\theta$  の最大値は約  $3^\circ$  であるため、 $3^\circ$  以下の  $\theta$  に対して式(3)がよい近似ならば、式(4)もまたよい近似である。Fig. 4 に見られるように、 $3^\circ$  以下の  $\theta$  に対して式(3)はおおむねよい近似であるが、短波長側に対してはやや近似度が悪い。結果として、Fig. 5 に示した透過率の計算値は曲げ角度  $\psi$  に関してほぼ指数関数的に減少しているが、 $\lambda = 32 \text{ \AA}$  に対しては  $\psi$  の大きいところで傾斜が急になっている。

Fig. 5 からわかるように、透過率の測定値は計算値よりも低くなっている。これは主として軸合せの誤差、すなわちファイバ入射端の方向とX線の方向のずれによるものと思われる。Fig. 6 に直線状ファイバの透過率の、軸ずれ角  $\phi$  に対する依存性を示す。波長  $32 \text{ \AA}$  と  $68 \text{ \AA}$  について石英の反射率から計算した。透過率は軸ずれ角  $\phi$  に対して急速に減少している。たとえば、 $1^\circ$  ずれると、約 15% に低下する。もしファイバ入射端の方向が、垂直面内で  $1^\circ$  ずれていたとすると、透過率の計算値は一様に 0.15 倍に低下することになる(ファイバを曲げる方向は水平面内である)。

軸ずれ角が  $0.1^\circ$  以内になるようにファイバをセットすれば、この影響はほぼ無視できる。たとえば、波長  $32 \text{ \AA}$ 、曲げ角度  $90^\circ$  に対する透過率は 0.6% となるはずで

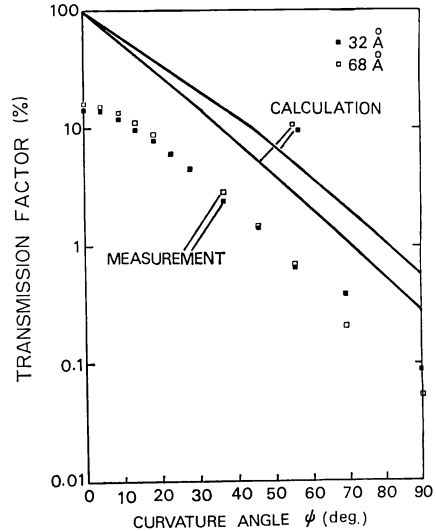


Fig. 5 Calculated and measured transmission factors of the fiber vs. curvature angle of the fiber.

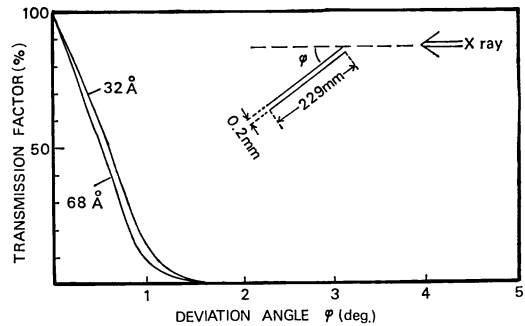


Fig. 6 Calculated transmission factors of the linear fiber with misalignment.  $\phi$ : deviation angle of the fiber direction from the x-ray direction.

ある。一方、反射鏡によく使われている金膜の、波長  $32 \text{ \AA}$ 、入射角  $45^\circ$  に対する反射率は  $5 \times 10^{-3}\%$  である<sup>9)</sup>。したがって、ファイバを使って軟X線を  $90^\circ$  曲げることは、ミラーを使うよりも2桁有利である。

$\phi = 0^\circ$  付近の透過率の測定は、軸ずれの補正を行なったとしても、計算値よりも低い。これは、ファイバが少し曲がっているためだと思われる。

##### 4.2 波長依存性

Fig. 7 の実線は、透過率の計算値を波長の関数として示したものである。文献9)の石英反射率を用い、いくつかの曲げ角度に関して計算した。 $30 \text{ \AA}$  より長波長側では、透過率は波長に対して緩やかに減少している。これは Fig. 4 からわかるように、小斜入射角に対する反

射率は、短波長のほうが長波長よりも高いためである。しかしながら、透過率の波長依存性は小さいといえる。 $\lambda=23\text{ \AA}$  で透過率が急に落ち込んでいるのは、石英の主成分である酸素のK殻吸収によるものである。

Fig. 8 に、透過率を波長の関数として測定したものを示す。相対誤差は20%以下である。測定結果はややばらついているが、 $30\text{ \AA}$  以下では短波長側に向かって減少している。計算結果と対応させると、これは酸素のK殻吸収によるものと考えられる。他の波長領域ではほぼ平坦である。 $30\text{ \AA}$  以上では波長の増加に対して、 $\psi=0^\circ$  における透過率は緩やかに増加し、 $\psi=90^\circ$  におけるそれは緩やかに減少している。このように、 $\psi=0^\circ$  と  $90^\circ$  における波長依存性に差異があるのは、ファイバ内面の不均一性等によるものと思われる。いずれにしても、フ

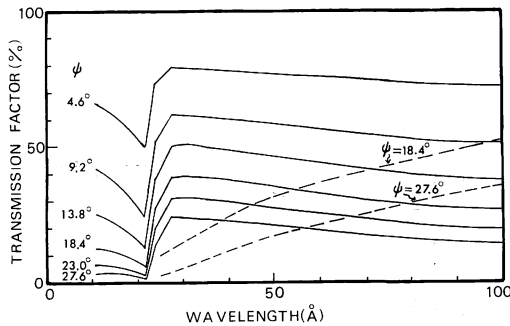


Fig. 7 Calculated transmission factors of the quartz fiber vs. photon wavelength (solid line). The curvature angle  $\psi$  is shown as a parameter in the figure. Broken lines denote transmission factors of a Russian F-1 glass fiber calculated following Ref. 2).

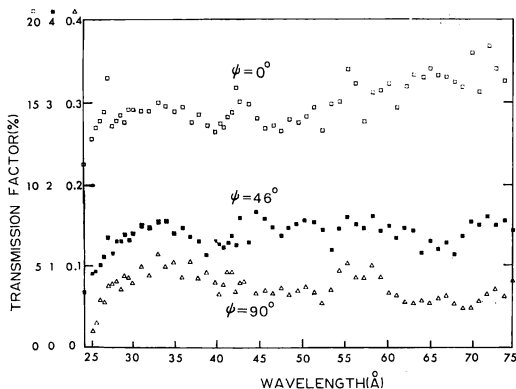


Fig. 8 Measured transmission factors of the fiber vs. photon wavelength. The full scales of the ordinate are 20%, 4% and 0.4% for  $\psi=0^\circ$ ,  $46^\circ$  and  $90^\circ$ , respectively.

ファイバの透過率は波長にあまり依存せず、広帯域特性をもっている。

Fig. 7 の点線は、文献 2) に示されている Russian F-1 glass の反射率 (実験近似式) を使って計算したものである。石英の透過率と比較すると、短波長側では小さく、長波長側では大きい。 $\lambda=30\sim 100\text{ \AA}$  の領域では、石英ファイバのほうが波長依存性が小さいため、使いやすい。このように、材料によって特性が異なるため、用途に応じて最適なファイバ材料を選択する必要がある。

## 5. 出射パターンの観測結果

Fig. 9 に露光したレジストフィルムの顕微鏡写真、Fig. 10 にはそれらの深さ分布をタリステップで測定したものを示す。エネルギー密度  $6.0\text{ J/cm}^2$  の軟X線をファイバに入射し、出射光でレジストを露光した後、現像したものである。現像時間はそれぞれに異なっている。これらの図から、出射ビームがやや広がっていること、そのエネルギー分布が一様でないことがわかる。この原因は内面の不均一性によるものと思われる。

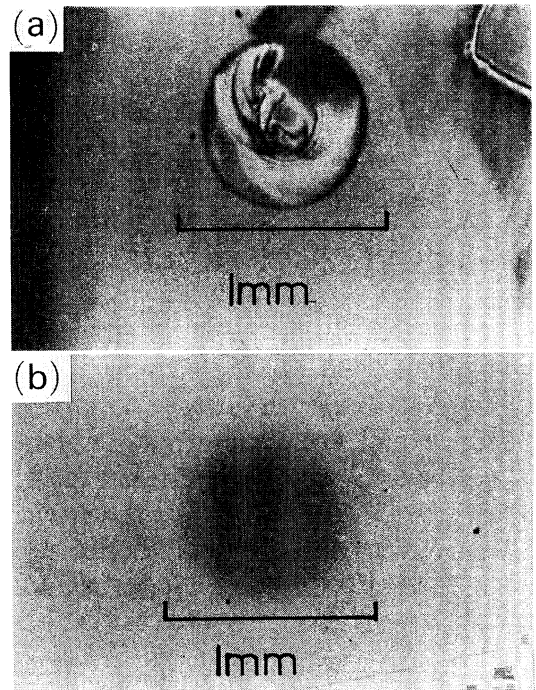
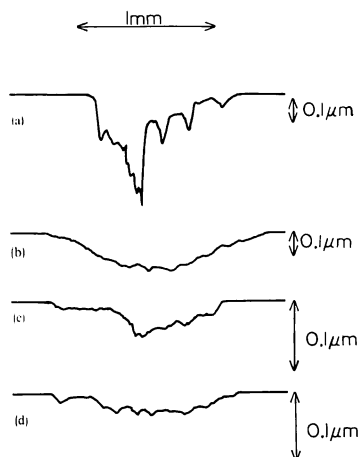


Fig. 9 Typical photos of resist films exposed to x-rays via fibers. The curvature angles  $\psi$  of the fiber were (a)  $0^\circ$  and (b)  $90^\circ$ . The development times were (a) 1s and (b) 300s.



**Fig. 10** Schematic Talystep graphs of resist films exposed to x-rays via fiber. The curvature angles  $\psi$  of the fiber were (a)  $0^\circ$ , (b)  $23^\circ$ , (c)  $69^\circ$  and (d)  $90^\circ$ . The development times of the resist films were (a) 1s, (b) 10s, (c) 10s and (d) 300s.

### 6. 透過率の限界

上では、ファイバの内側断面を  $0.2\text{mm} \times 0.2\text{mm}$  の正方形に単純化したモデルについて、実験に用いたと同じ長さ (229mm) の場合に対して透過率を計算した。たとえば  $\psi = 90^\circ$ ,  $\lambda = 32\text{\AA}$  に対しては 0.6% であった。曲げたい角度  $\psi$  を決めた場合に、ファイバを長くして曲率半径を大きくし、軟X線を徐々に曲げていくようにすると、透過率は高くなると考えられる。どこまで高くなるのであろうか。以下に限界値の求め方、および計算結果を示す。

ファイバの曲率半径を大きくしていくと、Fig. 2 の斜入射角  $\theta$  はゼロに近づく。このとき、式(3)は

$$R(\theta, \lambda) = 1 + \left[ \frac{\partial R}{\partial \theta} \right]_{\theta=0} \cdot \theta \quad (3)'$$

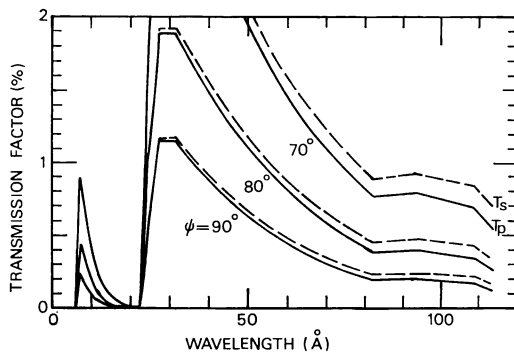
となる。これが計算できれば、式(4)に代入することにより、限界値  $T_{\text{lim}}$  は

$$T_{\text{lim}}(\lambda, \psi) = \exp \left\{ \left[ \frac{\partial R}{\partial \theta} \right]_{\theta=0} \cdot \psi / 2 \right\} \quad (4)'$$

により求められる。  $\partial R / \partial \theta$  を求めるには、反射率  $R$  を斜入射角  $\theta$  の連続関数として求める必要がある。そこで、珪素と酸素の原子散乱因子から誘電率を求め、それにより反射率を求める。比誘電率  $\epsilon$  を

$$\epsilon(\lambda) = 1 - \alpha(\lambda) - i\gamma(\lambda) \quad (5)$$

と表わす。  $\alpha$  は位相変化、  $\gamma$  は吸収を示す、  $\alpha$  が大きく、  $\gamma$  が小さいほど反射率が高くなる傾向にある。これらは



**Fig. 11** Upper limits of transmission factors for quartz fibers vs. photon wavelength.  $\psi$ : curvature angle.  $T_P$ ,  $T_S$ : upper limits for P or S-polarization.

次式により求められる。

$$\alpha(\lambda) = \sum_i r_0 \lambda^2 N_i f_{1i} / \pi \quad (6)$$

$$\gamma(\lambda) = \sum_i r_0 \lambda^2 N_i f_{2i} / \pi$$

ここで、  $r_0$  は古典電子半径、  $\lambda$  は波長、  $N$  は単位体積中の原子数、  $f_1 + if_2$  は複素原子散乱因子で、添字  $i$  は原子の種類を示す。各元素に関する原子散乱因子はすでに求められたデータがあり<sup>9)</sup>、これを使って  $\alpha$  と  $\gamma$  は求まる。P偏光成分およびS偏光成分に対する反射率  $R_P$ ,  $R_S$  はよく知られた式

$$\left. \begin{aligned} R_P(\theta, \lambda) &= \left| \frac{\epsilon(\lambda) \sin \theta - \sqrt{\epsilon(\lambda) - \cos^2 \theta}}{\epsilon(\lambda) \sin \theta + \sqrt{\epsilon(\lambda) - \cos^2 \theta}} \right|^2 \\ R_S(\theta, \lambda) &= \left| \frac{\sin \theta - \sqrt{\epsilon(\lambda) - \cos^2 \theta}}{\sin \theta + \sqrt{\epsilon(\lambda) - \cos^2 \theta}} \right|^2 \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

で表わされる。式(7)を  $\theta$  で微分した後、式(5)を代入して  $\theta \rightarrow 0$  とおくと、

$$\left. \begin{aligned} \left[ \frac{\partial R_P}{\partial \theta} \right]_{\theta=0} &= -\frac{2\sqrt{2} \{ (1-\alpha)\sqrt{\alpha^2 + \gamma^2} - \alpha + \gamma\sqrt{\alpha^2 + \gamma^2 + \alpha} \}}{\sqrt{\alpha^2 + \gamma^2}} \\ \left[ \frac{\partial R_S}{\partial \theta} \right]_{\theta=0} &= -2\sqrt{2} \cdot \frac{\sqrt{\alpha^2 + \gamma^2} - \alpha}{\sqrt{\alpha^2 + \gamma^2}} \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

となる。原子散乱因子のデータ<sup>9)</sup> を使って、式(6)  $\rightarrow$  (8)  $\rightarrow$  (4)' の順に求めれば、透過率の限界値が波長の関数として求まる。

曲げ角度  $\psi = 70^\circ, 80^\circ, 90^\circ$  についての計算結果を Fig. 11 に示す。P偏光、S偏光に対する限界値  $T_P$ ,  $T_S$  をそれぞれ実線と破線で示した。これによるとたとえば、波長  $32\text{\AA}$ 、曲げ角度  $90^\circ$  に対する限界値は 1.2% となる。長さ 229 mm の場合と比べると、2倍になっている。6

$\text{\AA}$  と  $23 \text{\AA}$  の急激な落込みは、それぞれ、珪素と酸素の K 殻吸収によるものである。  $\alpha$  と  $\gamma$  の数値は小さいため、P 偏光と S 偏光に大きな差はない。

## 7. ま と め

中空石英ファイバの軟 X 線透過率を、波長と曲げ角度の関数として、初めて定量的に測定した。測定値は長さ  $229 \text{mm}$  の直線状ファイバで約  $15\%$ 、 $90^\circ$  曲げたもので約  $0.1\%$  であった。また、石英反射率を用いて幾何光学的な計算を行ない、測定結果と比較した。これらは定性的に一致しており、透過率は曲げ角度に対しては指数関数的に減少し、波長依存性は少ないことがわかった。計算結果では、波長  $32 \text{\AA}$ 、曲げ角度  $90^\circ$  に対する透過率は  $0.6\%$  であった。軟 X 線を  $90^\circ$  曲げたい場合、金膜ミラーを使用するよりも 2 桁有利である。測定結果と計算結果との差異は、ファイバ入射端の軸合せ誤差が原因である。

ファイバからの出射パターンの観測は、レジストを露光することにより行なった。その結果、不均一性があることがわかった。

曲げ角度を決めた場合の透過率は、長いファイバを用い、曲率半径を大きくすれば、さらに高めることができる。この限界値を、珪素と酸素の原子散乱因子のデータから出発して求めた。波長  $32 \text{\AA}$ 、曲げ角度  $90^\circ$  に対する限界値として  $1.2\%$  を得た。同様の手法を用いれば他の材料についても透過率の限界値を求めることができる。

透過率の高い材料の探索、出射パターン不均一性の原因説明が今後の課題である。

本研究を進めるに当たり、励ましをいただいた電総研

の島田潤一、富増多喜男両部長、多大な助力をいただいた鈴木功、西師毅、谷野浩、鳳紘一郎の四氏、技術的助力をいただいた斉藤則生氏、有益な助言をいただいた小貫英雄氏、シンクロトロンを運転してくださった野口勉氏をはじめとする高エネルギー研究室の方々、以上の方方に感謝します。

## 文 献

- 1) P. J. Malozzi, H. M. Epstein, R. G. Jung, D. C. Applebaum, B. F. Fairand, W. J. Gallagher, R. L. Uecher and M. C. Muckerheide: "Laser-generated plasmas as a source of X rays for medical applications," *J. Appl. Phys.*, **45** (1974) 1891.
- 2) D. Mosher and S. J. Stephanakis: "X-ray light pipes," *Appl. Phys. Lett.*, **29** (1976) 105.
- 3) H. Nakazawa: "X-ray guide tube for diffraction experiments," *J. Appl. Cryst.*, **16** (1983) 239.
- 4) T. Hidaka: "Extremely low-loss hollow core waveguide for VUV light," *Opt. Commun.*, **44** (1982) 90.
- 5) M. Watanabe, I. H. Suzuki, T. Hidaka, M. Nishi and Y. Mitsuhashi: "Soft x-ray transmission characteristics of hollow-core fused-quartz fibers," *Appl. Opt.*, **24** (1985) 4206.
- 6) M. Watanabe, T. Hidaka, H. Tanino, K. Hoh and Y. Mitsuhashi: "Vacuum ultraviolet light transmission through hollow-core quartz-glass cladding optical fibers," *Appl. Phys. Lett.*, **45** (1984) 725.
- 7) T. Tomimasu, T. Noguchi, S. Sugiyama, T. Yamazaki, T. Mikado and M. Chiwaki: "A 600-MeV ETL electron storage ring," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **NS-30** (1983) 3133.
- 8) N. Saito and I. H. Suzuki: "Absolute efficiency of laminar plane grating in the soft x-ray region," *Bull. Electrotech. Lab.*, **49** (1985) 691.
- 9) B. L. Henke, P. Lee, T. J. Tanaka, R. L. Shimabukuro and B. K. Fujikawa: "Low-energy x-ray interaction coefficients: photoabsorption, scattering, and reflection," *At. Data Nucl. Data Tables*, **27** (1982) 118.