X-RAY
IMAGING OPTICS

X線結像光学ニューズレター

No.29　2009年3月発行

高回折効率の高エネルギーX線用多層膜フレネルゾーンプレートの開発

産業技術総合研究所　田村繁治、安本正人
関西医科大学　上條長生
高輝度光科学研究センター　鈴木芳生、竹内晃久、上杉健太朗、寺田靖子

第３世代の放射光施設の高輝度光源では極短波長の高エネルギーＸ線（50keV以上のエネルギーを持つ）を利用することが可能であり、集光素子を利用する顕微光学系を構成すれば、厚い生体試料や工業材料の大気中での非破壊内部観察、局所領域でのＸ線回折、Ｋ殻励起による蛍光Ｘ線による重元素のマッピングなど、広い分野での応用が期待できる。集光素子としては種々のものが考案、実用化されており、それらの中で多層膜フレネルゾーンプレート（FZP)、Kirkpatrick-Baez(K-B) ミラー、屈折レンズについて50 ～ 200 keV の高エネルギーＸ線領域での２次元集光の実績が報告されている[1]-[3]。

多層膜FZPはＸ線を透過する輪帯と遮断する輪帯とを交互に同心円状に繰り返した構造を有する透過型回折格子であり（図１―(a))、光軸調整が比較的容易であり、実用性が高いという特長を持っている。

FZPの作製法にはリソグラフィによる微細加工技術を利用する方法と、多層薄膜成膜技術を利用する方法（図１-(b)）とがある。多層膜FZPは最初、ドイツのSchmahlらのグループが軟Ｘ線用のゾーンプレートの分解能を上げるために作製を試みた[4]。わが国では斎藤らによって製作が試みられ、KEK-PFの放射光Ｘ線を用いた集光実験が行われた[5]。多層膜FZPの利点として、①高アスペクト比の実現が極めて容易（高エネルギーX線領域での使用が可能）、②高回折効率化が可能、③ナノメータレベルのゾーンの形成が理論上は可能である、ということが挙げられる。このうち、②は成膜に使用する２種類の蒸着材料の割合を連続的に変化させることが出来るので、多層膜の構造をkinoform型にしたFZP（理論的には100％の回折効率が得られる）の作製が有望である。我々のグループでは多層膜FZPの開発とSPring-8で硬Ｘ線（8keV近傍のエネルギー）と高エネルギーＸ線顕微鏡への応用研究を行っている。FZPの作製は産総研で、集光特性の評価と顕微鏡実験はSPring-8で行っている。ビームラインは主としてBL20XUで行った。ここでは、高エネルギー領域における高回折効率FZPに関する成果を中心に紹介する。

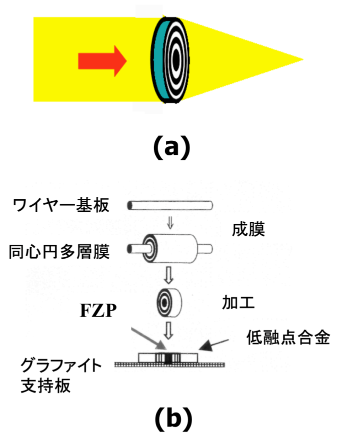

図　1　　多層膜FZPと作製方法

FZPの理論上の回折効率は10 %であり、X線を遮断するゾーンを半透明にした位相変調型FZPでの最大値は$4/\pi^2$（〜40 %）である。しかしながら実際には作製精度の誤差、自己吸収などの原因により、この数値よりも低く20 % 以下の場合が多い。この回折効率を向上させることは、顕微鏡観察において測定時間の短縮、試料の放射線損傷の軽減、光学系の簡素化（高次光カット用のOSAが不要）などのために極めて重要な技術課題である。イタリアのFabrizioらのグループはkinoform型の近似として階段構造（４段）を有するFZPを開発し、X線のエネルギーが7 keVの時に55 %の回折効率を得ることに成功している[6]。このFZPはリソグラフィー技術を利用して作製され、FZPの中心に対して垂直に切断した断面の１層の構造は図２-(a)のように示される。これと類似な構造を多層薄膜成膜技術を利用して作製した場合の構造は図２-(b)のように示される。X線を遮断する重元素薄膜による層、X線を透過する軽元素薄膜による層、そして 両元素を同時蒸着により混合した薄膜による層で構成される。我々はこの多層膜構造を有するFZPの作製と評価を行った。基板には直径が49.2ミクロンの金ワイヤー、重元素にはCuを、軽元素にはAlを使用し、多層膜の成膜には２元直流スパッタリング装置を使用した。集光特性を評価した結果、X線のエネルギーが50 keVの時に 50 % の回折効率を得ると共に、２次光を利用してOSAを使用せずに顕微鏡像の撮影に成功し、図２-(b)の構造の多層膜が微細加工技術による階段構造と等価な機能を有することを実証した[７]。次に、6段の階段構造を有する多層膜FZPを作製し（厚さは66ミクロン）、集光特性の評価を行った[８]。図２-(c)に構造を、図３にSEM像を、図４に回折効率を示す。１次光についてはX線のエネルギーが70 keVの時に50 % を超える効率が、２次光については37.5 keVの時に 44 % の効率が得られ、本方式の階段状多層膜構造が回折効率の向上に有効であることの再現性を確認した。階段構造を有する多層膜FZPの１次光の回折効率は理論的には 80 % 前後であり、膜厚の誤差や図３で観察されるようなゾーンの界面の乱れが主な原因と考える。また、集光ビームサイズは理論値の２倍程度であった。

今後は多層膜FZPの集光特性の改良を図ると共に、高エネルギーX線のマイクロビーム、顕微鏡を利用した研究が期待される。

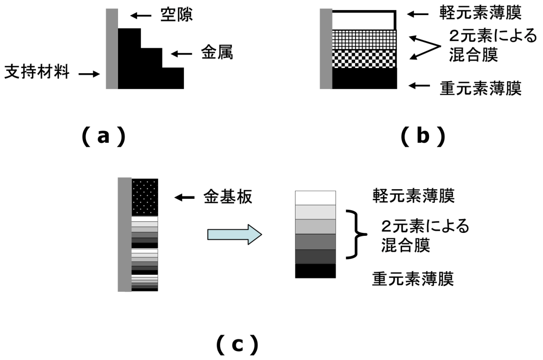

図 2　　階段構造を有する多層膜FZPの概略図

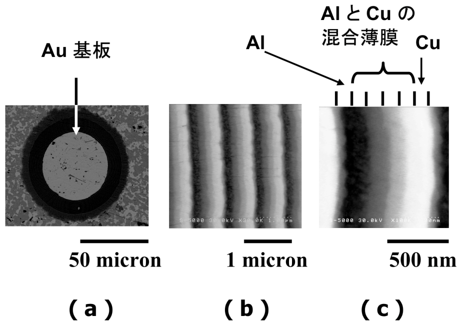

図 3　　多層膜FZPのSEM像

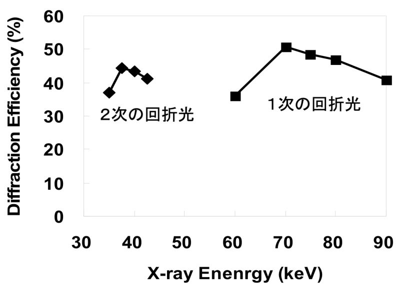

図 4　　階段構造を有する多層膜FZPの回折効率

[1] N.Kamijo, Y.Suzuki, A.Takeuchi, M.Itou and S.Tamura: Japanese Journal of Applied Physics, 48(2009)010209.
[2] Y.Suzuki, A.Takeuchi and Y.Terada: Rev. Sci. Instrum., 78(2007)053713.
[3] A.Snigirev, I.Snigireva, M. Di Michiel, V.Honkimaki, M.Grigoriev, V.Nazmov, E.Reznikova, J.Mohr and V.Saile: Proc. SPIE Vol. 5539. Washington: The International Society for Optical Engineering, 2004. p.244.
[4] Y. Suzuki, A. Takeuchi, H. Takano and H. Takenaka, Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) 1994.
[5] K.Saitoh, K.Inagawa, K.Kohra, C.Hayashi, A.Iida and N.Kato: Jpn. J. Appl. Phys., 27 (1988) L2131.
[6] E.Di Fabrizio, F.Romannato, M.Gentili, S.Cabrini, B.Kaulich, J.Susini and B.Barrett: Nature, 401(1999)895.
[7] N.Kamijo, Y,Suzuki, S.Tamura, A.Takeuchi, M.Yasumoto: IPAP Conference Series 7 (Proc. 8th International Conference on X-ray Microscopy), Institute of Pure and Applied Physics, Japan (2006), p.97.
[8] S.Tamura, M.Yasumoto, N.Kamijo, 」 A.Takauchi, K.Uesugi and Y.Suzuki: Vacuum, 82(2008)691.

立命館大学 SR センターの結像型軟 X 線顕微鏡の現状

立命館大学総合理工学研究機構　大東 琢治
立命館大学理工学部　難波 秀利
関西医科大学物理学教室　木原 裕、竹本 邦子

軟 X 線領域では、軽元素の吸収端が多く存在する。特に炭素と酸素の K 吸収端に挟まれた波長域を水の窓領域 (λ: 2.3～4.4 nm)と呼び、この波長域の X 線を用いることにより、水とタンパク質が主体である生体試料をコントラスト良く観察することが期待される。立命館大学 SR センターの小型 SR 光源（575 MeV, 300 mA）は 1.5 nm が臨界波長であるため、水の窓領域を用いるのに適した放射光光源である。そのビームライン BL12 には国内唯一である、放射光を光源として用いた常設の X 線顕微鏡が設置されている[1, 2]。本文ではこの装置の現状と今後の予定を紹介する。

光学系の概略図を図 1 に、実際の装置の写真を図 2 に示す。放射光光源からの白色光を SiC ミラーを用いて斜入射角 40 mrad で反射して約 1 nm 以下の波長をカットすることで、フレネルゾーンプレートを用いる事によって生じる高次光の影響を軽減する事が出来る。こうして得られた入射光を、光源から 7050 mm 下流に設置された集光ゾーンプレート (最外輪帯幅: 50 nm、直径: 9000 μm、ゾーン数: 41890、材質: Ge 0.3 μm、基板：窒化シリコン膜 100 nm)、0 次光カット用のセントラルストップ(Al, ϕ: 3 mm)とピンホール (ϕ: 15 μm)の組み合わせで分光を行なって、試料に照射する (λ/Δλ ~300)。現在、光学系の組み替えを伴う事により 1.6～2.5 nm と 2.2～3.6 nm の 2 つの波長範囲が利用可能である。光学系内は真空排気 (～10^{-7} Torr)されているが、試料だけは大気中に設置するために、その前後が厚さ 100 nm の窒化シリコン窓を用いて分断されている。試料はクライオ冷却下での観察も可能である。試料からの透過光を対物ゾーンプレート (最外輪帯幅 45 nm、直径 56 μm、ゾーン数: 311、材質: W 0.12 μm、基板：窒化シリコン膜 100 nm)で CCD カメラ (浜松ホトニクス, C-4880-21-24W, 512×512 pixels, ピクセルサイズ: 24×24 μm^2)上に結像する。このシス

テムでは、視野は直径約 15 μm、倍率は約 1200 倍 (λ=2.4 nm)、空間分解能 71 nm (λ=2.4 nm) での観察が可能となっている。

観察例として、図 3 に脊索動物であるナメクジウオの鰓部分のパラフィン包埋切片の観察結果を示す。試料は固定のみ行い、染色は行なっていない。使用波長は 1.9 nm、露光時間は 2 分であった。この画像は試料を水平、垂直共に 10 μm 間隔で走査し、得られた画像を繋げて表示したものである。光学顕微鏡では観察する事の出来ない、繊毛断面かミトコンドリアと思われる顆粒状の構造を多数見る事が出来る。

今後の予定として、Auto-focusing Imaging System の開発に伴う集光ゾーンプレートチャンバーの設置により、1.73〜4.73 nm の波長領域が使用可能になる。また 3 次元観察の為の Computer Tomography System の整備が進められており、より一層の測定環境の充実を図っている。

なおこの装置はスポット利用やナノテクノロジーネットワーク支援プロジェクト利用をはじめ、研究目的に沿って共同利用を行なう事が可能であり、実験の課題申請を随時受け付けている。申請の詳細及び問い合わせ先は下記アドレスを参照戴きたい。

http://www.ritsumei.ac.jp/acd/re/src/guide/index.htm

[1] A. Hirai, K. Takemoto, K. Nishino, N. Watanabe, E. Anderson, D. Attwood, D. Kern, M. Hettwer, D. Rudolph, S. Aoki, Y. Nakayama and H. Kihara, *J. Synchrotron Rad.*, **5**, (1998), 1102-1104.

[2] A. Hirai, K. Takemoto, K. Nishino, B. Niemann, M. Hettwer, D. Rudolph, E. Anderson, D. Attwood, D. P. Kern, Y. Nakayama and H. Kihara, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, (1999), 274-278.

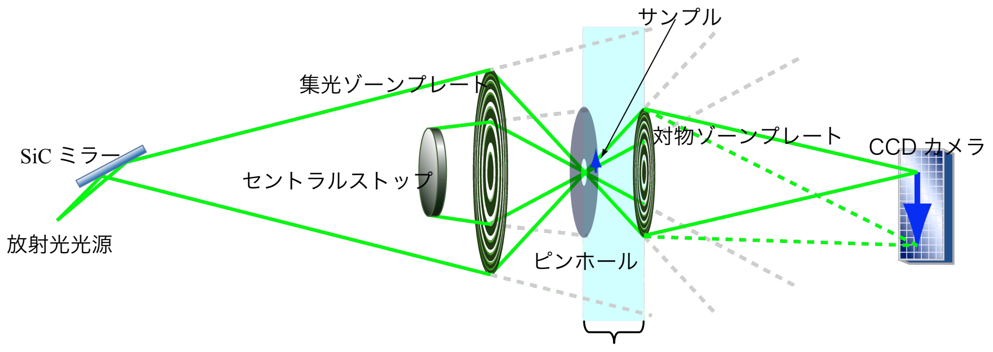

図 1　光学系の概念図

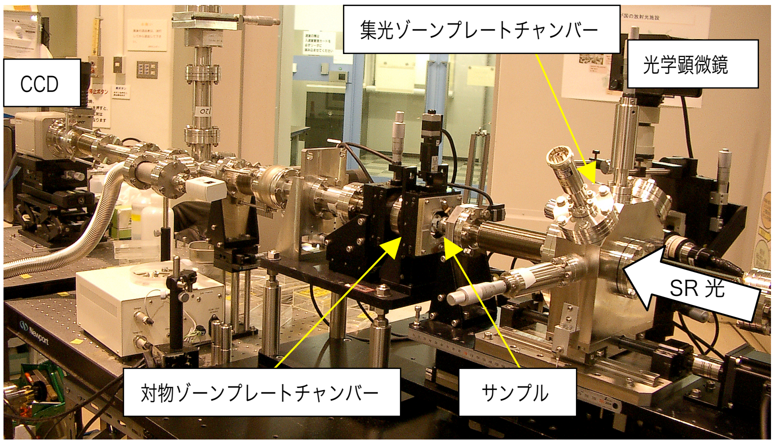

図 2　立命館大学 SR センターの軟 X 線顕微鏡

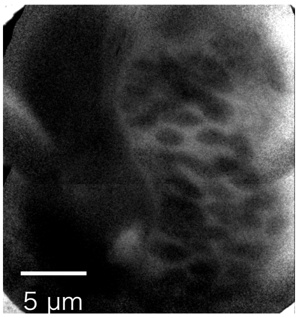

図 3　ナメクジウオの鰓の軟 X 線顕微鏡

X-RAY IMAGING OPTICS

各 種 報 告

【「第 10 回Ｘ線結像光学シンポジウム」開催予定のお知らせ】

【　趣　旨　】

　　Ｘ線結像光学は理学と工学あるいは科学と技術の接点に位置し、宇宙科学、生命科学、物質・材料科学、放射光科学、プラズマ・エネルギー工学、医療工学、ナノ工学等の分野における研究に大きな役割を果たしています。本シンポジウムでは、エネルギー領域 40eV－100keV(波長 30－0.01nm)における光学・計測技術とその応用、およびＸ線結像光学を支える基盤技術に関する最新の研究成果の発表と将来の展望を議論したいと思います。

【　日　時　】

平成 21 年 11 月 6 日（金）　午後および夕刻：講演等および懇親会

　　　　　11 月 7 日（土）　午前および午後：講演等

【　場　所　】

つくば市国際会議場（エポカル）

茨城県つくば市竹園２－２０－３

【　講演申し込み　】

詳細は本年５月頃お知らせします。

【　主　催　】

Ｘ線結像光学研究会（代表：筑波大学　青木貞雄）

【　連絡先　】

筑波大学大学院　数理物質科学研究科 電子・物理工学専攻　青木貞雄

〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1－1－1

Tel: 029-853-5299, FAX: 029-853-5205

aoki@bk.tsukuba.ac.j

X-RAY IMAGING OPTICS

編集部より

【お知らせ】

メールアドレスなどの変更等のご連絡、またご要望などありましたら、当編集部までお送りください。

Ｘ線結像光学ニューズレター

No.29（2009 年 3 月）

発行　Ｘ線結像光学研究会

（代表　筑波大学物理工学系　青木貞雄）

編集部　名古屋大学エコトピア科学研究所　田原　譲

（協力研究室：大学院理学研究科物理学教室Ｕ研）

〒464-8603　名古屋市千種区不老町

TEL/FAX : 052-789-5490

E-mail: tawara@u.phys.nagoya-u.ac.jp