

マルチスライス法を利用した 高分解能 X 線タイコグラフィー



鈴木 明大
Suzuki Akihiro
(大阪大学大学院工学研究科, 理化学研究所)



高橋 幸生
Takahashi Yukio
(大阪大学大学院工学研究科, 理化学研究所)

1 はじめに

放射光 X 線を用いたタイコグラフィーは、2007年にスイスの放射光施設 Swiss Light Source で実証¹⁾されて以来、ドイツの PETRA III、日本の SPring-8 をはじめとする大型放射光施設で研究が進められている。研究者人口、発表論文数は増加の一途をたどり、2013年の春には本手法に関する国際会議が初めて開催されるなど、成長著しい研究分野である。X 線タイコグラフィーは、レンズを用いないイメージング技術であるコヒーレント X 線回折イメージング (Coherent X-ray Diffraction Imaging: CXDI) の1つとして分類され、走査型 CXDI とも呼ばれる。図 1 のように、可干渉性に優れた (コヒーレントな) X 線に対して照射領域が重なり合うようにサンプルをステップ走査し、走査位置の各点で回折パターンを取得する。重なり領域の試料情報を引き継ぎながら、回折パターンに反復的位相回復計算を実行することで、吸収と位相シフトの両方の情報を含む複素関数が観察像として再構成される。反復的位相回復計算では、被写体を光軸方向に投影した極めて薄い物体とみなす投影近似を用いているが、回折パターンの高周波数成分ほど光軸方向の試料構造が反映されるため、投影近似の適用

が難しくなる。投影近似が適用できる最大周波数 $q_{x,y,max}^{projection}$ は光軸方向の試料厚さ D_z と入射プローブの波長 λ を用いて

$$q_{x,y,max}^{projection} = \frac{1}{\sqrt{2D_z\lambda}} \quad (1)$$

で与えられる²⁾。式(1)より、光軸方向の試料厚さが D_z のとき、到達可能な観察像の分解能 $d_{x,y}^{reachable}$ は、 $q_{x,y,max}^{projection}$ の逆数で与えられる。すなわち、入射プローブの波長 λ だけでなく、光軸

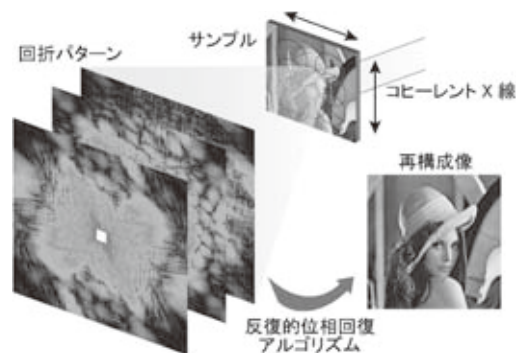


図 1 X 線タイコグラフィーの概念
X 線タイコグラフィーでは、試料を 2 次的に走査させながら複数の回折パターンを取得し、それらに反復的位相回復アルゴリズムを適用することで観察像を再構成する

方向の被写体厚さ D_z によっても分解能が制限される。今後、生体組織や集積回路などの大きい ($>100 \times 100 \times 100 \mu\text{m}^3$) サンプルを更に良い分解能 ($<10 \text{ nm}$) で観察するためには、投影近似による分解能の制限を超えなければならない。筆者らは、電子顕微鏡研究において高速電子線の多重散乱の寄与を解析的に数値計算するために考案されたマルチスライス法に着眼した。サンプルを薄い層の重なった多重構造体として取扱ひ、各層間での波面の伝播を計算するマルチスライス法を X 線タイコグラフィーに取り入れることで、投影近似による限界を突破できると考え、SPring-8 BL29XUL にて実証実験を行った。

2 X 線タイコグラフィー測定

図 2 (a), (b) に光学系の模式図とサンプルの走査型電子顕微鏡像をそれぞれ示す。サンプルには、Pt を 50 nm スパッタ蒸着した窒化ケイ素膜を 2 枚貼り合わせた 2 層構造体を用いた。それぞれの層には、集束イオンビームにより 100 nm 程度の線幅で“SACLA”“SPring8”と加工した。エネルギー 7 keV の X 線を全反射集光鏡によって 500 nm スポットに 2 次元集光し、その焦点位置にサンプルを配置した。サンプルを水平、垂直方向ともに 500 nm ステップで走査し、サンプルの 1.368 m 下流にある CCD 検出器で $11 \times 11 = 121$ 枚の回折パターンを取得した。図 2 (b) の各点は各照射位置を示しており、その中の大きい丸の位置に X 線を照射した際の回折パターンを図 3 に示す。周波数 $\pm 25 \mu\text{m}^{-1}$ までの回折強度を取得できており、これは回折パターンが最小 40 nm の試料構造情報を含んでいることに相当する。しかしながら、波長 0.177 nm 、サンプル厚さ $105 \mu\text{m}$ の今回の実験条件では、投影近似下で有効な周

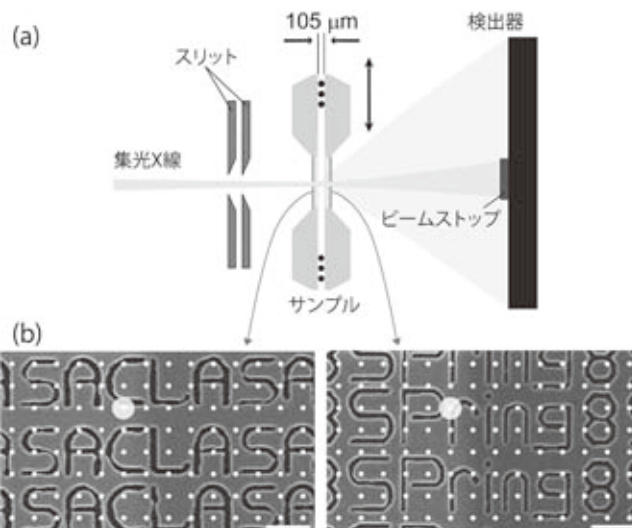


図 2 (a) マルチスライス X 線タイコグラフィー実験の配置図、(b) サンプルの電子顕微鏡像
電子顕微鏡像に示した丸い点は照射位置を表している。スケールバーは $1 \mu\text{m}$

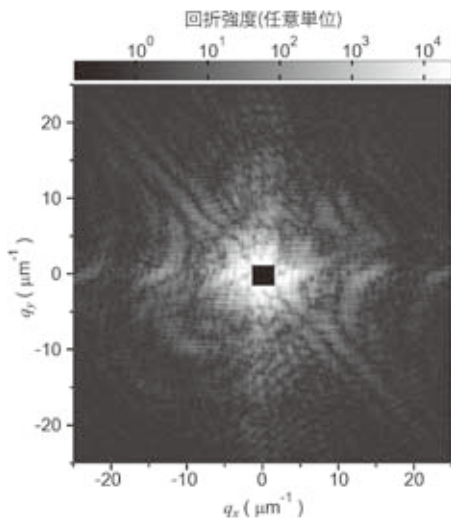


図 3 図 2 (b) の大きい丸の位置に X 線を照射した際に観測されたコヒーレント X 線回折パターン
散乱ベクトル \mathbf{q} は散乱角 θ と波長 λ を用いて $|\mathbf{q}| = 2\sin(\theta/2)/\lambda$ と表される。CCD 検出器のピクセルサイズは $20 \mu\text{m}$ で、回折パターンの全ピクセル数は 606×606 ピクセルである

波数は $5.2 \mu\text{m}^{-1}$ 、つまり分解能は 192 nm に制限される。

3 再構成された位相コントラスト像とその分解能の評価

図4(a)にマルチスライス法を用いず解析した再構成像を示す。回折パターンは非常に良いS/N比で取得され、測定中の位置ドリフトも実験ハッチの恒温化システム³⁾によって抑制されているにもかかわらず、分解能が非常に悪く、アーティファクトも見受けられる。一方、マルチスライス法を導入したタイコグラフィアルゴリズムの3PIE⁴⁾で解析した1層目と2層目の再構成像を図4(b),(c)に示す。解析の際、層数が2層であること、試料厚さが105 μm であることは既知情報として利用した。“SACLA”と加工された1層目と“SPring8”と加工された2層目が完全に分離して再構成されており、各文字も鮮明に解像できている。両者を重ね合わせることで算出した試料投影像(図4(d))を、マルチスライス法を用いず解析した再構成像と比較すると、アーティファクトの減少、分解能の向上が一目瞭然である。さらに、分解能を定量的に評価するため再構成像の断面プロファイルを取得したところ、3PIEで解析した再構成像では50 nm程度でエッジ構造を分解できており、投影近似下による制限を超えて、最大周波数から見積もられる程度の優れた分解能を達成していることが分かった。

4 今後の展望

本稿では、マルチスライス法を用いた厚い試料の高分解能X線タイコグラフィ²⁾について紹介した。投影近似による分解能の制限を超えることに加え、1方向からのX線照射で試料の3次元的情報を取得できることは興味深い。しかしながら、3次元イメージング法としての応用は、光軸方向の分解能が面内方向と比較して3桁程度下回っている現状では限定され

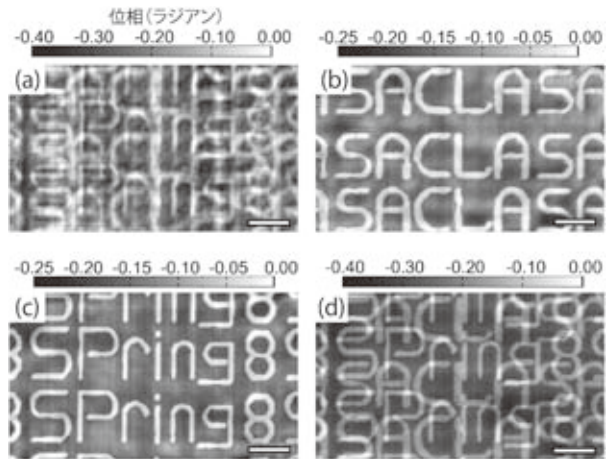


図4 反復的位相回復アルゴリズムによって再構成したサンプルの位相シフト像

(a) マルチスライス法を用いない場合の再構成像。3PIEによって再構成された (b) 一層目と (c) 二層目の再構成像。(d) (b)と(c)の再構成像を重ね合わせた試料投影像。スケールバーは1 μm

るだろう。一方、様々な角度の投影像から3次元像を構築するトモグラフィは、投影近似による分解能の制限を回避することはできない。つまり、厚い試料でも高分解能で投影像を取得できるマルチスライスX線タイコグラフィとトモグラフィを組み合わせることで、X線の透過性と短波長性を活かした3次元ナノX線イメージング技術が実現すると考えている。

参考文献

- 1) Rodenburg, J.M., Hurst, A.C., Cullis, A.G., Dobson, B.R., Pfeiffer, F., Bunk, O., David, C., Jefimovs, K., and Johnson, I., *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 034801 (2007)
- 2) Suzuki, A., Furutaku, S., Shimomura, K., Yamauchi, K., Kohmura, Y., Ishikawa, T., and Takahashi, Y., *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 053903 (2014)
- 3) Takahashi, Y., Suzuki, A., Zuttu, N., Kohmura, Y., Senba, Y., Ohashi, H., Yamauchi, K., and Ishikawa, T., *Phys. Rev. B*, **83**, 214109 (2011)
- 4) Maiden, A.M., Humphry, M.J., and Rodenburg, J.M., *J. Opt. Soc. Am. A*, **29**, 1606 (2012)