

硬 X 線ナノビームスキャナ光学系 の発案と実証

山田 純平

Yamada Jumpei

1. はじめに

1960~1970年以降,極めて高輝度な放射光 X線の出現により大きく発展を遂げてきた技術の1つに X線顕微鏡がある。X線の高透過性・短波長性から,物体の内部構造を非破壊かつ高空間分解能に観察可能な技術である。主要な X線顕微鏡の1つに走査型 X線顕微鏡(SXM)がある。広く知れわたっている走査型電子顕微鏡(SEM)と良く似た原理であるが,電子ビームとは異なり「X線は動かせない」という常識のもと、走査プローブである X線ではなく、観察試料を走査(スキャン)することで顕微観察が行われてきた。

本稿では、この「X線は動かせない」という常識 を転換し、高分解能 SXM を実現するための X線ナ ノビームスキャナ光学系の発案とその実証¹⁾につ いて紹介する。

2. 硬 X 線ナノビームスキャナ光学系

走査型 X 線顕微鏡では,小さく集光した X 線ビームを観察試料に照射し,吸収,蛍光,散乱 X 線や 光電子等の発生する信号を記録する。X 線ビームと 試料の相対的な位置を細かくスキャンしつつ,得ら れる信号をマッピングすることで顕微画像を取得す る。空間分解能は基本的に 2 つの要素で決まり,信 号が発生する空間領域をどれだけ小さくできるか (= X 線集光サイズ),及び,どれだけ精密にスキャ ンできるか(=スキャン精度),が重要となる。近年, 放射光 X 線源や X 線集光技術の急速な進歩により, 集光サイズは 10 nm 以下のスケールまで劇的に微小 化した²⁴⁾。この結果,SXMの試料スキャン精度に は 1~2 nm といった値が求められるようになった。 しかしながら,試料をスキャンする方式では,1 nm (原子数個分)に相当する精度の実現は難しい。例 えば,高精度位置センサを搭載した圧電素子駆動ス テージや,それらステージ群の熱ドリフト抑制,振 動を抑えるための高剛性インバー・花崗岩製の光学 テーブル等が開発されてきたが,装置複雑化の末に 試料周辺環境の利便性が犠牲となり,その上でなお, スキャン精度は 10~20 nm 程度の値しか得られてい ない^{5,6)}。SXMの高分解能化や利便性向上のために は,試料走査技術が根本的大きな壁として存在して いると言える。

定常的に 1~5 nm やそれ以上の高分解能を実現し ている SEM では,静電偏向技術で電子ビームその ものを精度良くかつ高速にスキャンする。X線でも 同じことができれば理想的であるが,X線は透過性 が高いがためになかなか曲がらない,または精度良 く曲げることが難しい。回折や反射といった現象を 利用した X線光学素子は存在するものの,ナノ精 度 X線スキャン用途には,効率が悪い・精度が足 りないことが問題となってしまう。

筆者らの行き着いた発想は、屈折素子である X 線 プリズムと、全反射素子であるミラー型集光レンズ の組み合わせ(図1(a))である。これを本稿では、 硬 X 線ナノビームスキャナ光学系と呼称する。 X 線プリズムで微小な角度だけ X 線を偏向させ、 ミラー型集光レンズで X 線を細く集光する。ポイ ントとなるのはプリズムの高い偏向角制御性と、ミ



図1 (a) X線ナノビームスキャナ光学系の概略図。(b) X線プリズムによる偏向の1次元断面図。(c) ミラー 型集光レンズの1次元断面図

ラー型集光レンズの優れた集光性能である。

X 線複素屈折率 $(1-\delta+i\beta)$ の実部を表す位相項 δ を用いると、 頂角 φ = 90 deg の X 線プリズムによ る偏向角 $\Delta \theta$ は、

$$\Delta \theta \approx \frac{2\delta}{\sin 2\theta} \tag{1}$$

と書ける⁷⁾ (図1(b))。ここで θ はプリズムへの斜入射角である。 δ は10⁻⁵~10⁻⁶程度であるので,数 ~数十 μ radの微小角度しかX線は偏向しないが, その反面,斜入射角の変化に対して4~5桁の細か い制御が可能である。つまり数 deg のプリズム回転 制御で,容易に nrad レベルのビームスキャン角度 精度を得ることができる。これは回折や反射に基づ くX線光学素子では得られ難い特徴であり,X線 の物理を上手く使った利点と言える。

偏向されたビームはミラー型集光レンズによりナ ノメートルサイズまで集光される。ここでミラー型 集光レンズとは、楕円・双曲線の組み合わせからな る2枚の反射面を有しており、アッベの正弦条件を 近似的に満たすことで結像特性を有する光学系を指 す(図1(c))。単純な楕円による1回反射集光ミラー では、規定の入射角から外れたOff-axis条件でナノ メートルの集光サイズを維持することはできない。 「レンズ」として結像特性を有する2回反射光学系 を用いることで、プリズムによる入射ビームの角度 偏向が、焦点面でのナノビームスキャンに変換され る。なおミラー型集光レンズは、1次元方向ずつに 2回反射を、水平・鉛直両方向にて行うので、総じ て4回反射の全反射光学系となる。全反射ミラーは 比較的高いスループットを有し(4回反射後で約 60%),また大きなアクセプタンスを確保できるた め,X線の受けこぼしが少ない高効率なX線ナノ ビーム形成及びSXM実験が可能といった利点もある。

3. ナノビームスキャナの性能実証

X線プリズムによる偏向角を、ガラス状炭素(密 度 1.51 g/cm³) 製の頂角 90 deg プリズムを想定し, 光子エネルギー10,12 keV(それぞれ δ = 3.138 × 10⁻⁶, 2.178 × 10⁻⁶)の条件で式(1)に基づき計算 した。偏向角及び透過率の斜入射角依存性を図2(a) に示す。着目すべきは左縦軸と横軸の単位の違いで ある。反比例関係ではあるものの, 5~30 deg の斜 入射角制御で~30 µrad の偏向角走査が可能となる (1 deg = 17453.3 µrad)。一般的な回転・角度制御ス テージを用いれば、20 urad 以下の精度で斜入射角 を制御できるので、単純計算ながら5 nrad 以下の ビーム角度制御が可能となる。これは現在、放射光 ビームラインの基幹輸送光学素子が達成目標として いる精度に匹敵する。計算上も後述の実験において も、横軸は5 deg 以上に制限している。斜入射によっ てプリズム材質内を通る光路長が長くなり,透過率 が著しく減少するのを避けるためである。高い光子 エネルギー条件にすると透過率は上がるが、その分 偏向角が小さくなりビームスキャン範囲が小さくな る。詳細は論文¹⁾とその Suppl. を引用されたい。



図 2 (a) X 線プリズムにおける偏向角($\Delta \theta$) と透過率(T)の斜入射角依存性。(b) 斜入射角を 5.4~27.9 deg まで変化させたときの偏向ビームイメージ。最下段はプリズム無し条件。スケールバーは 30 μ m を示す。(c) ワイヤスキャン法にて計測した集光ビームサイズ。赤点は実測値,黒実線は 3 つのガウス関数の重ね合わせによるフィッティング結果。半値幅 53.2 nm(水平)×52.5 nm(鉛直)。(d) Ta500 nm 厚み放射状テストパターンの吸収 SXM 像

結局,グラッシーカーボンや Be といった軽元素を 用いても 10~20 keV が本光学系の実用範囲となる。 本光学系の呼称を,「硬 X 線」に限定するのはこれ が理由である。より高い光子エネルギー帯では Si や Al といった材質のプリズムが有効となるであろう。

実際に放射光 X 線を使った実証実験を, SPring-8 BL29XUの実験ハッチ3において, 光子エネルギー

10 keV の条件で行った。プリズムの入射面及び出 射面が研磨された頂角 90 deg のガラス状炭素 X 線 プリズム(東海カーボン製)を使用した。

まず, 偏向特性のテストを実施した。入射 X 線を 15 µm 角の四象限スリットにて切り出し, ペンシ ルビームとして水平方向に配置したプリズムに照射 した。プリズムの下流 0.988 m に設置した高分解能 X線カメラで偏向したビームを観察した。カメラは 0.325 µmのピクセルサイズを有していた。あらかじ めプリズムの回転中心が頂角と一致するように調整 した上で,斜入射角を変化させつつ得られた偏向 ビームイメージを図2(b)に示す。プリズム無し条 件と比較すると,水平右方向にビーム位置がシフト していること,斜入射角が小さいほど透過率減少の ためビーム強度が弱くなっていることが分かる。画 像の相互相関解析から求めたビームのシフト量とカ メラ長を用いて,偏向角の実験値を算出し図2(a) 黒点にプロットした。計算値と非常によく一致して いることが分かる。偏向角の測定誤差(画像解析精 度)を含めた偏向精度は二乗平均平方根(rms)で 17 nradであり,焦点面上では少なくとも2.9 nm rms を上回る走査精度が見積もられる。

続けて, 垂直方向プリズムとミラー型集光レンズ を配置し,硬X線ナノビームスキャナ光学系を構 築した。ミラー型集光レンズは以前の研究⁸⁾にて 開発されたもので、50 nm 分解能のほぼ回折限界性 能を達成したものである。ナノ集光ミラーの調整と いうと、一般に複雑な手順・時間がかかるというイ メージがあるかと思うが、 ミラー型集光レンズは結 像特性を有するため許容誤差範囲が広く、設置して 規定角度をつけるだけで調整が完了した。時間にし て 30 分とかからないほど容易であった。径 50 µm の金ワイヤを用いてエッジスキャンを行い、集光径 評価を実施した。計測された集光サイズは半値全幅 で $52.5(垂 i) \times 53.2(水平) nm^2$ であった (図 2(c))。 X線プリズムを挿入した条件においても、約50nm の集光性能が維持されており、プリズムによる波面 の擾乱がほとんど無いことが示されている。

最後に,硬X線ナノビームスキャナを用いて, 500 nm 厚 Ta でできた最小構造 50 nm 放射状テスト パターン(XRESO-50HC,NTT アドバンスドテク ノロジ製)の吸収 SXM 像を取得した。式(1)も しくは図2(a)の実験結果をもとに,水平・鉛直そ れぞれに偏向角を線形にスキャンする関数を作成 し,100×133 点の透過率をマッピングした結果を 図2(d)に示す。最小構造 50 nm のライン・スペー スを分解する鮮明な画像を得ることができた。得ら れた高解像度かつ歪みの無い画像から,提案手法の 精度と有効性が示されたと言える。

4. 展望

今回示した実証実験では図2(d)の画像取得に約 95分かかっており、ピクセル当たり0.43 sのスキャン速度にとどまっている。今後、特に来たるべき次 世代放射光源では、プリズム形状の最適化やOnthe-flyスキャン計測の適用により、数+µs/pixの スキャン速度の実現も可能になると見込まれる。ま た、光子エネルギー毎のプリズム材質最適化や複数 個プリズムの利用 (compound 化)、可視光に倣った Risley 配置等への発展も考えられるであろう。

今回, X線ナノビームスキャナが初めて実証され た理由の1つに, X線光学技術, すなわち光学素子 の精度やその取扱い技術の向上が挙げられる。例え ば, これまではミラーの開発と精度向上が研究の至 上命題であったが, 技術の向上と共に, 他のX線 光学素子を組み合わせた新たな利用法が現実のもの となってきた。本技術を火付け役として, 今後X線 光学技術の新展開が開拓されることが望まれる。

走査型 X 線顕微鏡は,次世代放射光施設におけ る光源性能の向上の恩恵を大きく受ける技術の1つ である。極めてシンプルかつ高精度なスキャンが実 現できる硬 X 線ナノビームスキャナは,X線顕微 観察や X 線分光分析の高度化に大きく寄与してい くものと期待できる。

本研究を進めるにあたり,ご指導・ご助力並びに 有益な議論を賜った理化学研究所矢橋牧名グループ ディレクター,井上伊知郎博士,大坂泰斗博士,名 古屋大学松山智至准教授,大阪大学山内和人教授 をはじめとした共同研究者の皆様に感謝いたしま す。本研究は理化学研究所基礎科学特別研究員制度 の助成を受けたものです。

参 考 文 献

- 1) J. Yamada, et al., IUCrJ, 8, 713-718 (2021)
- K. Yamauchi, et al., J. Phys. Condens. Matter., 23, 394206 (2011)
- 3) I. Mohacsi, et al., Sci. Rep., 7, 43624 (2017)
- 4) S. Bajt, et al., Light Sci. Appl., 7, 17162 (2018)
- 5) E. Nazaretski, et al., J. Synchrotron Rad., 22, 336-341 (2015)
- 6) F. Villar, et al., Synchrotron Radiat. News., **31**, 9-14 (2018)
- 7) I. Inoue, et al., J. Synchrotron Rad., 25, 346-353 (2018)
- 8) S. Matsuyama, et al., Sci. Rep., 7, 46358 (2017)

((国研)理化学研究所・大阪大学大学院工学研究科)