

## §6. 利用実験

6-1. 積層型フレネルゾーンプレートを用いた  
硬 X 線マイクロビームの生成

鈴木 芳生\*†

日立製作所基礎研究所\*

## Hard X-ray Microbeam with Sputtered-sliced Fresnel Zone Plate

Yoshio SUZUKI

Advanced Research Laboratory, Hitachi Ltd.

Hard X-ray microbeam with zone plate optics has been tested at the TRISTAN main-ring test-beamline, and preliminary experiments on scanning microscopy has also been performed. A sputtered-sliced Fresnel zone plate with Au core and Ag/C multi-layer is used as an X-ray focusing device. The outermost zone width of the zone plate is  $0.25 \mu\text{m}$ . A focused spot size of about  $0.5 \mu\text{m}$  has been achieved at an X-ray energy of 8.54 keV. In a scanning X-ray microscopy experiment, test patterns with sub-micrometer fine structure have been clearly resolved.

## 1. 研究の背景と目的

トリスタンMR放射光利用実験における我々の研究目的は高空間分解能かつ高強度の硬 X 線マイクロビームを生成して、微小領域 X 線分析、走査型 X 線顕微鏡への応用実験を行い、次世代(第三世代)放射光源における硬 X 線マイクロビームの可能性を探ることであった。マイクロビームが実用になれば、微小領域 X 線分析、回折を利用した構造解析、走査顕微鏡等の多くの応用分野が期待出来る。第三世代 SR 施設(ESRF, APS, ALS 等)では、その特性(低エミッタンス, 高輝度)を生かした利用技術として波長  $1 \text{ \AA}$  前後の硬 X 線マイクロビームの生成と応用に関する

研究が精力的に進められている。しかしながら、現段階ではいずれも開発途上にあり、ようやく  $1 \mu\text{m}$  を切る集光ビームサイズが得られるようになったところである<sup>1,2)</sup>。

我々のグループでは、PF 2.5 GeV リングの偏向電磁石ビームライン(BL-8C2)を利用して斜入射全反射鏡やフレネルゾーンプレート(Fresnel Zone Plate: FZP)を集光光学素子とした硬 X 線マイクロビームと走査型顕微鏡の研究を進めていた。集光ビームサイズとしては既に  $1 \mu\text{m}$  前後の値が達成されていた<sup>3-6)</sup>。しかしながらこのような高分解能を得るためには放射光のごく一部をピンホールで切り出して使わなければなら

\* 日立製作所基礎研究所 〒350-03 埼玉県比企郡鳩山町赤沼2520 TEL 0492-96-6111(内213)

† 現在(勲)高輝度光科学研究センター・放射光研究所 〒678-12 兵庫県赤穂郡上郡町 SPring-8  
TEL 07915-8-0831(代) FAX 07915-8-0830 e-mail yoshio@spring8.or.jp

ず、マイクロプローブとして実用になるビーム強度は得られていなかった。集光ビームサイズは主に集光用の光学素子の精度で決められているが、ビームの強度は原理的に光源の輝度で制限されている。現在の PF 偏向電磁石光源の輝度では実用的なサブミクロン分解能マイクロプローブの生成は困難であり、これを達成するにはトリスタン MR の様な次世代の高輝度放射光源が不可欠であった。

ここではトリスタン MR のテストビームラインで行った積層型 FZP を集光光学素子とする硬 X 線マイクロビームの生成と応用に関する実験結果について述べる。なお詳しい内容は原論文<sup>7,8)</sup>を参照していただきたい。

現在の X 線光学素子の技術では斜入射全反射鏡の方が積層型 FZP に比べて一桁以上明るい。また集光ビームサイズについても予備実験の段階ではそれほど大きな違いは無かった。FZP を選択した理由は光学系の調整の容易さである。我々が開発を進めていた楕円筒鏡を組み合わせた Kirkpatrick-Baez 光学系は理論的にはほぼ完全な集光が出来るが、理想的な集光条件に対する許容範囲が極めて狭く光学系の調整が難しい。このために光学系の調整に要する時間が経験的には数日から長い場合には一週間程度必要であった。これに

対して、FZP 光学系の組み立て調整は数時間で可能である。MR 放射光実験は時間的に厳しいスケジュールで行われ、我々のユーザータイムは(結果的に)約80時間であった。このために光学系の調整にほとんど時間を必要としない FZP を集光光学素子として選択したのである。

## 2. 実験装置の構成

### 2.1 光学系

図1に光学系の構成を示す。マイクロビームを生成する為に発光点の像をレンズで試料上に幾何光学的に縮小結像する光学系である。我々の実験装置は地下3階の実験ハッチの最下流にあり、アンジュレータからの光は二結晶分光器で単色化されてから大気中に取り出され、集光用光学素子である FZP に入射する。アンジュレータ発光点から FZP 迄の距離はおよそ100 m である。分光器の第二結晶から実験装置までの距離は約10 m であり、この間は空気による減衰と散乱を防ぐために He 置換したダクトに置き換えてある。X 線はマイクロビーム実験装置の直前でカプトン窓を通して再び大気中に取り出される。また結晶分光器の第一結晶と第二結晶の間に可変型の四象限スリットがあり、このスリットを十分狭くすることで仮想的な疑似点光源とすることが出来る。実

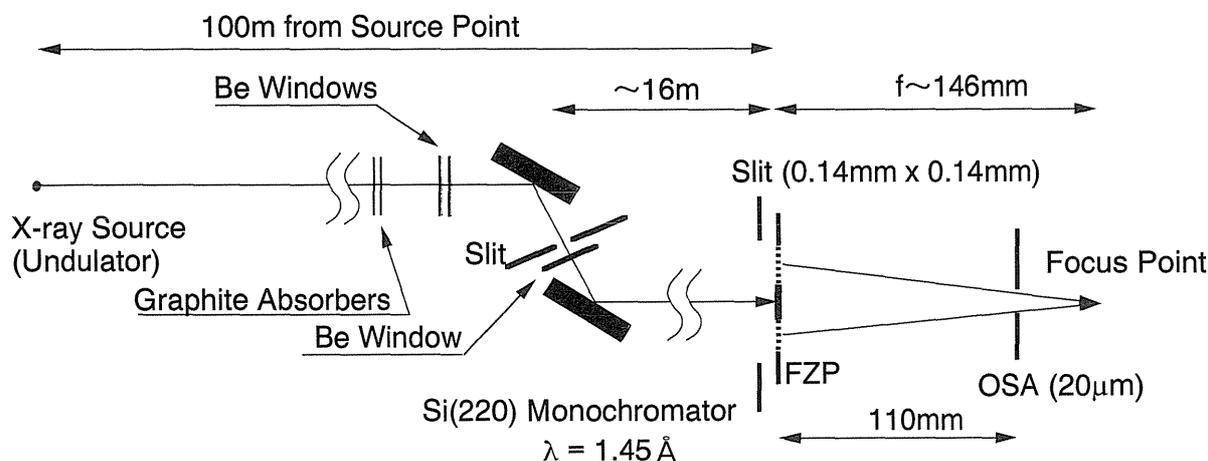


Figure 1. The optical system, (OSA: order sorting aperture. FZP: sputtered sliced Fresnel zone plate).

験はアンジュレータ放射の発光点を縮小結像する方法、及びこの四象限スリットを発光点として縮小結像する光学系の両方を試みた。なおマイクロビーム実験の際のMR運転条件は、8バンチ運転、電子エネルギー8 GeV、蓄積電流は2 mA～15 mAであった。X線波長は全て1.45 Åに固定して行った。

FZPの直前にある四象限スリット(0.14 mm×0.14 mm)は不要なX線が照射されない為の制限スリットである。FZPを透過したX線が集光点に集光されるが、FZPは回折を利用したレンズである為に、1次回折光以外に0次透過光や高次回折光が存在する。不要な回折を除去して+1次回折のみを取り出すためにFZPと集光点の間にピンホール(OSA: order sorting aperture)が置かれている。後で述べるように今回使用したFZPは中心部が遮光された形式であり、このOSAによってほぼ純粋に+1次回折のみを取り出すことが出来る。今回の実験で使用したOSAは厚さ0.2 mmのタンタルの板に直径20 μmの円形開口を加工したものである。

マイクロビームを生成するための幾何学的な縮小率と期待される計算上の集光ビームサイズは光学系によって異なる。アンジュレータ放射の発光点を縮小結像する場合は、光源からFZPまでの距離(L)が100 m、FZPの焦点距離(f)がおおよそ150 mmであり、倍率Mは単純に、

$$M=f/L=1.5 \times 10^{-3},$$

で表される。光源の計算上の大きさは $2\sigma_x=0.3$  mm,  $2\sigma_y=0.05$  mmであり、幾何学的な集光ビームサイズは

$$2\sigma_{x,y} \times M \sim 0.45 \mu\text{m} \text{ (水平)} \times 0.08 \mu\text{m} \text{ (垂直)}.$$

になる。ただし後で述べるようにFZP自身のNAによる回折限界があるため0.3 μmより小さ

くはならない。

分光器の第一結晶と第二結晶の間にある四象限スリットを見かけの発光点として縮小結像した場合は、スリットからFZP迄の距離(L)がおおよそ16 mであることから倍率(M)は

$$M=f/L=0.94 \times 10^{-2},$$

であり、例えばスリット幅を50 μmとした場合の幾何学的な集光ビームサイズは

$$50 \mu\text{m} \times M \sim 0.5 \mu\text{m},$$

が期待される。

## 2.2 光学素子

集光実験に用いた光学素子は大阪工業技術研究所で作製されたFZPである<sup>12-15)</sup>。これは芯線の周囲に、多層膜をスパッタで形成してから切断研磨して薄片化したものであり、スパッタースライスゾーンプレートあるいは積層型フレネルゾーンプレートと呼ばれている<sup>9-11)</sup>。ここで使用した積層型FZPは芯線に金ワイヤ(直径47 μm)を用いて銀とカーボンの多層膜を50層積層させたものである。FZPの外径は80 μmであり、最外ゾーンの幅(最外層の膜厚に相当)は0.25 μmである。FZPの厚さはおおよそ8-9 μm程度と見積もられている。波長1.45 ÅのX線に対しては、この金の芯線の部分は遮光ゾーンとして機能する。

使用したFZPはMRでの実験に先立ってPF 2.5 GeV リングBL-8C2で焦点距離と回折効率の評価を行った。その結果、波長1.54 Åでの焦点距離は141 mm、また一次光の回折効率は10%であった。FZP中心部は直径47 μmの金の芯線であり回折に寄与しないので、この部分を補正して純粋な回折効率を見積もると約16%である。この値は透明ゾーンと遮光ゾーンの繰返しからなる振幅変調型のFZPの理論効率( $1/\pi^2 \sim 10\%$ )

より大きく、このFZPは位相変調型になっていると推定される。今回用いたFZPの最外線幅( $d_N$ )は $0.25\ \mu\text{m}$ であるが、これで決められる回折限界分解能(レイリー限界: $\delta$ )は円形開口のレンズとして近似することによって、

$$\delta = 1.22d_N = 0.3\ \mu\text{m},$$

になる。

### 3. 実験結果

#### 3.1 マイクロビーム生成

集光ビームサイズはエッジスキンの数値微分によって求めた。エッジとして金ワイヤ(直径 $50\ \mu\text{m}$ )を用いて、これをステップモータ駆動の並進ステージで機械的にパルス送りさせながら透過X線強度を測定した。図2に実験結果を示す。集光実験はアンジュレータ発光点を直接縮小結像する場合と途中の四象限スリットの像を縮小結像する二つの方法を行っている。

アンジュレータ発光点を縮小結像した場合の集光ビームサイズは図2(a)に示す様に半値幅 $1.4\ \mu\text{m}$

$\mu\text{m}$ であった。このときの焦点距離(最小の集光ビームサイズの得られる焦点距離)は $150\ \text{mm}$ であった。図には水平方向のみのデータを示しているが、垂直方向の集光ビームサイズも水平方向と全く同じ半値幅であった。

二結晶間の四象限スリットを発光点として縮小結像した場合は、図2(b)に示すように集光ビームサイズ約 $0.5\ \mu\text{m}$ が得られた。このときのビーム強度から推定した四象限スリットの幅は約 $50\ \mu\text{m}$ である。ただしこの最小の集光ビームサイズが得られた焦点距離は $146\ \text{mm}$ であった。この集光ビームサイズは回折限界に近い値であり、FZPの加工精度が十分に高いことを示している。

計算上は同程度の集光ビームサイズが得られるはずであるが、発光点を縮小結像した場合の集光ビームサイズ( $1.4\ \mu\text{m}$ )は四象限スリットを仮想光源とした場合の集光ビームサイズ( $0.5\ \mu\text{m}$ )に比べてかなり悪い。この原因としては、分光結晶の歪みや欠陥、途中のX線窓(グラファイトフィルター、ベリリウム、及びカプトン)による散乱や屈折が考えられる。その後の実験からグラファイトフィルターでの波面の歪みが最も大きな影

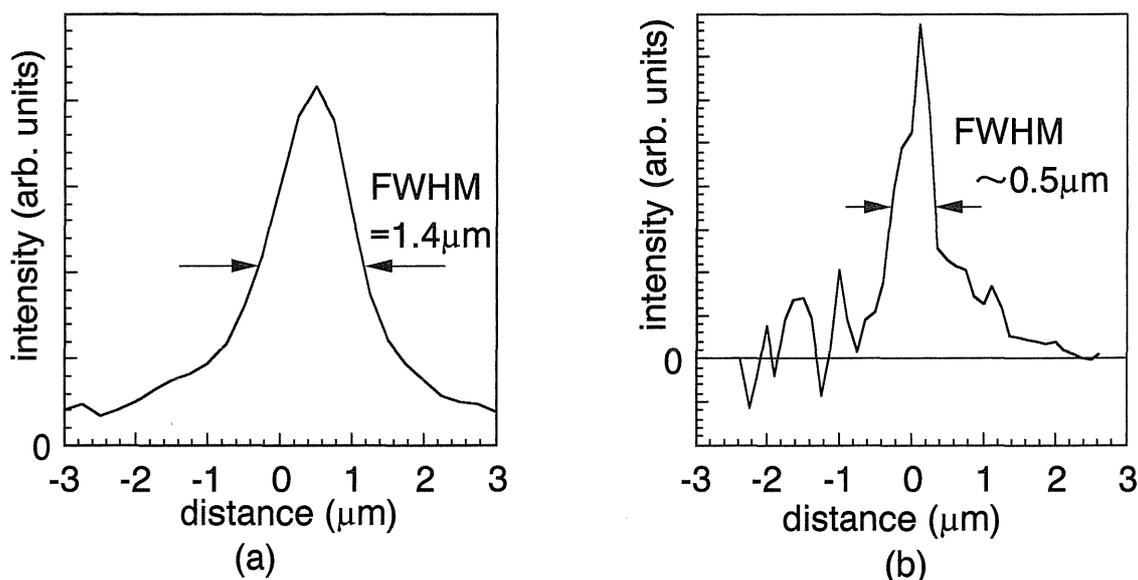


Figure 2. Focused beam profiles measured by knife-edge scan. (a) SR source is demagnified without the slit. (b) A cross slit between the 1st crystal and the 2nd crystal is used as a pseudo-point source.  $\lambda = 1.45\ \text{\AA}$ . Horizontal focus.

響を与えていることが判ったが、定量的にはまだ完全に解明されてはいない。今後更に検討する必要がある。

集光ビーム強度はイオンチェンバーで測定した。四象限スリットを使用せずにアンジュレータ放射の発光点を直接縮小結像した場合（集光ビームサイズ $1.4\ \mu\text{m}$ ）のリング蓄積電流で規格化した集光ビーム強度はX線波長 $1.45\ \text{\AA}$ 、蓄積電流 $4.2\ \text{mA}$ 、8バンチ運転、電子エネルギー $8\ \text{GeV}$ の条件で $2.3 \times 10^6\ \text{photons/s}/10\ \text{mA\_ring\_current}$ であった。PF 2.5 GeV リングの偏向電磁石を光源とする実験ステーション (BL-8C2) でFZPを光学素子として同程度の集光ビームサイズを得た時のビーム強度は $10^3\ \text{photons/s}/300\ \text{mA\_ring\_current}$ 程度であり、トリスタンMRでは実効的にもPF偏向電磁石光源の $10^3$ 倍以上の強度が得られている。

### 3.2 走査型顕微鏡への応用

このマイクロビームを用いた走査型顕微鏡の実験を行った結果を図3に示す。顕微鏡画像を計測するためには試料を二軸のステッピングモータ駆動

の並進ステージによって水平垂直に二次元走査（ラスタスキャン）させながらX線の強度を計数する。計測データは計算機で処理して二次元の濃淡画像で表示する。試料はSiNとポリイミド樹脂の複合薄膜に金のテストパターンを電子線描画の方法で作製したものであり、線幅 $0.4\ \mu\text{m}$ 迄の微細な周期パターンが厚さ約 $1\ \mu\text{m}$ で形成されている。画像計測はX線波長 $1.45\ \text{\AA}$ において透過X線強度を測定して行ったが、金 $1\ \mu\text{m}$ による計算上の吸収コントラストは29%であり（透過率71%）、理想的な白黒コントラストにはなっていない。図3(a)は $0.9\ \mu\text{m}$ ライン/ $0.9\ \mu\text{m}$ スペースのテストパターン、図3(b)は $0.6\ \mu\text{m}$ ライン/ $0.6\ \mu\text{m}$ スペースのテストパターンに対する実験結果である。顕微鏡像では $0.6\ \mu\text{m}$ のテストパターンも明瞭に分解されている。テストパターンの吸収コントラストが弱いため画像上の濃淡が弱い。が、 $0.6\ \mu\text{m}$ のパターンに対する振幅変調度は約14%であり十分な解像度が得られている。

### 4. 結論

トリスタンMR放射光テストビームラインを

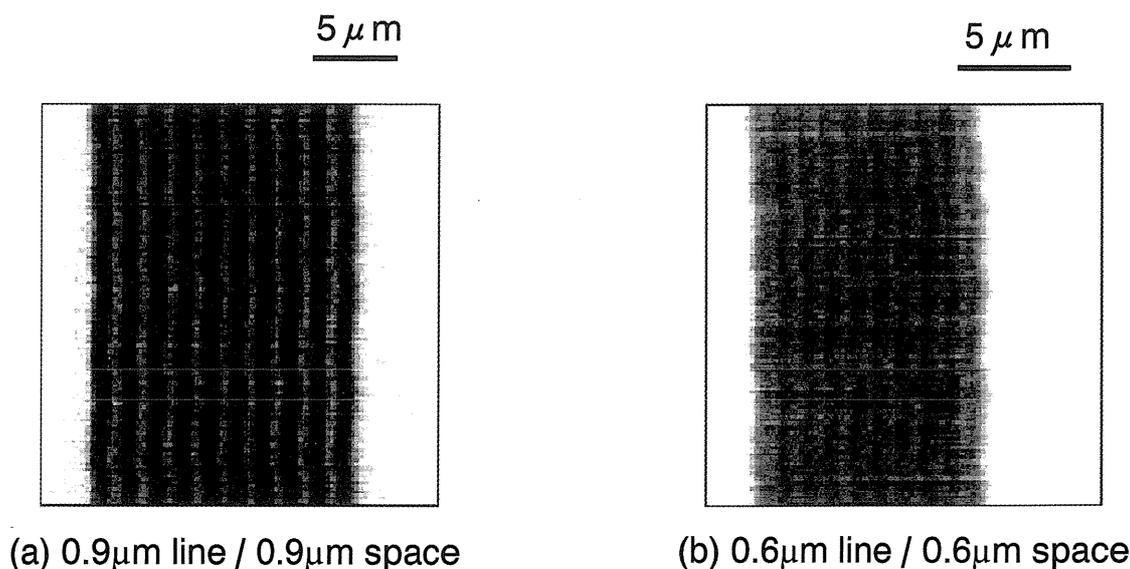


Figure 3. Scanning microscopic images of test patterns. (a)  $0.9\ \mu\text{m}$  line and  $0.9\ \mu\text{m}$  space pattern, (b)  $0.6\ \mu\text{m}$  line and  $0.6\ \mu\text{m}$  space. X-ray energy is  $8.54\ \text{keV}$ . Two-dimensional images of  $128 \times 128$  pixels are acquired by raster-scanning the sample. Pixel size: (a)  $0.2\ \mu\text{m}$ , (b)  $0.15\ \mu\text{m}$ . Dwell time:  $0.2\ \text{s}/\text{pixel}$ .

利用して、硬 X 線マイクロビームの生成と利用に関する基礎実験を行った。焦点距離146 mm, NA  $2.7 \times 10^{-4}$ , 集光効率10%の積層型フレネルゾーンプレートを集光型光学素子として Si(220) 結晶分光器で単色化された波長1.45 Å の単色 X 線の集光実験を行った。結晶分光器の第一結晶と第二結晶の間にある四象限スリットを50 μm 程度(推定値)に調整して疑似点光源として用い、これを約1/100に縮小結象する光学系によって集光ビームサイズ約0.5 μm が達成された。さらにこのマイクロビームを用いて走査型 X 線顕微鏡の実験を行った。テストパターンで解像度を評価した結果では、線幅0.6 μm (周期長1.2 μm) の金の透過グレーティングパターンが明瞭に分解された。このときの変調度 (MTF 値) は約14%であった。この実験によって、サブミクロンの空間分解能を持つ硬 X 線マイクロビームと走査型顕微鏡の実用化の目途が立ったと言える。

本報告は筆者が代表して行ったが、実際は上條長生, 田村繁治 (大阪工業技術研究所), 半田克巳 (立命館大), 竹内晃久 (筑波大) 及び KEK-

PF MR 放射光推進室のメンバーの方々との共同研究の成果である。

### 参考文献

- 1) W. B. Yun et al.: SPIE Proceedings **1740**, 117 (1992).
- 2) A. Snigirev et al.: Rev. Sci. Instrum. **66** (1995) 1461, ibid 2053.
- 3) Y. Suzuki and F. Uchida: Jpn. J. Appl. Phys. **30**, 1127 (1991).
- 4) Y. Suzuki and F. Uchida: Rev. Sci. Instrum. **63**, 578 (1992).
- 5) N. Kamijo et al.: Rev. Sci. Instrum **66**, 2132 (1995).
- 6) N. Kamijo et. al.: PF Activity Report 165 (1994).
- 7) N. Kamijo et al.: Rev. Sci. Instrum. **68** (1997) 14.
- 8) Y. Suzuki et al.: to be published in J. Synchrotron Radiation (1997).
- 9) K. Saitoh et al.: Rev. Sci. Instrum **60**, 1519 (1989).
- 10) R. M. Bionta et al.: Opt. Eng. **29**, 576 (1990).
- 11) R. M. Bionta et al.: Appl. Phys. Lett. **64**, 946 (1994).
- 12) S. Tamura et al.: Appl. Surf. Sci. **79/80**, 514 (1994).
- 13) 田村繁治他: 光学 **23**, 558 (1994).
- 14) 田村繁治他: 電子情報通信学会誌 C-II **J76**, 761 (1994).
- 15) 田村繁治他: 真空 **38**, 797 (1995).