

## 光の形を整形する (回折・屈折素子編)

高野秀和 兵庫県立大学大学院物質理学研究科 〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1  
E-mail : htakano@sci.u-hyogo.ac.jp

香村芳樹 理化学研究所播磨研究所 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
E-mail : kohmura@spring8.or.jp

### 1. はじめに

前回から光(ビーム)を整形する話となりました。ビーム整形とはいかにX線を曲げるかに尽きますが、曲げる角度の大きさや精度によって技術的に大きく異なってきます。前は反射によってX線を曲げる反射鏡(ミラー)についての解説がありましたが、今回は回折、屈折を利用したビーム整形、特に集光ビームの形成とその取り扱いについて解説します。

集光ビームを使う利点は様々な測定手法に空間分解能をもたせることです。結晶性の局所評価、成長が難しい微小結晶の構造解析、高感度の微量元素分析等、X線を利用するほとんどの測定手法に導入が可能です。局所分析だけでなく、集光ビームを走査することにより空間的な分布(マッピング)も得ることができます。現在、X線の集光サイズは100 nmを大きく下回ってきており、光学顕微鏡を超える実空間感度で物質内部を調べることができるようになってきました。また、集光ビームは光を集めて形成します。手をかざしても暖かいだけの太陽光でも、虫眼鏡で集光すると紙が燃えてしまうように、集光ビームは単位面積あたりの照射量を非常に大きくするという効果もあります。

回折や屈折を利用してX線を曲げる場合、その角度はX線の屈折率や回折格子のアスペクト比(後述)を考えると $\mu\text{rad}\sim\text{mrad}$ のオーダーとなり、大きく曲げることは非常に困難です。しかし、素子の形状によって曲げる角度を比較的精密に整えることができるため、可視光における光学レンズと同様の機能を持つ光学素子を作ることができます。高い集光性能を得るためには非常に有用な機能です。

本稿では、最初に光学集光についての簡単な解説を行います。次にX線領域の集光素子、特に良く用いられているフレネルゾーンプレート(FZP)及び屈折レンズの解説を詳しく行っていきます。ビームラインにおいて集光ビームを取り扱う場合の、光学設計や評価方法等の技術的な解説を行い、最後に今後の集光ビーム技術の展望を述べたいと思います。

### 2. 光学的に光を集める

可視光領域において光を集める場合一般的に光学レンズが用いられます。光学レンズを通る光の様子をFig. 1に示します。Fig. 1(a)、Fig. 1(b)は同じ光線を示していますが、光学レンズの機能を理解するためにその色分けを変えています。まずFig. 1(a)ですが、黄線で示したようにレンズは光軸から離れた光ほど大きく曲げる機能を持っており、平行に入射した光をレンズから $f$ (焦点距離)離れた焦点に集めることができます。また光軸に対して傾いた平行光も、赤と青の線で示したように焦点面上に集光しますが、その傾き角に比例して光軸より離れた点に集光します。次にFig. 1(b)では、赤と青の線により、物面にある一点から出た光が像面の一点に集まっていることがわかります。これがレンズの結像作用です。この関係は薄レンズの公式として、以下のように表すことができます。

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{a} + \frac{1}{b} \quad (1)$$

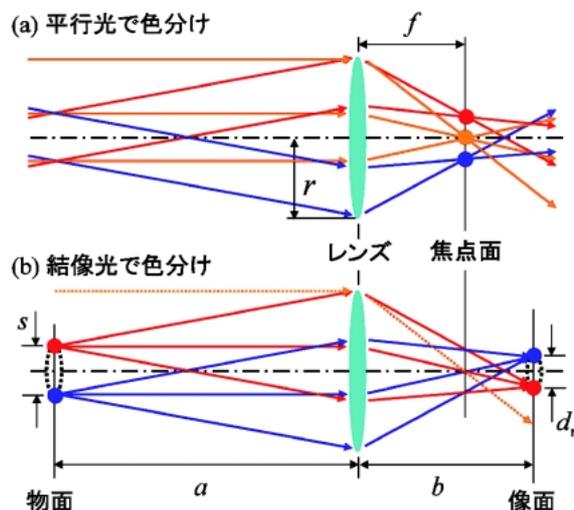


Fig. 1 Focusing and image forming by a thin optical lens.

光は通常有限な大きさの発光源を持つため、光を集める場合には **Fig. 1(b)** のように物面に置かれた大きさ  $s$  の発光源を像面に縮小結像すると考えると便利です。このときの像面での結像サイズ  $d_r$  は  $s \cdot (b/a)$  となります。通常は  $a$  を十分大きく取るため  $s \cdot (f/a)$  と考えてよいでしょう。 $d_r$  は幾何学光学的な縮小サイズであるため、いくら小さくしても実際に像面で形成される集光サイズにはある限界があります。これは前回でも簡単な説明がありましたが、波動光学的な回折限界 (レーリーの限界)  $d_0$  と呼ばれ、レンズの半径  $r$ 、光の波長  $\lambda$  を用いて、

$$d_0 = C\lambda \left( \frac{f}{r} \right) \quad (2)$$

として定義されます ( $r \ll f$  の場合)。 $C$  はレンズの形によって値が異なる係数で、一般的な円形開口の場合は 0.61 です。結局、像面における最終的な集光サイズ  $d$  は、回折限界  $d_0$  と幾何学的縮小サイズ  $d_r$  のコンボリューションとなり、 $d_r$  と  $d_0$  をガウス分布とみなすと次のように見積もることができます。

$$d = \sqrt{d_r^2 + d_0^2} \quad (3)$$

回折限界  $d_0$  は、集光点 (像面) からレンズの縁を見込む角度 (開口角)  $r/f$  が大きいレンズを使えば小さくなるため、使用するレンズと波長から決まります。一方、幾何学的縮小サイズ  $d_r$  は、光源サイズ  $s$  が小さく、光源からレンズの距離 (伝搬長)  $a$  を長くすることにより小さくなるので、レンズへの光の照明系を考慮する必要があります。

照明系は空間コヒーレンスの概念を用いて考えることもできます。コヒーレンスとは光波の干渉の度合いを表わします。詳しくは第10回で説明があると思いますが、同一光源から発した2つの光波が干渉するとき、空間的 (光の進行方向に垂直な面内) にどれだけ離れても観測面で干渉するかを定義する長さが空間コヒーレント長です (ちなみに進行方向は時間コヒーレント長と呼ばれ、光の単色性 (波長の揃い具合) で決まります)。空間コヒーレント長  $2r_{\text{Coh}}$  は、光源の大きさ  $s$ 、伝搬長  $a$  を用いて、次のように表されます。

$$r_{\text{Coh}} = D\lambda \left( \frac{a}{s} \right) \quad (4)$$

$D$  は定数であり干渉の度合いによって定義されますが、(2)式の  $C$  と等しいとすると、 $r_{\text{Coh}} = r$  すなわちレンズ全体が空間的にコヒーレントに照明されるとき、回折限界の集光が可能となります。逆にレンズの全体が空間的にコヒーレントに照明されていない場合、集光サイズは空間的にコヒーレントに照明されている領域に対応する回折限界に制

限されるということになります。このことは幾何学的集光サイズが回折限界より大きくなっているということと同義です。

実際の集光においては(3)式で求まる集光サイズを達成できない場合があり、その主な要因としてレンズ取差が挙げられます。中でも軸外に影響してくる Coma 取差はレンズに結像作用がない場合に大きく、アライメント誤差等によりレンズが傾いた場合 (光軸が傾いた場合) に“ボケ”が大きくなります。また、レンズに形状誤差がある場合は軸上であっても光を1点に集めることができません。このような“ボケ”は、集光の場合はレンズによる曲げの誤差と考えればよく、その角度誤差がレンズから集光ビームを見込んだ角度  $d/f$  より大きい場合に“ボケ”が大きくなります。さらに、集光ビームは集光位置より光軸上でずれた場所で観測を行うと“ボケ”が生じます。その影響が無視できる範囲が焦点深度であり  $df/r$  で定義されます。X線集光の場合では集光サイズの数百倍~数千倍にもなります。

### 3. X線領域で利用される集光素子

#### 3.1 どのような種類があるか?

X線を集光する場合も、前章で述べた可視領域の場合と基礎は同じです。しかしX線は可視光に比べると波長や物質との相互作用も異なるため、その光学素子の構造は特殊です。X線領域で使用される代表的な光学素子を **Fig. 2** に示します。それぞれに長短所がありますが、現在X線集光ビーム形成において最も良く利用されている素子はフレネルゾーンプレート (FZP) や、Kirpatrick-Baez型ミラーです。以下ではFZPと屈折レンズを取り上げ、詳しく解説します。

#### 3.2 フレネルゾーンプレート (FZP)

X線の光学集光を行う場合、最もポピュラーなのがFZPです。**Fig. 3** に示すように、透明、不透明な同心円のゾーンが交互に配置されている形をしており、外側のゾーンほど間隔が狭くなっているため、外側に入射した光ほど大きく曲げる透過型の不等間隔回折格子として機能します。では正確にどのような形で光を集められるのかを考えてみます。平行光がFZPに入射すると、各格子 (ゾーン) 境界でX線が散乱されます。光軸上の点Fを考え、各ゾーン境界から点Fへの光路差が半波長の整数倍になるようにゾーンの境界を配置してやれば、点Fでは全てのゾーン境界からの光が干渉により強めあい (回折)、集光が実現します。これを式として表すと、FZPの中心から  $n$  番目のゾーン境界までの距離を  $r_n$ 、FZPから点Fまでの光軸上の距離を  $f$  として、

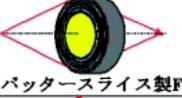
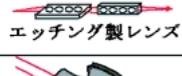
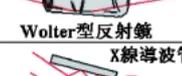
	集光素子名	集光サイズ, 焦点距離 (m)	エネルギー範囲	収差		
				Coma収差	色収差	形状誤差
回折	 Fresnel Zone Plate	30 nm, f=8cm [8keV] <sup>1)</sup>	軟X線 硬X線	○ small	× exist	○ small
	 スパッタースライス製FZP	0.3 μm, f=22cm [12.4 keV] <sup>2)</sup> 0.5 μm, f=90cm [100 keV] <sup>3)</sup>	8-100keV	○ small	× exist	×→△ getting better
	 ブラックFZP	2.4 μm, f=0.7m [13.3 keV] <sup>4)</sup>	主に 硬X線	○ small	× exist	○ small
	 多層膜 ラウエレンズ	30 nm, f=5mm [19.5 keV] <sup>5)</sup>	主に 硬X線	× large	× exist	○ small
屈折	 プレス製レンズ	1.5 μm, f=0.8m [18.4 keV] <sup>6)</sup> 1.6 μm, f=1.3m [15 keV] <sup>7)</sup>	主に 硬X線	○ small	× exist	× large
	 エッチング製レンズ	47nm × 55nm f=1 cm, 2cm [21 keV] <sup>8)</sup>	主に 硬X線	○ small	× exist	○ small
全反射	 Kirkpatrick-Baez型反射鏡	36nm × 48nm f=15cm, 25cm [15 keV] <sup>9)</sup>	軟X線 硬X線	× large	○ none	○ small
	 Wolter型反射鏡	0.7 μm, f=35cm [9 keV] <sup>10)</sup>	<10keV	○ small	○ none	× large
	 X線導波管	95nm [10 keV] <sup>11)</sup>	軟X線 硬X線	× large	○ none	× large

Fig. 2 List of X-ray focusing elements.

$$\sqrt{f^2 + r_n^2} = f + \frac{n\lambda}{2} \quad (5)$$

となります。 $(n\lambda/2)^2 \ll f$  とすると、

$$r_n^2 = nf\lambda \quad (6)$$

となり、FZPの形が決まります。次に、平行光ではなく球面波が入射した場合を考えます。Fig. 3において黄色い線で示したように、FZPから距離  $a$  離れた光軸上の点光源 A からの光が FZP によって散乱され、距離  $b$  離れた光軸上の点 B で強めあうとすると、(5)式と同様に次の式が成り立ちます。

$$\sqrt{a^2 + r_n^2} + \sqrt{b^2 + r_n^2} = a + b + \frac{n\lambda}{2} \quad (7)$$

この式を近軸近似 ( $a, b$  に比べて  $r_n$  は十分小さい) し、(6)式を用いて整理すると(1)と同じ式が得られます。つまり FZP は 2章で示した焦点距離  $f$  の光学レンズと同じ機能を持つのです。

FZP の回折限界は、光学レンズと同様に(2)式が適用できます。ゾーン総数  $N$  の FZP の半径は  $r_N$  であり、一番外側のゾーン幅 (最外輪帯幅) を  $\Delta r_N$  としたとき、

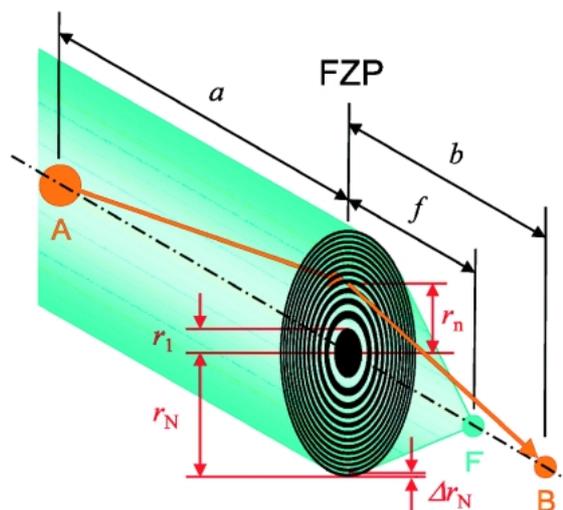


Fig. 3 Schematic drawing of FZP and the focusing ray diagrams.

$$2\Delta r_N (\text{回折格子の1ピッチ分}) (r_N/f) = \lambda (\text{一次回折光の場合}) \quad (8)$$

と表されるため回折限界  $d_0$  は、

$$d_0 = 1.22 \Delta r_N \quad (9)$$

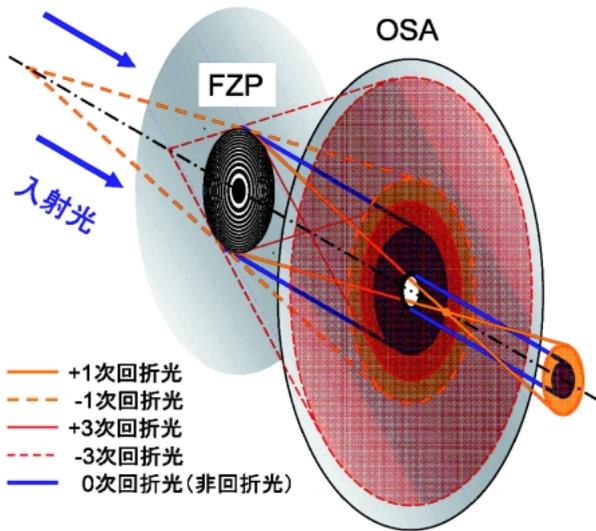


Fig. 4 Various diffraction orders from FZP.

と定義されます ((2)式の  $C=0.61$ )。つまり FZP の最外輪帯幅、すなわち描画されている最も細かいパターン サイズで回折限界が決まります。照明の空間コヒーレント長が不十分な場合は、空間コヒーレントに照明されている領域  $r_N$  内にある最も細かいゾーン幅を実効的な  $\Delta r_N$  として、集光サイズを考えることができます。また、(6)式から FZP の焦点距離は波長によって変化します。これは色収差と呼ばれ、通常回折格子と同様入射光に  $N \sim \lambda/\Delta\lambda$  程度の単色性が必要となります。入射光の単色性が悪くと集光サイズの悪化が生じてしまいますが、その際の集光サイズも  $N' \sim \lambda/\Delta\lambda$  を用いた実効的な  $\Delta r_N$  として、同様に考えることができます。

回折限界を向上させるアプローチとして、最外輪帯幅を小さくする以外に高次回折光を利用する方法があります。FZP は Fig. 4 に示すように様々な次数の回折光が生じます。例えば 3 次回折光を用いる場合、焦点距離は  $f/3$  となります。当然開口角が大きくなるわけですから回折限界も 3 倍向上します。さらに高次の回折光を使えばより小さい集光が可能なのは？ という疑問が生じますが、実際はゾーンの位置精度 ( $r_n$  がどの精度で決まっているか) で制限されます。結局 FZP の空間分解能は微細加工技術の精度で決定しているのです。

FZP は通常 1 次回折光を集光に利用するため、その他の光はバックグラウンドとなってしまいます。特に 0 次光や、-1 次光は後述の集光評価において邪魔になるケースがあります。これらの影響が深刻な場合、ピンホールを置くことで 1 次光のみを取り出すことができます。このピンホールは OSA (Order Selecting Aperture または Order Sorting Aperture) と呼ばれ、開口径が小さいものを集光点近くに置くほど効果があります。ただし、試料までの距離 (ワーキングディスタンス) が短くなったり、

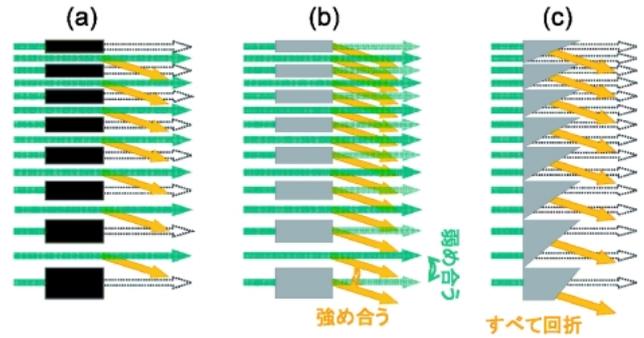


Fig. 5 Various types of FZP. (a) Amplitude type, (b) Phase type, (c) Kinoform (Blazed) type.

OSA の微妙な位置ずれで 1 次光を切ってしまう (強度の損失、集光サイズの悪化につながる) ので注意が必要です。また、OSA よりわずかに大きい直径を持つ遮蔽板を FZP 直上流 (あるいは FZP に直接貼り付ける) に置くと、0 次光を除去することができます。これらのピンホールや遮蔽板の大きさは通常数十ミクロンのオーダーであり、X 線のエネルギーが高い場合は十分厚いものを使用する必要があります。また、遮蔽板は FZP の開口形状を変化させるため集光特性が変化しますので注意が必要です。

次に FZP の回折効率について述べます。通常の透過型回折格子は Fig. 5(a) のように光が通る部分と遮蔽される部分とが交互に並んでおり (振幅回折格子)、その 1 次回折効率は約 10% です。ここで Fig. 5(b) のように遮蔽部分の光も透過させ、その際に半波長分の位相変化を与えると透過した光も強めあい、集光点に寄与する光の振幅は 2 倍、強度では 4 倍となるため、1 次回折効率は 40% まで上昇します (位相回折格子)。X 線は透過力が高いため、FZP のほとんどが位相回折格子として働きますが、遮蔽部での吸収により実際の効率は 20~30% にとどまっています。FZP の効率を向上させることができれば、集光ビームがより明るくなり、上で述べた OSA の必要性もなくなります。Fig. 5(c) のように、通常は矩形である回折格子の断面形状を不連続な放物線、楕円にすると、屈折の効果を利用できるために最大で 100% の回折効率を持たせることができます。このような FZP は Kinoform 型と呼ばれ、形状を直線 (Blazed 型) や階段状 (マルチステップ型) に近似しても高い効率を得られます。

さて、FZP はどのようにして作られているのでしょうか？ 高い回折限界を実現するためには狭いゾーンを形成する必要があります。また、X 線領域で高い回折効率を得るためには十分な厚さが必要です。つまりゾーンの幅と厚さの比 (アスペクト比) の高いゾーンを形成する必要があります。ゾーンの材質としては通常 Ta や Au などの重い金属が使用されますが、エネルギーが 10 keV の X 線の場合、ゾーンの材質が Ta であっても位相を半波長ずらすためには 2.6 ミクロンの厚さが必要となるため、100 nm の

集光サイズを目指す場合、アスペクト比20以上のゾーンを形成する必要があります。FZPの最も一般的な作製方法は電子線リソグラフィ法です。すでに国内外複数のメーカーより市販品として購入が可能となっています。電子ビームを用いるため、非常に高い空間精度でゾーンを描画することができ、ゾーン厚の薄い軟X線用であれば最外線幅15 nmのものが実現しています<sup>12)</sup>。高アスペクト比を有するFZPも作製されており、8 keVのX線において30 nmの集光が可能(3次回折光の利用)<sup>1)</sup>ですが、電子線リソグラフィ法において作製できるアスペクト比の限界は、プロセスの限界により20程度です。

非常に高いアスペクト比のゾーンを形成する方法として、Sputtered-Sliced法があります<sup>2,3)</sup>。金属ワイヤーなどの芯線を回転させながら重元素と軽元素の薄膜を交互に積層していきます。膜厚をFZPのゾーン幅として対応させ、だんだんと薄くなるように多層膜を積み上げていき、断面を切り出して望みの厚さに研磨することで作製されます。加工によるアスペクト比の制約がなく、芯線に重元素を用いれば0次光の遮蔽板として利用できるため、高エネルギー領域での集光素子として有用です。実際に100 keVで500 nmの集光を実現しています<sup>3)</sup>。しかしながら、積層のエラーが外側の層ほど大きく伝搬していくために外側のゾーンの形状誤差が大きくなってしまい集光サイズが制限されます。多層膜ラウエレンズは、平板基板に最外線幅から多層膜を積み上げることでこの影響を抑えています。1次元集光素子ですが、19.5 keVにおいて集光サイズ30 nmと、高い性能を示しています<sup>5)</sup>。

高い効率を持つFZPの開発も進められています。電子線リソグラフィにより4段のマルチステップ型FZPを作製し、12.4 keVで65%の回折効率が得られています<sup>13)</sup>。また、Sputtered-Sliced法においても、製膜の際に2種の蒸着源を混合し、その混合比を変えることによりマルチステップを実現し、50 keVのX線において50%の回折効率を得ています<sup>14)</sup>。1次元ですが、Kinofom型の作製も行われています<sup>15)</sup>。さらに、ゾーンを奥行き方向に傾ける事により、ブラッグ反射を利用して効率向上させるFZPも開発されています。前述の多層膜ラウエレンズも1 mrad程度傾ける事により44%の効率を実現しています<sup>5)</sup>。高次回折光の効率を上げることのできるVolume zone plateの開発も行われています<sup>16)</sup>。

### 3.2 屈折レンズ

X線屈折レンズは、可視光で使われるレンズと同様に、X線が媒質を進むときの屈折率( $n=1-\delta+i\beta$ )の変化を利用して、X線波面やその進行方向を制御する光学素子です。可視光線の振動電場に対しては媒質中のイオンの応答が有り、これを反映して屈折率は1よりも大きくなります。一方、周波数の高いX線の振動電場に対しては、媒質中の負電荷の電子だけが応答するため屈折率は1よ

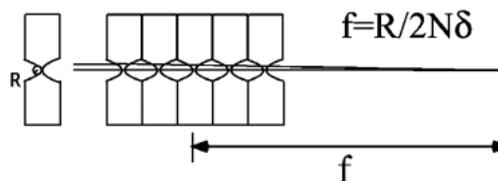


Fig. 6 Schematic diagram of x-ray refractive lens.

りも僅かに小さくなります。このためX線を集めるには、可視光の場合の凸レンズと違って、凹レンズが必要とされます。

屈折の法則は、可視光でもX線でも全く一緒にSnellの法則に従います。式で書くと、

$$\Delta\theta = \delta / \tan \theta \quad (9)$$

となります。ここで屈折率の実部の1との差を $\delta$ 、光軸とレンズ表面のなす角を $\theta$ と置いています。上の式は、直入射( $\theta=90^\circ$ )だと屈折は起こらず、斜入射にすればするほど大きく屈曲される事を示しています。この効果を利用してX線プリズム等も作れます<sup>17)</sup>。

1枚のX線屈折レンズの場合、理想的なレンズの表面形状は最小作用の原理(フェルマーの原理)により正確に解け、回転楕円面となり、平行光を単一焦点に集光します。 $N\delta \ll 1$ の場合は放物面形状が十分良い近似となっているため、通常は放物面形状の物が製作されます。レンズの模式図をFig. 6に示します。実際の形状は放物面ですが、レンズ近軸の形状は曲率半径Rの球面と近似出来ます。焦点距離fは、このRを使うと簡単に表現できて、以下の式に従います。

$$f = R / 2N\delta \quad (10)$$

一個のレンズピースでの屈折は $\mu\text{rad}$ のオーダーと非常に小さい角度です。実用的なレンズには、開口100ミクロン以上、1 m以下の焦点距離が必要と考えられますので、通常 $N=100$ 個程のレンズピースを重ね合わせて使用します。可視光ではコンタクトレンズのように、厚さ100ミクロン以下の極薄レンズまで作れて、目の中に納まっていますが、X線用の屈折レンズは1枚で作るのは難しく、厚くてかさ張ってしまいます。また、実験の便利を考えると、10 cm程度まで焦点距離を短くしたい所ですが、レンズピース数Nを増やすか曲率半径Rを小さくする必要があります。

多数のレンズピースを重ねると、レンズ材質による吸収が効いてX線の透過率が減少します。放物面形状レンズでは、軸から外れるに従い顕著にレンズ材質の厚みが増して、X線の透過率が減少します。どんなレンズ材質を選んでもこの効果で開口が制限されてしまいます。ガラスや

プラスチック等の可視光レンズが透明で光の吸収を起こさないのとは大違いです。そこで、X線屈折レンズの設計では $\delta/\beta$ が最大になる様、レンズ材質やX線エネルギーを選びます。ここで、 $\beta$ は屈折率の虚部を表します。 $\delta$ は原子番号 $Z$ の2乗に比例し、光電効果による $\beta$ は原子番号 $Z$ のほぼ5乗に比例します<sup>18)</sup>。このため $\delta/\beta$ は、各元素で特有の値を示し、原子番号 $Z$ が小さい軽元素を用いた方が大きくなります。X線エネルギーについては、 $\delta$ はX線エネルギーの2乗に逆比例するのに対して、光電効果による $\beta$ はX線エネルギーのほぼ3.5乗に逆比例します<sup>18)</sup>。このため、レンズ開口を大きくするには、非弾性散乱があまり利かない範囲内なるべく高いX線エネルギーで使うべきです。ベリリウムでは15 keV以上、アルミニウムでは50 keV強で、非弾性散乱やコンプトン散乱による寄与が上回るようになります。これより下のエネルギーで使う事が望ましい事になります。

歴史的には、最初に原子番号13のアルミニウムが集光に使われました。アルミニウムの場合、切削法で作るとレンズ表面に切削跡が残ります、集光性能が上がりません。このため、現在では純アルミニウムを用いてプレス法で整形される場合が多くなっています。純アルミニウムは非常に柔らかいため加工性が良く、重元素の濃度が低いため透過率が高いという特徴があります。

純アルミニウムのプレス加工によりX線屈折レンズが開発されています<sup>6)</sup>。作成されたレンズ素子の断面図をFig. 7に示します。アルミニウムの円板中央に、上下両方向から放物面形状の窪みの加工を行い、最低肉厚が15ミクロンのレンズピースが実現されています。表面の形状は、RMSで1ミクロン以下が実現されています。ただし、内部の密度ムラは、製作後にX線を使って調べる以外に方法がないのが実情です。焦点距離によって、適当な枚数を選んで一直線に並べられます。18 keVのX線を集光し、焦点距離約0.8 m、1.5ミクロンの2次元集光ビームが得られています<sup>6)</sup>。実測はされていませんが、透過率は中心で26%程度と考えられ、この1/eに落ちるまでを有効開口とすると100ミクロン程度になります。2つの放物面からなる孔をニッケル板に開けた1次元レンズも高エネルギーX線の集光用に作られ、212 keVのX線を、5ミクロン程度に集光させています<sup>19)</sup>。原子番号4のベリリウムは原子番号が小さく固体で安定で、 $\delta/\beta$ を大きくするには最適な素材です。しかし、非常に硬く、粉には深刻な毒性があるため加工には注意が必要です。また、均一性の高い素材の開発が必要です。ベリリウムの切削加工によるX線屈折レンズも幾つかのグループで開発されています。12 keVで450ミクロン（FWHM）の視野が実現されています。1.1ミクロンの集光サイズも報告されています<sup>20)</sup>。

シリコン結晶表面への半導体微細加工技術によって、さらに形状精度の高い1次元屈折レンズ素子も製作されています。一定の断面形状を奥行き方向にエッチングで掘り

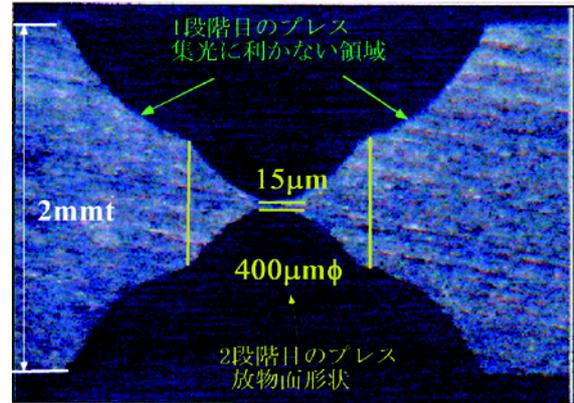


Fig. 7 Cross-section of a piece of x-ray refractive lens.

込んで、1次元屈折レンズを実現しています。曲率半径が2ミクロンで近似される放物面二つからなる孔（奥行き3ミクロン）を一枚の基板に100個並べて、21 keVでの焦点距離10.7 mmを実現しています。この素子を直交する二軸に用いる事で、47 nm × 55 nmのサイズの集光ビームが実現されています（Fig. 2の概念図を参照してください<sup>8)</sup>）。形状精度は大変優れている半面、開口が大変小さいので、大きくする工夫が必要でしょう。

## 4. X線集光ビームの取り扱い

### 4.1 どのように設計すればよいか

集光ビーム光学系を設計する場合、前述のように遠くにある小さい光源を絞る、つまり(4)式より決まる照明光の空間コヒーレント長を大きくするということになります。空間コヒーレント長より集光素子の開口径が決まり、焦点距離と使用波長を決めれば集光素子の仕様や理論集光サイズを決定できます。例えばSPring-8の標準アンジュレーター光源の場合、エネルギー10 keVにおける光源の垂直方向の大きさ（半値幅）は16ミクロン程度です。ビームラインの伝搬長（光源から集光素子までの距離）を50 mをすると空間コヒーレント長 $2r_{coh}$ は470ミクロン程度（(4)式の $D=0.61$ ）となるので、開口の大きさがその程度となる集光素子が適しています。その集光素子の焦点距離が50 mmである場合、幾何学的集光サイズは16 nmとなります。このときの回折限界も(2)式より16 nmなので、(3)式より23 nmの集光サイズが期待されます。空間コヒーレント長より大きな集光素子を用意して、集光強度を大きくする考え方もあります。このように集光素子と照明光とのマッチングを考えることが重要です。

偏向電磁石光源の場合や水平集光の場合など、光源のサイズが大きいと集光サイズを小さくすることが困難です。このような場合にはスリット又はピンホールを仮光源として用いると効果的です。設置する位置と開口サイズで空間

コヒーレンスと強度を制御できます。当然、集光素子よりなるべく遠くに設置する方が強度の損失も小さく縮小率も稼げます。一方、仮光源の位置が集光素子に近いと、(1)式より集光位置が焦点距離より下流側にずれます。特にスリットを使用する場合は、直交する方向との集光位置の違い(非点収差)が生じるので注意が必要です。開口径は通常数 $\sim$ 数10ミクロン程度のものが用いられますが、光学ハッチ内のスリットを利用することも可能です。仮光源の実際の開口径を把握するのは困難ですが、画像検出器を十分遠方に設置できれば、開口のフラウンホーファー回折像を観察する事により開口サイズを見積もることができます。

集光素子への入射光を形成するに当たり、光路上に何もない状態が理想的なのですが、実際のビームラインは分光器や窓材、ミラー等が光路上に挿入されています。それらの形状や振動などの不均一性が集光素子への入射光の波面を乱す場合があります。波面の乱れは角度誤差となり、2章で示したようにそれが( $d/f$ =実際の集光サイズ/焦点距離)より大きくなると、集光サイズへの影響が大きくなってきます。焦点距離50 mmで100 nmの集光サイズを考える場合、2  $\mu$ radの角度誤差を考慮すべきであり、各コンポーネントによる角度乱れを把握し、抑えることが重要となります。

集光素子の種類やスペックの選択も重要です。集光サイズ重視なのか、明るさ重視なのか、エネルギーは固定か、等を考慮しなければなりません。市販のX線集光素子は一般的に高価であり、予算の制約もあるでしょう。使用目的による制約や試料による制約(ワーキングディスタンス等)もあります。例えばFZPなどはゾーン厚を薄くした場合に効率が低くなりますが、直径を大きくすることで、結果として得られる集光ビームをより小さく明るくするという光学設計も可能です。さらに、放射光光源は通常垂直方向と水平方向のパラメーターが大きく異なります。2次元集光の場合は各方向で独立した光学設計をする必要

があります。

#### 4.2 どのように調整, 評価すればよいか

集光ビームを形成, 評価するプロセスとして, ①入射光に対する開口面の角度を調整する。②集光位置を探す。③集光サイズを調べる。という手順に分けることができます。この手順を繰り返すことにより, 集光素子の入射光に対する角度を適正に“追い込んで”いきます。100 nmを下回る集光サイズにおいては, これらの調整, 評価にも高い精度が必要となってきます。

まず①の角度調整ですが, 集光素子が結像性能を有する場合, 前述のように多少の角度ずれがあっても集光サイズに“ボケ”は生じません。FZPの場合は入射光に対して見目で垂直に置く程度で十分です。ただし大きく傾けると, 見かけの直径, 見かけの最外線幅が小さくなるために焦点距離が短くなり非点収差を生じます。この性質を利用し, 入射光起因の非点収差補正を行うこともできます。約6度傾けることにより見かけの半径が $r_n \cos 6^\circ$ となり, (6)式より焦点距離を1%短くできます。屈折レンズも結像性能を持ちますが, レンズピースが多い場合は, 効率, 収差の問題から高い精度での角度調整(数秒角 $\sim$ 数十秒角)が要求されます。ミラー等, 結像性能がない場合はサブ秒角での調整が必要となり, 調整の手順, 手間ともに大変になります。

次に②の集光位置探しです。集光位置を探すのは Fig. 8(a)に示すようなフォーコートテストが便利です。まず, だいたいの集光位置(設計値)にナイフエッジを置き, 十分下流に画像検出器を設置します。ビームがナイフエッジにかかっていない場合は, 画像検出器によって集光素子の開口形状(開口瞳の共役像)が映し出されます。ナイフエッジが集光点より下流にあるときにナイフエッジを上から下へ動かすと, 共役像は上から下へ欠けていきます(青矢印)。このように, ナ이프エッジを動かしたときの共役像の変化

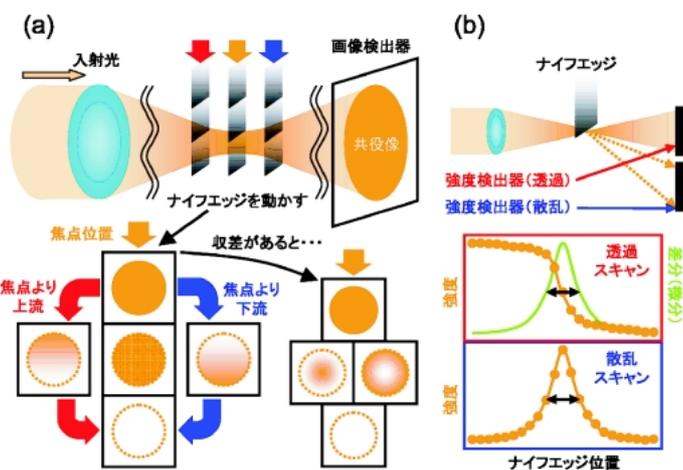


Fig. 8 Foucault test and knife-edge scanning method for focusing evaluation.

を観察することにより、ナイフエッジの集光点に対する位置を推定できます。集光点の焦点深度内にナイフエッジがある場合、共役像は均等に暗くなりますが、主に集光素子の角度ズレや形状誤差等の収差がある場合、例えば球面収差がある場合は、共役像は中央や外側から欠けたりします。ミラー調整の場合などは①の角度ずれが球面収差として現れるため、この欠け具合を利用してアライメントの“追い込み”をしていきます。ただし、集光素子の形状誤差が非常に大きい場合や入射光の波面が非常に乱れている場合（空間コヒーレンスは十分にある）は、共役像はスペckルパターンとなってしまう、ナイフエッジを動かしてもランダムに欠けるため注意が必要です。

③の集光サイズ評価は、一般的にナイフエッジスキャン法が用いられます。集光点断面をナイフエッジで走査し、そのときの透過強度変化を微分することで集光サイズを評価します（Fig. 8(b)）。当然、ナイフエッジには集光サイズに対して十分鋭い物が要求され、駆動ステージにも同様の精度が要求されます。硬 X 線領域では透過率も考慮する必要があります。20 keV 以下であれば、圧延した金ワイヤー（直径50~300ミクロン）が便利です。透過強度のエッジスキャン法ではデータの差分（微分）をとる必要があるため、エッジスキャンの走査ステップを細かくすれば精密な集光サイズが得られるわけではありません。微分の統計量が不足して定量性が損なわれ、再現性も低下する場合があります。集光ビームの強度にもよりますが、予想される集光サイズに対して5~10分割になる程度の走査ステップが望ましいでしょう。また、強度検出器をわずかに軸外へ設置し、透過強度ではなく散乱強度を検出する方法も有効です。ナイフエッジでの散乱領域と検出器のアクセプタンスを考慮すると nm オーダーでのプローブ形成も可能であり、データを微分する必要がないため、統計精度の高い集光サイズ評価が可能です<sup>2)</sup>。高エネルギー領域ではナイフエッジからの蛍光を利用する方法が便利です。100 nm 以下での集光サイズ評価においては測定系の誤差も無視できないため、再現性も重要となります。複数回測定を行い、測定のばらつきを調べることも非常に重要です。

#### 4.3 その他の考えるべき点

集光サイズの向上に伴い、これまで述べてきた、光学素子、光源、アライメントの他に考慮すべき重要な問題が多くあります。ここではそれらの問題について言及します。

集光ビームを試料位置に正確に当てるにはどうしたらよいでしょうか？ 調べたい場所に特徴的な性質（元素や密度が異なる）がある場合は、その特徴を検出できる信号（透過強度、散乱強度、蛍光強度）をモニターすることにより探すことができますが、不可能な場合や照射損傷が心配な場合は光学顕微鏡を用いると便利です。クロスワイヤー等の標準試料を走査して集光ビームに対する空間原点を求め、光学顕微鏡をその空間原点へ移動できるようにし

ます。この移動が常に一定であれば、光学顕微鏡で探した位置に正確に X 線を当てることができます。また、試料をマウントし移動させるステージですが、並進ステージの位置決め精度、直進性、回転ステージの軸ぶれ精度も集光サイズに比べて十分精度の高いものを使用することが必要です。最近では高精度のピエゾステージを利用することが可能ですが、市販のパルスモーター駆動の並進ステージでも注意して使用すれば高い精度を出すことが可能です<sup>21)</sup>。

振動やドリフトにも注意する必要があります。機械の振動はもちろん、ハッチ内の音源（ポンプや冷却ファン、冷凍機、その他駆動音等）に気を付ければ、振動をかなり低減させることが可能です。しかし、ドリフト（長時間での位置変動）はかなり厄介です。主に熱変動に起因して生じるため、ハッチ内の温度制御が重要となります。例えばステンレスの場合、熱膨張係数が  $1.7 \times 10^{-5}/^{\circ}\text{C}$  (SUS304) であるので、10 cm のパーツの熱膨張を 100 nm 以下に抑えるためには  $0.1^{\circ}\text{C}$  以下の温度制御が必要です。ハッチ内の熱対流は極力抑える必要があるため、空調機は使用しない方が望ましく、熱源（モータードライバ、モニター、照明、測定機器）、冷却ファン等の対流源にも対策を行う必要がある場合もあります。また、アクチュエータの発熱は非常に深刻に影響します。2次元スキャンでは、スキャン開始からステージが熱平衡に達するまでの間にかなりの試料ドリフト（ミクロン程度）が生じます。アクチュエータに常に負荷をかけておくと、駆動時の熱変動を抑えられて効果がある場合があります。

個々の移動ステージが良くても、全体の構成として、剛性が不足していると振動やドリフトの影響を受けやすくなります。特に光学素子と試料のステージ構成について相対的な安定性が要求されます。微細標準試料を実際に集光ビームで走査してみるとドリフトや振動の影響がわかります。速度等の条件を変えて走査してみると原因が特定できる場合もあります。また、原因が実験ハッチ内ではなく光学ハッチ内にある場合もあります。分光器冷却の振動による影響にも注意が必要です。ただし、蓄積リングの電子ビーム軌道変動等、光源起因による影響は通常ほとんどないでしょう。

集光サイズの経年変化（通常は悪化）が見られる場合があります。原因としては、輸送系の劣化による入射波面の乱れと集光素子自身の劣化が考えられます。輸送系の劣化として最も多いのは分光器の汚れと窓材（特にカプトン）の焼き付きです。モノクロ結晶は定期的な洗浄（UV オゾンアッシング等）、窓材は定期的な交換を行うと良いでしょう。光路中のイオンチェンバー等は大气使用として窓材を貼らない等の対策も効果があります。また、ベリリウム窓は研磨が良くても内部にボイドが存在し、波面を乱す場合があるので注意が必要です。集光素子自体の劣化も問題になります。汚れや傷にも十分注意する必要があります。熱負荷によっては冷却を考える必要もあるかもしれません。

FZP の場合はある程度の照射量で破損するという報告があります。原因は現在のところ不明ですが、基板の応力変化が影響するという議論もあります。不活性ガス中で使用すると損傷が低減するという報告もあります。

## 5. 今後の展望

さて、集光ビームサイズはどこまで小さくなるのでしょうか？ 可視光領域では、波長より小さい集光サイズが実現されています。(2)式より X 線領域でも波長サイズの集光が、すなわちオングストローム以下の集光サイズが原理的に可能です。このためにはサイズが大きくなり、焦点距離の短い集光素子が必要となります。現在、X 線の集光サイズは 10 nm に近づきつつありますが、それでも波長の 100 倍程度です。現在、集光素子の回折限界を決めている主な要因は加工精度ですが、この精度の向上に伴って集光サイズが小さくなり続けていくのでしょうか？

回折限界の小さい光学素子ほど X 線を大きく曲げる必要があります。その曲げ角は X 線の屈折率によって制限されます。このため、X 線を一度だけ曲げるような集光素子の場合、その集光サイズは 10 nm 近辺に限界があります<sup>22)</sup>。また FZP の場合では、厚いゾーンの最外線幅が nm オーダーになると回折効率が低下する問題もあります<sup>16)</sup>。この問題を克服するために、多素子を組み合わせる集光素子や、前述の多層膜ラウエレンズ<sup>5)</sup>、Volume zone plate<sup>16)</sup>等、新しい光学素子が開発されてきています。近い将来 nm レベルの回折限界を達成する集光素子が登場するでしょう。

光学素子の発展に伴い光源も重要となってきます。本稿で述べてきたように、光源の性能を十分に活かし有効利用すれば、第 3 世代光源であっても nm レベルの集光サイズは十分に可能となるでしょう。また、光学系、光学手法の発展も期待できます。可視光領域において超解像技術として用いられている近接場光学系、共焦点光学系の応用も十分期待できます。

第 4 世代放射光光源ではコヒーレントな極短パルス光が実現されます。ビームサイズが空間コヒーレント長に近づき、パルス幅が時間コヒーレント長に近づくと、X 線は単一のモードの光に近づきます。このような光源を集光する事により、大強度で、nm、ps スケールの集光ビームが得られます。1 パルスによる回折データ取得が可能となり、物質内部のダイナミクスをナノスケールで観測できる

ようになるでしょう。また、非線形効果等の利用により新しいサイエンスが登場してくるかもしれません。

以上、X 線集光サイズは nm の時代を迎えようとしています。利用は広がりつつありますが、もっと多くの人に使用していただき、新しいサイエンスを切り開くツールとして役立つことが最も重要です。読者の皆様も興味がありましたら是非この技術の有用性、可能性を体感してみたいかたがでしょうか？

## お願い

本シリーズでは、初心者ユーザが陥りやすい誤りやビームライン担当者の貴重な経験談を募集しております。最終回でご紹介したいと考えております。また、本シリーズに関してご意見・ご要望がございましたら編集担当 (SPRING-8 JASRI 大橋治彦/hohashi@spring8.or.jp, KEK-PF 平野馨一/keiichi.hirano@kek.jp) までどうぞお便りください。

## 参考文献

- 1) Y. Suzuki et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 1994 (2005).
- 2) N. Kamijo et al.: J. Synchrotron Rad. **9**, 182 (2002).
- 3) N. Kamijo et al., Rev. Sci. Instrum. **74**, 5101 (2003).
- 4) C. David et al.: Rev. Sci. Instrum. **70**, 4168 (1999).
- 5) H. C. Kang et al.: Phys. Rev. Lett. **96**, 127401 (2006).
- 6) Y. Kohmura et al.: SPRING-8 User Experimental Report R03A47XU-0010N, (2003).
- 7) B. Lengeler et al.: Appl. Phys. Lett. **74**, 3924 (1999).
- 8) C. G. Schroer et al.: Proc. 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, IPAP Conf. Series **7**, 94 (2006).
- 9) H. Mimura et al.: Proc. 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, IPAP Conf. Series **7**, 100 (2006).
- 10) A. Takeuchi et al.: Nucl. Instrum. Meths. **A 467-468**, 302 (2001).
- 11) D. H. Bilderback et al.: Science **263**, 201 (1994).
- 12) W. Chao et al.: Nature **435**, 1210 (2005).
- 13) B. Nohammer et al.: J. Phys. IV **104**, 103 (2003).
- 14) S. Tamura et al.: Vacuum (Elsevier) **80**, 823 (2006).
- 15) V. Nazmov et al.: Nucl. Instrum. Meths. **B 217**, 409 (2004).
- 16) S. Rehbein and G. Schneider: Proc. 8th Int. Conf. X-ray Microscopy, IPAP Conf. Series **7**, 103 (2006).
- 17) Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys. **41**, L1019 (2002).
- 18) X 線回折・散乱技術 (上), 菊田惺志, (東京大学出版社, 1992).
- 19) V. Nazmov et al.: Proc. 8th Int. Conf. SRI, AIP Conf. Proc. **705**, 752 (2004).
- 20) B. Lengeler et al.: Proc. 8th Int. Conf. SRI, AIP Conf. Proc. **705**, 748 (2004).
- 21) Y. Suzuki et al.: Proc. SPIE **4499**, 74 (2001).
- 22) Y. Suzuki: Jpn. J. Appl. Phys. **43**, 7311 (2004).