

平成 22 年 5 月 21 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20760018

研究課題名 (和文) 新型合わせ鏡式サブ 100nm 解像の軟 X 線実用顕微対物鏡の開発

研究課題名 (英文) Development of a practical two-mirror objective with sub-100 nm spatial resolution for soft-X-ray microscopy

研究代表者

豊田 光紀 (TOYODA MITSUNORI)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：40375168

研究成果の概要 (和文)：

波長 2-20nm の光を用いる軟 X 線顕微鏡では、空間分解能数 10nm で生きたままの生体試料の元素分布像観察が期待される。本研究では、独自に見出した非球面光学系で期待される高い実用性を軟 X 線領域で実証するため、波長 13nm の軟 X 線で動作し、サブ 100nm の空間分解能を持つ新型対物鏡を試作し、結像特性を検証した。初めに Mo/Si 多層膜を 2 種の非球面基板に成膜し、ミラーホルダに組み込み対物鏡を構成した。フィゾー干渉計により光軸調整を行った結果、対物鏡で生ずる波面収差は 10.6nm rms を得た。

研究成果の概要 (英文)：

A soft-X-ray microscope is expected as a novel tool to observe a high definition image of a living tissue with a spatial resolution better than 100 nm. In this study, we develop novel mirror optics for soft-X-ray microscopy. The optics consisted of two aspherical mirrors with a Mo/Si multilayer coating, which was optimized to have a maximum reflectivity at a wavelength of 13 nm. A wave aberration of the optics was corrected by adjusting the mirror misalignments, and we confirmed a minimum value of 10.6 nm rms.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,200,000	600,000	2,800,000
2009 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	960,000	4,360,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 薄膜・表面界面物性

キーワード：軟 X 線、顕微鏡、対物鏡、非球面、多層膜、光学設計、収差論

## 1. 研究開始当初の背景

波長 2-20nm の光を用いる軟 X 線顕微鏡では、空間分解能数 10nm で生きたままの生体試料の元素分布像観察が期待される。特に、軟 X 線多層膜鏡で構成したシュワルツシルト対物鏡は、フレネル輪帯の回折レンズ方式に比べて格段に明るいために世界的に開発が進められている。研究代表者は、2000 年に世界に先駆けて多層膜シュワルツシルト対物鏡を用いた軟 X 線蛍光顕微鏡を開発した。しかし、2つの球面鏡で構成したシュワルツシルト対物鏡は、数 100nm のミラー設置誤差(偏心)で像が容易に劣化する欠点も併せ持つ。例えば、波長 13nm の軟 X 線領域で動作する顕微鏡の設計例では、偏心許容量は 300nm 程度となる。この程度の偏心は光学系の 1°C の温度変化による熱膨張で容易に発生する。このため、従来光学系は、温度変化や振動等の外乱に弱く、大きな偏心感度は実用的な軟 X 線顕微鏡を実現する上で大きな障害となってきた。

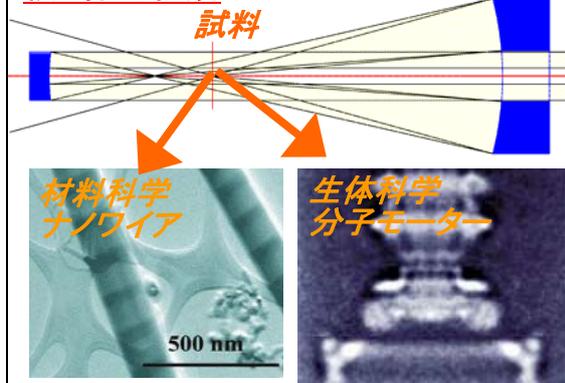
研究代表者は、実験室環境で安定した結像性能が得られる、外乱に強い新型光学系の開発が必要であると確信し、反射面に非球面を導入し、設置誤差に鈍感な実用光学系を大域的に探索できる収差論による解析的設計手法を独自に開発した。本手法を用いて、2面非球面鏡の球面収差およびコマ収差を補正したアプラナート解を大域的にもれなく探索した結果、偏心の影響を緩和できる 9 種の新規解を見出した。得られた新規解の中、2つの非球面凹面鏡で構成する“合わせ鏡”式対物鏡では、ミラーの設置誤差の影響を従来系に比べ最大で 1/20 に緩和できる。実験の容易な可視域で行った原理検証実験では、非球面鏡で構成した合わせ鏡対物鏡は、従来系と比べ偏心感度が大幅に低減することを確認できた。

## 2. 研究の目的

代表者は、上記の可視域の研究を軟 X 線領域に発展させ、偏心外乱に強い“合わせ鏡”方式を、旧来のシュワルツシルト光学系を置き換えうる、高い実用性のナノ解像光学系と位置づけたいと考えている。本研究では、可視光実験に用いた形状精度 2nm 程度の高精度非球面石英基板を利用して波長 13nm の軟 X 線で高い空間分解能を持つ“合わせ鏡”非球面对物鏡を試作し、その結像特性を検証することを目的とした。

## 3. 研究の方法

### ミラーの設置誤差に強い“合わせ鏡” 軟 X 線対物鏡



外乱下の実験室環境でサブ 100nm  
分解能の元素分布像を安定観察できる。

波長 13nm の軟 X 線領域で動作する合わせ鏡対物鏡(上図)を実現するため、以下の 3 つの項目について研究を行った。

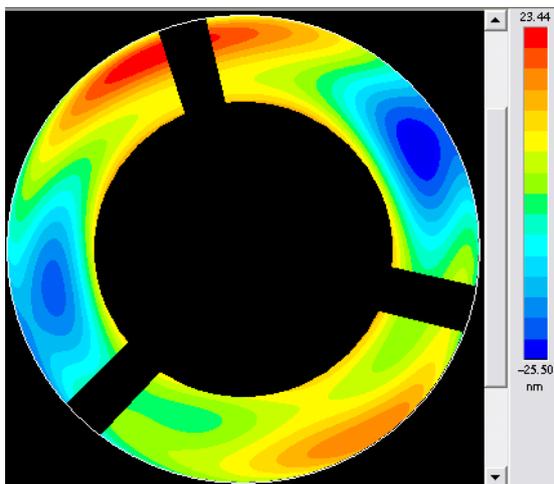
- (1) 現有の 2 種の精密非球面基板の表面に波長 13nm 用 Mo/Si 多層膜をイオンビームスパッタにより成膜し“合わせ鏡”用多層膜軟 X 線ミラーを作製する。
- (2) 2 種の凹面鏡を無歪で保持し、かつ 100nm の位置精度で精密アライメントできる合わせ鏡対物鏡用のミラーホルダを開発する。
- (3) 開発した、多層膜ミラーとホルダを組み合わせ、新型対物鏡を構成する。レーザー干渉計を用いた透過波面の干渉計測により、光軸調整を行い、高い空間分解能で解像できる軟 X 線用対物鏡を開発する。

## 4. 研究成果

現有のイオンビームスパッタ装置により曲率半径が 49.6mm および 81.4mm の 2 種の凹面基板表面に波長 13.4nm 用の Mo/Si 多層膜を成膜した。放射光(KEK-PF, BL-12A)を用いて反射率測定を行った結果、ミラーの有効径内(最大直径 40mm)でピーク反射率が 50%以上であることを確認した。

新型対物鏡用のミラーホルダは多元研技術室と共同で開発した。アルミ合金製の板バネによる 3 点支持により多層膜鏡を保持することで、温度変化等で変化する保持変形を極小化した。開発したミラーホルダに多層膜鏡を組み込み、構成した新型対物鏡を現有のフィゾー型干渉計に組み込み波面収差の計測を行った。ミラーの傾き等で変化する波面収

差の実測値をもとに最小化を行う調整法を開発した。光軸調整の結果、波面収差を10.6nm rms程度にまで低減することができた。光軸上の物体に対して得られた波面収差を次図に示す。



次に、波面収差の実測値をゼルニケ多項式により直交展開し、波面収差の成分分析を行った。その結果、収差の主成分は非点収差項( $z_5$ ,  $z_6$ )であり、その値は9.2nmであることが分かった。一方でミラーの偏心に比例して発生するコマ収差は1nm以下で殆ど観察されず、新設計に期待される偏心感度の大幅な低減が実証できた。実測した非点収差は物点高に対して殆ど変化しないことから、その起源は非球面鏡の形状誤差に起因するものと推定される。収差の一層の低減には、より形状精度の高い非球面基板が必要となる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計5件)

1. T. Ejima, F. Ishida, H. Murata, M. Toyoda, T. Harada, T. Tsuru, T. Hatano, M. Yanagihara, M. Yamamoto, Haruo Mizutani, "High throughput and wide field of view EUV microscope for blur-free one-shot imaging of living organisms," *Opt. Exp.* **18** (2010) 7203-7209. (査読有)
2. M. Toyoda, M. Yanagihara, "Design study of two-aspherical-mirror anastigmat with reduced sensitivities to misalignments: correction of higher-order aberrations," *J. Phys. Conf. Series* **186** (2009) 012076. (査読有)
3. K. Motomura, L. Foucar, A. Czasch, N. Saito, O. Jagutzki, H. Schmidt-Boecking, R. Doerner, X.-J. Liu, H. Fukuzawa, G. Pruemper, K. Ueda, M. Okunishi, K. Shimada, T. Harada, M. Toyoda, M. Yanagihara, M. Yamamoto, H. Iwayama, K. Nagaya, M. Yao, A. Rudenko, J. Ullrich, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, "Multi-coincidence ion detection system for EUV-FEL fragmentation experiments at Spring-8," *Nucl. Instrum. Methods A* **606** (2009) 770-773. (査読有)
4. H. Iwayama, K. Nagaya, M. Yao, H. Fukuzawa, X.-J. Liu, G. Pruemper, M. Okunishi, K. Shimada, K. Ueda, T. Harada, M. Toyoda, M. Yanagihara, M. Yamamoto, K. Motomura, N. Saito, A. Rudenko, J. Ullrich, L. Foucar, A. Czasch, R. Doerner, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, "Frustration of direct photoionization of Ar clusters in intense extreme ultraviolet pulses from a free electron laser," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **42** (2009). (査読有)
5. H. Fukuzawa, X.-J. Liu, G. Pruemper, M. Okunishi, K. Shimada, K. Ueda, T. Harada, M. Toyoda, M. Yanagihara, M. Yamamoto, H. Iwayama, K. Nagaya, M. Yao, K. Motomura, N. Saito, A. Rudenko, J. Ullrich, L. Foucar, A. Czasch, R. Doerner, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, "Dead-time-free ion momentum spectroscopy of multiple ionization of Xe clusters irradiated by euv free-electron laser pulses," *Phys. Rev. A* **79** (2009) 031201-03201. (査読有)

- [学会発表] (計14件)
1. 豊田光紀, 広視野と高倍率を両立した軟X線多層膜顕微鏡の開発, 第10回X線結像光学シンポジウム, つくば市, (2009.11.6-2009.11.7)
  2. 豊田光紀, 神野貴義, 原田哲男, 羽多野忠, 柳原美広, 軟X線用超高倍率顕微鏡の開発, 第34回光学シンポジウム, 東京, (2009.7.2-2009.7.3)
  3. 江島丈雄, 中村芳雅, 豊田光紀, 原田哲男, 津留俊英, 羽多野忠, 柳原美広, 山本正樹, LPP光源を用いた透過型X線反射多層膜顕微鏡TXM3, 第22回日本放射光学学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 東京, (2009.1.9-2009.1.12)
  4. 岩山 洋士, 永谷 清信, 八尾 誠, 福澤宏宣, X.-J. Liu, G. Pruemper, 奥西 み

- さき, 嶋田 浩三, 上田 潔, 原田 哲男, 豊田 光紀, 柳原 美広, 山本 正樹, 本村 浩治, 齋藤 則生, A. Rudenko, J. Ullrich, L. Fouca, A. Czasch, R. Doerner, 永園 充, 東谷 篤志, 矢橋 牧名, 石川 哲也, 大橋 治彦, 木村 洋昭, EUV-FEL光と運動量イメージングを用いたクラスター解離ダイナミクスの研究: クラスターサイズ依存性, 第22回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム, 東京, (2009.1.9-12)
5. 永谷 清信, 岩山 洋士, 八尾 誠, 福澤 宏宣, X.-J. Liu, G. Pruemper, 奥西 みさき, 嶋田 浩三, 上田 潔, 原田 哲男, 豊田 光紀, 柳原 美広, 山本 正樹, 本村 浩治, 齋藤 則生, A. Rudenko, J. Ullrich, L. Foucar, A. Czasch, R. Doerner, 永園 充, 東谷 篤志, 矢橋 牧名, 石川 哲也, 大橋 治彦, 木村 洋昭, EUV-FEL光と運動量イメージングを用いたクラスター解離ダイナミクスの研究: 光強度依存性, 第22回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム, 東京, (2009.1.9-12)
  6. 本村 浩治, 齋藤 則生, 福澤 宏宣, Liu XiaoJing, Pruemper Georg, 奥西 みさき, 嶋田 浩三, 上田 潔, 原田 哲男, 豊田 光紀, 柳原 美広, 山本 正樹, 岩山 洋士, 永谷 清信, 八尾 誠, Rudenko Artem, Ullrich Joachim, Foucar Lutz, Czasch Achim, Doerner Reinhard, 永園 充, 東谷 篤志, 矢橋 牧名, 石川 哲也, 大橋 治彦, 木村 洋昭, EUV-FEL利用実験に用いる多粒子同期計測システムの開発と評価, 第22回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム, 東京, (2009.1.9-12)
  7. 福澤 宏宣, Liu XiaoJing, Pruemper Georg, 奥西 みさき, 嶋田 浩三, 上田 潔, 原田 哲男, 豊田 光紀, 柳原 美広, 山本 正樹, 本村 浩治, 齋藤 則生, 岩山 洋士, 永谷 清信, 八尾 誠, Rudenko Artem, Ullrich Joachim, Foucar Lutz, Czasch Achim, Doerner Reinhard, 永園 充, 東谷 篤志, 矢橋 牧名, 石川 哲也, 大橋 治彦, 木村 洋昭, 極紫外自由電子レーザー照射によるN<sub>2</sub>およびO<sub>2</sub>分子多光子多重イオン化, 第22回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム, 東京, (2009.1.9-12)
  8. 原田哲男, 神野貴義, 豊田光紀, 羽多野忠, 山本正樹炭素の窓多層膜顕微鏡を目指した0.1%オーダー精度波長マッチング技術の開発, 第69回応用物理学会学術講演会講演奨励賞受賞記念講演, 春日井, (2008.9.2-2008.9.5)
  9. 豊田光紀, 山本正樹, 柳原美広, 直入射非球面鏡による広視野軟X線結像系, 第69回応用物理学会学術講演会X線結像光学の最前線, 春日井, (2008.9.2-2008.9.5)
  10. 豊田光紀, 原田哲男, 山本正樹, 柳原美広, 福澤宏宣, X. J. Liu, G. Prumper, 奥西みさき, 嶋田浩三, 上田 潔, 岩山洋士, 永谷清信, 八尾 誠, 本村幸治, 齋藤則生, A. Rudenko, J. Ullrich, L. Foucar, A. Czasch, R. Dornier, 石川顕一, 永園 充, 東谷篤志, 矢橋牧名, 田中隆次, 石川哲也, 大橋治彦, 木村洋昭, EUV自由電子レーザー集光用直入射光学系の開発, 第69回応用物理学会学術講演会, 春日井, (2008.9.2-2008.9.5)
  11. 江島丈雄, 中村芳雅, 豊田光紀, 原田哲男, 羽多野忠, 柳原美広, レーザープラズマ光源を用いた透過型 X線反射多層膜顕微鏡TXM3の開発3, 第69回応用物理学会学術講演会, 春日井, (2008.9.2-2008.9.5)
  12. G. Pruemper, H. Fukuzawa, X. J. Liu, M. Okunishi, K. Shimada, K. Ueda, T. Harada, M. Toyoda, M. Yanagihara, M. Yamamoto, N. Saito, K. Motomura, H. Iwayama, K. Nagaya, M. Yao, A. Rudenko, J. Ullrich, L. Foucar, A. Czasch, R. Doerner, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, R. Tanaka, H. Ohashi, H. Kimura, Multiple ionization of rare gas clusters using the EUV-FEL at SPring-8, 11th International Conference on Multiphoton Processes, Germany, Heidelberg, (2008.9.18-23)
  13. M. Toyoda, M. Yamamoto, M. Yanagihara, Analytical Designing of Two-Aspherical-Mirror Optics for Soft X-Ray Imaging, 9th International Conference on X-Ray Microscopy, Switzerland, Zurich, (2008.7.21-2008.7.25)
  14. T. Harada, T. Jinno, M. Toyoda, T. Hatano, M. Yamamoto, Exact Period Thickness Control of Soft X-ray Multilayers on Curved Substrates, 9th International Conference on X-Ray Microscopy, Switzerland, Zurich, (2008.7.21-2008.7.25)
- [産業財産権]  
○出願状況 (計2件)  
1. 名称: 反射型投影光学装置  
発明者: 豊田光紀  
権利者: 東北大学  
種類: 特許権  
番号: 特願 2008-220382

出願年月日：2008.8.28

国内外の別：国内

2. 名称：反射型投影光学装置

発明者：豊田光紀

権利者：東北大学

種類：特許権

番号：特願 2008-220382

出願年月日：2008.8.28

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.tagen.tohoku.ac.jp/modules/1aboratory/index.php?laboid=43>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

豊田 光紀 (TOYODA MITSUNORI)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：40375168