

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（開拓）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H05523・20K20444

研究課題名（和文）X線1nm集光への挑戦

研究課題名（英文）Development of 1 nm X-ray focusing system

研究代表者

三村 秀和（Mimura, Hidekazu）

東京大学・先端科学技術研究センター・教授

研究者番号：30362651

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 19,700,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、ミラーによるX線集光において、ミラー長の大幅な縮小というアイデアを導入し、最終的には究極の1nmサイズの集光を目標にした挑戦的な研究である。本研究期間において、焦点距離2mm、ミラー長2mmの高精度集光ミラーの開発に成功し、SPring-8において、2keVのX線を20nmに回折限界集光することに成功するとともに、10keVのX線では理論的の4nm以下に集光可能であることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来のX線ミラーのミラー長は報告されている中では20mmが最小である。本研究ではその1/10の2mm長のミラーの開発に成功した。光の集光においては焦点距離を短くすることで、理論的に誤差の影響を少なくすることができる。本研究における成果はミラーによるX線の極限集光の道を拓いたといえる。開発したミラーを用いれば、X線顕微鏡のシステムの超小型化も可能であり、多くのX線分析技術の性能向上に寄与することができる。

研究成果の概要（英文）：In this research, we introduced the idea of significant reduction in mirror length in X-ray focusing using mirrors, aiming for ultimate focusing down to a size of 1 nm. This was a challenging study. During the research period, we successfully developed a high-precision focusing mirror with a focal length of 2 mm and a mirror length of 2 mm. We also achieved diffraction-limited focusing of 20 nm for 2 keV X-rays at SPring-8, and confirmed that it is possible to focus X-rays below 4 nm theoretically for 10 keV X-rays.

研究分野：超精密加工、X線光学

キーワード：X線ミラー X線集光

## 1. 研究開始当初の背景

X線を用いると物質内の構造、化学状態、組成などの情報がわかるため、医学、生物学から材料科学分野までX線を利用する分析が行われている。X線分析の性能向上には、物質に照射するX線の高い強度が不可欠であることから、主として高輝度な放射光施設において先端的研究が行われてきた。21世紀に入り、SPRING-8やSACLAに代表される放射光施設およびX線自由電子レーザー施設において、可視領域のレーザーのように、ほぼ完全なコヒーレンスを持つX線の利用が可能となっている。

多くのX線分析技術においては、優れた光源だけでなく、高い品質のX線を取り扱う光学素子が必要となる。特にX線を集光する技術は、サンプルに照射するX線の強度を向上させるとともに、各分析技術に高い空間分解能を与える。回折型、屈折型、反射型のX線光学素子の中でも、反射型のX線ミラーは、高い集光効率と極めて小さいビームサイズを実現している。

2008年、多層膜X線集光ミラーに、波面計測と形状可変ミラーによる波面制御システムを組み合わせて、世界ではじめて10nmを下回る7nmサイズの集光が達成された。しかしながら、様々なX線分析システムにSub-10nmの集光システムの導入が期待されたが、実際は普及に至っていない。また、より小さなX線集光サイズを目指した研究も実施されていなかった。

## 2. 研究の目的

より小さなX線集光サイズを実現するためには、X線集光システムの高NA化が不可欠である。X線集光ミラーの場合、X線のミラーへの入射角度を大きくする必要があり、高い形状精度とミラーアライメント精度が求められる。さらに、多層膜X線ミラーの場合、良好な表面粗さであっても、反射X線の空間コヒーレンスの悪化が報告されている。これはX線が多層膜内を多重反射するためである。

1次反射を用いた場合のX線の入射角度は、多層膜の層間隔で決定されるため限界があるが、3次反射を利用することで入射角度の増大が可能である。そして、アライメント精度および空間コヒーレンスの悪化の集光への影響を小さくするために、従来のX線集光ミラーの20mm以上という長い焦点距離を極端に2mm程度に短くするアイデアに至った。そのため、ミラー長も極端に短い2mmのX線ミラーが必要である。この小型X線集光ミラーの特徴は以下の通りである。

1. 幾何光学的な集光サイズが小さくなる。
2. 形状誤差の集光サイズへの影響が小さくなる。
3. 多層膜反射時の空間コヒーレンス悪化の集光サイズへの影響が小さくなる。
4. ミラーアライメントの精度が大幅に緩和される。

本研究では、極限の1nmという集光サイズを理論的に実現可能な、長さ2mm、焦点距離2mmのX線ミラーの製造技術の開発を行うとともに、軟X線を用いての集光システムの開発を行うことを目的とした。

## 3. 研究の方法

本研究では、東京大学において小型集光ミラーの製造技術の開発を行い、SPRING-8BL25SUにおいて、2枚の小型ミラーを用いたKB集光システムを構築した。

小型集光ミラーは2mmという短さのため、高い空間分解能で形状修正を行う必要がある。そこで本研究では、差分成膜法を採用した。本手法では、ミラー直前に設置したスリットサイズを小さくすることで0.1mm程度まで空間分解能を向上できる。小型ミラーの形状修正には、形状測定が必要であるが、ミラーが小さいため白色干渉顕微鏡により高い精度での形状測定が容易に可能である。

SPRING-8における集光ミラーの開発では、KB(Kirkpatrick Baez)ミラーによる2keVの軟X線の集光システムを開発した。その際、タイコグラフィ法を採用することで、集光サイズの正確な評価を可能とするとともに、ミラーの形状誤差プロファイルの高精度な評価を可能とした。得られた形状誤差から、硬X線集光の場合を予測し将来的なX線の3nmレベルの集光が可能であるかを確認した。

## 4. 研究成果

### 4.1 小型X線集光ミラーの製造技術の開発

差分成膜法とは、ミラーなどの表面において、時間制御などの手法により、膜厚を変化させながら成膜を行い、形状誤差を修正する方法である。成膜法としては、成膜レートが安定しているマグネトロンスパッタ法が用いられる場合が多い。本研究では、所有するマグネトロンスパッタ装置の改造を行い、小型ミラーの形状修正を可能とした。

図1にミラー作製方法を示す。KBミラーによるX線集光は、ミラーの形状は大小かわらず楕円関数となる。2mmサイズの小型ミラーを作製するために、楕円の形状プロファイルに近い円筒

形状を円筒研磨で作製し、その後切り取ることで小型ミラーとした。その後、差分成膜法で形状修正を行った。形状測定には白色干渉顕微鏡を用いた。平面の参照面であるため湾曲形状の測定では、干渉縞が密になるため一部分しか測定できない。そこで、部分的に測定されたデータをつなぎ合わせるステッチングを行いミラー形状とした。差分成膜法においては、スパッタターゲットの近くに追加のスリットを入れ単位スポット成膜痕を小さくし、修正加工における空間分解能の向上を行った。本研究期間において、図2に示す長さ2mmと3.3mmの高精度な小型ミラーの作製を行った。小型ミラーはL字の形状となっている。細い部分の一部に高精度なミラーが作製されており、太い部分は保持部である。

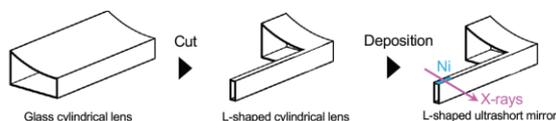


図1 小型ミラー作製プロセス

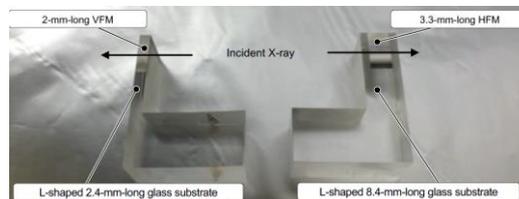


図2 作製した小型ミラー

#### 4.2 小型ミラーによるKB型集光システムの開発

SPring-8の軟X線ビームライン(BL25SU)に、小型KBミラーを用いた集光システムを構築した。2枚の小型ミラーによるアライメントユニットを設計、開発した。高精度なアライメントを実現するために、弾性ヒンジおよび精密アクチュエータから構成された角度調整機構を開発した。また、2枚のミラーの直角度はオートコリメータで行い、焦点距離の調整はアライメントユニットに搭載した2台の顕微鏡ユニットで行う。2枚のミラーを反射した軟X線像はCCDカメラにより測定する。

集光プロファイルの評価は、ナイフエッジスキャン法とタイコグラフィ法の2種類で行った。ナイフエッジスキャンの場合、エッジ形状の影響により測定される集光サイズは大きくなる。タイコグラフィの場合、サンプルをスキャンし得られる多数の回折・散乱像から位相回復法により集光プロファイルを正確に求めることができる。図3にその結果を示す。タイコグラフィの評価により2keVの軟X線の20nmサイズの集光を確認した。また、同時に求めることが可能な集光波面から計算されたミラーの形状誤差のプロファイルを図4に示す。白色干渉顕微鏡による評価結果と比較し良い一致を確認した。

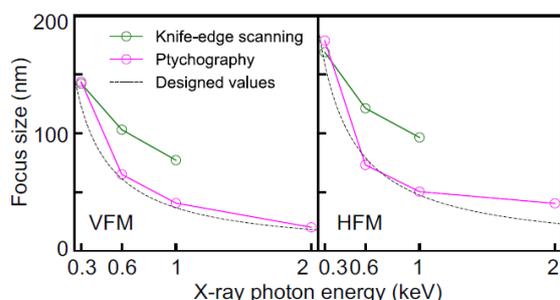


図3 軟X線集光サイズ

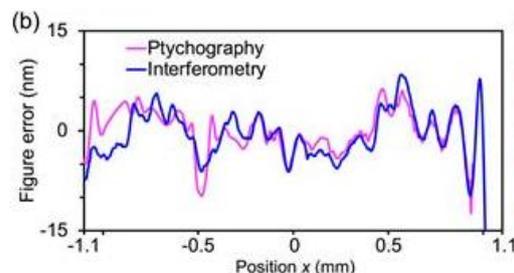


図4 2mm長ミラーの形状評価

#### 4.3 小型ミラーによる硬X線集光

軟X線による20nmサイズの軟X線集光を実現できたことから、タイコグラフィ法より得られた形状誤算プロファイルを利用し、10keVの硬X線の場合の集光プロファイルを計算により求めた。その結果を図5に示す。このように開発した小型ミラーにより3.8nmサイズの集光サイズとなった。形状誤差を改善する余地があるにもかかわらず、小型化の結果、非常に微小な集光サイズが得られることが分かる。

今後、更なる精度向上を進め、ミラー上に多層膜を施すことで硬X線の1nmレベルの集光が期待される。

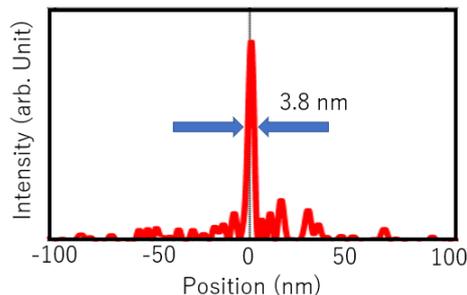


図5 10keVの場合の集光プロファイル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 1件／うちオープンアクセス 0件）

|  |                     |
|--|---------------------|
| 1. 著者名<br>Takenori Shimamura, Yoko Takeo, Takashi Kimura, Francois Perrin, Amparo Vivo; Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, Hidekazu Mimura | 4. 巻<br>94          |
| 2. 論文標題<br>Fabrication of ultrashort sub-meter-radius x-ray mirrors using dynamic stencil deposition with figure correction                                | 5. 発行年<br>2023年     |
| 3. 雑誌名<br>Review of Scientific Instruments   | 6. 最初と最後の頁<br>43102 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1063/5.0135367   | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する        |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Takenori Shimamura, Yoko Takeo, Takashi Kimura, Hirokazu Hashizume, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, and Hidekazu Mimura | 4. 巻<br>11492         |
| 2. 論文標題<br>Design of ultrashort Kirkpatrick-Baez mirror for soft x-ray nanofocusing  | 5. 発行年<br>2020年       |
| 3. 雑誌名<br>SPIE Proceedings   | 6. 最初と最後の頁<br>114920P |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1117/12.2569845  | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-             |

|   |                       |
|---|-----------------------|
| 1. 著者名<br>T. Shimamura, Y. Takeo, F. Moriya, T. Kimura, M. Shimura, Y. Senba, H. Kishimoto, H. Ohashi, K. Shimba, Y. Jimbo, H. Mimura | 4. 巻<br>12240         |
| 2. 論文標題<br>Design of soft x-ray fluorescence microscopy beyond 100-nm spatial resolution with ultrashort Kirkpatrick-Baez mirror      | 5. 発行年<br>2022年       |
| 3. 雑誌名<br>SPIE Proceedings  | 6. 最初と最後の頁<br>1224004 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1117/12.2632949   | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-             |

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件／うち国際学会 4件）

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>島村 勇徳, 竹尾 陽子, 木村 隆志, 仙波 泰徳, 岸本 輝, 大橋 治彦, 三村 秀和 |
| 2. 発表標題<br>超小型 KB ミラーを用いた軟 X 線 sub 50 nm 集光システムの開発        |
| 3. 学会等名<br>2021年度精密工学会秋季大会学術講演会                           |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takenori Shimamura, Yoko Takeo, Takashi Kimura, Hirokazu Hashizume, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, and Hidekazu Mimura            |
| 2. 発表標題<br>Design of ultrashort Kirkpatrick-Baez mirror for soft x-ray nanofocusing  |
| 3. 学会等名<br>Advances in Metrology for X-Ray and EUV Optics IX, Optical Engineering + Applications, SPIE Optics + Photonics 2020 Digital Forum, Online Only (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Takenori Shimamura, Yoko Takeo, Takashi Kimura, Yasunori Senba, Hikaru Kishimoto, Haruhiko Ohashi, and Hidekazu Mimura                                       |
| 2. 発表標題<br>Development of ultra-short Kirkpatrick-Baez mirror system for nano-focusing of soft X-rays   |
| 3. 学会等名<br>XOPT2-01, XOPT2020 (International Conference on X-ray Optics and Application), OPIC2020 (OPTICS & PHOTONICS International Congress 2020), Online Only (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2020年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>島村 勇徳, 竹尾 陽子, 木村 隆志, 仙波 泰徳, 岸本 輝, 大橋 治彦, 三村 秀和 |
| 2. 発表標題<br>軟X線による超小型Kirkpatrick-Baezミラーの特性評価              |
| 3. 学会等名<br>第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, オンライン開催           |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>島村 勇徳, 竹尾 陽子, 木村 隆志, 仙波 泰徳, 岸本 輝, 大橋 治彦, 三村 秀和 |
| 2. 発表標題<br>差分成膜法による超小型X線集光ミラーの作製                          |
| 3. 学会等名<br>2021年度精密工学会春季大会学術講演会, オンライン開催                  |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>T. Shimamura, H. Mimura   |
| 2. 発表標題<br>Development of Small Kirkpatrick-Baez Mirror System for Nano-Focusing of X-Rays |
| 3. 学会等名<br>XOPT2019 (International Conference on X-ray Optics and Application) (国際学会)      |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>T. Shimamura, H. Mimura,  |
| 2. 発表標題<br>Fabrication of ultra-small mirrors for soft-X-ray nano-focusing by differential deposition                        |
| 3. 学会等名<br>The 8th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN2019) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2019年  |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|               | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号)                       | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号)                 | 備考 |
|---------------|---|---------------------------------------|----|
| 研究<br>分担<br>者 | 木村 隆志<br><br>(Kimura Takashi)<br><br>(50531472) | 東京大学・物性研究所・准教授<br><br><br><br>(12601) |    |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |  |  |
|---------|---------|--|--|
| フランス    | ESRF    |  |  |