

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24510125

研究課題名(和文) X線円形多層膜ゾーンプレートによる高フラックスpinkナノビームの生成

研究課題名(英文) Production of high-flux pink nano-beam by x-ray circular multilayer zone plate

研究代表者

籠島 靖 (Kagoshima, Yasushi)

兵庫県立大学・物質理学研究科・教授

研究者番号：10224370

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は申請者の研究グループが開発したX線円形多層膜ゾーンプレート(CMZP)の高性能化を図り、その集光ビームサイズを25 nm程度まで縮小することを目的とした。初年度はCMZP作製工程の最適化とマニュアル化、Coupled-Wave Theoryに基づく光学特性計算プログラムを用いたCMZPのパラメータの決定法を確立した。2年目、3年目では、設計集光性能を30 nm、25 nmと段階を踏んで高度化を進めた。設計性能30 nmのCMZPでは集光サイズ30.0 nmを、設計性能25 nmのCMZPでは集光サイズ24.2 nmを得た。以上の結果より当初の目的とした25 nm程度の集光を実現できた。

研究成果の概要(英文)：We aimed in this project at upgrading performance of our-developing x-ray circular multilayer zone plate (CMZP), and at about 25-nm focused beam size. In the first year, the fabrication procedure was optimized and the design parameters were determined based on optical performance calculation using coupled-wave theory. In the second and third year, the upgrade was carried out aiming at 30-nm and 25-nm focused beam size step by step. One CMZP aiming at 30-nm beam size obtained 30-nm beam size and the other CMZP aiming at 25-nm beam size obtained 24.2-nm beam size. As the results, the original goal was almost achieved.

研究分野：工学

キーワード：X線光学 X線ナノビーム X線顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

X線の波長は0.1 nm前後と原子の大きさと同程度であるため、X線レンズを用いてX線を結像することによって原子スケールの空間分解能で物質の構造を直接見ることが原理的に可能である。これを究極の目的とする学問分野としてX線顕微鏡法(X-Ray Microscopy)がある。申請者も、非破壊分析プローブというX線の特長を活かすために、位置分解分析への適用を主な目的として、大型放射光施設 SPring-8 においてX線マイクロビームの高度化やX線顕微鏡システムの開発研究を進めてきた。これまでに、サブ100 nmサイズのX線マイクロビームの実用化とその応用研究、200 nmの空間分解能を有するX線マイクロ位相CTの開発と非破壊3次元内部微細構造可視化を実現した(T. Koyama et al., JJAP 45, 2006)。また、科学技術振興機構(JST)の先端計測分析技術・機器開発事業(平成18~21年度)において、X線多層膜ラウエレンズの製作法の開発と高性能化を図り、1次元集光で13 nmのビームサイズを実現した(T. Koyama et al., AIP Conf. Proc. 1365, 2011)。この値は多層膜ラウエレンズによる集光の当時の世界最高記録である。さらに、2次元集光を可能とする円形多層膜ゾーンプレート(CMZP)の製作法も併せて開発した。同事業終了後、製作した素子の性能評価法の精緻化を進め、2次元の集光ビームサイズが約40 nmであることを確認している。図1にCMZP製作法の概略を示す。

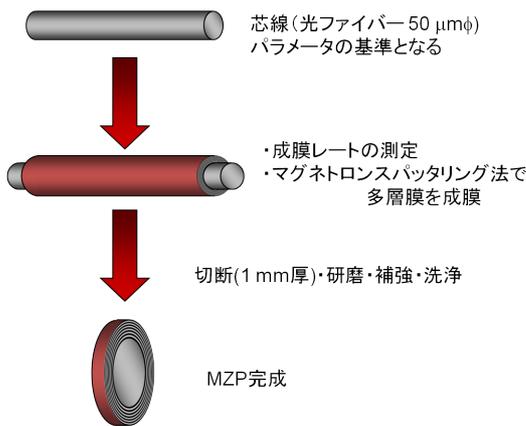


図1. CMZPの作製手順

2. 研究の目的

本研究では、X線円形多層膜ゾーンプレートの高性能化を図り、25 nm程度の高フラックスナノビームを生成することを目的とする。具体的には、成膜条件の最適化を図り、設計性能の高いCMZPを製作し、25 nm程度の集光ビームサイズを実現する。ゾーン幅が25 nm程度より狭くなると、ポリューム効果によって回折効率が極端に低くなるため、25 nmを目標値に設定する。

3. 研究の方法

本研究は兵庫県立大学とNTT-AT社が共同で進める。兵庫県立大学が、動力学に基づくCMZPの光学特性の計算と設計パラメータの最適化、SPring-8における集光特性評価実験、性能評価法の精緻化を担当する。SPring-8での実験は既設の装置を用いる。NTT-AT社がCMZPの製作を担当する。成膜と成形(包埋・切断・研磨等)は既設の装置を用いる。研究代表者の指導する大学院生をNTT-AT社に派遣して、CMZP製作の補助をする。

CMZPの成膜条件の最適化を図る。具体的には、成膜条件の設定 成膜・成形 電子顕微鏡による成膜状況の観察 SPring-8における集光特性評価実験、のサイクルを繰り返す。

集光ビームの性能評価法の精緻化を測る。具体的には、コンピュータグラフィックの再構成原理を応用して、線像分布関数から点像分布関数を求める方法を開発する。

4. 研究成果

設計: Coupled-Wave Theoryに基づく光学特性の計算プログラムを用いて、目的の集光ビームサイズを実現できるCMZPの必須パラメータの詳細設計と主要性能(空間分解能と回折効率)の期待値を求めた。CMZPの材料であるモリブデンのK吸収端を避けるため、X線のエネルギーは20 keVとした。その結果を表1に示す。

表1 CMZPのパラメータ

パラメータ	設計集光性能	
	30 nm	25 nm
直径(μm)	59.5	60.4
最内線幅(nm)	35	30
最外線幅(nm)	30	25
積層膜厚(μm)	4.26	4.87
輪帯比	0.86	0.84
光軸方向の厚さ(μm)	75	67
焦点距離@20 keV(mm)	28.2	24.5
理論集光サイズ(nm)	24.6	21.1
理論回折効率(%)	31	28

製作: 芯線にはFibercore社の光ファイバースM1500 50 μmを用いた。芯線の直径の測定精度が集光性能を大きく作用する。直径の測定にはキーエンス社の寸法測定器LS-7000を用いた。その結果、芯線の直径は50.632 ± 0.018 μmとなった。誤差は20 nm以下であり、非常に真円度の高い芯線を得ることができた。成膜は、マグネトロンスパッタリング法を用いた。スパッターターゲットと芯線との距離、放電ガス圧、成膜レート等を最適化し、良好な膜質の作製条件を探索した。成膜終了後、樹脂で芯線を補強し、1 mm厚に切断し、目標の厚さになるまで研磨した。図2に作製したCMZPのSEM像を示す。図2(a)は全体像、図2(b)は多層膜部分である。

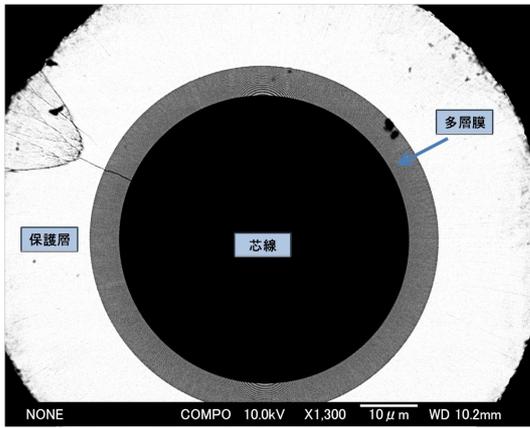


図 2(a). CMZP の SEM 像 (全体像)

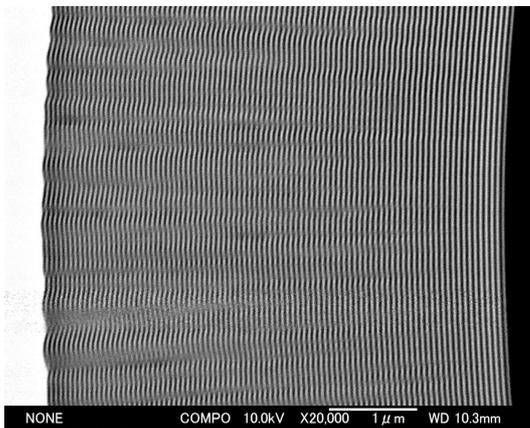


図 2(b). CMZP の SEM 像 (多層膜部分)

性能評価：SPring-8 BL24XU (兵庫県 ID) の B2 ハッチに集光光学系を構築し、集光ビーム性能を評価した。図 3 にその模式図を示す。Si 二結晶分光器で 20 keV に単色化した X 線を 4D スリットで MZP の直径程度に開口し、MZP へ照射した。集光点付近の 1 次回折光だけを取り出すために直径 20 μm の Pt ピンホールを焦点位置のやや上流に配置し、焦点位置へ集光ビームサイズ測定のためのナイフエッジを配置した。さらに下流側には、ピンホールと CMZP の芯線部分を透過してくるダイレクト光を遮蔽するためのダイレクトストッパーを配置し、最下流には強度検出のための PIN フォトダイオードと、far-field イメージ(回折光)の観察のための CCD カメラを配置した。

ここでは、設計集光性能が 25 nm の CMZP についての性能評価の結果を説明する。図 3 においてナイフエッジをステップスキャンしながら強度を測定すると線像分布関数 (LSF) が得られる。図 4 はその測定結果 (黒) と理論計算によって得られた LSF (赤) を示す。測定によって得られた LSF (黒) には振動構造が明瞭に観察されており、この振動構造は焦点の理論集光パターンに生じるサイドピークに起因していると考えられる。また、理論 LSF (赤) によく似た構造であるのがわかる。レーリーの定義より主極大周りの第一

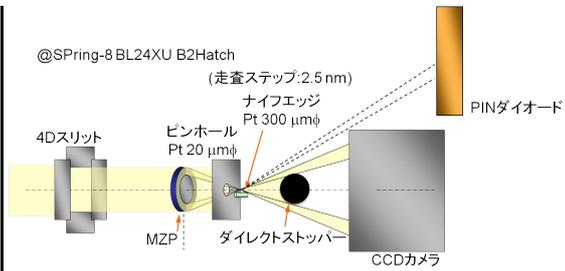


図 3. 集光光学系

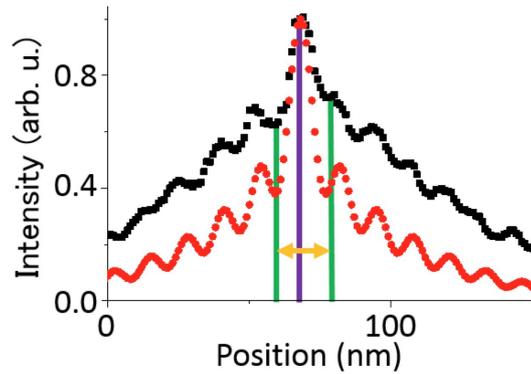


図 4. 集光ビームプロファイル

極小間の距離の半値を集光ビームサイズと定義すると、得られる値は 24.2 nm である。開口の輪帯比を考慮した理論集光サイズは 21.1 nm であり、回折限界に近い集光が達成できていることが示唆された。また回折効率 は理論値が 28% であるのに対して、測定値が 24% であった。以上より、当初の目的とした 25 nm の集光ビームを生成することに成功した。

### 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 0 件)

〔学会発表〕(計 2 件)

(1) Y. Kagoshima, T. Hiroto, K. Sumida, S. Konishi, H. Takano, T. Koyama, S. Ichimaru, T. Ohchi, H. Takenaka

"Hard X-ray multilayer zone plate with 30-nm outermost zone width" in XRM2014, 12th International Conference on X-Ray Microscopy, October 26-31, 2014, Melbourne, Australian

(2) 角田和浩、小山貴久、小西繁樹、廣友稔樹、松村篤恭、高野秀和、津坂佳幸、籠島 靖、市丸智、大知渉之、竹中久貴

「硬 X 線多層膜ゾーンプレートの高空間分解能化」

第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2015 年 1 月立命館大学びわこ・くさつキャンパス

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況（計 0件）

取得状況（計 0件）

〔その他〕

ホームページ等：無し

#### 6．研究組織

##### (1)研究代表者

籠島 靖(KAGOSHIMA YASUSHI) 兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・教授 研究者番号:10224370

##### (2)研究分担者：なし

##### (3)連携研究者

高野 秀和(TAKANO HIDEKAZU) 兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・助教 研究者番号:50366548