

令和 2 年 6 月 30 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14142

研究課題名(和文)複合化透明セラミックス技術を用いた100 nm分解能X線2次元検出器の開発

研究課題名(英文)100 nm resolution X-ray imaging detector with technology of transparent composite ceramics

研究代表者

亀島 敬(Kameshima, Takashi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・XFEL利用研究推進室・主幹研究員

研究者番号：50558046

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：X線画像検出器の方式の一つに、シンチレーターをX線の受光部とした間接検出型がある。シンチレーターでX線像を可視像に変換し、レンズでイメージセンサーに拡大投影することで高い解像度を得ることができる特徴を持つ。本課題でシンチレーター蛍光波長・レンズの開口数で決まる回折限界に近い空間分解能を達成することができた。これにより、より高い開口数を持つ固浸レンズ光学系の実現の可能性が出てきた。その調査・検討の結果、設計に必要な屈折率分散測定プリズム用の30 x 30 x 8大型の透明LuAGセラミックスの作成に成功した。これによりNA1.6の固浸対物レンズの設計が可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

X線は高い透過力・短い波長を持つ光である。この特徴を活かし、X線顕微鏡システムを構築することで試料の内部構造を非破壊で高い解像度で観察することが可能である。X線検出器はシステム内でX線を検出する重要装置であり、X線顕微鏡の発展にその開発は欠かせない。本成果は、X線像の画質を決めるX線画像検出器の空間分解能を物理的限界まで向上させた。また、この性能を超える技術を開発するための調査・検討を行った。本成果は、X線光学・科学計測実験だけでなく産業用途への応用も可能であり、例えば電子素子の欠陥検査等への応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：An indirect detection is one of methods of taking an X-ray image. The X-ray image is converted to a visible one on the scintillator screen, and then projected onto an image sensor by magnification optics. In this research, we have achieved the diffraction-limited-spatial resolution determined by scintillator emission wavelength and a numerical aperture. Because of this, we can try to develop a solid-immersion objective to obtain higher resolution. The refractive index dispersion is necessary for precise design of the objective. The large size prism is required for the minimum deviation technique to measure the refractive index. We have succeeded in producing transparent LuAG ceramics blocks with 30x30x8 mm<sup>3</sup>. The blocks are scheduled to be fabricated to prisms. The numerical aperture of the solid-immersion objective is estimated to become 1.6.

研究分野：X線検出器

キーワード：X線 検出器 シンチレーター 空間分解能 固浸レンズ

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

試料の内部構造を非破壊で観測する X 線顕微鏡は基礎科学・生命科学・材料科学の分野において強力な観測・分析ツールである。その中で、顕微鏡を構成する要素の一つである検出器は X 線信号を画像データに変換する重要な役割を持つ。ゆえに、X 線画像検出器の開発は X 線顕微鏡分野において基盤技術の一つとして盛んに開発が進められている。重要な性能の一つに解像度がある。特に、10  $\mu\text{m}$  以下の高解像度で X 線像を撮像する場合はシンチレーターで X 線像を可視蛍光像に変換し、結像光学系で可視光イメージセンサーに投影するレンズ結像方式を一般的に用いる。その空間分解能はシンチレーター蛍光の回折に制限され、蛍光波長と光学系の開口数 NA でその限界が決まっている。その関係はレーリー基準で  $\lambda/2\text{NA}$  で表される。ゆえに、原理的に空間分解能を高めるにはシンチレーター波長を短く、または NA を大きくする必要がある。

一方で、回折限界より先にシンチレーターの光学特性の低さや光学系が持つ収差による制限の方が強い。これらの課題を解決するために、光学特性を改善した薄膜シンチレーターの製法を提案した[1]。本手法を用いることで 5  $\mu\text{m}$  厚の  $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$  ( $\text{LuAG}:\text{Ce}$ ) 薄膜シンチレーターの作成に成功した。このシンチレーターと NA0.85 のレンズで構成した X 線画像検出器を用いて 500 nm line & space (レーリー基準で 1  $\mu\text{m}$  分解能) の構造を持つ X 線信号を解像するに至った。ここまでが前回の研究課題 26790077 にて達成した結果である。しかし、 $\text{LuAG}:\text{Ce}$  はピーク蛍光波長 520 nm を持つので理想的な光学系であれば 200 nm line & space を切る構造を解像出来る性能を持つが、現状の到達性能はこの値より有意に低い。また、限界性能である 200 nm line & space 解像を超える性能を要求するニーズも多く、更なる高解像度化を実現する手法を検討する必要があった。

### 2. 研究の目的

本研究は X 線イメージング検出器の空間分解能を制限する原因を除き、回折限界に至る空間分解能を得ること、その上で新たな高空間分解能光学系を開発することを目的としている。目標性能は 100 nm line & space を可視化する解像力への到達とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 空間分解能を制限する原因の除去

開発した  $\text{LuAG}:\text{Ce}$  薄膜シンチレーターは透明セラミックス技術で製造している[1-3]。このセラミックスは空隙数をゼロに近いレベルで最小化し、結晶粒界を蛍光波長より遥かに小さいサブナノメートルサイズとすることで透明化を実現している。透過率計測の結果や SEM による結晶粒界、シンチレーター-支持基板接合面を観察する限りではシンチレーターの透明性は非常に高く、シンチレーター内部で生じる光学的な問題はほぼ解決していると考えられる。空間分解能を劣化させる原因として、シンチレーターを支える支持基板である無添加  $\text{LuAG}$  セラミックスで生じるデフォーカス光[4]、光学系の収差、光学コーティングが最適化されていない、検出系の SN が不足しており十分なコントラストを得られていない等が考えられる。以上を踏まえ、シンチレーターコーティングの最適化・光学系に無限遠補正光学系の適用・シンチレーターの蛍光波長以外の光を減衰させる光学フィルターの挿入・科学計測用の低ノイズ CMOS カメラの導入を実施し、X 線イメージング検出器の最適化を行う。

#### (2) 高空間分解能光学系の検討

背景で述べた通り光学系分解能を向上させるには、シンチレーター蛍光波長を短くするか、光学系の開口数 NA を大きくするしかない。これを実現するには、(a) シンチレーターの材料を変更し蛍光波長を短くする、(b) 油浸系の対物レンズを用いて NA を大きくする、となる。(a) に関し、 $\text{LuAG}$  に Pr を添加し、ピーク蛍光波長 305 nm を持つ  $\text{LuAG}:\text{Pr}$ [5]の利用を検討する。また、(b)は X 線損傷によるオイルの不透明化や、開口角を高めるために支持基板層を薄くするため X 線遮蔽力が下がり後段の光学系への損傷の影響が大きくなるのでその適応は現実的ではない。そこで、開発したシンチレーターの高い光学特性を活かし、シンチレーターの支持基板無添加  $\text{LuAG}$  をレンズ形状に加工して対物レンズに組み込み、油浸対物レンズを構成することを検討する。 $\text{LuAG}$  は波長 520 nm の光に対して 1.85、305 nm に対しては 2.03 と高い屈折率を持つので液浸レンズと比較し開口数が高くなる。加えて、支持基板部の厚みから得られる放射線遮蔽、固体を媒質とした長時間の安定なフォーカス等の実用的な構造を持つ。

### 4. 研究成果

#### (1) 空間分解能を制限する原因の除去[6]

光学コーティング・無限遠補正光学系の導入による光学フィルターの挿入・科学計測用の低ノイズ CMOS カメラの導入を行った。その詳細を下記に記す。

##### ・光学コーティング

従来は X 線の入射側であるシンチレーター面にアルミ膜で反射面を、蛍光の出射側である支持基板面に誘電多層膜による反射防止膜を施していた。ここで反射面は対物レンズと逆方向に生じた蛍光信号を反射することでシンチレーターの発光効率を実効的に 2 倍にする役目を果たす。しかし、アルミ膜の X 線損傷による剥がれにより、画質が劣化する問題があった。そこで本課題では両面ともに耐久性の高い誘電多層膜を採用し、蛍光波長 450 ~ 700 nm[7]および入射角 0 ~ 58.2 度 (NA0.85 の開口角に相当) に最適化した。X 線入射面に反射膜、蛍光の出射面に反射防止膜としている。

・光学フィルターの挿入

無限遠補正光学系はフィルターを挿入しても球面収差が発生しないメリットがある。また、シンチレーター面と対物レンズ、およびイメージセンサーと結像レンズ、それぞれで平行度が高い機械配置が可能であり、結果として有限遠補正光学系と比較し品質の高い像を得やすい。以上の理由から本検出器も無限遠補正光学系を採用した。今回、対物レンズと結像レンズ間に 470 nm より短波長をカットするローパスフィルターを挿入した。これにより、支持基板から発生するデフォーカス成分であるアンチサイト欠陥・酸素欠陥から生じる紫外・青色領域の光 [4] を遮断した。

・科学計測用の低ノイズ CMOS カメラの導入

シンチレーター光の微弱さを考慮し、EMCCD を用いた蛍光像の検出を行ってきたが、予想を上回る信号量であることが確認されたため、科学計測用の CMOS カメラに変更した。微弱光を数えるフォトンカウンティング領域を除けば CMOS カメラの方が SN が高く質の良い像を得ることが可能である。今回採用したカメラは PCO 社製 pco.panda 4.2 を用いている。他の科学計測用 CMOS カメラと比較し、ファンを持たない空冷タイプであり振動要素がないことが特徴の一つである。高空間分解能計測に有利と考え、今回の評価機に採用した。

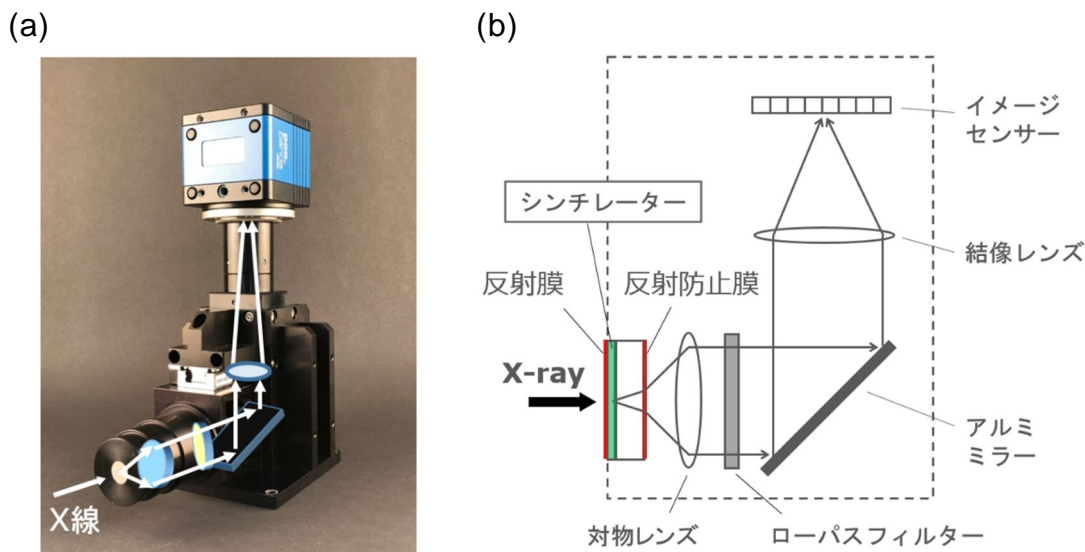


図 1 (a) 構築した X 線イメージング検出器の写真 (b) 検出器内の光学配置

Effective pixel size	[ $\mu\text{m}$ ]	0.065
Field of view	[ $\mu\text{m}^2$ ]	133 x 133
Image format	[pixels]	2048 x 2048
10 keV Conversion ratio	[electron/X-ray]	13
Dynamic range	[bit]	16
Frame rate	[fps]	30

表 1 検出器の性能

上述の最適化を反映させた X 線イメージング検出器を構築した ( 図 1(a) )。その光学配置を図 1(b) に示す。表 1 は構築した検出器のシステム性能表である。SPring-8 の BL29XU ビームラインでビーム強度  $5.8 \times 10^{12}$  photons/s/mm<sup>2</sup> · 7.3 keV の条件で X 線ビームを X 線テストチャート NTT-AT 社製 XRESO-100 に照射し、その透過信号をこの検出器で撮像した。図 2 はフラットフィールド補正した露光時間 200 ms の画像の 100 枚平均となる。結果、200 nm line & space の構造まで解像した。前回課題で構築した X 線イメージング検出器の倍以上の解像力を得ることができた。加えて、この高い解像力のデモンストレーションを行うために、超大規模集積回路 (VLSI )

の内層配線の可視化を試みた。同図 3(a)は撮像する VLSI の設計図の一部で、最小幅 300 nm のアルミ配線、タングステン貫通電極がシリコン基板内部に埋め込まれている。図中のグレー線がアルミ配線、黒い資格がタングステン貫通電極である。微細な配線構造に加え、シリコンとアルミは元素番号 (Si は 14 , Al は 13) が近いこと、また、アルミ配線の厚みは 500 nm 厚のシリコン基板に対しておよそ 1000 分の 1 である 600nm という X 線画像にコントラストを付けづらい試料であった。このエリアに  $12.0 \text{ keV} \cdot 1.7 \times 10^{13} \text{ photons/s/mm}^2$  の X 線ビームを照射し、

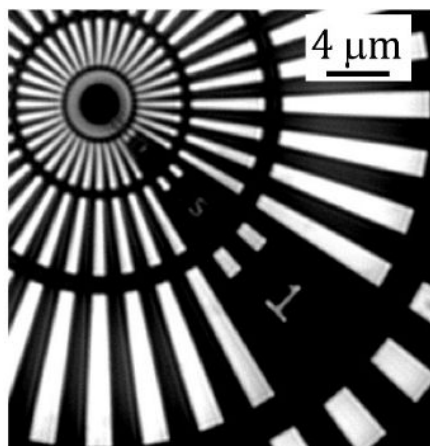


図 2 X 線テストチャートの X 線像

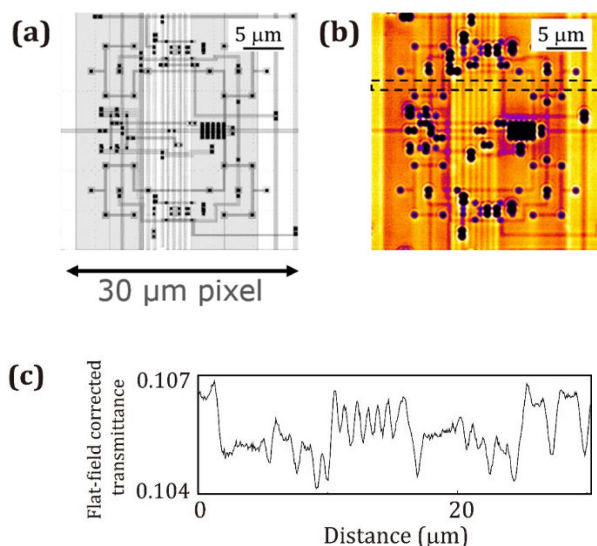


図 3 (a) 超大規模集積回路の設計図

(b) (a)の X 線透過像

(c) (b)の破線部の射影

図 3(b)の X 線透過像を取得した。600 ms 露光で得た画像のフラットフィールド補正およびその 255 枚積算を行い、画像の視認性を高めるために contrast-limited adaptive histogram equalization 法[8]を適用している。図 3(b)から確認できるようにアルミ配線の可視化に成功している。図 3(c)は図 3(b)内の破線で囲んだエリアの射影プロファイルである。図からアルミ配線部は 1 ~ 2%程度のコントラストで検出されているのが確認できる。ここでコントラストは  $C = (T_{max} - T_{min}) / T_{max}$  で定義している。この結果は、これまで観察が難しいとされてきた VLSI の微細配線パターンの欠陥を、非破壊で検出できることを示している。以上の結果から、X 線イメージング検出器内の空間分解能を落とす原因を除去することで、回折限界に近い空間分解能を得られることを実証した。

## (2) 高空間分解能光学系の検討

回折限界に近い空間分解能を得たことで、光学系を定量的に設計することが可能となった。これにより、100 nm 領域の空間分解能設計も視野に入れることができる。例えば、波長 305 nm の蛍光波長を有する LuAG:Pr シンチレーターを用いた固浸レンズ光学系を組むことで最高の解像力を得られる。開口角を 72 度で設計できた場合、その開口数 NA は  $NA = 1.93$  の超高 NA を実現する。結果として、短波長蛍光の効果と合わせ、96 nm の空間分解能 (48 nm line & space 解像に相当) に到達する。しかし光学シミュレーションの結果、305 nm の波長に対応できる硝材は少なく、収差を抑えつつ高 NA を得るのは難しいことがわかった。ゆえに現時点においては、設計自由度の高い 520 nm の発光を持つ LuAG:Ce や YAG:Ce を用いるのが適切である。この場合、開口角 60° 程度で  $NA \sim 1.6$  で設計が可能であり、その空間分解能は 200 nm (100 nm line &

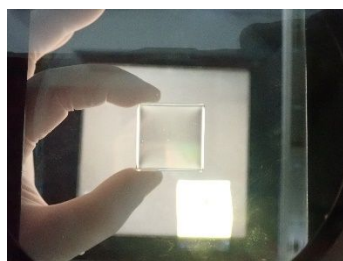


図 3 プリズム加工用 LuAG

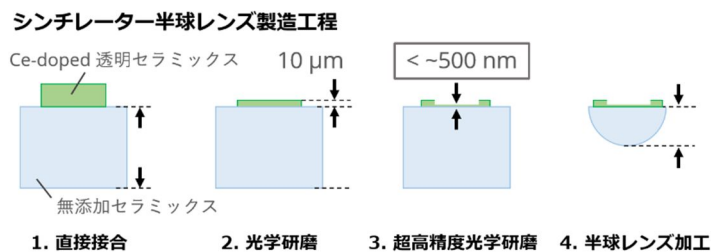


図 4 固浸レンズ用の半球レンズの作成手順

space 解像に相当)に至る。この高い性能を持つ光学系を実現するために、対物レンズとしてインテグレーションすることを検討した。その際に、(a) LuAG の屈折率分散データの取得、(b) LuAG の半球レンズ高精度加工、が開発する上で大きな課題となる。(a) に関し、その測定には最小偏角法を用いるので、プリズム形状に加工した透明 LuAG セラミックスが必要となる。本研究で 30 mm 角、8 mm 厚を有する無添加 LuAG セラミックスの作成に成功し(図 4)、屈折率分散計測を実施できる見通しとなった。今後、図 4 のようにサブミクロン厚の LuAG:Ce を有した半球レンズの開発を行う。接合技術・薄膜加工の検証はそれぞれ完了し、固浸レンズを設計・開発する技術要素を全て準備できた状況となった。残す課題は半球径や、その加工精度を光学シミュレーションの結果を踏まえ決定し、対物レンズとして構築することである。

1. T. Kameshima, T. Sato, T. Kudo, S. Ono, K. Ozaki, T. Katayama, T. Hatsui, and M. Yabashi, *AIP Conf. Proc.* **1741**, 040033 (2016).
2. H. Yagi, K. Takaichi, K. Hiwada, K.-i. Ueda, and T. Yanagitani, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, L207 (2006).
3. H. Yagi, T. Yanagitani, K. Takaichi, K.-i. Ueda, and A. A. Kaminskii, *Opt. Mater.* **29**, 1258 (2007).
4. Y. Fujimoto, T. Yanagida, H. Yagi, T. Yanagidani, and V. Chani, *Opt. Mater.* **36**, 1926 (2014).
5. T. Yanagida, Y. Fujimoto, K. Kamada, D. Totsuka, H. Yagi, T. Yanagitani, Y. Futami, S. Yanagida, S. Kurosawa, Y. Yokota, A. Yoshikawa, and M. Nikl, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **59**, 2146 (2012).
6. T. Kameshima, A. Takeuchi, K. Uesugi, T. Kudo, Y. Kohmura, K. Tamasaku, K. Muramatsu, T. Yanagitani, M. Yabashi, and T. Hatsui, *Opt. Lett.* **44**, 1403 (2019).
7. T. Yanagida, Y. Fujimoto, Y. Yokota, A. Yoshikawa, T. Ishikawa, H. Fujimura, H. Shimizu, H. Yagi, and T. Yanagitani, *Nucl. Sci. Symp. Conf. Rec.*, 1612 (2010).
8. K. Zuiderveld, *Graphic Gems IV* (1994).



5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Takashi Kameshima, Akihisa Takeuchi, Kentaro Uesugi, Togo Kudo, Yoshiki Kohmura, Kenji Tamasaku, Katsuhiro Muramatsu, Takagimi Yanagitani, Makina Yabashi, and Takaki Hatsui	4. 巻 44
2. 論文標題 Development of an X-ray imaging detector to resolve 200 nm line-and-space patterns by using transparent ceramics layers bonded by solid-state diffusion	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 1403-1406
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） <a href="https://doi.org/10.1364/OL.44.001403">https://doi.org/10.1364/OL.44.001403</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 2件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 亀島 敬, 竹内晃久, 上杉健太郎, 工藤統吾, 香村芳樹, 玉作賢治, 矢橋牧名, 初井宇記
2. 発表標題 高解像度X線2次元検出器の性能評価とこれを用いた集積回路のX線イメージング
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 亀島敬
2. 発表標題 間接型高空間分解能検出器の現状と将来展望
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takashi Kameshima, Akihisa Takeuchi, Kentaro Uesugi, Togo Kudo, Yoshiki Kohmura, Kenji Tamasaku, Makina Yabashi, Takaki Hatsui
2. 発表標題 X-ray imaging detector resolving 200 nm line-and-space patterns by using composite transparent ceramic scintillator
3. 学会等名 第2回量子線イメージング研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Kameshima
2. 発表標題 An X-ray imaging detector resolving 200 nm line-and-space patterns by using a composite transparent ceramics scintillator
3. 学会等名 The 15th Symposium of Japanese Research Community on X-ray Imaging Optics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 亀島敬, 竹内晃久, 上杉健太郎, 工藤統吾, 香村芳樹, 玉作賢治, 矢橋牧名, 初井宇記
2. 発表標題 高解像度X線2次元検出器の性能評価とこれを用いた集積回路のX線イメージング
3. 学会等名 日本放射光学会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 亀島 敬 <sup>1, 2</sup> , 竹内晃久 <sup>1</sup> , 上杉健太郎 <sup>1</sup> , 工藤統吾 <sup>1, 2</sup> , 矢橋牧名 <sup>1, 2</sup> , 初井宇記 <sup>1, 2</sup>
2. 発表標題 透明セラミックスの固相拡散接合技術を用いた薄膜シンチレーターの開発及びこれを用いたX線イメージング
3. 学会等名 精密工学会2017年度秋季大会
4. 発表年 2017年～2018年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 放射線イメージング装置用光学素子、放射線イメージング装置及びX線イメージング装置	発明者 亀島 敬	権利者 理化学研究所
産業財産権の種類、番号 特許、2017-141073	出願年 2017年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----