

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 10 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2010～2012

課題番号：22684023

研究課題名（和文）X線照射損傷の時空間分割測定を可能にする、高分解能結像型軟X線顕微鏡の開発

研究課題名（英文）Development of a soft-X-ray microscope for the real-time observation of radiation damages induced by soft X-ray irradiation.

研究代表者

為則 雄祐 (TAMENORI YUSUKE)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・副主幹研究員

研究者番号：10360819

研究成果の概要（和文）：軟 X 線の照射によって生じる生物試料や有機材料の損傷過程を実時間観察によって解明することを最終目標として、本研究課題ではその要となる結像型の軟 X 線顕微鏡の開発を行った。正弦条件を満足するとともに色収差を持たない光学系として、二組の球面鏡対を用いて球面収差を補正し、 $1\mu\text{m}$  以下の空間分解能を持つ光学系を開発した。コンピュータシミュレーションによって最適な光学パラメータを探索し、その結果をもとに試作装置を製作するとともに、集光性能評価を行った。

研究成果の概要（英文）：Novel soft X-ray microscope has been developed for the real time observation of radiation damages of biological and organic samples induced by soft X-ray irradiation. In order to achieve the chromatic aberration-free imaging, the optics of microscope was constructed by reflecting mirrors. The microscope was constructed by a pair of spherical mirrors, and the spherical aberration was corrected by sequential reflection of two spherical mirrors. The prototype microscope was constructed based on the optimized parameters obtained by computer simulation, and the successful aberration correction was achieved.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	9,900,000	2,970,000	12,870,000
2011 年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
2012 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
総計	19,200,000	5,760,000	24,960,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・生物物理,化学物理

キーワード：軟 X 線顕微鏡、結像型 X 線顕微鏡、X 線照射損傷

### 1. 研究開始当初の背景

波長が短い X 線を利用すると、可視光を用いる光学顕微鏡よりも高い空間分解能を得ることができることから、X 線を利用した試料観察法は広く利用されている。ところが、軟 X 線を利用した場合、軟 X 線は物質との吸収係数が大きいため、試料に吸収されることで物質中において熱に変換されたり、内殻電

子の励起に続く後続過程においてイオンや電子を大量に発生させたりすることで、試料に損傷を与える。軟 X 線照射に由来する試料損傷の問題は、生物試料や有機材料の軟 X 線分光研究において古くから指摘されており、測定データの信頼性に深く関わる重要な問題としてその影響が議論されている[1]。

## 2. 研究の目的

X線の照射によって発生した熱や二次生成物による損傷で試料が劣化するまでには、一定の時間がかかる。すなわち、この時間スケールと比較して十分に短い時間分解能で試料の状態変化を観測できれば、照射損傷が進行する過程を実時間追跡して、そのメカニズムを明らかにできると考えられる。

本研究課題では、軟X線の照射によって生じる生物試料や有機材料の損傷過程を実時間観察によって解明することを最終目標として、その要となる結像型の軟X線顕微鏡の開発を行った。特に、軟X線吸収分光法(XAS)と組み合わせた化学状態イメージングの高速測定を可能とするために、全反射鏡を用いた光学系を設計・開発し、試作装置を製作することで集光性能評価を行った。

## 3. 研究の方法

研究開発は、以下の手順で進めた。

### (1) 光学系の検討

最初に、様々な形状の全反射鏡を用いた光学系について、光学素子の製作にかかわる難易度や、光線追跡法を用いた集光性能のシミュレーションを基に総合的に評価し、採用する光学系の検討を行った。

結像型顕微鏡では、光学系が正弦条件を満足しなければならない。正弦条件を満たす代表的な光学系として Wolter 鏡がある[2]。Wolter 鏡は原理的に高い結像性能を有するが、円筒形状を持つ光学素子の製作が困難であるため、広く普及するには至っていない。一方で、最近、鈴木らによって2枚の全反射鏡ペアを2組用いることで収差補正ならびに拡大率を調整可能な、新しい結像型軟X線光学系が提案された[3]。

これらの光学系を比較検討した結果、Wolter 鏡はやはり光学素子の製作難易度が高く、目標の性能を達成することが困難であるとの結論に至った。一方で、シミュレーションによる検討から、球面鏡を用いた光学系においても、球面鏡を対で使用して収差補正することにより、100nm程度の空間分解能が得られることが分かった。球面形状は、高い面精度を持つ光学素子の製作がもっとも容易な形状の一つである。適切な収差補正を行うことで高い分解能が得られることが確認されたため、本研究では球面鏡ペアを用いた軟X線顕微鏡を採用することとした。

エクセルのゴールシーク機能を用いた光学パラメータ探索プログラムを新たに作成し、光学系の最適パラメータの探索を行った。解が得られた光学系に対しては、光学シミュレーションソフトウェア SHADOW を利用した光線追跡を行い、ビーム形状や収差の影響を評価した。パラメータの最適化においては、光源として SPring-8/BL27SU を利用すること

を想定し、ビームラインの途中に 20 $\mu\text{m}$  の仮想光源を配置するとともに、光源から光学系までの距離を 7500mm と過程して最適化を行った(顕微鏡の詳細については、次章で報告する)。

### (2) 軟X線顕微鏡の設計・製作

4枚の球面鏡を使用した光学系においては、複数の光学素子の精密な位置調整が重要な開発要素となる。そこで、全ての光学素子を精密にアライメントするためのアルゴリズムならびに位置調整機構の検討・開発を行った。各光学素子は、 $(X, Y, Z, \theta, \phi)$ の五軸の位置調整を可能とし、また、対をなす球面鏡の相対距離を微調整可能な位置調整機構の開発を行った。

### (3) レーザーアライメントならびに性能評価

製作した軟X線顕微鏡の組み上げ作業を行った後、オフラインで He-Ne レーザーを光源とした調整を行った。特に、4枚の球面鏡の位置を精密にアライメントするための手順について検討・開発を行うとともに、レーザーを光源とした光学系の特性評価を行った。なお、申請当時は、ビームライン上に開発した顕微鏡を設置し、放射光を用いた集光テストまでを行う計画であったが、資材調達にトラブルが発生したために研究計画に遅延が生じた。最終的には、オフラインにおけるレーザーアライメントならびに放射光を導入した光学素子のアライメント手法の開発までを本研究期間内に実施した。

## 4. 研究成果

### (1) 球面鏡ペアを用いた収差補正光学系

図1に、2枚の球面鏡ペアを用いた光学系によって、球面収差を補正する原理を示した(一次元の集光)。球面鏡ではミラーの前方で反射された光は中心付近を通る光よりも上流側に集光する。逆に、ミラーの後方で反射された光は下流側に集光する。結果、集光点にずれが生じ、集光された光にはミラー側に裾が生じる(球面収差)。それに対して、同じミラーで二回続けて反射すると、二枚目のミラーで反射された光では、一枚目のミラーとは逆方向に集光点がずれる。その結果、光路のずれがキャンセルされるため、ミラーの前方と後方で反射された光の集光点が一致し、収差を補正することができる。

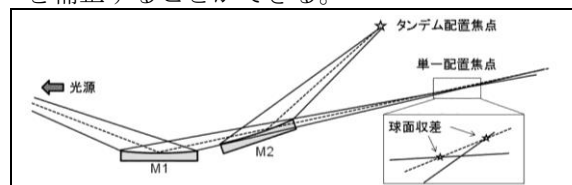


図1、球面鏡を用いた集光系における収差の発生と、タンデム配置による収差補正の原理。

球面鏡対で構成される光学系において、収差が補正される様子をシミュレーションによって検証した。図2の上段は、19628mmの曲率半径を持つ球面鏡1枚で集光したときの集光点におけるビーム形状である。弓なりの形状を持つ光の本体部分の下側に、球面収差の影響によって長い裾を引いている様子が分かる。一方で、下段には同じ球面鏡を二枚配置し、収差補正を行った場合の光のプロファイルを示した。球面鏡一枚で集光したときとは異なり、球面鏡をペアで用いることで収差が補正され、裾が無くなることで、シミュレーションによって確認できる。

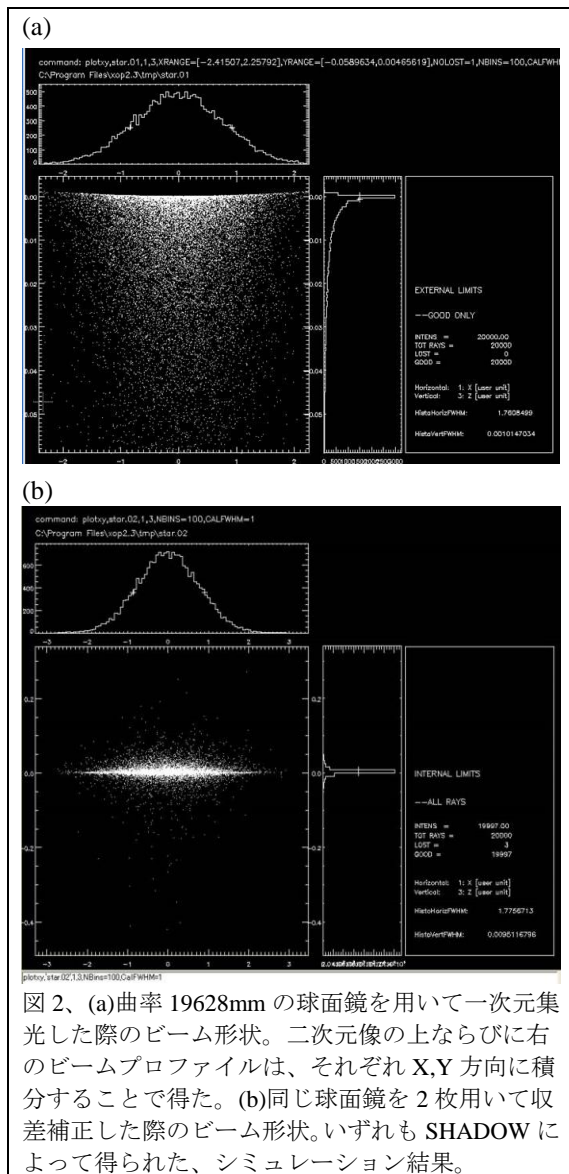


図2、(a)曲率19628mmの球面鏡を用いて一次元集光した際のビーム形状。二次元像の上ならびに右のビームプロファイルは、それぞれX,Y方向に積分することで得た。(b)同じ球面鏡を2枚用いて収差補正した際のビーム形状。いずれもSHADOWによって得られた、シミュレーション結果。

実際に集光点を合わせて収差を補正するためには、二枚のミラーの曲率半径や長さを変える必要があるが、今回の光学系では同じ集光鏡を二枚使用し、視斜角ならびに二枚のミラー間の距離を調整することで焦点位置

を調整した。収差補正に関しては、文献3において鈴木らによって幾何光学的な解析がすでに行われている。本研究では、文献を参考にパラメータの最適化を行った。

焦点位置を一致させるためには、(1)式を満足する必要がある[3]。

$$\frac{f_2}{f_2-D} \frac{\theta_1}{\theta_2} \sim 1.618 \quad (1)$$

ここで、 $f_2$ は1枚目の球面鏡の集光距離、 $D$ は球面鏡ペアの相対距離、 $\theta_1$ ならびに $\theta_2$ は二枚の球面鏡のそれぞれの視斜角である。シミュレーションによる検討を進めたところ、一次元集光の場合は、収差を補正することで、単純な球面鏡を用いた集光系においても100nm程度の高い集光性能が得られることが明らかとなった。ただし、本研究では縦・横方向の二次元に集光する必要がある。また、最終的に結像型の顕微鏡として機能させるためには、縦と横の倍率をそろえる必要がある。また、縦集光系と横集光系を直列に配置するため、二次元の光学系では必然的に縮小率の差が発生する。本研究では、それぞれ1 $\mu$ mの空間分解能を達成するとともに、縦・横の集光が等倍となる条件を満たす光学系の構築を目標として検討を進めた。

実際のパラメータ探索は、球面鏡の曲率半径と光源から集光点までの距離を決定したのち、 $D, \theta_1, \theta_2$ に任意の初期値を与え、エクセルのゴールシーク機能を用いて収束解を探索した。計算においては、縦・横集光鏡の倍率が一致するよう制限を設け、全ての条件をself-consistentに満たす光学パラメータを探索した。解が見つかった場合は、得られたパラメータを基に光源追跡を行うことで実際のビームプロファイルを評価するとともに、製図ソフト上で現実的に製作可能な幾何学的配置となっているかを確認しながら、パラメータの探索を進めた。表1に最終的に決定した光学パラメータを示す。また、表1のパラメータをもとに光線追跡シミュレーションを行い、サブマイクロ集光を達成可能であることを確認した(図3)。

表1:最適化された学パラメータ

集光	M1	M2	M3	M4
縦集光	球面	球面	球面	球面
横集光	球面	球面	球面	球面
形状	球面	球面	球面	球面
ミラー長(mm)	50	50	50	50
曲率半径(mm)	40000	40000	25000	25000
視斜角(°)	1.20	1.35	1.82	0.55
ミラーの中心間距離(mm)	35		7.9	
縮小率	26.92		26.92	
集光サイズ( $\mu$ m)	0.88		0.88	

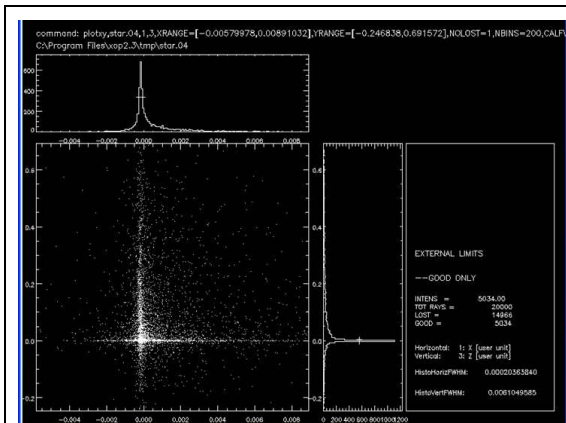


図 3、最終的に決定した光学系に対する、光線追跡シミュレーションによる二次元集光性能評価。縦・横ともに  $0.88\mu\text{m}$  の集光が得られている。

### (2) 軟 X 線顕微鏡の設計・製作

図 4 に本研究で製作した軟 X 線顕微鏡の外観を示す。今回の顕微鏡では、光学素子間の距離が狭く、密集した状態で 4 枚の球面鏡を配置する必要があるため、ミラーの位置調整機構は全て真空容器の外に配置し、真空外からミラーの位置調整が可能な機構を採用することとした。

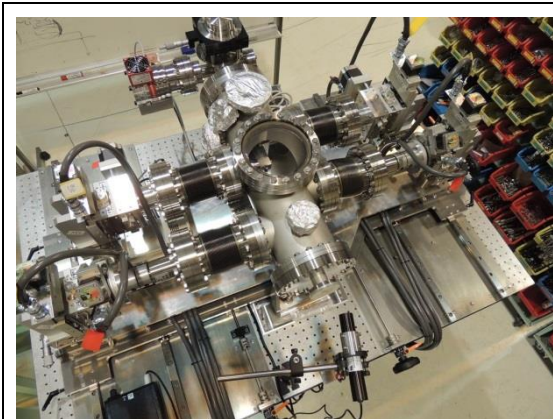


図 4、製作した軟 X 線顕微鏡の全体図。写真は装置を上部から撮影したもの。中心の主分析槽に対して、真空ベローズを介して左右にそれぞれ 2 本ずつ伸びているのが、各球面鏡の位置調整機構。

球面鏡対を用いる光学系では、二つの鏡の視斜角ならびに相対位置を精密に調整しなければならぬ。特に、対を構成する球面鏡間の距離(D)は、 $0.1\text{mm}$  以内の精度で調整しなければ、集光された光の形状に大きく影響されている。そこで、シミュレーションによって確認されている。そこで、光学素子毎に独立に  $X, Y, Z, q$  (振り),  $f$  (アオリ) の調整が可能な、5 軸調整ステージを採用した (図 5)。それぞれの 5 軸調整ステージに真空フランジを固定し、フランジ内側に固定された支柱上にミラーホルダを設置した。ミラーを搭載した真空フランジは、ICF-152 の溶接ベローズを介して

主分析槽と接続されており、外部からのトルクを真空容器内の集光鏡へ伝達可能な構造になっている。

また、縦・横集光鏡の調整ステージがそれぞれ  $XYZ$  ステージ上に配置されており、縦集光・横集光用の球面鏡対の相対的な位置調整も可能な構造になっている。さらに、全ての光学素子と位置調整機構が搭載された定盤についても  $XYZ\phi$  の位置調整機構を備えていることにより、オフラインで精密な位置調整を完了した後は、個々の光学素子の位置調整機構を使用せずとも、装置全体の位置調整機構を用いることで、ビームラインの光軸に対して顕微鏡をアライメントできる機構を備えた。

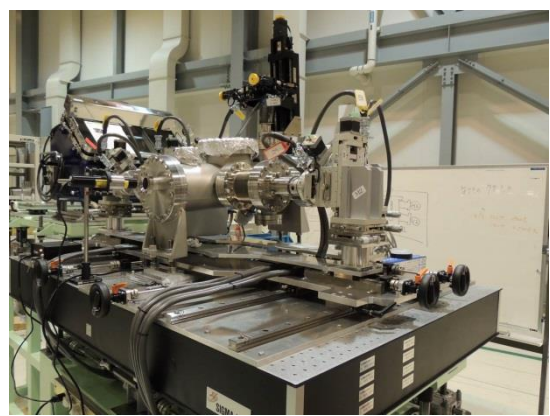


図 5、ミラーの位置調整機構。五軸の位置調整ステージが真空ベローズを介して主分析槽と連結されている。また、M1/M2 および M3/M4 は、さらにそれぞれが独立の  $XY$  ステージ上に設置されることで、縦集光鏡と横集光鏡の相対位置調整が可能になっている。

### (3) 光学系の評価テスト

製作した軟 X 線顕微鏡装置の組み立てを行った。まずは、テスト用に面精度が粗い ( $\lambda/5$ ) 球面鏡を製作し、オフラインにおいてレーザーアライメントを実施するとともに、各機器の動作確認を行った。この時点で、放射光ビームラインに装置を設置し、実際の放射光を用いた実験により、装置の位置調整機構の問題点の洗い出しを行った。その結果、レーザーを用いた場合とは異なり、X 線では光学素子で反射された光の位置を直接確認することができないとともに、光学素子が密集しているため、調整中に X 線の位置をしばしば見失うという問題が発生した。そこで、シンチレータに利用される  $\text{Ce:YAG}$  結晶を加工し、各球面鏡の前後に配置して常に光の通過位置を正確に確認するためのモニタの設計を行った。新たに光の位置モニタを顕微鏡に組み込むことで、アライメントにおける問題を解決するべく装置に改良を加えた。

図 6 には、He-Ne レーザーを光源とした集光特性評価の結果を示す。図は縦集光の結果である。He-Ne レーザーの光源サイズは  $450\mu\text{m}$  であった。この評価では、約  $1/8$  の縮小率条件において集光テストを行った。シミュレーションでは、この条件下では  $93\mu\text{m}$  の集光が得られると予想された。ナイフエッジスキャンにより実際の集光サイズを評価した結果、ほぼ計算通りの  $88\mu\text{m}$  の集光サイズが得られた。

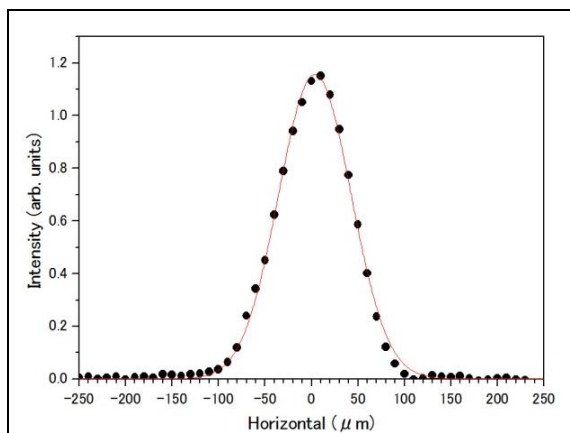


図 6、He-Ne レーザーを用いた横集光の集光性能評価結果。横方向の集光サイズは、半値全幅で約  $88\mu\text{m}$  である。

球面鏡を用いた集光において、球面収差は  $[3 \times m^2 / (2R)]$  によって求められる。ここで、 $m$  はミラー長の半分の長さ、 $R$  は曲率半径である。今回の集光で使用した球面鏡においては、 $37.5\mu\text{m}$  の球面収差の影響が予想される。He-Ne レーザーを用いた集光テストでは、球面収差が律速するところまで集光することはできていないが、得られたプロファイルは左右対称な Gaussian 形状を示していることから、球面収差は概ね補正されていると考えられる。

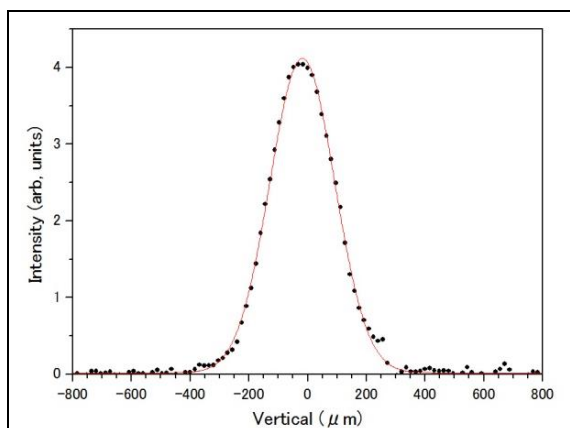


図 7、He-Ne レーザーを用いた縦集光の集光性能評価結果。縦方向の集光サイズは、半値全幅で約  $257\mu\text{m}$  である。

図 7 には同様に測定した縦方向の集光評価結果を示す。縦方向については縮小率が約  $1/2$  の光学系であったが、こちらについても計算値通りの約  $257\mu\text{m}$  のビームプロファイルが得られた。縦方向の集光についても、ほとんど裾が無い Gaussian 形状を示しているが、予想される横方向の球面収差は  $15.6\mu\text{m}$  程度であるため、レーザーによるオフラインテストでは、収差補正の影響については詳細に評価するには至らなかった。

当初の計画では、平成 23 年度に高精度で研磨された球面鏡を入手し、その後放射光を用いて  $\mu$  ビーム集光テストを行う予定であった。しかしながら、調達予定であった高精度球面鏡は、入札時に発生した障害によって同年度内に調達することができなかった。そのため、研究の最終年にあたる平成 24 年度に改めて入札による調達を実施し、高精度球面鏡を調達することとなった。結果的に資材調達が遅れた影響によって、本研究期間内には、放射光を用いた集光・結像テストを実施するには至らなかった。今後、放射光を用いた集光さらには結像テストをさらに進め、実際に球面収差がビーム形状を律速する集光条件において、光学系の収差補正特性ならびに集光・結像特性の評価を進める計画である。

本研究開発において、球面鏡をペアで用いることで球面収差を補正し、サブマイクロメートルの空間分解能が得られる軟 X 線結像型光学系を開発・製作した。最適な光学パラメータの決定方法を確立するとともに、4 枚の集光素子を用いることから生じる、光学素子の精密アライメントを達成するための機構を開発した。設計した光学系をもとに試作機を製作し、レーザーを用いたオフライン評価によって、装置の基本性能ならびに設計の妥当性を確認することができた。最終的に到達性能を確認するまでには至らなかったが、本研究によって、時間分解軟 X 線顕微分光装置を展開するための足掛かりを築くことができた。今後、さらに光学系の最適化を進めることで結像型軟 X 線顕微鏡として完成させ、X 照射がもたらす照射損傷の実態を明らかにすることを目指す予定である。

#### 参考文献

- [1] 例えば、J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 170 巻 (2009)において、試料損傷問題に関する特集が企画されている。
- [2] H. Wolter, Ann. Phys. 10 (1952), 96.
- [3] Y. Suzuki and A. Takeuchi, Jpn. J. Appl. Phys. 49 (2010) 106701.

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 為則雄祐、高輝度軌道放射光施設における軟 X 線分光研究、第一回先進生命物質工学フォーラム、2012 年 10 月 26 日、播磨 (兵庫県立先端科学技術支援センター)
- ② 為則雄祐、軟 X 線吸収分光法で何が分かるか?、実環境計測に基づく高温電極の界面領域エンジニアリング研究会、2012 年 8 月 7 日、つくば (産業技術総合研究所)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

為則 雄祐 (TAMENORI YUSUKE)  
公益財団法人高輝度光科学研究センター  
利用研究促進部門・副主幹研究員  
研究者番号：10360819

(2)研究分担者

( )

研究者番号：

(3)連携研究者

( )

研究者番号