

Wolter 3 型配置を取り入れた Advanced KB 結像光学系の開発

理化学研究所 放射光科学研究センター 山田純平

人間の目に見えないほどの小さな世界を観察したい。この探究心が古今東西の顕微鏡研究、延いては科学の発展を支えてきた。最近では超解像蛍光顕微鏡・クライオ電子顕微鏡がノーベル化学賞を受賞し、また物理学賞でなく「化学賞」を受賞した事実からも、顕微観察技術が多岐に渡る学術研究・応用研究に不可欠であることが伺い知れる。さて、X線をプローブとして顕微鏡を構築すると、どんな利点があるであろうか。X線の短波長性・高透過性などといった性質、および発展目覚ましい可視光・電子顕微鏡との差別化を考慮すると、「厚みを持ったバルク試料の内部構造を高空間分解能に3次元観察可能であること、同時に、X線分光分析技術との融合が可能であること」であると思われる。

このような特性を備えたX線顕微鏡の一つとしてAdvanced Kirkpatrick-Baez (KB) ミラー光学系[1]に基づく結像型X線顕微鏡が開発されてきた。これまでに開発されたAdvanced KB ミラーは、1次元のWolter 1 型ミラー[2]を直行直列配置した光学系 (AKB-I) (図1 (a)) と言い換えることができ、鉛直・水平それぞれの方向に関して、双曲・楕円の凹ミラーペアの2回反射により試料からのX線を導く。全反射現象に基づきX線結像を行なうことができるため、色収差が無い点で顕微分光への応用に優れており、高反射率の面でハイスループットなトモグラフィ (3次元) 観察に対して利点がある。またKB 元来の直行直列配置を踏襲しているため、ミラー表面は平坦に近い形状を有しており、その形状を高精度に作製可能であることから、回折限界性能に迫る高空間分解能を実現可能である。これまでに、1枚の基板上に1次元Wolter ミラーを高精度に作り込むことで安定性の高い光学系が構築され、線幅分解能で50nmを下回る性能や、X線吸収分光や蛍光X線分析といった

顕微分光への応用が実証されている[1, 3]。

しかしながらこれらの先行研究では、検出器の画素サイズと結像における拡大倍率によって幾何学的に分解能が制限されることを避けるために、数十メートルの大きなセットアップを必要としていた。AKB-I 型配置においては主面 (倍率の決定基準, 図1 (a)) が楕円と双曲の中間あたりに存在し、実効焦点距離を作動距離や双曲ミラー長さそのものより短くすることができず、大拡大倍率のためにはカメラ長を大きく取らざるを得なかったわけである。また特に、直行直列配置としているため、試料から遠い側のミラーペアは自ずと倍率が低くなり、光学系の設計自由度や顕微鏡としての汎用性を制限してしまうという問題があった。

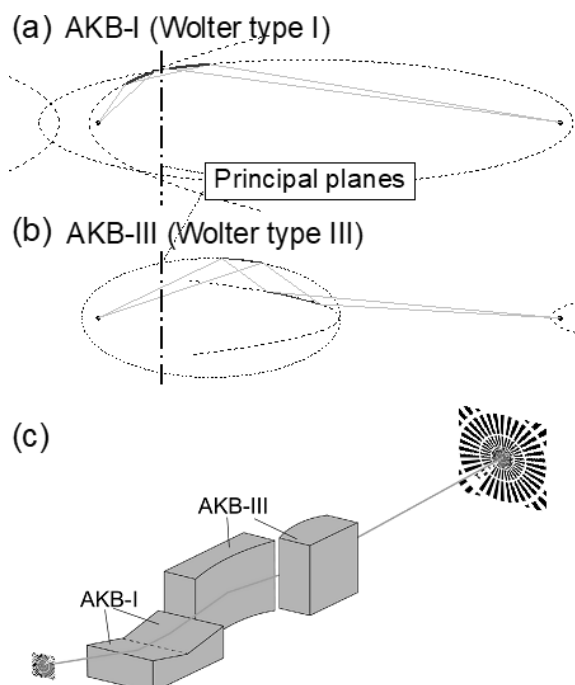


図1. (a, b) AKB-I 型および AKB-III 型光学系の1次元断面図. (c) 本研究にて開発した結像光学系の概念図.

本研究では、Wolter 3 型配置を取り入れた新たな advanced KB ミラー (AKB-III) (図 1 (b)) [4, 5] を導入することで、上記の問題を克服する結像光学系を構築した。AKB-III 型光学系は、試料に近い側に楕円凹ミラー、次に双曲凸ミラーを配置している。最大の特徴は、双曲の凸ミラーを導入することで光を拡大する方向に反射することである。これにより、主面を試料側へ近づけることができ、全体として小型なセットアップにおいても拡大倍率を飛躍的に高くすることが可能である。従来の Advanced KB ミラーと同様、楕円と双曲の 2 回の反射により光路長一定のまま光を導き、近似的に Abbe の正弦条件を満たすためコマ収差を低減できる。本光学系に用いる各ミラー表面は、それぞれほぼ平面に近い非球面形状であることから、既存の超精密加工・計測技術により、高精度な作製が可能である。また、曲率の正負が異なる反射面を組み合わせることで、ペッツバル和 [6] が 0 へと近づき、結像光学系としての像面湾曲を比較的低減する効果も確認されている [4]。

本研究では、AKB-III 型光学系の倍率に対する設計自由度の高さを上手に取り入れ、図 1 (c) に示す AKB 1-3 型ハイブリッド光学系を設計・開発した [7]。鉛直方向に従来の AKB-I 型、水平方向に新たな AKB-III 型ミラーを配置し、互いの主面の位置をほとんど一致させつつ、全長 2 m において約 44 倍の拡大倍率を実現する。作動距離約 25 mm、開口数 0.001、反射面を Ir 成膜した場合のカットオフエネルギーを 15 keV として設計している。

本光学系の構築にあたり重要となるのは、やはりその作製精度である。計算機実験による検討では、求められる形状精度約 2 nm PV と見積もられた [4]。大阪大学山内研究室にて開発された、超精密 X 線ミラー作製技術 (EEM 加工およびステッチング干渉計) [8-10] により、4 枚のミラー反射面を 1.5~2 nm PV の精度で作製した。

同時に、ミラーペア同士の相対配置の精度、いわばアライメント精度も重要となってくる。結像性能の安定性の観点から考えると、先行研究にて AKB-I 型ミラーが一体型基板に作り込まれたように [1], AKB-

III 型光学系も楕円・双曲のミラーペアが一体化したユニットとすることが望ましい。一方で、AKB-III 型光学系は 2 枚のミラーが対向配置をとるため、同一基板上への作り込みは適用できない。このため、以下の検討のもと、シリコン母材基板上への対向配置ミラーペアの固定化を試みた。

2 枚のミラーの相対配置として、結像特性に大きく影響を及ぼすのは図 2 (a) に示す相対角度および相対距離 (隙間方向) である [4, 5]。フレネル・キルヒホッフ回折積分に基づく計算機実験により、配置誤差が存在する場合の、焦点近傍での点拡がり関数 (PSF) を評価した (図 2 (a) 下段)。それぞれ数十 μrad レベル、数 μm レベルの配置誤差が結像におけるコマ収差を生むこと、また、微小なコマ収差は互いに打ち消しあうことを明らかにした。この結果に基づき、X 線を用いた集光 (縮小結像) 実験により、対向配置ミラーペアの固定化を実施した。集光後発散する X 線の波面誤差を、シングルグレーチング干渉計 [11] により測定しつつ相対角度を変化させ、コマ収差の最小化調整を行なった。調整結果の波面誤差プロファイ

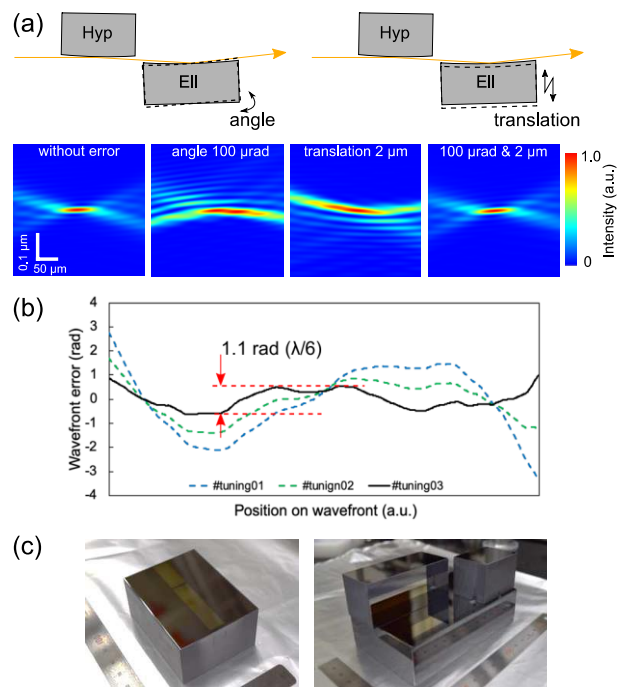


図 2. (a) AKB-III 型光学系のアライメントに関するシミュレーション結果. (b) X 線波面計測によるアライメント評価結果. (c) 開発したミラーの外観.

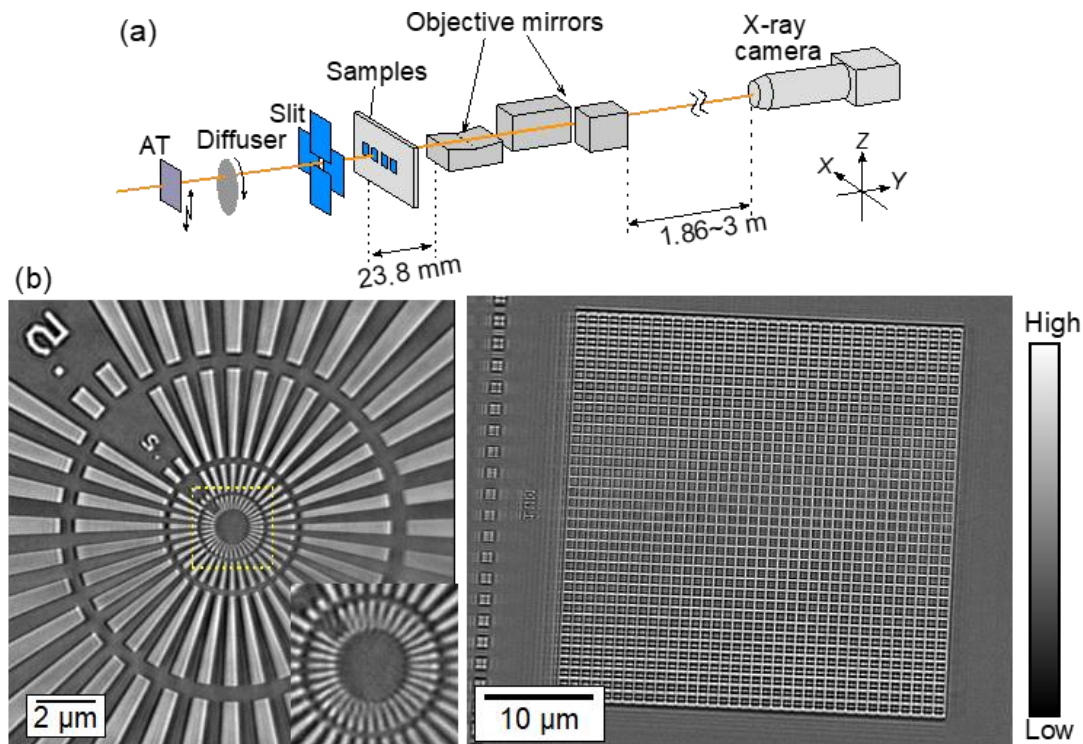


図 3. (a) X 線結像実験の光学配置概略図. (b) 取得した X 線像.

ルを図 2 (b) に示す. 数回の相対角度調整により, コマ収差に対応する 3 次関数波面誤差減少している様子が示されている. 引き続きコマ収差関数を測定しつつ, 紫外線硬化樹脂を用いてシリコン母材基板へと対向配置を固定化した. 図 2 (b) 黒線に固定化後の波面誤差, 固定後のミラー外観を図 2 (c) に示す. なお, 鉛直方向の AKB-I 型ミラーは前述のように一体型基板上への作り込みにより作製した.

作製した結像ミラーを用いて X 線拡大結像実験を実施した. 実験は SPring-8 BL29XU の実験ハッチ 2 にて行なった. 実験配置を図 3 (a) に示す. 原理実証のため, 照明光学系は導入しておらずほとんど平面波による照明となっている. 試料からの X 線は結像ミラーにより 1.86~3 m 離れたレンズカップル型の X 線カメラ (実効ピクセルサイズ 0.65~1.3 μm , 2048×2048pixel) へと導かれ, 拡大像を結ぶ. カメラ長および実効ピクセルサイズは, 所望の倍率・画角サイズに応じて調整した. タンタル製テストチャート (NTT-AT 社 XRES0-50, 厚み 500 nm) の光子エネルギー 15 keV における X 線像を図 3 (b) 左側に示す.

視野全体に均一なコントラストにて, 最小構造 50nm 線幅が解像されていることが分かる. また像特性は 30 時間以上に渡って安定しており, 9~15 keV の光子エネルギー範囲においてほとんど遜色のない結像結果が確認された[7]. また, 図 3 (b) 右側に画角サイズ約 54 (横) × 45 (縦) μm で撮像した 1 μm ピッチ格子パターンを示す. 特に縦方向において, 中心付近と画角の端領域でデフォーカスに起因するコントラストの差が観察でき, 結像ミラーの像面湾曲収差により実効視野 (良好な分解能が得られる空間領域) が制限されていることが分かる. 得られた像より, 結像ミラーにより決まる実効視野はおおよそ縦 11 μm × 横 18 μm であると見積もられた. 構築した顕微鏡をトモグラフィ観察に応用し, Si0.7mm の厚い基板上の 300nm 構造の 3 次元像取得にも成功した[7].

本実験で得られた像には, 図 3 (b) 左側の最小構造付近からも分かるように, 水平方向 AKB-III 型ミラー由来のコマ収差が残存している. おそらく配置固定を行なった実験から結像実験までの期間 (数ヶ月) の間に, 温度や湿度の変化といった要因で配置ずれ

が生じたと予想される。その後の研究において、高安定な配置調整機構が開発されており、収差特性の非常にきれいな X 線像の取得が可能となっている。また、見積もられた実効視野は比較的小さな値となったが、これは焦点距離の長い、もしくは斜入射角の大きなミラー設計により像面湾曲収差が緩和され、実効視野が増大することが見込まれている。例として、光子エネルギー 8 keV において多層膜反射を用いる大入射角結像ミラーでは、30~40 μm 程度の視野を達成している。本実証実験においては、ミラーのパーティクル汚染を避けるためアッテネータ (Si 0.2~0.5 mm 厚) を使用しており、X 線像 1 枚あたりの露光時間は 1~60 秒程度に留まっていた。現在では、真空/He 環境の導入によりアッテネータが不要になり、また空気パスによる吸収が減ったため、露光時間 0.2~10 秒程度まで短縮されている。今後、照明光学系の導入により、さらに 5~20 倍程度の向上を見込んでいる。顕微鏡システムの今後の課題として、「色収差無し特性を活かした 2 次元/3 次元の X 線顕微分光応用」および「位相イメージング手法の確立」が挙げられる。特に前者は、オペランド XAFS イメージングやナノ XAFS-CT として、固体触媒・デバイスを対象とした幅広い研究分野へと寄与していきたい。最後に蛇足になるかもしれないが、AKB-III 型結像ミラーの集光光学素子としての利用について、特性と展望を述べたい。ミラーの結像特性が集光の安定化に寄与すること [12] に加えて、光学系の主面をシフトすることにより倍率の設計自由度を高める AKB-III 型光学系は、次世代放射光施設における硬 X 線ナノ集光においても活用の余地があると考えられる。近年世界中で、急速に低エミッタンス化リング光源の建設が進められているが、現状予測されている光源性能は、特に水平方向光源サイズ/エミッタンスにおいて「回折限界」にそれでも届かない。このため、KB ミラーにより 100 nm 以下の硬 X 線集光を、2 次・仮想光源無しに行なうためには、ビームライン長さ、集光スループットの減少、10 mm レベルの短い作動距離の制限、のいずれかが必ず問題となる。AKB-III 型結像ミラーは、この問題を解決可能な候

補の一つと考えられ、実際に現在、倍率の設計自由度を活かした X 線自由電子レーザー-SACLA 向け sub-10 nm 集光光学系の開発を進めている。

本研究は、名古屋大学大学院工学研究科 松山智至准教授、大阪大学大学院工学研究科 山内和人 教授、理化学研究所放射光科学研究センター 石川哲也 センター長・矢橋牧名グループディレクター・香村芳樹ユニットリーダー、株式会社リガク X 線研究所 表和彦所長・武田佳彦博士・廣瀬雷太博士との共同研究によるものである。また本研究は、理化学研究所基礎科学特別研究員制度、JSPS 特別研究員制度 (DC1)・科研費「基盤研究 A」、JST A-STEP の支援の下、遂行された。

参考文献

- [1] S. Matsuyama et al.: Sci. Rep. 7, 46358 (2017).
- [2] H. Wolter: Ann. Phys. 445, 94-114 (1952).
- [3] S. Matsuyama et al.: Opt. Express 27(13), 18318-18328 (2019).
- [4] J. Yamada et al.: Appl. Opt. 56(4) 967-974 (2016).
- [5] J. Yamada et al.: Opt. Express 27(3), 3429-3438 (2019).
- [6] M. Born and E. Wolf: "Principles of Optics, 7th ed." Cambridge University, (1999).
- [7] J. Yamada et al.: Optica 7(4), 367-370 (2020).
- [8] K. Yamauchi et al.: Rev. Sci. Instrum. 73(11), 4028 (2002).
- [9] K. Yamauchi et al.: Rev. Sci. Instrum. 74(5), 2894 (2003).
- [10] H. Mimura et al.: Rev. Sci. Instrum. 76(4), 045102 (2005).
- [11] J. Yamada et al.: Sensors 20, 7356 (2020).
- [12] 松山智至: 放射光 31(1), 22-31 (2018).