応用講座４　　　X 線マイクロビーム

兵庫県立大学大学院物質理学研究科　　津坂佳幸

１．　はじめに

SPring-8 に代表される第三世代放射光源の出現以来、X 線マイクロビームの形成とその応用研究が急速に進歩してきている。それには、光源の低エミッタンス化だけでなく、さまざまな光学素子を作製する精密加工技術の進歩も大きな役割を果たしている。物質科学、生命科学の分野でこれまで用いられてきた多種の解析手法を、X 線マイクロビームを用いて行うことは、対象となる試料の局所的な情報が得られる上で非常に有用である。本講座では、マイクロビーム形成に関する知識として、光学素子を中心に、それを用いた応用研究例について紹介する。

２．　X 線の光学的性質

X 線領域の物質の屈折率は複素屈折率 n を用いて次のように表せる。

$$n = 1 - \delta - i\beta \tag{2.1}$$

ここで、δ、β はそれぞれ位相のずれ、吸収を表す因子であり、

$$\delta = (N_a r_e \lambda^2 f_1)/(2\pi) \tag{2.2}$$

$$\beta = (N_a r_e \lambda^2 f_2)/(2\pi) \tag{2.3}$$

である。N_a は原子密度、r_e は古典電子半径、λ は X 線の波長、f_1、f_2 は原子による散乱、吸収を表す因子であり、これは元素の種類と X 線の波長によって決まる。物質が単体の場合、(2.2)式は

$$\delta = (N_a r_e \lambda^2)/(2\pi) \times \rho \cdot (Z/A) \tag{2.4}$$

と書ける。ここで、ρ は物質の密度、Z は原子番号、A は質量数である。δ、β は 1 に比べて非常に小さい値である。屈折率が 1 にほぼ等しいことから、X 線をレンズ等で集光することは困難である。

X 線領域の全反射は、可視光とは対照的に、真空から物質に臨界角より小さな斜入射角で入射するときするときに起こる。これは(2.1)式にあるように、X 線領域の屈折率が 1 より僅かながらも小さいからである。スネルの法則より、吸収を無視すると、

$$\cos \theta_c = 1 - \delta \tag{2.5}$$

であり、™<<1より、$\cos \theta_c \sim 1 - \theta_c^2/2$ だから、

$$\theta_c = (2\delta)^{1/2} \tag{2.6}$$

と近似できる。θ_c は臨界角である。(2.4)式を用いると、(2.5)式は、

$$\theta_c = 1.6 \times 10^{-2} \lambda \rho^{1/2} \tag{2.7}$$

となる。ここで、斜入射角の単位は mrad、波長は nm、密度は g/cm³ の単位で表している。θ_c は例えば、白金の 0.1nm の X 線に対して 7.4mrad である。

屈折率 n_1、n_2 を持つ二つの物質の界面での p 偏光、s 偏光に対する反射振幅 r_s、r_p はフレネルの式により、次のように与えられる。

$$r_s = (n_1 \sin \theta_1 - n_2 \sin \theta_2)/(n_1 \sin \theta_1 + n_2 \sin \theta_2) \tag{2.8}$$

$$r_p = (n_1 \sin \theta_2 - n_2 \sin \theta_1)/(n_1 \sin \theta_2 + n_2 \sin \theta_1) \tag{2.9}$$

θ_1、θ_2 は、それぞれ界面から測った斜入射角、屈折角である。反射強度、あるいはエネルギー反射率はそれぞれ複素共役をとり、

$$Rs = r_s^* r_s,\ Rp = r_p^* r_p \qquad (2.10)$$

である。全反射の場合、その入射角は極端な斜入射であり、その反射率はほとんど偏光に依らない。全く偏光がない場合、反射率は次のようになる。

$$R = (Rs + Rp) / 2 \qquad (2.11)$$

これは、臨界角θc を用いて以下のように整理できる。

$$R = (h - x (2(h-1))^{1/2}) / (h + x (2(h-1))^{1/2}) \qquad (2.12)$$

ただし、$h = x^2 + ((x^2-1)^2+a^2)^{1/2}$, $x = \theta/\theta c$, $a = \beta / \delta$である。

図2.1に臨界角で規格化したときの反射率、図2.2に Si に対する 10keV の X 線の反射率を示す。

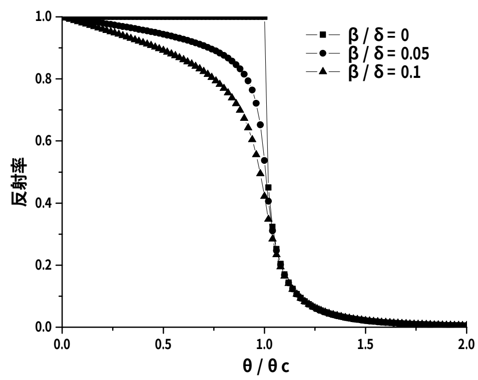

図 2.1

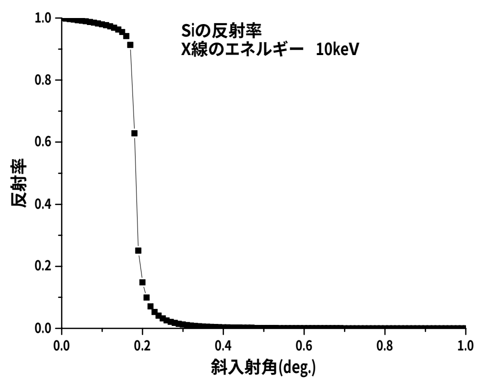

図 2.2

３．　斜入射全反射ミラー

斜入射ミラーは、前述した X 線の全反射を利用して集光する光学素子である。全反射を利用するため、次節で紹介するゾーンプレートとに比べ集光効率は高い。しかしながら、多くの場合その加工精度が十分でなく、分解能は製作時のスロープエラーで規定されている。

3.1　球面ミラー

最も簡単な光学系は図 3.1 に示す凹面鏡である。この光学系の経線方向および緯線方向の焦点距離はそれぞれ、

$$f_l = (R \sin \alpha) / 2, \quad f_p = R / (2 \sin \alpha) \qquad (3.1)$$

で与えられる。ここで、R は凹面鏡の曲率半径、α は斜入射角である。斜入射光学系では、経線方向、緯線方向の焦点距離が大きく異なるため、凹面鏡 1 枚で 2 次元的な集光は期待できない。

トロイダルミラーは、この凹面鏡の非点収差を除去する目的で使用される。(3.1)式で、経線方向の曲率半径を R_l、緯線方向の曲率半径を R_p とし、f_l と f_p を等しいとおくと、

$$R_p / R_l = \sin^2 \alpha \qquad (3.2)$$

が得られる。(3.2)式を満たすようにミラーを製作すれば、2 次元的な集光が期待できる。後述の楕円ミラーや Wolter ミラーに比べ、加工が容易なため実用的である。

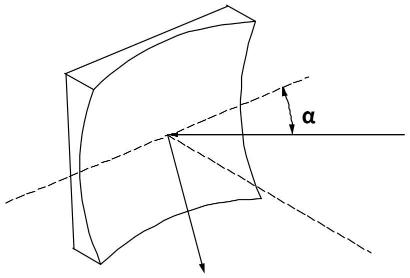

図 3.1　凹面鏡

凹面ミラーの非点収差を除去するもう一つの方法は、鉛直方向と水平方向の集光をそれぞれのミラーで集光する手法である（Kirkpatrick-Baez 光学系　図 3.3）。

球面ミラーや次項の回転楕円ミラーの場合、アッベの正弦条件を満足していないため、理想的な結像はできない。

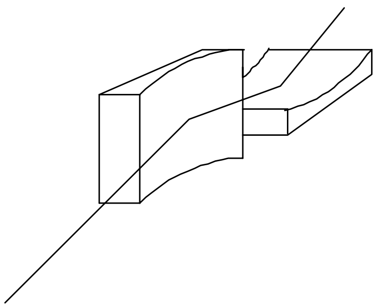

図 3.2

3.2　回転楕円面ミラー

楕円の光学的性質は、「任意の点における法線は、その点から 2 つの焦点を結んだ線分のなす角を二分する。」である。この性質を利用すると、一方の焦点に置いた点光源を他方の焦点に理想的に集光することができる（図 3.3）。しかしながら光源に有限の大きさがある場合は、収差によってその像がぼけてしまう。この場合の幾何学的なぼけ Δ は、倍率を $M(r_2/r_1)$ として、近似的に

$$\Delta = M \times \Delta_0 \qquad (3.3)$$

で表される。ここで Δ_0 は、光源の大きさである。M を小さくすれば幾何学的なぼけは小さくできるが、臨界角やミラーの加工制限などのため、数 100 分の 1 というような倍率は実現不可能である。

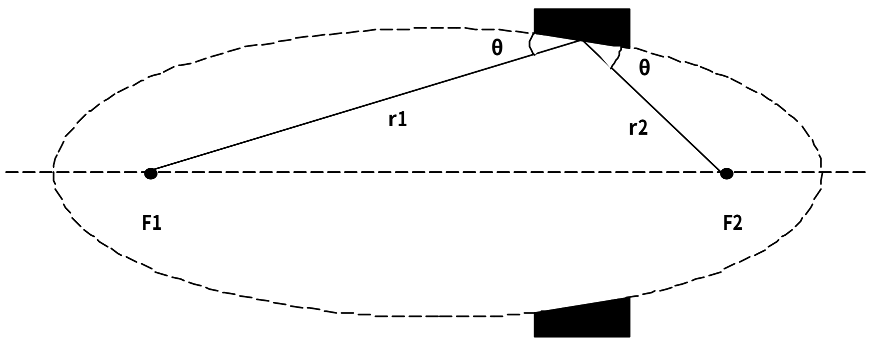

図 3.3

極端斜入射光学系を用いるとき、図 3.3 の θ は非常に小さいので、楕円ミラーの開口数 NA は 2θ に近似できる。レイリーの空間分解能 Δ(nm)は、

$$\Delta = 6.1\lambda / NA \geqq 6.1\lambda / 2\theta c$$

で与えられ、(2.7)式を用いると、

$$\Delta \geqq 19.1 / (\rho)^{1/2}$$

となる。つまり、光学系の分解能の限界は波長に依存せず、反射面の密度だけで決まる。種々の物質で、Δは数 nm のオーダーでありが、実際の分解能はミラーの加工精度で決まっている。

3.3 Wolter ミラー

1 枚のミラーでは、アッベの正弦条件を満足しないため、球面ミラーや楕円ミラーは、光学的には高分解能な結像には適していない。この問題を解決するため、Wolter は 3 つの type の光学系を考案した。図 3.4 に Wolter type I 型の光学系を示す。この光学系は、回転楕円面と回転双曲面の組み合わせであり、楕円の一方の焦点と双曲面の一方の焦点を一致させてある（図中の F2）。双曲面の光学的性質は、「任意の点における接線は、その点から 2 つの焦点を結んだ線分のなす角を二分する。」である。つまり、F1 から出た光線は楕円面で反射した後、F2 に向かうのであるが、その後双曲面で再度反射され、F3 に集光する光路をとる。二枚のミラーを用いることで、近似的にアッベの正弦条件を満足することが示されている。

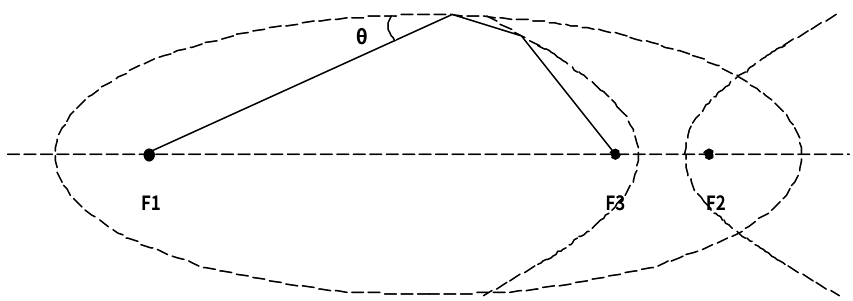

図 3.4

４．　ゾーンプレート

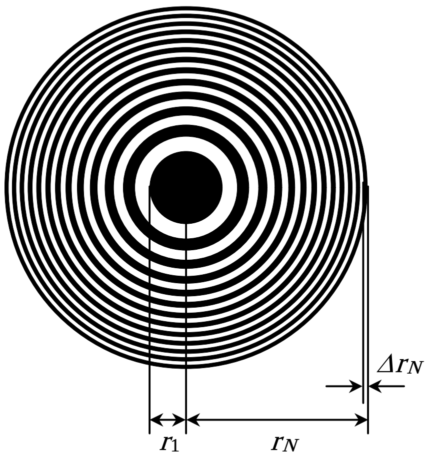

図 4.1 ゾーンプレート

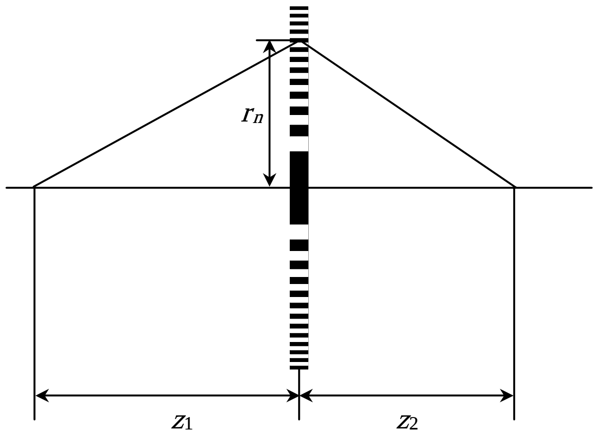

図 4.2 ゾーンプレートの結像作用

ゾーンプレートは図 4.1 に示すような、入射光に対して透明、不透明の輪帯を交互に繰り返した透過型円形回折格子である。奇数番目の輪帯が透明なものを正のゾーンプレートといい、偶数番目の輪帯が透明なものを負のゾーンプレートという。ゾーンプレートの焦点距離は、入射光の波長をλとしたとき図 4.2 に示すように、隣り合う境界による光路差が$\lambda/2$ であるという条件から導くことができる。すなわち、物体と像がともに光路上にあるとし、物体からゾーンプレートまでの距離とゾーンプレートから像までの距離をそれぞれ z_1 及び z_2、ゾーンプレートの n 番目の境界の半径を r_n とすると、

$$z_1 + z_2 + \frac{n\lambda}{2} = \sqrt{{z_1}^2 + {r_n}^2} + \sqrt{{z_2}^2 + {r_n}^2} \tag{4.1}$$

が成り立てばよい。右辺を展開して整理すると、

$$n\lambda = {r_n}^2\left(\frac{1}{z_1} + \frac{1}{z_2}\right) - \frac{1}{4}{r_n}^4\left(\frac{1}{{z_1}^3} + \frac{1}{{z_2}^3}\right) + \cdots \tag{4.2}$$

となり、$r_n \ll z_1$、z_2 ならば右辺の高次項は無視できて、焦点距離 f を

$$f = \frac{{r_n}^2}{n\lambda} = \frac{{r_1}^2}{\lambda} \tag{4.3}$$

とおけば、薄レンズの結像公式

$$\frac{1}{z_1} + \frac{1}{z_2} = \frac{1}{f} \tag{4.4}$$

が成り立ち、ゾーンプレートがレンズの働きをすることがわかる。n 番目の境界の半径は、4.3 式から

$$r_n = (nf\lambda)^{1/2},\ n = 1, 2, \cdots, N \tag{4.5}$$

で与えられる。ゾーンプレートの結像作用は回折光の干渉によって起こるので、高次の焦点も存在する。4.1 式において $n\lambda/2$ の代わりに $n(2m+1)\lambda/2$ とすれば、$2m+1$ 次の焦点距離は

$$f_{2m+1} = \frac{f}{(2m+1)}, m = 0, \pm 1, \pm 2, \Lambda \tag{4.6}$$

で与えられる。

ゾーンプレートの振幅透過率はフーリエ級数で表すことができ、半径 r における値 $T(r)$は正のゾーンプレートについて、

$$T(r) = \frac{1}{2} - \frac{i}{\pi}\sum_{K=0}^{\infty}\frac{1}{2K+1}\exp\frac{2\pi i(2K+1)r^2}{2\lambda f} + \frac{i}{\pi}\sum_{K=0}^{\infty}\frac{1}{2K+1}\exp\frac{-2\pi i(2K+1)r^2}{2\lambda f} \tag{4.7}$$

で表される。4.7 式から、ゾーンプレートに波長λの平面波を垂直に入射させると、第 2 項は f_{2K+1} の各点に焦点を結ぶ収束球面波、第 3 項は$-f_{2K+1}$ の各虚焦点から発散する球面波を生ずることがわかる。各次数の回折効率は、4.7 式の各項の係数の絶対値の 2 乗で与えられるので、0 次光、すなわち光軸方向に進む平面波の効率 E_0 は、

$$E_0 = \left(\frac{1}{2}\right)^2 = 25\% \tag{4.8}$$

$2m+1$ 次光の効率 E_{2m+1} は、

$$E_{2m+1} = \left|\frac{i}{(2m+1)\pi}\right|^2 \tag{4.9}$$

で与えられる。従って、E_1 = 10.1 %、E_3 = 1.12 %、E_5 = 0.4 %…となる。また、不透明部分によって、入射光の 50 %のエネルギーが失われる。このように、振幅透過率が 0 と 1 を繰り返すゾーンプレートでは回折効率が低いので、不透明輪帯を薄膜にしてそこを通過する際の光波の位相変化をπとする位相ゾーンプレートがある。このときの振幅透過率は 1 と–1 の繰り返しとなり、半径 r における値は、

$$T(r) = \frac{4}{\pi}\sum_{K=0}^{\infty}\frac{1}{2K+1}\sin\frac{2\pi(2K+1)r^2}{2\lambda f} \tag{4.10}$$

で与えられる。各次数の回折効率は、$I_0 = 0$、$I_1 = |2i/\pi|^2 = 40.5\%$、$I_2 = |2i/3\pi|^2 = 4.5\%$となり、4 倍の向上が期待できる。実際には、薄膜による吸収が伴うので効率は低下する。薄膜による吸収を考慮した位相ゾーンプレートの $2m+1$ 次光の回折効率は、

$$I_{2m+1} = \frac{1}{(2m+1)^2\pi^2}\left(1 + e^{-2\psi} - 2e^{-\psi}\cos\phi\right) \tag{4.11}$$

で与えられる。ただし、

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda}\delta t、\psi = \frac{2\pi}{\lambda}\beta t \tag{4.12}$$

であり、t は半透明部分の厚さである。

ゾーンプレートをレンズとして用いたときの点像関数は、ゾーン数 Nが $N \geqq 100$ ならば、等しい開口を持つレンズとほぼ同じ関数になることが確かめられている。従って、ゾーンプレートの空間分解能Δはレーリーの定義、すなわち、

$$\Delta = \frac{0.61\lambda}{N.A.} \tag{4.13}$$

を用いて求めることができる。ここで、$N.A.$は開口数である。ゾーンプレートの $N.A.$は、$r_N \ll f_{2m+1}$ な

らば次式で近似できる。

$$\begin{aligned} N.A. &= \sin\left(\frac{r_N}{f_{2m+1}}\right) \\ &\approx \frac{r_N}{f_{2m+1}} \\ &\approx \frac{(2m+1)N\lambda}{r_N} \end{aligned} \tag{4.14}$$

ゾーンプレートの最外輪帯幅Δr_Nは、

$$\Delta r_N = r_N - r_{N-1} \approx \frac{r_N}{2N} \tag{4.15}$$

と表すことができるので、4.14、4.15 式から開口数 $N.A.$は、

$$N.A. = \frac{(2m+1)\lambda}{2\Delta r_N} \tag{4.16}$$

で与えられる。従って、4.16 式を 4.13 式に代入して

$$\Delta \approx \frac{1.22\Delta r_N}{2m+1} \tag{4.17}$$

という結果が得られる。このように、ゾーンプレートを結像素子に用いた顕微鏡においては、ゾーンプレートの最外輪帯幅を狭くすればするほど高い分解能を得られることになる。また、利用する回折次数を高くすれば効率は低くなるがより高い分解能が得られる。ただし、高次回折を利用する場合は相対的に強度が高い低次の回折光を除去する必要がある。

ゾーンプレートは回折効果を利用した光学素子であるので、色収差を避けるには入射光に単色性が必要である。入射光の波長変化分を$\Delta\lambda$とし、それに伴う焦点距離の変化分をΔfとすると 4.3、4.6 式から、

$$\left|\frac{\lambda}{\Delta\lambda}\right| = \left|\frac{f_{2m+1}}{\Delta f_{2m+1}}\right| \tag{4.18}$$

が得られ、軸上強度が焦点の 80 %を下らない範囲という焦点深度の定義

$$\left|\Delta f_{2m+1}\right| = \frac{\lambda}{(N.A.)^2} = \frac{4\Delta r_N{}^2}{(2m+1)^2\lambda} \tag{4.19}$$

を用いれば、入射光に求められる単色性$\lambda/\Delta\lambda$は、

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} \geq N(2m+1) \tag{4.20}$$

となる。従って、4.17 式の空間分解能を得るためには、この条件が満足されていなければならない。