

走査型蛍光 X線顕微鏡による 100 nm 元素分析

渡辺紀生^a、青木貞雄^a、大東琢治^a、松原純一^a、奥野憲一郎^a、高野秀和^b、竹内晃久^b、鈴木芳生^b

^a筑波大学物理工学系、^b高輝度光科学研究センター

背景: BL20XU はビームラインの長さが約 250 m あることから、広い空間コヒーレンス領域が利用できる。ゾーンプレートを用いた場合には、その全面をコヒーレントに照明できるため、ほぼ回折限界の 100 nm 程度の集光スポットが得られている¹⁾。このマイクロビームを利用して、走査型微分位相コントラスト顕微鏡も構築されている²⁾。本研究では、これらの顕微鏡システムを利用して走査型蛍光 X 線顕微鏡を構築し、半導体材料、生物試料等の元素マッピングを 100 nm 分解能で行うことを目的とした。そして、 β -FeSi₂、赤血球、好酸性光合成細菌 (*Acidiphilium rubrum*) の元素分析を行った。

光学系: 実験は BL20XU の走査型 X 線顕微鏡装置において 9.7 keV X 線を用いて行った。図 1 に実験のレイアウトを示す。集光素子として、Ta 製ゾーンプレートを用いた。ゾーンプレートの仕様は、直径 155 μm 、最外輪帯幅 0.1 μm で、回折限界の理論分解能は 0.12 μm となる。ゾーンプレート 1 次光以外の次数の回折光をカットするために直径 20 μm のピンホールを OSA (Order Sorting Aperture) として用いた。また、ゾーンプレートの 0 次透過光をカットするために、エポキシ樹脂に直径 30 μm の金のワイヤーを埋め込んだセンターストップをゾーンプレート手前にセットした。入射 X 線及び透過 X 線モニターはイオンチェンバーで行った。試料からの蛍光 X 線測定には、SDD (Silicon Drift Detector) を試料から 10 mm の距離に置いた。また、ピンホールホルダーに光学顕微鏡を設置し、試料を

モーターステージで上に移動させると光学顕微鏡で試料位置調整が行えるようにした。

図 2 にタンタルラインパターン (ライン 0.1 μm & スペース 0.1 μm 、厚さ 0.5 μm) の X 線透過像を示す。理論分解能から予想されるように、0.1 μm 線幅をはっきりと分解結像させることができた。また、集光点で約 6×10^7 photons/s の強度が得られた。

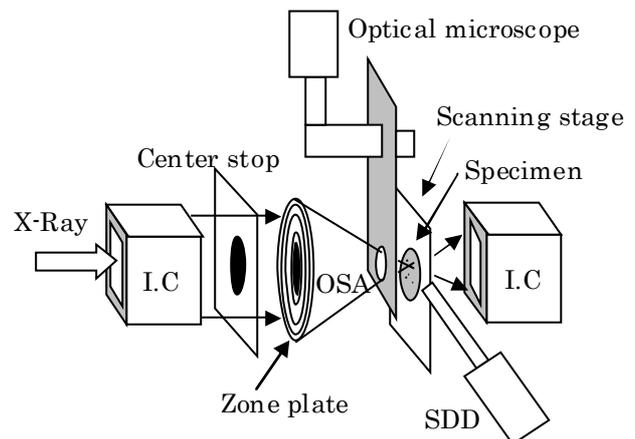


図 1 走査型 X 線顕微鏡のレイアウト

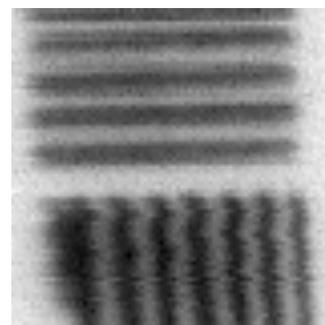


図 2 0.1 μm ライン & 0.1 μm スペースパターンの透過 X 線像。パターン: 厚さ 0.5 μm Ta, 9.7 keV.

蛍光 X 線分析: β -FeSi₂ は赤外領域の発光素子として注目されている。発光素子とするために、

Si 基板に β -FeSi₂の薄膜を形成した後、アニーリングによって集合させてアイランド状構造を形成している³⁾。Si 中でのこの β -FeSi₂の埋め込み状況を見るために、 β -FeSi₂の Fe 蛍光 X 線による観察を行った。アニーリング前の β -FeSi₂の厚さとして 10 nm の試料を用いた。図 3 にその像を示す。100 nm 程度の大きさの β -FeSi₂の構造を明瞭に観察することができた。蛍光 X 線強度はピーク強度で 200~250 counts/s が得られた。

生物試料として、ニワトリ赤血球および好酸性光合成細菌の観察を行った。赤血球はエタノール固定した後、厚さ 7.5 μ m のカプトン膜に塗布して空气中で乾燥させた。図 4 に得られた Fe 蛍光 X 線像を示す。

好酸性光合成細菌は、一般的な Mg ではなく Zn バクテリオクロフィルが光合成に関与しているという特徴がある⁴⁾。このバクテリオクロフィルが細菌内のどこに位置しているかを見るために、Zn 蛍光 X 線 (K α : 8.63 keV) による結像実験を行った。細菌は、培養後凍結保存されていたペースト状の細菌を常温に戻し、グルタルアルデヒド固定した後、石英薄膜 (厚さ 33 μ m) の上に塗布した。図 5 に得られた像を示す。蛍光 X 線の最大強度は 48 counts/10 s だった。

細菌内での Zn 分布を明らかにするためには、細菌の位置を明らかにする必要がある。今回の実験では、透過 X 線モニター用の CCD カメラをイオンチャンバー下流側に設置して、走査型微分位相コントラスト顕微鏡によって透過 X 線から試料の外形を検出することを試みた。しかし、それでも十分なコントラストが得られず、細菌が図 5 のなかでどのように配置しているかを明確にすることができなかった。このように蛍光 X 線強度が弱い試料の場合、試料の外形をどのように対応づけるかは今後の課題である。

謝辞: 本研究において、筑波大学物理工学系、末益崇助教授には β -FeSi₂試料を、また筑波大学物質工学系、小林正美助教授には、好酸性光合

成細菌試料を提供して頂きました。ここに厚く感謝致します。

参考文献:

- 1) Hidekazu Takano, Yoshio Suzuki and Akihisa Takeuchi, Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L132.
- 2) H. Takano, K. Uesugi, A. Takeuchi, K. Takai and Y. Suzuki, J. Phys. IV France 104 (2003) 41.
- 3) T. Suemasu, Y. Negishi, K. Takakura, and F. Hasegawa, Appl. Phys. Lett. 79 (2001) 1804.
- 4) Norio Wakao, Naoto Yokoi, Naohito Isoyama, Akira Hiraishi, Keizo Shimada, Masami Kobayashi, Hideo Kise, Masayo Iwaki, Shigeru Itoh, Shinichi Takaichi and Yonekichi Sakurai, Plant Cell Physiol. 37 (1996) 889.

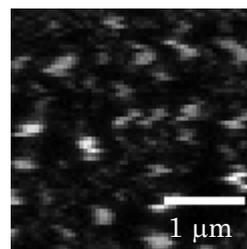


図 3 アイランド状 β -FeSi₂の Fe 蛍光 X 線像。
50 nm/pixel, dwell time: 1.0 s.

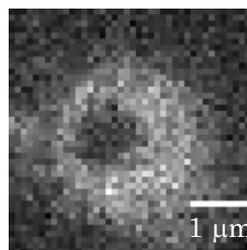


図 4 ニワトリ赤血球の Fe 蛍光 X 線像。
0.19 μ m/pixel, dwell time: 3.0 s.

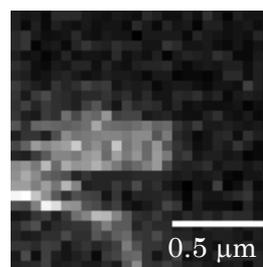


図 5 好酸性光合成細菌の Zn 蛍光 X 線像。
50 nm/pixel, dwell time: 10.0 s.