

シンクロトロン放射光の縮小光学系による 平面波マイクロビーム形成に関する基礎的研究

(平成10年11月26日 原稿受付)

物質工学科 (大学院生)	田 中 友 和
材 料 工 学 教 室	城 井 英 樹
材 料 工 学 教 室	吉 弘 満
材 料 工 学 教 室	鈴 木 芳 文
材 料 工 学 教 室	近 浦 吉 則

Basic Study of Forming Plane-Wave Micro Beam by Shrinkage Optical System for Synchrotron Radiation

by Tomokazu TANAKA
Hideki KII
Mituru YOSHIHIRO
Yoshifumi SUZUKI
Yoshinori CHIKAURA

Abstract

For characterize local surface structure of perfect crystal with high spatial resolution, monochromatic, high brilliance and plane wave micro-beam is necessary. In this study, we suggest the new method that gives high brilliance and plane wave micro-beam. As a result of experiment, in this arrangement, it is enable to from high stability micro-beam.

1. 結 言

極微小あるいは微小領域であるが故にその構造および詳細が未だに不明である重要な結晶は、物質を取り扱う広範な分野に数多く存在している。特に、物質の特性や機能のほとんどが局所的な特性によって支配されることが多いことから、今日、物質の化学的組成や電子構造、原子配列などの局所的評価法の研究開発が更に重要視されるようになってきた。なかでも、半導体に代表されるミクロンオーダーの制御が必要とされる材料では、局所的表面構造が材料の性質を大きく左右する重要な箇所となっている。その局所的表面構造の評価には動力学回折理論に基づく回折が利用されているが、高い空間分解能での局所的評価は平行かつ単色なマイクロビームによってのみ可能となる。

一般に、マイクロビーム形成は反射もしくは回折を利用した光学素子を用いて行われるが、その光学素子の作製には可視光用の光学素子よりも2桁以上高い0.1~10[nm]

の加工精度が要求される。そのため、光学素子の製作精度の段階でマイクロビームの実現が左右されてしまうというのが現状である。しかしこれまで多くの研究者らによって精力的にマイクロビームの研究がなされ、当研究室においても直径7 μm のX線導管(XGT, キャピラリー)による2 μm の収束マイクロビームの形成に成功している。しかし、現在の実験室系マイクロビーム形成として主に利用されるガラスキャピラリー(導波管)法、放射光施設で主に行われる湾曲結晶によるマイクロビーム形成のいずれも運動学回折理論に基づく集光であり、エネルギー(波長)が一様でないという特徴がある。これでは空間分解能が一般に良くない。

そこで本研究では、非対称反射を利用した新しいマイクロビーム形成法を提案する。この形成法には、単色で平行度の高いマイクロビームが得られるという特徴以外にも、シリコン結晶技術(超精密加工技術)の発展により高精度光学素子の入手が容易であり、種々のサイズを持つビームを目的に応じて形成することが理論上容易で

あるという大きな特徴がある。将来、放射光の高輝度特性を利用したマイクロビーム技術は、多様なビームモードの一つとして様々な分野の基礎的技術になると言われている。近年、放射光の利用により数 μm 径という実用的なマイクロビームが得られており、マイクロビーム技術の進歩とともに新しい研究分野が開拓されつつある。このような背景のもと、放射光の利用と合わせたマイクロビーム形成技術の研究は重要視されている。そこで本研究では、実験室系でのシンクロトロン放射光の縮小光学系における平板モノクロメータ結晶を用いた全く新しいマイクロビーム形成法の提案及び基礎的研究を行うことを研究目的とする。

2. 原理

本研究では、結晶表面に対して回折面が α 傾斜したシリコンモノクロメータ結晶を用いた回折を利用している。本研究の幾何学的関係及び使用した主な式を以下に示す。

$$b = \frac{\sin(\theta_B + \alpha)}{\sin(\theta_B - \alpha)} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \omega_0 &= \sqrt{b} \omega_s \\ \omega_g &= \frac{\omega_s}{\sqrt{b}} \end{aligned} \quad (2)$$

$$l_0 = \frac{l_s}{b} \quad (3)$$

$$\omega_g = \frac{2|P||x_g|}{\sin 2\theta_B} \sqrt{b} \quad (4)$$

b : 非対称因子
 θ_B : ブラッグ角
 ω_s : 全反射の角度幅

ω_0 : 入射線の角度幅

ω_g : 回折線の角度幅

l_0 : 入射線の横幅

l_g : 回折線の横幅

P : 偏向因子

x_g : 電気感受率

ここに示したように、本研究では従来の非対称反射とは異なり逆方向からX線を入射している。この方法を用いると(4)式より、第一結晶で $\omega_g = 0.251$ [arcsec]、第二結晶で $\omega_g = 0.294$ [arcsec]となる。また、単位面積当たりのビーム強度 E が ω^2 に比例することから、非対称因子 b ($b > 1$)、入射線と回折線のビーム面積を l_0^2 、 l_g^2 とするとマイクロビームの輝度は次式で表される。

$$b \frac{\omega_0^2}{l_0^2} = \frac{\omega_s^2}{l_g^2} \quad (5)$$

ここで、 $b > 1$ のとき ω は低下するので二次元的強度は低下する。しかし、 l^2 も小さくなるため今回のように三次元的に集光することで、単位面積当たりの強度(輝度)は入射X線の b 倍にすることができる。同じ非対称因子のモノクロメータ結晶を用い、入射X線のサイズが同じであれば、角度発散が小さい線源ほど全反射の角度幅は大きいので輝度は高くなる。本研究ではこの考えに基づき、2つのモノクロメータ結晶を三次元的に配置することで入射X線のビームサイズを縮小し、単色で平行度が高く、なおかつ輝度の高いマイクロビームを形成することを試みる。この方法は他に類を見ない新しい発想に基づくものであり、基礎的研究もないまさに新しい研究である。

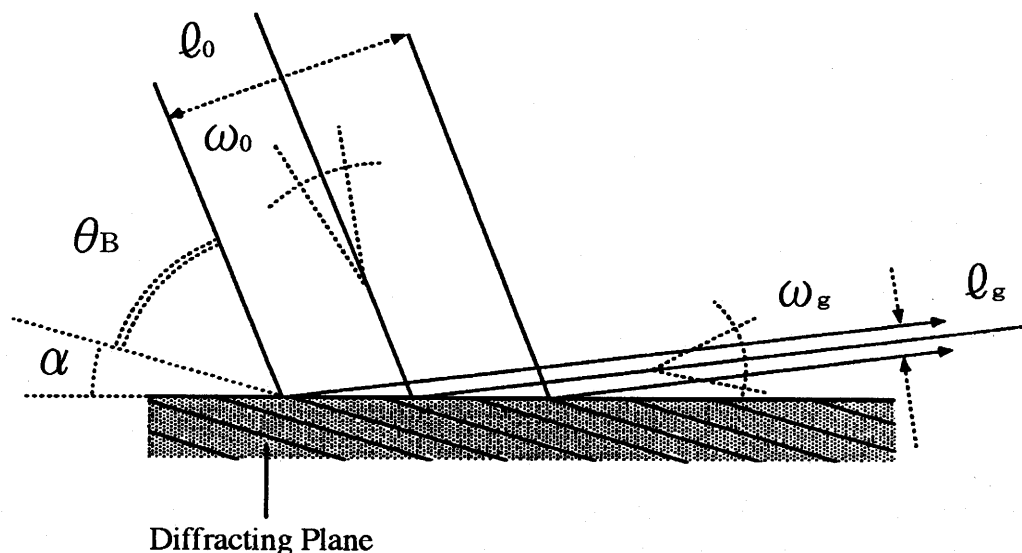


図-1 非対称反射の幾何学的関係

3. 実験装置

3.1 線源

線源には高輝度特性を持つシンクロtron放射光 (Synchrotron Radiation, 略してSR) を使用するの
が望ましいが、まだ基礎的研究の段階であるので、本研究では Mo ターゲット回転対陰極型発生装置 (RU 2000-B:CN 4148 B 2) を使用した。これはターゲット回転数2500 rpm, 焦点形状はポイントフォーカスで実焦点サイズ 0.3×3 [mm²], 実効焦点サイズ 0.3×0.3 [mm²] の強力 X 線発生装置である。この発生装置は従来のものより単位面積当たり20~60倍の高輝度 X 線を発生, 利用できることから本研究の線源に選んだ。本研究が高輝度にこだわるのはそれが単に画像形成時間の短縮のみならず, 種々の高分解能像形成を可能にするからである。ここで, 将来利用を考えているシンクロtron放射光の代表的な特徴を以下に示す。

1. 大強度である
2. 電波領域から X 線領域に及ぶ連続スペクトルを持つ
3. 指向性が良い (ほとんど平行光に近い)
4. 軌道面内に電気ベクトルを持つ直線偏向光である
5. パルス光である

3.2 装置の作製

結晶内部の微細構造の詳細な情報を得るためには, 用いる入射線束の形状, 寸法, 波長分布, 角度分布, 試料とフィルム (観察系) までの距離などが実験上重要な因子となってくる。そこでまず, 単色かつ平行度の高いマイクロビーム形成に最適な X 線光学系を作製することから始めた。その際, 既製の装置の仕様に頼ることはさけ, 平行マイクロビーム形成を第一目標として装置の部分的活用を含めた種々の装置作製を行った。その内容を以下に示す。

第一結晶及び第二結晶には (220) 非対称反射が起こるシリコンモノクロメータ結晶を使用した。このとき, 半値幅は 0.1 [arcsec] 前後と非常に狭くなる。しかし, 第一結晶にはビームダイバージェンスが 0.0115 [rad] もある X 線を入射していることを考慮すると, 粗動で少なくとも 1 [arcsec] 以下の角度走査が必要となる。そこで, 今回作製した装置は大きく分けて 0.05 [arcsec] の微小回転が可能な第一結晶部と精密回転機構を有する第二結晶部とから構成した。特に第二結晶部では円筒のねじり (トーション) を利用した精密ゴニオメータにより 0.01 [arcsec] オーダの精密走査を可能にした。

装置全体は主に一般構造用圧延鋼材で作製した。側面に厚さ 20 [mm] の鋼板を2枚使用し, 底板と跳ね上げ

板に厚さ 16 [mm] の鋼板を各々使用した。その他, 補強板を含む数百 [kg] の重量の鋼材を用い, 強度を考慮に入れた設計, 工作を行った。梁部分には径が 40 [mm] の炭素鋼研き棒鋼を使用しており, 第一結晶の回転軸を正確に得ることができるようにした。結果的に装置の総重量は 200 [kg] 以上になったが, 非常に安定度の高い装置が完成した。

次に装置の全体図及び各微小角走査部分の性能について以下に詳細を示す。まず初めに装置全体を上から見たときと側面から見たときの詳細図を図-2及び図-3に示す。

次に各微小角走査部分の性能について示す。第一結晶部は2つの回転機構を有しており, 1つ目は粗調節用で 360 [deg] 回転することができ手動による角度調節に用いる。2つ目は微調節用で $0.05 \sim 0.1$ [arcsec / step] の範囲で微小角走査が可能である。ここでは2つ目の微小角走査部分 (F.M) について具体的に示す。まず 1.8 [deg / step] のステッピングモータ (日本サーボ(株), KP 6 A.M 2-001) でウォームを駆動しホイールに回転を伝え, その回転力でマイクロメータの先に取り付けたカップを回し推進力を得る。このときウォームとホイールのギヤ比は $1:50$ のものを使用した。また, ウォーム両端を小型のベアリングで固定しモータの回転をスムーズに伝えることができるようにした。次に, 第一結晶の回転中心から延びたアームの 200 [mm] の地点をさきほどの推進力を使いマイクロメータの先端で押し上げるように設計した。このときアームと微小角走査部分の間にバネを張り, アームと微小角走査部分のマイクロメータの先端が離れないようにした。これにより, 安定な状態での 0.0516 [arcsec / step] という微小回転が可能となり, 最大 2.86 [deg] の連続走査が可能となった。

第二結晶部は粗動走査部分 (MF.M) と微動走査部分 (VF.M) とから構成した。粗動走査部分は回転中心から延びたアームの 100 [mm] の地点をマイクロメータの先端で押し上げるように設計した所以外は第一結晶部の微小角走査部分と全く同じにした。これにより 0.103 [arcsec / step] の微小回転及び最大 5.71 [deg] の連続走査が可能となった。これに対し, 微動走査部分では 1.8 [deg / step] のステッピングモータ (日本サーボ(株), KP 6 M 2-001) を使いトルク力を用いることで極微小角走査を可能にした。この微動走査部分の詳細図を図-4に示す。トルク力はアームの中心部分を含む数カ所にスリットを切ることによって効果的に働く。この部分ではコイルバネによってねじれの中心から延びたアームの 200 [mm] の地点ともう一つのアームとを連結し,

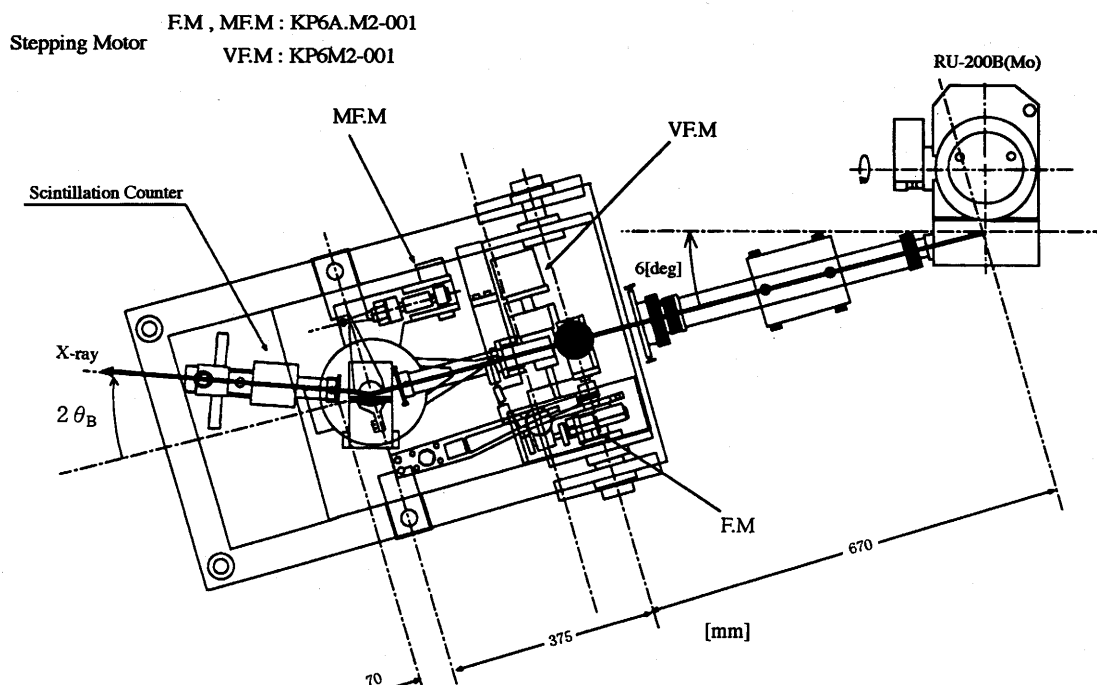


図-2 ビームラインの詳細図(上面)

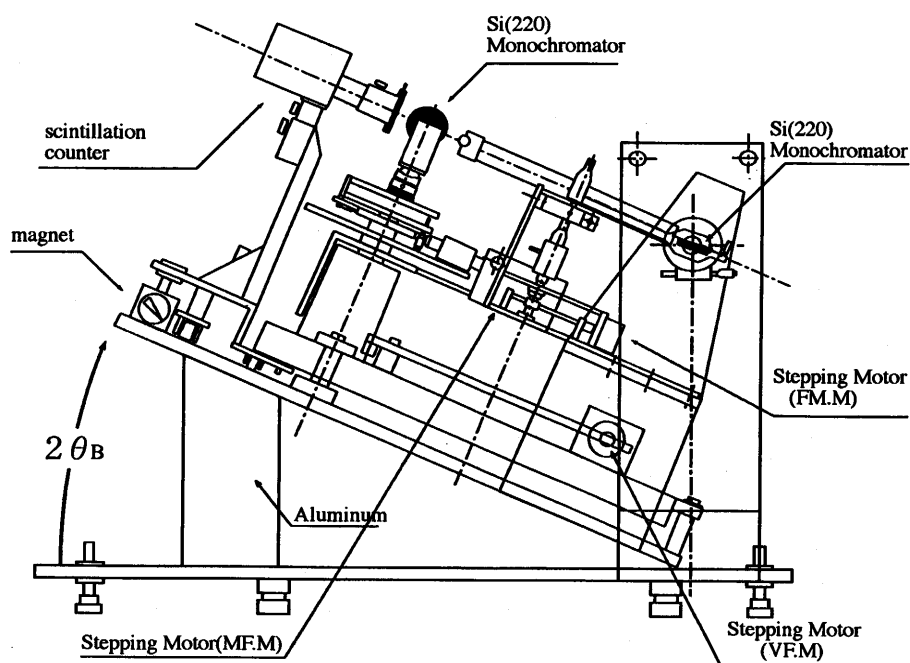


図-3 ビームラインの詳細図(側面)

その先端をマイクロメータの先端で押し上げることでトルク力による微小回転が得られるようにした。このとき、ステッピングモータに取り付けたマイクロメータの先端が進む距離 y [mm] と第二結晶部の回転角 θ [arcsec] との関係は $\theta = 2.8y - 0.9763$ となる。これにより 0.01 [arcsec] 以下での極微小角度走査が可能となり、最大 0.0192 [deg] の連続走査が可能となった。一般に極微小回転が必要とされる第二結晶部にはあおり調節用の機構が必要である。そこであおり調節は 2 枚の厚い真鍮板の一端を薄い真鍮板で接続し、マイクロメータの先端で

2 枚の真鍮板の間隔を変化させ結晶の水平軸を僅かに傾斜することで行った。

3.3 測定器系の作製

本研究ではカウンター回路やモータドライバー、ステッピング電源、各種配線等の測定器系の作製、非対称反射 ($b > 0$) を利用した実験室での縮小光学系マイクロビーム形成装置システムの構築を行った。測定システムのブロック図を図-5 に示す。第一、第二結晶部はパーソナルコンピュータでモータを制御しており、第一結晶部で 1 個、第二結晶部で 2 個のモータを用いて精密回転制御

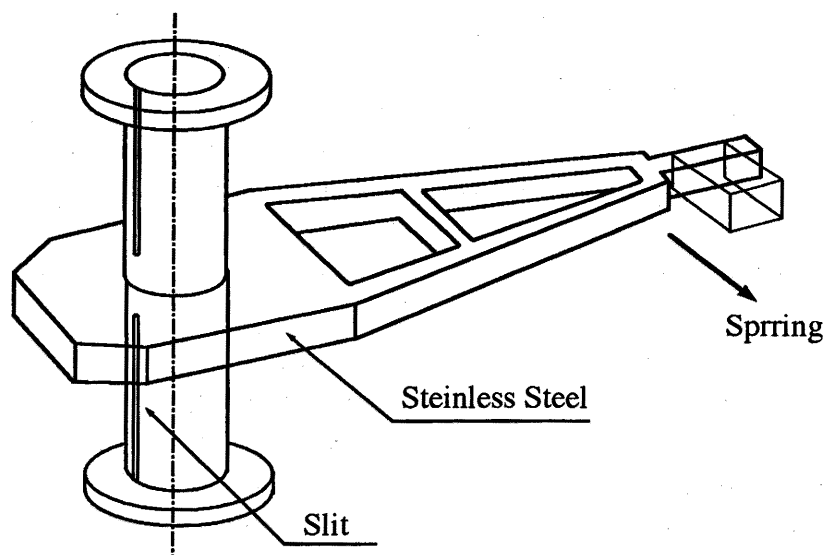


図-4 微小回転部分

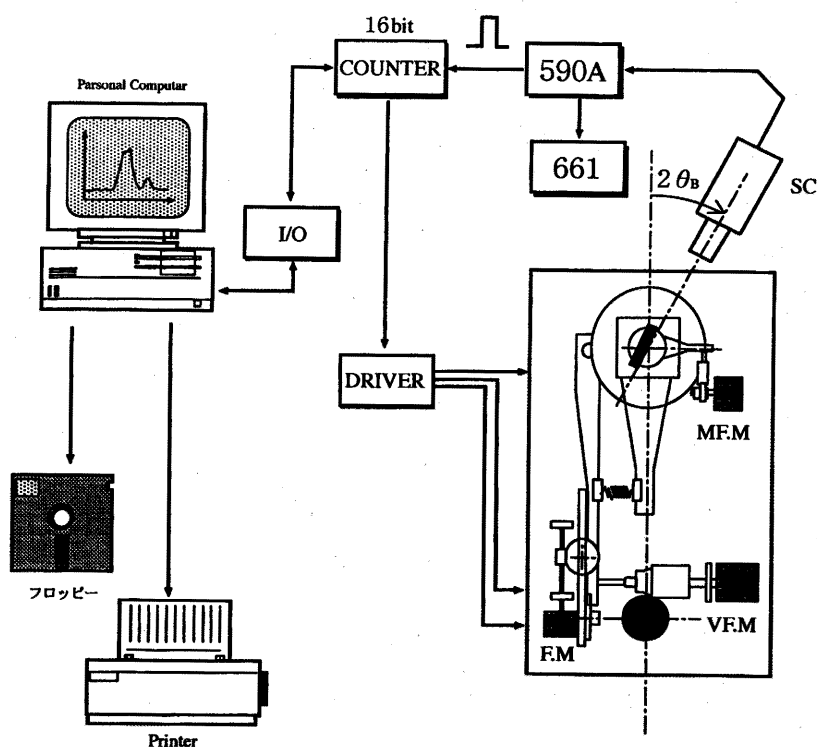


図-5 測定システムのブロック図

を可能にした。データの入出力は入出力ボード (I/O) を介してパーソナルコンピュータで行えるようにした。入出力ボードにはコンピュータの拡張ユニットに実装する W-BUS (98) 双方向入出力モジュール (コンテック K.K) を使用した。制御、測定プログラムは BASIC で作成し、測定データはカウンター回路でデジタル信号に変換する。これを W-BUS (98) インターフェイスボードを介してパーソナルコンピュータに入力し、プログラムによりフロッピーディスクへの ASCII 形式でのセーブを可能にした。BASIC プログラムは測定と調節の 2 つに区分しており、プログラム実行画面上での簡単な選択、

実行による微小角走査、ロッキングカーブ作成が可能となった。勿論、試料走査の位置指定や移動ステップ幅は全てパーソナルコンピュータによって任意に設定できるようにした。今回作成したカウンター回路は基本的に 74 シリーズの IC を使用しており、バッファ回路に 7417, AND 回路に 7408, OR 回路に 7432 を使用した。カウンター用の IC には入手が比較的簡単な 4040 を使用しており、65536 カウントまでのカウントを可能にした。また、検出器の出力の違いによるネガティブパルスへの対応は抵抗とトランジスタによって作る反転回路にて可能にした。

4 実験

今回の実験手順を簡単に示す。

1. 入射 X 線サイズの決定
(線源の焦点サイズ以下にならないように注意する)
2. 第一結晶からの回折強度曲線の測定
(ϕ , ω を変化させ強度, 半値幅を調べる)
3. 第一結晶最適条件の決定
(第二結晶表面でのデンタルフィルム像の考慮)
4. 第二結晶からの回折強度曲線の測定
(回折強度の著しい低下が予想される)

以上の実験により得られた実験結果を次に示す。

4.1 回折強度曲線 (第一結晶)

第一結晶からの回折強度曲線を図-6に示す。スリット幅が6.569 [mm] で実験したもので半値幅が2589 [arcsec] であった。このときの回折線をデンタルフィルムで撮影したところ間隔が0.385 [mm] の2本の回折線が確認された。一方の回折線が76 [μm], もう片方の回折線が68 [μm] で後者の方が黒化度が高かった。入射 X 線は570 [mm] 地点のスリットにおいて6.569 [mm] に制限して実験を行ったことから, 0.0115 [rad] (0.660 [deg]) の広がりがあると考えられる。このことより, 特性 X 線には $K\alpha_1$, $K\alpha_2$, $K\beta$ 線が考えられる。ここで2本の回折線が $K\alpha$ 線と $K\beta$ 線である場合を考える

と, $K\alpha$ 線と $K\beta$ 線とのブラッグ角の差が 1.81×10^{-2} [rad] もあることから2本の回折線の開きは計算上 20.2 [mm] となる。しかし, 実際に測定された2本の回折線の間隔は0.385 [mm] しかないことから, 2本の回折線が $K\alpha$ 線と $K\beta$ 線によるものではないということがわかった。残る可能性は $K\alpha_1$ 線と $K\alpha_2$ 線によるものである。低角側の回折, つまり $K\alpha_1$ 線の幅は $\Delta \lambda K\alpha_1 / \lambda K\alpha = 3.8 \times 10^{-4}$, 非対称因子 $b = 41.5$ から計算上 68 [μm] となる。これが測定した低角側の回折線の幅 68 [μm] と一致したことから $K\alpha_1$ 線による回折線であると言える。次に高角側の回折, つまり $K\alpha_2$ 線の幅は $\Delta \lambda K\alpha_2 / \lambda K\alpha = 5.0 \times 10^{-4}$, $b = 41.5$ から計算上 90 [μm] となる。これは測定した高角側の回折線の幅 76 [μm] という結果と 18% も異なっていた。また $K\alpha_1$ 線と $K\alpha_2$ 線の間隔は計算上 1.25 [mm] となるが, 測定した結果は 0.385 [mm] となっており大きく異なっていた。これはスペクトル幅を考慮に入れても説明が困難であるため, 半導体検出器によるスペクトルデータによって判断した。その結果, 2本の回折線は $\text{MoK}\alpha$ によるものだと断定することができた。

4.2 回折強度曲線 (第二結晶)

第二結晶からの回折強度曲線を図-7に示す。図中の (A) はスリット幅が6.000 [mm] で実験したもので半値幅が867 [arcsec] であり, (B) はスリット幅が1.860 [mm] の実験で半値幅が219 [arcsec] であった。こ

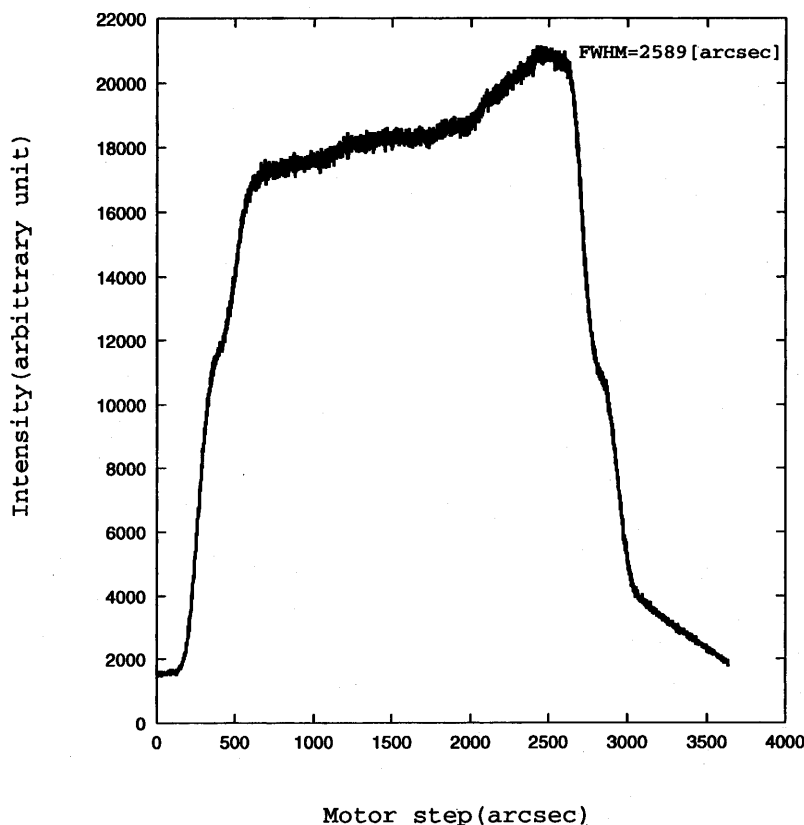


図-6 第一結晶回折強度曲線

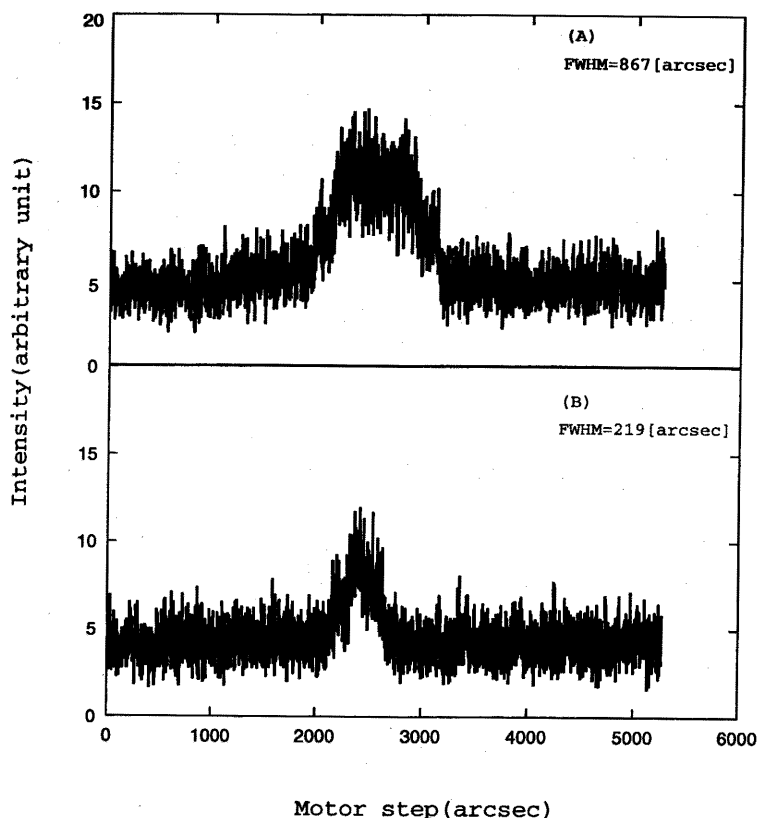


図-7 第二結晶回折強度曲線

のピークはブラッグ角に相当する角度で見られているものであり、再三に渡る測定でも同様の結果が得られたことから何らかの回折によるものであることは間違いない。そこで(B)の状態で -15 [arcsec] から $+15$ [arcsec] の間、 5 [arcsec] ごとに計7点でデンタルフィルムによるマイクロビーム像を撮影したところ、デンタルフィルム写真のいずれにも2つの点状の回折線が確認された。この2つの回折線は一方が $K\alpha_2$ 線、もう片方が $K\alpha_1$ 線によるものと思われる。いずれもマイクロスポットが確認されており、幅広い回折が起こっていることが確認できた。

5. 考察

一般に強度は結晶による回折により2桁以上下がると言われている。しかも入射線束の一定の角度広がりの中でブラッグ反射の起こる領域は極めて僅かであり、尚かつ線束が縮小される方向に回折を起こすので、ミクロン程度の微小領域から得られる回折X線の強度は試料結晶の体積(構成原子数)に比例することから極端に微弱となると考えられる。このため、第二結晶回折後の回折強度も非常に小さくなると推測できる。また、測定では回折波以外のX線が検出器に入るためピークがバックグラウンドに埋もれている可能性は否めない。そこでバックグラウンド強度を可能な限り低減するためにスリットを

利用し、装置全体のアースレベルの調節、回折順番の最適化等を事前に調査して十分なSN比の確保が期待されるような状態で測定を開始した。その結果得られた第二結晶からの回折強度曲線の回折強度は、バックグラウンドのカウントが5カウント前後でピーク時が10~20カウントしかなく、半値幅は図-7の(A)の実験の場合867 [arcsec]、(B)の実験の場合219 [arcsec]もあるものが確認された。非対称反射が正の結晶モノクロメータの半値幅は 0.2 [arcsec] しかないにも関わらず再三の実験でも同様な傾向を示した。以上これから言えることは、本研究の方法でマイクロビームが得られたとしても通常 100 [count/sec] (40 kV/ 40 mA) 以上ないと実験室系では使えないと言われているので、実験室系での利用を考えるのであれば何らかの方法で回折強度を向上させる必要がある。また唯一観測された変化、第一結晶回折後の回折線スリットの幅に第二結晶回折強度曲線の半値幅が同期している、つまり 0.2 [arcsec] の半値幅しかないはずのモノクロメータを使用しているにも関わらず実際測定された半値幅は幾何学的配置から計算される角度広がりとはほぼ一致するという傾向から、安定したマイクロビームが形成されたことが確認できる。ピーク、ピーク端の合計7箇所撮影したデンタルフィルムには計算通りのサイズに集光された同様な点を確認され、ピークを外れた所では何も写っていないという実験結果が

らも安定したマイクロビームができていることが確認できる。この方法によるマイクロビームはSN比は決して良いとは言えないが、単色化後の回折なので平行度は高い。mrad オーダの角度広がりしかもたない放射光のような輝度の高いX線によって更に平行度(輝度)は上昇することが期待され、高い分解能の局所構造評価が可能になると期待される。ここで、輝度の問題はシンクロトン放射光を線源とすることで解決できるため、ここでは問題としない。

6. 結 言

1. 超高精度な走査装置と組み合わせた平行マイクロビーム形成装置を作製した。第一結晶部、第二結晶部の微調節部分を作製し、ブラッグ角微調節が第一結晶部で最小変化角 0.0516 [arcsec], 有効可変角度 2.86 [deg], 第二結晶部で最小変化角 0.103 [arcsec], 有効可変角度 5.71 [deg] を可能にした。

2. 非対称因子が正の場合は ω が低下し二次元的強度は低下するが、ビーム面積も小さくなるので三次元的に集光することで輝度が入射X線の b 倍にもなることを指摘し、新しい平行マイクロビーム形成方法として今回の結晶配置を提案する。一般に耐震性、雰囲気設定など実験室系でのマイクロビーム形成には多くの不安因子が付きまとう。しかし、この方法によるマイクロビーム形成では回折強度曲線で幾何学的広がりに対応する半値幅を有しており、 1 [arcsec] 以下の半値幅の回折が連続的に生じているという非常に安定したマイクロビームが得られていることがわかった。

3. 64×31 [μm^2] のマイクロビーム形成に成功した。

この方法によるマイクロビーム形成は他に類を見ない全く新しい発想に基づくものであり、基礎的研究もないまさに新しい研究である。今回の基礎的データを基に平行で単色なマイクロビームによる高い空間分解能の構造解析がなされ、新しい研究が生まれることを切に願います。今後は放射光の本格的利用と合わせて平行マイクロビームの利用、超精密加工技術、画像解析法の高精度化、X線検出器時間分解能の向上等が新しい分野を開くことになるだろう。

参考文献

- 1) 菊田惺志：X線回折・散乱技術上，東京大学出版（1992）
- 2) 高良和武：X線回折，共立出版（1988）
- 3) B.D.CULLITY：X線回折要論，アグネ（1980）
- 4) 日本物理学会：シンクロトン放射，培風館（1986）
- 5) 城井英樹，船引夕樹，吉弘満，鈴木芳文，近浦吉則：九州工業報告（工学）第67号（1995），P 69