X線用積層型 Ag/C ゾーンプレートの製作*

田村 繁治**・大谷 和男**・上條 長生**

鈴木 芳生***・木原 裕****

(受理1994年11月28日, 掲載決定1995年2月4日)

Fabrication of Ag/C Multilayer Zone Plates for X-ray

Shigeharu TAMURA**, Kazuo OHTANI**, Nagao KAMIJO**

Yoshio SUZUKI*** and Hiroshi KIHARA****

**(Osaka National Research Institute, AIST, Ikeda, Osaka)

*** (Advanced Research Laboratory, Hitachi Ltd., Hatoyama, Saitama)

**** (Kansai Medical University, Hirakata, Osaka)

(Received November 28, 1994, Accepted February 4, 1995)

1. はじめに

シンクロトロン放射 (SR) 光, レーザー励起プラズマ X 線源など強力な良質な X 線源の実用化に伴い, さまざまな波長の X 線を利用した研究が行われている。このうち, 波長が 1 Å 前後の X 線は物質の結晶構造解析, 欠陥分析, 生体試料の観察, 各種の分析などの分野で利用されており, そのマイクロビーム化を目指してゾーンプレート (以下では ZP と記述する)^{1~4)}, 多層膜反射鏡⁵⁾, 斜入射反射鏡^{6~9)}などのさまざまな光学素子の開発が行われている。筆者らは ZP の開発を行っている^{10~13)}。X 線領域用の ZP では大きなアスペクト比 (ゾーン幅に対する ZP の厚さ) が必要なため主として多層薄膜成膜技術を利用して作製されているが (積層型 ZP), 積層型 ZP ではサブミクロンのビーム径は得られていない。その原因として, 平滑なゾーン (多層膜の界面) が得られにくいこと, ZP の大きなアスペクト比, 光源の大きさなどが考えられる。

本報では, 筆者らが作製した積層型 ZP の集光テストの結果を示した後, ゾーンの平滑化に関する実験結果について述べる。

2. 集光テストの結果

これまでに 4 種類の ZP 用の同心円多層膜 (W/C, Cr/C, Ag/C, Cu/C) を作製した結果, Ag/C 多層膜が最も平滑なゾーンと表面とを有することがわかった^{11,12)}。そこで Fig. 1 に示す Ag/C 積層型 ZP (50 層) を作製し, 高エネルギー物理学研究所の BL-8C 実験ステーションにおいて集光テストを行った。この ZP は 8 KeV の X 線に対して 124 mm の焦点距離を有するように光学設計されている。ゾーン幅は基板側から数えて 1 層目 (C) が 0.40 μm, 最外層 (Ag) が 0.25 μm である。光源 (0.92 mm × 2.8 mm) と ZP との距離は 28 m であり, ZP から光源側 11 m の個所にピンホール (100 μmφ) を置き, 光源の大きさを縮小した。その結果, 1 次光について FWHM 値で短軸が 2.3 μm, 長軸が 2.6 μm の楕円形のマイクロビームが得られた。Fig. 2 に短軸方向の集光ビームプロファイルを示す。この値は光源の大きさと光学系の縮小率から得られる理論値 (1.2 μmφ) よりも大きなものである。一般に積層型 ZP においては外周部ほどゾーンが乱れており, これが集光特性を劣化させる

* 1994年10月27日 第35回真空に関する連合講演会で講演

** 工業技術院 大阪工業技術研究所 (〒563 大阪府池田市緑丘 1-8-31)

*** 日立製作所 基礎研究所 (〒350-03 埼玉県比企郡鳩山町赤沼 2520)

**** 関西医科大学教養部 (〒573 大阪府枚方市宇山東町 18-89)

Fig. 1 Scanning electron micrograph of Ag/C multilayer zone plate (50 layers). Black and white rings are C and Ag layers, respectively. The inner core is Au wire.

大きな原因の1つと考えられる。集光特性を向上させるためには、ゾーンをさらに平滑化する必要がある。そこで、円心円多層膜を異なる成膜条件下で作製し、ゾーンの形状を調べると共に、膜の性質も調べた。

3. 実 験

Ag/C 多層膜は DC スパッタ法により金の細線基板 ($47\ \mu\text{m}\phi$) 上に28層成膜した。基板の回転速度は15 rpm とし、成膜時の Ar 圧、成膜速度を **Table 1** の3通り選んだ。Fig. 1 の ZP は **Table 1** (b) の条件で作製されている。条件 (a), (c) では C の作製条件を (b) と同一とし、Ag について Ar 圧を変えて、その影響を調べた。一般にスパッタ法で作製した薄膜の微細構造(柱状構造)は成膜時の Ar ガス圧に大きく依存し、これが膜表面(多層膜の界面)の凹凸にも影響することが知られている¹⁴⁾。また、X 線用多層膜反射鏡において膜の界面の平滑性が Ar ガス圧に依存することも報告されているので¹⁵⁾、今回は Ar 圧に着目した。成膜後、細線試料を低融点合金中に埋め込んで固定し、回転軸に対して垂直に1 mm 程度の厚さに切断した¹⁰⁾。この試料の片面を研磨し、多層膜の断面を走査型電子顕微鏡で観察した。

筆者らは膜の応力がゾーンの平滑性を乱す大きな要因の1つと考えている。細線基板上の膜の応力の測定は困

Fig. 2 Focused beam profile derived by scanning a gold wire edge at a wavelength of $1.54\ \text{\AA}$. The X-ray beam of $100\ \mu\text{m}\phi$ was demagnified into a $2.3\ \mu\text{m} \times 2.6\ \mu\text{m}$ spot.

Table 1 Deposition conditions of Ag/C concentric multilayer.

sample number	growth rate ($\text{\AA}/\text{s}$)		Ar pressure (Pa)	
	Ag	C	Ag	C
(a)	10	3	0.20	0.67
(b)	10	3	0.67	0.67
(c)	10	3	1.33	0.67

難であるので平面基板上に膜を成膜し、成膜条件の差に起因する応力の違いの傾向を観察した。基板には石英および BK7 ($30\ \text{mm}\phi$, $0.5\ \text{mm}$ t) を使用し、その上に単層膜 ($0.2\ \mu\text{m}$) を成膜した。石英、BK7 および金の熱膨張係数 ($\times 10^{-6}$) はそれぞれ 0.5, 7.7, 14.5 であり、BK7 は比較的金属に近い値の熱膨張係数を有する。応力は光干渉法により基板の反り(曲率半径)を測定して求めた¹⁶⁾。また、X 線回折パターンも調べた。

4. 結果および考察

4.1 多層膜の電子顕微鏡写真

Table 1 に示される条件下で作製した Ag/C 同心円多層膜の SEM 像を **Fig. 3** に示す。集光テストに使用した試料 (b) と比較すると、Ar ガス圧を下げるとゾーンの平滑性が改善され(試料 (a))、Ar ガス圧を上げると悪くなる(試料 (c)) のが観察される。

成膜時の Ar ガス圧を変えると、膜の微細構造のみな

Fig. 3 Scanning electron micrographs of Ag/C concentric multilayers on Au wire substrate. Black and white rings are C and Ag layers, respectively. Each deposition conditions is shown in Table 1.

らず膜の応力も変化することが知られている¹⁷⁾。Fig. 1でゾーンの乱れがシワ状に円周全体に観察されること、また、Fig. 3でゾーンの平滑性のArガス圧依存性が観察されることから、膜の応力がゾーンの平滑性を乱す大きな要因の1つであると推測できる。

4.2 膜の応力

上記の結果からArガス圧の違いがゾーンの平滑性に影響を及ぼすことがわかった。そこで、異なるArガス圧下でAg単層膜を成膜し応力を測定した。また、C単層膜の応力も測定した。さらに、文献12)において最も平滑性が悪かったW/C多層膜（ゾーンの乱れはFig. 3(c)と同程度）と比較するために、W単層膜の応力も測定した。応力測定用に作製した薄膜の成膜条件、応力をTable 2に示す。今回の場合、100(MPa)の応力による基板の反りは0.6 μmである。

その結果、①すべての膜について、BK7基板上の応力の方が石英基板上の応力よりも圧縮方向の値を示す、②Ag膜の応力はArガス圧によって異なり、Arガス圧が高くなると圧縮方向に変化する。③W膜の応力は大きな値を示すことがわかった。金ワイヤー基板上に積層された多層膜の各層の応力は不明であるが、同様の傾向

Table 2 Deposition conditions and stress of Ag, C, W single layer (2000Å).

sample	growth rate (Å/s)	Ar pressure (Pa)	stress* (MPa)	
			silica	BK7
Ag-1	10	0.20	-110	-20
Ag-2	10	0.67	-100	0
Ag-3	10	1.33	-70	+10
C	3	0.67	+30	+70
W	10	0.67	+640	+980

* + : compressive, - : tensile

があるものと考えられる。すなわち、C膜上に蒸着したW膜の応力は大きく、また、C膜上に蒸着したAg膜の応力はArガス圧依存性を示すものと考えられる。

4.3 X線回折パターン

Table 1の条件下で作製したAg単層膜（0.2 μm）のX線回折パターンを調べた結果、(111)の配向性に大きな差が観察され、条件(a)の配向性が最も強く、条件(c)が最も弱かった。このことは、配向性が強い方が、同心円多層膜の界面が平滑であることを意味している。

5. まとめ

Ag/C積層型ZPのゾーンの平滑化を目的として、同心円多層膜を異なる成膜条件（Ar圧）下で作製してゾーンの形状を調べた結果、成膜条件を変えることでゾーンの平滑性を改善できることがわかった。成膜条件の違いによって膜の応力や微細構造に差が観察されたので、これらがゾーンの平滑性に影響しているものと思われる。今後、成膜条件についてさらに検討し、X線のサブミクロン化を実現したい。

謝辞

薄膜の応力測定に御協力頂きました、(財)レーザー技術総合研究所、本越伸二氏に深く感謝いたします。

【文献】

- 1) K. Saitoh, K. Inagawa, K. Kohra, C. Hayashi, A. Iida and N. Kato: Jpn. J. Appl. Phys., **27** (1988) L2131.
- 2) K. Saitoh, K. Inagawa, K. Kohra, C. Hayashi, A. Iida and N. Kato: Rev. Sci. Instrum., **60** (1989) 1519.
- 3) R. M. Bionta, E. Ables, O. Clamp, O. D. Edwards, P. C. Gabriere, K. Miller, L. L. Ott, K. M. Skulina, R. Tilley and T. Viada: Opt. Eng., **29** (1990) 576.
- 4) W. B. Yun, B. Lai, D. Legnini, Y. H. Xiao, J.

- Chrzas, K. M. Skulina, R. M. Bionta, V. White and F. Cerrina: Proc. SPIE, **1740** (1992) 117.
- 5) J. H. Underwood, A. C. Thompson, Y. Wu and R. D. Giaque: Nucl. Instrum. and Methods, **A266** (1988) 296.
- 6) S. Hayakawa, A. Iida, S. Aoki and Y. Gohshi: Rev. Sci. Instrum., **60** (1989) 2452.
- 7) Y. Suzuki and F. Uchida: Rev. Sci. Instrum., **63** (1992) 578.
- 8) S. Hayakawa, Y. Gohshi, A. Iida, S. Aoki and K. Sato: Rev. Sci. Instrum., **62** (1991) 2545.
- 9) A. Iida and T. Noma: Nucl. Instrum. and Methods, **B82** (1993) 129.
- 10) 田村繁治, 大谷和男, 上條長生: 真空, **36** (1993) 292.
- 11) 田村繁治, 大谷和男, 上條長生: 電子情報通信学会論文誌, **76-C-II** (1993) 761.
- 12) S. Tamura, K. Ohtani and N. Kamijo: Appl. Surf. Sci., **79/80** (1994) 514.
- 13) N. Kamijo, S. Tamura, Y. Suzuki and H. Kihara: Rev. Sci. Instrum., **66** (1995) (掲載決定).
- 14) J. A. Thornton: J. Vac. Sci. Technol., **11** (1974) 666.
- 15) D. G. Stearns, R. S. Rosen and S. P. Vernon: Appl. Opt., **32** (1993) 6952.
- 16) 金原 粲, 藤原英夫: 「薄膜」 裳華房 (1979) p. 129.
- 17) J. A. Thornton and D. W. Hoffman: J. Vac. Sci. Technol., **14** (1977) 164.