Cu/Al 積層型フレネルゾーンプレートの作製と評価*

田村 繁治**・大谷 和男**・上條 長生**・森 角治***
丸橋 泰三***・吉田 國雄***・鈴木芳生****・木原 裕*****

(受理1996年11月29日, 掲載決定1997年2月1日)

Fabrication and Testing of Cu/Al Multilayer Fresnel Zone Plate

Shigeharu TAMURA**, Kazuo OHTANI**, Nagao KAMIJO**,
Kakuji MORI***, Taizo MARUHASHI***, Kunio YOSHIDA***,
Yoshio SUZUKI**** and Hiroshi KIHARA*****

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

*** (Osaka Institute of Technology, Ohmiya, Asahi-ku, Osaka)

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

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

(Received November 29, 1996, Accepted February 1, 1997)

1. はじめに

SPRING-8に代表される第三世代の大型放射光の建設にともない, 挿入光源を用いた高輝度, 低エミッタンスのX線領域のマイクロビームの生成と, その応用に関する研究が注目されている。波長が1Å前後のX線の高強度のマイクロビームが実現できれば, X線顕微鏡が実現し, 微小領域の結晶構造解析, 欠陥分析, 生体試料の観察などが可能となる。X線集光素子の1つにフレネルゾーンプレート(FZP)があり, 現在のところ最も微小なビームの形成が可能であることから特に注目されている。FZPは多層薄膜成膜技術やX線リソグラフィ技術を利用して作製されており¹⁻⁴⁾, 集光ビームサイズもサブミクロン領域のものが得られている³⁾。筆者らはAg/C積層型(多層膜)FZPの作製と評価を行っており⁵⁻⁸⁾, 8.54 KeV (1.45 Å)のX線について0.5 μmφのマイクロビームの生成に成功した⁹⁾。積層型FZP

では, ゾーン(多層膜の界面)の乱れが集光特性を劣化させる原因の1つになっており, 成膜材料, 成膜条件などについてさらに試行錯誤検討する必要がある。今回, Cu/Al多層膜を異なる成膜条件下で作製し, ゾーンの形状とその多層膜から作製したFZPの集光特性を調べたので, その結果について述べる。なお, CuとAlの組み合わせを選んだ理由は, ①両者のバルクの場合の熱膨張率が比較的近いこと(バルクと膜とでは熱膨張率は異なるが, Ag/Cと比較すると差が小さく, 熱応力の影響の軽減が期待できる), ②文献2), 3)で多層膜の外周部においてもゾーンの乱れが急激に大きくならない事例が報告されているからである。

2. 実 験

Cu/Al多層膜はDCスパッタ法で作製した。回転する金の細線(47 μmφ)基板上に28層成膜し, その断面を観察した。基板付近の概略図をFig. 1に示す。各層の蒸着後, 1分間の間隔を置いて次の層の蒸着を行った。膜厚(ゾーン幅)は基板側から数えて第1層目(Al)が0.4 μm, 最外層(Cu)が0.3 μmである。膜厚はFZPが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。成膜条件をTable

* 1996年10月31日 第37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)

*** 大阪工業大学電子工学科 (〒535 大阪市旭区大宮5-16-1)

**** 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 Schematic diagram of rotating sample holder with wire substrate.

Table 1 Deposition parameters of concentric multilayer samples

sample number	growth rate (Å/s)	Ar pressure (Pa)	substrate temperature	substrate rotating
(1)	10	0.20	RT	15 rpm
(2)	10	0.67	RT	15 rpm
(3)	10	0.20	RT	50 rpm
(4)	10	0.67	RT	50 rpm
(5)	10	0.20	Low	15 rpm
(6)	10	0.67	Low	15 rpm

1に示す。Table 1で、「RT」の場合には基板の温度制御は行わず、「Low」の場合には、基板回転機構の回転軸の内部に液体窒素を注入し、熱伝導方式で基板を冷却し、その効果を調べた。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。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。

なお、予備実験として、基板温度の測定も行った。基板温度はFig. 1に示す基板回転機構の基板ホルダーのA点に熱電対を置き、基板回転を止めた状態で6層（各層0.3 μm）蒸着を行う間測定した。

細線基板上的薄膜の性質を調べるのは困難であるので、平面基板上にTable 1と同じ成膜条件で多層膜（6層：各層0.3 μm）を作製し、応力、X線回折パターンを調べることににより、成膜条件の差に起因する膜の性質の違いの傾向を観察した。応力の測定にはBK7（30 mmφ, 0.5 mm）を使用し、光干渉法により基板の反り（曲率半径）を測定して求めた。X線回折パターンは

Fig. 2 Scanning electron micrographs of Cu/Al concentric multilayers on Au wire substrate. Black rings are Al layers, and white rings are Cu layers. Each symbol indicates sample number in Table 1.

Si(100)上に蒸着した多層膜で調べた。なお、基板の材質や形状が異なれば冷却の熱伝導メカニズムが大きく異なることが予想されるので、今回はTable 1の試料番号(1)–(4)の成膜条件についてのみ調べた。

3. 結果および考察

Table 1に示される条件下で作製したCu/Al同心円多層膜のSEM像をFig. 2に示す。応力はTable 1の試料番号(1)–(4)の成膜条件の順に、いずれも引っ張り方向に210, 170, 230, 190 Kgf/cm²であった。X線回折パターンをFig. 3に示す。これらの結果から以下のことが判明した。

- ① 基板の回転速度が15 rpmの場合、基板温度には関係無く、Ar圧力が低い場合の方が、より平滑なゾーン（乱れの少ない同心円状の多層膜界面）が得られた。
- ② 基板温度が「RT」の場合、回転速度には関係無く、Ar圧力が低い場合の方が、重元素の(111)の配向性が強かった。Ar圧力が低いほど基板に到達する粒子の衝突回数が少ないために、基板近傍では粒子は方向性のばらつきが少ない。筆者らの実験では成膜速度が同じであるので、Ar圧力が低い場合の方が薄膜の配向性が強くなったと考えられる。ま

Fig. 3 X-ray diffraction (XRD) pattern of Cu/Al multilayers on Si substrate. Each numerical sample number means the same deposition parameter in Table 1.

た、このことが薄膜の微細構造にも影響し、基板の回転速度が15 rpm の場合には、平滑な多層膜界面の形成に寄与したと考えられる。50 rpm の作製条件の場合については、層数を増やせば Ar 圧力の差の影響が現れる可能性がある。X 線多層膜平面ミラー (Mo/Si : 各層の膜厚は50 Å 以下) においても同様の Ar ガス圧依存性が報告されている¹⁰⁾。

- ③ 膜の応力は基板の回転速度が同じ場合には、Ar 圧力が低い場合の方が、引張り方向に大きな値を示し、また、Ar 圧力が同じ場合には、回転速度が速い場合の方が、引張り方向に大きな値を示した。Table 1 の試料番号(1)と(2)、(3)と(4)が前者のケースで、(1)と(3)、(2)と(4)が後者のケースである。このうち、(1)と(2)、(2)と(4)については応力が引張り方向に大きい方がゾーンがより平滑であり、応力の差がゾーンの形状の差の原因の1つと思

Fig. 4 Temperature of substrate (point A in Fig. 1) during deposition of Cu/Al multilayers. The interval between a layer formation was 1 minute. Each numerical sample number means the same deposition parameter in Table 1.

われる。他の試料番号の組み合わせ (1)と(3)、(3)と(4)についてはゾーンの平滑性に差は観察されなかったが、層数を増やせば応力の差の影響が現れる可能性がある (なお、(1)と(3)については50層の試料も作製したが、この段階でも差は観察されなかった)。

細線基板上的薄膜と平面基板上的薄膜とは応力や配向性は同じではないが、上述の結果と同様の傾向があるものと考えられる。なお、Ag/C 多層膜においてもゾーンの平滑性の Ar ガス圧依存性、および応力、配向性について同様の結果が得られている⁷⁾。

予備実験における基板温度は、「RT」の場合には、80°C~100°Cの範囲で変化し、「Low」の場合には、0°C~20°Cの範囲で変化した (Fig. 4)。

4. FZP の作製と集光テスト

Table 1-(1)と同じ成膜条件下で多層膜 (50層、最外層幅0.25 μm) を成膜し、研磨により~20 μm の厚さに薄片化して FZP を作製した。高エネルギー物理学研究所 BL-8C 実験ステーションで集光テストを行った結果 (課題番号 : 93G273)、8 KeV の X 線に対して、FWHM 値で1.3 μmφ、集光効率6%の X 線マイクロビームが得られた。ビームサイズは1。述べた Ag/C 積層型 FZP よりも大きく、集光効率も低い。しかしながら、0.5 μmφ はトリスタン MR において得られたもので、同一の FZP を今回と同じ BL-8C で集光した結果は1.3 μmφ であった⁹⁾。また、今回の Cu/Al 積層型 FZP の厚みは Ag/C 積層型 FZP の2倍程度あるので、集光効率が低

かったと思われる。したがって現状では両者の優劣を論ずることはできない。

5. ま と め

Cu/Al 多層膜を異なる成膜条件下で作製し、ゾーン(多層膜の界面)の形状、およびその多層膜から作製したFZPの集光特性を調べた。スパッタ蒸着時のAr圧力、基板の回転速度がゾーンの平滑性に影響を及ぼすことがわかった。成膜条件の差に起因する膜の微細構造や応力の差が影響していると思われる。今後、さらに成膜条件や材料について検討し、FZPの一層の高性能化を目指す。

〔文 献〕

- 1) K. Saitoh, K. Inagawa, K. Kohra, C. Hayashi, A. Iida and N. Kato: Jpn. J. Appl. Phys., **27** (1988) L2131.
- 2) 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.
- 3) W. B. Yun, B. Lai, D. Legnini, Y. H. Xiao, J. Chrzaz, K. M. Skulina, R.M. Bionta, V. White and F. Cerina: Proc. SPIE, **1740** (1992) 117.
- 4) B. Kaulich: Abstract of XRM'96, O-12 (1996).
- 5) S. Tamura, K. Ohtani and N. Kamijo: Appl. Surf. Sci., **79/80** (1994) 514.
- 6) N. Kamijo, S. Tamura, Y. Suzuki and H. Kihara: Rev. Sci. Instrum., **66** (1995) 2132.
- 7) 田村繁治, 大谷和男, 上條長生, 鈴木芳生, 木原裕: 真空, **38** (1995) 231.
- 8) S. Tamura, K. Ohtani, N. Kamijo, Y. Suzuki and H. Kihara: Thin Solid Films, **281/282** (1996) 243.
- 9) N. Kamijo, Y. Suzuki, S. Tamura, K. Handa, A. Takeuchi, S. Yamamoto, M. Ando, K. Osumi and H. Kihara: Rev. Sci. Instrum., **68** (1997) 14.
- 10) D. G. Stearns, R. S. Rosen and S. P. Vernon: J. Vac. Sci. Technol., **A9** (1991) 2662.