フレネルゾーンプレートとその応用の最前線

竈島 靖

姫路工業大学理学部物質科学科 (〒678-12 兵庫県赤穂郡上郡町金出地 1479-1)

Present Status of the Fresnel Zone Plate and Its Applications

Yasushi KAGOSHIMA

Faculty of Science, Himeji Institute of Technology, 1479-1 Kanaji, Kamigori, Ako Hyogo 678-12

(Received January 22, 1997)

Fresnel zone plates (ZP's) are now widely used as imaging or focusing optical devices in soft x-ray region. They are fabricated by the semiconductor technology. Since the ideal spatial resolution is almost equal to the outermost zone width, the progress of ZP's completely depends on that of fabrication technology of the ultra-fine structures. The outermost zone width has recently reached 20~30nm. One of the popular applications of the ZP's is to the x-ray microscope. Along with the recent progress in synchrotron radiation sources and laboratory-size laser produced plasma x-ray sources, many x-ray microscopes are in operation or under construction in the world. In this paper, the optical property of ZP's and the present status of the applications are briefly described.

Key Words: Fresnel zone plate, Synchrotron radiation, X-ray microscopy, Magnetic circular dichroism

1. はじめに

フレネルゾーンプレート(以下ゾーンプレートをZPと略記する)は光の回折と干渉効果に基づいてレンズの働きをする光学素子である。屈折レンズの存在しない軟X線領域では広くレンズの代わりに用いられている。特に軟X線顕微鏡においてはZPなしではその存在が語れないほど重要な役割を担っている。本解説では、ZPの基本的な特性、製作法、軟X線顕微鏡の現況について概観し、我々が開発した円偏光軟X線顕微鏡についても述べる。

2. ZPの光学的性質¹⁾

ZPはFig.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円形の透過型回折格子である。奇数番目の輪帯が透明なものを正のZPといい、偶数番目の輪帯が透明なものを負のZPということもある。ここではZPの取り扱い上不可欠な公式のみに触れる。 n 番目の境界の半径 r_n は、焦点距離を f 、入射光の波長を λ としたとき次式で表される。

$$r_n = (n f \lambda)^{1/2}, \quad n = 1, 2, 3, \dots, N \quad (1)$$

(1)式で $n = 1$ とおけば次式のように f が得られる。

$$f = r_1^2 / \lambda \quad (2)$$

高次の焦点も同時に存在しその焦点距離は

第25巻第5号 フレネルゾーンプレートとその応用の最前線

$$f_{2m+1} = f / (2m+1), \quad m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (3)$$

で与えられる。(3)式はZPに波長 λ の平面波を入射させると、Fig.2のように $m > 0$ の時には f_{2m+1} に焦点を結ぶ収束球面波、 $m < 0$ の時には $-f_{2m+1}$ の虚焦点から発散する球面波を生ずることを意味している。各次数の回折効率については、0次光すなわち光軸方向に直進する平面波の効率 E_0 は25%、 $2m+1$ 次光の効率 E_{2m+1} は

$$E_{2m+1} = |i / (2m+1)\pi|^2 \quad (4)$$

で与えられる。従って

$$E_1 = 10.1\%, \quad E_3 = 1.1\%, \quad E_5 = 0.4\%, \dots \quad (5)$$

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を繰り返す場合には回折効率が低いが、不透明輪帯を通過する光波に π だけ位相変化を与えるようにすれば回折効率が向上する。これを位相ZPと呼ぶ。位相ZPの回折効率は

$$E_0 = 0\%, \quad E_1 = 40.5\%, \quad E_3 = 4.5\%, \dots \quad (6)$$

となり、4倍の効率の向上が期待できる。

ZPの点像関数はゾーン数 N が $N \geq 100$ ならば、等しい開口数(N.A.)を持つレンズとほぼ同じになる。ZPのN.A.は、 $r_N \ll f_{2m+1}$ ならば

$$N.A. \approx (2m+1)\lambda / 2\delta r_N \quad (7)$$

Fig.1 Parameters of ZP.

Fig.2 Lens function of ZP. Both convex and concave function and higher diffraction orders exist simultaneously.

で近似される。ここで、 δr_N は最外輪帯幅である。(7)式をRayleighの式に代入すれば空間分解能 Δ は次式となる。

$$\Delta \approx 1.22 \delta r_N \quad (8)$$

このように、ZPの空間分解能は波長には依存せず、また最外輪帯幅を狭くすればするほど高い値が得られその値はほぼ最外輪帯幅に等しい。従って10nmの分解能を得るには、10nmの幅の格子構造の加工が要求されることになる。(2)式からわかるようにZPは強い色収差を持つので、照明光は単色光でなくてはならない。(8)式を達成するには

$$\lambda / \Delta \lambda \geq N(2m+1) \quad (9)$$

の単色性が必要である。一方でこの強い色収差を利用すればZPを分散素子とした分光器を構成できる。これは直線型分光器(linear monochromator)と呼ばれており、ドイツのゲッティンゲン大学のグループが開発したものである²⁾。ZPの後側光軸上にピンホールを置けば、ピンホール上に集光した光の波長のみがピンホールを通過する。ピンホールとZPの直径をそれぞれ d 及び D とすると、 $D \ll f_{2m+1}$ ならば

直線型分光器の波長分解能 $\lambda / \Delta \lambda$ は

$$\lambda / \Delta \lambda \approx D / 2d \quad (10)$$

で近似される²⁾。従ってこの分光器の波長分解能を上げるには D を大きくするか、あるいは d を小さくしなければならない。後述するが、顕微鏡で用いる場合には d は視野を制限する開口になるので、実用上10 μ m程度を確保しなければならない。一方 D は照射サイズと同じ程度にすべきなので、ビームサイズと発散が小さい第3世代の高輝度放射光源においては D を大きくしても意味がなく、直線型分光器は高輝度放射光源には必ずしもマッチングしていない。

3. 軟X線用ZPの実際

軟X線用ZPは半導体産業が生み出した超微細加工技術によって作られている。製作法には紫外線レーザーを用いるホログラフィック法と電子線ビームリソグラフィ法があるが現在は後者が主流である。ただし、電子ビーム法では直径が数mmに達する大口径のZPを製作するには、広い照射サイズでの描画精度と膨大なデータ数が問題になり、その製作は極めて困難である。ZPのX線吸収体には、通常X線吸収率が高く比較的加工性の良い金を用いられており、パターンの形成には電気メッキ法が用いられている。また、ニッケルやゲルマニウムを位相物体に用いた位相ZPの開発も行われている。

ゲッティンゲン大学のグループはアルゴンレーザーの2倍高調波(257nm)を用いホログラフィック法により最外輪帯幅58nmの集光用と対物用のZPを製作した³⁾。特に直径が9mmもある集光用ZPは彼らのグループでしか作られていない。このZPを用いて軟X線顕微鏡で初めて分解能が100nmを越えた³⁾。米国のローレンスバークレー国立研究所X線光学センターのグループはIBMと共同で電子ビーム法の開発を進め、最外輪帯幅30nmの金のZPを製作し、またニッケルを位相物体とした最外輪帯幅40nmの位相ZPの製作にも成功している⁴⁾。ゲッティンゲン大学のグループは対物ZPの製作を電子ビーム法でも始め、ゲルマニウムを位相物体とした最外輪帯幅20nmの位相ZPを製作した⁵⁾。この他電子線コンタミネーション法⁶⁾等があるが、ここではNTTが開発したタンタルをX線吸収体とするZPを紹介する⁷⁾。タンタルを用いた場合、金と同程度のX線吸収率を持つ、金の4倍の強度を持つ、微細加工に適した反応性イオンエッチング(Reactive Ion Etching)が利用でき、さらにパターン形成過程の簡素化とドライ化が図れる等の利点がある。また、新しいデータ変換のアルゴリズムを開発し電子ビーム法では最大である直径3mmのZPを最外輪帯幅50nmで作ることに成功している⁷⁾。Figure 3に直径1mmのZPの、(a)全体の光学顕微鏡写真と(b)外周部の断面の電子顕微鏡写真を示す。中心部には不要な回折光を除去するために2 μ m厚の金でアポディゼーション(apodization)を施してある。

以上のようにZPの空間分解能は製作技術の上では50nm以下に達している。しかしながら実験で評価された値は60nm付近で飽和している。これは50nm程度の幅より狭い外周部の輪帯の製作精度が、それらがレンズの作用に寄与

Fig.3 Ta zone plate developed by NTT. Its diameter and outermost zone width are 1mm and 50nm, respectively.

するには現状では必ずしも十分ではないためではないかと考えられる。

4. 軟X線顕微鏡への応用の現状

ZPは回折効率が低いので、多くの軟X線顕微鏡は放射光を利用している。レーザープラズマX線源を用いる顕微鏡の場合には、位相ZPを用いたり集光系に回転楕円鏡⁸⁾や多層膜回転楕円鏡⁹⁾を用いたりして低効率を補っている。

結像型顕微鏡の光学系は、ゲッチンゲン大学が開発した白色入射放射光を直線型分光器で分光し、対物ZPで拡大・結像する光学系³⁾が主流である。Figure 4にその原理を示す。ピンホールが視野を制限する開口の役割をし、その直後に置かれた試料の透過X線像を対物ZPで拡大・結像する。ピンホールは集光ZPの0次回折光が結像領域に及ばないように遮蔽する役割も担っている。また、集光ZPの中心部にはX線ストッパーを設け、結像領域に対物ZPの0次回折光が及ばないようにしている。このX線ストッパーを施すことはアポディゼーションと呼ばれているが、アポディゼーションは本来空間周波数フィルタリングを目的とするものなので¹⁰⁾、やや広義の使われ方をしている。ローレンスバークレー国立研究所X線光学センターのグループはゲッチンゲン大学のグループとほぼ同様の顕微鏡を開発し、同研究所にある第3世代放射光源ALSに設置した¹¹⁾。Figure 5に彼らが撮影したマラリアに感染した人の赤血球のX線顕微鏡写真を示す。背面照射型冷却CCDカメラでX線強度を検出し、疑似カラーで表示している。

Fig.4 Optical system of the imaging microscope.

Fig.5 Human red blood cell infected with malaria parasite. (Courtesy of Dr. W. Meyer-Ilse, Center for X-ray Optics, Lawrence Berkeley National Laboratory.)

走査型顕微鏡は光学素子を用いて微小スポットを生成し、そのスポットに対して試料を2次元的に走査しながら試料からの吸収強度、光電子収量等の信号を測定して画像化する手法である。空間分解能を決めるのはスポットサイズである。X線も電磁波なので原理的に波長程度までビームを絞ることができるが、現状ではZPの最外輪帯幅で決まっている。このことは結像型顕微鏡でも同じである。

X線顕微鏡のアクティビティーは、数年前までは高空間分解能化の競争であったが、最近では放射線損傷を低減するためのクライオ顕微鏡の開発¹²⁾、分光顕微法(spectro-microscopy)や顕微分光法(microspectroscopy)の研究に精力が注がれている。ニューヨーク州立大学のグループはブルックヘブン国立研究所の放射光施設NSLSにおいていち早く走査型顕微鏡の開発を始め¹³⁾、現在は分光顕微法を柱としてXANES顕微鏡、発光顕微鏡、線二色性顕微鏡、光電子顕微鏡など幅広い研究を展開している¹⁴⁾。

我々のグループは高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の円偏光軟X線ビームラインAR-NE1B¹⁵⁾において結像型顕微鏡¹⁶⁾と走査型顕微鏡¹⁷⁾の開発を並行して進めてきた。前者は生体観察を後者は物質科学応用を目的としている。結像型顕微鏡ではFig.3に示したNTTの開発したZPを集光用に使い、ローレンスバークレー国立研究所X線光学センターとIBMが共同で開発した⁴⁾50nmの最外輪帯幅を持つZPを対物用に使っている。

走査型顕微鏡では磁気円二色性をコントラストとする強磁性体の磁区構造の観察に成功している¹⁸⁾。実験系の概略をFig.6に示す。分光された右回り円偏光をZPで集光し試料に60°の角度で入射させた。集光スポットサイズは

Fig.6 Experimental set up of a scanning x-ray microscope for the observation of magnetic domains.

Fig.7 Micrographs of the same microscopic area of the nickel deposited layer taken at three photon energies.

1 μ mである。磁気試料は8mmビデオテープにニッケルを50nm蒸着したもので、磁区パターンは水平方向に交互に磁化方向が変わっておりその幅は10 μ mである。Figure 7に示した3枚の図は試料の同じ視野を3つの異なる光子エネルギー (a) 845eV, (b) 854eV (Ni-L₃ edge), (c) 871eV (Ni-L₂ edge) で撮った顕微鏡像である。磁区構造はL₃ edgeとL₂ edgeで明瞭に観察されており、かつそのコントラストはお互いに反転している。また、845eVでは何の構造も観察されていない。この結果は3d遷移金属の磁気円二色性(MCD)の測定結果¹⁵⁾と一致している。すなわち、光子のスピンの向き(円偏光の向き)と磁化方向がB磁区では平行であり、A磁区では反平行である。X線ビームを単一磁区内に固定し、光子のエネルギーを走査してニッケルの2p-3d遷移領域の吸収スペクトルをA磁区内とB磁区内について測定した。Figure 8 (a)にその結果を示す。実線が磁区Aの点線が磁区Bのスペクトルである。A磁区の吸収はL₃ edgeではB磁区より小さくL₂ edgeでは大きい。この結果はFig.7の顕微鏡像と一致している。2つのスペクトルの差をとったものをFig.8 (b)に示す。3d遷移金属の典型的なMCDスペクトルが確認された。Figure 7が分光顕微鏡法のFig.8が顕微分光法の一例である。

5. おわりに

微細加工技術が急速に発展し20nm程度のパターンが描

Fig.8 (a) Magnetic domain-specific absorption spectra and (b) MCD spectrum.

けるようになってきた。微細加工の極限と言われている10nmが実現される日もそう遠くないかもしれない。今後の課題はそのような分解能の軟X線顕微鏡によって、いかに生物学や医学や物質科学にインパクトのある情報を提供できるかであろう。

謝 辞

本解説で述べた研究は、高エネルギー物理学研究所の安藤 正海教授、宮原 恒昱教授(現所属は東京都立大学)、王 季東博士(現所属は株式会社ニコン)、筑波大学の青木 貞雄教授と共同で行われました。ゾンプレートの写真はNTTアドバンステクノロジー株式会社の小澤章博士にご提供頂きました。赤血球のX線顕微鏡写真はローレンスバークレー国立研究所のW. Meyer-Ilse博士にご提供頂きました。ここに深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 詳しくは、籠島 靖, 青木 貞雄: 放射光 3 (1990) 301.を参照されたい。
- 2) B. Niemann, D. Rudolph, and G. Schmahl: Opt. Commun. **12** (1974) 160.
- 3) B. Niemann, D. Rudolph, and G. Schmahl: Nucl. Instrum. Meth. **208** (1983) 367.
- 4) E. H. Anderson and D. Kern: *X-Ray Microscopy III* (ed. by A. G. Michette, G. R. Morrison, and C. J. Buckley, Springer-Verlag, Berlin, 1992) p.75.
- 5) J. Thieme, C. David, N. Fay, B. Kaulich, R. Medenwaldt, M.

- Hettwer, P. Guttman, U. Kögler, J. Maser, G. Schneider, D. Rudolph, and G. Schmahl: *X-Ray Microscopy IV* (ed. by V. V. Aristov and A. I. Erko, Institute of Microelectronics Technology, Moscow, 1994) p.487.
- 6) C. J. Buckley, M. T. Browne, R. E. Burge, P. Charalambous, K. Ogawa, and T. Takeyoshi: *X-Ray Microscopy II* (ed. by D. Sayre, M. Howells, J. Kirz, and H. Rarback, Springer-Verlag, Berlin, 1988) p.88.
- 7) A. Ozawa, T. Tamamura, T. Ishii, H. Yoshihara, and Y. Kagoshima: to be published in *Micro-and Nano-engineering 96* (ed. by J. Perrocheau, Elsevier, Amsterdam, 1996).
- 8) D. Rudolph, G. Schmahl, B. Niemann, M. Diehl, J. Thieme, T. Wilhein, C. David, and K. Michelmann: *X-Ray Microscopy IV* (ed. by V. V. Aristov and A. I. Erko, Institute of Microelectronics Technology, Moscow, 1994) p.381.
- 9) S. Nakayama, K. Haramura, G.-M. Zeng, H. Daido, M. Nakatsuka, S. Nakai, N. Katakura, H. Nagata, and H. Aritome: *Jpn. J. Appl. Phys.* **33** (1994) L1280.
- 10) 久保田 広: 波動光学 (岩波書店, 東京, 1973年) p.439.
- 11) W. Meyer-Ilse, H. Medeck, L. Jochum, E. Anderson, D. Attwood, C. Magowan, R. Balhorn, M. Moronne, D. Rudolph, and G. Schmahl: *Synchrotron Radiation News* **8**, No.3 (1995) 29.
- 12) G. Schneider, B. Niemann, P. Guttman, D. Rudolph, and G. Schmahl: *Synchrotron Radiation News* **8**, No.3 (1995) 19.
- 13) H. Rarback, D. Shu, S. C. Feng, H. Ade, J. Kirz, I. McNulty, D. P. Kern, T. H. P. Chang, Y. Vladimirovsky, N. Iskander, D. Attwood, K. McQuid, and S. Rothman: *Rev. Sci. Instrum.* **59** (1988) 52.
- 14) S. Williams, C. Jacobsen, J. Kirz, J. Maser, S. Wirick, X. Zhang, H. Ade, and M. Rivers: *Rev. Sci. Instrum.* **66** (1995) 1271.
- 15) Y. Kagoshima, T. Miyahara, S. Yamamoto, H. Kitamura, S. Muto, S. Park, and J. Wang: *Rev. Sci. Instrum.* **66** (1995) 1696.
- 16) J. Wang, Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, S. Aoki, E. Anderson, D. Attwood, and D. Kern: *Rev. Sci. Instrum.* **66** (1995) 1401.
- 17) Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, J. Wang, and S. Aoki: *Rev. Sci. Instrum.* **66** (1995) 1534.
- 18) Y. Kagoshima, T. Miyahara, M. Ando, J. Wang, and S. Aoki: *J. Appl. Phys.* **80** (1996) 3124.

レーザーワード

フレネルゾーンプレート (Fresnel zone plate)

光の回折現象を利用した結像素子で, 入射光に対して透明及び不透明の同心円状の輪帯を繰り返した円形の透過型回折格子である。光学の大家であるフレネルが, 光の回折現象を説明するために用いた球面波の位相区分 (フレネル帯) と原理的に同じであることからフレネルゾーンプレートと呼ばれており, 単にゾーンプレートともいう。その形状は球面波と平面波の干渉パターンであるので, 平面

波を入射させたときに集光作用, すなわち球面波の生成作用を持つことが直感的に理解できる。輪帯の幾何学的大きさは使用する波長と必要な焦点距離によって決まり, 最外周輪帯幅とほぼ等しい解像度を持つ。軟X線領域で顕微鏡用レンズとして利用した場合は, 現在50nm以下の解像度が得られている。利用波長域は1nm前後～数10nmである。
(竈島 靖)