

トピックス

ゾーンプレートの光学特性と  
軟X線顕微鏡への応用

籠島 靖, 青木貞雄\*

高エネルギー物理学研究所放射光実験施設

\* 筑波大学物理工学系

Optical Properties of a Zone Plate and Its Application to  
Soft X-Ray Microscopes

Yasushi KAGOSHIMA and Sadao AOKI\*

Photon Factory, National Laboratory for High Energy Physics

\*Institute of Applied Physics, University of Tsukuba

Optical properties of a zone plate are summarized. In order to achieve its ideal performance it must be monochromatically illuminated because its focusing or imaging function is produced by the interference among all waves diffracted at each open zone. The practical image formation by a zone plate is diagrammatically analyzed for the typical three cases. First, a nonperiodic object is illuminated by a monochromatic plane wave. Secondly, it is illuminated by undulator radiation. Finally, a one-dimensional transmission grating used as an example of periodic objects is illuminated by the undulator radiation. The peculiar function of a zone plate in comparison with the normal refractive lenses is explained by using Abbe's theory. Recent activities in soft x-ray microscopes employing zone plates are briefly reviewed. Their spatial resolution is around 500 Å, which depends on the microfabrication technique.

## 1. はじめに

波長が数Åから数十Åの軟X線は、生物試料の観察を目的とする顕微鏡の光源として優れた特長を持っている。まず、①波長が分子の大きさと同

程度なので原理的に分子レベルの空間分解能が得られる。②吸収係数の大きさが、透過法を用いて厚さが数μm程度の細胞をそのまま観察するのに適した大きさである。③吸収端を利用した差分法

を用いれば無染色で特定の原子の空間分布をコントラスト良く検出できる。④大気中の試料の観察ができ、さらに波長域を23~44Åに限れば、水溶液中の試料の観察も可能である。電子顕微鏡と比較した場合、空間分解能は劣るものの、②、③、④の内容は軟X線顕微鏡にのみ可能なものである。このように、軟X線顕微鏡は生きた生物試料の高空間分解能・実時間観察を可能にする顕微鏡として注目されている。

現在、軟X線顕微鏡の実用化を目指して多くのグループがその開発を進めている<sup>1)</sup>。それらの顕微鏡に利用されている光学素子は、ゾーンプレート、ウォルターミラー、シュバルツシルトミラーなどであり、その性能は超微細・超精密・薄膜製作技術といった半導体産業に関連する技術の進歩に依存している。ゾーンプレートは光の回折現象を利用した素子なので、色収差を避けるためには照明光に単色性が必要となり、その分だけ光源に要求される単位バンド幅当りの強度が高くなる。ウォルターミラーは同軸の回転楕円面と回転双曲面を組み合わせたミラーである。斜入射光学系なので高い反射率が得られるが、非球面であるために高い形状精度が要求される。シュバルツシルトミラーは直入射光学系を利用できるので大きな立体角を得易く、球面なので製作精度も高い。しかし、軟X線領域で実用的な反射率を得るためには多層膜コーティングをする必要があり、その製作段階での反射面の凹凸が問題となる。それぞれ長所と短所を持ち合わせているが、空間分解能に着目した場合、現時点では、ゾーンプレートが最も高い分解能を得ている。本稿では、軟X線顕微鏡の光学素子としてゾーンプレートに注目し、その基本となる光学的性質をまとめたあと、ゾーンプレートの通常のレンズとは異なる特殊な像形成の作用を光源がアンジュレタ光（スペクトルが基本波とその高調波からなる）の場合を中心に解析し、最後にゾーンプレートを用いた軟X線顕微鏡の現状をレビューする。

## 2. ゾーンプレート

### 2-1. 光学的性質

ゾーンプレートは図2-1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透過型円形回折格子である。奇数番目の輪帯が透明なものを正のゾーンプレートといい、偶数番目の輪帯が透明なものを負のゾーンプレートという。ゾーンプレートの焦点距離は、入射光の波長を $\lambda$ としたとき図2-2に示すように、隣り合う境界による光路差が $\lambda/2$ であるという条件から

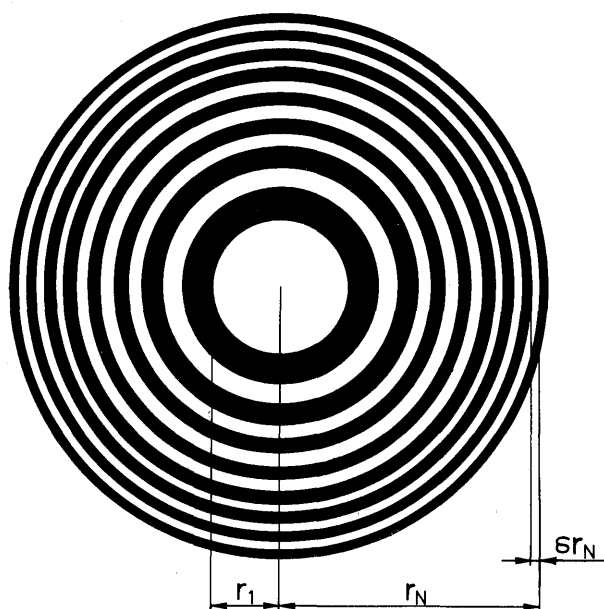


Fig. 2-1 Parameters of a zone plate.

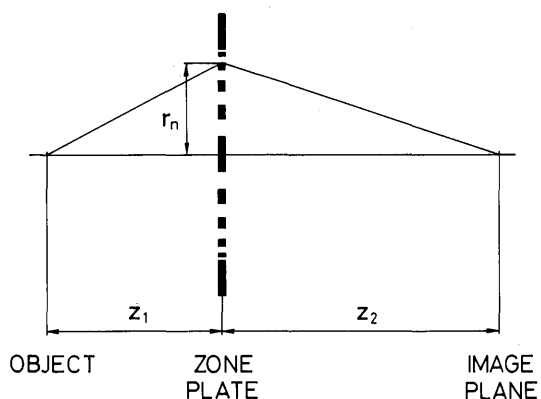


Fig. 2-2 Description of the imaging function of a zone plate.

導くことができる。すなわち、物体と像がともに光軸上にあるとし、物体からゾーンプレートまでの距離とゾーンプレートから像までの距離をそれぞれ  $z_1$  及び  $z_2$ 、ゾーンプレートの  $n$  番目の境界の半径を  $r_n$  とすると

$$z_1 + z_2 + n\lambda / 2 = (z_1^2 + r_n^2)^{1/2} + (z_2^2 + r_n^2)^{1/2} \quad 2-1$$

が成り立てばよい。右辺を展開して整理すると、

$$n\lambda = r_n^2 \left( \frac{1}{z_1} + \frac{1}{z_2} \right) - \frac{1}{4} r_n^4 \left( \frac{1}{z_1^3} + \frac{1}{z_2^3} \right) + \dots \quad 2-2$$

となり、 $r_n \ll z_1, z_2$  ならば右辺の高次項は無視できて

$$f = r_n^2 / n\lambda = r_1^2 / \lambda \quad 2-3$$

とおけば、薄レンズの結像公式

$$1/z_1 + 1/z_2 = 1/f \quad 2-4$$

が成立ち、ゾーンプレートがレンズの働きをすることがわかる。 $n$  番目の境界の半径は、2-3式から

$$r_n = (nf\lambda)^{1/2}, n=1, 2, \dots, N \quad 2-5$$

で与えられる。ゾーンプレートの結像作用は回折光の干渉によって起こるので、高次の焦点も存在する。2-1式において  $n\lambda/2$  の代わりに  $n(2m+1)\lambda/2$  とすれば、 $2m+1$  次の焦点距離は

$$f_{2m+1} = f / (2m+1), m=0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad 2-6$$

で与えられる。

ゾーンプレートの振幅透過率はフーリエ級数で表わすことができ、半径  $r$  における値  $T(r)$  は正のゾーンプレートについて<sup>2)</sup>、

$$T(r) = \frac{1}{2} + \frac{2}{\pi} \sum_{K=0}^{\infty} \frac{1}{2K+1} \sin \frac{2\pi(2K+1)r^2}{2\lambda f}$$

$$= \frac{1}{2} - \frac{i}{\pi} \sum_{K=0}^{\infty} \frac{1}{2K+1} \exp \frac{2\pi i(2K+1)r^2}{2\lambda f}$$

$$+ \frac{i}{\pi} \sum_{K=0}^{\infty} \frac{1}{2K+1} \exp \frac{-2\pi i(2K+1)r^2}{2\lambda f} \quad 2-7$$

で表わされる。2-7式から、ゾーンプレートに波長  $\lambda$  の平面波を垂直に入射させると、第2項は  $f_{2K+1}$  の各点に焦点を結ぶ収束球面波、第3項は  $-f_{2K+1}$  の各虚焦点から発散する球面波を生ずることがわかる。各次数の回折効率、2-7式の各項の係数の絶対値の2乗で与えられるので、0次光、すなわち光軸方向に進む平面波の効率  $E_0$  は、

$$E_0 = (1/2)^2 = 25\% \quad 2-8$$

$2m+1$  次光の効率  $E_{2m+1}$  は、

$$E_{2m+1} = |i / (2m+1)\pi|^2 \quad 2-9$$

で与えられる。従って、 $E_1 = 10.1\%$ ,  $E_3 = 1.12\%$ ,  $E_5 = 0.4\%$ ……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を繰り返すゾンプレートでは回折効率が低いので、不透明輪帯を薄膜にしてそこを通過する際の光波の位相変化を $\pi$ とする位相ゾンプレートがある。このときの振幅透過率は1と-1の繰り返しとなり、半径 $r$ における値は

$$T(r) = \frac{4}{\pi} \sum_{K=0}^{\infty} \frac{1}{2K+1} \sin \frac{2\pi(2K+1)r^2}{2\lambda f} \quad 2-10$$

で与えられる。各次数の回折効率は、 $I_0=0, I_1=|2i/\pi|^2=40.5\%, I_2=|2i/3\pi|^2=4.5\%$  となり、4倍の向上が期待できる。実際には、薄膜による吸収が伴うので効率は低下する。

ゾンプレートをレンズとして用いたときの点像関数<sup>3-5)</sup>は、ゾーン数 $N$ が $N \geq 100$ ならば、等しい開口を持つレンズとほぼ同じ関数になることが確かめられている。従って、ゾンプレートの空間分解能 $\Delta$ はレーリーの定義、すなわち

$$\Delta = 0.61 \lambda / N.A. \quad 2-11$$

を用いて求めることができる。ここで、 $N.A.$ は開口数である。ゾンプレートの $N.A.$ は、 $r_N \ll f_{2m+1}$  ならば次式で近似できる。

$$\begin{aligned} N.A. &= \sin(r_N / f_{2m+1}) \\ &\sim r_N / f_{2m+1} \\ &\sim (2m+1) N \lambda / r_N \end{aligned} \quad 2-12$$

ゾンプレートの最外輪帯幅 $\delta r_N$ は、

$$\delta r_N = r_N - r_{N-1} \sim r_N / 2N \quad 2-13$$

と表わすことができるので、2-12、13式から開口数 $N.A.$ は、

$$N.A. = (2m+1) \lambda / 2\delta r_N \quad 2-14$$

で与えられる。従って、2-14式を2-11式に代入して

$$\Delta \sim 1.22 \delta r_N / (2m+1) \quad 2-15$$

という結果が得られる。このように、ゾンプレートを結像素子に用いた顕微鏡においては、ゾンプレートの最外輪帯幅を狭くすればするほど高い分解能が得られることになる。また、利用する回折次数を高くすれば効率は低くなるがより高い分解能が得られる。ただし、高次回折を利用する場合は相対的に強度が高い低次の回折光を除去する必要がある。

ゾンプレートを回折効果を利用した光学素子であるので、色収差を避けるには入射光に単色性が必要である。入射光の波長変化分を $\Delta \lambda$ とし、それに伴う焦点距離の変化分を $\Delta f$ とすると2-3、2-6式から、

$$|\lambda / \Delta \lambda| = |f_{2m+1} / \Delta f_{2m+1}| \quad 2-16$$

が得られ、軸上強度が焦点の80%を下らない範囲という焦点深度の定義<sup>6)</sup>

$$|\Delta f_{2m+1}| = \frac{\lambda}{2} \left( \frac{f_{2m+1}}{r_N} \right)^2 \quad 2-17$$

を用いれば、入射光に求められる単色性 $\lambda / \Delta \lambda$ は、

$$\lambda / \Delta \lambda \geq N(2m+1) \quad 2-18$$

となる。従って、2-15式の空間分解能を得るためには、この条件が満足されていなければならない。逆に、入射光の単色性が2-18式を満たしていないときには色収差の影響が無視できなくなる。

ゾンプレートの色収差は、入射光の単色性を用いて表わすことができ、縦方向及び横方向の色収差をそれぞれ $\Delta z, \Delta x$ とすると、

$$\Delta z = f_{2m+1} / (\lambda / \Delta \lambda)_{\text{incidence}} \quad 2-19$$

$$\Delta x = r_N / (\lambda / \Delta \lambda)_{\text{incidence}} \quad 2-20$$

であたえられる<sup>7)</sup>。

一方、焦点距離が波長によって異なることを利用すれば、ゾンプレートを分散素子として用いることができる。これは直線型分光器(Linear Monochromator)と呼ばれている。その原理を図2-3に示す<sup>8)</sup>。直径Dのゾンプレートが白色平行光を集光する場合を考える。入射光の波長によって焦点を結ぶ位置が異なるので、ゾンプレートの後方の光軸上にピンホールを置けば、ゾンプレートとピンホールとの間の距離を焦点距離とする波長だけがピンホールを通過することになる。ピンホールの直径をdとすれば、得られる波長分解能は横方向の色収差の大きさがdに等しいとおけばよいので、2-20式から

$$\frac{\lambda}{\Delta \lambda} \approx \frac{r_N}{d} = \frac{D}{2d} \quad 2-21$$

となる。この直線型分光器はドイツのゲッチンゲン大学のグループが開発したもので<sup>8)</sup>、BESSYで稼働中の軟X線顕微鏡に応用されている<sup>9)</sup>。

## 2-2・軟X線用ゾンプレート

軟X線用ゾンプレートの製法には、紫外線レーザーを用いるホログラフィック法と電子ビームリソグラフィ法とがある。現在は、後者の方が主流である。前述のゲッチ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(2570 Å)を用い、ホログラフィック法により最外輪帯幅580 Åのゾンプレートを製作している<sup>9)</sup>。電子ビーム法としてはアメリカのIBM<sup>10)</sup>とドイツのアー

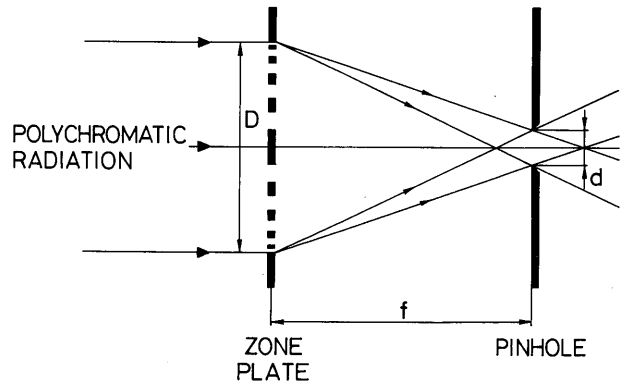


Fig. 2-3 Principle of a zone plate linear monochromator

ヘン工科大学のグループ<sup>11)</sup>がそれぞれ最外輪帯幅500 Åのものを製作している。ゾンプレートの不透明部分には、X線吸収率が大きく比較的加工性のよい金が従来から用いられており、パターンの形成法としては電気メッキ法が一般に利用されている。また、金と同程度のX線吸収率を持ち、残留応力が小さく強度も高いタンタルを使ったゾンプレートも作られている<sup>12)</sup>。そこではRIE(reactive ion etching)を利用している。この他に、電子ビーム法の一つとしてキングスカレッジのグループが開発したカーボンコンタミネーションリソグラフィ法がある<sup>13)</sup>。この方法は、カーボンの薄膜に電子ビームを照射した時に形成される真空中の炭化水素物のコンタミネーションによってゾンプレートのパターンを描き、それをマスクにX線リソグラフィの手法を用いて金を吸収体とするレプリカゾンプレートを作るものである。彼らは、最外輪帯幅がマスクパターンで350 Å、レプリカで750 Åのゾンプレートの製作に成功している<sup>14)</sup>。ゾンプレートのパターンの支持には、通常はポリミドあるいは窒化シリコンの薄膜を用いるが、吸収による効率の低下をできるだけ抑えるためにスポーク状の支持体を設け、ゾンプレートパターンを空間的に浮いた状態にするフリースタANDING構造のもの

もある。

### 3. ゾーンプレートの像形成

結像光学系においては、用いる結像素子の像形成の特性を理解することが非常に重要である。ゾーンプレートは回折を利用した光学素子であるために、異なる回折次数によって生ずる複数の像が必ず現われる。アンジュレータ光照明の場合は、異なる高調波の次数による複数の像がさらに加わり、像形成はより複雑になる。物体が周期性を持つ場合は、その回折効果も加わり、像形成は一層複雑になる。ここでは、ゾーンプレートの像形成を3通りの結像系について解析し、対応する実験について述べる。なお、ここで述べる内容はRef.15に既に公表済みである。

#### 3-1. 幾何光学的解析

##### 1) 単色光照明下の非周期物体の像形成

最も簡単な結像系は、物体を単色平面波で垂直に照明する場合(Köhler's central illumination<sup>6)</sup>)である。結像系において基本となる変数は結像素子の焦点距離である。ゾーンプレートの焦点距離は2-16式で表わされるので、これを薄レンズの結像公式に代入すれば、ゾーンプレートの結像公式として

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b_m} = \frac{m}{f_1} \quad (m = 2k+1, k=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad 3-1$$

を得る。ここで、 $a$ および $b_m$ は物体からゾーンプレートまでの距離とゾーンプレートから $m$ 次回折による像までの距離であり、 $f_1$ は1次回折の焦点距離である。ゾーンプレートの特殊性は全ての回折次数が各々独立して像を作るということである。

図3-1(a)は、非周期物体を単色平面波で垂直に照明した場合のゾーンプレートの像形成の様子を示している。ここでは、ゾーンプレートの回折

は正負の1次のみで、+1次回折の焦点距離がその結像条件を満たした配置になっている。ゾーンプレートは凸レンズによる実像(+1st order real image)と凹レンズによる虚像(-1st order virtual image)だけでなく、0次回折による物体と等倍の投影像と、見かけ上凹レンズの焦点 $F_{-1}$ から凹レンズの虚像を投影拡大した像ととらえることができる像が現われる(以後この像を便宜的に-1次の投影像と呼ぶことにする)。従って、ゾーンプレートを用いて物体を結像するときは、高次の回折を無視しても少なくとも3種類の像が現われることになる。図中の変数を満たす方程式をまとめると以下の2式となる。

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b_{+1}} = \frac{1}{f_1} \quad 3-2$$

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b_{-1}} = -\frac{1}{f_1} \quad 3-3$$

-1次の投影像の倍率 $M_{-1}^s$ は簡単な幾何学から

$$M_{-1}^s = 1 + b_{+1}/f_1 \quad 3-4$$

で与えられる。ここで上付き添字 $s$ は投影像(Shadow projection image)であることを示している。図3-1(a)においては、各々の像はお互いに重なり合っていて分離できないことがわかる。しかしながら、実像だけは倒立像なので軸外しダイアフラムを用いて照明領域を空間的に制限することによって実像だけをうまく分離することができる。その原理を図3-1(b)に示す。軸外しダイアフラムを用いてもゾーンプレートの光軸上の物体に対する取り込み角度、すなわち開口数(numerical aperture)は変わらないので、空間分解能は通常の光学系と同じである。もし照明光が完全な平面波でないならば、焦平面上に集まる光が一点にならずに面積を持つので投影像も

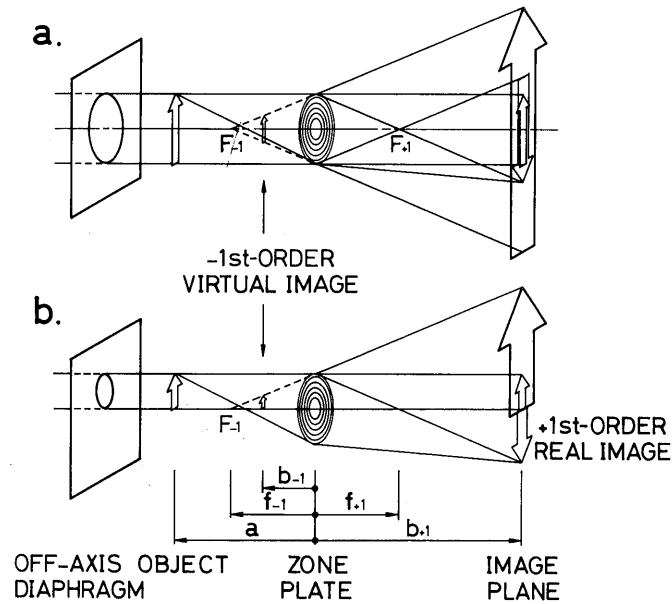


Fig. 3 - 1 Image formation by a zone plate when a nonperiodic object is illuminated by a monochromatic plane wave.

(a) normal on-axis mode

(b) off-axis diaphragm is inserted

ボケてしまう。一方、入射光の方向性が完全にランダムならば、投影像は結像面全体に拡がるバックグラウンドとなってしまい、物体の形状を現わさないで観察される像は実像だけとなる。

## 2) アンジュレータ光照明下の非周期物体の像形成

アンジュレータ光には高調波が存在するので、ゾンプレートの像形成は1)の場合より複雑になる。アンジュレータ光の $n$ 次光の波長は

$$\lambda_n = \lambda_1 / n \quad (n=1, 2, \dots) \quad 3-5$$

と書けるので<sup>15)</sup>、アンジュレータ光の $n$ 次光に対するゾンプレートの $m$ 次回折の焦点距離 $f_{mn}$ は

$$f_{mn} = n f_{+11} / m \quad (m=2k+1, k=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad 3-6$$

と書ける。ここで、下付き添字 $+11$ はアンジュレータ光が1次光でゾンプレートが $+1$ 次回折であることを表わしている。3-1式と同様に3-6式を薄レンズの結像公式に代入すると

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b_{mn}} = \frac{m}{n f_{+11}} \quad (m=2k+1, k=0, \pm 1, \pm 2, \dots) \quad 3-7$$

となる。図3-2は非周期物体がアンジュレータ光に照明されている場合のゾンプレートの像形成の様子を示している。この図は以下の3つの仮定のもとで描いてある。まず、ゾンプレートの回折は正負の1次だけである。二番目にアンジュレータ光のスペクトルは、1~3次光で構成されている。三番目に、アンジュレータ光の1次光の $+1$ 次焦点距離 $f_{+11}$ が結像条件を満たしている。図3-2に示すように、アンジュレータ光とゾンプレートによる結像系においては、アン

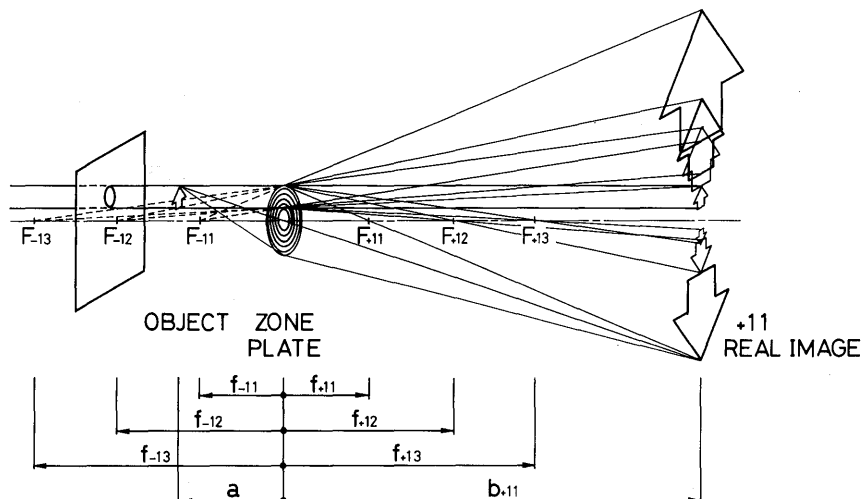


Fig. 3 - 2 Image formation by a zone plate when a nonperiodic object is illuminated by undulator radiation. The primary (+11) image can be separated by inserting an off-axis diaphragm with appropriate aperture. The undulator radiation is assumed to consist of from the first to the third harmonics.

ジュレータ光の各高調波の-1次焦点 $F_{-1n}$ による正立投影像と,+1次焦点 $F_{+1n}$ にいったん収束してその後発散して行く倒立投影像が現われることがわかる。図では,軸外しダイアフラムの直径を1次光の+1次焦点距離 $f_{+11}$ による実像(+11real image)が他の投影像から分離できる大きさにしてある。

アンジュレータ光の $n$ 次光に対する-1次焦点 $F_{-1n}$ の作用による正立投影像の倍率 $M_{-1n}^s$ と,+1次焦点 $F_{+1n}$ による倒立投影像の倍率 $M_{+1n}^s$ は簡単な幾何学から

$$M_{-1n}^s = 1 + b_{+11} / n f_{+11} \tag{3-8}$$

$$M_{+1n}^s = b_{+11} / n f_{+11} - 1 \tag{3-9}$$

と書ける。この2つの倍率の差は,

$$M_{-1n}^s - M_{+1n}^s = 2 \tag{3-10}$$

となり,一定である。従って,高倍率になると両

者の倍率がほとんど等しくなるので,倍率だけで両者を区別することは難しくなる。ゾンプレータの高次回折を含めた各投影像の倍率は

$$M_{mn}^s = 1 - m b_{+11} / n f_{+11} .$$

( $m < 0$ : 正立投影像)

$$M_{mn}^s = m b_{+11} / n f_{+11} - 1$$

( $m > 0$ : 倒立投影像)

$$(m = 2k + 1, k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots)$$

3-11

で与えられる。高次回折による投影像は,効率が低い上に倍率も高いので,その影響は無視できる。

図3-3<sup>17)</sup>に示したように,アンジュレータ光のスペクトルは鋭いピークの奇数次光と鈍いピークの偶数次光からなるので,奇数次光による投影像がシャープな像なのに比べて偶数次光による投影像は鈍くなる。また,スペクトル全体にわたって白色光成分が存在するので,隣合う投影像は完全には分離されない。



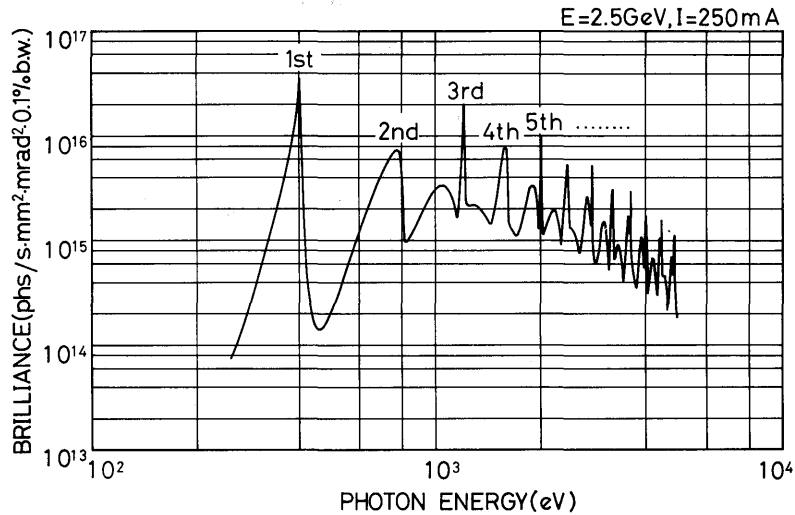


Fig. 3 - 3 Typical spectral distribution of the undulator radiation<sup>17)</sup>, where the photon energy of the first harmonic is 400 eV.

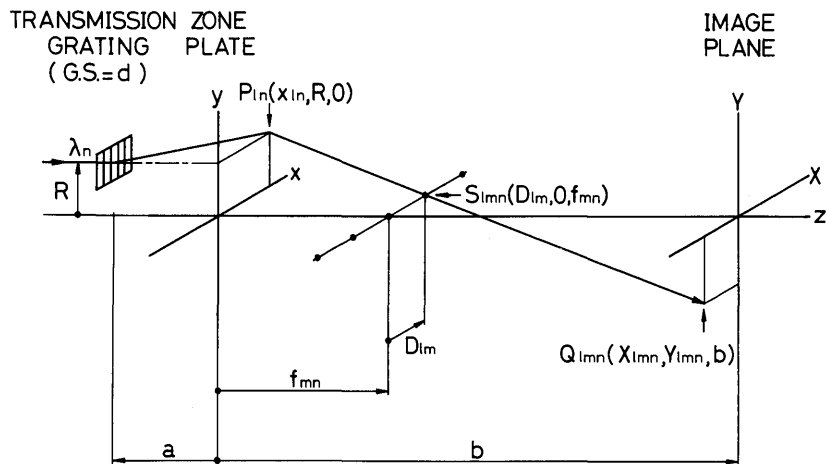


Fig. 3 - 4 Motion of a monochromatic ray incident on the zone plate imaging system. The diffraction order of the transmission grating, that of a zone plate and the harmonic order of the undulator radiation are represented by subscripts  $l, m$  and  $n$ , respectively.

### 3) アンジュレータ光照明下の周期物体（一次元透過回折格子）の像形成

物体が周期性を持つ場合は、その回折効果によって生ずる投影像がさらに加わる。この作用を考察するために周期物体として最も単純な一次元透過回折格子を例に挙げる。一次元透過回折格子

の場合から二次元の周期物体の場合へ議論を拡張することは容易である。単色平面波で物体を照明した場合、対物レンズの後側焦平面上に物体のフラウンホーファー回折パターンが現われるので、回折格子の場合は各次数に対応する極大値（スペクトル）が形成される。Abbeによれば<sup>16)</sup>、こ

これらのスペクトルはコヒーレントな二次光源の中心であり、そこから進んで行く光波がお互いに干渉し合い、その結果像を結ぶと考えるとよい。対物レンズがゾーンプレートの場合は、各スペクトルの位置は回折格子の回折次数、ゾーンプレートの回折次数及びアンジュレータ光の高調波の次数によって決まる。図3-4は、一次元透過回折格子を物体としゾーンプレートを対物レンズとする光学系にアンジュレータ光のn次光が入射したときの光線（あるいは、波面の法線）の経路を表わしている。ここでは、軸外しダイアフラムの効果を考慮するために、光線は光軸に平行に距離Rだけ離れて入射するとしている。n次光の光線は、まず回折格子のℓ次回折によってP<sub>ℓn</sub>に向かう方向に向きを変える。次に、ゾーンプレートのm次回折によってS<sub>ℓmn</sub>に向かう方向にさらに向きを変える。最後に、結像面と交わりその交点がQ<sub>ℓmn</sub>である。回折格子の格子定数dがアンジュレータ光の1次光の波長λ<sub>1</sub>よりも十分大きいならば、P<sub>ℓn</sub>のx座標x<sub>ℓn</sub>は

$$x_{\ell n} = \frac{\ell a \lambda_1}{n d} \tag{3-12}$$

で与えられる。S<sub>ℓmn</sub>のx座標、すなわち距離D<sub>ℓm</sub>は

$$D_{\ell m} = \frac{\ell \lambda_1 f_{mn}}{d} = \frac{\ell r_1^2}{m d} \tag{3-13}$$

で与えられる。この距離は波長によらない。光線は2点P<sub>ℓn</sub>, S<sub>ℓmn</sub>を通るので、3次元空間の直線の方程式からQ<sub>ℓmn</sub>のX, Y座標は次式で表わされる。

$$X_{\ell mn} = \frac{m}{n} \frac{\lambda_1}{r_1^2} b \left( \frac{\ell}{m} \frac{r_1^2}{d} - \frac{\ell}{n} \frac{a \lambda_1}{d} \right) + \frac{\ell}{n} \frac{a \lambda_1}{d} \tag{3-14}$$

$$Y_{\ell mn} = -\frac{m}{n} \frac{\lambda_1}{r_1^2} b R + R$$

この2式からλ<sub>1</sub>を消去すれば

$$X_{\ell m} = -\frac{\ell}{m} \frac{r_1^2}{d} \frac{a}{b} \left\{ \frac{Y_{\ell m}}{R} + \frac{1}{2} \left( \frac{b}{a} - 1 \right) \right\}^2 + \frac{1}{4} \frac{\ell}{m} \frac{r_1^2}{d} \frac{a}{b} \left( 1 + \frac{b}{a} \right)^2 \tag{3-15}$$

を得る。この方程式はどの光線も次数ℓ, m及びnで決まる放物線上に現われることを意味している。また、mは正負の奇数であり、もし回折格子の振幅透過率が矩形関数ならばℓも正負の奇数と

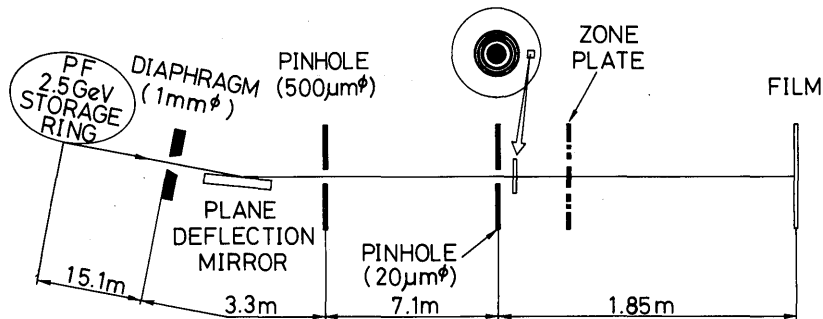


Fig. 3-5 Experimental set up for the image formation by a zone plate with the undulator radiation. The outer area of a large zone plate was employed as a transmission grating.

なることに注意しておく必要がある。

### 3-2. 実験

3-1の解析結果を確かめるために行った実験について簡単に述べることにする。実験光学系を図3-5に示す。放射光実験施設のアンジュレータ光とビームライン(BL2B)の性能については、他の文献を参照されたい<sup>18, 19)</sup>。アンジュレータ光の1次光の波長は $26.6 \text{ \AA}$ に固定して実験を行った。ゾンプレートには軟X線顕微鏡で対物ゾンプレートとして用いているものを代用した。その最内半径 $r_1$ は $5.0 \mu\text{m}$ 、ゾーン数 $N$ は100であるので、主焦点距離 $f_{+1}$ は $9.40 \text{ mm}$ 、直径は $100 \mu\text{m}$ である。透過型回折格子には、軟X線顕微鏡で集光ゾンプレートに用いているゾンプレート(直径 $1 \text{ mm}$ )の外周部分を利用した。この領域での平均格子定数は $0.72 \mu\text{m}$ である。軸外しダイアフラムには直径 $20 \mu\text{m}$ のピンホールを用いた。図3-5において、回折格子、ゾンプレート及びフィルムの位置関係は $f_{+1}$ が結像条件を満たす配置になっており、その主倍率 $M_{+1}$ は195である。

図3-6-a)は全ての光学素子を光軸上に置いたときの(on axis)結像面内の回折スポットの様子を示している。このとき、ある一つの回折スポットが次数 $l, m, n$ のどのような組合せに由来するものなのかを識別することはできない。図b)はピンホールを $30 \mu\text{m}$ 軸外しした時の回折スポットを、図c)は、3-14式から求められる図b)に対応する回折スポットの配列を示している。ビームラインの平面偏向ミラーの臨界波長は約 $5 \text{ \AA}$ なので、アンジュレータ光の高調波次数 $n$ は5次まで図示した。 $+1+11$ というのは、回折格子の回折次数 $l$ が $+1$ 、ゾンプレートの回折次数 $m$ が $+1$ 、アンジュレータ光の高調波次数 $n$ が1であることを示している。点線は3-15式から決まるいくつかの放物線を表わしている。図c)の下側中央部分に主実像( $+1+11$  real image)が得られていることがわかる。アンジュレータ光には連

続光成分が存在するので、隣合う回折スポットは完全には分離されていない。ゾンプレートの透明部分と不透明部分の面積の比が完全に $1:1$ でないときには偶数次回折も生じる。図b)におい

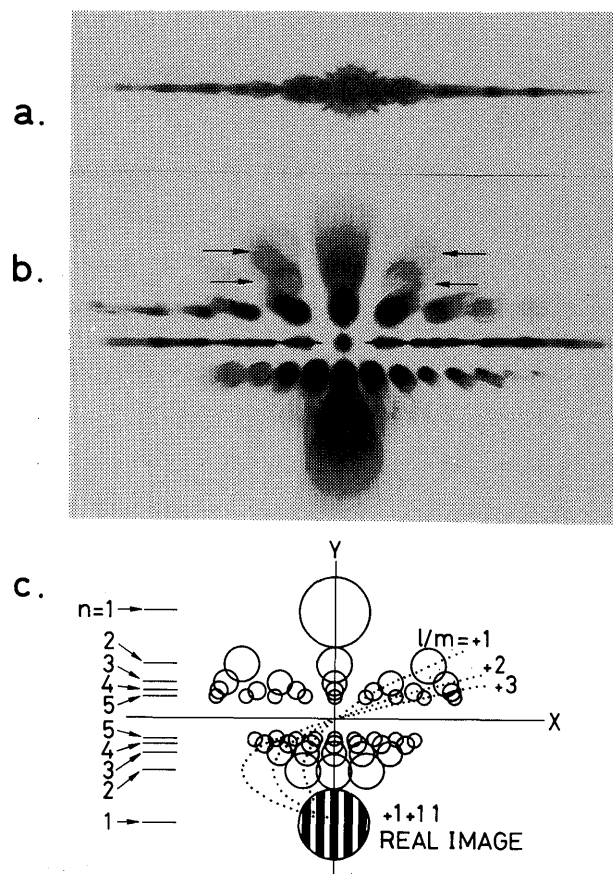


Fig. 3-6 Arrangement of the diffraction spots in the image plane.

(a) All optical elements were set on an optical axis.

(b) Off-axis diaphragm is inserted. Arrows indicate examples of the forbidden diffraction spots.

(c) Result of eq.3-14. The size of circles corresponds to the magnification of the diffraction spots in the image plane. Dotted lines represent several parabolic curves determined by eq. 3-15.

て矢印で示したスポットは、この偶数次の作用のためと考えられる。また、回折スポットの強度と形が左右間で多少異なるのは、用いた回折格子が曲率を持っているためである。3-1で解析した結果と実験結果が非常に良く一致していることがわかる。

#### 4. ゾーンプレートを用いた軟X線顕微鏡の現状

ゾーンプレートは効率が低いので、現在稼働中の軟X線顕微鏡は放射光を利用する例が多い。それらは結像型と走査型に大別できる。結像型は、ゾーンプレートを結像素子として用いるもので、直接に試料の拡大像が得られることや実時間観察が可能などの長所を持っている。走査型は、ゾーンプレートを集光素子に用いて微小スポットを作り、そのスポットに対して試料を機械的に二次元走査し画像化するものである。得られる画像がデジタル像なので定量評価が容易である、試料の放射線損傷を最小に抑えられる、検出器に位置分解能が必要でないなどの長所がある。どちらの場合も、空間分解能を決めるのは入射光が単色であるならば2-15式に示したようにゾーンプレートの最外輪帯幅である。また、得られる像は試料の軟X線透過像、すなわち吸収率の空間分布である。

##### 4-1. 結像型軟X線顕微鏡

結像型顕微鏡では白色入射放射光を分光するために、口径の大きい集光ゾーンプレートとピンホールからなる直線型分光器が用いられることが多い。この分光器の原理は第2節で述べてあり、その波長分解能は2-21式で与えられる。顕微鏡全体の基本的な光学系を図4-1に示す。ピンホールが絞りの役割をし、その直後に置かれた試料の軟X線透過像を対物ゾーンプレートを用いて拡大結像する。ゾーンプレートでは入射光の半分は回折せずにそのまま直進するので、ピンホールは集光ゾーンプレートの直進光が結像領域でのノイズにならないように遮蔽する働きもする。また、集光ゾーンプレートの中心部にはX線ストッパーを設け、結像領域に対物ゾーンプレートの0次回折光が及ばないようにしている。

ゲッチンゲン大学のグループは偏向電磁石からの軌道放射光を光源に用いた軟X線顕微鏡をBESSYに建設した<sup>1)</sup>。彼らは、波長45 Å、拡大率250~350倍程度、露光時間10~30秒で、約500 Åの分解能で乾湿両状態の試料の拡大像を得ている<sup>2)</sup>。また、彼らは金と銀の2種類の位相板を用いた位相差顕微鏡を開発し、同一の生体試料について振幅コントラストと位相コントラストの両方の拡大像を撮影している<sup>21)</sup>。さらに、プラズマX線源を用いた実験室サイズの軟X線顕微鏡を開発している<sup>22)</sup>。この顕微鏡では、光源の強度を補うために、集光及び

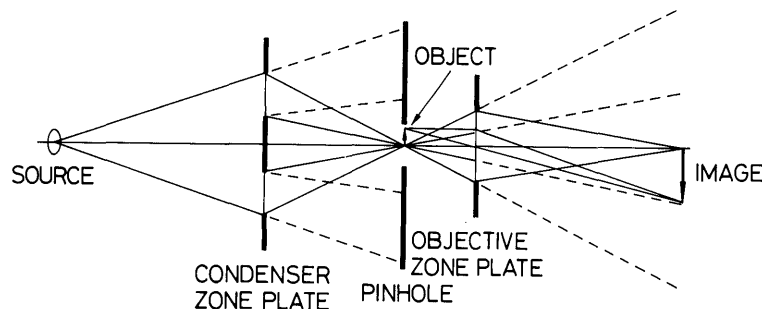


Fig. 4-1 Optical system of an imaging type soft x-ray microscope,

対物ゾンプレートにゲルマニウムを位相体とした位相ゾンプレートを利用している。

我々のグループは、NTTの開発したタンタル製ゾンプレート<sup>1,2)</sup>を用いて、高エネルギー物理学研究所放射光実験施設の軟X線アンジュレータビームラインに軟X線顕微鏡を開発した<sup>3,4)</sup>。採用した光学系は基本的に図4-1に示したものと同等のものである。表1に2枚のゾンプレートの数値パラメータを示す。この光学系は、開発の第一ステップとして理論空間分解能を3000Åに設

表1. ゾンプレートのパラメータ

	集光ZP	対物ZP
最内半径 $r_1$ ( $\mu\text{m}$ )	15.8	5.0
ゾーン数 $N$	1000	100
直径 $D$ ( $\mu\text{m}$ )	1000	100
最外輪帯幅 $\delta r_n$ ( $\mu\text{m}$ )	0.25	0.25
X線吸収体の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	0.6	0.5
25Åでの焦点距離 (mm)	100.0	10.0

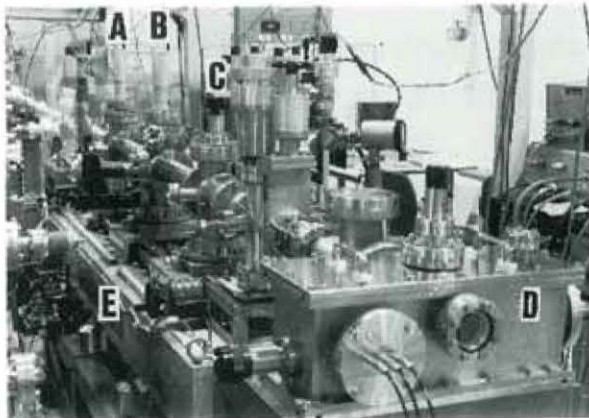


Fig. 4-2 A back view of a soft x-ray microscope operating at the undulator beamline BL2B of the Photon Factory. A: condenser chamber, B: object chamber, C: photodiode chamber, D: camera chamber, E: optical bench with high precision linear translator.

定しており、入射光を効率よく利用するために2枚のゾンプレートについてお互いの取り込み角度が等しくなる工夫をしている。また、集光ゾンプレートの光源に対する取り込み角度がアンジュレータ光の固有角度拡がりとはほぼ等しくなるように設計されている。図4-2に開発した軟X線顕微鏡装置の写真を示す。この写真は装置の後ろ側から撮影したもので、ビームラインの上流側から集光ゾンプレート用(図中A)、ピンホール・試料・対物ゾンプレート用(B)、強度モニター用(C)、カメラ用チェンバー(D)が精密二次元駆動機構を備えた光学ベンチ(E)上に配置されている。ゾンプレートは入射光の波長によって焦点距離が異なるので、この駆動機構を用いて集光ゾンプレートを光軸に沿って走査することによって波長選択ができる。試料と対物ゾンプレートは三次元マニピュレータを用いて調整できるようになっている。基礎実験によって性能としてMTF(modulation transfer function)を空間周波数域 $1/2.0 \sim 1/0.3 \mu\text{m}^{-1}$ の範囲で測定し、解像限界が約 $1/0.3 \mu\text{m}^{-1}$ であることを確かめた。また、乾燥状態の赤血球と珪藻土の拡大像を波長26.6Å、拡大率195倍、露光時間約2秒で得ている。図4-3に赤血球の顕微鏡像を示す。

#### 4-2. 走査型軟X線顕微鏡

回折限界のスポットサイズを実現するためには、ゾンプレートに限らずどの光学素子の場合においてもコヒーレントに照明する必要がある。軟X線領域にはコヒーレントな光源は今のところ存在しないので、空間コヒーレンスはコリメーションによって、時間コヒーレンスは分光器によって得ることになる。走査型顕微鏡の光学系の概念を図4-4に示す。時間コヒーレンスの方はゾンプレートのゾーン数を $N$ とした場合、1次回折集光を用いるならば

$$\lambda / \Delta \lambda \geq N \quad 4-1$$

程度が必要である (2-18式参照)。空間コヒーレンスは、光源の大きさを $S$ 、波長を $\lambda$ 、入射スリットが光源に対して張る立体角を $\Omega$ としたとき

$$S \Omega \leq \lambda^2 \quad 4-2$$

が満たされれば保証される<sup>24)</sup>。

ニューヨーク州立大学とブルックヘブン研究所のグループは、10周期のアンジュレータを光源とした走査型軟X線顕微鏡を開発し、分解能750 Åで未処理の試料(チモゲン粒子)の波長32 Åによる顕微鏡像を得ている<sup>25)</sup>。光源点から15m後方の直径300 μmのピンホールによって入射光をコ

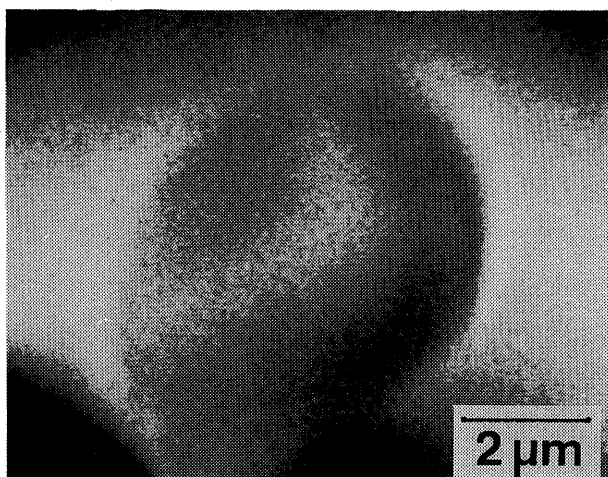


Fig. 4 - 3 Magnified image of a red blood cell. The wavelength used, the optical magnification and the exposure time were 26.6 Å, 195 and 2sec, respectively.

リメートし、8-mトロイダルグレーティング分光器を用いている。256×256の画素数の透過像を得るのに、通常の運転条件下で約4~5分である。また、35周期のアンジュレータを用いた新型の顕微鏡を開発中である<sup>26)</sup>。一方、キングスカレッジとダレスベリーのグループも、10周期のアンジュレータを光源に用いた軟X線顕微鏡を開発し、波長33 Åの軟X線を用いて固定処理したうさぎの筋肉の顕微鏡像を約800 Åの分解能で得ている<sup>27)</sup>。画素数は128×128で集積時間は約30分である。両方の顕微鏡とも試料の走査にはピエゾ素子を用い、検出器には比例係数管を用いている。走査型の場合、分光器の出口スリットは真空中に置くが、真空チャンバーの後端に窒化シリコンの薄膜を設けて、そこから後ろの構成要素は全て大気中に置いている。従って、試料の取扱が比較的容易であり、大気圧の条件が簡単に実現できるという利点がある。

## 5. まとめ

ゾーンプレートは一般にはレンズの作用をする光学素子として知られているが、その結像(あるいは集光)作用が各輪帯を通過する際の回折光の干渉効果によるものであるという本質に立ち帰ることによって、その複雑な像形成を理解することができる。集光素子として利用する場合には比較的取扱が容易であるが、有限な面積を直接に拡大・結像する場合には不用な回折光の挙動に十分注意して光学系を設計する必要がある。

軟X線顕微鏡の開発とその性能の向上を図ると

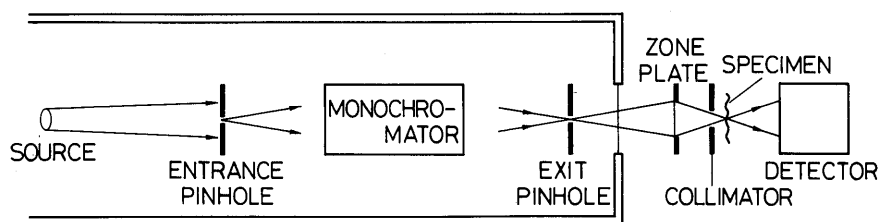


Fig. 4 - 4 The conception of a scanning soft x-ray microscope.

いう観点からみれば、ゾーンプレートは現在のところ最も重要な素子である。超微細加工技術等の発達が目進月歩であるという今日の状況からすれば、近い将来生物試料の観察に有効であろうと言われている100Åオーダーの空間分解能が達成される可能性は大きい。従って、顕微鏡の性能としてはハードよりである空間分解能の追求だけではなく、よりソフトな面での性能、例えば、円偏向軟X線顕微鏡による生物の螺旋構造の研究への応用など、の充実を図るべき時期に来ているのではないかと考える。

## 謝 辞

本研究の主要構成要素であるゾーンプレートはNTT・LSI研究所の覚知正美氏に製作していただきました。筑波大学理工学系の藤原史郎教授には、研究全般、特にゾーンプレートの光学特性について有意義な御助言をいただきました。本研究を遂行するにあたって、安藤正海教授、前沢秀樹教授をはじめとする高エネルギー物理学研究所放射光実験施設のスタッフの方々には御援助をいただきました。ここに記して、深く感謝の意を表します。

## 文 献

- 1) 最近のX線顕微法に関する研究は、国際会議「*X-Ray Microscopy*」のプロシーディングスとして出版されている。*X-Ray Microscopy*, ed. by G. Schmahl and D. Rudolph(Springer, Berlin 1984) ; *X-Ray Microscopy-Instrumentation and Biological Applications*, ed. by P. C. Chen and G. J. Jan(Springer, Berlin 1987) ; *X-Ray Microscopy II* , ed. by D. Sayre M, Howells, J. Kirz and H. Rarback (Springer, Berlin 1988) ; *X-Ray Microscopy in Biology and Medicine*, ed. by K.Shinihara, K. Yada, H. Kihara, T. Saito(Jap. Sci. Soc. Press, Tokyo/Springer-Verlag, Berlin 1990)
- 2) 辻内順平 : 光学概論Ⅱ (朝倉書店, 1985) P.109
- 3) O.E.Myers, Jr.: Am. J. Phys. **19** (1951) 359.
- 4) A. Boivin: J. Opt. Soc. Am. **42** (1952) 60.
- 5) D. J. Stigliani, Jr. , R. Mittra and R. G. Semonin: J. Opt. Soc. Am. **57** (1967) 610
- 6) 久保田広 : 波動光学 (岩波書店, 1974) P.321
- 7) A. G. Michette: *Optical Systems for Soft X Rays*(Plenum Press, New York 1986) p.177
- 8) B. Niemann, D. Rudolph and G. Schmahl: Opt. Commun. **12** (1974) 160.
- 9) B. Niemann, D. Rudolph and G. Schmahl: Nucl. Instr. Meth. **208** (1983) 367.
- 10) Y. Vladimirovsky, D.P. Kern, T. H. P. Chang, D. Attwood, H. Ade, J. Kirz, I. McNulty, H. Rarback, D. Shu: J. Vac. Sci. Technol. **B6** (1988) 311.
- 11) P. Unger, V. Bögli, H. Beneking, B. Niemann and P. Guttman: J. Vac. Sci. Technol. **B6** (1988) 323 .
- 12) M. Sekimoto, A. Ozawa, T. Ohkubo, H. Yoshihara, M. Kakuchi and T. Tamamura: in *X-Ray Microscopy II*, edited by D. Sayre, M. Howells, J. Kirz and H. Rarback(Springer, Berlin, 1988) p. 178., M. Kakuchi, H. Yoshihara, T. Tamamura, H. Maezawa, Y. Kagoshima and M. Ando: J. Vac. Sci. Technol. **B6** (1988) 2167.
- 13) C. J. Buckley, M. T. Browne and P. Charalambous: in SPIE proceedings **537** (1985) p.213
- 14) C. J. Buckley, M. T. Browne, R. E. Burge, P. Charalambous, K. Ogawa and T. Takeyoshi: in *X-Ray Microscopy II*, edited by D. Sayre, M. Howells, J. Kirz and H. Rarback(Springer, Berlin, 1988) p.88.
- 15) Y. Kagoshima, S. Aoki, M. Kakuchi, H. Maezawa and M. Ando: Jpn. J. Appl. Phys. **29** (1990) L172

- 16) M. Born and E. Wolf: *Principles of Optics*, 6th ed. (Pergamon Press, Oxford 1986) p.420
- 17) Photon Factory Activity Report #4 (1986) 79.
- 18) H. Maezawa, Y. Suzuki, H. Kitamura and T. Sasaki: *Appl. Opt.* **25** (1986) 3260.
- 19) H. Maezawa, A. Toyoshima, Y. Kagoshima, K. Mori and T. Ishikawa: *Rev. Sci. Instrum.* **60** (1989) 1889.
- 20) B. Niemann, D. Rudolph and G. Schmahl: *Nucl. Instr. Meth.* **A246** (1986) 675.
- 21) G. Schmahl, D. Rudolph and P. Guttman: in *X-Ray Microscopy II*, ed. by D. Sayre, M. Howells, J. Kirz and H. Rarback (Springer, Berlin 1988) p.228.
- 22) B. Niemann, D. Rudolph, G. Schmahl, M. Diehl, J. Thieme, W. Meyer-Hise, W. Neff, R. Holz, R. Lebert, F. Richter and G. Heiziger: *Optik* **84** (1990) 35.
- 23) Y. Kagoshima, S. Aoki, M. Kakuchi, M. Sekimoto, H. Maezawa, K. Hyodo and M. Ando: *Rev. Sci. Instrum.* **60** (1989) 2448.
- 24) A. M. Kondratenko and A. N. Skrinsky: *Opt. Spectrosc.* **42** (1977) 189.
- 25) 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. McQuaid and S. Rothman: *Rev. Sci. Instrum.* **59** (1988) 52.
- 26) C. Buckley, H. Rarback, R. Alforque, D. Shu, H. Ade, S. Hellman, N. Iskander, J. Kirz, S. Lindaas, I. McNulty, M. Oversluizen, D. Attwood, R. DiGennaro, M. Howells, S. Jacobsen, Y. Vladimirovsky, S. Rothman, D. Kern and D. Sayre: *Rev. Sci. Instrum.* **60** (1989) 2444.
- 27) G. R. Morrison, S. Bridgwater, M.T. Browne, R. E. Burge, R.C. Cave, P. S. Charalambous, G. F. Foster, A. R. Hare, A. G. Michette, D. Morris, T. Taguchi and P. J. Duke: *Rev. Sci. Instrum.* **60** (1989) 2464.

## きいわーど

### ゾーンプレート

光学的な回折現象を利用した結像素子。X線に対して透明・不透明な同心円状の輪帯からなる。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も呼ばれている。

輪帯の幾何学的な大きさは、使用する波長と必要とする焦点距離によって決まる。輪帯の最外周最小線幅で決まる解像力を持つので、軟X線領域での顕微鏡用対物レンズとして利用されることが多い。現在、500Å前後の解像力を持つ素子が試作されている。利用波長域は20～数100Åである。