

## X線ガイドチューブの開発

大澤 澄人

ガラスなどの滑らかな表面に極低角度で入射したX線は、強度を保ったまま反射する（全反射）。このX線の全反射現象を利用して、高輝度微細X線ビームを作るX線集光デバイスがX線ガイドチューブである。本稿では、他のX線集光デバイスとの比較及びX線ガイドチューブの開発とその効果について説明する。

### はじめに

材料の高機能化、電子・電気部品の微細化、ナノテクノロジーやバイオテクノロジーなどの発達により、微細な領域の分析が求められている。各種分析手法の中でもX線分析手法は、透過X線による試料内部構造分析や、試料を構成する元素の種類及び量の特定制及び、試料の結晶構造などが非破壊で分析ができ、有効な分析手法である。しかしながら、X線の屈折率が1に極めて近く、直入射の反射率が0に極めて近いいため、可視光で用いられる光学レンズや光学ミラーのような手法でX線を絞ることはできず、X線を遮ってX線を絞るという方法（コリメータ法）では、X線の照射面積を小さくした場合に、その面積に比例してX線強度が小さくなることから、微小部分分析といっても、実用的には数100 μmが限界であった。

近年、大型放射光施設のような強力なX線源と、全反射や多層膜を使ったX線ミラー、X線ガイドチューブ、ゾーンプレート、屈折レンズなどのX線集光素子の出現により、強いX線を細く集光することが可能となった。現在では、サブミクロンレベルの空間分解能が得られるようになり、この技術を用いて、X線顕微鏡、X線望遠鏡、X線リソグラフィ、微小領域分析装置などの研究や開発が進んでいる<sup>[1][3]</sup>。

### X線の集光

X線集光の基本原理は、X線の回折、屈折及び全反射を

利用してX線を曲げて一点に集めることである。各原理について下記に説明する。

### 回折

X線回折とは、平行等間隔に並んだ結晶又は多層膜にX線を照射した際に、格子面の各面からの反射X線が干渉を起こし、互いに強め合う現象のことをいう（図1）。干渉を起こす条件をブラッグの回折条件といい、式(1)で表される。

$$n\lambda = 2d \sin\theta \dots\dots\dots (1)$$

$\lambda$  : 波長

$d$  : 格子面間隔

$\theta$  : 視射角

$n$  : 正の整数

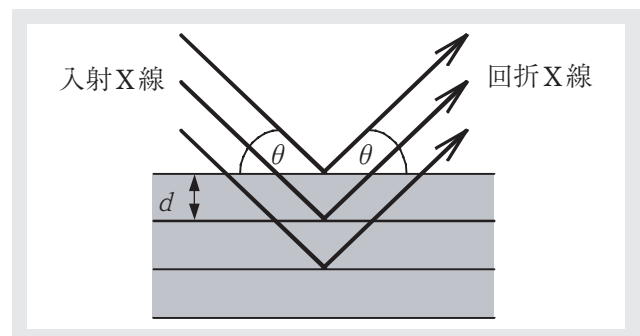


図1 回折

X線回折を利用したX線集光デバイスとしては、湾曲結晶ミラーや多層膜ミラー及びゾーンプレート<sup>[4]</sup>などがある

が、回折条件がX線の波長によって決まるため単色のX線しか集光できず、集光効率は高くない。そのため、単色で強力なX線を照射することのできる放射光施設で用いられることが主である。

## 屈折

X線の屈折率 $n$ は、1よりわずかに小さな値のため、凹レンズによる屈折を利用してX線を集光できる<sup>[6]</sup>。

屈折率は式(2)で表される。図2にX線屈折を示す。

$$\text{屈折率 } n=1-\delta \dots\dots\dots (2)$$

$$\delta = e^2 \lambda^2 \rho N_A Z / 2\pi m c^2 A$$

$e$  : 電子の電荷

$\lambda$  : 波長

$\rho$  : 密度

$N_A$  : アボガドロ数

$Z$  : 原子番号

$m$  : 電子の質量

$c$  : 光速

$A$  : 原子量

( $\delta$ は、X線領域では $10^{-5} \sim 10^{-6}$ )

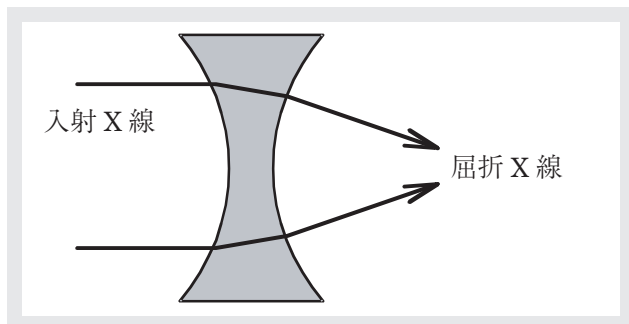


図2 屈折

X線が屈折を起こすといっても、その角度は非常に小さいので、数十～数百個の凹型レンズを組み合わせることが必要となる。X線が複数枚のレンズの中を通過ことでX線が吸収されるためX線強度は低下する。また、X線の波長によって屈折率が決まるため、単色のX線源を用いる必要がある。そのため、回折と同様に、単色で強力なX線を照射することのできる放射光施設で用いられる。

## 全反射

上記のようにX線の屈折率は、1よりわずかに小さいため、X線を極めて滑らかな平面に極低角度で入射させれば、強度を落とすことなく反射させることができる。これを全反射と呼ぶ(図3)。全反射を利用した手法は一定角度

(臨界角 $\theta_c$ )以下のX線は全て反射するため集光効率が高く、放射光施設だけでなく、従来のX線管との組み合わせであっても使用することが可能である<sup>[6]</sup>。なお、臨界角 $\theta_c$ は近似的に、式(3)で算出される。

$$\theta_c = 2.04 \times 10^{-2} \sqrt{\rho} / E \text{ (rad)} \dots\dots\dots (3)$$

$\rho$  : 密度 (g/cm<sup>3</sup>)

$E$  : エネルギー (keV,  $E=12.4/\lambda$ )

$\lambda$  : 波長 (Å)

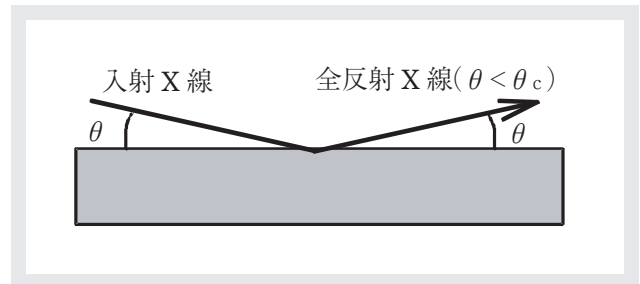


図3 全反射

## X線ガイドチューブの開発

### 背景

X線ガイドチューブは、極めて滑らかな内表面を持つチューブにX線を入射し、内部で全反射を起こさせて射出端まで導くというものである<sup>[7][8]</sup>。全反射を用いることで、従来のコリメータ法に比べて、X線の有効立体角が拡大され、X線強度を増加させることができる。なお、全反射の効率は、表面粗さによって大きく影響を受けるので、一般的に内表面を滑らかに加工できるガラス材料を使用する。

HORIBAではこれまでに新技術事業団の委託研究を受けて空間分解能10 μmの走査型X線顕微鏡を開発<sup>[9]-[11]</sup>し、主に研究開発用途に用いられてきたが、市場からは測定時間の短縮が強く求められていたため、より高輝度・微細X線ビームを実現するためのX線ガイドチューブの開発を進めた。

## ポリキャピラリとモノキャピラリ

平行管タイプのモノキャピラリをバンドルし、集光形状に形成したものがポリキャピラリである(図4)<sup>[12]</sup>。

バンドルする本数、開口率及び形状に左右されるが、ポリキャピラリは平行管タイプのモノキャピラリに比べて、2桁輝度を向上させることも可能である。ただし、1本1本のキャピラリから出射されたX線は広がりを持っているため、空間分解能10  $\mu\text{m}$ を実現することは困難であり、また、ビームの広がりも大きいため、焦点位置からずれると急激に空間分解能が低下するという欠点もある(図5)。そこで、モノキャピラリの効率を向上させることで、高輝度と広がりの少ないビームの実現を目指した。

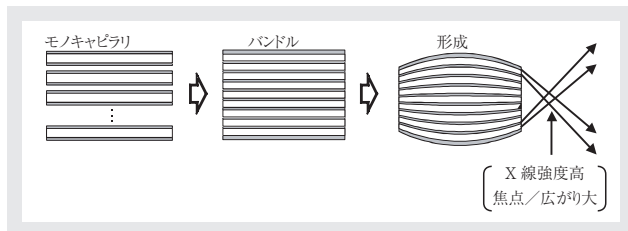


図4 ポリキャピラリ

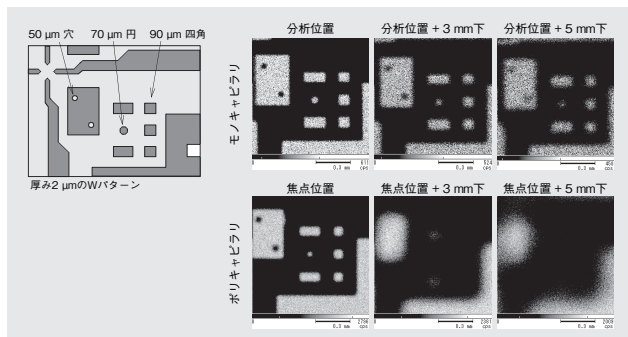


図5 ポリキャピラリとモノキャピラリのビームの広がり比較  
サファイア基板上的の厚さ2  $\mu\text{m}$ のタングステン(W)パターン(左図)の蛍光X線マッピング像(標準測定位置からの距離を変えて測定)で比較。

## モノキャピラリの改良

従来の装置で採用していたモノキャピラリは回転放物面形状である。平行成分のX線が集光できるよう設計されていたが、X線源であるX線管は発散光源なので、集光効率は限定的なものであり、大部分は平行管タイプと同様、多重反射X線によるものであった。全反射とはいえ、現実には反射によって強度が低下するため、反射回数が少なければ少ないほど効率が向上する。また、発散光源を集光する形状にすれば集光効率も向上する。そこで、モノキャピラリ形状を1回反射で発散光源を集光できる回転

楕円体とし、X線源も微小焦点とした(図6)。なお、光線追跡法によるシミュレーションを用いて、搭載する装置に合わせた最適形状(長径/短径/焦点間距離)を求めた。

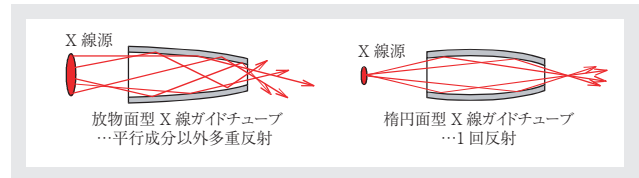


図6 モノキャピラリの改良

## 回転楕円体モノキャピラリの製作

従来のような多重反射型のモノキャピラリやポリキャピラリの場合、多少の曲がりがあっても、入射したX線は何度も反射を繰り返すことで最終的には出射端から出射されるが、1回反射型の回転楕円体キャピラリの場合はキャピラリ内面で反射したX線が直接出射端から出る必要がある。そのため、回転楕円体モノキャピラリの製作にあたっては、従来の形成装置よりも大幅に高精度な加工が求められる。一例として、キャピラリの長さ方向に対して垂直な断面をとり、その断面内で直交する二方向での目標形状からのずれを計測し、その二乗和の平方根をキャピラリ全長にわたって1 mmおきに積算した値(差分総和と呼ぶ)と出射X線強度の関係を図7に示す。

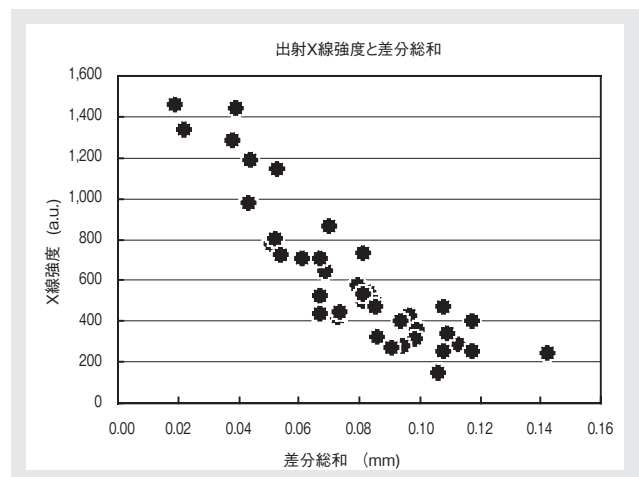


図7 出射X線強度と差分総和

## モノキャピラリ改良の効果

改良したモノキャピラリに加え、キャピラリに合わせてX線光学系を最適化したX線分析顕微鏡XGT-5000を開発した。空間分解能10  $\mu\text{m}$ において、従来の装置に比べて20倍から50倍のX線強度向上が達成できた(図8)。これにより、大幅に測定時間の短縮を図ることができ、大学や研究機関だけでなく、企業の品質管理部門へも市場を広げることができるようになった。

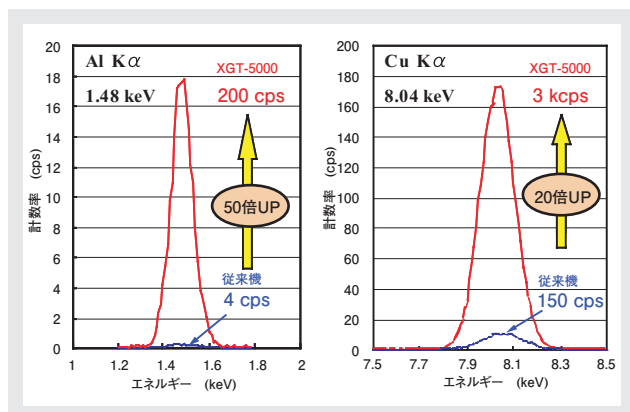


図8 出射X線強度比較

## おわりに

X線ガイドチューブの開発を行うことで、X線分析顕微鏡のX線強度の大幅な向上を実現した。このことにより、試料の微小部分が容易に元素分析できるようになり、分析対象を大きく広げることができた。それでも、材料の高機能化、電子・電気部品の微細化、ナノテクノロジーやバイオテクノロジーなどの発達によって、高分解能化・高速分析の要求はますます高まっている。今後、更なるX線ガイドチューブの高輝度・微細化を図るために、X線集光デバイスだけでなく、X線源、ステージ、検出器など、総合的な開発を進めていきたい。

## 参考文献

- [1] 波岡武, 山下広順編, X線結像光学, 培風館 (1999).
- [2] Koen H.A.Janssens, Freddy C.V.Adams, Anders Rindby (Eds.), Microscopic X-ray Fluorescence Analysis, JOHN WILEY & SONS,Ltd. (2000).
- [3] 中井泉編, 蛍光X線分析の実際, 朝倉書店 (2005).
- [4] Nagao Kamijo et al, Fabrication and testing of hard x-ray sputtered-sliced zone plate, *Rev. Sci. Instrum.*, **66(2)**, 2132(1995).
- [5] B. Lengeler et al, A microscope for hard x rays based on parabolic compound refractive lenses, *Applied phy. Letters*, **74(26)** (1999).
- [6] Yoshio Suzuki Fumiko Uchida, Hard x-ray microprobe with total-reflection mirrors, *Rev. Sci. Instrum.*, **63(1)**, 578(1992).
- [7] Naoki Yamamoto, A micro-fluorescent/diffracted x-ray spectrometry with a micro-x-ray beam formed by a fine glass capillary, *Rev. Sci. Instrum.*, **67(9)**, 3051(1996).
- [8] Daniel J. Thiel et al, Production of intense micrometer-sized x-ray beams with tapered glass monocabillaries, *Rev. Sci. Instrum.*, **64(10)**, 2872(1993).
- [9] 細川好則, X線分析顕微鏡, 電子材料, 2月号, (1995).
- [10] Motohiro Uo, Fumio Watarai, Atsuro Yokoyama, Hironobu Matsuno, Takako Kawasaki, Visualization and delectability of elements rarely contained in soft tissue by X-ray scanning analytical microscopy and electron-probe micro analysis, *Biomaterials*, **22**, 1787-1794(2001).
- [11] 小林英生, 細川好則, 竹ノ内敏一, X線分析顕微鏡による耐銅マイグレーション用基材の評価・解析, 表面実装技術, **7(5)**, (1997).
- [12] Muradin A. Kumakhov, Capillary optics and their use in x-ray analysis, *X-ray Spectrometry*, **29**, 343-348(2000).



大澤 澄人

Sumito Ohzawa

科学システム 製品開発部  
製品化チーム  
ジョブリーダー