



Title	K-B(Kirkpatrick-Baez)ミラー光学系による硬X線ナノビーム形成と走査型蛍光X線顕微鏡の構築
Author(s)	松山, 智至
Citation	大阪大学, 2007, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/48472
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名	まつ 松 やま 山 さと 智 し 至
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 20776 号
学位授与年月日	平成 19 年 2 月 28 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科精密科学専攻
学位論文名	K-B (Kirkpatrick-Baez) ミラー光学系による硬 X 線ナノビーム形成と走査型蛍光 X 線顕微鏡の構築
論文審査委員	(主査) 教授 山内 和人 (副査) 教授 安武 潔 教授 森田 瑞穂 教授 片岡 俊彦 教授 桑原 裕司 教授 広瀬喜久治 教授 渡部 平司 教授 遠藤 勝義

論 文 内 容 の 要 旨

本研究の目的は、高分解能かつ高感度な走査型蛍光 X 線顕微鏡を開発することである。本顕微鏡の高分解能、高感度化を実現するためには、高光子密度かつ極微小な硬 X 線ナノビームの形成が必要であるとの考えに到り、新たに確立した高精度形状創生システムを用いて、実際に高精度楕円ミラーを作製し、K-B ミラー光学系の開発を行った。本論文では、顕微鏡の開発とその性能評価、さらには生物試料を用いた応用についてまとめたものである。

第 1 章では、本研究の背景について述べる共に、その目的について明確に示した。

第 2 章では、走査型蛍光 X 線顕微鏡の基礎概念について述べ、目標とする顕微鏡の性能を、空間分解能 50 nm 以下、感度 0.1 ppm 以下と設定し、その目標を達成するためには集光光学系と顕微鏡システム全体の研究開発が必要不可欠であることを示した。

第 3 章では、高感度、高分解能な顕微鏡システムの開発のために、大開口数を持つ楕円ミラーの開発について述べた。設計した楕円ミラーを用いることで、集光径 (半値幅) は $28 \times 49 \text{ nm}^2 \sim 1000 \times 1000 \text{ nm}^2$ と極微小集光が可能であり、かつ、光源サイズを調整するだけで自由にビームサイズをコントロール可能であることをシミュレーションによって示した。曲率の深いミラーの形状計測を行うために、新たに大型干渉計を用いたスティッチングシステムを開発した。EEM (Elastic Emission Machining) と共に曲率の大きな楕円ミラーを作製したところ、形状精度 1 nm レベルで楕円形状を作製することができた。

第 4 章では、K-B ミラーを高精度にアライメントが可能なミラーマニピュレータの開発、顕微鏡全体のシステム開発について述べている。

第 5 章では、開発した走査型蛍光 X 線顕微鏡の性能を、集光サイズ、フォトンフラックス、ミラー反射率、光子密度、空間分解能、ビーム安定性の観点から、実際に SPring-8 にて評価した結果について述べている。本集光光学系を用いることで極微小かつ高光子密度を持つ硬 X 線集光ビームを実現することが可能であることを実証した。

第 6 章では、本顕微鏡システムを医学、生物学の研究に応用するために、実際に培養細胞を用いて、細胞個々の元素分布をサブ 100 nm の空間分解能で観察した結果について述べている。濃度既知の標準試料を用いて定量することで、 $\pm 10\%$ の確からしさで濃度を推定することが可能となった。ミトコンドリアに金コロイドをラベルすることで、

ミトコンドリアを識別しつつ細胞内元素分布を測定したところ、ミトコンドリアには亜鉛、銅、硫黄が豊富に存在しているという新しい知見を得ることができた。また、1秒間で可視化できる元素含有量の検出下限を見積もったところ、 $1\sim 0.004\text{ fg}/\mu\text{ m}^2$ (重元素ほど良) であり、本顕微鏡が分解能だけでなく感度においても高い性能を有していることを証明した。

第7章では、本研究に使用した機器や装置について詳細に説明し、第8章では、本研究で得られた成果をまとめ、本論文の総括を行った。

論文審査の結果の要旨

局所的な試料の状態を元素ごとに評価する元素分布測定は、古くより、材料科学や分析化学、医学、生物学、考古学など、様々な領域において重要性が認識されている。そして、近年のナノテクノロジーの進歩とともに、従来にならぬ高い空間分解能が要求され、また、医学、生物学、環境などの分野では、微量元素を扱う必要性から、より高い感度の測定が求められている。さらに、SEM-EDX (Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray analysis) 等では、元素分布測定のために真空内に試料を配置する必要があり、試料の種類や状態が制約されることから、生体試料等の評価では、実環境での高感度計測法の開発が強く求められていた。

このような背景から、本研究では、蛍光 X 線分析と X 線ナノビームを応用した走査型蛍光 X 線顕微鏡を開発し、試料、特に、細胞内の元素分布を大気圧中で高分解能かつ高感度に観察することを試みている。硬 X 線集光光学系には SPring-8 BL29XUL に最適に設計された K-B (Kirkpatrick-Baez) ミラーを採用することで、一般的に用いられるフレネルゾーンプレートでは不可能な、色収差のない集光を実現している。高分解能かつ高感度を実現するためには、ミラーの形状をナノメートルレベルで作製することが必要不可欠であるが、大面積の超精密加工である EEM (Elastic Emission Machining)、光干渉計を用いたスティッチング計測法である MSI (Microstitching Interferometry) と RADSI (Relative Angle Determinable Stitching Interferometry) を応用したミラー製作システムを独自に構築し、非球面ミラーの形状を形状精度 1 nm レベルで作製することに成功している。本集光光学系を用いることで、15 keV の X 線を最高で $30\times 50\text{ nm}^2$ (H×V、半値幅) まで集光することが可能であり、光源サイズを変更することで最大 $1\mu\text{ m}$ までビームサイズを自由に変更可能であるなど微小 X 線ビームの形成と同時に操作性の良い X 線集光を実現している。また集光した X 線の光子密度は $4\times 10^5\text{ photons/s/nm}^2$ を達成しており、微小集光かつ高強度の X 線ビームが利用可能となっている。

開発した走査型蛍光 X 線顕微鏡を用いたデモ実験では、約 60 nm の線幅で描かれた微小なテストチャート内に埋め込まれたガリウム元素を最小ビーム径程度の分解能で可視化できることを実証している。さらに、細胞生物学への応用として、オルガネラに重金属ラベルをすることで、オルガネラを識別しつつその内部の元素分布を 100 nm 以上の空間分解能で測定することに成功しており、一例として、ミトコンドリアの直接的な可視化に成功するとともに、亜鉛が豊富に含まれることを見出している。また、感度においても露光時間 1 秒での金元素の検出下限は $0.004\text{ fg}/\mu\text{ m}^2$ と高い感度を有していることを実証している。

以上のように、本論文は K-B ミラー集光光学系の開発を行い、50 nm 程度の空間分解能で元素分布を測定できる顕微鏡を開発したもので、元素分布を測定するさまざまな学問分野への発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。