



Title	マルチスライス法を用いた高分解能3次元X線タイコグラフィ
Author(s)	下村, 啓
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/72368
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

博士学位論文
マルチスライス法を用いた
高分解能3次元X線タイコグラフィ

下村 啓

2019年1月

大阪大学大学院工学研究科 精密科学・応用物理学専攻

目次

概要		i
第 1 章	序論	1
1.1	研究の背景と目的	1
1.2	本論文の構成	3
第 2 章	3次元 X 線タイコグラフィの原理	5
2.1	緒言	5
2.2	X 線タイコグラフィの概要	5
2.3	X 線タイコグラフィ位相回復計算	6
2.3.1	X 線と試料の相互作用の定式化	6
2.3.2	投影近似と被写界深度	8
2.3.3	extended Ptychographical Iterative Engine (ePIE)	10
2.3.4	3D Ptychographical Iterative Engine (3PIE)	12
2.3.5	Mixed-state reconstruction	14
2.4	X 線タイコグラフィ測定	15
2.4.1	空間分解能	15
2.4.2	コヒーレンス条件	16
2.4.3	オーバーサンプリング	19
2.4.4	タイコグラフィ走査軌道とオーバーラップ	20
2.5	コンピューター断層撮影法	23
2.5.1	3次元観察法の分類	23
2.5.2	ラドン変換と投影切断面定理	24
2.5.3	フィルター補正逆投影法	25
2.5.4	逐次近似法	27
2.5.5	Crowther limit	28
2.5.6	位相オフセット・Ramp 関数状の位相分布の除去	28
2.5.7	位相アンラップ	30
2.5.8	位置ズレの補正	31
2.6	3次元タイコグラフィの先行研究	32

第 3 章	ピクセルアレイ検出器・部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定的高速化	35
3.1	緒言	35
3.2	ピクセルアレイ検出器を利用したタイコグラフィ測定的高速化	35
3.2.1	ピクセルアレイ検出器	35
3.2.2	タイコグラフィ測定光学系	36
3.2.3	EIGER の線形応答性評価	37
3.2.4	タイコグラフィ測定条件と再構成位相像	38
3.3	計算機シミュレーションによる空間的コヒーレンスと X 線光子密度の関係の評価	41
3.3.1	部分コヒーレント X 線の利用による X 線タイコグラフィ測定的高速化を目指した先行研究	41
3.3.2	計算機シミュレーション条件	41
3.3.3	K-B ミラー集光におけるプロファイルの 4 象限スリットサイズ依存性	44
3.3.4	各モードの集光面におけるプロファイルとフィッティングによる占有率の算出	44
3.4	部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定高速化の実証実験	47
3.4.1	実験条件	47
3.4.2	回折強度パターン	47
3.4.3	再構成複素透過関数の評価	48
3.4.4	再構成照射関数と各モードの占有率・光子数の関係	51
3.5	結言	52
第 4 章	プリセッション測定を併用した高分解能マルチスライス X 線タイコグラフィ	55
4.1	緒言	55
4.2	プリセッション測定によるマルチスライス X 線タイコグラフィの光軸分解能の向上	55
4.2.1	プリセッション法	55
4.2.2	エバルト球を用いた空間分解能の幾何学的考察	56
4.2.3	プリセッション 3PIE	57
4.3	計算機シミュレーションによる実現可能性の検討	60
4.3.1	2 層構造体を用いた計算機シミュレーション	60
4.3.2	4 層構造体を用いた計算機シミュレーション	62
4.3.3	連続体を用いた計算機シミュレーション	65
4.4	プリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィの実証実験	68
4.4.1	4 層構造体試料の作製	68
4.4.2	プリセッションタイコグラフィ測定	69
4.4.3	各試料角度における 3PIE 再構成位相像	72
4.4.4	プリセッション 3PIE による再構成位相像	78
4.5	プリセッション X 線タイコグラフィによる実試料観察	81
4.5.1	多層配線のプリセッションタイコグラフィ測定	81
4.5.2	モデル試料を用いた各層の相対配置の推定	83

4.5.3	各試料角度における再構成位相像	86
4.5.4	プリセッション 3PIE による再構成位相像とその評価	93
4.6	結言	95
第 5 章	3 次元マルチスライス位相回復計算法の開発	97
5.1	緒言	97
5.2	可視光を利用した 3 次元マルチスライスタイコグラフィ	97
5.2.1	3 次元マルチスライスタイコグラフィの先行研究	97
5.2.2	マルチスライス位相回復計算による 2 次元投影像・3 次元再構成像の像質改善	98
5.2.3	Angle extension による 3 次元再構成像の像質改善	98
5.2.4	プリセッション 3PIE の近似条件を利用した X 線領域における Angle extension の適用可能性の検討	100
5.3	マルチスライス法を利用した逐次的 3 次元再構成計算法	102
5.3.1	マルチスライス位相回復計算と逐次近似法を組み合わせた 3 次元位相回復計算法	102
5.3.2	提案した計算法による Crowther limit の緩和	105
5.4	計算機シミュレーションによる提案した計算法の性能評価	105
5.4.1	モデル投影像を利用した 3 次元再構成	105
5.4.2	測定角度数が不足した条件における 3 次元再構成	109
5.4.3	制限角度条件における 3 次元再構成	114
5.5	3 次元マルチスライス位相回復計算法を利用した Intel 社製 CPU の 3 次元観察	116
5.5.1	タイコグラフィ測定	116
5.5.2	2 次元再構成位相像	118
5.5.3	3 次元再構成位相像	120
5.6	結言	122
第 6 章	結論	123
付録 A	本論文で利用した波動光学計算法	129
付録 B	制限角度条件における 2 軸回転の有用性	133
参考文献		139

目次

2.1	X 線タイコグラフィの模式図	7
2.2	ePIE の模式図	11
2.3	3PIE の模式図	12
2.4	タイコグラフィの空間分解能	16
2.5	ヤングの実験	18
2.6	空間・時間コヒーレンス長の概念図	19
2.7	2次元位相物体のオーバーサンプリング条件	21
2.8	タイコグラフィ測定における主な走査軌道	22
2.9	コンピューター断層撮影法の概念図	23
2.10	ラドン変換の模式図	25
2.11	フィルター補正逆投影法におけるフィルター関数	27
2.12	3次元再構成における Crowther limit	29
2.13	Phantom 画像のアンラップ処理	31
2.14	Mass fluctuation を利用した位置合わせ補正	32
3.1	X 線タイコグラフィ測定光学系	37
3.2	電子バンチモード	39
3.3	EIGER の線形応答性評価	40
3.4	Ta ジーメンススターチャート再構成像と再構成照射波動場	41
3.5	部分コヒーレント光の集光プロファイル算出の計算機シミュレーションの模式図	43
3.6	各スリットサイズにおける集光プロファイル	44
3.7	各モードの集光プロファイル	45
3.8	各モードの光子密度	46
3.9	部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ実験模式図	48
3.10	各スリットサイズにおける回折強度パターン	49
3.11	部分コヒーレントを利用した X 線タイコグラフィの再構成試料位相像	50
3.12	各スリットサイズにおける位相回復伝達関数	51
3.13	4象限スリットサイズ $10(\text{H}) \times 50(\text{V}) \mu\text{m}^2$ における再構成照射波動場	52
4.1	プリセッション法の模式図	56

4.2	プリセッション測定時のエバルト球とフーリエ空間の関係	57
4.3	プリセッション 3PIE の模式図	59
4.4	多層構造体のモデル試料像	60
4.5	3PIE, プリセッション 3PIE による 2 層構造体の再構成位相像	61
4.6	各試料角度におけるプリセッション 3PIE による 2 層構造体の再構成位相像	63
4.7	3PIE, プリセッション 3PIE による 4 層構造体の再構成位相像	64
4.8	3PIE, プリセッション 3PIE による Au ナノポーラスの再構成位相像	66
4.9	Au ナノポーラス再構成位相像の FRC	67
4.10	4 層に分割した Au ナノポーラスオリジナル画像と再構成位相像の FRC	68
4.11	作製した 4 層構造体	69
4.12	4 層構造体の SEM 像	70
4.13	4 層構造体のプリセッション測定模式図	71
4.14	規格化誤差の層間距離依存性	72
4.15	4 層構造体の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像	73
4.16	4 層構造体の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像	74
4.17	4 層構造体の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像	75
4.18	4 層構造体の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 1^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像	76
4.19	4 層構造体の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, -1^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像	77
4.20	プリセッション 3PIE による 4 層構造体の再構成位相像	78
4.21	4 層構造体の再構成位相像の拡大像	80
4.22	多層配線の外観	81
4.23	多層配線のプリセッションタイコグラフィ測定模式図	82
4.24	多層配線の回折強度パターン	83
4.25	多層配線のモデル画像から算出した回折強度パターン	85
4.26	層間距離を変化させたときの回折強度パターン	86
4.27	多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	87
4.28	多層配線の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, 0^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	87
4.29	多層配線の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, 0^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	88
4.30	多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	88
4.31	多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, -1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	89
4.32	多層配線の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, 1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	89
4.33	多層配線の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, 1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	90
4.34	多層配線の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, -1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	90
4.35	多層配線の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, -1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像	91
4.36	多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像	92
4.37	多層配線のプリセッション 3PIE による再構成位相像	94
4.38	プリセッション 3PIE 再構成像の位相回復伝達関数	95

5.1	投影近似を利用したタイコグラフィ位相回復計算で取得した投影像から再構成した 3 次元位相像	99
5.2	マルチスライスタイコグラフィ位相回復計算で取得した投影像から再構成した 3 次元位相像	100
5.3	Angle extension による近傍角度の投影像の算出	101
5.4	少数の測定角度における 3 次元再構成位相像の断面像	102
5.5	提案する 3 次元マルチスライス位相回復計算法の模式図	104
5.6	マルチスライス 3 次元位相回復計算法による Crowther limit の緩和	106
5.7	フィルター補正逆投影法, モデル投影像を利用した 3 次元再構成像断面像	107
5.8	フィルター補正逆投影法, モデル投影像を利用した 3 次元再構成像断面像の FRC	107
5.9	提案するマルチスライス逐次近似再構成法, モデル投影像を利用した 3 次元再構成断面像	108
5.10	提案するマルチスライス逐次近似再構成法, モデル投影像を利用した 3 次元再構成断面像の FRC	108
5.11	円柱状試料の 0° における 3PIE 再構成位相像	110
5.12	円柱状試料の 0° における 3PIE 再構成位相像の FRC	111
5.13	円柱状試料の 0° における ePIE, 3PIE 再構成計算による投影位相像	112
5.14	円柱状試料の 0° における ePIE, 3PIE 再構成計算による投影位相像の FRC	112
5.15	測定角度数が不足した条件における 3 次元再構成位相像	113
5.16	測定角度数が不足した条件における 3 次元位相像の回転軸垂直方向中央断面像の FRC	114
5.17	制限角度条件における 3 次元再構成位相像	115
5.18	制限角度サンプリング条件における 3 次元位相像の光軸垂直断面像の FRC	116
5.19	Intel 社製 CPU のタイコグラフィ測定模式図	117
5.20	Intel 社製 CPU の 3PIE 再構成位相像の層間距離依存性	119
5.21	Intel 社製 CPU の ePIE, 3PIE による再構成投影位相像	119
5.22	提案した 3 次元位相回復計算法による Intel 社製 CPU の 3 次元再構成位相像	121
B.1	制限角度条件における Missing wedge	134
B.2	5.4.3 項で利用した 3 次元モデルを 16 層に分割した各層の投影像	135
B.3	21 角度の測定を想定したフィルター処理後の各層の投影像	136
B.4	121 角度の測定を想定したフィルター処理後の各層の投影像	137

表目次

2.1	各論文中で明示されている X 線タイコグラフィにおける被写界深度の上限	10
3.1	EIGER 1M 仕様	38
3.2	ピクセルアレイ検出器を利用した X 線タイコグラフィ測定条件	39
3.3	計算機シミュレーションで利用した K-B ミラーパラメーター	42
3.4	各スリットサイズにおける集光ビームの光子数のゲイン	44
3.5	水平方向における各モードの占有率	46
3.6	垂直方向における各モードの占有率	46
3.7	部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定条件	47
3.8	各スリットサイズにおける空間分解能, 再構成照射関数の占有率, 第 1 モードの光子数	52
4.1	多層構造体を利用したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィ計算機シミュレーション条件	61
4.2	連続体を利用したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィ計算機シミュレーション条件	65
4.3	4 層構造体の X 線タイコグラフィ測定条件	71
4.4	4 層構造体のタイコグラフィ測定における空間分解能の理論値および実験値	79
4.5	多層配線の X 線タイコグラフィ測定条件	81
5.1	測定角度数が不足した条件における X 線タイコグラフィ測定条件	109
5.2	Intel 社製 CPU の X 線タイコグラフィ測定条件	118

第 1 章

序論

1.1 研究の背景と目的

X 線は 1895 年に Röntgen が陰極線と呼ばれる放射線に関する追試実験していた際に偶然発見したものであった。暗い実験室内で真空管を銀紙と黒いボール紙で覆い通電したところ、近くに置いてあった蛍光板が発光し、その前に鉛棒をかざすと影ができ、さらにその棒を持った自分の手の骨がスクリーンに映し出されたという [1]。この画像は X 線の高い透過性を活かした“最初”の X 線イメージング写真であったといえる。このように高い透過力を有する X 線をプローブとした顕微鏡を構築することで試料の内部構造の非破壊観察が可能になるが、波長が可視光の 1/100 から 1/1000 であるにも関わらず X 線の発見から半世紀以上の間、光学顕微鏡の分解能を超えることができなかった。この原因としては、物質に対する X 線の屈折率がほぼ 1 のため可視光領域で用いられている屈折レンズが作製不可能であること、また X 線の短波長性から理想的なレンズの作製にナノメートルオーダーの加工精度が求められることが挙げられる。しかしながら、1980 年代から半導体工業のリソグラフィ微細加工技術が光学素子製作にも取り入れられ、さらに高輝度な X 線発生専用施設として SPring-8 を初めとする第 3 世代放射光施設が建設され、実験室光源に比べ 10^{12} 倍以上の高輝度な X 線が利用できるようになると、次第にその短波長性と透過力を活かした X 線顕微鏡の構築が可能になってきた。顕微鏡の性能は空間分解能、時間分解能、観察視野、抽出可能な情報、簡便さなど様々な要素によって構成され、各人の要望に合わせた顕微法を選択している。その中で特に空間分解能に強みを持つ手法が X 線タイコグラフィである。X 線タイコグラフィでは、試料を 2 次元走査しながらコヒーレントな X 線を複数点に照射し、それぞれの照射点で試料の十分遠方に配置した 2 次元検出器で回折波を測定する。そして、測定データに対して計算機上で位相回復計算を実行することで、試料による X 線の吸収・位相シフト量をコントラストとして可視化する。理想的なレンズの作製が困難な X 線領域においても、位相回復計算が理想的なレンズとして機能することで 10 nm を超える最高水準の空間分解能が実現可能となる。また、試料の 2 次元走査範囲を調整することで所望の観察視野を実現することが可能で、10 μm 以上の視野が汎用的に達成されている。2007 年に Rodenburg らによって実証実験 [2] が行われて以来、各国の放射光施設で X 線タイコグラフィを含むコヒーレントイメージング専用のビームラインが整備されつつあり、今後、応用研究も含めて更なる発展が期待される分野の 1 つである。

X 線タイコグラフィの重要な展開の 1 つにコンピューター断層撮影法による 3 次元観察が挙げられる。

コンピューター断層撮影法では、様々な角度からの試料投影像を測定し、これらを計算機上で再構成することで3次元像を取得する。コンピューター断層撮影法の発端は1917年にRadonが示した“2次元関数の任意の点の値は、その点を通る全ての方向の直線に沿うその関数の積分値から一意的に定まる”というラドンの定理にまで遡る [3]。この発表とは別にCormackは1963年、1964年にX線トモグラフィに関する理論的考察と数学的解析に関する論文を発表し [4, 5]、1972年にレコード会社EMIの技術者であったHounsfieldらによってこの原理に基づいたComputed Tomography(CT)装置が開発された [6]。CormackとHounsfieldはこれらの業績により、1979年にノーベル生理学・医学賞を受賞している。さらに、近年のコンピューター処理速度の向上や画像解析技術の進歩、様々な再構成アルゴリズムや装置上の工夫によって急速に進歩していき、現在では汎用的に利用されるイメージング技術となっている。コンピューター断層撮影法の空間分解能は再構成に利用する投影像の空間分解能に依存するため、厚い試料の投影像を高い空間分解能で取得可能なX線タイコグラフィとの相性は良く、2010年にDierolfらによって実証実験 [7] が行われて以来、多層配線 [8]、アモルファス材料 [9]、生物試料 [10–12] の観察など数多くの研究成果が報告されている。最新の研究報告では、円柱状に加工したCentral Processing Unit(CPU)を原理的な限界に近い空間分解能で3次元観察することに成功している。さらに高い空間分解能での3次元観察を実現するためには、この原理的な限界である“被写界深度”を克服しなければならない。

被写界深度とは、画像の焦点が合っているように見える被写体側の光軸方向の範囲を指し、この範囲は入射光の波長と画像の空間分解能に依存する。X線タイコグラフィで位相回復計算を行う際は、試料を光軸方向に積分した2次元投影像として取り扱う投影近似を用いているが、この近似を適用可能な試料厚さが被写界深度に相当する。被写界深度を超える厚さの試料を観察するためには、異なる試料位置で取得した画像を焦点合成するなどの画像処理が必要となり [13]、全ての顕微鏡に付随する問題ではあるが、近年、空間分解能の高いX線タイコグラフィで特に問題視されるようになった。この問題への有効な解決策の1つとして、マルチスライス法を利用した位相回復計算法が2012年にMaidenらによって発表された [14]。マルチスライス法は元々は電子線領域において多重散乱の影響を考慮した電子線散乱を計算する方法として1957年にCowleyとModdieによって提案され [15]、現在でも結晶による電子線の散乱を計算する代表的な方法の1つとして広く利用されている。マルチスライス法では、結晶を表面に平行で充分薄いスライス(層)が複数積み重なったものとみなし、各層からの散乱と次の層への伝播を交互に計算することで結晶下面における回折振幅を算出している。タイコグラフィ位相回復計算においても、複数に分割した試料領域毎に投影近似を適用し、各層での散乱と層間を伝播を交互に計算することで同様の計算が可能である。Maidenらのグループでは可視光領域において試料中で大きく変化する波動場を照明光としたタイコグラフィ測定を行い、測定データに対してマルチスライス法を用いた位相回復計算を実行することで、複数に分割した各層の投影像が再構成可能であることを実証した [14, 16]。そして2014年にSuzukiらによって被写界深度を超えた厚さの試料を高い空間分解能で観察可能であることが指摘され、X線を用いた実証実験が行われた [17]。この結果はマルチスライスX線タイコグラフィでは原理的に試料厚さの上限が解消されたことを意味し、特にX線の高い透過性を活かした3次元観察を実現する上で大きな意義を持つ結果であるといえる。この報告を皮切りにSwiss Light Sourceのグループ [18] やNSLSI Iのグループ [19] から研究成果が報告されており、3次元X線タイコグラフィの高度化に向けた1つのホットトピックとなっている。また、もともと電子線領域から輸入された本分野は再び電子線領域へ逆輸入され、1方向の測定のみで3次元観察可能な手法として実証実験 [20] が行われている。

マルチスライス X 線タイコグラフィの登場によって原理的には被写界深度に制限されない広い視野と高い空間分解能を両立した 3 次元観察が可能となった。しかしながら、測定時間の制限から現実的に実現の難しいオーダーの投影角度数が必要となるため、放射光源や検出器が発展した現代であっても実現されていない。現在も被写界深度を超えた厚さの試料の 3 次元観察に向けて、装置の高度化による測定の高速度が進められてはいるが、測定技術的な側面だけではなく解析的なアプローチとして、“マルチスライス位相回復計算で再構成した複数層の投影像を利用した 3 次元再構成が可能か”ということが考えられるようになった。コンピューター断層撮影法で広く利用されるフィルター補正逆投影法 (Filtered Back Projection : FBP) や逐次近似法 (Iterative Reconstruction : IR) などの 3 次元再構成アルゴリズムを適用するためには、マルチスライス位相回復計算で得られる複数層の投影像を積分し、試料全体の投影像を算出することが必要となるが、この際に失われる光軸方向の情報をうまく利用することでより少ない投影角度数で 3 次元再構成が可能になると考えられる。そのためには、従来利用されていた 3 次元再構成アルゴリズムではなく、マルチスライス X 線タイコグラフィ専用の新たな 3 次元再構成計算法の開発が必要となる。本研究の目的は、マルチスライス位相回復計算で得られた複数層の投影像を有効に利用した 3 次元再構成計算法を開発し、従来の再構成法に比べ少ない試料角度数でも信頼性の高い 3 次元像が再構成可能であることを実証することである。

1.2 本論文の構成

本章では、被写界深度を超えた厚さの試料を空間分解能を損なうことなく観察可能な手法としてマルチスライス X 線タイコグラフィが実証されてから現在に至るまでの歴史的背景をまとめた。さらに、本手法の更なる高度化に向けた課題を指摘し、本研究の目的を述べた。第 2 章では、X 線タイコグラフィの原理とマルチスライス法を含むその要素技術についてまとめる。また、X 線タイコグラフィを 3 次元イメージング法へ拡張するコンピューター断層撮影法の原理とその要素技術についてまとめる。第 3 章では、タイコグラフィ測定の高速度化に向け、ピクセルアレイ検出器、部分コヒーレント X 線を利用したタイコグラフィ測定光学系を構築し、測定時間を短縮した研究結果に関して述べる。現状、タイコグラフィの測定時間は主に検出器の性能と入射 X 線強度に依存している。タイコグラフィ測定では 1 光子の検出感度を有する直接撮像型 CCD 検出器が広く利用されてきたが、1 回の露光に対する読み出し時間が長く、測定を長時間化させる要因の 1 つとなっていた。そこで、新たに読み出し時間の短いピクセルアレイ検出器を導入することでタイコグラフィ測定の高速度化を達成した。また、X 線タイコグラフィ測定では完全コヒーレント光の照明が必要条件となっており、実験ではモノクロメーターにより時間コヒーレンス度を、4 象限スリットで仮想光源を形成することにより空間コヒーレンス度を高めており、入射 X 線強度が制限されていた。そこで、部分コヒーレント照明と混合状態再構成計算を利用することで入射 X 線強度の増加を試みた。計算機シミュレーションにより照射関数の各モードの光子密度と入射 X 線のコヒーレンス度の関係を調査し、タイコグラフィ測定の高速度化が可能となる 4 象限スリットサイズの最適化を行った。その結果を元に SPring-8 でタイコグラフィ測定を行ったところ、従来に比べ 6 倍の高速度化が可能であることを実証した。第 4 章では、プリセッション測定を併用したマルチスライス X 線タイコグラフィに関して述べる。マルチスライス X 線タイコグラフィは 1 方向の測定のみで試料の 3 次元構造を観察することが可能であるが、一般的なタイコグラフィ測定では最大散乱角が非常に小さいため、光軸分解能は面内分解

能に比べて3～4桁程度悪いことが課題となっていた。そこで、試料を歳差運動の軌道上に配置し複数の試料角度でタイコグラフィ測定を行うプリセッション測定により光軸分解能の向上が可能であることに着目し、プリセッション測定のためのマルチスライスタイコグラフィ位相回復計算法を開発した。また、本手法の有用性を計算機シミュレーションにより検討し、SPring-8にて4層構造体を利用した実証実験に成功した。さらに、本手法の応用展開として平板状の多層配線の3次元観察にも成功した。第5章では、マルチスライス位相回復計算と逐次近似法を組み合わせた3次元位相回復計算法の研究に関して述べる。マルチスライス位相回復計算で得られる複数層の投影像を利用した3次元再構成計算を行うことで、必要な投影数を低減できることに着目し、これを実現するためのマルチスライス3次元位相回復計算法を開発した。また、計算機シミュレーションにより、本位相回復計算法が投影角度数の少ない条件や制限角度条件において、従来法に比べ信頼性の高い試料像の再構成が可能であることを実証した。さらに、Intel社製のCPUのタイコグラフィ測定により、測定角度数が不足かつ制限角度条件において被写界深度を超えた厚さの試料の高空間分解能3次元観察が可能であることを実証した。第6章では、本論文で得られた結果をまとめ、結論ならびに将来展望に関してまとめる。

第 2 章

3 次元 X 線タイコグラフィの原理

2.1 緒言

X 線タイコグラフィは、試料を光軸垂直方向に 2 次元走査させながらコヒーレントな X 線を複数点に照射し、試料の十分遠方に配置した 2 次元検出器で複数枚の回折強度パターンを測定し、測定データに対し計算機を用いた位相回復計算を実行することで試料像を再構成するイメージング手法である。結像、集光に用いる光学素子の収差の影響が試料像の像質に反映される結像型、走査型 X 線顕微鏡とは異なり、計算機が理想的な光学素子の役割を果たすことで X 線イメージングでは最高水準の 10 nm 程度の空間分解能が達成されている。また 2 次元走査範囲を広げることで 10 μm を超える比較的広い観察視野が実現可能であり、近年、放射光 X 線イメージング分野では特に盛んに研究が進められている。本手法では光軸方向に投影した試料の X 線吸収量、位相シフト量の 2 次元分布が取得されるため、様々な角度で測定した投影像を用いて計算機上で 3 次元試料像を構築するコンピューター断層撮影法と組み合わせることで 3 次元観察手法へ拡張することが可能である。本章では、X 線タイコグラフィ、コンピューター断層撮影法の原理とこれらに必要な要素技術についてまとめる。

2.2 X 線タイコグラフィの概要

X 線タイコグラフィはコヒーレント X 線回折イメージング (Coherent X-ray Diffraction Imaging : CXDI) の 1 手法であり、その中で“走査型”に分類される。コヒーレント X 線回折イメージングは試料の回折強度パターンを細かくサンプリングすることで構造因子の位相項を回復可能であることを示唆した Sayre の研究 [21] に始まり、Sayre の指導を受けた Miao によって 1999 年に軟 X 線を用いた“平面波照明型”コヒーレント X 線回折イメージングが実証された [22]。コヒーレント X 線回折イメージングの最大の特長は 10 nm 以下の高空間分解能観察が可能なる点にある。X 線領域では理想的な集光・結像素子の作製に求められる精度がナノメートルオーダーとなることから、理想的な光学素子を作製することが困難であり、他の X 線イメージング法では空間分解能は実証レベルで 10 nm 程度 [23]、汎用的に利用されるものでは数 10 nm に制限されている [24]。一方、コヒーレント X 線回折イメージングでは、コヒーレントな X 線を試料に照射し生じた回折光を、試料の十分遠方に配置した検出器で測定し、計算機上で位相回復計算と呼ばれる処理を施すことによって試料像を再構成する。本手法の空間分解能は、原理的には入

射 X 線の波長と最大散乱角のみで決まり、光学素子による収差の影響を受けないことから 10 nm よりも優れた空間分解能が実現されており [25]、理想的な集光・結像素子の作製が技術的に困難な X 線領域においては特に有効である。本手法は 2.4.3 項に詳述するオーバーサンプリング条件から試料が孤立試料に限定されるという問題があり、これを解決する手法の 1 つとして X 線タイコグラフィが提案された。

X 線タイコグラフィの歴史は 1969 年から 1972 年かけて Hoppe らが透過型電子顕微鏡における位相問題の解決策としての提案 [26–29] まで遡る。Hoppe らは結晶試料からのブラッグ回折スポット同士の干渉縞から位相情報を回復可能であることを提案し、このときの複素振幅の解には複素共役も含まれてしまうため、照射位置を僅かに平行移動した回折パターンを併せて取得することで解の一意性が定まることを示した。しかしながら、ブラッグ回折スポット同士が干渉を起こすことが必要で、局所的な領域からの強度の弱いブラッグ回折光を測定しなければならないため、これら一連の考察は X 線に比べ相互作用の大きい電子線を想定したものであり、X 線領域ではコヒーレントで結晶の単位胞程度まで局在化した波動場が必要であると結論づけている [26]。さらに同年に発表した論文では、位相板を挿入することで非結晶試料にも応用可能であることを示し [27]、これらの手法をこの翌年に発表した論文中でタイコグラフィと名付けた [28]。しかしながら、実験装置の制限や計算機の性能が原因で、Hoppe 自身の実験は可視光を利用した予備的なものに留まっており、Hoppe 自身が後に“ほとんど忘れ去られたアイデア”と述べていた [30] ように、一連の発表からはおよそ四半世紀に渡って日の目を見ることはなかった。Hoppe の提案を有用な手法として押し上げたのが、Bates と Rodenburg による Wigner-distribution deconvolution の導入 [31] である。これにより、照射波動場が既知の場合、試料の走査間隔と同様の分解能で位相回復が可能となり、可視光 [32]、透過型電子顕微鏡 [33]、そして X 線 [34] によって実証実験が行われた。Wigner-distribution deconvolution を用いた例では試料（もしくは照射光）の走査間隔により分解能が決定されるが、反復的位相回復計算との融合でこの制限が解消され [35, 36]、広く利用されるイメージング法としての地位が確立され始めた。可視光でいくつかの研究成果が報告された後 [37]、X 線領域における実証実験が行われ [2]、位相回復計算法の改善により照射波動場も再構成できるようになる [38, 39] と、屈折レンズ [40]、ゾーンプレート [41]、K-B ミラー [42] など様々な照明光学系を利用した X 線タイコグラフィ研究が各国の放射光施設で推進されている。

図 2.1 に X 線タイコグラフィの模式図を示している。X 線タイコグラフィでは、X 線の照射領域が重なるように試料をステップ走査し、それぞれの点で回折強度パターンを取得する。照射領域が重なる範囲の試料情報を共通とすることが、平面波照明型の実空間拘束よりも強い拘束条件となり、試料像の再構成のみならず、照射波動場など付加的な情報が抽出可能となる。

2.3 X 線タイコグラフィ位相回復計算

2.3.1 X 線と試料の相互作用の定式化

X 線タイコグラフィの位相回復計算を行うためには、入射 X 線波動場と試料の相互作用や測定面までの波動場の伝搬をモデル化し数式として表現しなければならない。本項では試料に照射する波動場、試料の複素透過関数とタイコグラフィ測定で取得される回折強度パターンとの関係について詳述する。

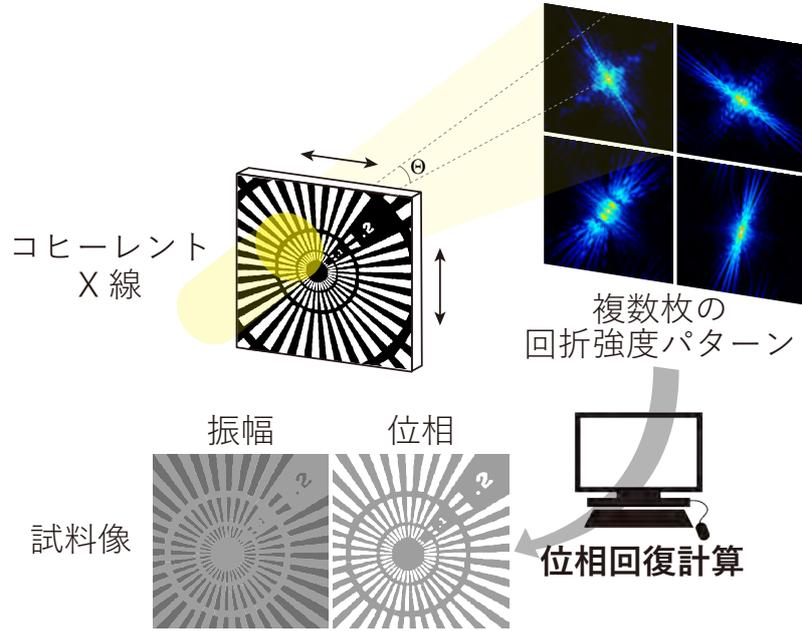


図 2.1 X線タイコグラフィの模式図. X線タイコグラフィでは, X線の照射領域が重なるように試料を2次元走査し, 各点で回折強度パターンを取得する. そして, 測定したデータに対し計算機上で位相回復計算を行うことで, 試料の複素透過関数を再構成する. 計算機が理想的なレンズの役割を果たすことで, 結像レンズの収差に影響されない高い空間分解能が実現可能で, 既存のX線イメージング法で最高水準の空間分解能を達成している. また, 照射領域が重なる範囲の試料情報を共通とすること(実空間拘束)が安定した位相回復を実現しており, 試料像の再構成のみならず, 照射波動場などの付加的な情報も抽出可能である.

X線領域における物質の複素屈折率は一般に

$$n(\boldsymbol{\rho}, \lambda) = 1 - \delta(\boldsymbol{\rho}, \lambda) + i\beta(\boldsymbol{\rho}, \lambda) \quad (2.1)$$

と表される. ここで, $\boldsymbol{\rho}$ は実空間における3次元位置ベクトル, λ は入射X線の波長を表す. N 種の異なる原子が存在するとき, δ , β は複素原子散乱因子

$$f_j(\mathbf{q}, \lambda) = f_j^0(\mathbf{q}) + f_j'(\lambda) + if_j''(\lambda) \quad (2.2)$$

を用いて

$$\delta = \frac{r_e \lambda^2}{2\pi} \sum_j^N n_j (Z_j + f_j') \quad (\text{前方散乱の場合}) \quad (2.3)$$

$$\beta = -\frac{r_e \lambda^2}{2\pi} \sum_j^N n_j f_j'' \quad (2.4)$$

と表される. ここで, \mathbf{q} は散乱ベクトル, $r_e = 2.818 \times 10^{-15}$ は古典電子半径, n_j は単位体積中に含まれる j 種の原子数, Z_j は j 種の原子(あるいはイオン)に属する電子の総数を表す. また, β は光電効果によ

る吸収係数 μ と

$$\beta(\boldsymbol{\rho}, \lambda) = \frac{\lambda}{4\pi} \mu(\boldsymbol{\rho}, \lambda) \quad (2.5)$$

の関係をもつため、吸収係数 μ は

$$\mu(\boldsymbol{\rho}, \lambda) = 2\lambda r_e \sum_j^N n_j(-f_j'') \quad (2.6)$$

とも表される。光軸垂直面内の2次元ベクトルを \mathbf{r} とすると、波動場 $P(\mathbf{r})$ が $n(\boldsymbol{\rho})$ の屈折率をもつ物質を透過した直後の波動場 $\psi(\mathbf{r})$ は、 $P(\mathbf{r})$ が物質厚さ分の距離の真空中を伝播したときにほぼ変化がないと考えられるとき

$$\psi(\mathbf{r}) = O(\mathbf{r}) \cdot P(\mathbf{r}) \quad (2.7)$$

と表される。ここで、 $O(\mathbf{r})$ は複素透過関数を表す。このように、入射波動場と試料の3次元的な相互作用を2次元関数の積で表現することを投影近似と呼ぶ。式(2.7)において $P(\mathbf{r})=1$ とすると、 $O(\mathbf{r})$ は平面波を物質に入射したときの背面波動場と考えることができる。つまり、平面波が真空中、物質中を通過する光路差分の吸収、位相シフト量を複素透過関数として考えることができ、

$$\begin{aligned} O(\mathbf{r}) &= \exp\left(-ik \int \{1 - n(\mathbf{r}, z)\} dz\right) \\ &= \exp\left(-ik \int \{\delta(\mathbf{r}, z) - i\beta(\mathbf{r}, z)\} dz\right) \end{aligned} \quad (2.8)$$

と表すことができる。ここで、 k は波数を表し、 $k = 2\pi/\lambda$ の関係をもつ。物質による吸収が無視でき位相変化量が小さいとき、式(2.8)は

$$O(\mathbf{r}) \approx 1 + i\phi(\mathbf{r}) \quad (2.9)$$

と近似することができる。ここで、 $\phi(\mathbf{r})$ は $O(\mathbf{r})$ の位相項で、 $\arg [O(\mathbf{r})] = \phi(\mathbf{r})$ である。この近似は弱位相物体近似 (Weak Phase Object Approximation : WPOA) と呼ばれ [43]、第1次ボルン近似と同様の式の形となっている [44]。

試料の十分遠方で観測される回折強度パターン $I(\mathbf{q})$ は $\psi(\mathbf{r})$ のフーリエ変換の絶対値の2乗、つまり

$$I(\mathbf{q}) = |\mathcal{F}[\psi(\mathbf{r})]|^2 = \left| \int \psi(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2 \quad (2.10)$$

と表される。ここで、 $\mathcal{F}[\cdot]$ はフーリエ変換を表す演算子である。このように測定される回折強度パターンでは回折波の位相情報が失われており、位相回復計算によって位相項を求め、 $O(\mathbf{r})$ を算出することで試料による X線吸収量・位相シフト量の2次元分布が観察可能になる。

2.3.2 投影近似と被写界深度

2.3.1 項の式(2.7)で、試料背面波動場は入射波動場と複素透過関数の積で表現できるとしたが、本項ではこの記述の妥当性について述べる。これに関する定量的な議論は Thibault らの Science 誌 [41] の

Supplementary information で行われている．ある光学系における入射波動場を $\Psi_0(\boldsymbol{\rho})$ と定義し，この波動場が場所による変化が緩慢で波長 λ 程度の範囲で実質的に一定とみなせるとき，非均一媒質中における波動方程式は

$$\nabla^2 \Psi(\boldsymbol{\rho}) + k^2 n^2(\boldsymbol{\rho}) \Psi(\boldsymbol{\rho}) = 0 \quad (2.11)$$

と表される [45]．試料は z 方向の有限厚さ L をもつ，すなわち $0 < z < L$ の領域外では $n = 1$ とする． $T(\boldsymbol{\rho})$ が $\Psi_0(\boldsymbol{\rho})$ に対して独立であると考えられるとき式 (2.11) の解は

$$\Psi(\boldsymbol{\rho}) = T(\boldsymbol{\rho}) \Psi_0(\boldsymbol{\rho}) \quad (2.12)$$

と分解できるとする (ansatz)． $\Psi_0(\boldsymbol{\rho}) = \psi_0(\boldsymbol{\rho}) \exp(ikz)$ として式 (2.11) を展開すると

$$(\nabla^2 T(\boldsymbol{\rho}) + 2ik\partial_z T(\boldsymbol{\rho}) + k^2(n^2(\boldsymbol{\rho}) - 1))\psi_0(\boldsymbol{\rho}) + 2\nabla\psi_0(\boldsymbol{\rho}) \cdot \nabla T(\boldsymbol{\rho}) = 0 \quad (2.13)$$

となる．式 (2.13) の左辺第 2 項目を無視できるとき，第 1 項目は $\psi_0(\boldsymbol{\rho})$ とは独立して 0 となり，

$$\nabla^2 [T(\boldsymbol{\rho}) \exp(ikz)] + k^2 n^2 T(\boldsymbol{\rho}) \exp(ikz) = 0 \quad (2.14)$$

と変形でき， $T(\boldsymbol{\rho}) \exp(ikz)$ が式 (2.11) 波動方程式を満たすことがわかる． $z < 0$ において $T = 1$ とすると，試料に平面波を照射していると考えることができ，式 (2.8) の記述が正しいことを確認できる．また，この条件を満たすとき，式 (2.12) の ansatz は正しいと考えることができ， $P(\mathbf{r}) = \Psi(\mathbf{r}, L)$ ， $O(\mathbf{r}) = T(\mathbf{r}, L)$ とすることで式 (2.7) の妥当性を確認することができる．

次に $\nabla\psi_0(\boldsymbol{\rho}) \cdot \nabla T(\boldsymbol{\rho})$ が無視できる条件について考える．式 (2.13) の左辺第 1 項の括弧内で ∂_z に関する項は $2ik\partial_z T(\boldsymbol{\rho})\psi_0(\boldsymbol{\rho})$ のみであり，

$$k|\psi_0(\boldsymbol{\rho})\partial_z T(\boldsymbol{\rho})| \gg |\nabla\psi_0(\boldsymbol{\rho}) \cdot \nabla T(\boldsymbol{\rho})| \quad (2.15)$$

を満たすとき， $\nabla\psi_0(\boldsymbol{\rho}) \cdot \nabla T(\boldsymbol{\rho})$ は無視できると考えて良い．この式を実験で取り扱うパラメーターに変換して考える． ∂_z の項の着目すると $|\partial_z\psi_0(\boldsymbol{\rho})| \ll k|\psi_0(\boldsymbol{\rho})|$ となるので，式 (2.15) において重要な項は光軸垂直面内 x, y に関するものだけとなる．つまり，変化の大きいと考えられる $|\nabla T(\boldsymbol{\rho})|$ の面内方向の成分のみを考えればよく， d_x を面内方向の空間分解能としたとき，最大で $|\nabla T(\boldsymbol{\rho})| \sim |T(\boldsymbol{\rho})|/d_x$ をとると考えても差し支えない．一方，光軸方向に関して $|\partial_z T(\boldsymbol{\rho})|$ の最小値として $L^{-1}|T(\boldsymbol{\rho})|$ ととると考えると，式 (2.15) は少々粗い見積もりにはなるが

$$\frac{d_x}{L} \gg \frac{\lambda}{a} \quad (2.16)$$

と書き換えることができる．ここで， a は波動場 $\psi_0(\boldsymbol{\rho})$ が試料面で存在しうる最大の領域を表す．式 (2.16) を満たす試料厚さの上限を D_{\max} とし，式 (2.16) を書き換えると

$$D_{\max} < \frac{ad_x}{\lambda} \quad (2.17)$$

となる．これは他の顕微法における被写界深度に相当するものと捉えることができる． D_{\max} は試料厚さに関してのみでなく，平板試料の傾斜に関しても同様である．ここまでの導出には，ボルン近似等の散

表 2.1 各論文中で明示されている X 線タイコグラフィにおける被写界深度の上限

P. Thibault et al. [41]	$D_{\max} < ad_x/\lambda$
K. A. Nugent [46]	$D_{\max} \ll d_x^2/\pi\lambda$
J. M. Rodenburg et al. [47]	$D_{\max} < 2d_x^2/\lambda$
H. N. Chapman et al. [48]	$D_{\max} < d_x^2/2\lambda$
E. H. R. Tsai et al. [18]	$D_{\max} < 5.2d_x^2/\lambda$

乱過程における近似を一切適用していないことから、式 (2.17) を満たす限り多重散乱が起きる、もしくは試料が弱位相物体でなくても差し支えない。以上のように試料厚さが D_{\max} よりも薄いとき、 $T(\boldsymbol{\rho})$ は $\psi_0(\boldsymbol{\rho})$ と独立かつ式 (2.14) を満たし、式 (2.7) の投影近似の妥当性が担保される。

以上のような試料を 2 次元投影像として扱える最大の試料厚さに関しては、Nugent による散乱ポテンシャルを用いた例 [46]、Rodenburg [47]、Chapman [48] によるエバルト球を用いた例など様々な角度から考察されており、それぞれの流儀によって最終的な結論も微妙に異なっている。しかしながらこれら条件式は本項中でも述べたように厳密なものではない。そこで、Tsai らはタイコグラフィにおける被写界深度の見積もりを計算機シミュレーションにより

$$D_{\max} < 5.2 \frac{d_x^2}{\lambda} \quad (2.18)$$

と算出しており [18]、近年ではこの式が広く採用されている。これらの被写界深度は表 2.1 にまとめている。

2.3.3 extended Ptychographical Iterative Engine (ePIE)

X 線タイコグラフィ位相回復法として代表的なものの 1 つが extended Ptychographical Iterative Engine (ePIE) である [39]。本アルゴリズムの前身である PIE は文字通り、タイコグラフィのための位相回復計算法として 2004 年に Rodenburg らによって開発された [35, 36]。しかしながら、PIE では照射関数が既知でなければならないという制限から、照射関数を正確に決定できない光学系における測定は難しいとされていた。そこで、Maiden と Rodenburg が 2009 年に発表した ePIE では、PIE で用いていた試料関数の更新と同様の操作を照射関数に対しても適用することで、試料関数と照射関数を同時に再構成可能な手法へと拡張されている。これにより照明光学系に左右されない X 線タイコグラフィが可能となり、様々な集光光学素子を用いたタイコグラフィへと展開されている [40, 42]。また、試料像の観察のみならず、集光光学素子の収差の評価にも利用されている [49–51]。

図 2.2 に ePIE による照射関数、試料関数の更新工程を模式化した図を示している。照射点 j における試料面での波動場を $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ (照射関数)、3 次元試料を 2 次元の複素透過関数に投影した複素透過関数を $O(\mathbf{r})$ (試料関数) としたとき、試料の背面波動場 $\psi_j(\mathbf{r})$ は式 (2.7) で示したように

$$\psi_j(\mathbf{r}) = O(\mathbf{r}) \cdot P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (2.19)$$

と表される。ここで、 \mathbf{R}_j はタイコグラフィ走査による変位ベクトルを表す。この背面波動場をフーリエ

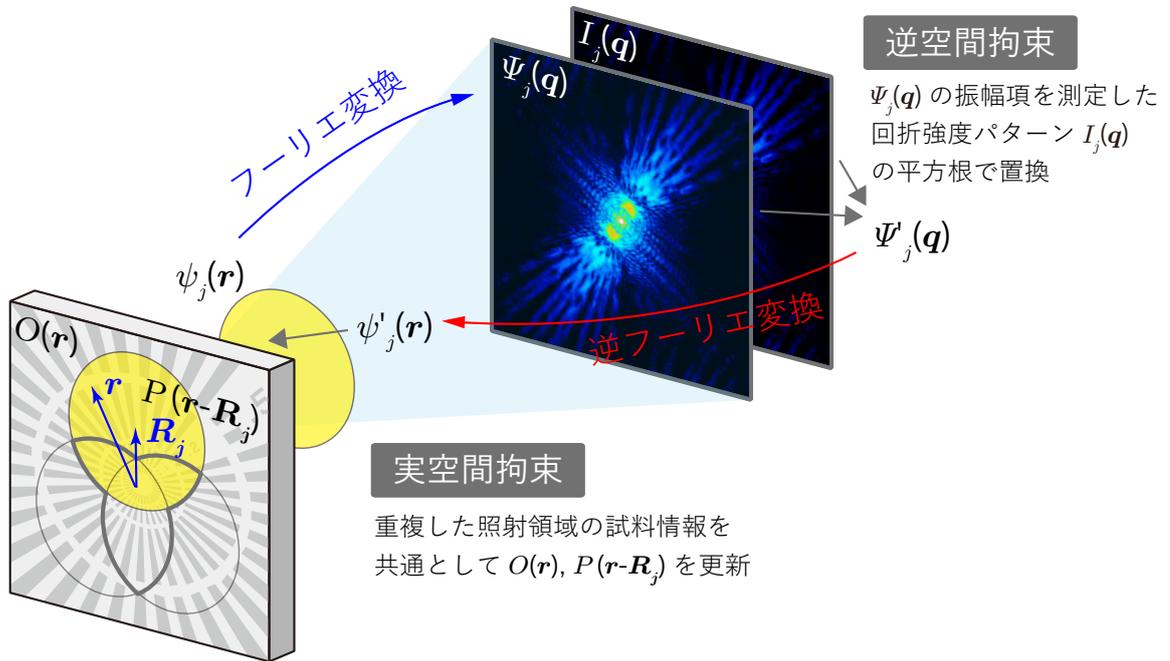


図 2.2 ePIE の模式図。照射領域の一部が重複するように照射波動場 (もしくは試料) を 2 次元走査して複数枚の回折強度パターンを取得する。背面波動場 $\psi_j(\mathbf{r})$ は照射点 j における照射関数 $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ と試料関数 $O(\mathbf{r})$ の積で表現され、これのフーリエ変換が検出器面上の回折波 $\Psi_j(\mathbf{q})$ に相当する。 $\Psi_j(\mathbf{q})$ の振幅項を測定した回折強度パターン $I_j(\mathbf{q})$ の平方根で置換 (逆空間拘束) し、逆フーリエしたものが $\psi'_j(\mathbf{r})$ となり、 $\psi'_j(\mathbf{r})$ 、式 (2.22)、(2.23) を用いて試料関数 $O(\mathbf{r})$ 、 $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ を更新する (実空間拘束)。これら一連の工程を様々な照射点に関して反復的に繰り返して、 $O(\mathbf{r})$ 、 $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ を再構成する。

変換することで検出器面での回折波を算出することができ、

$$\Psi_j(\mathbf{q}) = \mathcal{F}[\psi_j(\mathbf{r})] \quad (2.20)$$

と表される。ここで、 Ψ_j は検出器面における回折波、 $\mathcal{F}[\cdot]$ はフーリエ変換を表す演算子である。逆空間拘束として $\Psi_j(\mathbf{q})$ の振幅項を測定した回折強度パターン $I_j(\mathbf{q})$ の平方根で置き換え、 $\Psi'_j(\mathbf{q})$ を算出する。

$$\Psi'_j(\mathbf{q}) = \sqrt{I_j(\mathbf{q})} \frac{\Psi_j(\mathbf{q})}{|\Psi_j(\mathbf{q})|} \quad (2.21)$$

この拘束条件は逆空間拘束と呼ばれる。 $\Psi'_j(\mathbf{q})$ を逆フーリエ変換することで算出した背面波動場 $\psi'_j(\mathbf{r})$ を用いて、試料関数、照射関数を

$$O'(\mathbf{r}) = O(\mathbf{r}) + \alpha \frac{P^*(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)}{|P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)|_{\max}^2} (\psi'_j(\mathbf{r}) - \psi_j(\mathbf{r})) \quad (2.22)$$

$$P'(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) = P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) + \beta \frac{O^*(\mathbf{r})}{|O(\mathbf{r})|_{\max}^2} (\psi'_j(\mathbf{r}) - \psi_j(\mathbf{r})) \quad (2.23)$$

のように更新する。ここで、 α 、 β は更新度合いを調整するパラメーターで 1 以下の値が利用される。この更新過程では、他の走査点の照明領域と重複した照射領域の試料関数を共通とする拘束条件が利用され

ており、実空間拘束とも呼ばれる。これら一連の計算を他の照射点でも行い、全ての照射点で計算が終了した時点で1回の反復計算とし、位相回復計算が収束するまで反復的に繰り返す。計算が収束したかどうかの1つ目安としては、反復計算 k 回目での逆空間における規格化誤差 $E^{(k)}$ が用いられ、

$$E^{(k)} = \frac{\sum_j \sum_q \left| \sqrt{I_j(\mathbf{q})} - |\Psi_j^{(k)}(\mathbf{q})| \right|^2}{\sum_j \sum_q I_j(\mathbf{q})} \quad (2.24)$$

の変動が十分小さくなったときに計算が収束したとみなす。

2.3.4 3D Ptychographical Iterative Engine (3PIE)

式 (2.7) の記述は、試料中での入射波動場の変化が無視できるほど小さい、かつ試料厚さが式 (2.18) で示したような被写界深度以下の場合にのみ成立し、これらの条件が満たされない場合には 2.3.3 項で述べ

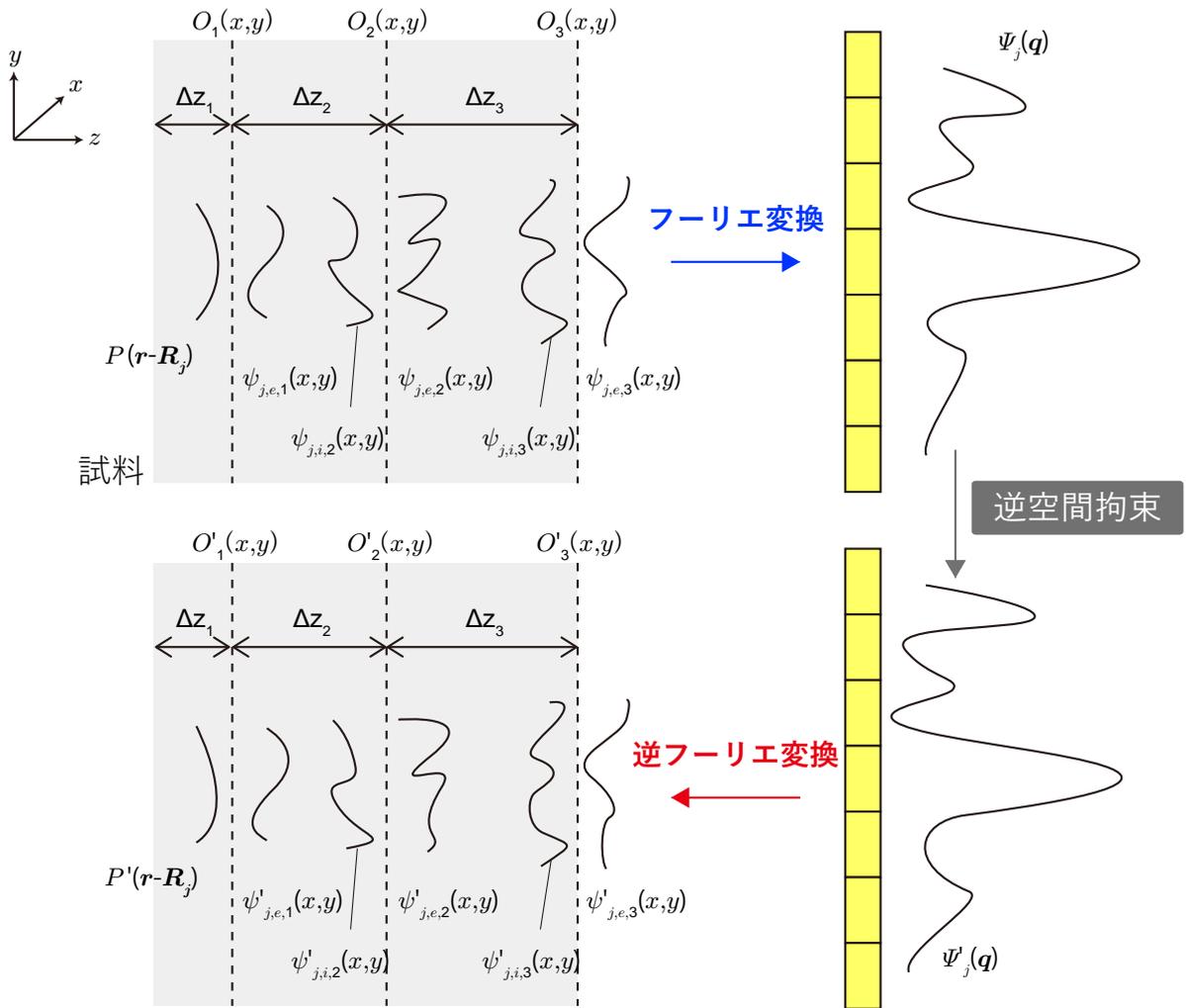


図 2.3 マルチスライス法を用いたタイコグラフィ位相回復計算法 (3D Ptychographical Iterative Engine : 3PIE) の模式図。試料を被写界深度よりも薄い N 層に分割し、層間で伝播計算を行うことで試料中での回折波の広がり を考慮した位相回復が可能である。

た ePIE による再構成はできない。そこで, Maiden らは試料を被写界深度以下の厚さの複数層に分割し, 試料中での光の伝播を考慮する計算過程を ePIE に組み込むことで, これらの条件を満たさない場合でも再構成計算が可能な位相回復計算法を開発し, 3D Ptychographical Iterative Engine(3PIE) と名付けた [14].

3PIE では 2.3.2 項で紹介した被写界深度よりも各層の厚さが小さくなるように分割数 N を選択する。図 2.3 は $N=3$ の場合の 3PIE の模式図を示している。初期照射関数を $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ と, n 層目の初期試料関数を $O_n(\mathbf{r})$ と設定すると, 各層では投影近似が成立するので 1 層目の背面波動場 $\psi_{j,e,1}(\mathbf{r})$ は

$$\psi_{j,e,1}(\mathbf{r}) = O_1(\mathbf{r}) \cdot P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (2.25)$$

と表される。次に, 2 層目に入射する波動場を伝播計算により

$$\psi_{j,i,2}(\mathbf{r}) = \mathcal{P}_{\Delta z_1} [\psi_{j,e,1}(\mathbf{r})] \quad (2.26)$$

と算出する。ここで, $\mathcal{P}_{\Delta z_n}$ は角スペクトル法 [52](付録 A を参照) による距離 $\Delta z_n = z_n - z_{n-1}$ の伝播計算演算子を表す。これらと同様の計算を繰り返し, 2 層目の背面波動場 $\psi_{j,e,2}(\mathbf{r})$, 3 層目の入射波動場 $\psi_{j,i,3}(\mathbf{r})$, 3 層目の背面波動場 $\psi_{j,e,3}(\mathbf{r})$ を算出する。検出器面での波動場は, 試料背面から十分遠方へ伝播する回折波と考えることができるので, 検出器面での波動場関数 $\Psi_j(\mathbf{q})$ は

$$\Psi_j(\mathbf{q}) = \mathcal{F} [\psi_{j,e,3}(\mathbf{r})] \quad (2.27)$$

のように $\psi_{j,e,3}(\mathbf{r})$ のフーリエ変換で表される。ここで, $\Psi_j(\mathbf{q})$ は, $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ と $O_n(\mathbf{r})$ を用いると, 以下のようにも表わされる。

$$\Psi_j(\mathbf{q}) = \mathcal{F} \left[O_3(\mathbf{r}) \mathcal{P}_{\Delta z_3} \left[O_2(\mathbf{r}) \mathcal{P}_{\Delta z_2} \left[O_1(\mathbf{r}) P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \right] \right] \right] \quad (2.28)$$

次に, 逆空間拘束として, 導出した検出器面での波動場関数 $\Psi_j(\mathbf{q})$ の振幅項を取得した回折強度パターンの平方根 $\sqrt{I_j(\mathbf{q})}$ で置き換える。

$$\Psi'_j(\mathbf{q}) = \sqrt{I_j(\mathbf{q})} \frac{\Psi_j(\mathbf{q})}{|\Psi_j(\mathbf{q})|} \quad (2.29)$$

さらに, これを逆フーリエ変換することで, 3 層目の背面波動場を更新する。

$$\psi'_{j,e,3}(\mathbf{r}) = \mathcal{F}^{-1} \left[\Psi'_j(\mathbf{q}) \right] \quad (2.30)$$

次に, ePIE で利用していた式 (2.22), (2.23) に類似した式

$$O'_3(\mathbf{r}) = O_3(\mathbf{r}) + \alpha \frac{\psi_{j,i,3}^*(\mathbf{r})}{|\psi_{j,i,3}(\mathbf{r})|_{\max}^2} \left(\psi'_{j,e,3}(\mathbf{r}) - \psi_{j,e,3}(\mathbf{r}) \right) \quad (2.31)$$

$$\psi'_{j,i,3}(\mathbf{r}) = \psi_{j,i,3}(\mathbf{r}) + \beta \frac{O_3^*(\mathbf{r})}{|O_3(\mathbf{r})|_{\max}^2} \left(\psi'_{j,e,3}(\mathbf{r}) - \psi_{j,e,3}(\mathbf{r}) \right) \quad (2.32)$$

を用いて, 3 層目の試料関数および 3 層目の入射波動場を更新する。更新された 3 層目の背面波動場 $\psi'_{j,e,3}(\mathbf{r})$ を逆伝播させることで, 2 層目の背面波動場を更新する。

$$\psi'_{j,i,2}(\mathbf{r}) = \mathcal{P}_{\Delta - z_3} \left[\psi'_{j,i,3}(\mathbf{r}) \right] \quad (2.33)$$

式 (2.31), (2.32) を利用した更新計算をそれぞれの層で実行し, 1層目の試料関数 $O_1(\mathbf{r})$ と 1層目の入射波動場, すなわち照射関数 $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ を更新するまで繰り返す. これら一連の計算を他の照射点でも行い, 全ての照射点でこれらの計算が終了した時点で 1回の反復計算とする. この計算を繰り返す行うことで各層の試料関数 $O_n(\mathbf{r})$ と照射関数 $P(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ を再構成することができる.

マルチスライスタイコグラフィは, 可視光領域において, 1方向からの測定で試料断面像が観察できる新たな 3次元イメージング手法として提案された [14, 16]. その後, Suzuki らによって X線領域において被写界深度よりも厚い試料の高分解能観察に対して有効であることが実証され [17], 再構成アルゴリズムの改善 [18, 53, 54] や照射波動場の工夫による光軸分解能の向上 [19] など本手法に関する研究が精力的に進められている. また, 低電子線量で 3次元観察が可能な手法として電子線領域へも逆輸入されている [20].

2.3.5 Mixed-state reconstruction

これまでの議論は静止した試料に完全コヒーレントな X線を照射した理想的な系を考えてきた. しかし, 実際の光学系では入射 X線のコヒーレンス, 試料の振動, 検出器の点広がりなどにより理想的な測定は実現できない. 例えば照射波動場が空間的, 時間的に部分コヒーレントな状態の場合, 式 (2.7) のような記述は成立せず, 相互強度を用いた記述が必要となるが, このような条件でも位相回復計算が可能な計算法として混合状態再構成計算法 (Mixed-state reconstruction) が Thibault らによって提案された [55].

ある照射波動場 $U(\mathbf{r}, t)$ を角周波数 ω の準単色光であるとすると

$$U(\mathbf{r}, t) = P(\mathbf{r}, t)e^{-i\omega t} \quad (2.34)$$

と表すことができる. 照射波動場の相互強度を $J(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ とおくと

$$\begin{aligned} J(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) &= \langle U^*(\mathbf{r}_1, t)U(\mathbf{r}_2, t) \rangle \\ &= \langle P^*(\mathbf{r}_1, t)P(\mathbf{r}_2, t) \rangle \end{aligned} \quad (2.35)$$

と $P(\mathbf{r}, t)$ の 2点間の相互相関に書き換えることができる. ここで, $\langle \cdot \rangle$ は時間平均を表す. Marcer の定理によると $J(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$ はコヒーレントな複数のモードに分割することが可能で,

$$J(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \sum_n P_n^*(\mathbf{r}_1)P_n(\mathbf{r}_2) \quad (2.36)$$

と表すことができる [45]. n 次のモードの波動場の試料背面波動場を $\psi_n(\mathbf{r}) = O(\mathbf{r}) \cdot P_n(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ とすると, 十分遠方の回折強度は

$$\begin{aligned} I(\mathbf{q}) &= \int \int J(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)O^*(\mathbf{r}_1)O(\mathbf{r}_2) \exp[-i(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1) \cdot \mathbf{q}] d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \\ &= \left| \sum_n \int \psi_n(\mathbf{r})e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \right|^2 \\ &= \sum_n |\Psi_n(\mathbf{q})|^2 \end{aligned} \quad (2.37)$$

と各モードの背面波動場のフーリエ変換 $\Psi_n(\mathbf{q})$ の強度の足し合わせで表現することが可能である。部分コヒーレント光を完全に記述するためには、無限個のモードを考える必要があるが、通常のタイコグラフィで利用される比較的コヒーレンス度の高い条件では有限個のモード数でも精度良く近似することが可能である。ここまでの議論は時間的コヒーレンスについても適用可能である [56, 57]。また、試料の複素透過関数は 2.3.1 項でも述べたように波動場的な取り扱いをしているため、直交した l 個のモードからなる複数の複素透過関数 $O_l(\mathbf{r})$ についても同様の議論が可能である。位相回復計算の過程では、個々の $\psi_{l,n}(\mathbf{r})$ を更新すると考えればよいから、2.3.3 項の逆空間拘束にあたる式 (2.21) を

$$\Psi'_{l,n}(\mathbf{q}) = \sqrt{I_j(\mathbf{q})} \frac{\Psi_{l,n}(\mathbf{q})}{\sqrt{\sum_{l,n} |\Psi_{l,n}(\mathbf{q})|^2}} \quad (2.38)$$

また、照射関数、試料関数の更新式、(2.22), (2.23) を

$$O'_l(\mathbf{r}) = O_l(\mathbf{r}) + \frac{\alpha}{|\sum_n P_n(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)|_{\max}^2} \sum_n P_n^*(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) (\psi'_{l,n}(\mathbf{r}) - \psi_{l,n}(\mathbf{r})) \quad (2.39)$$

$$P'_n(\mathbf{r}) = P_n(\mathbf{r}) + \frac{\beta}{|\sum_l O_l(\mathbf{r})|_{\max}^2} \sum_l O_l^*(\mathbf{r}) (\psi'_{l,n}(\mathbf{r}) - \psi_{l,n}(\mathbf{r})) \quad (2.40)$$

に置き換えることで再構成計算が可能となる。

2.4 X線タイコグラフィ測定

2.4.1 空間分解能

この項ではタイコグラフィにおける空間分解能について、エバルト球を用いて詳述する。2.3.2 項で述べたようにタイコグラフィにおける回折強度パターンの記述では第 1 次ボルン近似を利用していないので、エバルト球を用いた議論は完全に正しいとは言えないが、現在でも空間分解能の定義として広く利用されている。

入射波動場、散乱波動場の波数ベクトルをそれぞれ \mathbf{k}_{in} , \mathbf{k}_{out} と表すとき (ただし、ここでは $|\mathbf{k}| = 1/\lambda$ としている), 第 1 次ボルン近似の精度の範囲内では、散乱振幅は散乱ポテンシャルの 3 次元フーリエ変換の空間周波数 $\mathbf{q} = \mathbf{k}_{out} - \mathbf{k}_{in}$ を満たすベクトル上の成分 (“エバルト球” と呼ばれる) と等しいことが知られている [45]。このとき、 \mathbf{q} は散乱ベクトルと呼び、その大きさは

$$|\mathbf{q}| = |\mathbf{k}_{out} - \mathbf{k}_{in}| \quad (2.41)$$

$$= \left(\frac{4 \sin^2(\Theta_{\max}/2)}{\lambda^2} \right)^{1/2} \quad (2.42)$$

$$= \frac{2 \sin(\Theta_{\max}/2)}{\lambda} \quad (2.43)$$

と算出される。図 2.4(a) に示すように、2 つの波数ベクトル \mathbf{k}_{in} , \mathbf{k}_{out} がなす角度 Θ_{\max} は検出器が十分遠方にある場合、

$$\Theta_{\max} = \frac{2L}{pN} \quad (2.44)$$

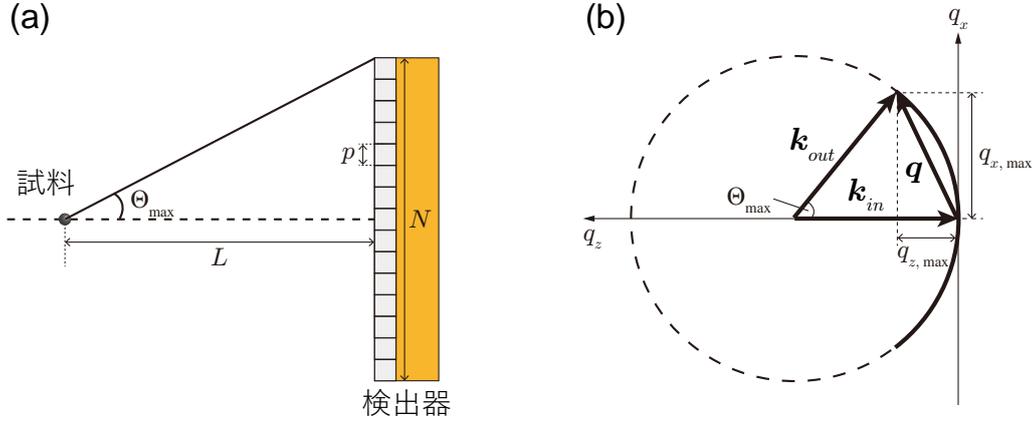


図 2.4 タイコグラフィの空間分解能. (a) タイコグラフィ測定における試料, 検出器, 最大散乱角の関係. (b) 最大散乱角と最大空間周波数の関係.

と表わされ, 最大散乱角と呼ばれている. ここでカメラ長, 検出器のピクセルサイズ, ピクセル数をそれぞれ L , p , N としている. 図 2.4(b) に示すように, 回折強度パターンの面内, 光軸方向の最大空間周波数 $q_{x,\max}$, $q_{z,\max}$ は最大散乱角 Θ_{\max} のエバルト球面の面内, 光軸方向の最大長さで表わされ, 幾何学的に

$$q_{x,\max} = |\mathbf{q}| \sin(\Theta_{\max}/2) = \frac{\sin \Theta_{\max}}{\lambda} \quad (2.45)$$

$$q_{z,\max} = |\mathbf{q}| \cos(\Theta_{\max}/2) = \frac{2 \sin^2(\Theta_{\max}/2)}{\lambda} \quad (2.46)$$

$$(2.47)$$

と算出される. 理論上の空間分解能はこれらの逆数で表わされ,

$$d_x = \frac{1}{q_{x,\max}} = \frac{\lambda}{\sin \Theta_{\max}} \quad (2.48)$$

$$d_z = \frac{1}{q_{z,\max}} = \frac{\lambda}{2 \sin^2(\Theta_{\max}/2)} \quad (2.49)$$

となる. 面内分解能 d_x は全周期空間分解能 (Full period spatial resolution) と呼ばれ, 以後, 特別な記載がない限り, 空間分解能はこちらの定義に従うものとする. 再構成される試料像のピクセルサイズ Δx は $d_x/2$ に相当し, こちらは半周期空間分解能 (Half period spatial resolution) とも呼ばれる. 光軸分解能 d_z は表 2.1 の Rodenburg による被写界深度の定義に一致しており, マルチスライスタイコグラフィにおいて分割可能な最小の試料厚さと考えることができる [17, 58].

2.4.2 コヒーレンス条件

これまでの議論は基本的に完全コヒーレント X 線を照射した場合を想定してきたが, 現実的には完全コヒーレント照明は実現できないため, 求められる精度に併せて近似的に完全コヒーレント照明とみなせる条件を採用している. 本項では複素コヒーレンス度を導入した後, X 線タイコグラフィ測定に必要なコヒーレンス条件について詳述する.

身の回りに存在する光は個々の発光点から放射される波連の重ね合わせを観測しているが、それぞれの波連の位相関係はランダムである。X線タイコグラフィではX線を試料に入射することで生じる干渉光を十分遠方で測定し、これに位相回復計算を実行することで試料像を再構成するが、この干渉効果を観測するためには、波連間の位相にある程度の秩序性をもった関係性が求められる。この秩序性はコヒーレンスと呼ばれ、干渉が可能な波連間の時間的な距離、空間的な距離で定義される光の性質を表す重要な概念の1つである。光源Sから放射されたX線が2つのピンホール P_1 、 P_2 を通り、スクリーン上のQ点で干渉する系を考える。位置 \mathbf{r} にある点Qにおける時刻 t におけるX線強度は、位置 \mathbf{r}_1 、 \mathbf{r}_2 にある点 P_1 、 P_2 の時刻 t_1 、 t_2 における電場 $E(\mathbf{r}_1, t_1)$ 、 $E(\mathbf{r}_2, t_2)$ を用いて

$$I(\mathbf{r}, t) = |E(\mathbf{r}_1, t_1) + E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \quad (2.50)$$

と表される。ここで、簡単のために伝播に関わる幾何学的な因子や偏光は無視している。確率的な取り扱いが可能な無秩序なカオス光源では、光源からくる光の振幅、位相はランダムであると仮定するため、実際に観測されるX線強度は時間平均となり、

$$I(\mathbf{r}, t) = \langle |E(\mathbf{r}_1, t_1)|^2 \rangle + \langle |E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \rangle + 2\text{Re} \langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1)E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle \quad (2.51)$$

と表される。この式の第1項、第2項はそれぞれピンホール P_1 、 P_2 だけ存在するときのQ点におけるX線強度であり、第3項はそれぞれのピンホールからのX線の干渉効果を表す。波動場が定常的であると仮定すると、式(2.51)の第3項は t_1 、 t_2 の時間差 $t_2 - t_1 = \tau$ のみに依存し、 τ を用いて書き換えると

$$\Gamma_{12}(\tau) = \langle E^*(\mathbf{r}_1, t)E(\mathbf{r}_2, t + \tau) \rangle \quad (2.52)$$

となる。 $\Gamma_{12}(\tau)$ はある時空間の2点 (\mathbf{r}_1, t_1) 、 (\mathbf{r}_2, t_2) における波動場の1次の相関を表し、相互コヒーレント関数と呼ばれる。特に $\Gamma_{11}(\tau)$ 、 $\Gamma_{22}(\tau)$ は自己コヒーレンス関数と呼ばれ、 $\Gamma_{11}(0)$ 、 $\Gamma_{22}(0)$ は式(2.51)の第1項、第2項に等しい。これらを用いて $\Gamma_{12}(\tau)$ を規格化した

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{\sqrt{\Gamma_{11}(0)\Gamma_{22}(0)}} = \frac{\langle E^*(\mathbf{r}_1, t)E(\mathbf{r}_2, t + \tau) \rangle}{\left\{ \langle |E(\mathbf{r}_1, t_1)|^2 \rangle \langle |E(\mathbf{r}_2, t_2)|^2 \rangle \right\}^{1/2}} \quad (2.53)$$

を複素コヒーレンス度と呼ぶ。 $|\gamma_{12}|$ はQに到達する2つのX線のコヒーレンスの程度を表し、 $|\gamma_{12}|=1$ で完全にコヒーレント、 $0 < |\gamma_{12}| < 1$ で部分的にコヒーレント、 $|\gamma_{12}|=0$ で完全にインコヒーレントと呼ぶ。完全コヒーレント状態では理想的な干渉が起こり、インコヒーレント状態では干渉効果は全く観測されない。現実世界では完全コヒーレント、インコヒーレント状態は実現できるものではなく、部分的にコヒーレントな状態をとっている。

複素コヒーレンス度 $\gamma_{12}(\tau)$ は2つの時空点での電場の相関の程度を表すが、特に同一位置における時間的な相関関数 $\gamma_{11}(\tau)$ は時間的コヒーレンス、同一時刻における空間的な相関関数 $\gamma_{12}(\tau_0)$ は空間的コヒーレンスを表す。 P_1 、 P_2 の電場がクロススペクトル純粋性を有するとき、複素コヒーレンス度は

$$\gamma_{12}(\tau) = \gamma_{12}(0)\gamma_{11}(\tau) \quad (2.54)$$

と表すことができる。ここで、 $\tau_0 = 0$ としている。つまり、空間的、時間的にそれぞれ高いコヒーレンスを実現することで完全コヒーレントに近いX線を生成することが可能である。

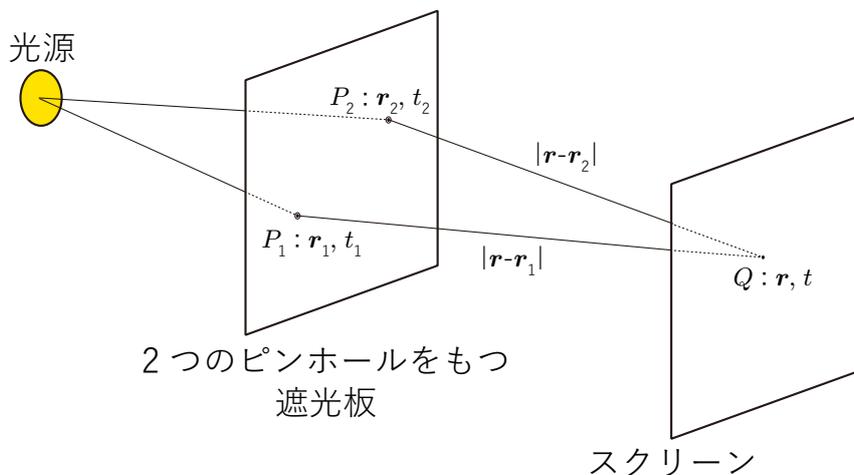


図 2.5 ヤングの実験.

図 2.6(a) のように直径が w の円状もしくは幅 w のインコヒーレント光源から放射された X 線を光源からの距離 R , 幅 d のスリットを通過して角度 θ 方向の十分遠方で観測する系を考える. 光源の中心から放射される X 線が強め合いの干渉を起こす条件は $d \sin \theta = m\lambda$ より $\theta = m\lambda/d$ となる. ここで, m は整数, θ は十分小さく, $\sin \theta \approx \theta$ としている. 光源の端から放射した X 線を角度 θ 方向の十分遠方で干渉を起こすとすると, A, B の経路差は

$$\sqrt{R^2 \cos^2 \theta + \left(\frac{d}{2} + \frac{w}{2}\right)^2} - \sqrt{R^2 \cos^2 \theta + \left(\frac{d}{2} - \frac{w}{2}\right)^2} \approx \frac{dw}{2R} \quad (2.55)$$

となるため, 強め合いの干渉を起こす条件は

$$d \sin \theta + \frac{dw}{2R} = m\lambda \quad (2.56)$$

となる. この式から光源の中心からの X 線で強め合いの干渉縞が現れる場所において, 光源の端からの X 線で弱め合いの条件となるのは $dw/2R = 1/2\lambda$ となるのがわかる. このときのスリット幅 d を空間コヒーレンス長 ξ_t と考えることができ,

$$\xi_t = \frac{\lambda R}{w} \quad (2.57)$$

と表される.

時間的コヒーレンスに関しても, 波長 λ , $\lambda + \Delta\lambda$ を持つ 2 つの X 線が強め合いの干渉を起こした点から弱め合いの干渉を起こす点までの距離を時間コヒーレンス長 ξ_l と考えることができる. このとき図 2.6(b) から $\xi_l = N\lambda = (N + 1/2)(\lambda + \Delta\lambda)$ となるので,

$$\xi_l = \frac{1}{2} \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda} \quad (2.58)$$

と表される.

X 線タイコグラフィを含むコヒーレント X 線回折イメージングでは, 照射波動場の照射領域 a , 試料中のある 2 点から検出器面の 1 点までの経路差の最大値 l がそれぞれ空間コヒーレンス長, 時間コヒーレン

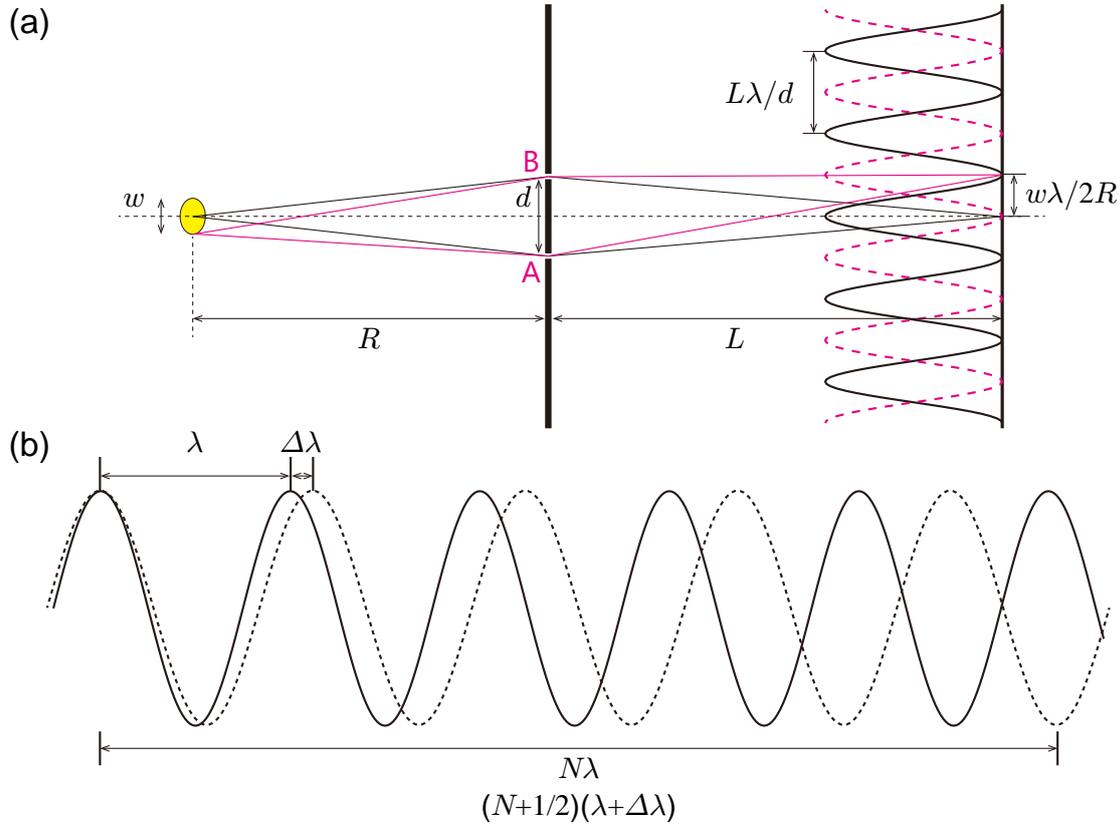


図 2.6 空間・時間コヒーレンス長の概念図. (a) 空間コヒーレンス長. (b) 時間コヒーレンス長.

ス長よりも小さいこと, つまり

$$a < \xi_t \quad (2.59)$$

$$l < \xi_l \quad (2.60)$$

が測定における必要条件となる.

2.4.3 オーバーサンプリング

X線回折イメージングでは, 回折強度パターンを細かくサンプリング (オーバーサンプリング) し, 位相回復計算を行うことで検出器面での回折波の位相項を回復し, 試料の複素透過関数を再構成する. 初めに平面波照明型と呼ばれる手法のオーバーサンプリングについて解説する. 図 2.7(a) に示すように, $N_x \times N_y$ pixels に離散化された 2次元の位相物体を考える. これのフーリエ変換の絶対値の 2乗が回折強度パターンに相当するが, このピクセル数も $N_x \times N_y$ となる. フリーデル則より, $|F(-\mathbf{q})| = |F(\mathbf{q})|$, $\arg[F(-\mathbf{q})] = -\arg[F(\mathbf{q})]$ が成り立つので, 回折強度パターンは中心対称となり, 正味の情報は $N_x \times N_y/2$ となる. この場合, 再構成する情報量に比べ, 取得可能な情報量が少ないため, 試料像を再構成することはできない. そこで図 2.7(b) に示すように, 回折強度パターンを σ_x , σ_y 倍の細かさでサンプリングした場合を考える. このとき回折強度パターンは $\sigma_x N_x \times \sigma_y N_y$ からなり, 情報量は $\sigma_x N_x \times \sigma_y N_y/2$ となる. このとき, 回折強度パターンの最大散乱角は変化していないため, 実空間に

おけるピクセルサイズは変化しておらず，試料像は $N_x \times N_y$ で表現される．この領域をサポートと呼ぶ．一方，試料全体のピクセル数は回折強度パターンと同じ $\sigma_x N_x \times \sigma_y N_y$ で表されるために，残りの $(\sigma_x \sigma_y - 1)N_x N_y$ pixels は真空領域と考えることができる．取得可能な情報量 $\sigma_x \sigma_y N_x N_y / 2$ がサポート内の情報量 $N_x N_y$ を超えたとき，つまり

$$\sigma_x \sigma_y \leq 2 \quad (2.61)$$

で位相回復の必要条件が満たされる [59]．このように情報量を補う操作をオーバーサンプリングと呼ぶ．また，式 (2.61) を 2次元像再生のオーバーサンプリング条件と， $\sigma_x \sigma_y$ を 2次元のオーバーサンプリング比と呼ぶ．なお，これまでの例では 2次元実数関数について取り扱ったが，複素関数の場合でも，再構成する情報量は 2倍になるが，フリーデル則が成立しないことにより回折強度パターンに含まれる情報量も 2倍となるので，これまでと同様の議論が可能である．2.4.1 項で紹介した Δx を利用して試料の大きさを $a = N_x \Delta x$ ，カメラ長を L ，波長を λ ，検出器のピクセルサイズを p とすると，

$$\sigma_x = \frac{L\lambda}{ap} \quad (2.62)$$

と表わされる．

タイコグラフィにおけるオーバーサンプリング条件は照射領域の重なりが強力な拘束条件として働くことで，式 (2.61) の条件よりも緩やかになる．Edo らの報告によると，タイコグラフィ測定の走査幅を ΔR とするとき， ΔR の逆数で表わされる $\Delta U = 1/\Delta R$ の空間周波数でサンプリングすることで位相回復が可能になる [60]．タイコグラフィ測定では照射領域が重なるように走査するが，後述するオーバーラップ率が 50% の条件でタイコグラフィ測定を行ったとき， $\Delta R = a$ となり，式 (2.62) は

$$\sigma_{pty} = \frac{L\lambda}{2\Delta R p} \quad (2.63)$$

と書き換えることができる．ここで分母に 2 の係数がついているのは，試料だけでなく照射波動場も再構成する必要があるためである．2次元のオーバーサンプリング条件は式 (2.61) と同様に

$$\sigma_{pty,x} \sigma_{pty,y} \leq 2 \quad (2.64)$$

となる．式 (2.64) が満たされていれば，測定光学系として (2.64) を満たしていなくても，計算機上で回折強度パターンを (2.64) を満たすようにピクセルを細かく分割することで，位相回復が可能なが実証されている [61]．このことは長距離のカメラ長を確保できないなどオーバーサンプリング条件を満たすことが難しい測定環境でも，タイコグラフィ測定条件を調整することにより位相回復計算が可能であることを示しており，タイコグラフィの応用先がさらに広げる技術である．

2.4.4 タイコグラフィ走査軌道とオーバーラップ

X線タイコグラフィでは，“照射領域が重なった領域の試料情報は共通である”という拘束条件の元で位相問題を解く．その際，照射領域がどの程度重なっているのか，どのような軌道で X線を照射するか

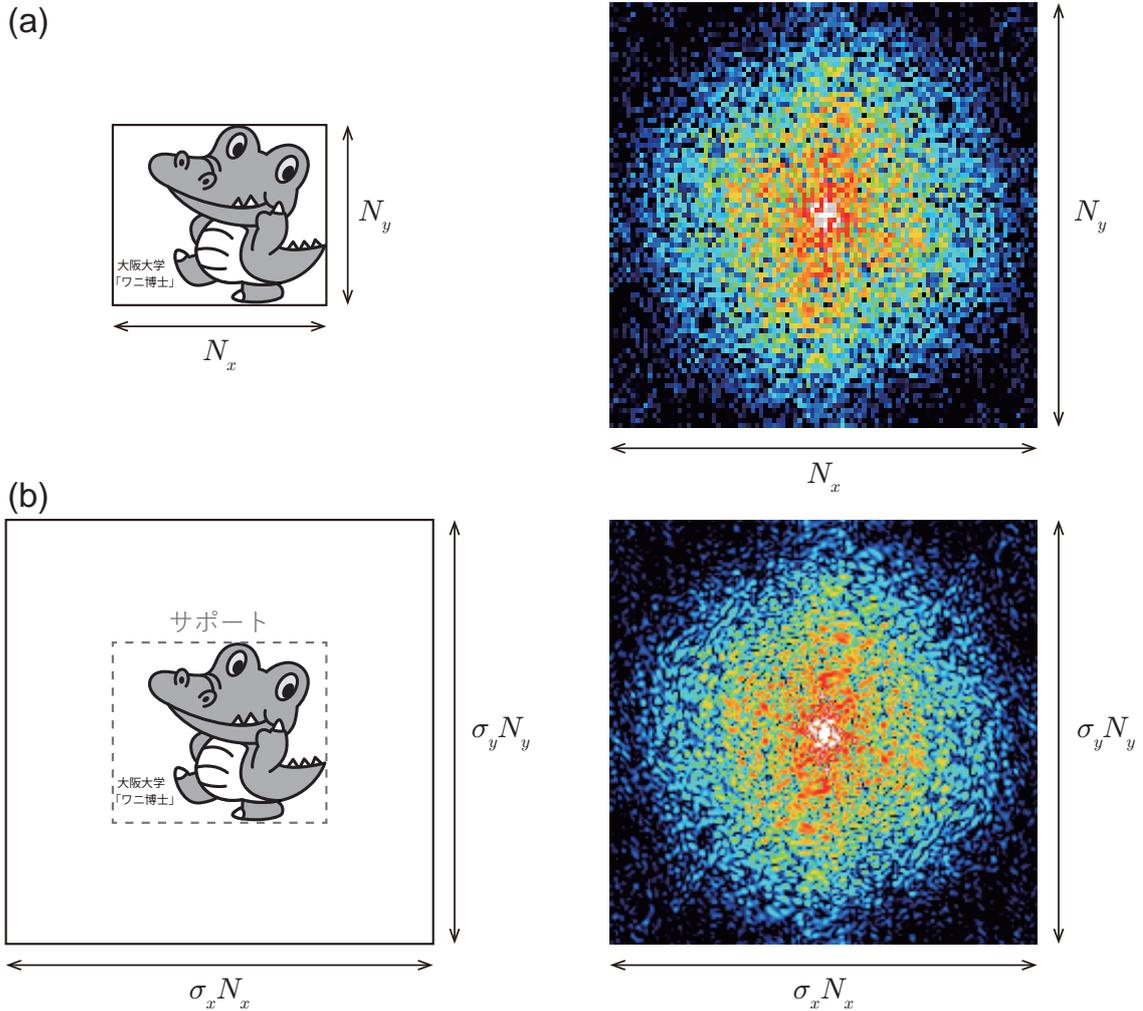


図 2.7 2次元位相物体のオーバーサンプリング条件. (a) オーバーサンプリングしていない場合. 離散化された2次元の位相物体を $N_x \times N_y$ pixels で表現するとき, 回折強度パターンに含まれる情報はフリーデル則から $N_x \times N_y/2$ となる. (b) オーバーサンプリングしている場合. 回折強度パターンを $\sigma_x \times \sigma_y$ 倍細かくサンプリングする(オーバーサンプリング)ことで, 回折強度パターンに含まれる情報は $\sigma_x N_x \times \sigma_y N_y/2$ となる. この情報が再構成する情報量 $N_x N_y$ よりも大きいという条件から2次元のオーバーサンプリング条件 $\sigma_x \sigma_y \leq 2$ が導かれる.

は位相回復の収束性に深く関連している. 照射領域の重なりはオーバーラップ率と呼ばれ,

$$o = 1 - \frac{r}{a} \quad (2.65)$$

と定義されている [62]. ここで, o はオーバーラップ率, r は隣り合う照射位置の中心間距離, a は入射波動場の直径 a である. Bunk らの論文では計算機シミュレーションにおいて o を変化させながら再構成計算を行い, オリジナル画像と再構成像間の規格化誤差を評価している. その結果, 再構成する試料像の像質を保ちつつ必要な照射 X 線量を最小化するためには $o \sim 60\%$ が最適値と結論づけ, これを可視光実験で実証している [62]. しかしながら, 照射波動場として集光 X 線を利用する場合には, この計算機シミュレーションで利用されているピンホール由来の照射波動場とは異なり, サイドローブを持つために a を明

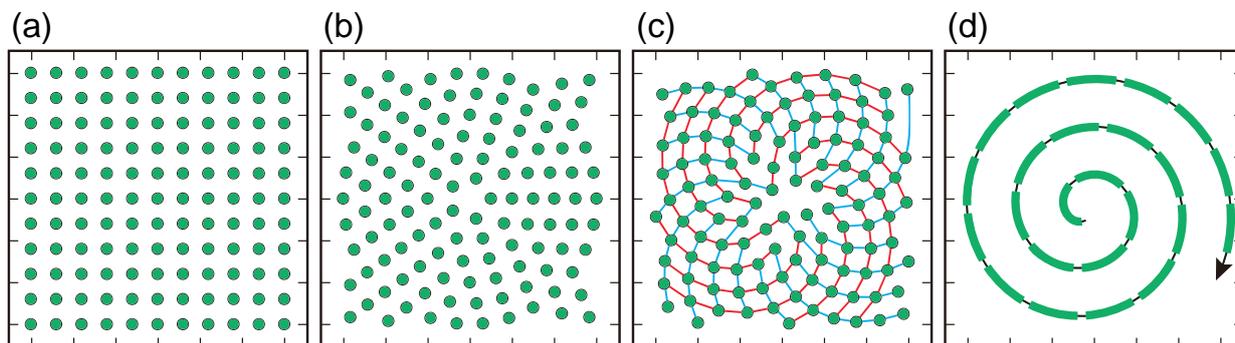


図 2.8 タイコグラフィ測定における主な走査軌道. (a), (b), (c) では照射点数, オーバーラップ率を統一している. (a) 格子状. (b) 同心円状. (c) フェルマー螺旋状. 赤線, 青線がなすフェルマー螺旋の交点を照射点としている. (d) 渦巻き状. 走査軌道が連続していることから試料を一定の速度で走査しながら測定を行う Fly-scan では特に有効とされている.

確に定義できない. このとき, 便宜上, 0 次光の半値全幅 (Full Width at Half Maximum : FWHM) を利用する, もしくは異なる定義による σ を利用している [63]. また, 実際の測定では所望の観察領域, 回折強度パターンに求める S/N 比, 測定に必要な時間などとの兼ね合いも考慮する必要があり, これらの条件との擦り合わせから適宜, 最適値を決定している.

オーバーラップ率に加え, タイコグラフィ測定の走査軌道も位相回復計算の収束性を左右する重要な要素である. 最も基本的な走査軌道は図 2.8(a) に示したような格子状軌道であり, X 線タイコグラフィの実証後 [2, 41] の黎明期においては一般的に用いられてきたが, 周期状のアーティファクトが入りやすいという理由から, 図 2.8(b) に示すような同心円状の走査軌道が提案され [43], 近年では最も広く用いられている [7, 10, 55, 64, 65]. また, タイコグラフィの走査軌道には“並進対称性がないこと”, “オーバーラップ率が全ての照射点で一定であること”が求められ, Huang らはこれらの要件を満たす走査軌道として図 2.8(c) に示すようなフェルマー螺旋を提案している [63]. フェルマー螺旋の一般式は極座標系 (r, θ) において $r^2 = \alpha\theta$ と表され, この一般式の中でひまわりの種を最も効率良く敷き詰められる方程式として解析的に求められた [66]

$$r^2 = c^2 / \phi_0 \cdot \theta \quad (2.66)$$

を利用した. ここで, c は半径に関するスケール因子, ϕ_0 は黄金角と呼ばれる角度で $\phi_0 = (1 + \sqrt{5})/2 \sim 137.508^\circ$ である. 彼らは異なる向きの 2 つの Fermat 螺旋の交点を走査点と設定することで, 同照射領域, 同照射点数においてより高いオーバーラップ率と位相回復計算の高い収束性を実現できるとしており, 特にオーバーラップ率の低い条件やノイズの影響の強い測定データに対して有効であることを計算機シミュレーション, 実験の両面から実証している. フェルマー螺旋が有効に機能する理由としては, 全ての照射位置間の距離のバラつきが小さいこと, 図 2.8(c) の走査軌道から算出したパワースペクトル密度において, 全ての周波数領域にわたって標準偏差が小さいことを挙げている. これは広がったパワースペクトル分布をもつ照射波動場を利用した場合に位相回復計算の収束性が向上するという先行研究 [67, 68] から, 一定の信頼性のある議論だと考えられる.

さらに, 試料を静止状態ではなく一定の速度で走査させながら測定する Fly-scan 測定 [69–72] におい

ては、走査点間の移動時間の観点から軌道が連続的に接続されていることが好ましく、図 2.8(d) に示すような渦巻状の走査軌道も有用であるとされている [73]。この解析では、混合状態再構成アルゴリズムと干渉計から得られる位置情報、さらに Maximum likelihood 再構成 [74] を応用したアルゴリズムを利用することで、照射点毎に異なる掃引方向でも再構成計算を可能としている。

2.5 コンピューター断層撮影法

2.5.1 3次元観察法の分類

試料の3次元像を観察する手法には大きく分けて単粒子解析法 (Single Particle Analysis : SPA) [75–77] とコンピューター断層撮影法 (Computed Tomography : CT) に分類される。単粒子解析法は均一性の担保された多数の試料を異なる角度から投影し、これらの投影像の投影角度を計算機上で推定することにより、試料の3次元平均構造を再構成する。主に電子線や放射線による損傷が問題となりやすいタンパク質などの生体高分子やウイルスなどの3次元観察、破壊測定が前提となるX線自由電子レーザーを利用したCDIによる試料の平均構造の3次元観察などに利用されている [78]。一方、図 2.9 に示されるコンピューター断層撮影法では、同一の試料を異なる角度から連続的に投影し、角度情報と投影像を元に3次元再構成する。試料固有の構造が再構成されることから高分解能での観察が可能であり、照射プローブによる試料損傷が深刻でない場合にはこちらが一般的に利用される。シンクロトロン放射光を利用するX線タイコグラフィでもこちらの手法と組み合わせて3次元観察することが一般的であり、本節でもコンピューター断層撮影法のみを取り扱う。

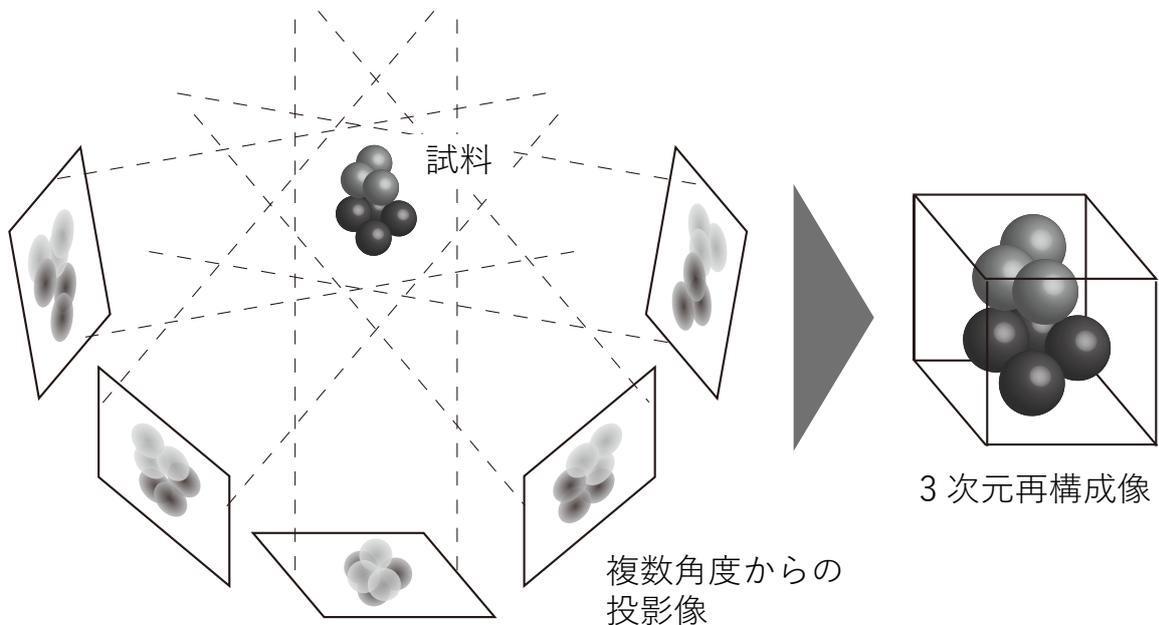


図 2.9 コンピューター断層撮影法の概念図。同一試料を異なる角度から連続的に投影し、角度情報と投影像を元に3次元像を再構成する。

2.5.2 ラドン変換と投影切断面定理

本項ではコンピューター断層撮影法の根幹をなす投影切断面定理について紹介する。図 2.10 のように回転軸 z に垂直な $x-y$ 平面に対して、 θ 傾いた $X-Y$ 座標系を定義したとき、

$$x = X \cos \theta - Y \sin \theta \quad (2.67)$$

$$y = X \sin \theta + Y \cos \theta \quad (2.68)$$

と表される。3次元の原画像を3次元実数関数 $f(x, y, z)$ とし、 Y 軸に沿った経路積分を $p(X, z, \theta)$ と表すとき、

$$p(X, z, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) dY \quad (2.69)$$

となる。この変換をラドン変換と呼ぶ。また、 $f(x, y, z)$ の3次元フーリエ変換 $F(q_x, q_y, q_z)$ は、

$$F(q_x, q_y, q_z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) e^{-i(q_x x + q_y y + q_z z)} dx dy dz \quad (2.70)$$

と表される。 $F(q_x, q_y, q_z)$ を $q_x = \rho \cos \theta$, $q_y = \rho \sin \theta$, $q_z = q_z$ として円柱座標表示に変換すると、

$$F(\rho \cos \theta, \rho \sin \theta, q_z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) e^{-i[\rho(x \cos \theta + y \sin \theta) + q_z z]} dx dy dz \quad (2.71)$$

となる。ここで式 (2.67), (2.68) から、

$$X = x \cos \theta + y \sin \theta \quad (2.72)$$

$$dx dy dz = \det \begin{pmatrix} \frac{\partial x}{\partial X} & \frac{\partial x}{\partial Y} & \frac{\partial x}{\partial z} \\ \frac{\partial y}{\partial X} & \frac{\partial y}{\partial Y} & \frac{\partial y}{\partial z} \\ \frac{\partial z}{\partial X} & \frac{\partial z}{\partial Y} & \frac{\partial z}{\partial z} \end{pmatrix} dX dY dz = dX dY dz \quad (2.73)$$

となるので、

$$\begin{aligned} F(\rho \cos \theta, \rho \sin \theta, q_z) &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) e^{-i(\rho X + q_z z)} dX dY dz \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \left[\int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) dY \right] e^{-i(\rho X + q_z z)} dX dz \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} p(X, z, \theta) e^{-i(\rho X + q_z z)} dX dz \end{aligned} \quad (2.74)$$

と変換することができる。この式は、後出する図 2.12 で示されるように $p(X, z, \theta)$ の2次元フーリエ変換は $f(x, y, z)$ の3次元フーリエ変換の θ 方向に沿った平面上の複素振幅に等しくなることを示している。この関係を投影切断面定理と呼ぶ。これらのことから $p(X, z, \theta)$ を $0 \leq \theta \leq \pi$ に対して得ることで $F(q_x, q_y, q_z)$ が完全に求まり、これを逆フーリエ変換することで3次元像を再構成することができる。この再構成法はフーリエ変換法と呼ばれる。実際の計算機上では逆空間において円柱座標系から直交座標系への変換があるため、アーティファクトが発生しやすいとされている。

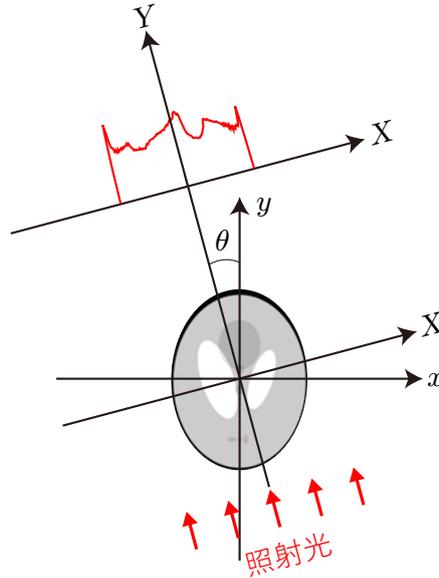


図 2.10 ラドン変換の模式図. 回転軸に垂直な $x - y$ 直交座標系に対して θ 方向回転させた座標系を $X - Y$ と定義し, Y 軸方向の投影をとる操作をラドン変換と呼ぶ.

2.5.3 フィルター補正逆投影法

$F(q_x, q_y, q_z)$ の 3 次元逆フーリエ変換を $q_x = \rho \cos \theta$, $q_y = \rho \sin \theta$, $q_z = q_z$ として円柱座標表示に変換すると

$$\begin{aligned} f(x, y, z) &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} F(q_x, q_y, q_z) e^{i(q_x x + q_y y + q_z z)} dq_x dq_y dq_z \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} F(\rho \cos \theta, \rho \sin \theta, q_z) e^{i[\rho(x \cos \theta + y \sin \theta) + q_z z]} dq_x dq_y dq_z \end{aligned} \quad (2.75)$$

ここで

$$dq_x dq_y dq_z = \det \begin{pmatrix} \frac{\partial q_x}{\partial \rho} & \frac{\partial q_x}{\partial \theta} & \frac{\partial q_x}{\partial q_z} \\ \frac{\partial q_y}{\partial \rho} & \frac{\partial q_y}{\partial \theta} & \frac{\partial q_y}{\partial q_z} \\ \frac{\partial q_z}{\partial \rho} & \frac{\partial q_z}{\partial \theta} & \frac{\partial q_z}{\partial q_z} \end{pmatrix} d\rho d\theta dq_z = \rho d\rho d\theta dq_z \quad (2.76)$$

となるので

$$f(x, y, z) = \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F(\rho \cos \theta, \rho \sin \theta, q_z) e^{i(\rho X + q_z z)} \rho d\rho d\theta dq_z \quad (2.77)$$

と変換される．ここで， $f(x, y, z)$ は実数関数なので，フリーデル則より $|F(-\mathbf{g})| = |F(\mathbf{g})|$ かつ $\arg[F(-\mathbf{g})] = -\arg[F(\mathbf{g})]$ となり，式 (2.77) の ρ を $\rho \rightarrow |\rho|$ に，積分区間を $-\infty \sim \infty$ に変換すると，

$$\begin{aligned} f(x, y, z) &= \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\rho, q_z, \theta) |\rho| e^{i(\rho X + q_z z)} d\rho d\theta dq_z \\ &= \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} \left[\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} G(\rho, q_z, \theta) |\rho| e^{i(\rho X + q_z z)} d\rho dq_z \right] d\theta \\ &= \frac{1}{2} \int_0^{2\pi} q(X, z, \theta) d\theta \\ &= \int_0^{\pi} q(X, z, \theta) d\theta \end{aligned} \quad (2.78)$$

ここで， $G(\rho, q_z, \theta) = F(\rho \cos \theta, \rho \sin \theta, q_z)$ ， $q(X, z, \theta)$ は $G(\rho, q_z, \theta)$ を $|\rho|$ でフィルタリングした後に 2次元逆フーリエ変換した 2次元像で，

$$q(X, z, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} G(\rho, q_z, \theta) |\rho| e^{i(\rho X + q_z z)} d\rho dq_z \quad (2.79)$$

と表される．この式からある θ 方向からの 2次元投影像 $p(X, z, \theta)$ の 2次元フーリエ変換 $G(\rho, q_z, \theta)$ に対し， $|\rho|$ でフィルタリングし，2次元逆フーリエ変換した $q(X, z, \theta)$ を $0 \leq \theta \leq \pi$ で加えていくことで 3次元像の再構成が可能であるとわかる．この手法はフィルター逆補正投影法 (Filtered Back Projection : FBP) と呼ばれる．前項で紹介したフーリエ変換法と同様に，円柱座標系から直交座標系への座標変換が必要となるが，実空間での変換となるため，フーリエ変換法に比べアーティファクトが発生しにくいとされている．

式 (2.79) のフィルターは図 2.11(a) で示されるように q_x, q_y に関して無限大まで続く関数として定義している．しかしながらコンピューター上では離散的な原画像を取り扱うために，図 2.11(b) で示すように逆空間において考慮できうる最大の空間周波数 $q_{x,\max}, q_{y,\max}$ が存在し，有限の空間周波数の範囲のみでしか考慮することができない．このように最大空間周波数 $q_{x,\max}, q_{y,\max}$ で打ち切ったフィルター関数 $H(q_x, q_y)$ は

$$H(q_x, q_y) = \sqrt{q_x^2 + q_y^2} \operatorname{rect} \left(\frac{q_x}{2q_{x,\max}} \right) \operatorname{rect} \left(\frac{q_y}{2q_{y,\max}} \right) \quad (2.80)$$

と表され，Ramachandran–Lakshminarayanan フィルター (Ram–Lak フィルター) と呼ばれる．Ram–Lak フィルターは高空間周波数を強調する形となっているため，画像中のノイズを強調する傾向が見られる．この影響を抑えるために高空間周波数領域での倍率を調整したフィルターがいくつも提案されており，その代表の 1 つが Shepp–Logan フィルターである．このフィルター関数は図 2.11(c) に示されるように Ram–Lak フィルターに sinc 関数を掛け算した形となっており，

$$H(q_x, q_y) = \sqrt{q_x^2 + q_y^2} \operatorname{rect} \left(\frac{q_x}{2q_{x,\max}} \right) \operatorname{rect} \left(\frac{q_y}{2q_{y,\max}} \right) \operatorname{sinc} \left(\frac{q_x}{2q_{x,\max}} \right) \operatorname{sinc} \left(\frac{q_y}{2q_{y,\max}} \right) \quad (2.81)$$

と表わされる．これは実空間では rect 関数と畳込みを行うことと等価であり，実空間で平均値フィルタリングしていることに相当する．このように，計算機上では完全に正しいフィルター関数が存在しないので，観測者が見たい原画像の構造に合わせて適切なフィルター関数を選択しているのが実情である．

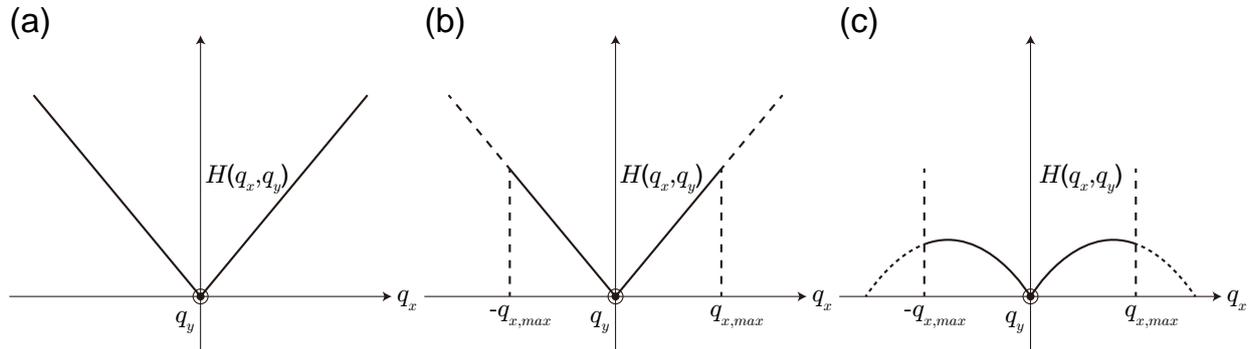


図 2.11 フィルター補正逆投影法におけるフィルター関数. (a) 理想的なフィルター関数. (b) Ram-Lak フィルター. (c) Shepp-Logan フィルター.

2.5.4 逐次近似法

これまで述べてきたフーリエ変換法やフィルター補正逆投影法などの“解析的手法”では 1 回の計算で 3 次元再構成像を求めるのに対し，反復計算によって再構成像を求める手法を逐次近似法 (Iterative Reconstruction : IR) と呼ぶ. 逐次近似法では初期画像を仮定し，計算で算出した投影 (順投影) と実測投影との整合性を反復的に高めていく. 逐次近似法は多くの計算時間を必要とするが，測定系の統計雑音，装置の分解能，被写体の滑らかさなどの事前情報を計算上に組み込める，また，測定データが不完全でも，解析的手法に比べアーティファクトが発生しにくい点に強みを持ち，コンピューターの性能向上に伴いその重要性が増してきている. 逐次近似法の代表的なアルゴリズムとしては，ART 法 (Algebraic Reconstruction Technique) [79]，SIRT 法 (Simultaneous Reconstruction Technique) [80] の 2 つが挙げられる. これらの違いは，“投影と逆投影の差分の算出を 1 つの角度毎に行い像を更新するか”，“順投影と実測投影の差分の逆投影を全ての角度で算出してから像を更新するか”にあり，両者は本質的に大きく異なるものではないため，ここでは ART のみを紹介する. ART において順投影と実測投影の差分のフィードバックは，加算型，乗算型それぞれ

$$f'(x, y, z) = f(x, y, z) + \frac{\alpha}{2\pi} \left\{ p(X, z, \theta) - \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) dY \right\} \quad (2.82)$$

$$f'(x, y, z) = f(x, y, z) \times \frac{\alpha}{2\pi} \left\{ \frac{p(X, z, \theta)}{\int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) dY} \right\} \quad (2.83)$$

と表される. ここで， α は収束速度を調整するパラメーターを表す. なお，参照する角度は $\theta=0^\circ$ から順に選択すると，逆投影する際に画像中で投影が多く通過する密な部分と疎な部分が生じ，画像に偏りが生じるために再構成がうまくされない. そこで 1 回前の更新で利用した角度と差がつくように再構成を行っていく. 一般的には SIRT に比べ ART が，また加算型に比べ乗算型の方が画像再構成の収束が早いとされているが，その分反復計算の発散も起こりやすいため，適切な α を選択して計算することが求められる.

2.5.5 Crowther limit

これまで紹介してきた3次元再構成では、例えば式(2.78)のように角度を変数とした積分の形で表現されてきたが、実験的にどの程度の細かさの角度間隔で測定しなければならないかは試料体積と空間分解能に依存し、この条件は“Crowther limit”と呼ばれる[81]。これまで紹介してきた3次元再構成法では、全ての角度で試料領域が等しいこと、各投影像の両端に一定値とみなせる領域が必要なことなどから円柱状の試料が準備されることが多いため、ここでは円柱状試料の必要な角度数について考える。

直径 D の厚みをもつ3次元の円柱状原画像 $f(x, y, z)$ を空間分解能 d で3次元再構成する際に必要なサンプリング角度数 N_θ について考える。ここで、原画像のボクセル数を $N_x \times N_y \times N_z$ 、ボクセルサイズ Δt として定義する。ある角度 θ における投影像を $p(X, z, \theta)$ とするとき、投影像を $f(x, y, z)$ の Y 軸に沿った線積分で表現可能、つまり

$$p(X, z, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) dY \quad (2.84)$$

と表現できる場合、2.5.2項で紹介した投影切断面定理により、 $p(X, z, \theta)$ の2次元フーリエ変換は図2.12中央に示すように、 θ 方向に沿ったボクセル数 $N_t \times 1 \times N_t$ の2次元複素関数で表現可能である。このとき、フーリエ空間における θ 方向の最大空間周波数は標本化定理により $q_t = 1/2\Delta t$ となる。よって、この2次元関数の1ボクセル単位の空間周波数 Δq_t は、

$$\Delta q_t = \frac{q_t}{N_t/2} = \frac{2}{N_t} \frac{1}{2\Delta t} = \frac{1}{N_t \Delta t} \quad (2.85)$$

と表される。円柱状の3次元の原画像を完全に再構成するためには、フーリエ空間において直径 N_t 、高さ N_t の円柱領域全てのボクセルの情報の取得が必要であり、これを実現するためには $0 \leq \theta \leq \pi$ において様々な角度において $p(X, z, \theta)$ を取得すれば良い。ここで、最も細かな角度サンプリングが必要となるのは図2.12右からも分かるように半径 q_t の円周上である。1つ投影像から+方向、-方向の周波数成分が取得されることから円周 πq_t の半円を Δq_t 間隔でサンプリングすると考えると、必要なサンプリング角度数 N_θ は

$$N_\theta = \frac{\pi q_t}{\Delta q_t} = \frac{\pi}{2} N_t \quad (2.86)$$

となる。ここで、達成可能な分解能 d は最大空間周波数の逆数、つまり $d = 1/q_t = 2\Delta t$ となるので、円柱試料の最大厚さ D は $D = N_t \Delta t$ と表され、式(2.86)は

$$N_\theta = \frac{\pi D}{d} \quad (2.87)$$

と書き換えることが可能であり、トモグラフィ再構成において必要なサンプリング角度数を規定する指標として広く用いられている。

2.5.6 位相オフセット・Ramp 関数状の位相分布の除去

タイコグラフィ再構成で得られる位相像には一定のオフセット、もしくは Ramp 関数状の位相分布が付加されており、3次元再構成の前に各角度の投影像からこれらを除去する必要がある。これは除去前、

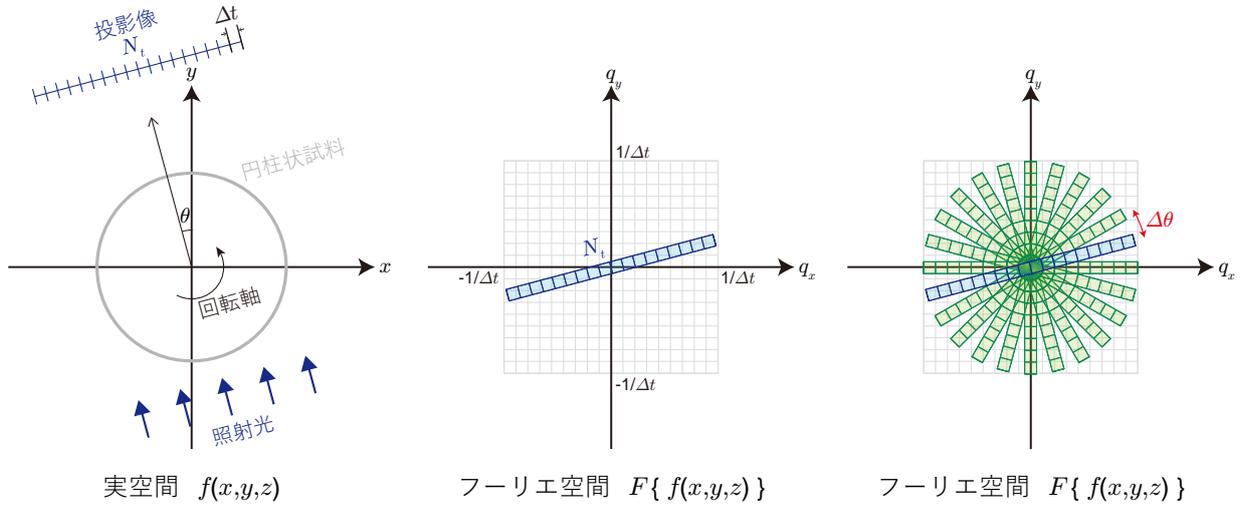


図 2.12 3次元再構成における Crowther limit. 角度 θ 方向の試料投影像のフーリエ変換は投影切断面定理よりフーリエ空間における θ 方向の2次元複素振幅に対応している. 様々な角度から投影像を取得することで, フーリエ空間において円柱領域の全てのボクセルの情報し, 3次元像の再構成を行う. 全てのボクセルを隙間なく埋めるための角度数は円柱の円周部から $\pi D/d$ と求まり, これを Crowther limit と呼ぶ [81].

除去後の再構成複素透過関数をそれぞれ $O(x, y, \theta)$, $R(x, y, \theta)$ としたとき

$$O(x, y, \theta) = R(x, y, \theta) \exp [i(a_\theta + b_\theta x + c_\theta y)] \quad (2.88)$$

と表わされる. ここで, a_θ , b_θ , c_θ は実数係数である. a_θ の発生は位相回復計算に本質的に内在する問題であり, 測定した回折強度パターンには試料全体の位相シフト量に関する情報が含まれていないことに起因する. b_θ , c_θ はタイコグラフィ再構成計算に利用する回折強度パターンの中心が明視野の強度中心と一致していないときに生じる. これは, フーリエ変換の性質の1つである

$$\mathcal{F} [f(\mathbf{r})e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{r}}] = F(\mathbf{q} - \mathbf{q}_0) \quad (2.89)$$

から簡単に理解できる. また, タイコグラフィ再構成計算では試料関数と照射関数を同時に再構成するが, 試料関数が (x_n, y_n) 並進移動した場合の背面波動場 $\psi_n(x, y)$ は

$$\psi_n(x, y) = O(x - x_n, y - y_n)P(x, y) \quad (2.90)$$

と表される. 仮に $O(x, y)$, $P(x, y)$ に Ramp 関数上の位相分布が加わった

$$O'(x, y) = O(x, y) \exp [-i2\pi(bx + cy)] \quad (2.91)$$

$$P'(x, y) = P(x, y) \exp [i2\pi(bx + cy)] \quad (2.92)$$

を考えると

$$\psi'_n(x, y) = O'(x - x_n, y - y_n)P'(x, y) = \psi_n(x, y) \exp [i2\pi(bx_n + cy_n)] \quad (2.93)$$

と $\psi_n(x, y)$ に定数の位相オフセットがかかった形となるため, 測定される回折強度パターンは等しくなる. つまり, 照射関数, 試料関数を同時に再構成するタイコグラフィ再構成計算では $O'(x, y)$, $P'(x, y)$

も解の1つとして存在することを意味する。実際の位相回復計算では、初期照射関数として想定される照射関数を入力するため、このような位相分布がのること可能性はそこまで高くはないとされている。

$a_\theta, b_\theta, c_\theta$ の位相オフセットを取り除くために、位相シフト量が既知である領域が利用される。一般的なトモグラフィ測定では、全ての角度で“回転軸垂直方向において観察視野が観察試料に比べ広くなければならない”という要請があるため、試料外に真空領域が設けられている場合が多い。 $M \times N$ pixels で切り取った真空領域に $\exp\{i(a_\theta + b_\theta x + c_\theta y)\}$ の位相オフセットがかかっている場合、この離散フーリエ変換は

$$DFT[\exp\{i(a_\theta + b_\theta x + c_\theta y)\}] = \exp(ia_\theta)\delta\left(q_x - \frac{b_\theta M}{2\pi}, q_y - \frac{c_\theta N}{2\pi}\right) \quad (2.94)$$

と表わされる。ここで、 $DFT[\cdot]$ は離散フーリエ変換を、 δ は Dirac のデルタ関数を表す。この式から b_θ, c_θ は DFT した 2 次元関数の最も強度の強い点の座標から、 a_θ はその座標の位相の値から見積もることが可能である。より詳しい解析方法については Manuel らの論文 [82] を参照にされたい。

2.5.7 位相アンラップ

再構成される複素透過関数の位相分布は $(-\pi, \pi]$ の主値の範囲に折り畳まれており、位相シフト量が 2π を超えるような試料の観察では、位相アンラップが必要となる。一般的に 3 次元 X 線タイコグラフィで観察する試料では円柱状で、視野の中心に向かって連続的に位相シフト量が増加している場合が多く、位相が急激に変化する点が存在しない場合は比較的容易に処理することができる。再構成した $M \times N$ の位相像の i 行目、 j 列目の値を $\phi(i, j)$ とするとき、以下のような手順となる。

- (1) ある i 行目の隣り合うピクセル同士の位相の差分 $\Delta\phi_{i,j} = \phi(i, j+1) - \phi(i, j)$ を算出する。
- (2) $\Delta\phi_{i,m} > \pi$ の場合、 i 列目の $j \leq m+1$ のピクセルを $\phi(i, j) = \phi(i, j) - 2\pi$ とする。
- (3) $\Delta\phi_{i,n} < \pi$ の場合、 i 列目の $j \leq n+1$ のピクセルを $\phi(i, j) = \phi(i, j) + 2\pi$ とする。
- (4) $j = N - 1$ まで (1)-(3) の操作を繰り返す。
- (5) $i = M$ まで (1)-(4) の操作を繰り返す。
- (6) (1)-(5) の操作を i, j を入れ替えて行う。

図 2.13(a) に $(0, 5\pi]$ の主値の範囲をもつ Phantom 画像を示しており、画像の中心に近づくほど大きな位相シフト量を持っている。図 2.13(b) は (a) を $(-\pi, \pi]$ に折り畳んだ像を、(c) にアンラップ処理を施した像を示している。このように急激な位相変化がない投影像のアンラップ処理は比較的容易に行えるが、“Phase residues” と呼ばれる特異点が存在する場合には複雑な処理が必要となり、より高度なアルゴリズムの研究が進められている [83, 84]。

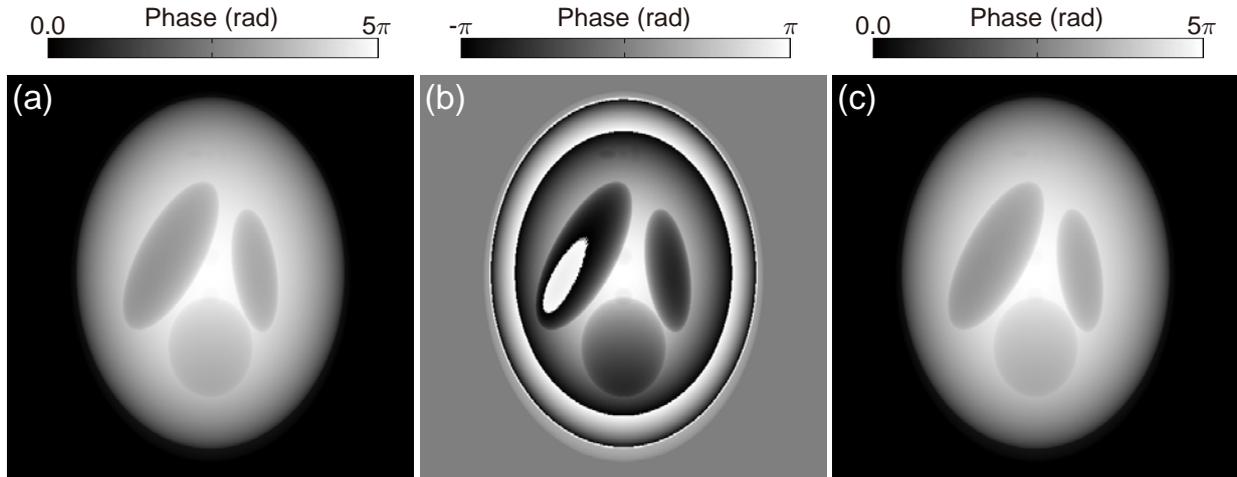


図 2.13 Phantom 画像のアンラップ処理. (a) 主値 $(0, 5\pi]$ の Phantom 画像. (b) $(-\pi, \pi]$ に折り畳まれた Phantom 画像. (c) アンラップ処理後の Phantom 画像.

2.5.8 位置ズレの補正

フィルター補正逆投影法や逐次近似法で 3 次元再構成するとき、垂直方向では観察視野が全ての角度間で一致していることが、水平方向では回転軸と観察視野の中心が揃っていることが前提となっている。しかし実際の測定では完全に揃えることが難しいため、測定後に計算機上で画像補正する必要がある。トモグラフィ測定では一般的に円柱試料を想定しているため、水平方向の補正では重心計算を行い、試料中心を算出することで補正が可能である。一方、垂直方向では重心計算が利用できないため、近接の角度間で相関をとる、または垂直方向の Mass fluctuation を利用して位置補正を行う。ここでは、より精度が高く広く使われている Mass fluctuation を利用した位置補正を紹介する。実験で得られるデータは様々な角度からの 2 次元投影像となり、この 2 次元投影像の一部の領域の水平方向に積分した 1 次元関数は

$$M_\theta(y) = \int \phi(x, y, \theta) dx \quad (2.95)$$

と表される。ここで、 $\phi(x, y, \theta)$ は角度 θ における 2 次元投影像である。位置合わせが正しく行えている場合には $M_\theta(y)$ は全ての角度で等しくなるため、

$$E = \sum_{y, \theta} \left[M_\theta(y - \Delta y_\theta^{(k+1)}) - \langle M_\theta(y - \Delta y_\theta^{(k)}) \rangle_\theta \right]^2 \quad (2.96)$$

で定義されるエラー値が最小になるように $\Delta y_\theta^{(k+1)}$ を反復的に更新していくことで、位置合わせを行うことが可能である。ここで、 $\langle M_\theta(y - \Delta y_\theta^{(k)}) \rangle_\theta$ は反復回数 k 回目における M_θ の角度平均である。実際の計算では $M_\theta(y)$ をルジャンドル多項式でフィッティングし、0 次、1 次の項を除去することで反復計算がより安定して進行する。図 2.14 は Mass fluctuation を利用した位置補正の計算機シミュレーションの結果を示している。図 2.14 左に示すような $256 \times 256 \times 256$ の 3 次元 Phantom 画像の様々な角度から投影した 2 次元像に対し、 y 方向に $[-20, 20]$ pixels の変動をランダムに付与して x 方向に積分した。これ

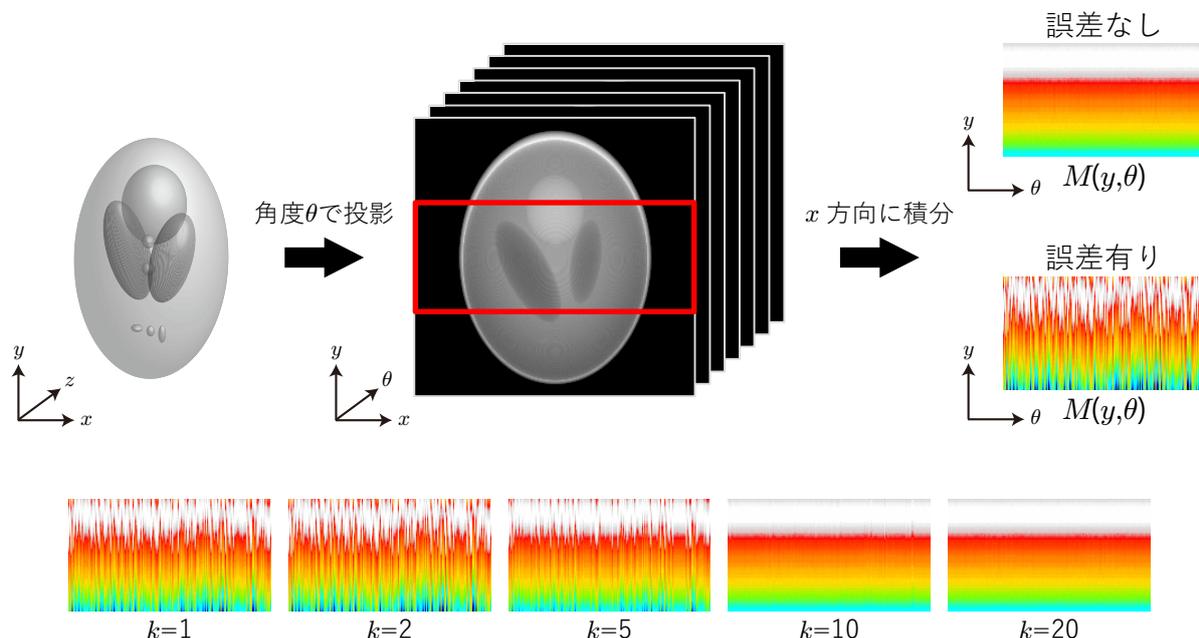


図 2.14 Mass fluctuation を利用した位置合わせ補正. 各角度で取得した 2 次元位相分布の一部の領域を x 方向に積分した $M(y, \theta)$ は全ての角度で一致することを利用して反復的に誤差を減らしていき, 角度間の位置合わせ補正を行う.

を角度方向に並べた 2 次元画像を $M(y, \theta)$ とする. 線形探索による最小値の探索で決定した Δy_{θ} を利用して位置合わせ補正をした結果を図 2.14 下部に示している. 反復回数を重ねるにつれて $M(y, \theta)$ 変動が小さくなり, 20 回では完璧に補正ができていることが確認できる. これらの位置合わせ法は円柱構造体や試料が水平方向に孤立している一般的なトモグラフィ再構成に有効な手法であり, 例えば試料内部の一部分を 3 次元観察するインテリア CT [85, 86] ではこの手法は適用できず, フィルター逆投影法で利用するサイノグラム (2 次元投影像を角度ごとに並べた 3 次元画像. 2 次元では図 2.14 の $M(y, \theta)$ に相当.) と再構成 3 次元像から算出されるサイノグラム間の誤差を反復的に減少させることで位置合わせを行うアルゴリズムなどが利用される [87].

2.6 3次元タイコグラフィの先行研究

X 線タイコグラフィとコンピューター断層撮影法を組み合わせた 3 次元タイコグラフィ (Ptychographic X-ray Computed Tomography : PXCT) は 2010 年に実証実験が行われ [7], 現在に至るまでナノポーラスガラス [9], ケイ酸カルシウム水和物 [88], クライオ環境下における生物試料 [11, 12], 加圧環境下におけるマイクロ複合材料 [89] の観察など実証実験に留まらない数多くの研究成果が報告されている. PSI のグループによる最新の報告 [8] では, およそ 22 時間の測定時間で直径 $9.8 \mu\text{m}$ に切り出した Intel 社製 CPU を全周期で 29.2 nm の空間分解能で 3 次元観察することに成功しており, これらの値は被写界深度の限界に達しつつある. 今後, 被写界深度を超える試料の 3 次元観察を行うためにはマルチスライス位相回復計算法を適用するだけでなく, タイコグラフィ測定における 2 次元走査範囲を広げる, またサン

プリング角度数が増加することによる測定の長時間化に対応しなければならない。そこで、測定装置の高度化 [90-93] や Fly-scan 測定 [69-72] を導入することで露光以外の時間 (オーバーヘッド) を削減し、測定時間の短縮が図られている。

第 3 章

ピクセルアレイ検出器・部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定の高速化

3.1 緒言

マルチスライス位相回復計算を利用した X 線タイコグラフィによって、被写界深度を超える厚さの試料であっても空間分解能を損なうことなく観察することが可能になった。マルチスライス X 線タイコグラフィとコンピューター断層撮影法を組み合わせることで、被写界深度を超えた厚さの試料の 3 次元観察が可能になるが、3 次元再構成に必要な角度数は空間分解能に反比例、また試料の直径に比例するため、これの実現には 1 方向のタイコグラフィ測定の高速化が必要となる。タイコグラフィにおける測定時間は検出器の性能、入射 X 線の光子密度など様々な要素に依存しており、本章では、高フォトンカウントレートのピクセルアレイ検出器の導入、部分コヒーレント光の利用による高光子密度の X 線照射によりタイコグラフィ測定の高速化を実現した結果について報告する。

3.2 ピクセルアレイ検出器を利用したタイコグラフィ測定の高速化

3.2.1 ピクセルアレイ検出器

これまでの X 線タイコグラフィ測定では一般的に CCD 検出器が利用されてきたが、タイコグラフィ測定の高速化を実現するために記録速度、ダイナミックレンジ、検出感度の優れたピクセルアレイ検出器が必要となる。CCD 検出器は直接撮像型と間接撮像型に大別することができ、直接撮像型では CCD 素子に直接入射した X 線を電荷に変換、蓄積後、1 次元の列ごとに電荷転送を行い、電荷量を X 線の光子数に換算して信号として出力する。1 光子の微弱光の測定が可能であるが、1 つの CCD 素子で蓄積可能な電荷量の制限から 1 度の露光で計数できる X 線光子数は数 100 photons/pixel 程度であり、高強度の X 線の測定は難しい。また、暗電流ノイズや電荷転送などによる読み出しノイズが発生するため、必要以上に長い露光時間を設定、また複数枚の測定データを積算しても限界値以上のダイナミックレンジを得ること

はできない。間接撮像型では X 線を蛍光面で可視光に変換し、可視光光学系を介して CCD 素子で測定を行う。X 線を可視光に変換することにより像の拡大、縮小の取り扱いが直接撮像型に比べ容易、また放射線損傷に強く高強度の X 線も測定可能であるが、高い感度の実現が難しいとされている。また、直接撮像型と同様に暗電流ノイズや読み出しノイズが発生する。ピクセルアレイ検出器は X 線受光センサーと CMOS などの半導体プロセスにより複数回路を 1 つにまとめた特定用途向け集積回路 (Application Specific Integrated Circuit : ASIC) を一体化し、各ピクセルに独立したアナログ・デジタル混合回路計を搭載している。読み出し ASIC には、電化有感型前置増幅器、波型増幅器、シングルレベルコンパレータおよびカウンターが内蔵されており、X 線のエネルギーに比例する波型増幅器の出力波高値をコンパレータを用いて波弁別することで一定エネルギー以上の X 線の情報のみを X 線光子数としてカウンターに積算して計数する。これにより CCD 検出器では避けられなかった読み出しノイズや暗電流ノイズの影響を完全に排除することができ、露光を何度も繰り返すことで原理的には ∞ のダイナミックレンジが実現可能である。また、特に回折光測定実験などで問題になる試料からの蛍光 X 線などの低エネルギーバックグラウンドの除去も可能である。さらに、電荷転送を伴わないため読み出し時間も CCD 検出器に比べ速い。しかしながら、高い時間分解能を有するピクセルアレイ検出器でも複数の光子が非常に短い時間間隔で連続して入射した場合には、それらを異なる光子として認識できないことにより光子の計測漏れが生じ、線形応答性が悪化する。連続した 2 個の光子が入射した際に別々のパルスとして出力できる X 線光子の到着時間の最小時間差を不感時間と呼び、不感時間は検出器の性能だけではなく、入射 X 線のパルス間隔、シンクロトロン放射光を用いる場合には、電子バンチ構造にも依存している [94]。実測される観測量と入射強度の関係は以下の式で表現される [95]。

$$N_{obs} = N_0 \exp(-N_0\tau) \quad (3.1)$$

ここで、 N_0 、 N_{obs} はそれぞれピクセルに入射する単位時間あたりの光子数、カウンター上で出力される光子数を、 τ は不感時間を表す。数え落とした光子の割合が全体の 10 % 以下程度であれば、このモデル曲線を元に補正が可能であり、我々が新たに導入したピクセルアレイ検出器 EIGER 1M にもこのような機能が搭載されている。

3.2.2 タイコグラフィ測定光学系

図 3.1 に SPring-8 BL29XUL で新しく開発したタイコグラフィ測定光学系を示す。図 3.1(a) は 4 象限スリットチャンバーであり、EH1 に配置されている。チャンバー内にある鏡面研磨された 4 つ Si スリットを調整することで、アンジュレーターから放射される X 線の一部を切り出し、仮想光源を形成する。図 3.1(b) は EH3 に設置したタイコグラフィ測定装置である。K-B ミラーを設置・集光調整する“ミラーユニット”，測定試料を設置・走査する“試料チャンバー”，試料からの散乱光を測定する“ピクセルアレイ検出器”で構成されており、光源－ミラーユニット間、試料チャンバー－ピクセルアレイ検出器間を真空引きすることで、空気から散乱を抑制している。ミラーユニット、試料チャンバーは地面からの振動、熱の影響が同程度になるよう、同一定盤上に設置している。図 3.1(c) は試料チャンバー内部を示している。K-B ミラーからの寄生散乱を取り除くため、Si 部の厚さ 200 μm 、開口 100 \times 100 μm^2 の TEM 観察用グリッドの Si_3N_4 部を除去したものを空間フィルターとして試料前面に 2 つ配置している [96]。図

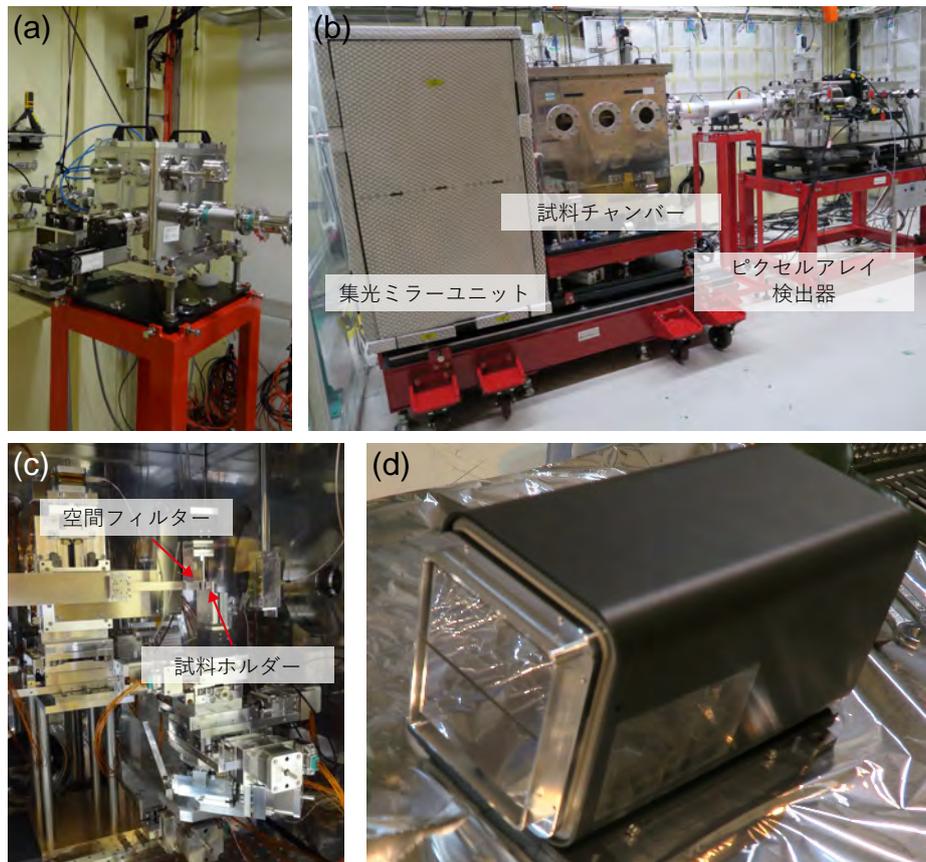


図 3.1 X 線タイコグラフィ測定光学系. (a)4 象限スリットチャンバー. 仮想光源サイズの調整のために利用される. (b) タイコグラフィ測定装置. K-B ミラーを設置・集光調整する“ミラーユニット”, 測定試料を設置・走査する“試料チャンバー”, 試料からの散乱光を測定する“ピクセルアレイ検出器”からなり, 光源-ミラーユニット間, 試料チャンバー-ピクセルアレイ検出器間を真空引きすることで, 空気から散乱を低減している. (c) 試料チャンバー内. 試料前面に 2 枚の空間フィルターを配置することでミラー由来の寄生散乱を取り除いている [96]. (d) ピクセルアレイ検出器 (Dectris 社製 EIGER 1M). 主な仕様は表 3.1 に示している.

3.1(d) は新たに導入したピクセルアレイ検出器 EIGER 1M (Dectris 社製) を示しており, 主な性能は表 3.1 にまとめている.

3.2.3 EIGER の線形応答性評価

新たに導入したピクセルアレイ検出器 EIGER は仕様書上では 5×10^8 photons/s/mm² = 2.8×10^6 photons/s/pixel の最大カウントレートを有しているが 3.2.1 項で紹介したように放射光の電子バンチモードにより光子を数え落とす確率が変化し, 検出器の線形応答性に影響を及ぼす. そこで, 異なる 3 つの電子バンチモードにおいて, K-B ミラー直前に厚さの異なる Al 箔を挿入しながら明視野光を測定することで, 入射光強度と検出器上の表示される値の関係性について調査した. X 線エネルギーは 6.5 keV とし, 測定は Al 箔の厚さ 18 μ m, 36 μ m, 54 μ m, 72 μ m, 90 μ m, 108 μ m, 126 μ m, 144 μ m, 162 μ m,

表 3.1 EIGER 1M 仕様

検出器モジュール数	1 × 2
有効検出面積 (mm ²)	77.2 × 79.9
画素サイズ (μm ²)	75 × 75
有効画素数	1030 × 1065
最大フレームレート (Hz)	3000
読み出し時間 (μs)	~ 4 μs
対応エネルギー (keV)	2.7 - 18
最大カウントレート (photons/s/mm ²)	5 × 10 ⁸

198 μm, 270 μm, Al 箔なしの計 12 回行った。また、電子バンチモードは図 3.2 に示すように蓄積リング全周において等間隔な 203 個のバンチに電子が配置されている A モード、全周を 7 等分した 1/7 には連続的に電子が入り、残りの部分は等間隔 5 ケ所に電子が配置されている D モード、全周を 14 等分した 1/14 には連続的に電子が入り、残りの部分は等間隔 12 ケ所に電子が配置されている F モードの計 3 モードを利用した。SPring-8 では期間毎に 9 種の電子バンチで運転されており、HP 上でそれぞれのビームタイムがどのバンチモードで運転されているか確認することができる。図 3.3 に各モードにおいて、横軸に挿入した Al 箔の透過率、縦軸に明視野のある 1 ピクセルで 1 秒あたりに測定した光子数をとったグラフを示している。どのモードに関しても数え落とし補正により線形応答性が改善されている。また、モードにより数え落としが生じる最大光子数に違いが見られ、A モードでは 1200000 photons/pixel/s、D モードでは 150000 photons/pixel/s、F モードでは 200000 photons/pixel/s 程度まで線形応答性が保障されていた。以上のように、EIGER 1M についても数え落としが生じる入射 X 線の最大光子数にバンチモード依存性があり、利用しているモードに合わせて EH1 に配置した 4 象限スリットサイズを調整するなどして入射 X 線強度を調整する必要があることが示唆された。

3.2.4 タイコグラフィ測定条件と再構成位相像

本測定光学系の測定スルーブットを評価するために NTT-AT 製の厚さ 200 nm Ta ジーメンススターチャートのタイコグラフィ測定を行った。6.5 keV の X 線を K-B ミラーにより ~ 500 × 500 nm² に集光し、試料上の 300 nm 間隔の格子状 16 × 16 点に照射して回折強度パターンを測定した。それぞれの照射点における露光時間は 3 秒とした。また、4 象限スリットの開口サイズは水平方向、垂直方向共に 10 μm とした。試料-検出器間距離は 2.219 m、利用した回折強度パターンのピクセル数は 451 としたため、理論上達成可能な面内分解能は式 (2.48) より $d_{x,y}=25$ nm と算出される。合計の測定時間は ~ 50 分となった。表 3.8 に以上のタイコグラフィ測定条件をまとめている。

図 3.4 に取得した回折強度パターンに ePIE [39] を実行して再構成した試料振幅・位相像と照射波動場を示している。ここで、照射波動場は規格化した振幅を明度で、位相を色相で表現している。試料振幅像、位相像ともに Ta ジーメンススターチャートの最小構造まで鮮明に再構成されている。また、Ta、真空部分の吸収量、位相変化量ともに理論値に近い値が得られた。さらに、照射波動場は K-B ミラーで切

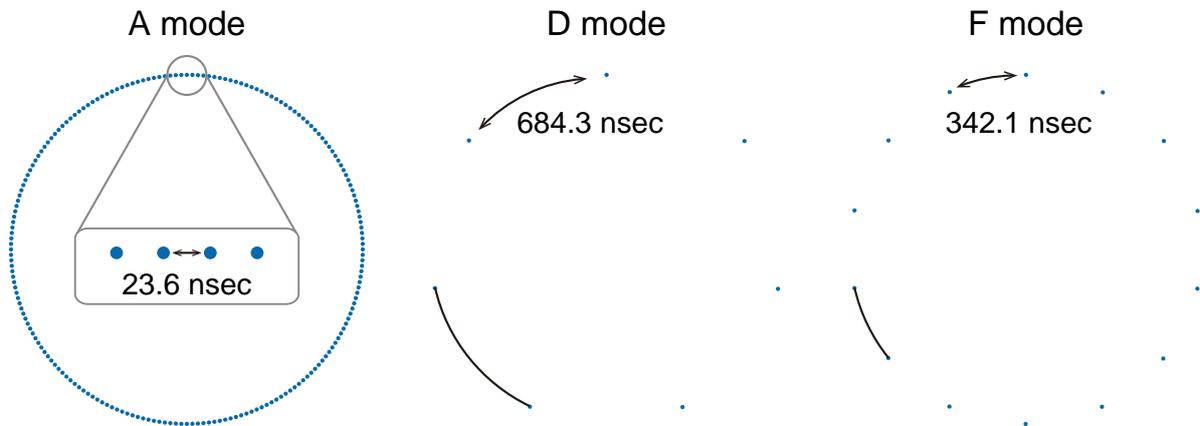


図 3.2 SPring-8 では様々な実験に対応するために A~H の 9 種類の異なる電子バンチモードで運転されている。ここでは，A，D，F モードの電子バンチモードの模式図を示しており，A モードでは蓄積リング全周において等間隔な 203 個のバンチに電子が配置，D モードでは全周を 7 等分した 1/7 に連続的に電子が入り，残りは等間隔な 5 ヶ所のバンチに電子が配置，F モードでは全周を 14 等分した 1/14 に連続的に電子が入り，残りは等間隔な 12 ヶ所のバンチに電子が配置されている．A，D，F モードにおけるバンチ間の時間差はそれぞれ 23.6 ns，684.3 ns，342.1 ns である．

表 3.2 ピクセルアレイ検出器を利用した X 線タイコグラフィ測定条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	16 × 16
ステップ幅 (nm)	300
集光ビームサイズ (nm ²)	~ 500 × 500
露光時間 (s)	3
回折強度パターンピクセル数	451 × 451
検出器ピクセルサイズ (μm ²)	75 × 75
カメラ長 (m)	2.219
再構成像ピクセルサイズ (nm)	12.5

り出した矩形開口由来の sinc 関数に近い強度，位相分布が得られており，本タイコグラフィ測定が安定して行えていることが確認された．直接撮像型 CCD 検出器 (Princeton Instruments 社製 PI-LCX1300) を利用した以前の測定光学系で同様の測定を行う際は 22 時間程度の時間を要しており，ピクセルアレイ検出器を導入することで ~ 26 倍の測定の高速度化が達成された．

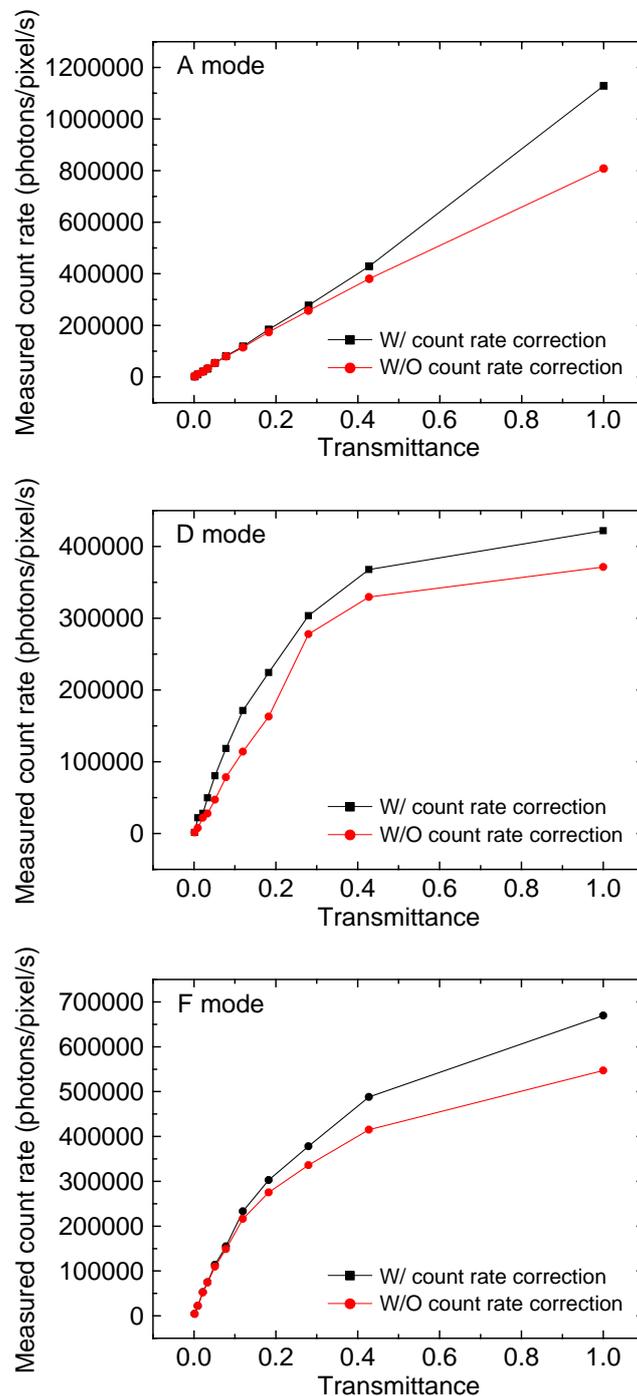


図 3.3 EIGER に入射する X 線強度を Al 箔により減衰させて測定することで、検出器上に表示される値の線形性が保障される最大光子数を評価した。バンチモードは A モード、D モード、F モードの 3 種類を採用し、横軸に挿入した Al 箔の透過率、縦軸に明視野のある 1 ピクセルの 1 秒あたりに測定された光子数を示している。どのモードに関しても検出器付属の補正機能を利用することで線形応答性が改善されている。また、モードにより計数漏れが生じる最大光子数に違いが見られ、A モードでは 1200000 photons/pixel/s、D モードでは 150000 photons/pixel/s、F モードでは 200000 photons/pixel/s 程度まで線形応答性が保障されていた。

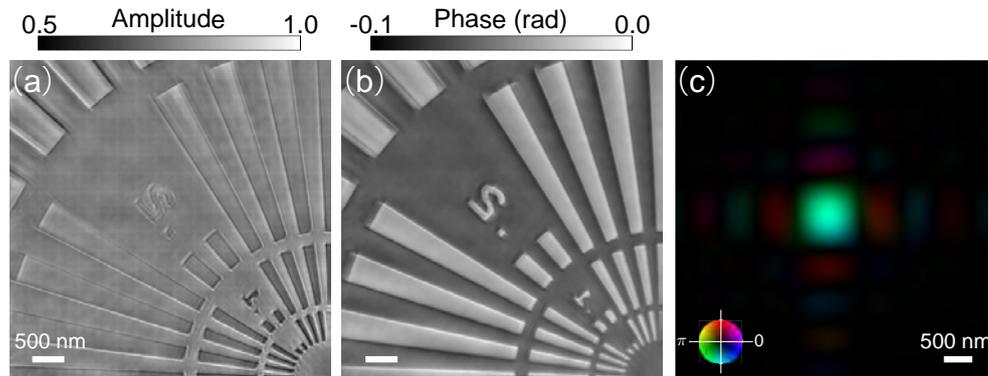


図 3.4 Ta ジーメンススターチャート再構成像と再構成照射波動場. (a) 試料振幅像. (b) 試料位相像. (c) 照射波動場. 規格化した振幅は明度で, 位相は色相で表現されている.

3.3 計算機シミュレーションによる空間的コヒーレンスと X 線光子密度の関係の評価

3.3.1 部分コヒーレント X 線の利用による X 線タイコグラフィ測定の高速化を目指した先行研究

第 2 章で紹介したように混合状態再構成法の登場により, 部分コヒーレント光を利用した場合, 試料が振動している場合, 検出器で測定したデータに点拡がり関数が畳込みされている場合等でもタイコグラフィ再構成が可能になった. 3.2.2 項でも紹介したように, これまでの X 線タイコグラフィ測定では, 完全コヒーレント照明を実現するために試料上流に 4 象限スリットを配置し, 仮想光源を形成していたが, 混合状態再構成法を利用することで仮想光源サイズの条件を緩和することができ, 入射 X 線光子数を増加させることができる. これを目指した先行研究の 1 つに Stachnik らの研究 [97] が挙げられる. 彼女らの光学系は垂直方向に比べ水平方向の空間的コヒーレンスが悪く, 部分コヒーレント照明下で測定した回折強度パターンに対し従来の位相回復計算を実行したところ, 水平方向の空間分解能に悪化が見られた. 同じパターンに対して混合状態再構成法を実行したところ, 従来法による再構成像に比べ高い分解能を実現できたが, 完全コヒーレント光を利用した場合に比べると, 空間分解能は悪化していた. これら結果から, 照射光に含まれるコヒーレント光の光子数と空間分解能に相関があり, また, 部分コヒーレント光と混合状態再構成法を利用してもコヒーレント光の光子数を増加させることは困難で, 高分解能化は期待できないと結論付けられている.

3.3.2 計算機シミュレーション条件

混合状態再構成法における照射波動場の第 1 モードはコヒーレント光の光子数と捉えることが可能である. そこで, 高次のモードの出現を抑えつつ第 1 モードの光子数を向上させる最適な条件を選択することでタイコグラフィ測定の高速化が可能であると考え, 2 種類の計算機シミュレーションを通して条件の最適化を行った. 計算機シミュレーションは水平方向, 垂直方向それぞれ 1 次元ずつ独立して行っ

た. 図 3.5(a), (b) にそれぞれの計算機シミュレーションの模式図を示している. 光学配置は SPring-8 BL29XUL の EH3 でのタイコグラフィ測定実験を想定し, X 線のエネルギーは 6.5 keV の完全単色光, すなわち, 時間コヒーレンス長は無限大とした. 光源はカオス光源とし, 光源強度はアンジュレーター出口の電子ビームサイズから水平方向 $301 \mu\text{m}$, 垂直方向 $6 \mu\text{m}$ のガウス分布で与えた. 光源から 52 m 下流に空間的コヒーレンスを制御するための 4 象限スリットを配置し, スリットから約 48 m 下流に K-B ミラーを配置した. 利用したミラーのパラメーターは表 3.3 に示すとおりである. 水平方向, 垂直方向の空間コヒーレンス長は 2.4.2 項で紹介した空間コヒーレンス長の式 (2.57) を利用するとそれぞれ $\sim 17 \mu\text{m}$, $\sim 800 \mu\text{m}$ と算出される. 図 3.5(a) のシミュレーションでは, 水平, 垂直方向の 4 象限スリットサイズ S_x, S_z を変化させながら, 光源各点から発する球面波を伝播, ミラー面上で反射させ, 集光面において光源各点に由来する X 線の強度和を計算することで, 各スリットサイズにおける集光プロファイルを算出した (付録 A を参照). ここで, ミラー面上での反射率は 100 % としている. このシミュレーションは集光面での空間コヒーレンス長の評価にも利用されており, 部分コヒーレント光の集光プロファイルを推定するのに有効な計算機シミュレーションとなっている [98]. 図 3.5(b) のシミュレーションでは, 4 象限スリット面上で 4 種のモードの波動場を想定し, それぞれをフレネル回折計算することにより集光面での集光プロファイルを算出した (付録 A を参照). ここで, 第 1 次モードは, K-B ミラー集光によるタイコグラフィ測定で再構成される sinc 関数の強度分布を集光面でもつよう, スリット面上では強度, 位相が一定な平面波を想定した. 第 1 モードよりも高次の第 n 次モードでは強度は一定, 位相は n 個の山を持つ矩形波状にすることで他のモードと直交するようにした. それぞれのモードの集光面でのプロファイルを算出した後, 各モードの重みを変化させながら足し合わせた強度プロファイルを, 図 3.5(a) のシミュレーションで算出した強度プロファイルにフィッティングすることで, 各モードの占有率を算出した.

表 3.3 計算機シミュレーションで利用した K-B ミラーパラメーター

	水平方向	垂直方向
ミラー中心での入射角 (mrad)	3.15	3.5
光源-ミラー中心間距離 (m)	48.105	48.000
焦点距離 (mm)	895	1000
有効領域 (mm^2)	92.25×13.75	92.95×13.40

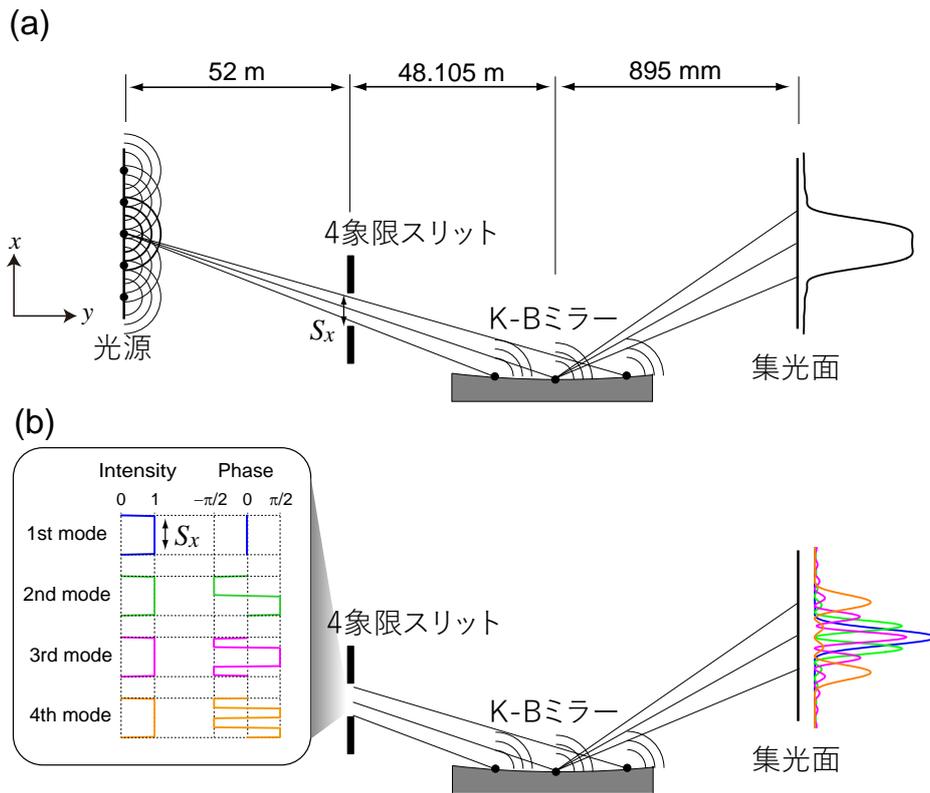


図 3.5 部分コヒーレント光の集光プロファイル算出の計算機シミュレーションの模式図. 4 象限スリットサイズを変化させながら 2 種の計算機シミュレーションを行った. なお, 計算は水平, 垂直それぞれ独立に 1 次元ずつ行った. (a) モデル 1. カオス光源から広がる球面波を K-B ミラー表面, 集光面へと順に伝播計算し, それらの強度を足し合わせることで各スリットサイズにおける集光プロファイルを算出した. (b) モデル 2. スリット面で 4 種の直交関数で基底されたモードを想定し, それらをフレネル回折計算することで各モードの集光面でのプロファイルを算出した. 第 1 モードには強度, 位相ともにスリット開口部で一定の波動場を, 第 n モードには強度一定, 位相は n 個の山をもつ矩形波状にすることで各モードが直交するようにした.

3.3.3 K-B ミラー集光におけるプロファイルの 4 象限スリットサイズ依存性

図 3.6(a), (b) に 4 象限スリットの開口サイズ S_x , S_z をそれぞれ $10 \mu\text{m}$, $30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$, $70 \mu\text{m}$ と変化させたときの集光面における強度プロファイルを示している。ここで、水平、垂直方向それぞれ $S_x=70 \mu\text{m}$, $S_z=50 \mu\text{m}$ の最大強度を元に規格化している。水平、垂直方向ともにスリットサイズの増加に伴い、プロファイルの FWHM が増加している。垂直方向では高い空間コヒーレンスにより $S_z=70 \mu\text{m}$ においても sinc 関数状の強度分布を維持しているが、水平方向 $S_x=70 \mu\text{m}$ では sinc 関数状の強度分布を保つことができていない。つまり、少なくとも $S_x=70 \mu\text{m}$ では部分コヒーレント照明になっていると推測される。また、規格化前のプロファイルから算出した総光子数のゲインを表 3.4 にまとめているが、両方向においてスリットサイズにほぼ比例するように総光子数が増加していた。なお $S_z=10 \mu\text{m}$ から $S_z=30 \mu\text{m}$ で 5.9 倍とスリットサイズ倍以上のゲインが得られたのは $S_z=10 \mu\text{m}$ においては K-B ミラー面で X 線がミラー開口よりも広がっていることに起因すると考えられる。

3.3.4 各モードの集光面におけるプロファイルとフィッティングによる占有率の算出

図 3.7 に 4 種のモードの集光面における強度プロファイルを示している。すべてのモードはモード 1 の最大強度で規格化されている。なお、この計算ではコヒーレンスは考慮されておらず、水平、垂直方向は

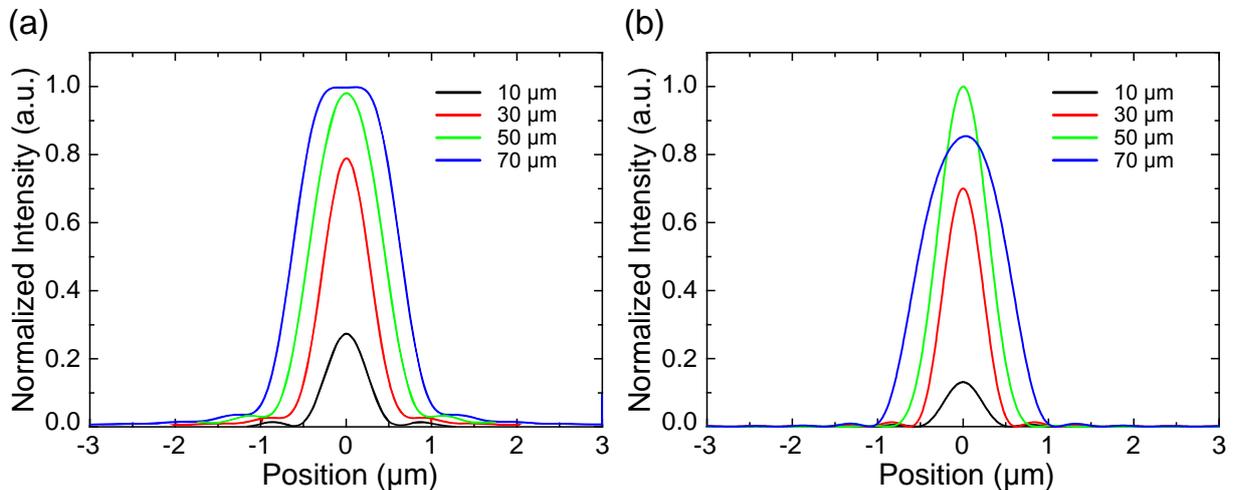


図 3.6 シミュレーション 1 による集光プロファイル。(a) 水平方向。(b) 垂直方向。

表 3.4 各スリットサイズにおける集光ビームの光子数のゲイン

スリットサイズ (μm)	10	30	50	70
水平方向 S_x	1.0	3.1	5.4	7.5
垂直方向 S_z	1.0	5.9	10.4	14.7

ほぼ同様の結果となるため、ここでは水平方向の結果のみを示している。スリット面における位相分布の山の数に対応するように、集光面の強度プロファイルにも複数の山が存在している。3.3.3 項で算出した強度プロファイルと合致するよう、各モードの重みを変化させながらフィッティングすることにより算出した占有率を水平、垂直方向それぞれ表 3.5, 3.6 に示している。水平方向では空間コヒーレンス長 $17 \mu\text{m}$ を超えるスリットサイズで高次モードの占有率の増加が確認された。同光学系を用いて焦点面に配置したヤングのダブルスリットからの干渉縞の可視度を計算機シミュレーションによって算出した先行研究 [98] では、スリット幅 $1 \mu\text{m}$ において、 S_x を変化させたとき、 $10 \mu\text{m}$ 以上では可視度の悪化することが報告されており（先行研究における X 線エネルギーは 8.0 keV であるが、可視度が悪化し始めるスリット幅は波長に比例すると考えても差し支えない）、今回の高次モードの占有率の増加とおおよそ対応がとれている。一方、垂直方向では全てのスリットサイズで、第 1 モードの占有率が 100% となり、完全コヒーレント照明が実現されていることがわかった。表 3.4 に示したゲインと各モードの占有率から算出した各モードの光子密度のスリットサイズ依存性を図 3.8 に示している。なお、両方向においてスリットサイズ $70 \mu\text{m}$ の第 1 モードで規格化して表示している。この結果から、水平方向に関しては $50 \mu\text{m}$ 以上のスリットサイズでは第 1 モードの光子数は増加せず、X 線タイコグラフィ測定に有効なコヒーレント光の光子数の増加は見込めないことが示唆された。一方、垂直方向ではどのスリットサイズにおいても完全コヒーレント照明が維持されており、スリットサイズに応じて第 1 モードの光子密度も増加し続けている。しかしながら、スリットサイズが $58 \mu\text{m}$ より大きい場合、幾何学的な縮小倍率で決まる集光径が回折限界集光径を超えてしまい回折限界集光が実現されないため、後述の SPring-8 での実験では垂直方向のスリットサイズは $50 \mu\text{m}$ に固定して行った。

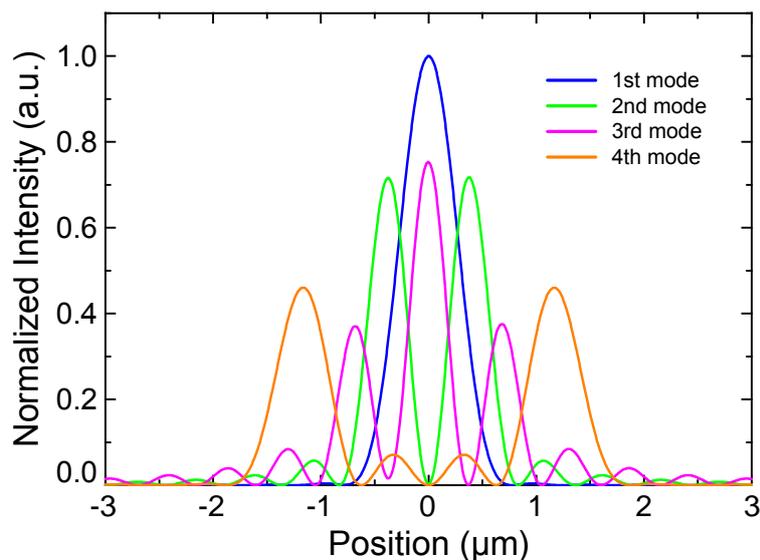


図 3.7 図 3.5(b) で示した 4 種のモードの集光面での強度プロファイル。スリット面における位相分布上の山の数に対応するように、集光面の強度プロファイルにも複数の山が存在している。なお、この計算では空間コヒーレンスを考慮していないため、水平、垂直でほぼ同様の強度プロファイルが得られており、ここでは水平方向の結果を表示している。

表 3.5 水平方向における各モードの占有率

スリットサイズ (μm)	第 1 モード (%)	第 2 モード (%)	第 3 モード (%)	第 4 モード (%)
10	99	1	0	0
30	83	15	2	0
50	62	30	8	0
70	46	35	12	7

表 3.6 垂直方向における各モードの占有率

スリットサイズ (μm)	第 1 モード (%)	第 2 モード (%)	第 3 モード (%)	第 4 モード (%)
10	100	0	0	0
30	100	0	0	0
50	100	0	0	0
70	100	0	0	0

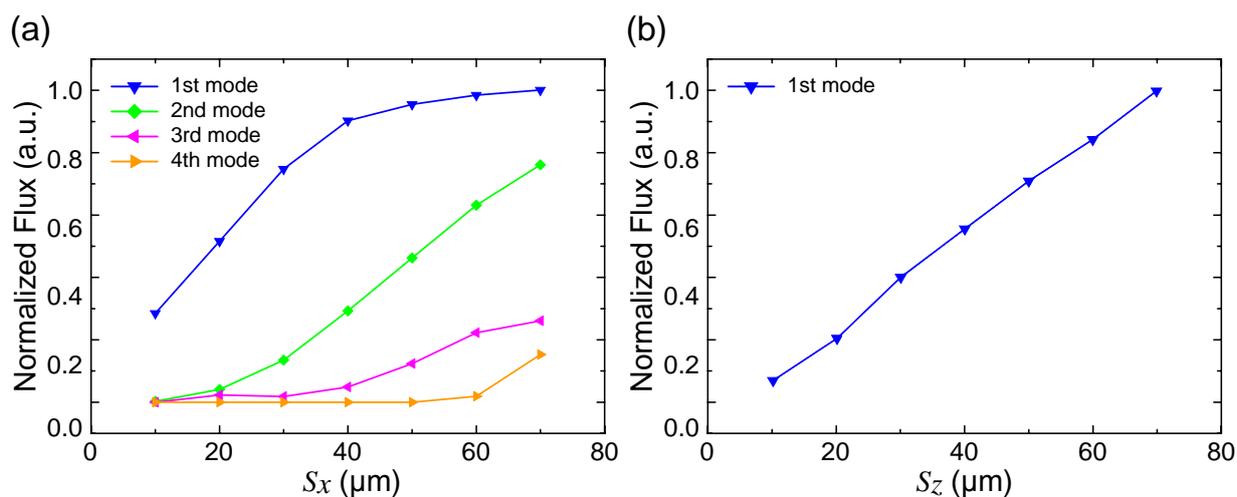


図 3.8 各モードの光子密度. 表 3.4 の各スリットサイズにおける総光子数のゲインと表 3.5, 3.6 に示した各モードの占有率から, 各スリットサイズ, 各モードにおける光子密度を算出し, 70 μm の第 1 モードの光子密度で規格化した. (a) 水平方向. (b) 垂直方向.

3.4 部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定高速化の実証実験

3.4.1 実験条件

SPring-8 BL29XUL にて、4 象限スリットサイズを変化させながら X 線タイコグラフィ測定を行った。図 3.9 に実験模式図を示す。4 象限スリットは試料前方 ~ 48 m の位置に配置しており、垂直方向のスリットサイズは $S_z=50 \mu\text{m}$ に固定、水平方向は $S_x=10 \mu\text{m}$, $30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ と変化させながらタイコグラフィ測定を行った。3.3.2 項で紹介したように水平方向、垂直方向の空間コヒーレンス長はそれぞれ ~ $17 \mu\text{m}$, ~ $800 \mu\text{m}$ となるため、 $S_x=10 \mu\text{m}$ 以外は空間的に部分コヒーレントな照明となっている。X 線エネルギーは 6.5 keV とし、シミュレーションで利用したパラメーターを有する K-B ミラーにより ~ $500 \times 500 \text{ nm}^2$ に集光されている。試料には、~ 17 nm の最小構造を有する NTT-AT 製厚さ 12 nm の Ta ジーメンススターチャートを利用した。6.5 keV における Ta 12 nm の位相変化量は 0.025 rad となる。試料からの回折波は、ピクセルサイズ $20 \mu\text{m}$ の直接撮像型 CCD 検出器 (Princeton Instruments 社製 PI-LCX1300) を用いて測定した。ここで、カメラ長は 1.219 m 、露光時間を 36 秒 としている。回折強度パターンは、それぞれの照射点で 2 種類のビームストップサイズで取得し、2 枚に共通したピクセル同士の強度相関を利用して回折強度パターンを繋ぎ合わせることで、高い空間周波数の強度データを S/N 比良く取得した。これにより回折強度パターンのピクセル数は 1280 となっており、理論上の面内分解能は $d_{x,y}=18 \text{ nm}$ と算出される。以上のタイコグラフィ測定条件は表 3.8 にまとめている。

3.4.2 回折強度パターン

図 3.10 に 3 つスリットサイズで取得した回折強度パターンを示している。各スリットサイズにおいて試料背面に設置した PIN フォトダイオードで光子密度を測定したところ、 $S_x=10 \mu\text{m}$ で $1.2 \times 10^9 \text{ photons/s}$, $S_x=30 \mu\text{m}$ で $6.2 \times 10^9 \text{ photons/s}$, $S_x=50 \mu\text{m}$ で $1.1 \times 10^{10} \text{ photons/s}$ となり、入射光

表 3.7 部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	10×10
ステップ幅 (nm)	400
集光ビームサイズ (nm^2)	~ 500×500
露光時間 (s)	36
回折強度パターンピクセル数	1280
検出器ピクセルサイズ (μm)	20
カメラ長 (m)	1.219
再構成像ピクセルサイズ (nm)	9

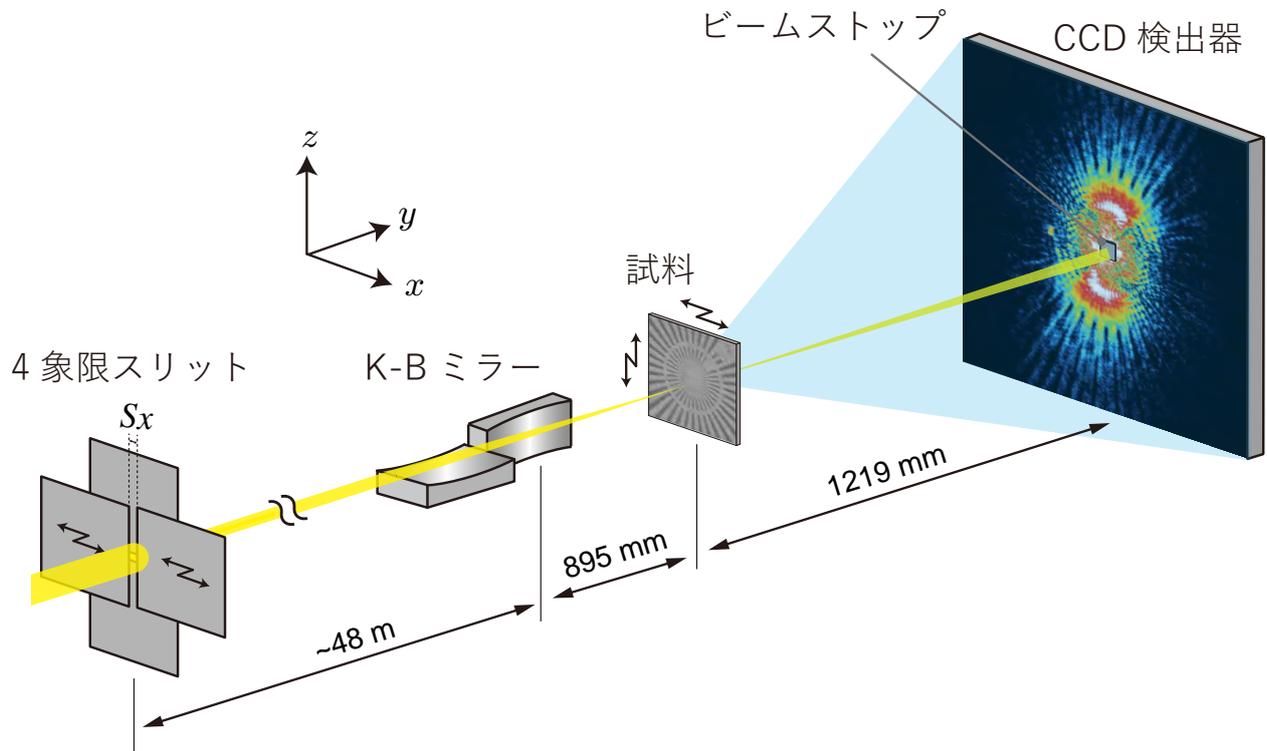


図 3.9 部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ実験模式図. 試料上流に配置された 4 象限スリットは、仮想光源サイズの調整に利用される. 本実験では、水平方向 $10 \mu\text{m}$, $30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ の 3 種類、垂直方向は $50 \mu\text{m}$ に固定してタイコグラフィ測定を行った. タイコグラフィ測定条件は表 3.8 に示すとおりであり、各スリットサイズでの測定において 1 照射点における露光時間は 36 秒に統一している.

の光子数の増加に応じて、高空間周波数領域のスペックルまで高い S/N 比で取得できていることが確認された.

3.4.3 再構成複素透過関数の評価

初期入力を振幅項 1, 位相項 -0.025 rad の均一な複素透過関数, 3.3.4 節で算出した波動場を第 1 モードの照射関数として位相回復計算を行った後, 段階的に利用する高次モード数を増加させて位相回復計算を行った. その際, 新しく追加する第 n 次モードは第 $n-1$ 次モードの強度分布を 0.1 倍, 位相はランダムとした. また, 位相回復計算では式 (2.9) で表わされる弱位相物体近似を用いており, 反復計算は合計で 3000 回まで行った. 図 3.11(a), (b) にそれぞれ第 1 モードのみ (ePIE), 第 3 モードまで利用して再構成した位相像を示している. 図 3.11(a) では空間コヒーレンス長の見積もり通り, $S_x=10 \mu\text{m}$ では完全コヒーレント照明となっているため, 混合状態を考慮できない ePIE でも Ta ジーメンステストチャートの構造を鮮明に再構成することができるが, $S_x=30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ とスリットサイズが大きくなるにつれ像質も悪化している. しかしながら, 図 3.11(b) に示されるように, 第 3 モードまで考慮した混合状態再構成法を利用することで, 部分コヒーレント照明でも再構成することができる. 空間分解能はスリットサイズを広げるにつれて向上しており, $S_x=50 \mu\text{m}$ では Ta ジーメンステストチャートの最小構造であ

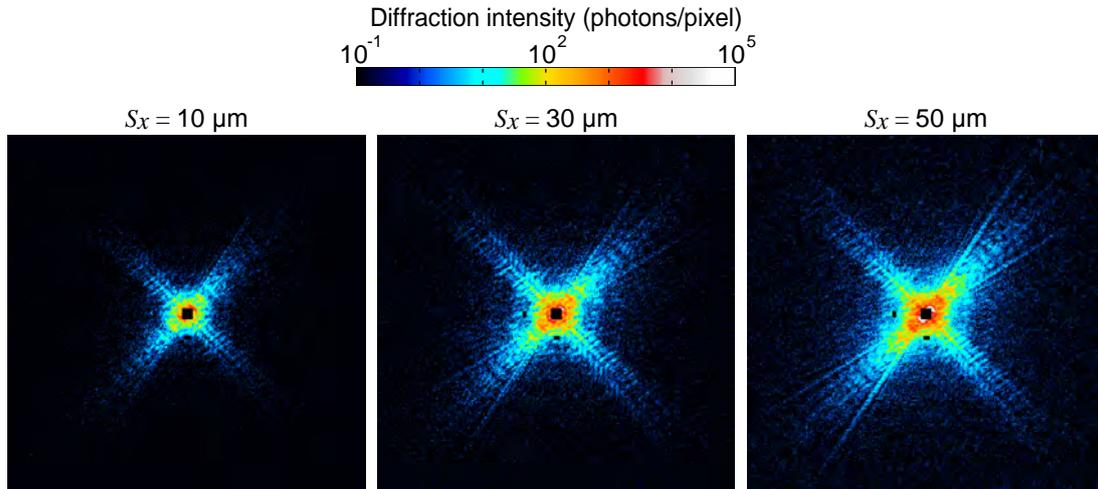


図 3.10 各スリットサイズにおける回折強度パターン。照射点，露光時間は全ての条件で共通である。スリットサイズが広がるにつれて入射 X 線の光子数が増加し，高い空間周波数領域のスペckルを S/N 比良く測定することができている。

る 17 nm のライン&スペースを鮮明に再構成することに成功している。空間分解能を定量的に評価するために，各スリットサイズにおける位相回復伝達関数 (Phase Retrieval Transfer Function : PRTF) [10] を算出した。タイコグラフィにおける位相回復伝達関数は以下の式で表現される。

$$\text{PRTF}(q') = \frac{\sum_j \sum_{|\mathbf{q}| \in q'} I_j^{\text{rec}}(\mathbf{q})}{\sum_j \sum_{|\mathbf{q}| \in q'} I_j^{\text{mea}}(\mathbf{q})} \quad (3.2)$$

ここで， $I_j^{\text{rec}}(\mathbf{q})$ ， $I_j^{\text{mea}}(\mathbf{q})$ はそれぞれ照射点 j における再構成，測定回折強度パターンを表す。図 3.12 に縦軸を PRTF，横軸を空間周波数としたグラフを示している。PRTF が 1 に近いほど空間周波数 q' に相当する構造を測定した回折強度パターンに沿うように再構成できていることを表している。PRTF が $1/e$ と交わる空間周波数の逆数を半周期空間分解能として定義して各スリットサイズでの空間分解能を評価したところ， $S_x=10 \mu\text{m}$ ， $30 \mu\text{m}$ ， $50 \mu\text{m}$ でそれぞれ 21 nm，16 nm，13 nm となった。以上の結果から，水平方向のスリットサイズの広がりに伴い，高い空間分解能の試料位相像が再構成されていることが確認された。

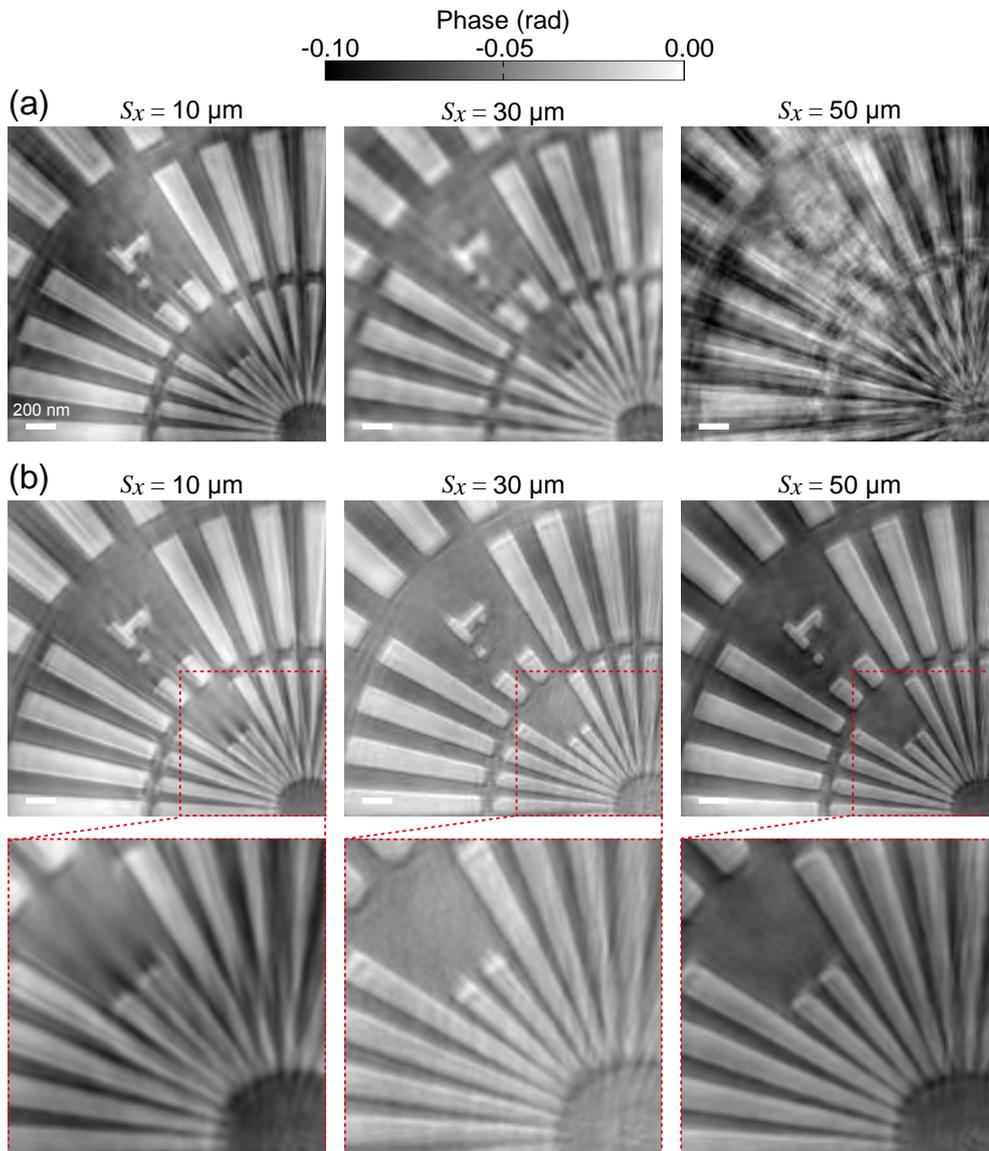


図 3.11 各スリットサイズで測定した回折強度パターンに対し 2 種の位相回復計算法で再構成した試料位相像。(a) 第 1 モードのみ、つまり ePIE。スリット面における水平方向の空間コヒーレンス長は $\sim 17 \mu\text{m}$ なので、 $S_x=10 \mu\text{m}$ では完全コヒーレント照明、 $S_x=30 \mu\text{m}$ 、 $50 \mu\text{m}$ では部分コヒーレント照明となっており、スリットサイズが広がるにつれて像質が悪化している。(b) モード数 3 の混合状態再構成計算。混合状態再構成法を利用することで部分コヒーレント照明条件下でも Ta ジーメンススターチャートの構造を高い空間分解能で再構成することに成功している。

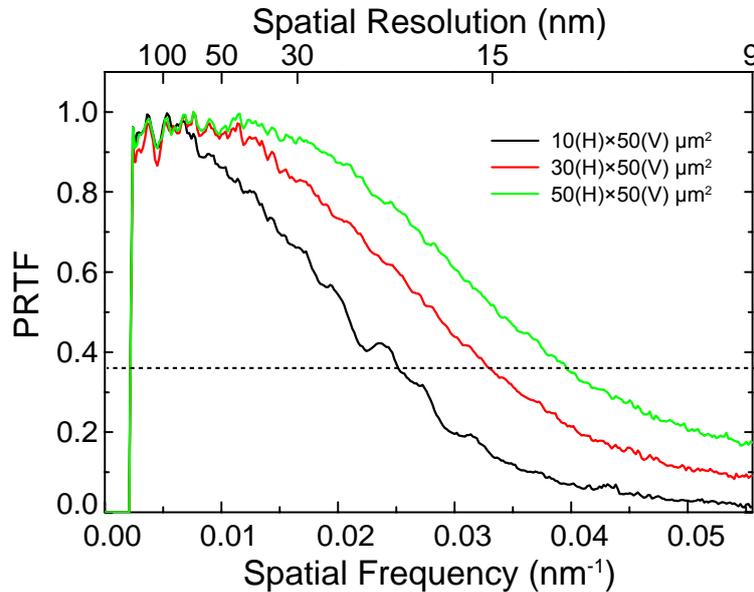


図 3.12 各スリットサイズにおける位相回復伝達関数 (Phase Retrieval Transfer Function : PRTF) [10]. 表示している値は全ての照射点での PRTF を平均化したものである. 各 PRTF が $1/e$ になる空間周波数の逆数を半周期空間分解能と定義した.

3.4.4 再構成照射関数と各モードの占有率・光子数の関係

図 3.13 に $S_x=50 \mu\text{m}$ における再構成照射関数の規格化した振幅を明度で、位相を色相で表現したものを示している. ここで、第 2, 3 モードは自身より低次モードと直交するよう Gram-Schmidt の直交化法を適用している. 空間的コヒーレンスの悪い水平方向では 3.3.4 節のシミュレーションで利用した高次のモードの照射関数に近い振幅、位相分布が得られており、計算機シミュレーションで想定した各モードの妥当性を裏付ける結果となっている. それぞれの照射関数における全ピクセルの強度和から各モードの占有率を算出することが可能である. 表 3.8 に各スリットサイズにおける各モードの占有率、空間分解能、PIN フォトダイオードで測定した光子密度、露光時間、第 1 モードの占有率から算出した第 1 モードの光子数を示している. $S_x=10 \mu\text{m}$ は第 1 モードのみで再構成計算が可能であったこともあり第 1 モードの占有率が 99 % となっているが、スリットサイズの広がるにつれ高次モードの占有率が高くなっており、計算機シミュレーションの結果に合致している. また、第 1 モードの光子数はスリットサイズの広がりに応じて増加しており、これにより空間分解能が向上したと考えられる. 今回の実験では、露光時間を揃える、言い換えると測定時間を揃えた上で第 1 モードの光子数が約 6 倍に増加しており、この結果高い空間分解能を達成している. つまり、同じ空間分解能を達成するためのタイコグラフィ測定においては、6 倍速く測定することが可能となる. 計算機シミュレーションによると水平方向のスリットサイズを $S_x=50 \mu\text{m}$ より広げても第 1 モードの光子数は増加せず、高次モードの光子数のみが増加する. この場合、位相回復計算上で再構成しなければならない未知数が増加して収束性を悪化させ、高い空間分解能を実現することが難しくなると考えられる. 一方、垂直方向は $S_z=50 \mu\text{m}$ よりも広げた条件でも第 1 モードの光子数が線形に増加していたが、幾何学的な倍率によって決まる集光ビームのサイズが回折限界

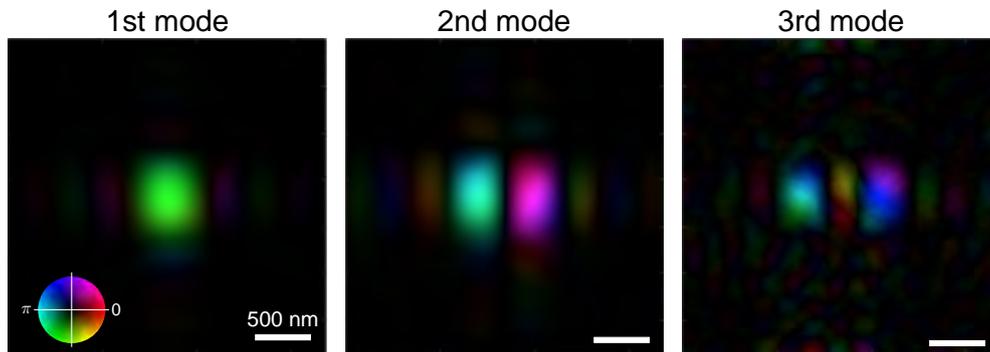


図 3.13 4 象限スリットサイズ $10(\text{H}) \times 50(\text{V}) \mu\text{m}^2$ における再構成照射波動場。規格化した振幅を明度で、位相を色相で表現している。第 1 モードは sinc 関数に近い分布をとっており、高次モードは空間コヒーレンスの悪い水平方向にモードの次数個分の山をもつ分布となっている。これら再構成波動場は、3.3.4 節で算出した各モードに近いものとなっている。

表 3.8 各スリットサイズにおける空間分解能，再構成照射関数の占有率，第 1 モードの光子数

スリットサイズ ($\text{H} \times \text{V} \mu\text{m}^2$)	10×50	30×50	50×50
空間分解能 (nm)	21	16	13
第 1 モード占有率 (%)	99	16	65
第 2 モード占有率 (%)	1	80	31
第 3 モード占有率 (%)	0	1	4
第 1 モード光子数 (photons)	4.3×10^{10}	1.8×10^{10}	2.6×10^{11}

集光サイズよりも小さくなる条件が $58 \mu\text{m}$ なので，回折限界集光を維持するためにはこれ以上のスリットサイズに設定することは難しい。以上のことから，我々の実験光学系において高効率なコヒーレント光の利用のためにはスリットサイズを $S_x=50 \mu\text{m}$ ， $S_z=50 \mu\text{m}$ とするのが最適であり，従来に比ベタイコグラフィ測定を 6 倍程度高速化することに成功した。

3.5 結言

本章では，X 線タイコグラフィ測定の高速度化を目的として，ピクセルアレイ検出器，部分コヒーレント X 線を利用した X 線タイコグラフィ測定光学系を構築した結果について報告した。以下にその内容をまとめる。

- (1) 読み出し時間が 4μ 秒程度と非常に短いピクセルアレイ検出器 EIGER 1M を導入し，タイコグラフィ測定の高速度化を試みた。EIGER に入射する X 線強度を Al 箔により減衰させながら入射 X 線強度と表示される光子数の線形性が保障される最大光子数を評価したところ，電子バンチモード依存性が見られ，A モード，D モード，F モードそれぞれ 1200000 photons/pixel/s，150000 photons/pixel/s，200000 photons/pixel/s 程度となった。

- (2) EIGER 1M を導入したタイコグラフィ測定装置を利用して Ta 200 nm ジーメンススターチャートのタイコグラフィ測定を、走査点数 16×16 、ステップ幅 300 nm、露光時間 3 秒として行った。取得データに ePIE を実行したところ試料振幅像、位相像と照射波動場を鮮明に再構成することに成功した。測定時間は 50 分程度であり、直接撮像型 CCD 検出器を利用した従来の測定光学系に比べ、26 倍程度の測定の高速化に成功した。
- (3) 部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定の高速化の実現に向け、空間コヒーレンス度を調整する 4 象限スリットサイズと混合状態再構成計算における照射関数の各モードの光子密度の関係を計算機シミュレーションにより調査した。計算機シミュレーションは 2 種類行い、水平、垂直方向のスリットサイズを $10 \sim 70 \mu\text{m}$ と変化させながら 1 次元ずつ独立で計算した。水平方向のスリットサイズ $S_x=50 \mu\text{m}$ までは第 1 モードの光子密度が線形的に増加していたが、それより大きな S_x では大きく変化せず、高次モードの光子密度の増加が見られた。一方、垂直方向では $S_z=70 \mu\text{m}$ まで第 1 モードの光子密度が線形に増加しており、高次のモードは現れなかった。この結果から、高次のモードの出現を抑制しつつ、コヒーレント光の光子密度を最大化するためのスリットサイズは水平方向は $S_x=50 \mu\text{m}$ 付近が、垂直方向は回折限界集光が達成可能な $S_z=50 \mu\text{m}$ 付近が最適値であることがわかった。
- (4) SPring-8 にて 4 象限スリットサイズを垂直方向は $S_z=50 \mu\text{m}$ に固定、水平方向は $S_x=10 \mu\text{m}$, $30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ と変化させながらタイコグラフィ測定を行った。それぞれのスリットサイズで測定した回折強度パターンに対し、ePIE、照射関数を第 3 モードまで考慮した混合状態再構成計算を実行したところ、ePIE では完全コヒーレント照明と見なせる $S_x=10 \mu\text{m}$ の場合のみ試料像が再構成され、部分コヒーレンス照明となっている $S_x=30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ では試料像が再構成されなかった。一方、第 3 モードまで考慮した混合状態再構成計算では、すべてのスリットサイズで鮮明な試料像の再構成に成功した。PRTF で半周期空間分解能を評価したところ、 $50(\text{H}) \times 50(\text{V}) \mu\text{m}^2$ で最も高い空間分解能 13 nm を達成した。
- (5) 混合状態再構成計算で算出した各モードの占有率と PIN フォトダイオードで測定した光子密度から第 1 モードの光子数を算出したところ、スリットサイズが大きいほど高い光子数となっており、第 1 モードの光子数と空間分解能に相関が見られた。さらに、 $S_x=10 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ の第 1 モードの光子数を比較すると後者が ~ 6 倍となっており、部分コヒーレント光を利用することで 6 倍速くタイコグラフィ測定が可能であることが実証された。

第4章

プリセッション測定を併用した高分解能 マルチスライス X 線タイコグラフィ

4.1 緒言

第2章で述べたようにマルチスライス法を用いたタイコグラフィにより、被写界深度を超える厚い試料でも空間分解能を損なうことなく観察することが可能となった。さらに、本手法は試料を複数に分割したそれぞれの層の投影像が再構成可能で、1方向からの測定のみで光軸方向の試料情報を抽出することが可能であり、新たな3次元イメージング手法としての可能性も秘めている。しかしながら、特にX線領域において、現状の測定光学系で取得できる回折強度パターンの最大散乱角が非常に小さいため、面内方向の空間分解能に比べ光軸方向の分解能は3～4桁程度悪く、限られた試料にしか利用できない。本手法を真に有用な3次元イメージング法として発展させるためには、光軸方向の空間分解能の向上が求められる。そこで、我々はプリセッション測定とマルチスライス X 線タイコグラフィを組み合わせることにより、この問題の解決を試みた。プリセッション測定とは、試料を歳差運動の軌道上に配置して測定を行う手法であり、X線結晶構造解析やコヒーレント X 線回折イメージングにおいて、動力学的な効果により消失した高角領域の回折強度パターンを補完するために用いられている [25, 99]。本章では、プリセッション測定による光軸方向の分解能の向上に関する理論的な考察、計算機シミュレーションによる実現可能性の検討、さらに SPring-8 での実証実験、実試料への応用について述べる。

4.2 プリセッション測定によるマルチスライス X 線タイコグラフィの光軸分解能の向上

4.2.1 プリセッション法

プリセッションとはコマのように自転している物体の回転軸が円を描くように振れる歳差運動を表し、プリセッション法はもともと X 線結晶解析において回転結晶法に代替する手法として提案された。回転結晶法では、単結晶試料の低指数の晶帯軸が回転結晶カメラの回転軸に一致するように回転させながら円筒フィルムで回折スポットを取得することで、結晶の対称性や結晶系に関する情報が得られる。しかしな

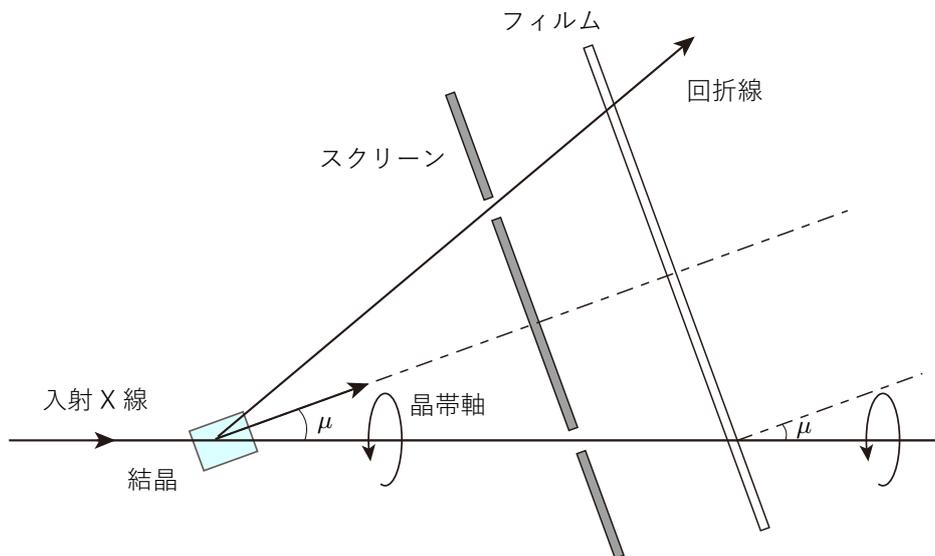


図 4.1 プリセッション法の模式図。結晶，スクリーン，フィルムを連結させ，晶帯軸を入射 X 線に対して傾ける．そして入射線方向を軸として歳差運動することで逆格子点をゆがみのない形で平板フィルムに記録することができる．

がら，1つの層線上の回折スポットの列は逆空間のある平面上の逆格子点を1次元に投影したものであって，逆空間格子点と回折スポットの1対1の対応が明らかでない場合が多い．そこで，この対応を明らかにするために，結晶を回転すると同時に回折スポットを取得するフィルムも同期して運動させることが有効となる．プリセッション法では結晶，スクリーン，フィルムをパンダグラフで連結させ，結晶の晶帯軸を入射 X 線に対し μ 傾け，入射線の方向を軸として歳差運動させる．こうすることで，平板フィルムでゆがみのない逆格子点を記録することが可能となる．

プリセッション法は，現在では電子回折を利用した結晶構造解析において広く利用されている．電子線は消衰距離（完全結晶に X 線や電子線が入射したとき，ブラッグ反射により回折波が減衰する程度を表す距離．）が数 10 nm 程度なので動力的な効果が支配的になるが，プリセッション法ではこの効果を排除し運動力学的な扱いが可能な反射強度を取得することができるため，解析的な取扱いが容易になる．コヒーレント X 線回折イメージングにおいては，エバルト球が曲率を持つことにより消失する高角側の回折強度パターンの取得のためにプリセッション測定を行い，複数枚の回折強度パターンを繋ぎ合わせることで投影近似下の制限を超えた空間分解能を達成した例が報告されている [25]．本章で取り扱うプリセッション測定は検出器は固定のままなので，厳密に言うとプリセッション法とは異なるが，2軸回転を行う"歳差運動"という意味をとってプリセッション測定と呼ぶこととする．

4.2.2 エバルト球を用いた空間分解能の幾何学的考察

図 4.2(a) にプリセッション測定の模式図を示す．光軸方向を z 軸，光軸に垂直な平面を $x-y$ 面とし，試料が通常測定時に比べ y 軸方向に ω 回転しているとする．なお，以下の議論は x 軸方向に φ 回転している場合も同様である．図 4.2(b) に測定光学系の最大散乱角 Θ_{\max} における通常測定時，試料が y 軸方向に ω 回転しているときのエバルト球と取得される回折強度パターンの最大空間周波数の関係を示して

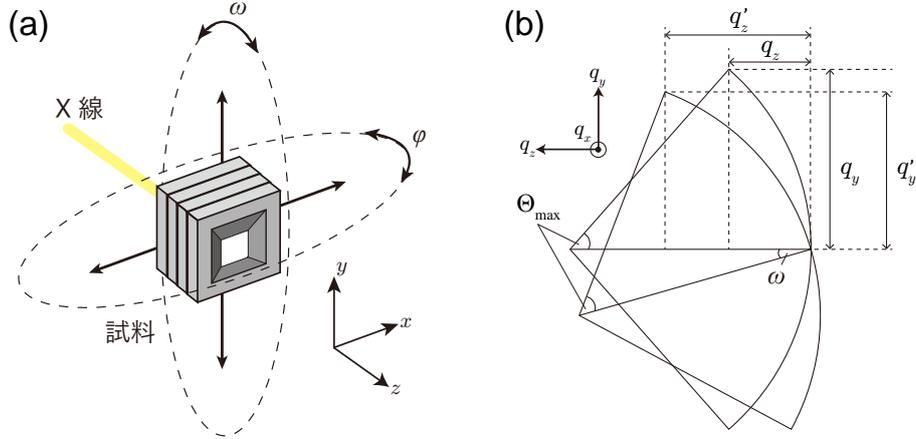


図 4.2 プリセッション測定時のエバルト球とフーリエ空間の関係. (a) プリセッション測定. (b) エバルト球とフーリエ空間の関係. 平面波照明を考えた場合, 通常測定時には半径 $1/\lambda$, 中心角 Θ_{\max} の扇形上のエバルト球の曲面上の構造因子が回折強度パターンとして測定され, 最大空間周波数は面内, 光軸方向それぞれ q_y, q_z となる. プリセッション測定時には, エバルト球が ω 傾くことによって光軸方向の最大空間周波数が増加し, 光軸分解能の向上が期待される.

いる. ここで, 入射波動場が平面波であると仮定すると, 試料の十分遠方に配置した検出器で測定される回折強度パターンは, 2.4.1 項でも紹介したようにフーリエ空間上でエバルト球曲面状の構造因子の強度分布に対応しており, 回折強度パターンの最大空間周波数は図 4.2(b) における q_y, q_z の大きさに対応している. マルチスライス X 線タイコグラフィにおいては, これらの逆数が理論上達成可能な空間分解能と考えることができ, 面内方向, 光軸方向それぞれ式 (2.48), (2.49) で表される [17, 58]. 試料回転は X 線の入射ベクトルの変化と考えられるため, 試料回転時に取得される回折強度パターンは逆空間原点を中心として ω 回転させたエバルト球が横切る構造因子の強度分布となる. 試料回転時の正方向の最大空間周波数をそれぞれ q'_y, q'_z と表したとき, 幾何学的な関係から以下の式で与えられる.

$$q'_y = q_y \cos \omega - q_z \sin \omega \quad (4.1)$$

$$q'_z = q_y \sin \omega + q_z \cos \omega \quad (4.2)$$

以上のように, プリセッション測定を行うことで q'_z の増加させることができ, 複角度の測定データを利用した再構成計算により光軸分解能の向上が期待される. なお, コンピューター断層撮影法では, 試料を 0° から 180° まで回転させながら測定を行い, 3 次元試料像を取得するが, フーリエ空間ではエバルト球の軌跡が球状になることで光軸方向, 面内方向の最大空間周波数が等しくなり, 等方的な空間分解能が実現されると考えることができる.

4.2.3 プリセッション 3PIE

図 4.3(a) に試料回転なしの場合の 3PIE における試料側面の模式図を示す. ここで, 面内 y 方向の視野は a , 試料は m 層に分割し, i 層目の試料厚さを t_i としている. プリセッション測定時には図 4.3(b) のように試料全体が回転し, 通常測定時と同様に各層の厚さ t_i で分割すると各層を構成する試料構造が

変化する。そのため、プリセッション測定で取得した回折強度パターンを利用して試料像を再構成する場合には、これを考慮した解析が必要となる。ここで、ある i 層目の視野と層の厚さの変化量 $c_{y,i}$, $c_{z,i}$ に着目すると、それぞれ

$$c_{y,i} = |a \cos \omega + t_i \sin \omega - a| \quad (4.3)$$

$$c_{z,i} = |a \sin \omega + t_i \cos \omega - t_i| \quad (4.4)$$

と表される。 c_x , c_z が空間分解能よりも小さい場合、つまり、

$$d_y > |a \cos \omega + t_i \sin \omega - a| = |t_i \sin \omega - 2a \sin^2(\omega/2)| \quad (4.5)$$

$$d_z > |a \sin \omega + t_i \cos \omega - t_i| = |a \sin \omega - 2t_i \sin^2(\omega/2)| \quad (4.6)$$

の条件を満たすとき、この変化は無視することができ、試料回転によって各層を構成する試料構造に変化がないとみなせる。一方、各層の相対位置は $t_i \sin \omega$ 変化するが、この変化量がピクセルサイズ以上、つまり

$$t_i \sin \omega \geq d_y/2 \quad (4.7)$$

を満たすとき、この変化を計算機上で取り扱うことが可能である。以上のように、式 (4.5), (4.6), (4.7) を満たす場合には、各層の試料構造の変化を無視し、微小回転を各層の並進移動に近似することができる。

図 4.3(c) に上記の近似を適用したマルチスライス位相回復計算のフローチャートを示している。試料回転なしの回折強度パターンを利用する際には通常の 3PIE と同様の再構成計算を行い、試料回転時の回折強度パターンを用いた再構成計算では、各層の複素透過関数の相対位置を回転角度に応じて並進移動させて再構成計算を行う。この計算を全ての試料角度で反復的に行うことで各層の試料像を再構成する。試料回転に伴う光軸分解能の向上に加え、様々な角度での測定データを利用することで試料に関する情報の冗長性が付加され、特に再構成すべき未知数が増加するマルチスライス位相回復計算において収束性の向上が期待される。以後、このアルゴリズムを“プリセッション 3PIE”と呼ぶ。

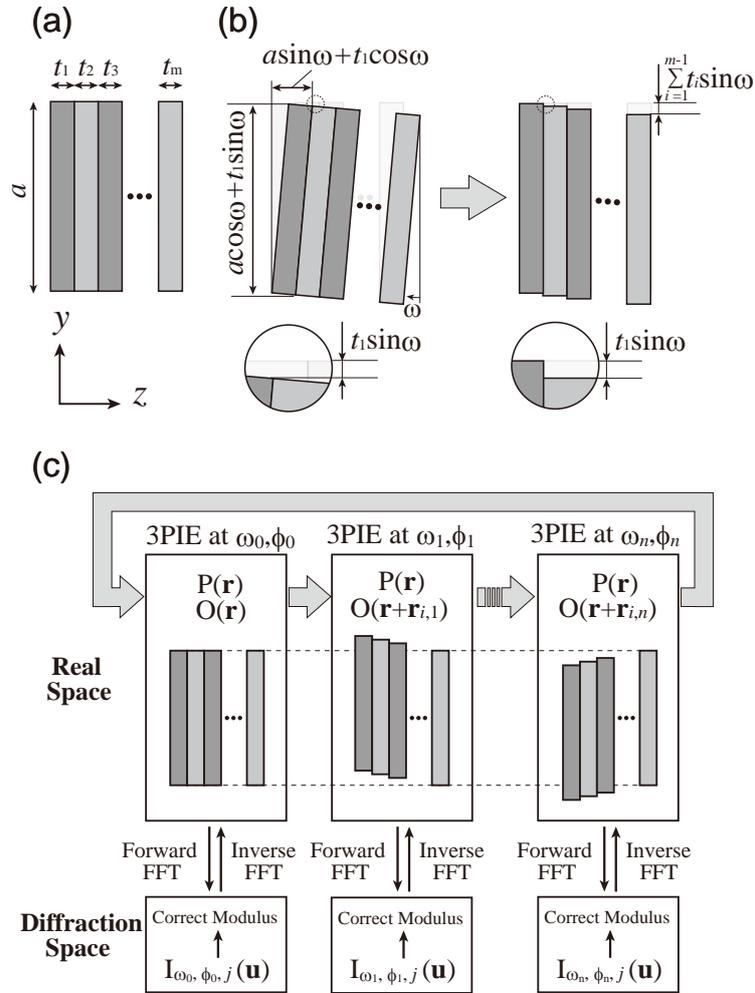


図 4.3 プリセッション 3PIE の模式図。(a) 試料回転なしの場合の試料側面の模式図。ここで、 y 方向の視野は a 、試料は m 層に分割するとし、 i 層目の厚さを t_i とする。(b) 角度 ω 回転させたときの試料側面の模式図。試料回転時は各層に含まれる試料構造は変化するが、面内、光軸方向の長さの変化量がそれぞれの方向の空間分解能よりも小さいときは各層を構成する試料構造に変化がないとみなせる。これに加え、 $t_i \sin \omega$ がピクセルサイズよりも大きいときは微小回転を各層の並進移動に近似することが可能である。(c) プリセッション 3PIE のフローチャート。通常測定の回折強度パターンを利用するときは通常の 3PIE を、試料回転時の回折強度パターンを利用する際には、試料回転角度に応じて各層の相対位置を並進移動させ 3PIE 再構成計算を行う。この計算を様々な角度で反復的に行うことで試料像を再構成する。

4.3 計算機シミュレーションによる実現可能性の検討

4.3.1 2層構造体を用いた計算機シミュレーション

プリセッション測定によるマルチスライス X 線タイコグラフィの光軸方向の高分解能化の実現可能性を検討するために計算機シミュレーションを行った。試料にはマルチスライス X 線タイコグラフィの実証実験 [17] を模すよう、Au 35 nm 膜上に線幅 100 nm 程度の文字列が加工された 2 層からなる 2 層構造体を想定し、試料による X 線の吸収を無視する弱位相物体近似 [43] を適用した。文字列は上流から図 4.4 に示す “Osaka Univ”, “RIKEN” とした。エネルギー 7 keV, $500 \times 500 \text{ nm}^2$ に集光した X 線を試料上の幅 500 nm, 点数 7×7 の格子上に照射したと想定し、ビームストップ、フォトンショットノイズは考慮せずに回折強度パターンを算出した。回折強度パターンのピクセル数は 606, 検出器のピクセルサイズは $20 \mu\text{m}$, 試料-検出器間距離は 1.368 m とし、式 (2.48), (2.49) から理論分解能は面内、光軸方向それぞれ $d_{x,y}=40 \text{ nm}$, $d_z=18 \mu\text{m}$ と算出される。層間隔は $10 \mu\text{m}$ と光軸分解能 $18 \mu\text{m}$ よりも小さくした。試料回転時の回折強度パターンは、回転角度に応じて 1 層目を基準に下流の試料像を並進移動させることで算出した。以上のシミュレーション条件は表 4.2 にまとめている。

図 4.5(a), (b), (c) にそれぞれ $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, $(1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$ の試料角度で算出した回折強度パターンに対して 3PIE を実行し、再構成した試料位相像を示す。反復計算回数は 1000 回とした。また、照射関数は回折強度パターン算出時のものをを入力し、反復計算の中で固定した。全ての試料角度において、各層の文字列は鮮明に再構成されているが、アーティファクトとして他層の文字列の写り込みが確認された。これは、層間距離 $10 \mu\text{m}$ が光軸方向の理論上の空間分解能 $d_z=18 \mu\text{m}$ よりも小さいことが原因であると推察される。一方、図 4.5(d) に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, $(1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$ の回折強度パターンに対し、プリセッション 3PIE で再構成した試料位相像を示している。なお、反復計算は各試料角度において更新計算を 2 回ずつ行い、合計が 1000 回になるまで行った。モデル試料とほぼ同等の再構成位相像が得られており、マルチスライス X 線タイコグラフィとプリセッション測定の併用が光軸分解能の向上に対して有用であることが示された。

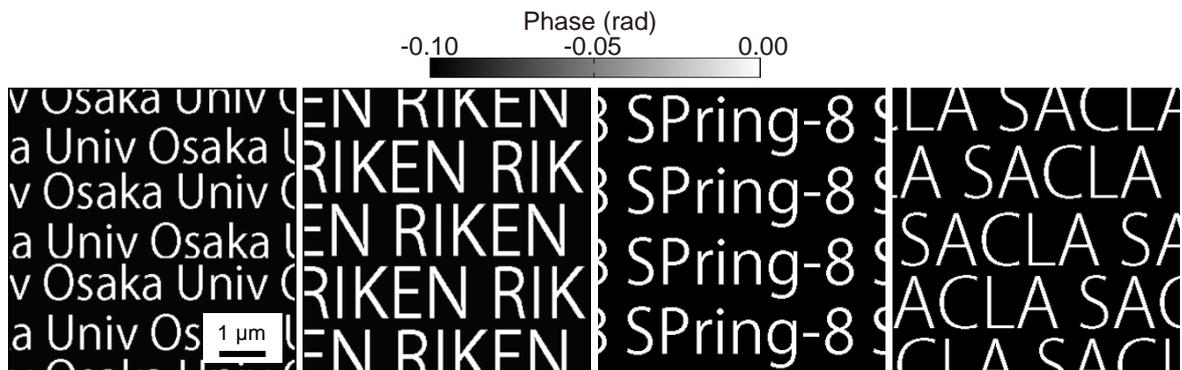


図 4.4 多層構造体のモデル試料像。4.3.1 項では上流から “Osaka Univ”, “RIKEN” の文字列を、4.3.2 項では上流から “Osaka Univ”, “RIKEN”, “Spring-8”, “SACL A” の文字列を光軸方向に $10 \mu\text{m}$ 間隔で並べたものをモデル試料として計算機シミュレーションを行った。

表 4.1 多層構造体を利用したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィ計算機シミュレーション条件

X 線エネルギー (keV)	7.0
ステップ点数	7×7
ステップ幅 (nm)	500
集光ビームサイズ (nm^2)	$\sim 500 \times 500$
回折強度パターンピクセル数	606×606
検出器ピクセルサイズ (μm^2)	20×20
カメラ長 (m)	1.368
再構成像ピクセルサイズ (nm)	20

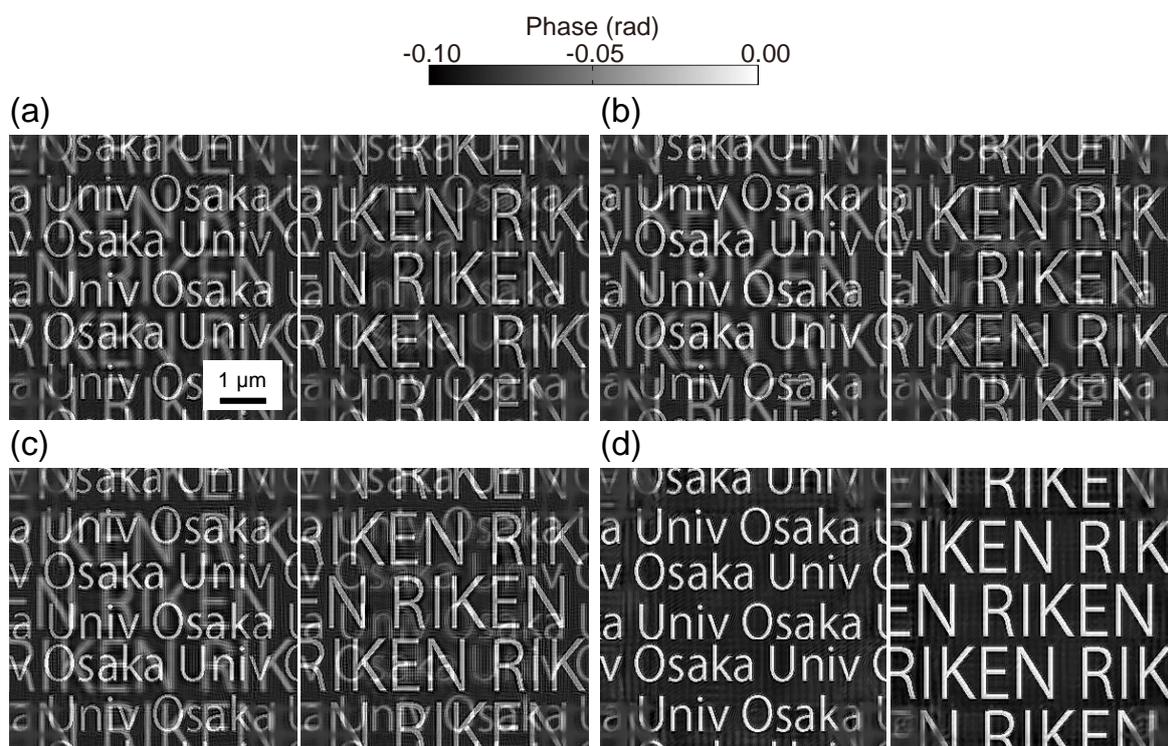


図 4.5 2 層構造体の (a-c)3PIE, (d) プリセッション 3PIE による再構成位相像. それぞれ (a) $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, (b) $(1^\circ, 0^\circ)$, (c) $(0^\circ, 1^\circ)$, (d) $(0^\circ, 0^\circ)$, $(1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$ の回折強度パターンを利用.

次に、プリセッション測定時の適切な試料回転角度を見積もるために、 0.2° 刻みで $0.2^\circ \sim 1.0^\circ$ で変化させてシミュレーションを行った。ここで、 0.2° 回転による並進移動量は $t_i \sin(0.2^\circ)/(d_y/2)=1.75$ 程度であり、この値は角度の増加に対しほぼ線形に増加する。図 4.6(a) から (d) に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ とそれぞれ $(0^\circ, 0.2^\circ)$, $(0^\circ, 0.4^\circ)$, $(0^\circ, 0.6^\circ)$, $(0^\circ, 0.8^\circ)$ の回折強度パターンに対してプリセッション 3PIE を実行し再構成した位相像を示す。図 4.6(a) では、プリセッション 3PIE が有効に機能せず、図 4.5(a), (b), (c) に近い再構成像が得られた。一方、図 4.6(b), (c), (d) の $\omega \geq 0.4^\circ$ においては 1 層目、2 層目の両層に文字が縦に伸びた形状のアーティファクトが残存しているが、図 4.6(a) に比べアーティファクトが抑制されている。これらのアーティファクトは ω 方向の回転のみではフーリエ空間における q_x 軸付近の情報を取得できない領域 (Missing wedge) が存在するためと考えられる (付録 B を参照)。この結果から、1 つの目安として $t_i \sin(0.4^\circ)/(d_y/2)=3.49$ 以上の相対位置の変化があれば、プリセッション 3PIE が有効に機能することがわかった。

最後に 2 つの回折強度パターンセットを組み合わせた再構成試料像で残存していたアーティファクトを利用する回折強度パターンの数を増加させることにより解消できるかを調べるため、 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 0.2^\circ)$, $(0^\circ, 0.4^\circ)$, $(0^\circ, 0.6^\circ)$, $(0^\circ, 0.8^\circ)$ の回折強度パターンに対しプリセッション 3PIE を実行した。図 4.6(e) に再構成位相像を示しており、試料回転角度を細かくし利用する測定データを増加させても像質の改善は見られなかった。この結果は付録 B の説明にも合致しており、1 方向の細かな試料回転よりも、2 方向の試料回転を行う方が有用であることが示された。

4.3.2 4 層構造体を用いた計算機シミュレーション

層数が増加したマルチスライス X 線タイコグラフィにおいてプリセッション測定が有用であるかを調査するために、4 層構造体を利用した計算機シミュレーションを行った。シミュレーション条件は、4.3.1 項と同様とし、試料は Au 35 nm 厚の膜上に図 4.4 に示す “Osaka Univ”, “RIKEN”, “SPring-8”, “SACLA” の真空構造を持つ 4 つの構造体を $10 \mu\text{m}$ 間隔で並べたもの想定した。図 4.7(a) に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ の回折強度パターンに 3PIE, (b) に $(0^\circ, 0^\circ)$, $(1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$ の回折強度パターンにプリセッション 3PIE, (c) に $(0^\circ, 0^\circ)$, $(1^\circ, 0^\circ)$, $(-1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$, $(0^\circ, -1^\circ)$ の回折強度パターンにプリセッション 3PIE を実行して再構成した各層の位相像を示している。図 4.7(a) ではすべての層の再構成像において文字列の混在だけではなく、位相シフト量が急峻に変化するアーティファクトが発生した。これは層数が増加し、再構成する未知数が増加することにより発生したと考えられる。このアーティファクトは図 4.7(b), (c) にも残存しているが、(c) で最もアーティファクトの影響が小さくなっている。以上の結果から、プリセッション測定が光軸分解能の向上のみならず、層数が増加したことにより発生したアーティファクトの抑制に有効であることが示唆された。

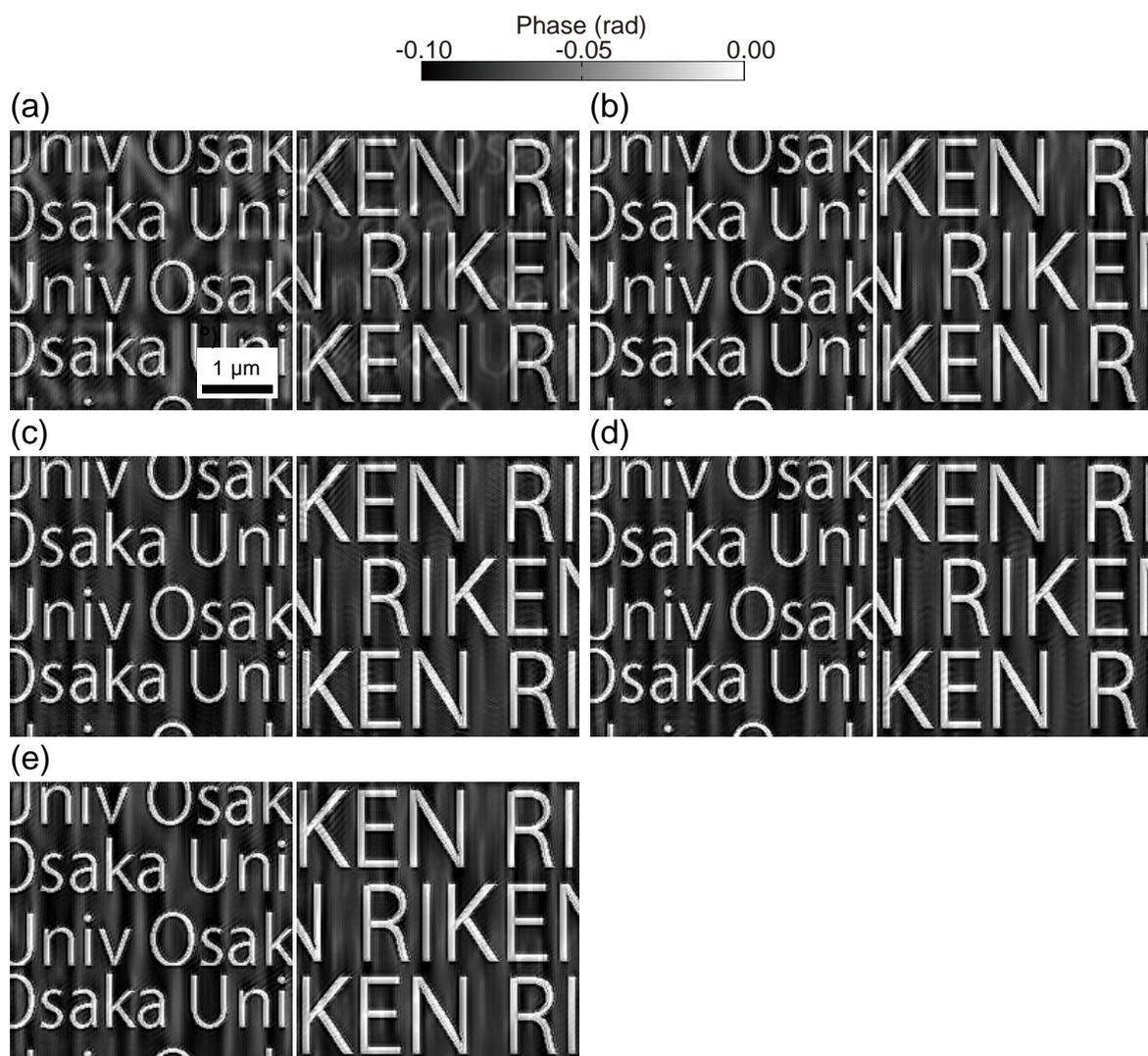


図 4.6 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ と組み合わせる試料角度を変えながら再構成した 2 層構造体のプリセッション 3PIE 再構成位相像. (a)($0^\circ, 0.2^\circ$). (b)($0^\circ, 0.4^\circ$). (c)($0^\circ, 0.6^\circ$). (d)($0^\circ, 0.8^\circ$). (e)($0^\circ, 0.2^\circ$), ($0^\circ, 0.4^\circ$), ($0^\circ, 0.6^\circ$), ($0^\circ, 0.8^\circ$).

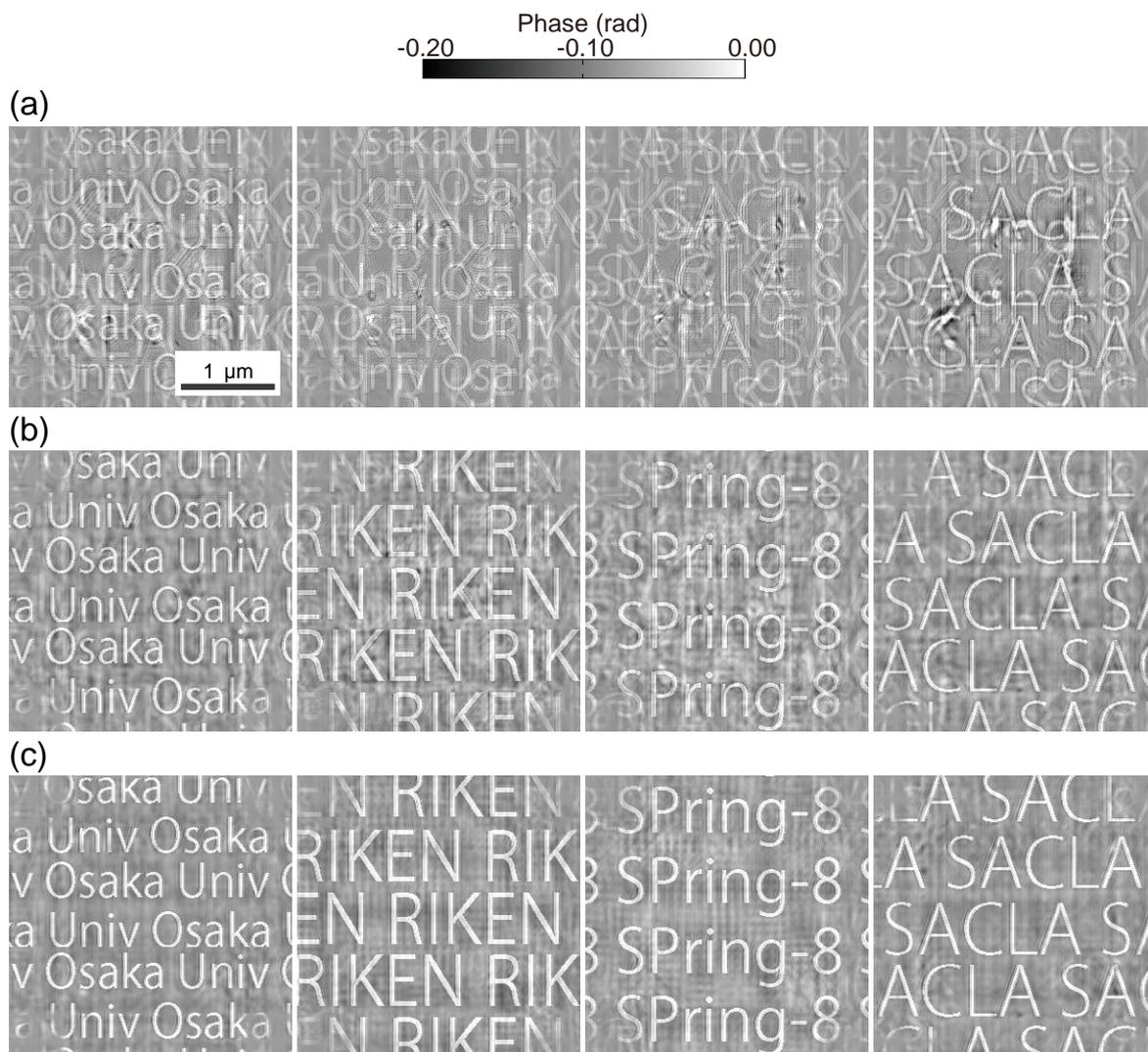


図 4.7 (a)3PIE, (b-c) プリセッション 3PIE による 4 層構造体の再構成位相像. それぞれ (a) $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, (b) $(0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ)$, (c) $(0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ)$ の回折強度パターンを利用.

4.3.3 連続体を用いた計算機シミュレーション

これまでの計算機シミュレーションでは、試料として距離を設けながら2次元画像を積層した多層構造体を取り扱ってきたが、本手法が連続体に対しても有用か調査するためにAuナノポーラスを用いた計算機シミュレーションを行った。6.5 keVのX線を $500 \times 500 \text{ nm}^2$ に集光し、点数 5×5 、幅300 nmの格子状の各点に照射することを想定し、回折強度パターンの計算をした。なお、フォトンショットノイズ、ビームストップは考慮していない。試料は図4.8(a)に示すような厚さ $\sim 1 \mu\text{m}$ 、空孔直径225 $\sim 375 \mu\text{m}$ 、空孔率50%のAuナノポーラスを想定した。回折強度パターンの算出ではボクセルサイズ4.84 nm、 $1663 \times 1663 \times 250$ voxelsからなる3次元モデル試料に対し250層の層間で伝播計算を行った。また、プリセッション測定における回折強度パターンの算出は $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ), (1^\circ, 1^\circ), (-1^\circ, 1^\circ), (1^\circ, -1^\circ), (-1^\circ, -1^\circ)$ の計9つの角度で行い、並進移動による近似ではなく3次元モデルを回転した試料に対して行った。その他のシミュレーション条件は表4.2にまとめており、これまでのシミュレーションと同様にSPring-8 BL29XULでの実験を模す条件を採用している。本シミュレーション条件において、式(2.48), (2.49)から算出される1方向の測定における理論分解能は面内、光軸それぞれ $d_{x,y}=9.67 \text{ nm}$ 、 $d_z=981 \text{ nm}$ となり、プリセッション測定を併用した場合は、式(4.2)より $d'_z=354 \text{ nm}$ となる。

図4.8(c)に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ の回折強度パターンに対し3PIE, (d), (e)にそれぞれ $(0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ)$ の回折強度パターン, $(0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ), (1^\circ, 1^\circ), (-1^\circ, 1^\circ), (1^\circ, -1^\circ), (-1^\circ, -1^\circ)$ の回折強度パターンに対しプリセッション3PIEを実行して再構成した試料位相像を示している。再構成計算では試料が500 nm厚の2層からなるとし、プリセッション3PIEでは1つの角度での反復計算を20回、合計1000回となるまで計算した。また、照射関数は既知とした。図4.8(c)では、光軸分解能が不足しているために1層目、2層目ではほぼ同様の試料像が再構成されていた。一方、図4.8(d), (e)ではそれぞれの層の構造がおおよそ再構成されているが、他層の構造や構造の跡のようなアーティファクトが混在していることが確認された。また、(d), (e)で利用している回折強度パターンの数は異なるが再構成位相像に大きな差はなかった。再構成位相像

表 4.2 連続体を利用したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィ計算機シミュレーション条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	9×9
ステップ幅 (nm)	300
集光ビームサイズ (nm^2)	$\sim 500 \times 500$
回折強度パターンピクセル数	1167×1167
検出器ピクセルサイズ (μm^2)	75×75
カメラ長 (m)	2.219
再構成像ピクセルサイズ (nm)	4.84

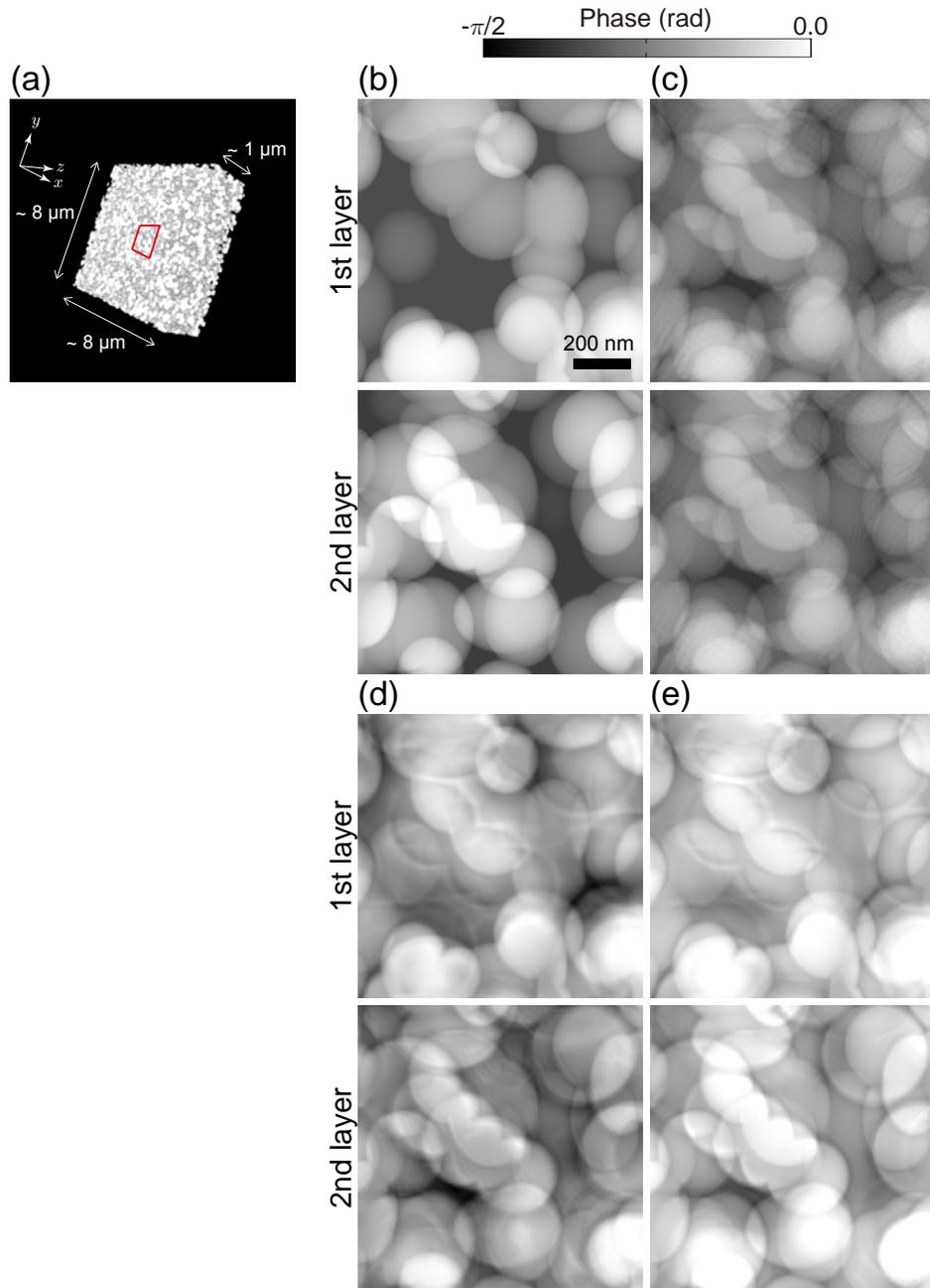


図 4.8 (a)Au ナノポーラスの 3 次元モデル画像. (b)3 次元モデルを 2 層に分割したときの赤正方形部投影像. (c-e)Au ナノポーラスの 3PIE, プリセッション 3PIE による再構成位相像. それぞれ (c) $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, (d) $(0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ)$, (e) $(0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ), (1^\circ, 1^\circ), (-1^\circ, 1^\circ), (1^\circ, -1^\circ), (-1^\circ, -1^\circ)$ の回折強度パターンを利用.

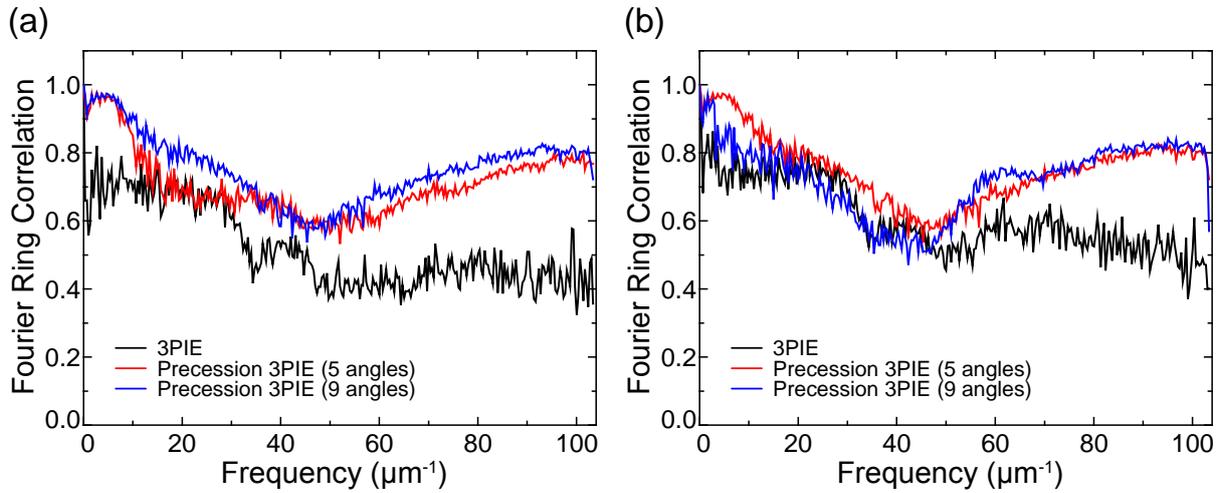


図 4.9 Au ナノポーラス再構成位相像の FRC. (a)1 層目. (b)2 層目.

の像質を定量的に評価するために、図 4.8(b) のオリジナル画像とそれぞれの再構成位相像に対し以下の式で表される Fourier Ring Correlation(FRC) [100] を計算した. FRC は逆空間における 2 つの画像の相関を空間周波数の関数として表すもので、

$$FRC(q') = \frac{\sum_{|\mathbf{q}| \in q'} F_1(\mathbf{q}) F_2^*(\mathbf{q})}{\sqrt{\sum_{|\mathbf{q}| \in q'} |F_1(\mathbf{q})|^2 \sum_{|\mathbf{q}| \in q'} |F_2(\mathbf{q})|^2}} \quad (4.8)$$

と定義される. ここで、 \mathbf{q} は空間周波数ベクトル、 F_1 、 F_2 は 2 次元画像のフーリエ変換を表す. 図 4.9(a), (b) にそれぞれ 1 層目、2 層目の FRC を示す. どちらの層についても 3PIE に比べ、プリセッション 3PIE による再構成像が高い FRC 値を示した. また、利用する角度数が異なる場合にはほぼ同様の FRC 値が得られていた. これは、本計算機シミュレーションにおいて、各層に発生しているアーティファクトや他層の混在の抑制に対して測定角度数の増加が効果的でないことを示している.

各層に発生したアーティファクトの性質を詳しく調べるために、図 4.10(a) に示す試料を 250 nm 毎の 4 層に分割したオリジナル画像と図 4.8(d) の 1 層目、2 層目の再構成位相像との FRC を算出した. 図 4.10(b), (c) にそれぞれ 1 層目、2 層目の FRC を示している. 1 層目では上流の層ほど、2 層目では下流の層ほど高い FRC 値をとる傾向が見られた. つまり、混在している他層の構造は分割した各層の境界に近いものが含まれていることを示している. 以上のように、連続体に対して本手法を適用する場合には試料分割の境界付近の試料構造が各再構成位相像に混在する傾向にあり、各層の完全な投影像を取得することは困難であることが示唆された. 像質の高い各層の投影像を再構成するためには、第 5 章で紹介する 3 次元マルチスライス位相回復計算法での再構成計算が必要となる.

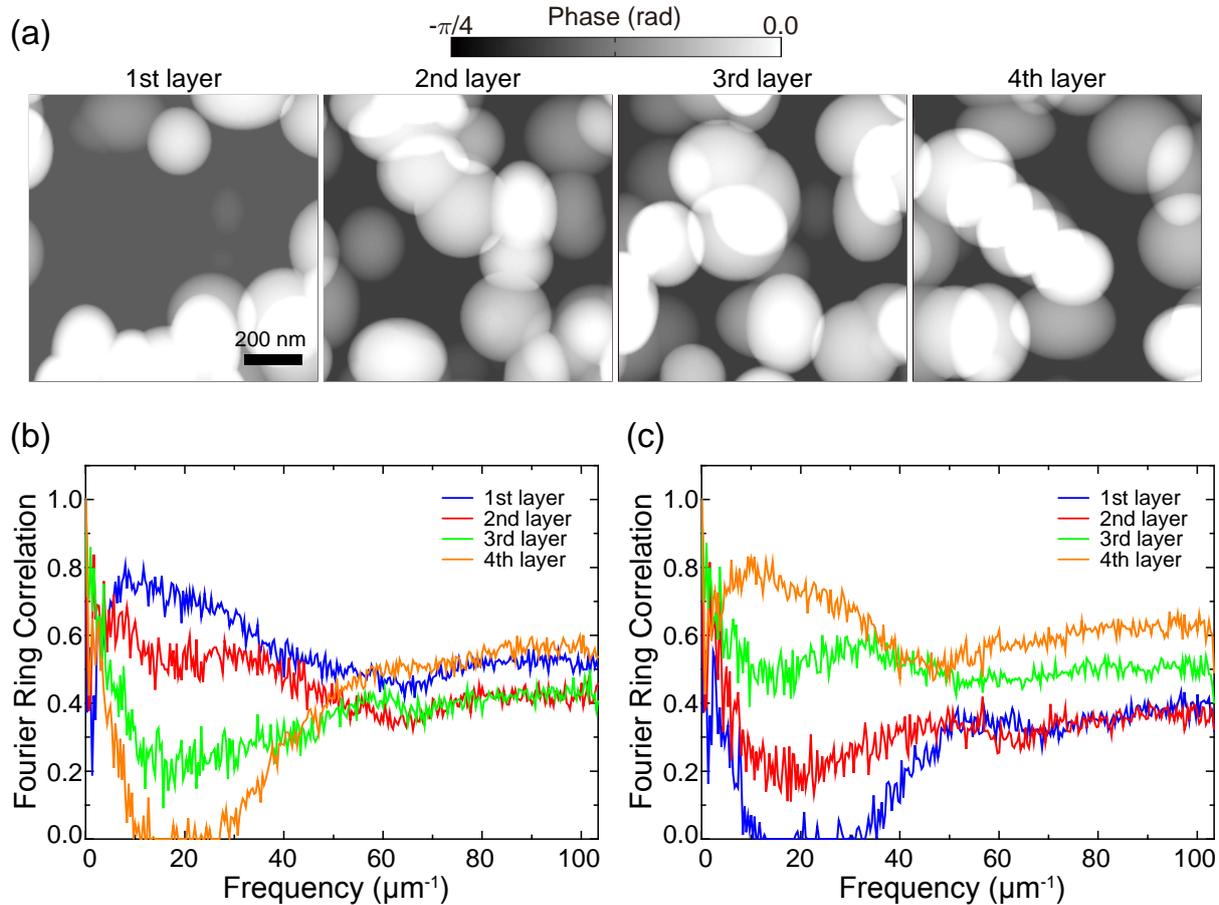


図 4.10 (a)4 層に分割した Au ナノポーラスのオリジナル画像. (b-c) オリジナル画像と図 4.8(d) の再構成位相像の FRC. (b)1 層目. (c)2 層目.

4.4 プリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィの実証実験

4.4.1 4 層構造体試料の作製

これまでの計算機シミュレーションにより、プリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィが特に光軸方向に離散的な構造を持つ試料に対して有効であることが示された。本手法を実験的にも実証するために、シミュレーションに利用した 4 層構造体に近い試料を作製した。以下に 4 層構造体の作製手順を示す。

- (1) Si 部厚さ 100 μm , Si_3N_4 部厚さ 200 nm のメンブレン上に Au 25 nm をスパッタ蒸着した。スパッタ蒸着には、イオンコーター (エイコー社製 IB-3) を用いた。
- (2) アラルダイトと粒径 10 μm のギャップ制御用の微粒子 (積水化学工業社製) を 1 対 1 の割合で混合し、これを接着剤として 2 枚の Si_3N_4 メンブレンのフラット面同士を貼り合わせた。接着剤を十

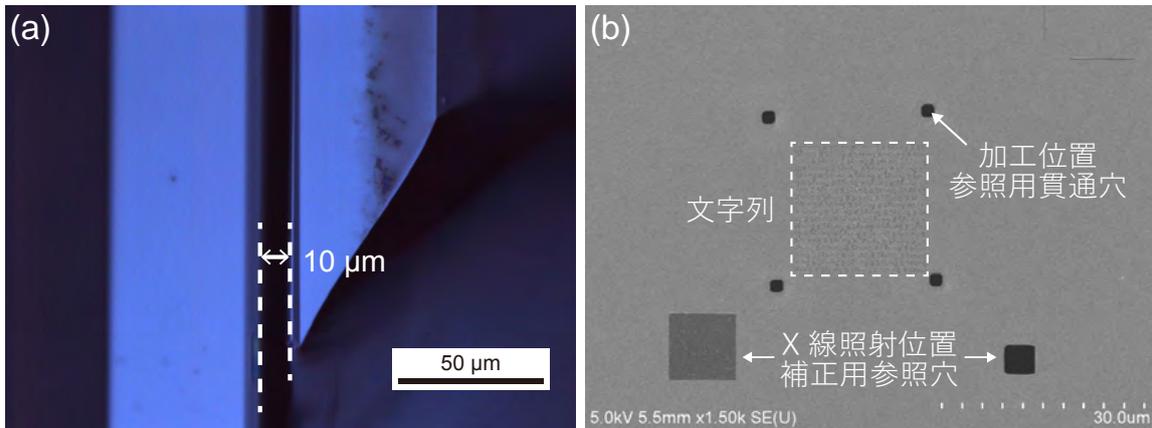


図 4.11 (a)4層構造体の2, 3層目の側面の光学顕微鏡像。ギャップ制御用微粒子によって層間距離を $10\ \mu\text{m}$ に制御している。(b)4層目表面のSEM像。文字列の他に各層で同じ領域に文字列を加工するための貫通穴やX線照射位置補正用の参照穴が加工されている。

分乾燥させた後、光学顕微鏡で断面を観察したところ、図 4.11(a) に示すように層間距離を $10\ \mu\text{m}$ 程度に制御できていることが確認された。

- (3) 貼り合わせた Si_3N_4 メンブレンの各層に“RIKEN”，“Osaka Univ.”の文字列を集束イオンビーム装置 (Focused Ion Beam system : FIB)(日立ハイテクノロジー社製 FB-2100) により加工した。加工後表面を走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscopy : SEM) で観察したところ、図 4.12 に示すように文字列の線幅は $100\ \text{nm}$ 程度であることが確認された。
- (4) テーパー面を Au スパッタ蒸着したメンブレンを (3) までに作製した 2 層構造体にアラルダイトのみを用いて接着した。その後、収束イオンビーム装置により既に加工した文字列を囲うように貫通穴を加工した。これは、図 4.11(b) に示すように新たに貼り合わせたメンブレン上に文字列を加工する際、加工位置を参照するために利用される。
- (5) テーパー面を Au スパッタ蒸着したメンブレンを (4) までに作製した 3 層構造体に貼り合わせた後、(4) で加工した面から位置基準となる貫通穴，“SPRING-8”の文字列，入射 X 線の照射位置補正用の基準穴 [42] を加工した。その後、最後に貼り合わせたメンブレン上に“SACLA”の文字列を加工した。

4.4.2 プリセッションタイコグラフィ測定

SPRING-8 BL29XUL にて、作製した 4 層構造体のプリセッション X 線タイコグラフィ測定を行った。図 4.13 に実験模式図を示す。6.5 keV の X 線を K-B ミラーにより $\sim 500 \times 500\ \text{nm}^2$ に集光し、試料上の $500\ \text{nm}$ 間隔の格子状 $9(\text{H}) \times 7(\text{V})$ 点に照射して回折強度パターンを測定した。それぞれの照射点における露光時間は 75 秒とした。測定した回折強度パターンは 2×2 のソフトウェアビニングを施し、

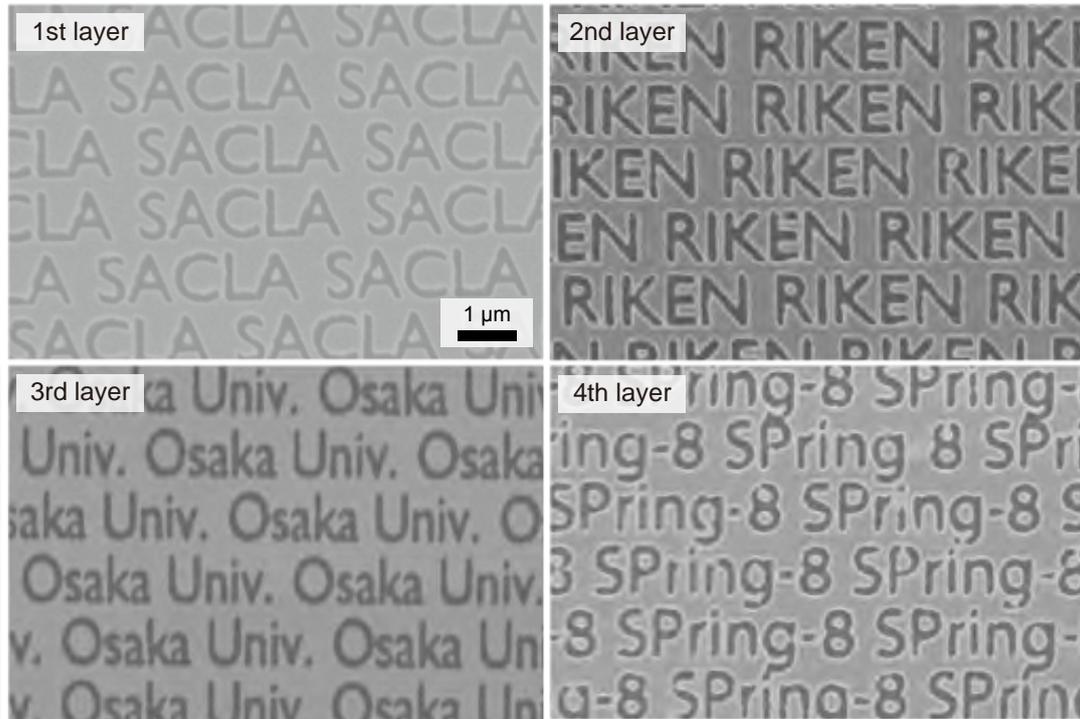


図 4.12 4 層構造体の SEM 像。Au25 nm の薄膜上に上流からそれぞれ“SACLA”，“RIKEN”，“Osaka Univ.”，“SPring-8”という文字列が線幅 100 nm 程度で加工されている。

S/N 比，再構成計算速度を向上させた。試料－検出器間距離は 1.378 m，利用した回折強度パターンのビニング後のピクセル数は 328 となるため，理論上達成可能な面内，光軸分解能はそれぞれ $d_{x,y}=40.1$ nm， $d_z=16.8$ μm と算出される。以上の測定条件は，表 4.3 にまとめている。

試料は 4.4.1 項で作製した 4 層構造体を利用した。図 4.13 に示されるように，上流から 100 μm ，10 μm ，100 μm の層間距離を有している。タイコグラフィ測定は $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ の試料角度に加え， $(1^\circ, 0^\circ)$ ， $(-1^\circ, 0^\circ)$ ， $(0^\circ, 1^\circ)$ ， $(0^\circ, -1^\circ)$ の計 5 方向で行った。式 (2.48)，(2.49)，(4.2) からプリセッション測定時の光軸分解能は $d'_z=2$ μm と算出される。試料回転には角度分解能 0.0012° ，繰り返し位置決め精度 $\pm \leq 0.001^\circ$ を有するシーベルステージ (神津精機社製) を利用した。最大層間距離を 210 μm とした場合，繰り返し位置決め誤差による並進移動量の誤差は最大で $210 \mu\text{m} \times \sin(0.001^\circ)=3.67$ nm とピクセルサイズよりも小さく，十分な繰り返し位置決め精度を有している。なお，プリセッション測定時には，X 線照射位置補正用の基準穴から照射領域までの距離が $l - l \cos \varphi$ (l :基準位置から照射位置までの距離) と変化してしまうが，今回の実験条件では $l \sim 20 \mu\text{m}$ ， $l - l \cos(1^\circ) = 3.0$ nm と非常に微小な変化になるため，特に考慮せず測定を行った。

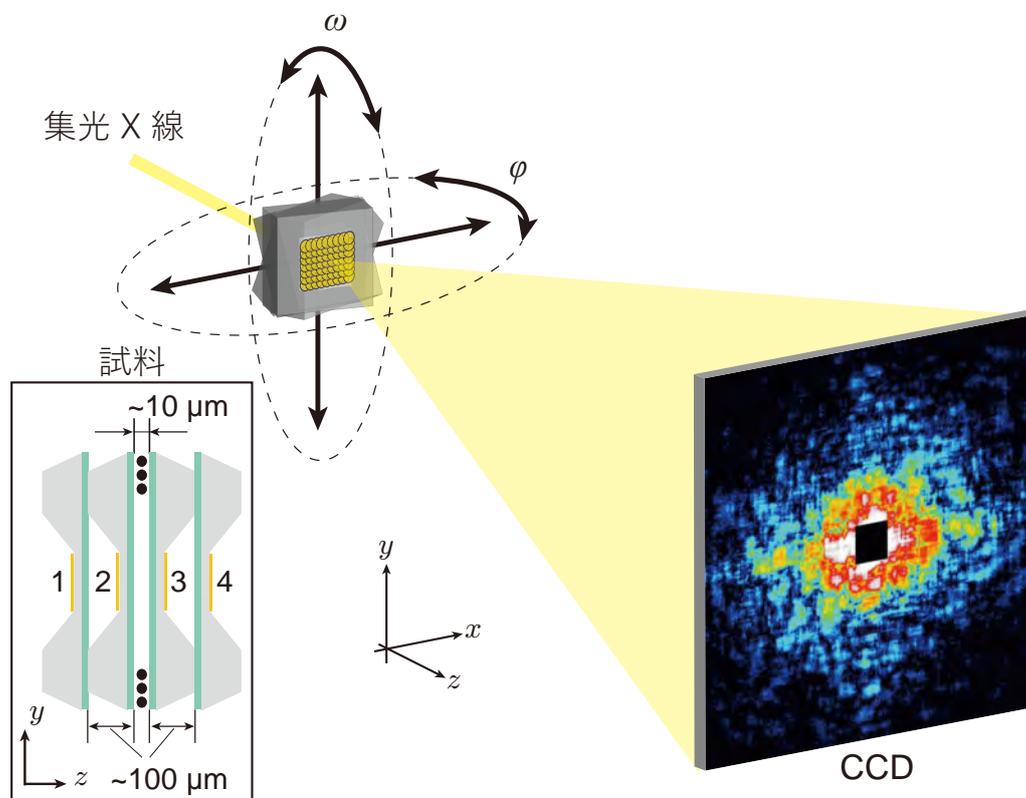


図 4.13 4 層構造体のプリセッション測定模式図. 上流から $100\ \mu\text{m}$, $10\ \mu\text{m}$, $100\ \mu\text{m}$ の層間距離を有した 4 層構造体を $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$, $(1^\circ, 0^\circ)$, $(-1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$, $(0^\circ, -1^\circ)$ の計 5 つの試料角度でタイコグラフィ測定を行った. 主なタイコグラフィ測定条件は, 表 4.3 にまとめている.

表 4.3 4 層構造体の X 線タイコグラフィ測定条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	9×7
ステップ幅 (nm)	500
集光ビームサイズ (nm^2)	$\sim 500 \times 500$
露光時間 (s)	75
回折強度パターンピクセル数	656×656
検出器ピクセルサイズ (μm^2)	20×20
カメラ長 (m)	1.378
再構成像ピクセルサイズ (nm)	20

4.4.3 各試料角度における 3PIE 再構成位相像

各試料角度での 3PIE 再構成に先立ち、 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ の測定データを利用して層間距離の最適化を行った。 l 層目と $l+1$ 層の層間距離を t_l としたとき、設計値の層間距離 $(t_1, t_2, t_3) = (100 \mu\text{m}, 10 \mu\text{m}, 100 \mu\text{m})$ から t_1, t_2, t_3 をそれぞれ $1 \mu\text{m}$ 単位で系統的に変化して再構成計算を行い、式 (2.24) で示した測定回折強度パターンと再構成回折強度パターンの差分を規格化した誤差を評価基準として利用した [17, 39]。 図 4.14 に $(t_1, t_2, t_3) = (100 \mu\text{m}, 10 \mu\text{m}, 100 \mu\text{m})$, $(111 \mu\text{m}, 11 \mu\text{m}, 113 \mu\text{m})$ として 3PIE 再構成計算したときの規格化誤差を示す。 僅かな違いではあるが $(111 \mu\text{m}, 11 \mu\text{m}, 113 \mu\text{m})$ の場合に最小値が得られたことから、以後の計算ではこの層間距離を最適値として利用した。

層間距離、3PIE 再構成計算の各種パラメーターの最適化を行った後、各試料角度において再構成した 4 層構造体の試料位相像を図 4.15 から図 4.19 に示している。 なお、すべての再構成計算において反復回数は 500 回とした。 また、X 線照射位置補正用の基準構造は 4 層目に加工されているので、各試料角度の 4 層目の X 線照射領域は等しくなっており、上流の層ほど照射領域が異なっている。 各再構成像から明らかのようにすべての試料角度において、各層にアーティファクトが発生していた。 これは 4.3.2 節のシミュレーションでも確認されたように、層数が増加し位相回復計算における未知数が増加することで、収束性が悪化したためだと考えられる。 これは試料情報の冗長性を担保すること、例えば測定点数やオーバーラップ率を増加させることで一定の改善が可能であると推測される。 一方、2 層目、3 層目においては個々の文字列も再構成されていなかった。 これは光軸方向の空間分解能 d_z が不足していることが原因であると考えられる。

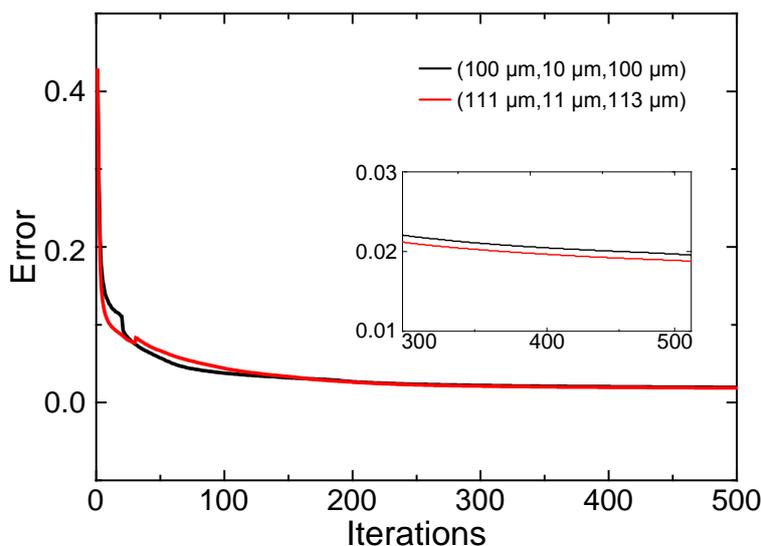


図 4.14 規格化誤差の層間距離依存性。層間距離を $1 \mu\text{m}$ 毎に系統的に変化させながら $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ の 3PIE 再構成計算を行い、式 (2.24) で定義した規格化誤差を比較して層間距離の最適化を行った。

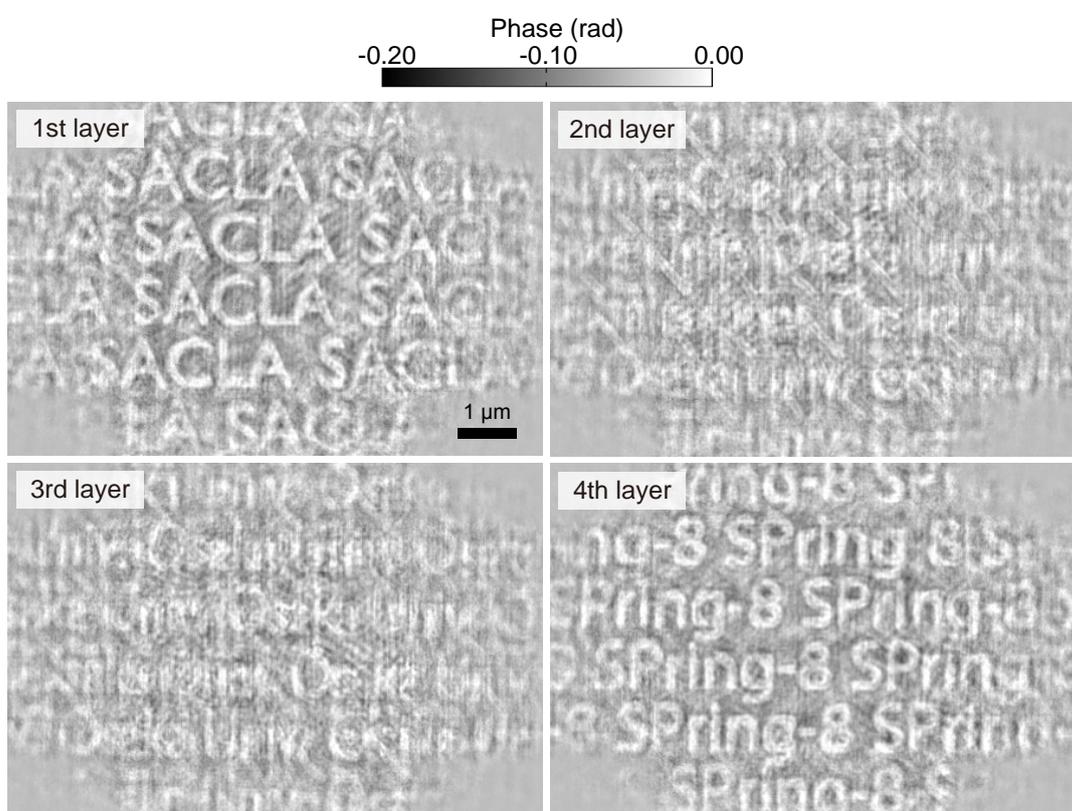


図 4.15 4層構造体の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像.

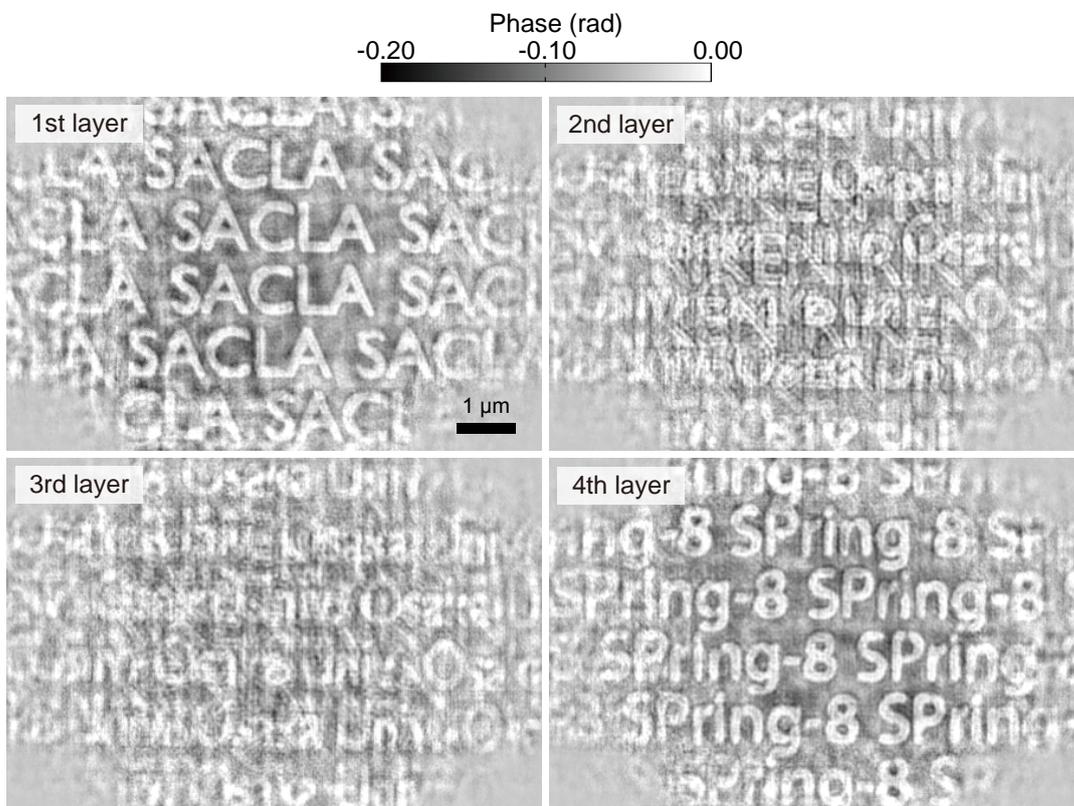


図 4.16 4層構造体の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像.

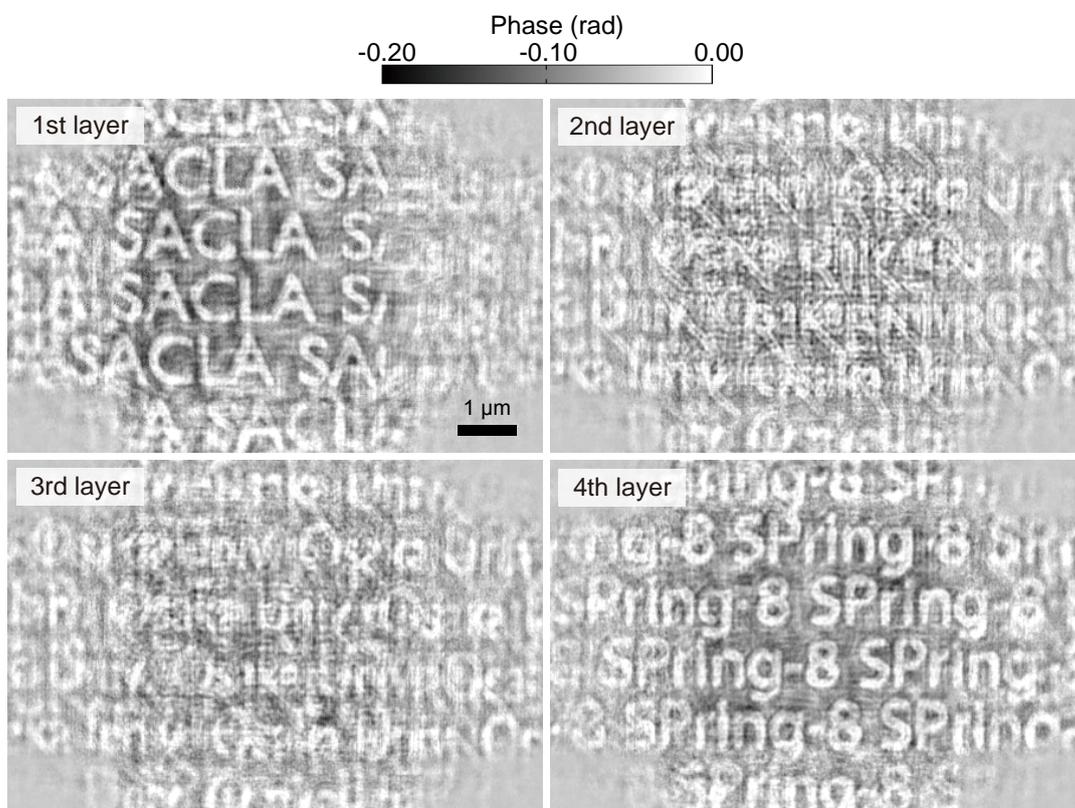


図 4.17 4層構造体の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像.

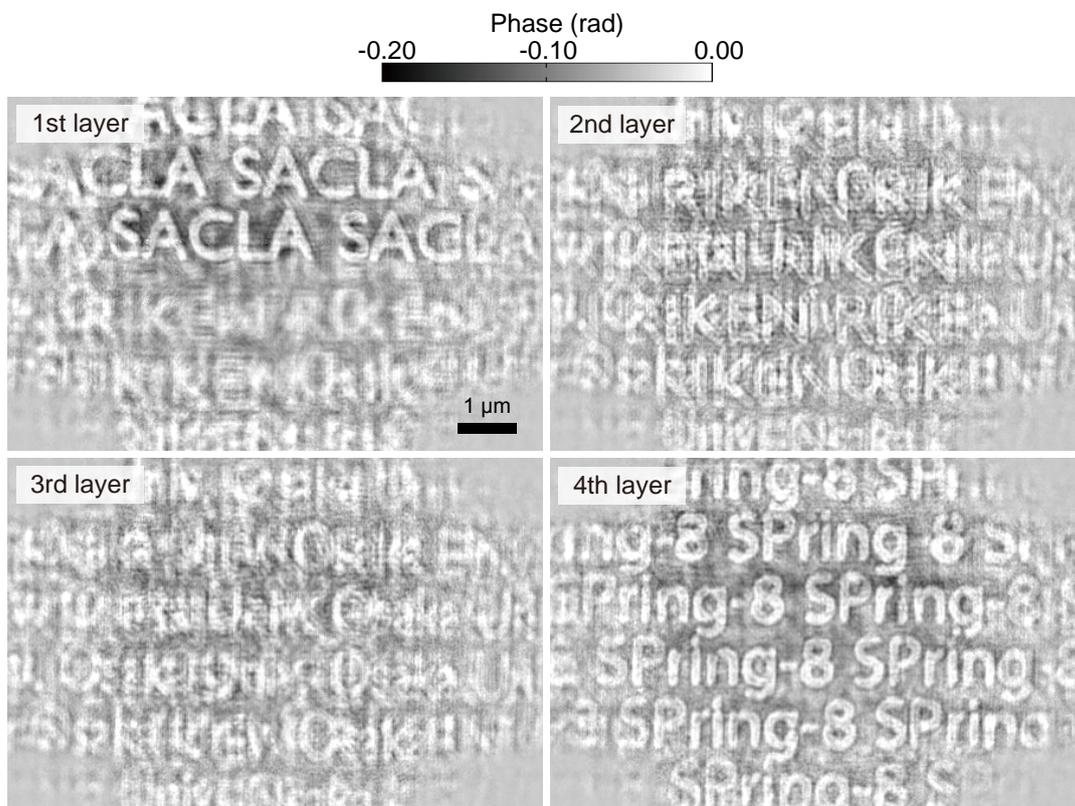


図 4.18 4層構造体の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 1^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像.

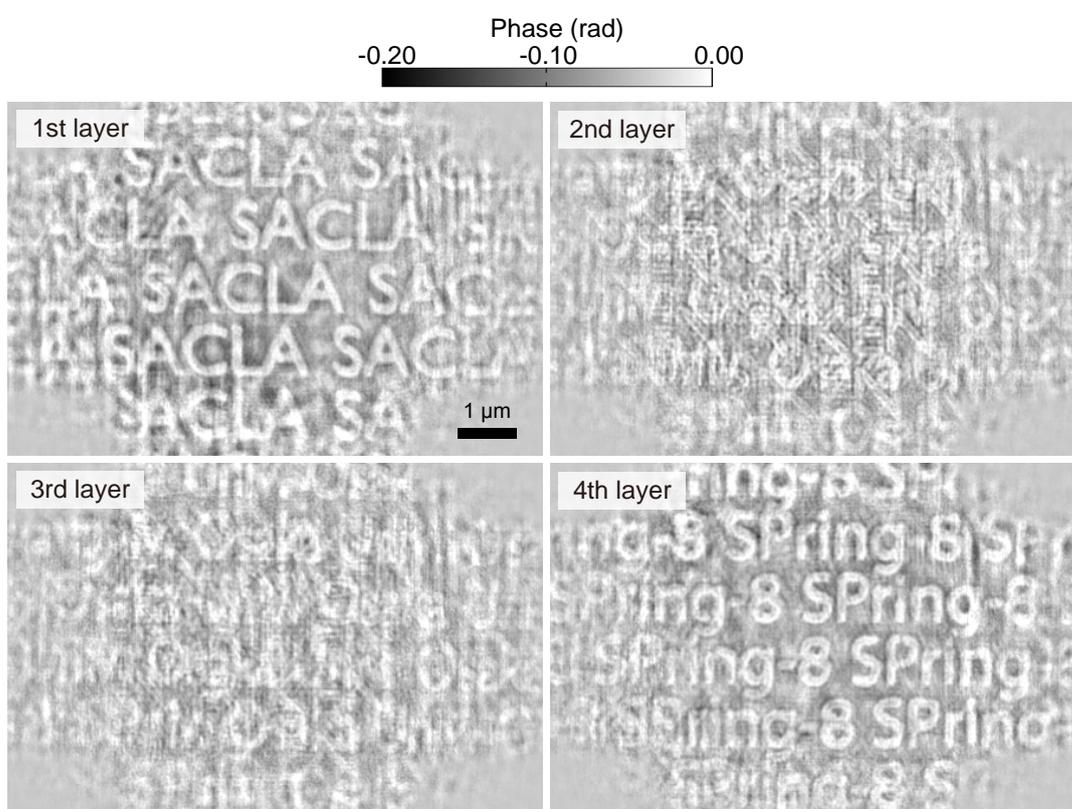


図 4.19 4層構造体の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, -1^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像.

4.4.4 プリセッション 3PIE による再構成位相像

プリセッション 3PIE による再構成計算を行う前に、4.2.3 項で示した近似条件が適用可能か検討した。測定した 4 層構造体の層間は真空となっているため、式 (4.5), (4.6) における各層の厚さ t_i は Si_3N_4 の厚み 200 nm と Au の厚み 25 nm と考えることができる。 $t_i=225$ nm, 再構成像の視野 $a = 9 \mu\text{m}$, $\varphi=1^\circ$ として式 (4.3), (4.4) で定義した i 層目の視野と層の厚さの変化量 $c_{y,i}$, $c_{z,i}$ を計算するとそれぞれ $c_{y,i}=2.6$ nm, $c_{z,i}=157$ nm となり、ともに面内、光軸分解能よりも小さくなる。つまり、本実験条件では試料の微小回転を並進移動で近似したプリセッション 3PIE が利用可能となる。

図 4.20 に試料角度 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ)$ で測定した回折強度パターンに対し、プリセッション 3PIE を実行して再構成した試料位相像を示す。図 4.15 から図 4.19 の 1 つ試料角度における 3PIE 再構成位相像に比べ、すべての層の像質が改善しており、図 4.12 の SEM 像とも良い一致を示している。層数の増加により全ての層に生じていたアーティファクトは、逆空間拘束に利用する回折強度パターンの数を増加させることによって抑制できている。また、2 層目、3 層目は光軸方向の空間分解能の不足により文字列が再構成されていなかったが、プリセッション測定により光軸方向の分解能が向上し、1 層目、4 層目と同等の像質の試料位相像を再構成することに成功している。

図 4.21 に図 4.15, 4.20, 4.12 の 2 層目、4 層目の一部を拡大したものを示している。拡大像からも明

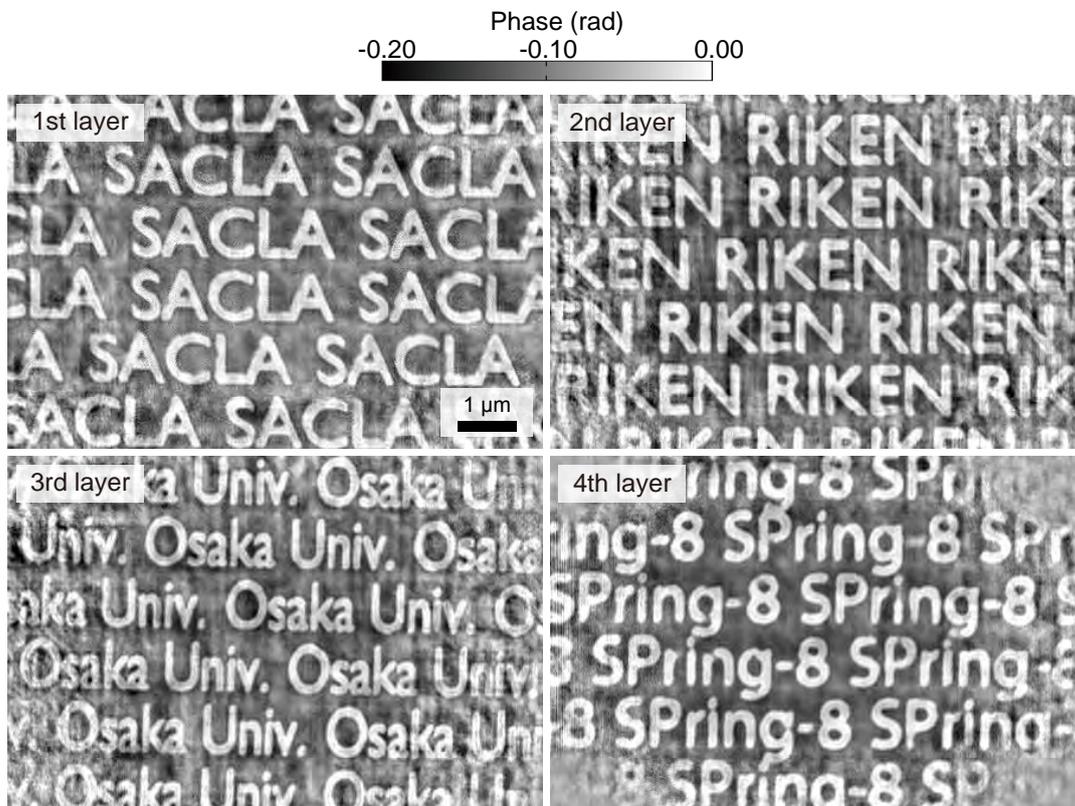


図 4.20 試料角度 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, -1^\circ)$ で測定した回折強度パターンに対してプリセッション 3PIE を実行して再構成した 4 層構造体の位相像。

らかなように、特に層間距離の小さな 2 層目において大幅な像質の改善が見られた。図 4.21(b) の黄色の矢印で示される構造は収束イオンビーム装置での文字列の加工時に生じた微細構造であるが、図 4.21(c) の SEM 像と比較しても正しく再構成されていることがわかる。図 4.21(d) は図 4.21(b) の赤線部のラインプロファイルを示している。なお、P 線上のプロファイルは表示の都合上、全体に 0.03 rad のオフセットをかけている。これらのプロファイルを微分したものをガウス関数でフィッティングし、FWHM で空間分解能を評価したところ、P、Q でそれぞれ $42.9 \pm 3.6 \text{ nm}$ 、 $43.3 \pm 2.6 \text{ nm}$ となった。

表 4.4 にラインプロファイル、層間距離から算出した面内、光軸分解能、式 (4.1)、(4.2) から算出した理論分解能をまとめている。なお、プリセッション測定時の面内分解能の理論値は式 (4.1) の逆数から算出した。実験で算出した面内分解能は理論上に近い値を得ることができている。また、光軸方向の空間分解能は $10 \mu\text{m}$ の層間距離の 2 層を分離できていることから少なくとも $10 \mu\text{m}$ 有していることがわかる。理論上の面内分解能は通常測定とプリセッション測定で変化していないが、光軸分解能は $16.8 \mu\text{m}$ から $2.0 \mu\text{m}$ まで向上している。これは、現状の光学系は最大散乱角が非常に小さく、試料の回転角度も小さいために、式 (4.1) で示した光軸方向の最大空間周波数の変化が面内方向に対して非常に敏感であることによる。このようにプリセッション測定を行うことで、面内方向の空間分解能を損なうことなく光軸方向の空間分解能を向上させ、通常測定では分離できなかった $10 \mu\text{m}$ の中央 2 層を分離して再構成することに成功した。さらに、位相回復計算で利用するデータ数を増加させることで収束性が向上し、層数が増加することで発生していた各層のアーティファクトも抑制することに成功した。

表 4.4 4 層構造体のタイコグラフィ測定における空間分解能の理論値および実験値

	理論値 (1 方向)	理論値 (プリセッション測定)	実験値
面内方向 (nm)	40.1	40.1	~ 43
光軸方向 (μm)	16.8	2.0	≤ 10

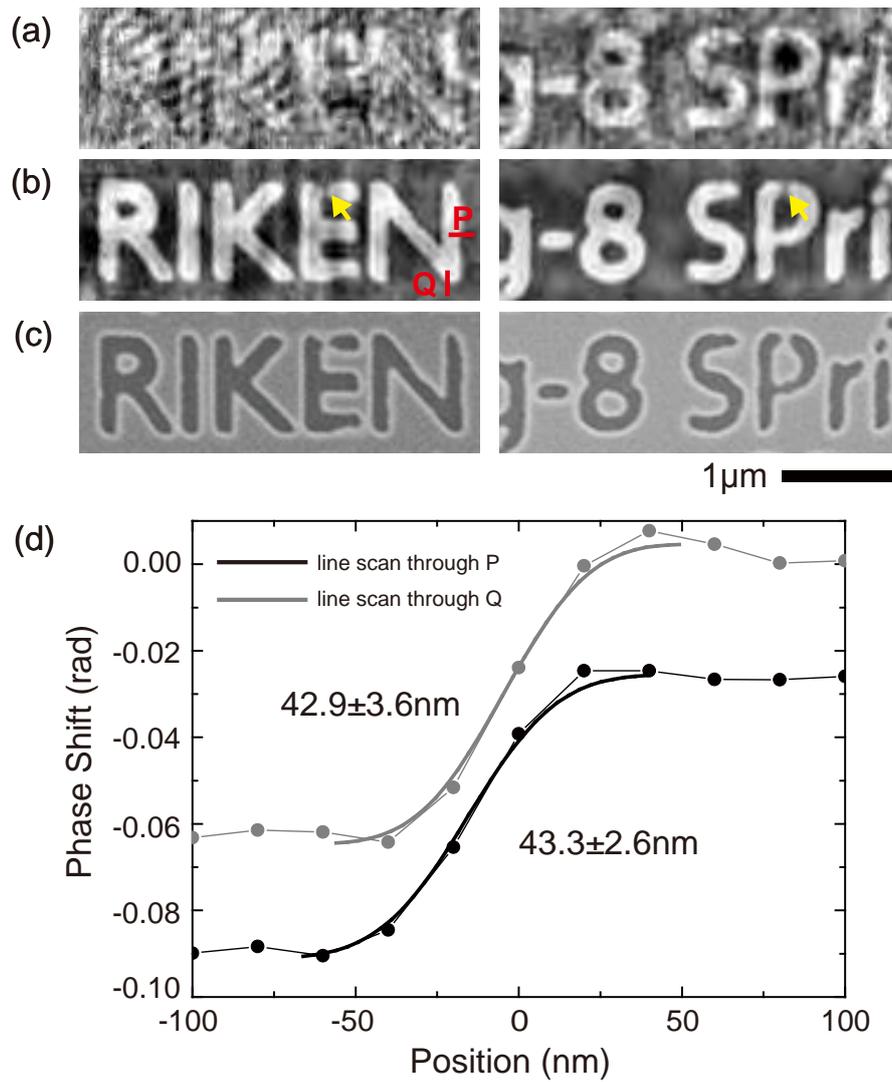


図 4.21 (a-c)3PIE, プリセッション 3PIE による 4 層構造体の再構成位相像の拡大像と同領域の SEM 像. それぞれ図 4.15, 図 4.20, 図 4.12 の一部を拡大. (a)3PIE. 試料角度は $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$. (b) プリセッション 3PIE. (c)SEM 像. (d)(b) の赤線 P, Q 上のラインプロファイル. P のプロファイルは表示の都合上, 全体に 0.03 rad のオフセットをかけている.

4.5 プリセッション X 線タイコグラフィによる実試料観察

4.5.1 多層配線のプリセッションタイコグラフィ測定

前節までに実証したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィにより化学機械研磨評価用の TEG 基板を 2 層積層させた多層配線の観察を行った。図 4.22 に多層配線の外観を示す。X 線が十分に透過するよう、ドライエッチングにより裏面の Si 面の厚さを 20 ~ 30 μm に薄片化している。通常、コンピュータ断層撮影法により試料の 3 次元構造を観察するためには円柱状の試料が必要となり、収束イオンビームでの円柱状試料作製時にダメージが導入されることが報告されている [101]。また、平板状試料の光軸方向の断面の観察が可能な X 線ラミノグラフィ [102] では、 $0^\circ \sim 360^\circ$ の試料回転が必要であり、測定が長時間化してしまう。プリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィでは、光軸分解能はマイクロメートルオーダーではあるが、平板状試料の 3 次元観察を簡易的に行うことができる。

多層配線のタイコグラフィ回折強度パターン測定は SPring-8 BL29XUL にて行った。図 4.23(a) に実験模式図を示す。6.5 keV の X 線を K-B ミラーにより $\sim 500 \times 500 \text{ nm}^2$ に 2 次元集光し、300 nm 間隔

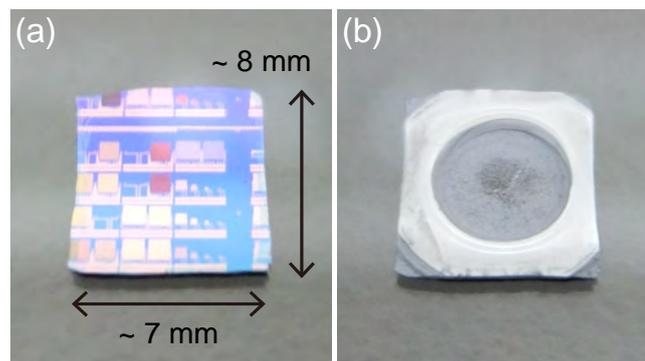


図 4.22 多層配線の外観。(a) 表面。(b) 裏面。X 線が十分に透過するよう、裏面の Si 面の厚さをドライエッチングにより 20 ~ 30 μm に薄片化している。

表 4.5 多層配線の X 線タイコグラフィ測定条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	10 × 10
ステップ幅 (nm)	300
集光ビームサイズ (nm^2)	$\sim 500 \times 500$
露光時間 (s)	50
回折強度パターンピクセル数	1317 × 1317
検出器ピクセルサイズ (μm^2)	75 × 75
カメラ長 (m)	2.219
再構成像ピクセルサイズ (nm)	4.29

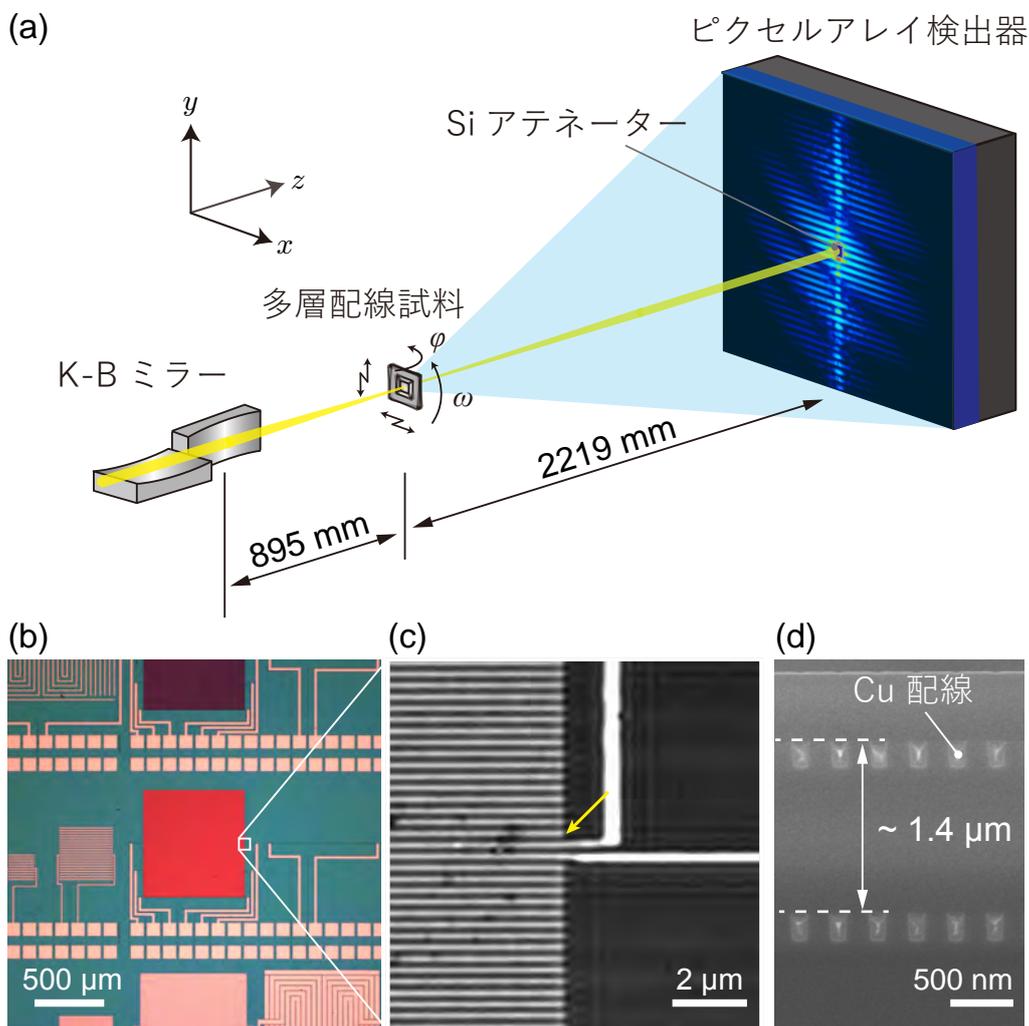


図 4.23 (a) 多層配線のプリセッションタイコグラフィ測定模式図. (b-c) 多層配線表面の顕微鏡像. (b) 光学顕微鏡像. (c) 共焦点レーザー顕微鏡像. (d) 黄矢印付近の断面 SEM 像.

の格子状 $10 \times 10 = 100$ 点に照射した. 図 4.23(b), (c), (d) にそれぞれ多層配線表面の光学顕微鏡像, 共焦点レーザー顕微鏡像, 断面 SEM 像を示しており, 図 4.23(c) のような回路が $1.4 \mu\text{m}$ 間隔で 2 層積層されている. それぞれの回路は層間絶縁膜であるオルトケイ酸テトラエチル (Tetraethyl orthosilicate: TEOS) 上にダマシ Cu 配線を含んでおり, Cu 配線の厚さと配線間隔は共に 160 nm 程度である. 回折強度パターンは試料背面 2.219 m に配置したピクセルアレイ検出器 (Dectris 社製 EIGER 1M) により測定した. 各照射位置における露光時間は 50 秒 とした. また, 検出器前面に厚さ $88 \mu\text{m}$, 大きさ $800 \times 800 \mu\text{m}^2$ の Si アテネーターを配置することで, 明視野領域の測定と回折強度パターンの実効的なダイナミックレンジの増加を実現した [103]. さらに, 高空間周波数の回折強度パターンを取得, また検出器上に存在する欠損領域を補完するため, 1つの走査点に対し 2つの検出器位置で回折強度パターンを測定した. ステッチングにより作成した回折強度パターンのダイナミックレンジは $1 : 3.2 \times 10^7$ photons/pixel, 最大空間周波数は $q_{x,y} = 116.7 \mu\text{m}^{-1}$ となり, 層間距離 $1.4 \mu\text{m}$ の 2 層構造体の各層を再構成するのに必要な空間周波数領域まで測定することができている. プリセッション測定は $(\varphi, \omega) = (0^\circ$

, 0°), $(1^\circ, 0^\circ)$, $(-1^\circ, 0^\circ)$, $(0^\circ, 1^\circ)$, $(0^\circ, -1^\circ)$, $(1^\circ, 1^\circ)$, $(-1^\circ, 1^\circ)$, $(1^\circ, -1^\circ)$, $(-1^\circ, -1^\circ)$ の計 9 つの試料角度で行った. 本測定条件における $d_{x,y}$, d_z , d'_z はそれぞれ 8.57 nm, 770 nm, 300 nm となる. これらタイコグラフィ測定の場合は表 4.5 にまとめている.

4.5.2 モデル試料を用いた各層の相対配置の推定

図 4.24(a) に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ において図 4.24 の黄矢印付近に照射したときの回折強度パターンを示す. (a) 上の黄円は 2.3.2 項で示した投影近似を満たす最大空間周波数の基準の 1 つである $q_{x,y,\max}^{projection} \simeq 1/(2D_{\max}\lambda)^{1/2}$ を表しており, この円の外側の領域の回折強度パターンを高い S/N 比で測定することがマルチスライス再構成を行うために重要となる. どちらの回折強度パターンにおいても垂直方向に伸びる周期の細かいスペックルと斜め方向に伸びる周期の大きなスペックルが観察された. 細かいスペックルは図 4.23(c) の左半分に存在する周期的な配線構造由来であると考えられ, このスペックルは他の照射位置でも観察されたが, 斜め方向に伸びるスペックルは周期配線の端に照射したときのみ観察された. 図 4.24(b) に試料角度 $(1^\circ, 0^\circ)$ における同照射位置の回折強度パターンを示しており, 斜め方向のスペックルが試料角度に応じて大きく変化する様子が観察された. 本実験条件では 4.5.4 項で詳述するようにプリセッション 3PIE の適用条件を満たしており, 試料回転を各層の相対位置の変化と考えることができるため, 斜め方向のスペックルの間隔や伸びる方向は各層の並進移動量や方向に依存していると予測される. そこで, 図 4.25(a) に示すモデル試料を用いた計算機シミュレーションにより, 2 層の相対位置と回折強度パターンの関係性を調査した. ここで, 各層の配線部は厚さ 160 nm の Cu, その他は真空として複素透過関数を与え, 層間距離は $1.4 \mu\text{m}$ に固定した. 図 4.25(b) から (1) に各層の相対位置や角度を変化させながら算出した回折強度パターンを示す. 照射位置は図 4.25(a) 赤点部を想定している. (b), (d) から (1) はそれぞれ 2 層目の相対位置を (b) $(x, y) = (0 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$, (d) $(21.4 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$,

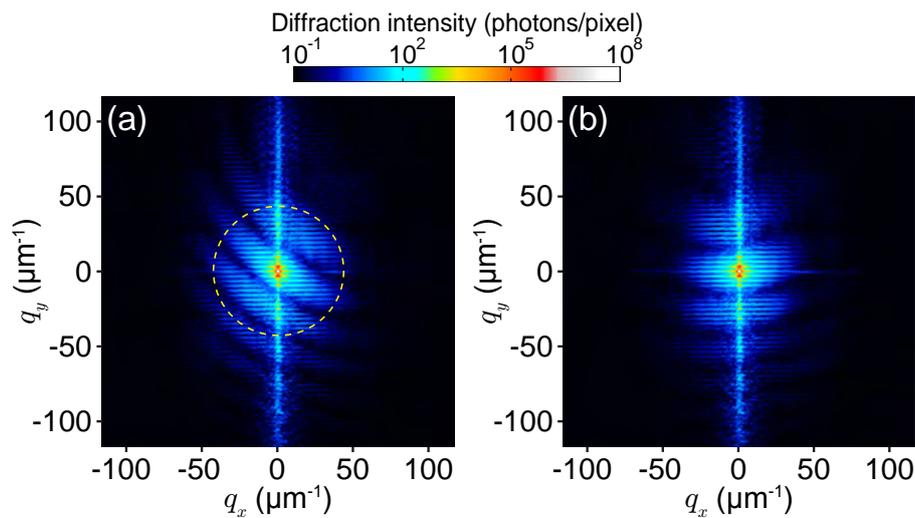


図 4.24 多層配線の回折強度パターン. (a) $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$. 黄円は 2.3.2 項で示した投影近似を満たす最大空間周波数の基準の 1 つである $q_{x,y,\max}^{projection} \simeq 1/(2D_{\max}\lambda)^{1/2}$ の境界線であり, この線の外側では投影近似が破綻する. (b) $(1^\circ, 0^\circ)$.

(e)(42.9 nm, 0 nm), (f)(-21.4 nm, 0 nm), (g)(0 nm, 21.4 nm), (h)(21.4 nm, 21.4 nm), (i)(8.6 nm, 8.6 nm), (j)(42.9 nm, 21.4 nm), (k)(21.4 nm, -21.4 nm), (l)(25.7 nm, -30.0 nm) 並進移動させたときの回折強度パターンであり, (c) は 2 層目の相対角度を反時計回りに 5° 回転させたものである. これらの回折強度パターンの比較から得られた知見を以下にまとめている.

- (1) 1, 2 層目が光軸垂直方向に対して同じ位置に配置した場合は, 大きなスペックルに周期構造は見られなかった. 一方で, 各層の相対位置を変化させたときスペックルに周期的な構造が見られたことから, スペックルの形状は相対的な並進移動量に依存していると推測される.
- (2) 相対角度を変化させた場合では, 垂直方向に伸びていた細かなスペックルが 2 つに分離していた. これは, 2 層目の周期的な配線が回転したことにより生じたと考えられる. 図 4.24 ではこのような現象は見られないことから, 2 層の相対角度は 0° に近いと推測される.
- (3) 2 層目の相対位置の並進移動方向に応じてスペックルの伸びる向きと湾曲方向が変化した. また, 移動量の増加に応じてスペックルの周期が細くなることがわかった. このことから, スペックルの伸びる方向と湾曲方向は x, y 方向の並進移動量から算出される傾きに, スペックル周期は並進移動量に依存すると推測される.
- (4) 2 層目の並進移動量 $(x, y)=(25.7 \text{ nm}, -30.0 \text{ nm})$ のとき図 4.24(a) に回折強度パターンに最も近い強度分布を算出することができ, 測定した試料はこれと同様の相対位置のズレを有していると推測される.

次に, 層間距離と回折強度パターンの関係性について調査した. 1 層目に対する 2 層目の並進移動量は $(x, y)=(25.7 \text{ nm}, -30.0 \text{ nm})$ に固定している. 図 4.26(a), (b), (c) にそれぞれ層間距離 $0 \mu\text{m}$, $1 \mu\text{m}$, $2 \mu\text{m}$ における回折強度パターンを示す. 層間距離の増加に応じてスペックルの湾曲率が増加しており, これらのスペックルに層間距離の情報も記録されていることがわかった.

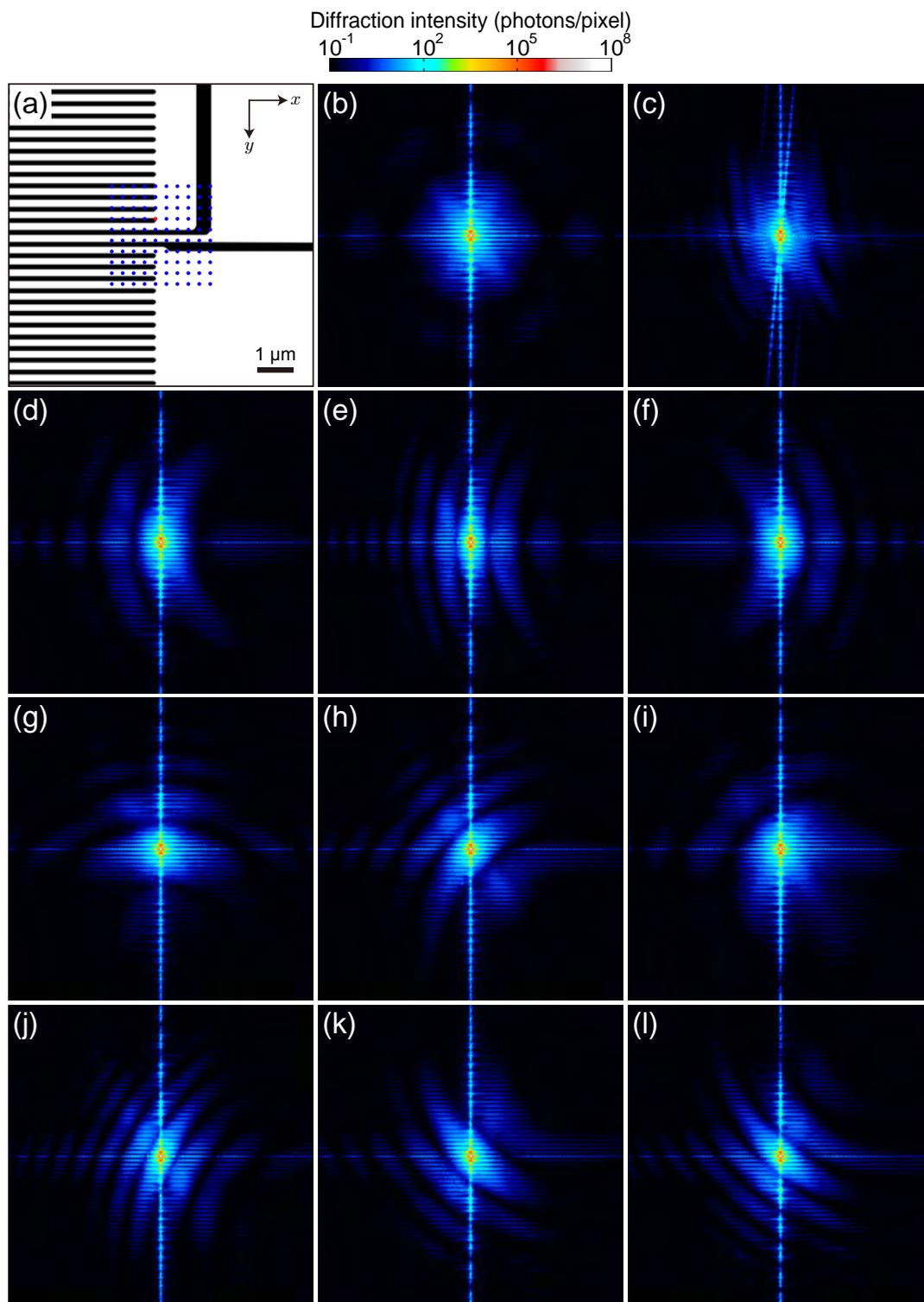


図 4.25 多層配線のモデル画像から算出した回折強度パターン. (a) 多層配線のモデル画像. (b-l) 層間距離を $1.4 \mu\text{m}$ とした 2 層構造体の相対位置を変化させながら算出した回折強度パターン. 各層には (a) のモデル画像の配線部を Cu 160 nm, その他を真空とした複素透過関数を与えた. (b) 2 層目を $(x, y) = (0 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$ 並進移動. (c) 2 層目を 5° 回転. (d) $(21.4 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$, (e) $(42.9 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$, (f) $(-21.4 \text{ nm}, 0 \text{ nm})$, (g) $(0 \text{ nm}, 21.4 \text{ nm})$, (h) $(21.4 \text{ nm}, 21.4 \text{ nm})$, (i) $(8.6 \text{ nm}, 8.6 \text{ nm})$, (j) $(42.9 \text{ nm}, 21.4 \text{ nm})$, (k) $(21.4 \text{ nm}, -21.4 \text{ nm})$, (l) $(25.7 \text{ nm}, -30.0 \text{ nm})$ 並進移動.

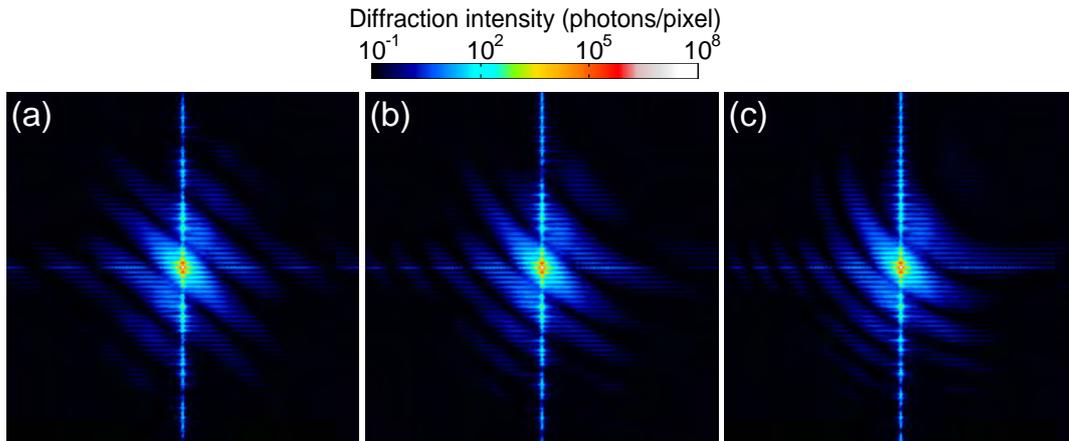


図 4.26 図 4.25 のモデル画像から作成した 2 層構造体の層間距離を変化させたときの回折強度パターン。なお、2 層目は 1 層目に対し $(x, y) = (25.7 \text{ nm}, -30.0 \text{ nm})$ 並進移動している。(a) 層間距離 $0 \mu\text{m}$. (b) $1 \mu\text{m}$. (c) $2 \mu\text{m}$.

4.5.3 各試料角度における再構成位相像

各試料角度で取得した回折強度パターンに対し、ePIE 再構成計算を実行し、試料像を再構成した。ここで、回折強度パターンは 2 photons で閾値を設けノイズを取り除いたものを利用した。また、照射関数のモード数は 2 とし、モード 1 の初期関数は表 3.3 の K-B ミラーのパラメータから算出される集光点での波動場 (付録 A を参照) を、モード 2 の初期関数はモード 1 の振幅を 0.01 倍、位相をランダムとした波動場を利用した。また、初期試料関数は均一な値を代入した。反復回数は 1000 回としている。図 4.27 から図 4.35 にそれぞれの試料角度で取得した回折強度パターンに対し ePIE を実行し再構成した試料位相像を示す。試料角度毎に像質のばらつきは見られるが、どの再構成位相像でも周期的な配線構造を再構成することに成功している。また、拡大像から 1, 2 層目の配線構造の相対位置のズレ量の大きさと方向が試料角度によって変化する様子が確認された。

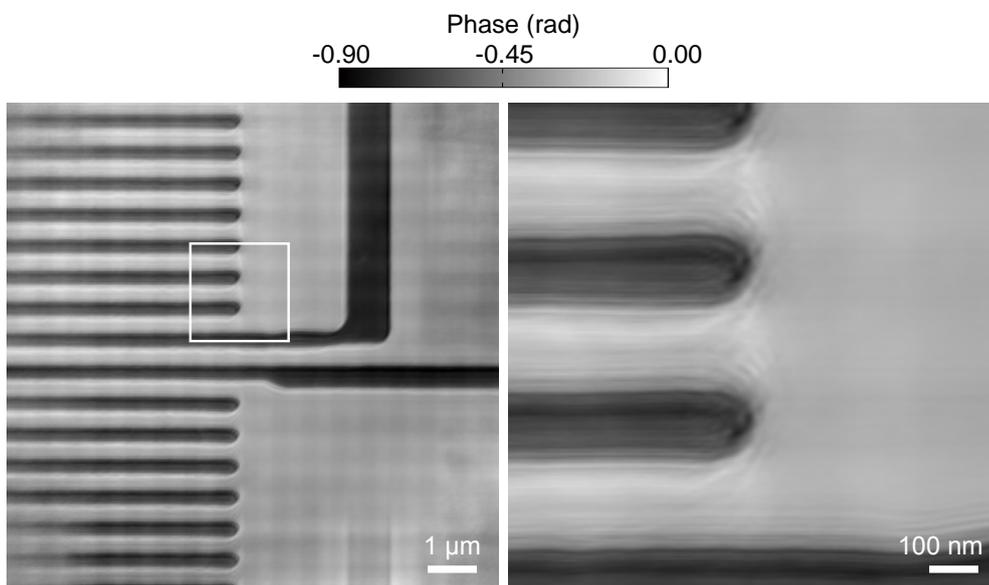


図 4.27 多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

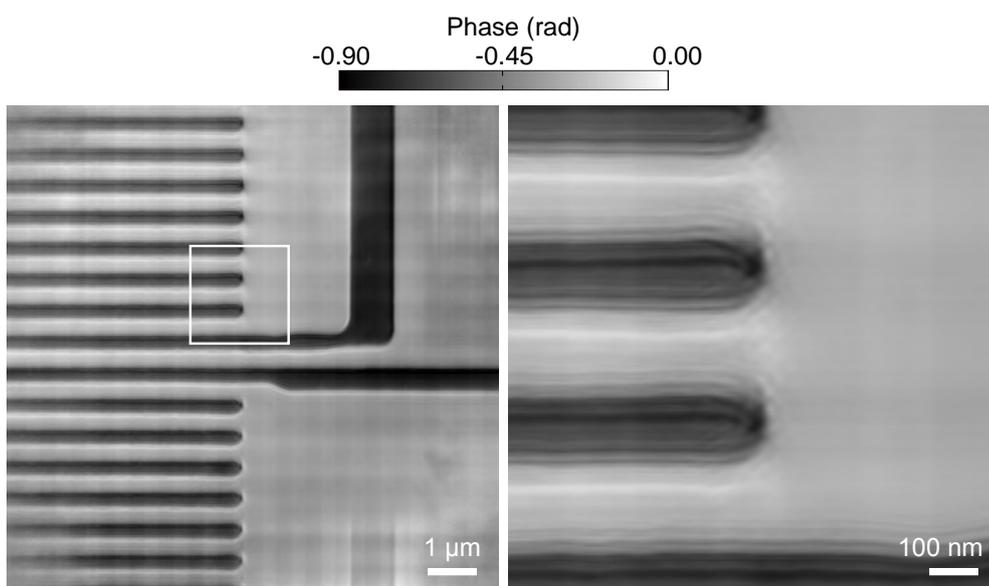


図 4.28 多層配線の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, 0^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

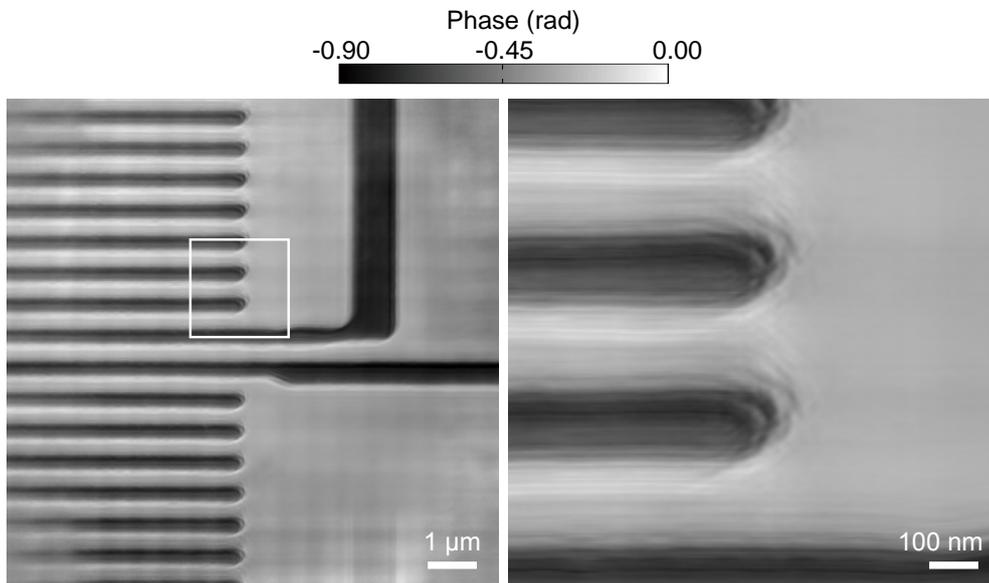


図 4.29 多層配線の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, 0^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

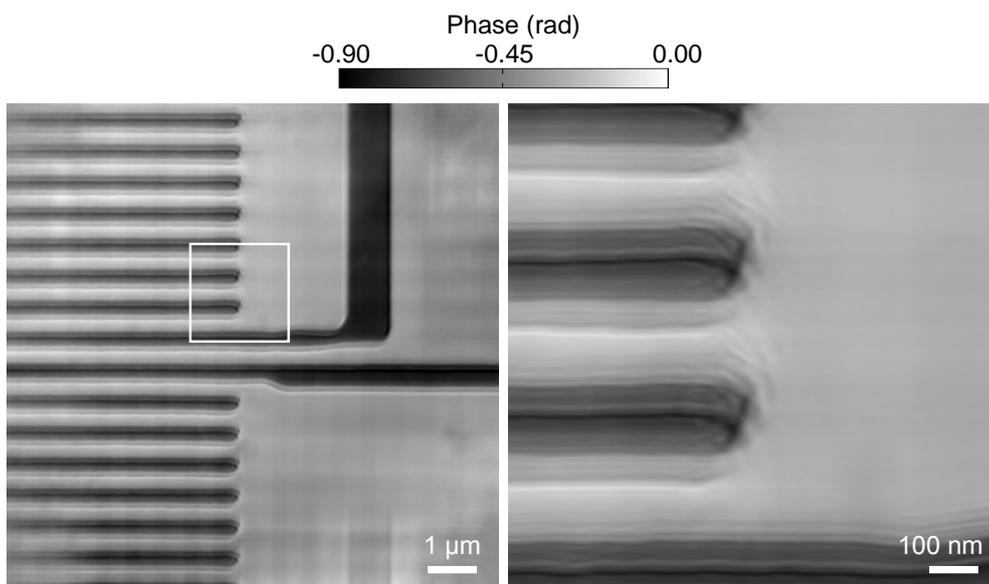


図 4.30 多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

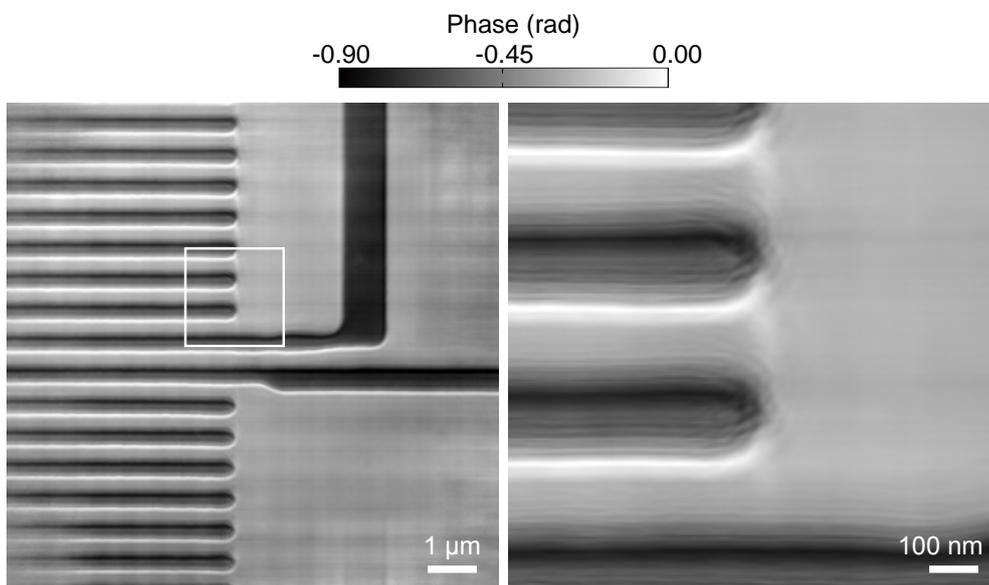


図 4.31 多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, -1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

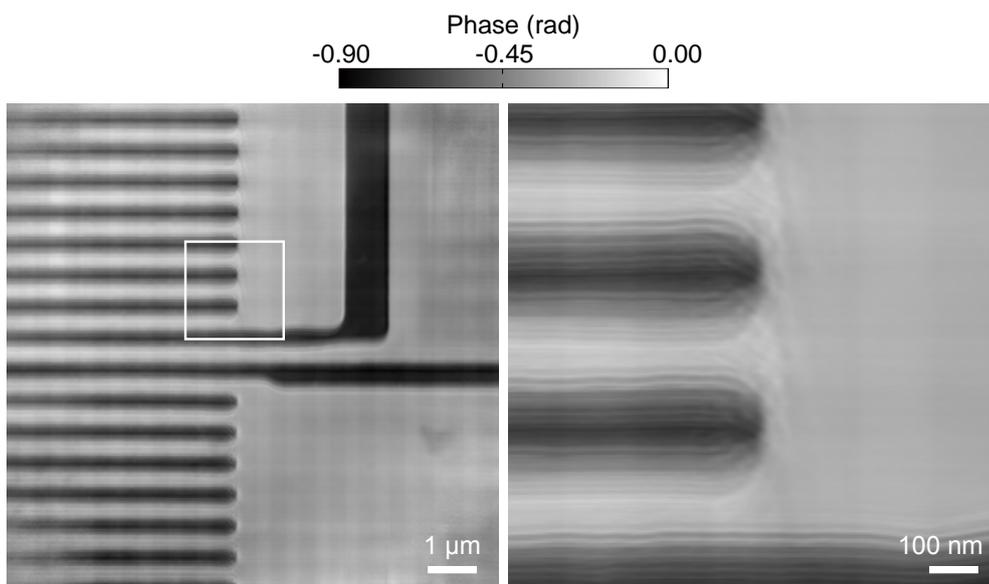


図 4.32 多層配線の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, 1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

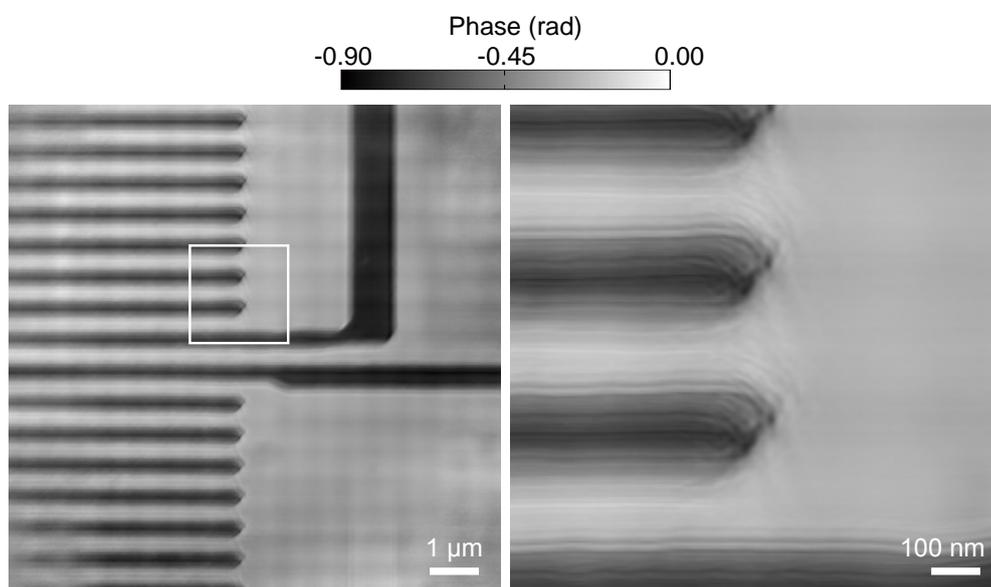


図 4.33 多層配線の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, 1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

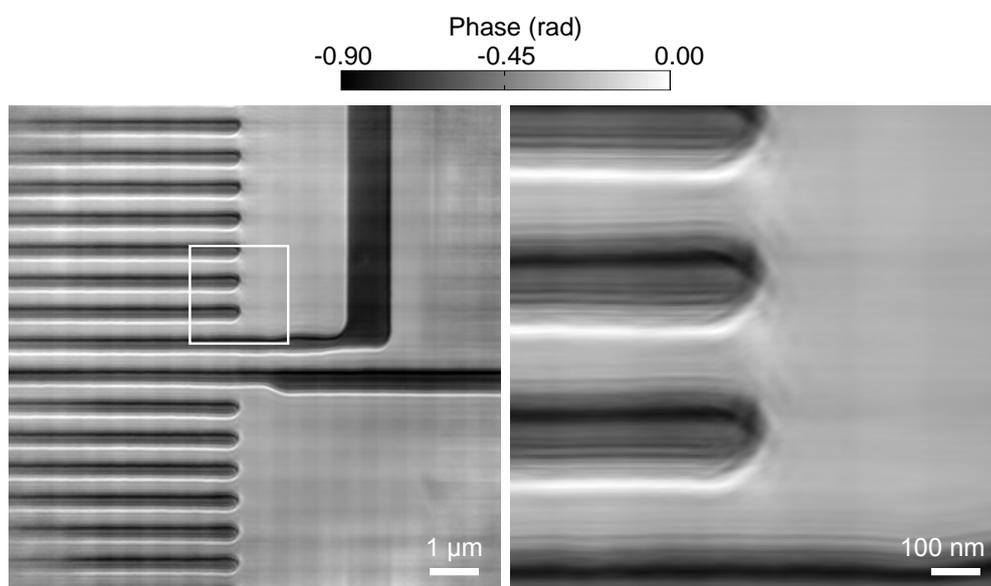


図 4.34 多層配線の $(\varphi, \omega) = (1^\circ, -1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

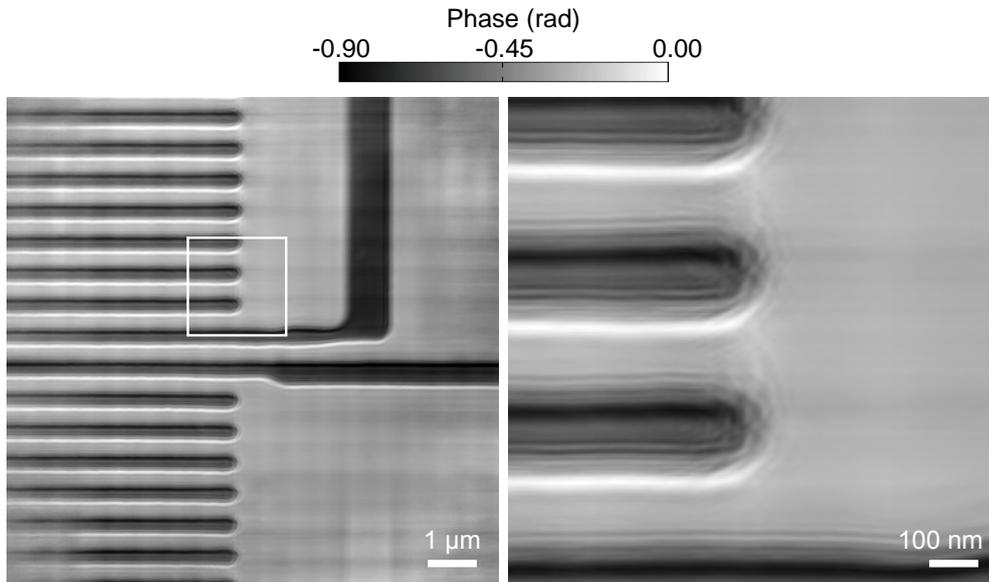


図 4.35 多層配線の $(\varphi, \omega) = (-1^\circ, -1^\circ)$ における ePIE 再構成位相像.

図 4.36(a), (b) に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ で取得した回折強度パターンに対し, 3PIE を実行し再構成した試料位相像を示す. 照射関数のモード数は 2, 初期関数は ePIE で再構成した波動場を利用した. 試料関数は 2 層とし, 初期関数には ePIE で再構成した複素透過関数の $1/2$ 乗を各層に入力した. 反復回数は 1000 回としている. 各層で異なる配線構造が再構成されているが, 多数のアーティファクトも併せて発生しており, 良い像質であるとは言い難い. 図 4.36(c) に再構成した 2 層を足し合わせて算出した投影位相像を示している. ePIE 再構成計算では見られなかったアーティファクトが残存しており, 3PIE による再構成計算がうまく機能していないことがわかる. 3PIE の計算では高空間周波数領域において, エバルト球の曲率によるスペックル強度の減衰量に試料光軸方向の情報が含まれていると考えられるため, 特に高空間周波数領域において ePIE に比べ高い S/N 比の回折強度パターンが必要となる. 今回の測定で投影近似が破綻する空間周波数領域, つまり図 4.24(a) の黄円外の平均光子数は 0.3688 photons と算出されたが, この光子数が ePIE 再構成には十分だが, 3PIE 再構成には不十分であったと推測される.

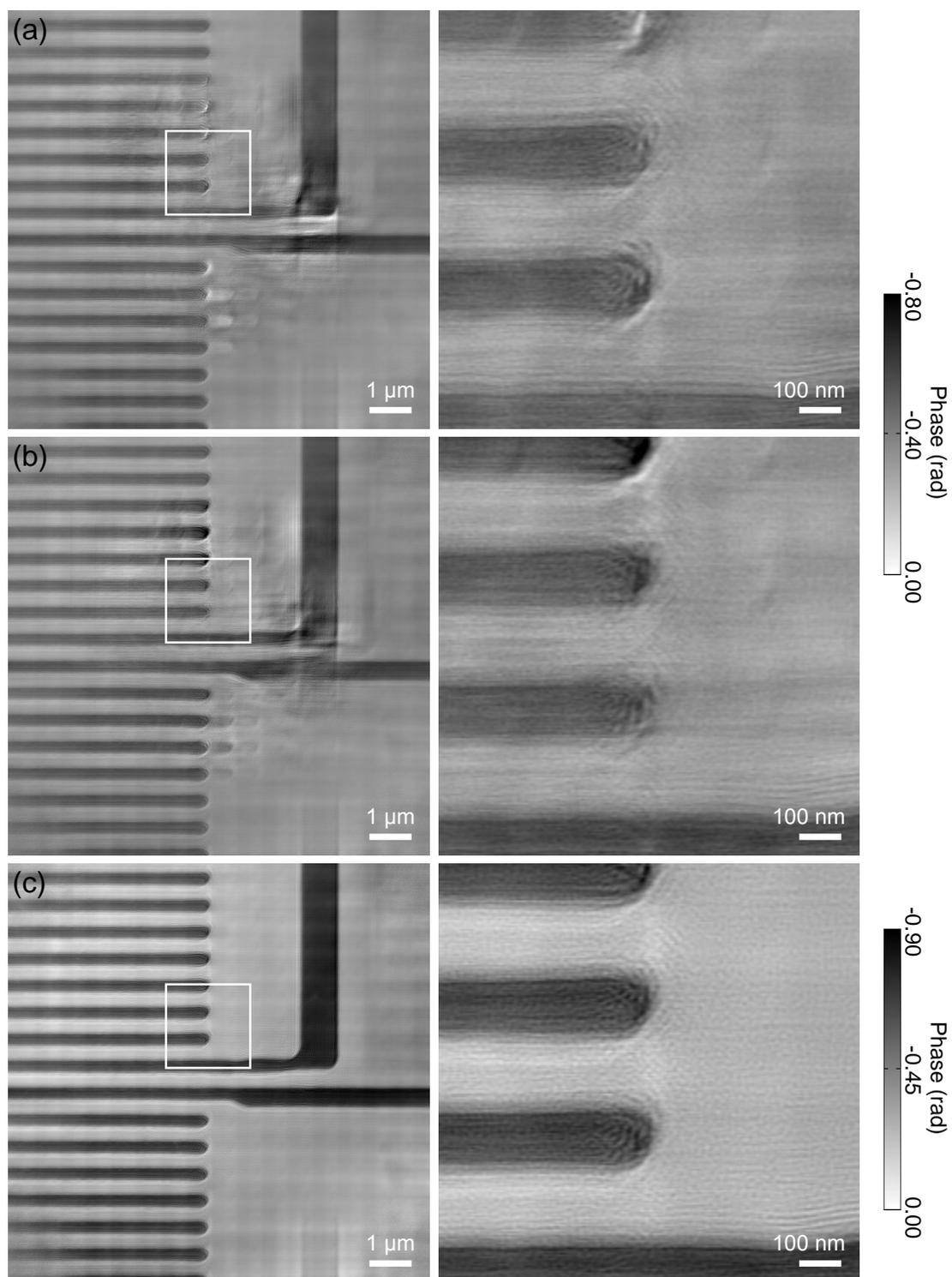


図 4.36 多層配線の $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ における 3PIE 再構成位相像. (a)1 層目. (b)2 層目. (c)1 層目と 2 層目の足し合わせによる投影像.

4.5.4 プリセッション 3PIE による再構成位相像とその評価

4.2.3 項と同様に本実験条件においてプリセッション 3PIE が適用可能か検討した。測定した多層配線の層間は TEOS が一様に分布しているため、式 (4.5), (4.6) における各層の厚さ t_i は Cu 配線の厚み 160 nm と考えることができる。 $t_i=160$ nm, 再構成像の視野 $a = 8.3 \mu\text{m}$, $\varphi=1^\circ$ として式 (4.3), (4.4) を計算するとそれぞれ $c_{y,i}=1.5$ nm, $c_{z,i}=146$ nm となり, ともに面内, 光軸分解能よりも小さい。つまり, 本実験条件においてもプリセッション 3PIE による再構成計算が可能となる。

測定したすべての試料角度の回折強度パターンセットに対しプリセッション 3PIE を実行した。照射関数のモード数は 2, 初期関数には ePIE で再構成した波動場を利用した。試料関数は 2 層とし, 初期関数には ePIE で再構成した複素透過関数の 1/2 乗を各層に入力した。各角度での反復計算を 10 回とし, 合計の反復回数が 1000 回となるまで計算を継続した。図 4.37(a) にそれぞれ 1, 2 層目の再構成位相像とそれらを足し合わせたマージ画像を示している。1, 2 層目それぞれで Cu 配線を鮮明に再構成することに成功している。また, マージ画像からは各層の相対的な位置変化量を見積もることができ, 水平, 垂直方向それぞれ ~ 30 nm, ~ 26 nm と 4.5.2 節の見積もりと同等の値をとることが確認された。図 4.37(b) は, 各角度において ePIE で投影位相像を算出し, Ram-Lak フィルター利用したフィルター補正逆投影法により再構成した各層の位相像を示す。なお, フィルター補正逆投影法では等方的なボクセルサイズの 3 次元像が再構成されるため, 光軸方向に対して前半部, 後半部を積算した像を表示している。それぞれの層の配線上で均一となるべき領域にアーティファクトが見られ, それぞれの層の相対位置のズレをマージ画像から判別することができなかった。図 4.37(c) は, (a), (b) のマージ画像上の黄線部ラインプロファイルを示している。プリセッション 3PIE のマージ画像では, 1, 2 層目それぞれで Cu 160 nm に相当する位相変化量が正しく再構成されているが, フィルター補正逆投影法と ePIE による再構成像ではスパイク状のプロファイルが得られた。今回使用した Ram-Lak フィルターは 2.5.3 項で紹介したように, 高空間周波数の構造を強調した像が再構成されることが知られており, 試料厚さの効果により出現したアーティファクトが強調されてスパイク状の構造が再構成されたと推測される。

最後にプリセッション 3PIE で再構成した試料像の空間分解能を式 (3.2) で示した PRTF を用いて評価した。図 4.38 に縦軸を PRTF, 横軸を空間周波数としたグラフを示している。PRTF が 1/e と交わる空間周波数の逆数を空間分解能として定義すると, 9.59 nm と算出された。本測定条件における, 理論面内分解能は $d_{x,y}=8.57$ nm なので, ほぼ理論値に近い値を得ることができている。以上のように, プリセッション 3PIE により $1.4 \mu\text{m}$ で積層された 2 層配線の各層を面内分解能 ~ 10 nm で再構成することに成功し, 3PIE, フィルター補正逆投影法と ePIE の組み合わせによる再構成像よりも像質の良い試料像を取得することができた。本手法の応用先の 1 つとして, 3 次元積層集積回路の簡易的な 3 次元観察が挙げられる。近年, 2 次元集積回路を Si 貫通電極 (through-silicon via : TSV) を通じて垂直方向に接続した 3 次元積層集積回路が盛んに開発されている [104]。この製造にはデザインルールオーダーの, つまりシングルナノメートルオーダーでのウエハのアライメント精度が求められ [105], 実際に作製した製品を非破壊で確認したいという要求は多い。本手法は光軸分解能はマイクロメートルオーダーであるものの, 面内分解能 10 nm 程度で平板状の試料の 3 次元観察を簡易的に行うことが可能であり, これらの要求に応えることのできる手法である。

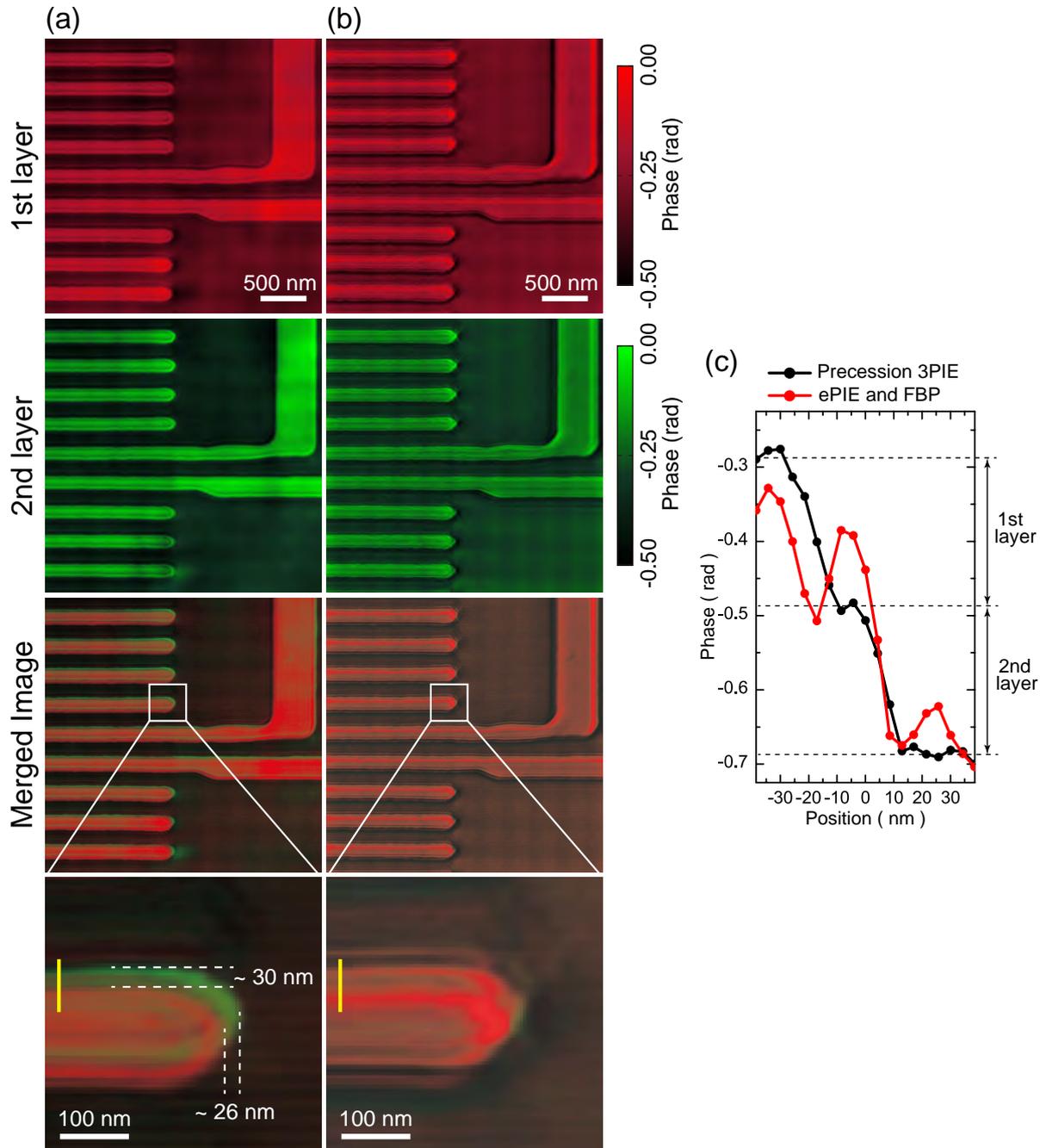


図 4.37 (a) 多層配線のプリセッション 3PIE による再構成位相像。マージ画像から各層の相対位置が水平、垂直方向にそれぞれ 26 nm, 30 nm 程度並進移動していることが確認できる。(b) ePIE, フィルター逆投影法による再構成位相像。ePIE を用いて再構成した各角度の投影位相像に対しフィルター逆投影法を実行し再構成した 3 次元試料像を上流部, 下流部に分割することで算出している。(c) 黄線部の断面プロファイル。

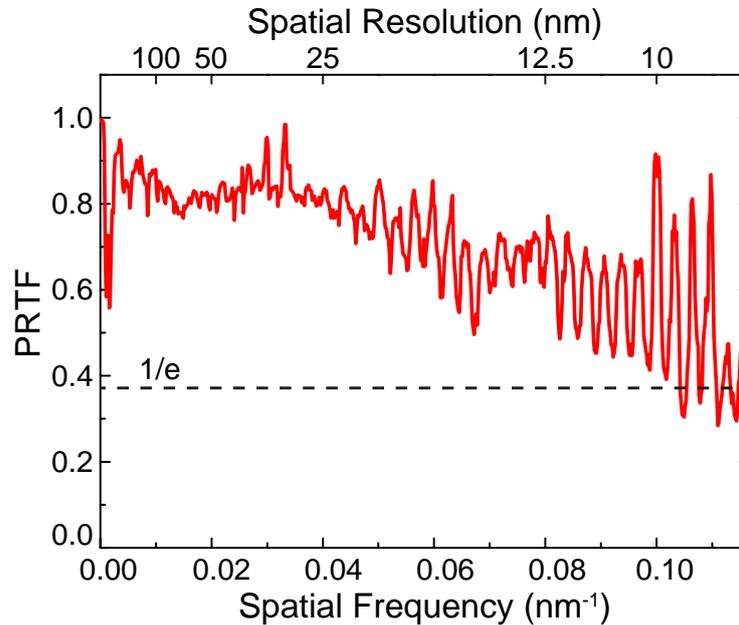


図 4.38 プリセッション 3PIE で再構成した試料の複素透過関数，照射波動場から算出した位相回復伝達関数 (Phase Retrieval Transfer Function : PRTF) [10]. 表示している値は全ての照射位置での PRTF を平均化したものである. 各 PRTF が $1/e$ になる空間周波数の逆数を達成された空間分解能と定義した.

4.6 結言

本章では，マルチスライス X 線タイコグラフィにおける光軸分解能の向上を目的として，プリセッション測定に着目し，プリセッション測定で取得したデータを利用した計算法としてプリセッション 3PIE を提案した．また，計算機シミュレーションによる本手法の実現可能性を検討し，4 層構造体，多層配線の観察を通して本手法の有用性を実証した．以下にその内容をまとめる．

- (1) マルチスライス X 線タイコグラフィの光軸分解能の向上に対し，試料を歳差運動の軌道上に配置し測定を行うプリセッション測定が有効であることを，エバルト球を用いた幾何学的考察により示した．また，プリセッション測定に伴う試料の微小回転を 3PIE 再構成計算における複数層の相対位置の調整で近似可能な条件について考察し，この近似を利用した位相回復計算法として“プリセッション 3PIE”を提案した．
- (2) 2 層構造体を用いた計算機シミュレーションにより，マルチスライス X 線タイコグラフィにプリセッション測定を組み合わせることで光軸分解能の向上が可能か検討した．通常の 3PIE では光軸分解能の不足により他の層への試料構造の写り込みが見られたが，プリセッション 3PIE を利用することで各層を鮮明に再構成することに成功した．また，利用する回折強度パターンの組み合わせを変化させながらプリセッション 3PIE を実行したところ，およそ目安として各層の相対的な並進移動量が 4 ピクセル以上であるとプリセッション 3PIE が有効に機能することが確認された．

さらに、1 方向の試料回転のみでは試料回転させてない方向にアーティファクトが残存してしまうため、両方向の回転が必要であることが示された。

- (3) 4 層構造体を用いた計算機シミュレーションにより、マルチスライス X 線タイコグラフィにおいて再構成すべき未知数が増加することで発生するアーティファクトに対して、プリセッション測定が有効であることを示した。
- (4) 連続体を用いた計算機シミュレーションにより、連続体に対してプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィを適用したとき、各層の構造は部分的に再構成されるが、各層の境界付近の試料構造が他方の層の再構成像に混在する傾向が見られ、各層の完全な投影像を取得することは困難であると示唆された。
- (5) SPring-8 BL29XUL にて層間距離 $10\ \mu\text{m}$, $100\ \mu\text{m}$, $10\ \mu\text{m}$ の 4 層構造体のプリセッションタイコグラフィ測定を 5 つの試料角度で行い、測定データに対してプリセッション 3PIE を実行した。通常の 3PIE 再構成計算では、全ての層に未知数が増加することによるアーティファクトが出現し、さらに 2, 3 層目では光軸分解能の不足により試料構造が再構成されなかったが、プリセッション 3PIE ではすべての層を鮮明に再構成することに成功した。これはプリセッション測定により試料情報の冗長性が付加されたこと、光軸分解能の理論値が $16.8\ \mu\text{m}$ から $2.0\ \mu\text{m}$ に向上したことに起因している。
- (6) SPring-8 BL29XUL にて化学機械研磨評価用の TEG 基盤を $1.4\ \mu\text{m}$ 間隔で積層した 2 層配線のプリセッションタイコグラフィ測定を 9 つの試料角度で行い、測定データに対してプリセッション 3PIE を実行したところ、各層の配線構造を $\sim 10\ \text{nm}$ の面内分解能で再構成することに成功した。各層の再構成位相像を足し合わせたマージ画像から相対配置が水平、垂直方向に $\sim 30\ \text{nm}$ 並進移動していることが確認でき、この変化はフィルター補正逆投影法と ePIE の組み合わせにより算出したマージ画像からは確認できなかった。
- (7) 本章で提案したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィは面内分解能 $10\ \text{nm}$ 、光軸分解能 $1\ \mu\text{m}$ 程度であるが、トモグラフィやラミノグラフィに比べ薄片試料を簡易的に 3 次元観察することが可能であり、例えば 3 次元集積回路の TSV 構造をナノメートルオーダーの面内分解能で簡易的に検査する手法として有用である。

第 5 章

3次元マルチスライス位相回復計算法の開発

5.1 緒言

X線タイコグラフィは広い視野と高い空間分解能を両立した2次元観察法であり、様々な角度で取得した投影像を利用した3次元再構成を行うことで、広い視野と高い空間分解能を両立した3次元観察が可能となる。しかしながら、3次元再構成に必要な試料角度数は視野が広がるほど、また空間分解能が高くなるほど増加することが知られており、X線タイコグラフィで実現されている観察視野、空間分解能を活かした3次元観察を現実的な測定時間内で実現することは現状では困難である。マルチスライスタイコグラフィで再構成される複数層の投影像には試料光軸方向の情報が含まれており、これらを利用した3次元再構成を行うことで必要な角度数を低減することが可能になると考えられる。本章では、マルチスライス位相回復計算と逐次近似法を組み合わせた3次元再構成計算法を開発し、試料角度数の少ない条件や制限角度条件において、従来法よりも信頼性の高い3次元試料像の取得が可能であることを実証した結果について述べる。

5.2 可視光を利用した3次元マルチスライスタイコグラフィ

5.2.1 3次元マルチスライスタイコグラフィの先行研究

マルチスライス位相回復計算で得られた複数層の投影像を利用した3次元再構成法は2018年にLiらによって初めて報告された[53]。彼らはマルチスライスタイコグラフィで得られた複数層の投影像の相対位置を並進移動することで測定角度近傍の投影像を模擬的に算出する“Angle extension”という手法を提案している。本手法では、単に被写界深度よりも厚い試料の3次元観察が可能になるということだけではなく、マルチスライス位相回復計算で得られた光軸方向の情報を3次元再構成で有効に利用することで、少ない角度数でもアーティファクトの少ない3次元像の再構成が可能であり、可視光を利用した実証実験に成功している。本節ではこの実証実験の一部を簡単に紹介する。

5.2.2 マルチスライス位相回復計算による2次元投影像・3次元再構成像の像質改善

Angle extension を利用した3次元再構成に先立ち、マルチスライス位相回復計算によって被写界深度を超えた厚さの試料を、空間分解能を悪化させることなく観察可能であることを実証している。本実験における入射光の波長は $\lambda = 635 \text{ nm}$ 、最大散乱角と波長で決定される面内分解能は $d_x = 1.47 \mu\text{m}$ なので、被写界深度は $26.9 \mu\text{m}$ と計算される。試料は直径 $90 \mu\text{m}$ のガラスチューブにビーズを詰めたものを利用しており、マルチスライス位相回復計算では試料を $18 \mu\text{m}$ 毎の5層に分割して試料像を再構成した。3次元再構成には、 2° 毎に取得した計90の投影像を利用している。

図5.1(a)に試料角度 2° で取得した回折強度パターンに対し、試料全体に投影近似を適用している rPIE [106] を実行して再構成した投影位相像を示す。特にビーズが凝集している箇所では、多重散乱の影響が顕著に現れ、像質の劣化が見られる。図5.2(b), (c), (d)は様々な角度で再構成した位相像に対し、補正フィルター逆投影法を利用して再構成した3次元位相像の断面図を示す。各角度で rPIE を用いた再構成された投影像にアーティファクトが含まれているため、3次元再構成でも像質の悪い試料像が再構成されている。一方、図5.2(a)は試料角度 2° の回折強度パターンに対しマルチスライス位相回復計算 3PIE を実行して5層の位相像を再構成し、それらを足し合わせた投影像を示している。なお、3PIE における初期試料関数には、図5.1に示す3次元試料像を5分割した各層の投影像を入力した。さらに、図5.2(e)は様々な角度においてマルチスライス位相回復計算で5層の位相像を再構成しそれらの投影像を算出した後、フィルター補正逆投影法を利用して再構成した3次元像である。試料中での回折波の広がりや多重散乱を考慮できているために像質が改善されており、ビーズの空孔なども鮮明に観察することに成功している。

5.2.3 Angle extension による3次元再構成像の像質改善

マルチスライス位相回復計算では、試料を複数に分割したそれぞれの層の投影像が再構成されるが、図5.3(a)に示すようにこれらの投影像を並進移動させることで近傍の角度の投影像を模擬的に算出することが可能であり、この手法は Angle extension と名付けられている。層間の距離を T 、傾斜角度を β としたとき、相対的な並進移動量 d は以下の式で表される。

$$d = T \tan \beta \quad (5.1)$$

しかしながら、実際は有限の厚みを持つ層を投影した像を利用するため、どこまでこの近似を適用できるかは、各層の厚さ T と傾斜角度 β に依存する。例えば、傾斜角度 β を固定した場合には、 T をできるだけ細かく分割することでより正しい近似として機能し、各層の厚さ T を固定した場合には、 β が小さいほどより正しい近似として機能する。図5.3(c)ではマルチスライス位相回復で再構成した5層の投影像に対し、傾斜角度 $\beta = -2^\circ, -8^\circ, -14^\circ$ として投影像を模擬的に算出した投影像と実測した投影像を比較している。ここで、 T はマルチスライス位相回復計算で利用した $18 \mu\text{m}$ を利用しており、並進移動は中心の層、つまり上流から3層目を基準にしている。図からもわかるように β が大きくなるにつれて実測投影像との差分が顕著に現れている。

さらに論文中では、模擬的な投影像を利用した3次元再構成も行われている。図5.4(a), (b), (c)はそ

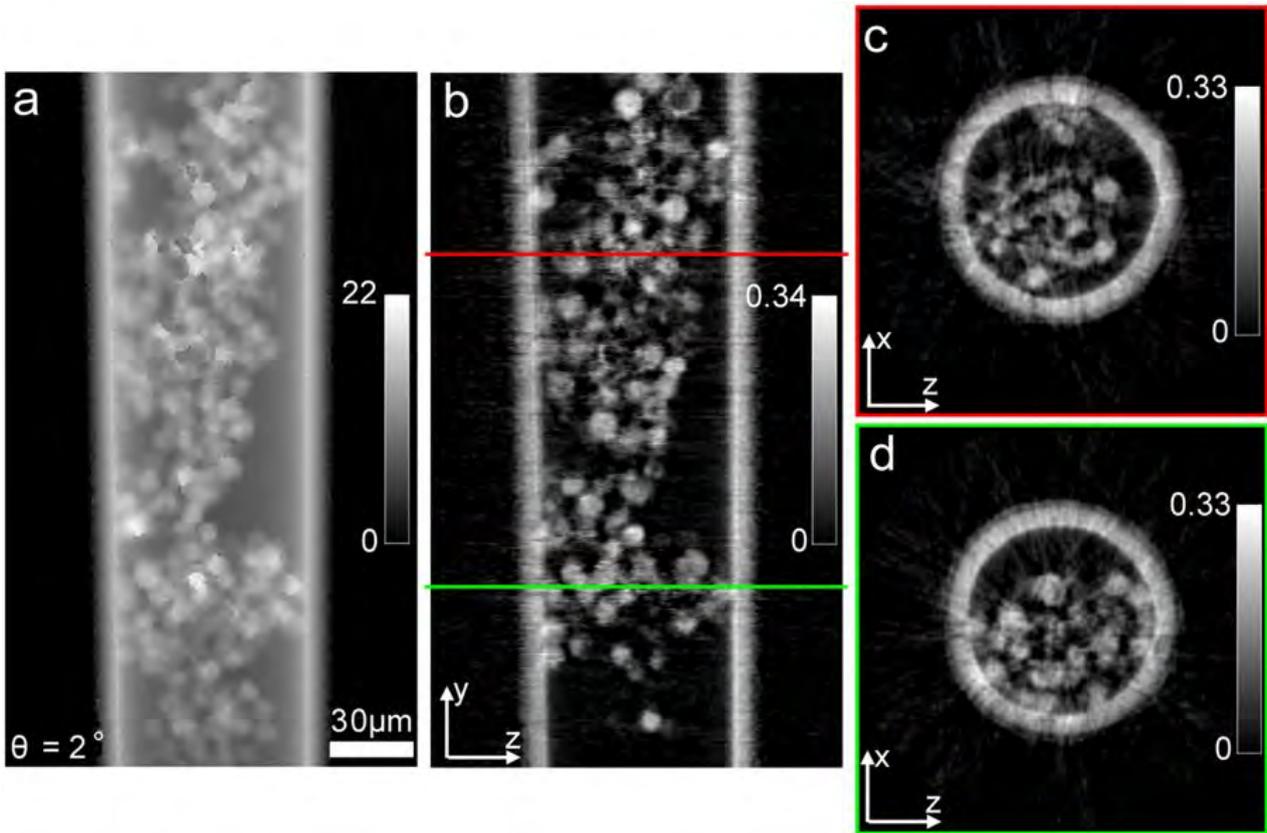


図 5.1 投影近似を利用したタイコグラフィ位相回復計算で取得した投影像から再構成した3次元位相像。試料は直径 $90 \mu\text{m}$ のガラスチューブにビーズを詰めたものを利用している。(a) 試料角度 2° における投影位相像。(b) 3次元位相像の $y-z$ 中央の断面像。(c) (b) 中で示した赤線部の $x-z$ 断面像。(d) 緑線部の $x-z$ 断面像。この図は Sci. Rep. 8, 2049 (2018) [53] からの転載である。

それぞれ (a) 10° , (b) 18° , (c) 30° 毎に再構成したマルチスライス再構成像に対し、Angle extension を利用して 90 枚の投影像を算出し、フィルター補正逆投影法により 3次元再構成している。なお、それぞれの角度に対して (a) $\beta = \pm 4^\circ$, (b) $\beta = \pm 8^\circ$, (c) $\beta = \pm 14^\circ$ まで 2° 毎に模擬的な投影像を算出している。Angle extension を利用していない場合には、角度数が小さくなるにつれ像質が悪化しているが、Angle extension を利用することで像質の劣化を防ぐことに成功している。図 5.4(d) は、マルチスライス位相回復計算が比較的うまくいっている 6 角度を選択し、Angle extension で 90 角度分の投影像を算出し 3次元再構成した試料像を示す。図 5.4(c) に比べアーティファクトの発生を抑制できており、図 5.4(a) に近い像質を得ることができている。本実験条件における Crowther limit は $\pi D/d_x \approx 192$ であるが、 $1/32$ 程度の角度数で 3次元試料像を再構成することに成功しており、マルチスライス位相回復計算で得られた光軸情報を Angle extension を用いて有効利用することで、3次元再構成に必要な角度数の低減が可能であることが実証された。

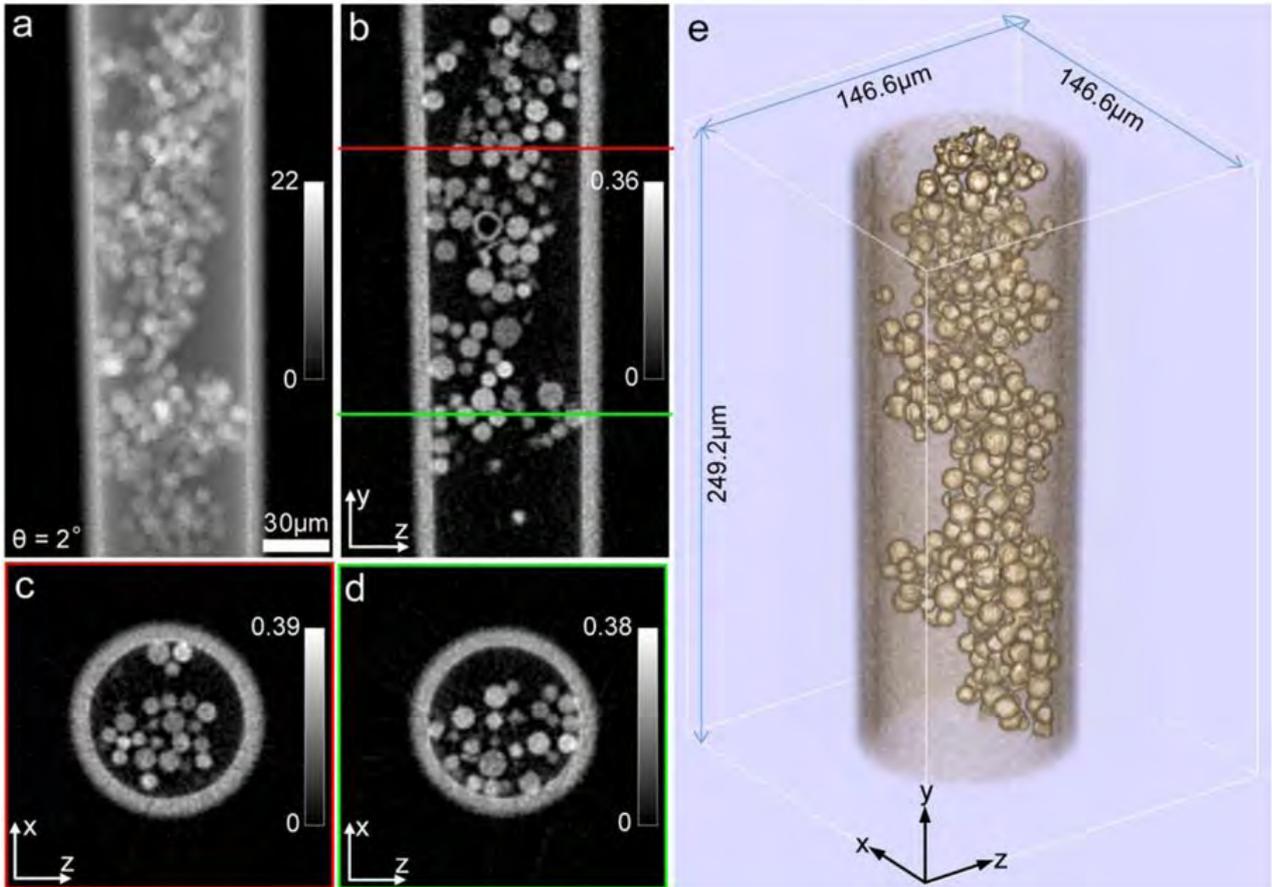


図 5.2 マルチスライスタイコグラフィ位相回復計算で取得した投影像から再構成した 3 次元位相像. (a) 試料角度 2° における投影位相像. 3PIE で再構成した 5 層の積算を表示している. (b) 3 次元位相像の $y-z$ 中央の断面像. (c) (b) 中で示した赤線部の $x-z$ 断面像. (d) 緑線部の $x-z$ 断面像. (e) 3 次元像. この図は Sci. Rep. 8, 2049 (2018) [53] からの転載である.

5.2.4 プリセッション 3PIE の近似条件を利用した X 線領域における Angle extension の適用可能性の検討

Li らの論文では、近似の適用可能な角度と空間分解能の関係は特に記述はされていないが、Angle extension で行っている操作はプリセッションマルチスライス位相回復計算と同様であるため、式 (4.5), (4.6) を利用することで適用可能な角度 β を見積もることが可能である. 式 (4.5), (4.6) を 5.2.3 項の表現に代替すると

$$d_x \geq |a \cos \beta + T \sin \beta - a| \quad (5.2)$$

$$d_z \geq |a \sin \beta + T \cos \beta - T| \quad (5.3)$$

と表現される. これらの式に論文で示される値から算出される $d_x=1.6 \mu\text{m}$, $d_z=7.7 \mu\text{m}$, $a=100 \mu\text{m}$, $T=18 \mu\text{m}$ を代入すると、上式を満たす最大の角度 $|\beta_{\max}|=3.3^\circ$ となる. 図 5.2 では確かに $\beta=-8^\circ, -14^\circ$ では模擬的に算出した投影像と実測投影像に差分が生じているので、式 (5.2), (5.3) を利用した評価はあ

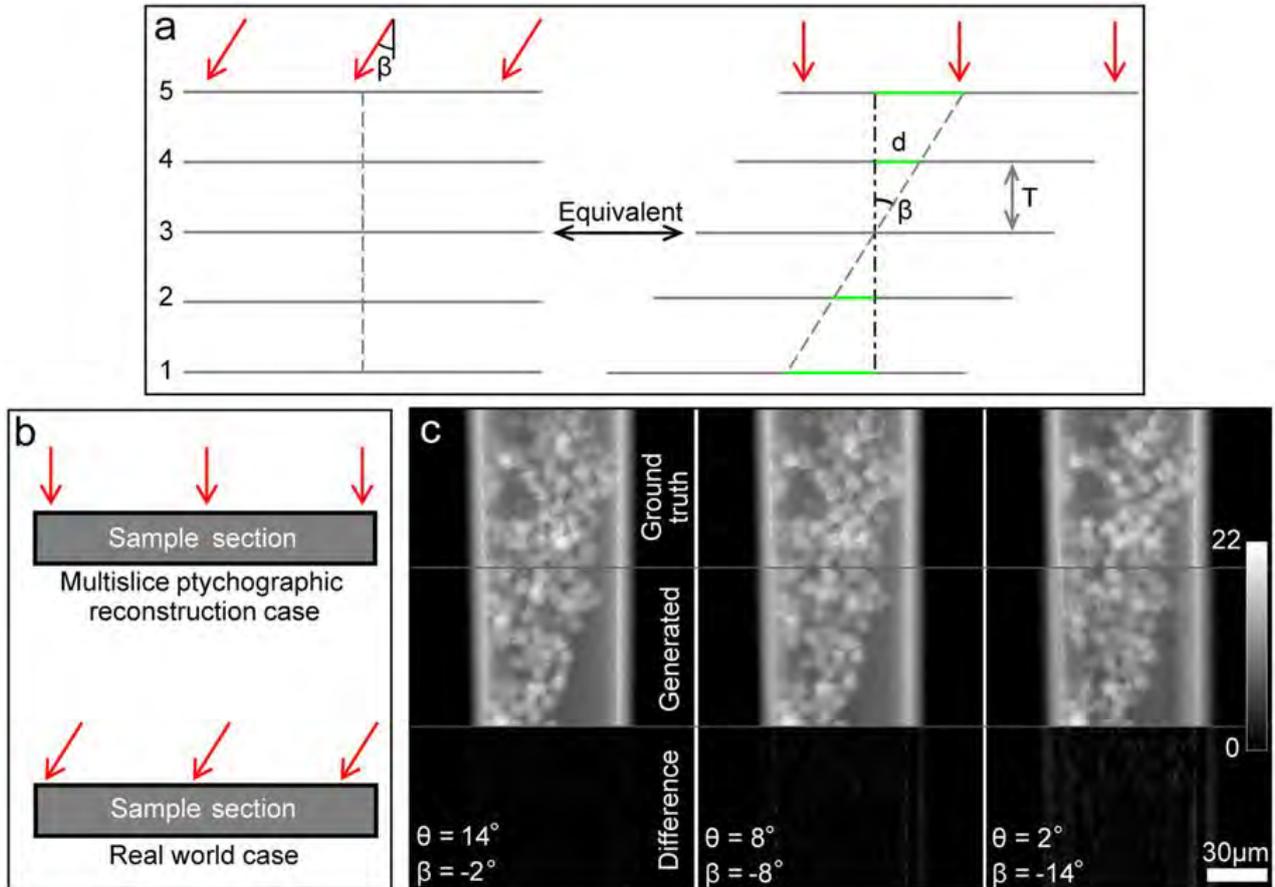


図 5.3 Angle extension による近傍角度の投影像の算出. (a)Angle extension の概要図. 離散的に配置された厚さの無視できる複数の層を角度 β 方向から観察することで得られる投影像は各層の相対位置 d を調整することで算出可能である. (b) マルチスライス位相回復計算では光軸に垂直な断面の 2 次元投影像が再構成される. ある角度に隣接した角度における投影像はマルチスライス再構成像を斜め方向から見た像と考えることができるが, 実際は試料に厚みがあるため, 完全に同じ投影像を算出することはできない. (c) $\theta=16^\circ$ のマルチスライス再構成像から Angle extension により算出した $\theta=14^\circ, 8^\circ, 2^\circ$ の投影位相像, 実測データからマルチスライス位相回復計算で算出した投影位相像とそれらの差分. この図は Sci. Rep. 8, 2049 (2018) [53] からの転載である.

る程度の信頼性を有していると考えられる.

次に, X 線領域において, 我々の測定光学系を元に Angle extension がどこまで適用可能か見積もった. X 線エネルギー 6.5 keV, カメラ長 2.178 m, 検出器のピクセルサイズ 75 μm , 回折強度パターンのピクセル数 1129 に設定すると, $d_x=10.0$ nm, $d_z=1.05$ μm , $a=5.34$ μm となり, 式 2.18 の Tsai らの被写界深度の式 $T = 5.2d_x^2/\lambda$ から $T=2.63$ μm となる. これらの値と式 (5.2), (5.3) から Angle extension が適用可能な最大角度 β_{max} を算出したところ $\beta_{\text{max}}=0.1^\circ$ となり, 角度数の低減は見込めないと推測される. この違いは X 線領域における最大散乱角が可視光に比べ格段に小さいことに起因している. X 線領域ではエバルト球をほぼ平面とみなせる領域のみを測定しており, 面内分解能に比べ光軸分解能が非常に大きくなる. その結果, d_x に対し T が大きくなるので, 式 (5.2) を満たす β が小さくなってしまふ. つまり, 可視光領域では比較的大きな β まで Angle extension の適用可能であるが, X 線領域ではこの近

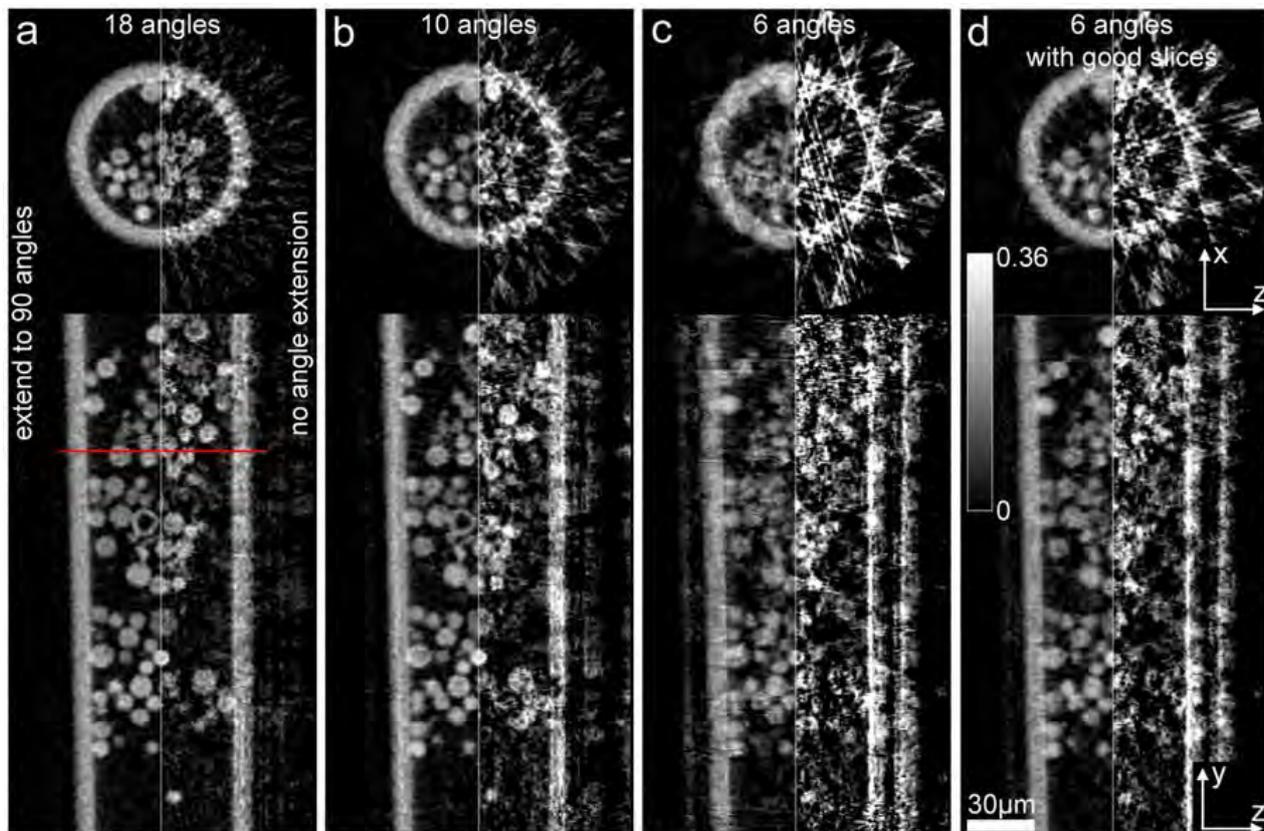


図 5.4 少数の測定角度における 3 次元再構成位相像の断面像. それぞれ (a)18, (b)10, (c-d)6 角度のマルチスライス再構成位相像から Angle extension により 90 角度分の投影像を算出し再構成した 3 次元位相像断面像と Angle extension を用いなかった場合の 3 次元位相像断面像. (d) ではマルチスライス再構成像が比較的きれいな 6 角度に対して Angle extension を適用している. この図は Sci. Rep. 8, 2049 (2018) [53] からの転載である.

似を適用することが困難であり, この近似を利用しない新たな 3 次元再構成計算法の開発が必要であると結論付けられる.

5.3 マルチスライス法を利用した逐次的 3 次元再構成計算法

5.3.1 マルチスライス位相回復計算と逐次近似法を組み合わせた 3 次元位相回復計算法

図 5.5 に新たに提案する 3 次元マルチスライス位相回復計算法の模式図を示している. 本計算法は, 逐次近似法とマルチスライス位相回復計算を同時並行で行うアルゴリズムとなっている. 一般的な 3 次元再構成では, 光路に沿ったスカラー和で表される投影像を利用して 3 次元再構成するが, 提案する手法ではマルチスライス位相回復計算で再構成される複数の層を 3 次元再構成に利用するため, 少ない測定角度数でも 3 次元再構成が可能になると期待される. 計 I の角度でタイコグラフィ測定したデータセットを利用した再構成計算を想定し, すべての角度での試料像の更新を 1 回の反復計算とする. このとき, 反復計算 k 回目の i 番目のデータセット利用時において $N \times N$ の 2 次元複素透過関数を光軸方向に N 個並べ

た 3 次元複素関数を $O_i^{(k)}(x, y, z)$ と表現する. 反復計算は以下の (1)-(7) のステップを反復的に実行することで行う.

- (1) $O_i^{(k)}(x, y, z)$ に $\hat{\Theta}$ を作用させ, $O_{i,\Theta}^{(k)}(x, y, z)$ を算出する. ここで, $\hat{\Theta}$ は回転演算子を表す.

$$O_{i,\Theta}^{(k)}(x, y, z) = \hat{\Theta} O_i^{(k)}(x, y, z) \quad (5.4)$$

- (2) 各層の厚さが被写界深度以下になるような層数で $O_{i,\Theta}^{(k)}(x, y, z)$ を分割し, 分割した l 層目の投影像を $S_{i,l}^{(k)}(x, y)$ と表す. 図 5.5 では, 分割層数 $L=3$ としている.

- (3) $S_{i,l}^{(k)}(x, y)$ を初期試料関数としてマルチスライス位相回復計算を行い, 各層の投影像を更新し, 更新後の l 層目の投影像を $S'_{i,l}{}^{(k)}(x, y)$ と表す.

- (4) 更新前, 後の各層の試料関数を利用して, 3 次元の逆投影像を算出する. l 層目に相当するボクセルには, 更新前, 更新後の l 層目の投影像の商を $1/N_l$ 乗したものを代入する. ここで, N_l は各層の含まれる光軸方向のボクセルの数に相当する. これは, 以下の式で表現される.

$$M_{i,\Theta}^{(k)}(x, y, z) = \left(\frac{S'_{i,l}{}^{(k)}(x, y)}{S_{i,l}^{(k)}(x, y)} \right)^{1/N_l} \quad z \in l\text{th layer} \quad (5.5)$$

- (5) 算出した 3 次元逆投影像 $M_{i,\Theta}^{(k)}(x, y, z)$ に $\hat{\Theta}^{-1}$ を作用させ, $M_i^{(k)}(x, y, z)$ を算出する.

$$M_i^{(k)}(x, y, z) = \hat{\Theta}^{-1} M_{i,\Theta}^{(k)}(x, y, z) \quad (5.6)$$

- (6) 3 次元複素関数と逆投影像の積をとり, $O_i^{(k)}(x, y, z)$ を更新する.

$$O_{i+1}^{(k)}(x, y, z) = O_i^{(k)}(x, y, z) \times M_i^{(k)}(x, y, z) \quad (5.7)$$

- (7) (1)-(6) のステップを i, k に関して反復的に繰り返しながら, 3 次元複素関数を再構成する.

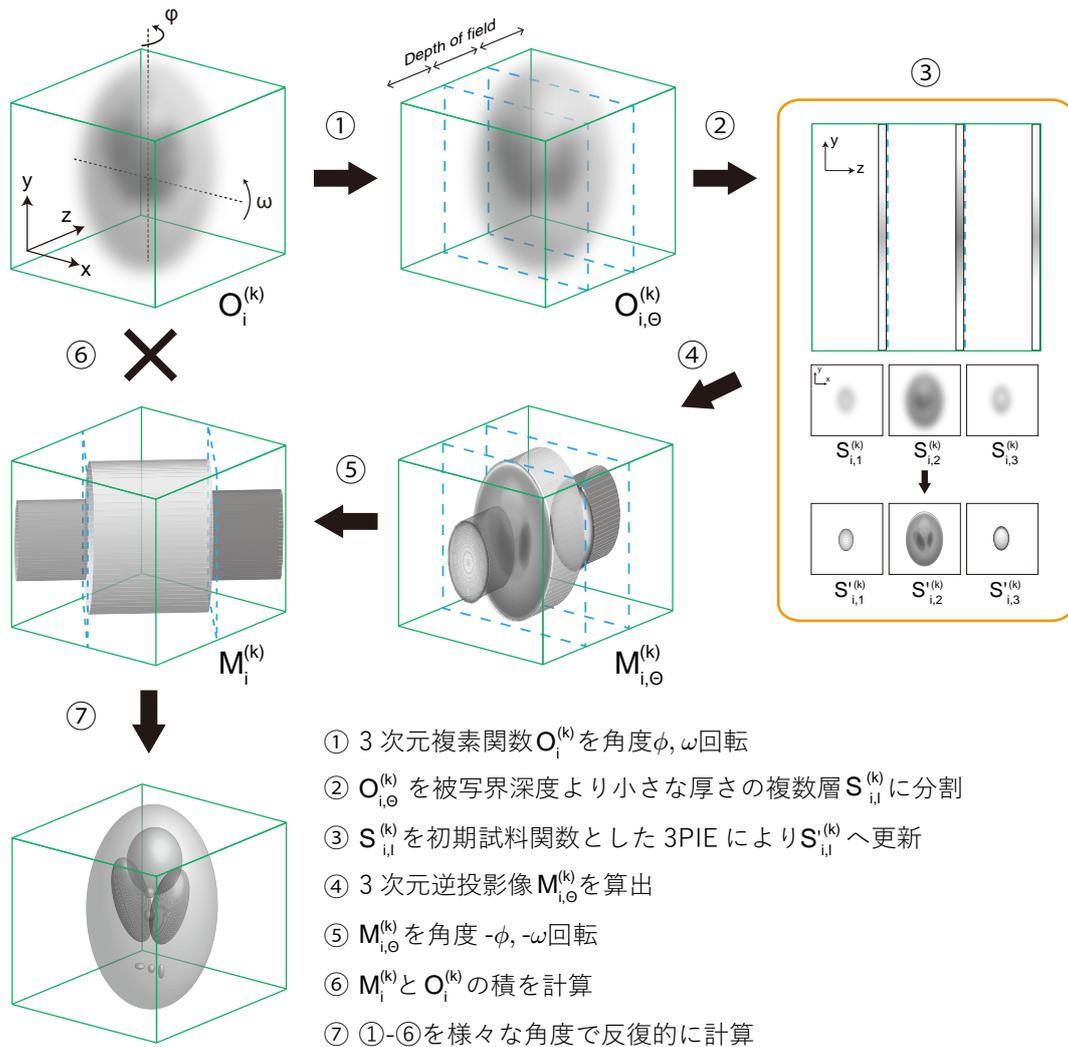


図 5.5 提案する 3 次元マルチスライス位相回復計算法の模式図. 本計算法では逐次近似法とマルチスライス位相回復計算を交互に繰り返して、3 次元試料像を再構成する. マルチスライス位相回復計算で再構成した複数層の投影像を 3 次元再構成に直接利用することで、マルチスライス位相回復計算で得られる光軸方向の情報を有効利用した 3 次元再構成が可能となる.

5.3.2 提案した計算法による Crowther limit の緩和

この項では提案する計算法が3次元再構成に必要な角度サンプリング数の低下に繋がる理論的な背景について考察する。この考察は主に Jacobsen の論文 [107] に基づいている。

図 5.6 に示すようにマルチスライス位相回復計算において N_a 層に分割した場合を考える。このとき、 N_a 層の投影像はボクセル数 $N_t \times N_a \times N_t$ 、ボクセルサイズ $\Delta t \times \Delta a \times \Delta t$ の3次元関数として捉えることができ、フーリエ空間における θ 方向に垂直な方向の最大空間周波数は $q_a = 1/2\Delta a$ となる。この3次元関数を3次元フーリエ変換したとき、 θ 方向に垂直な方向のボクセル数を N'_a とすると、 $2q_a$ を Δq_t でサンプリングすると考えればよいので

$$N'_a = \frac{2q_a}{\Delta q_t} = \frac{2/2\Delta a}{1/N_t\Delta t} = N_a \quad (5.8)$$

となる。つまり、図 5.6 の中央に示されるように N_a 層の投影像からなる3次元関数のフーリエ変換は、ボクセル数 $N_t \times N_a \times N_t$ の直方体領域の3次元複素振幅で表現される。この際、必要なサンプリング角度数 $N_{\theta,a}$ は1枚の投影像の場合と同様に考えられ、円周 πq_t の半円を $N_a\Delta q_t$ 毎にサンプリングしていけば良い。つまり、

$$N_{\theta,a} = \frac{\pi q_t}{N_a\Delta q_t} = \frac{1}{N_a} N_\theta \quad (5.9)$$

と表され、仮にマルチスライス位相回復計算で分割した N_a 層を完全に再構成することが可能であれば、Crowther limit/(分割層数)の角度数で完全な3次元試料像の再構成が可能になる。また、測定可能なサンプリング角度が測定光学系や試料の構造上制限がある場合でも、1方向の測定で得られるフーリエ空間上での情報量が増加していることにより、“Missing wedge”と呼ばれる欠損領域の一部分を埋めることができ、アーティファクトの抑制に繋がると期待される。実際は分割した N_a 層をマルチスライス位相回復計算で完全に再構成することは困難で、図 5.6 中央の直方体はエバルト球で切り取った両面凹レンズ状になると考えられるため、Crowther limit/(分割層数)まで角度数を低減することは難しい。本計算法をより効果的に機能させるためには、各角度でのマルチスライス位相回復計算で分割する層間隔をより細かく、また像質良く再構成することが重要になる。これまで1方向の測定のマルチスライス X 線タイコグラフィにおいて光軸分解能の向上に着眼した研究は、焦点深度数 μm の多層膜ラウエレンズを利用し $10\mu\text{m}$ の光軸分解能を実現した研究 [19] と、試料前方に構造体を配置し多数の波数ベクトルを含む入射波動場を形成することを提案した論文中で可能性について触れられている [108] 程度であり、今後更なる研究が必要である

5.4 計算機シミュレーションによる提案した計算法の性能評価

5.4.1 モデル投影像を利用した3次元再構成

マルチスライス位相回復計算と逐次近似法を組み合わせた3次元再構成に先立ち、各層の投影像としてモデル画像を利用した3次元再構成の計算機シミュレーションを行った。

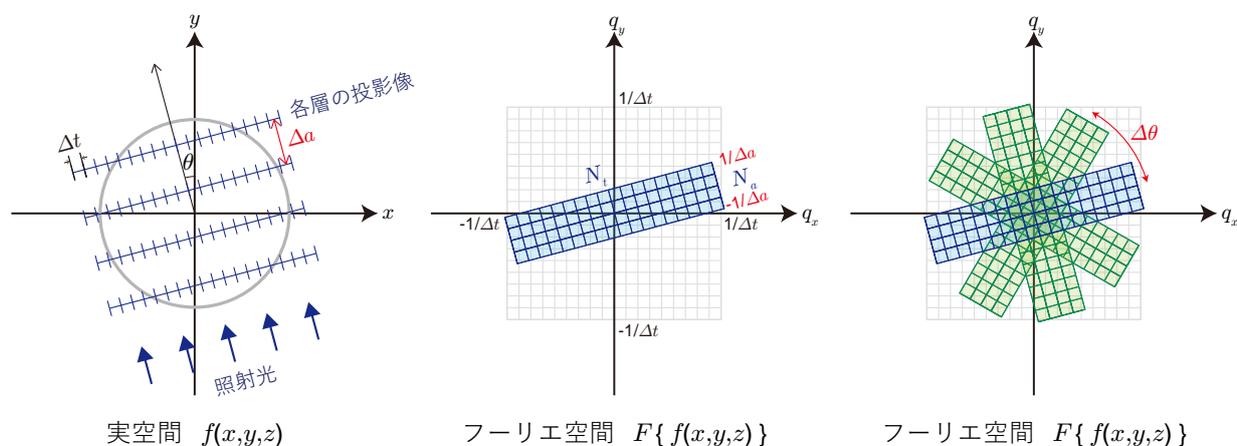


図 5.6 マルチスライス 3 次元位相回復計算法による Crowther limit の緩和。試料を $N_a=4$ 層に分割したとき、これらのフーリエ変換は青で示される直方体領域の 3 次元複素振幅に対応している。これにより円柱領域を隙間なく埋めるための角度数を式 (2.87) で示した Crowther limit から $1/N_a$ に低減することが可能である。

オリジナル 3 次元試料として図 5.7(a) に示すようなマンドリル画像の一部分を円筒状に並べたものを利用した。モデル画像のピクセルサイズは 5 nm, 円柱直径のピクセル数は 640 なので円柱の厚さは $3.2 \mu\text{m}$ となる。理論上の空間分解能は $d=10 \text{ nm}$ となるので、Crowther limit を計算すると $\pi D/d \sim 1005$ となる。図 5.7(b), (c), (d), (e) にフィルター補正逆投影法による 3 次元再構成で利用する角度数を 75, 150, 300, 600 と変化させたときの円柱中心の再構成断面像を示している。利用した角度数が Crowther limit から離れるにつれ像質が悪化していることが明らかであり、特に角度数が 75, 150 の場合には角度数が不足していることによるアーティファクトが顕著に現れている。図 5.8 はモデル画像と断面像に対し式 (4.8) を用いて計算した FRC [100] を示している。FRC から角度数の減少に伴い、像質が悪化していることが確認された。

次に、提案する計算法による 3 次元再構成を行った。利用角度数を 75 に固定し、分割層数を 1, 2, 4, 8 層と変化させた 3 次元再構成像の中央断面像を図 5.9(b), (c), (d), (e) に示す。ここでも、各層の投影像にはオリジナル画像を元に算出した画像を利用している。図 5.9(b) では反復的に 3 次元像を再構成することでアーティファクトが平均化されるため、図 5.7(b) と比較してアーティファクトが目立たなくなっている。また、分割層数を増加させることで像質の改善が見られ、FRC 上でもこの傾向は見られている。さらに、1, 2, 4, 8 層それぞれの FRC が 75, 150, 300, 600 角度利用したときの FRC と非常に似通っていることが確認される。つまり、提案した計算法では (分割層数) \times (試料角度数) の角度数で再構成した 3 次元像と同等の像質を得られており、3 次元再構成に利用する角度数が不足している条件下でも、分割層数を増加させることにより像質が改善されることが示された。実際のマルチスライス位相回復計算では、分割可能な層の数は被写界深度によって一つに定まるものではあるが、この結果は提案する計算法が試料を光軸方向に分割した各層の投影像を効果的に利用できていることを裏付けるものである。

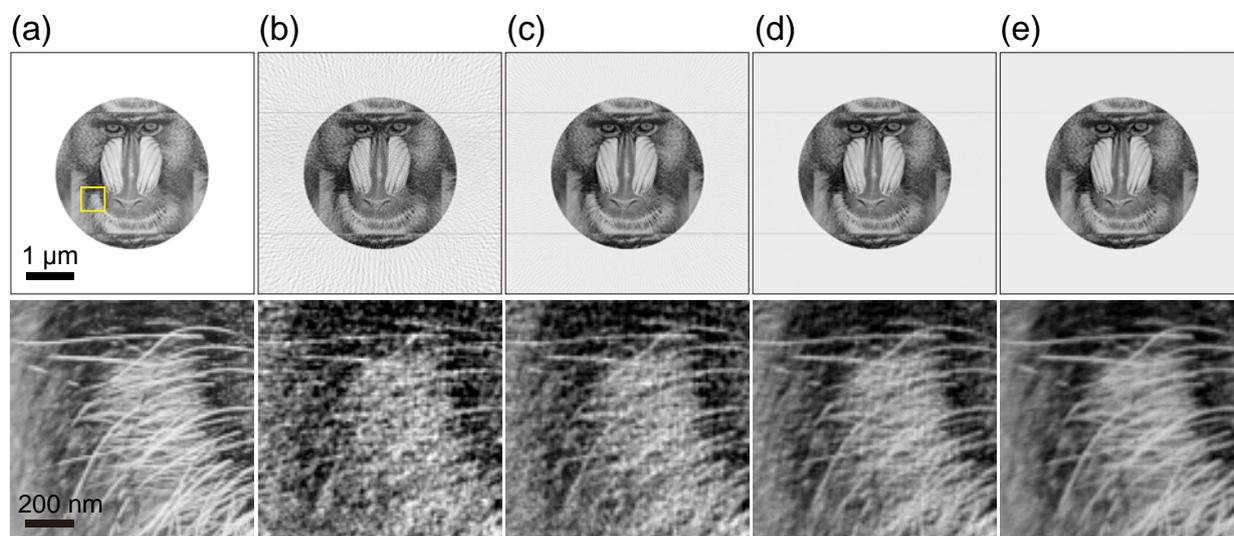


図 5.7 フィルター補正逆投影法，モデル投影像を利用した 3 次元再構成像の中央断面像．(a) オリジナル画像．(b-e) 利用する角度数を 75, 150, 300, 600 と変化させながら再構成した 3 次元像の中央断面像．(b) 角度数 75. (c)150. (d)300. (e)600.

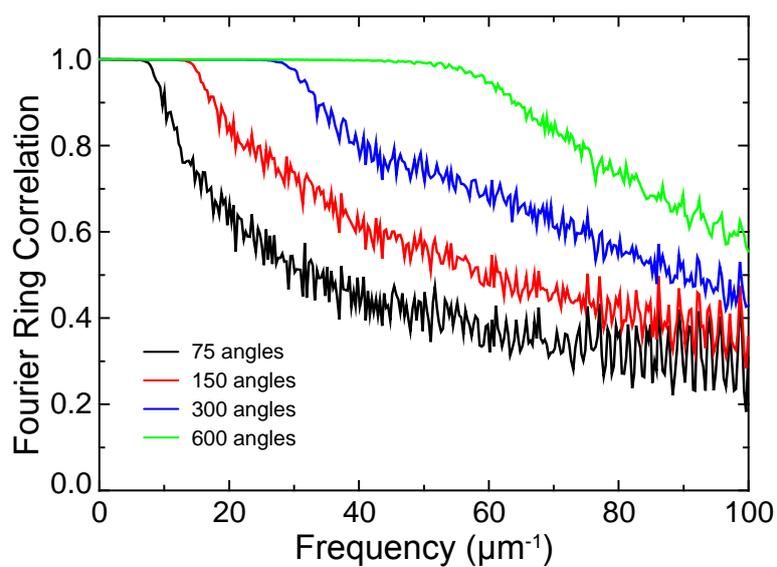


図 5.8 フィルター補正逆投影法，モデル投影像を利用した 3 次元再構成像断面像の FRC.

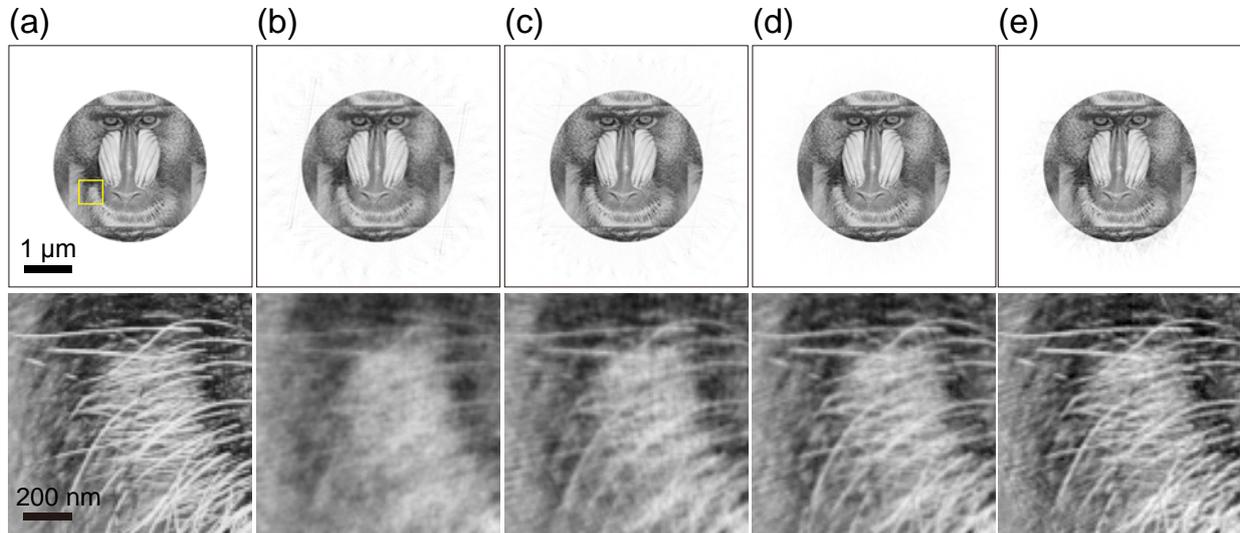


図 5.9 提案するマルチスライス逐次近似再構成法，モデル投影像を利用した 3 次元再構成の中央断面像．(a) オリジナル画像．(b-e) 分割する層数を 1, 2, 4, 8 層と変化させながら再構成した 3 次元像の中央断面像．(b)1 層．(c)2 層．(d)4 層．(e)8 層．

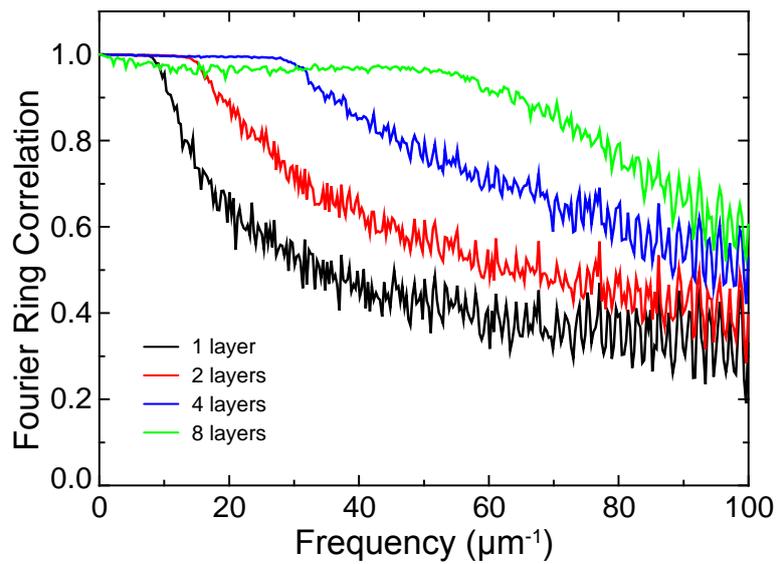


図 5.10 提案するマルチスライス逐次近似再構成法，モデル投影像を利用した 3 次元再構成断面像の FRC．

5.4.2 測定角度数が不足した条件における 3次元再構成

提案する 3次元マルチスライス位相回復計算法の性能評価のため、Crowther limit よりも角度数が少ない条件で計算機シミュレーションを行った。図 5.15(a) にモデル試料の外観図を示している。直径 $3.2 \mu\text{m}$ 、質量密度 0.930 g/cm^3 の円柱状のスチレン・ブタジエンゴムに質量密度 $\rho=19.32 \text{ g/cm}^3$ の金ナノ粒子が埋め込まれており、金ナノ粒子の体積パーセントは 1.4 % である。また、粒子直径は平均値 25 nm 、分散 0.2 のガウス状の分布をとっている。タイコグラフィシミュレーション条件は SPring-8 での実験を模しており、表 5.1 にまとめている。なお、ビームストップ、フォトンショットノイズは考慮していない。本シミュレーション条件において、最大散乱角と入射 X 線の波長で決定される空間分解能は、 $d=10 \text{ nm}$ となるので、Crowther limit は $\pi D/d \sim 1005$ と算出される。また、被写界深度は Tsai らの基準を利用すると $2.73 \mu\text{m}$ と算出される。Crowther limit よりも小さな角度サンプリング条件でシミュレーションを行うために、 $-90^\circ \sim 90^\circ$ を 1.2° 間隔、合計 150 の試料角度でタイコグラフィ回折強度パターンセットを計算し、それらを利用した再構成計算を行った。回折強度パターンの算出では、それぞれの角度に回転させた 3次元モデル試料を各層の厚さが被写界深度よりも小さい $1.6 \mu\text{m}$ になるよう分割した 2層構造体を利用した。

3次元再構成に先立ち、各試料角度において 3PIE 再構成計算を行った。図 5.11 に角度 0° の回折強度パターンに 3PIE を実行し再構成した 1, 2 層目の試料位相像を示している。なお、3PIE では層数を 2, 層間距離を $1.6 \mu\text{m}$ で固定して、反復計算を 3000 回行った。どちらの層においても、靄のようなアーティファクトが僅かに含まれてはいるが、ほぼオリジナル画像に等しい位相像が再構成されている。図 5.12 に各層の再構成位相像とオリジナル画像の FRC を示しているが、この結果からも正しい試料像が再構成できていることが確認できる。

図 5.13 に角度 0° における ePIE, 3PIE により算出した投影位相像を示している。3PIE の投影像は図 5.11 の (c), (d) を足し合わせることで算出した。また、ePIE 再構成像は反復計算を 3000 回行ったものである。ePIE では金粒子の構造がぼけているのに対し、3PIE では鮮明な構造を再構成することに成功している。この違いは図 5.13 で示したオリジナル画像、再構成投影像間の FRC で顕著に表れている。ePIE の FRC 値は $40 \mu\text{m}^{-1}$ 付近で急激な落ち込みが見られるが、3PIE では全ての空間周波数領域で高

表 5.1 測定角度数が不足した条件における X 線タイコグラフィ測定条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	11×11
ステップ幅 (nm)	300
集光ビームサイズ (nm^2)	$\sim 500 \times 500$
回折強度パターンピクセル数	423×423
検出器ピクセルサイズ (μm^2)	200×200
カメラ長 (m)	2.219
再構成像ピクセルサイズ (nm)	5

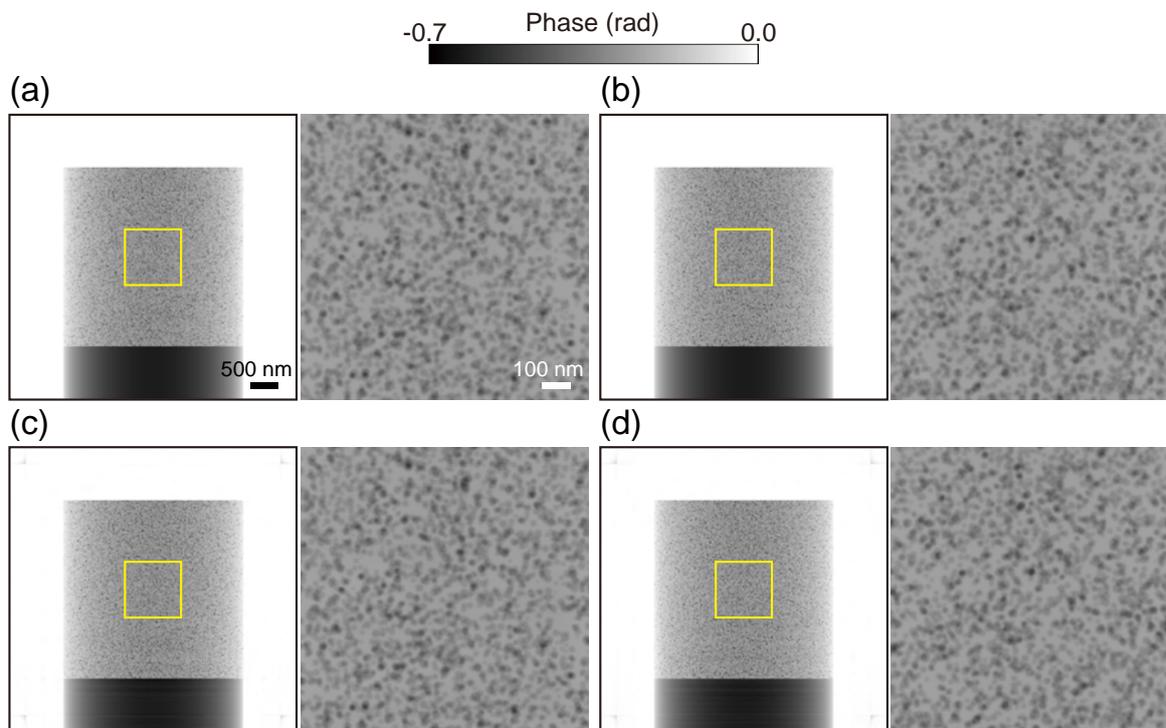


図 5.11 円柱状試料の 0° における 3PIE 再構成位相像. (a), (b) 各層のオリジナル位相像. (a)1 層目. (b)2 層目. (c), (d)3PIE 再構成位相像. (c)1 層目. (d)2 層目.

い FRC 値を示しており、理論分解能を実現することができている。このように 3PIE 再構成計算を利用することで被写界深度を超えた試料厚さであっても、空間分解能を損なうことなく試料投影像を再構成可能であることが確認された。

次に 3次元試料像の再構成を行い、提案する計算法の有用性を評価した。3次元再構成計算は次に示す 4つの方法で行っている。1, 2つ目の方法では、初めにすべての試料角度で、層数を 2, 層間距離を $1.6 \mu\text{m}$ に固定した 3PIE を反復回数 500 回ずつ行った。そして、再構成された 2 層の複素透過関数の積をとることで投影像を算出し、これらに対しフィルター補正逆投影法、もしくは加算型 ART を実行することで 3次元試料像を取得した。ここで、加算型 ART の反復計算回数は 5 回とした。3つ目の方法では、提案した計算法を利用して 3次元複素透過関数を直接再構成した。ただし、位相回復計算では ePIE を利用している。各角度での位相回復計算の反復回数は 100 回としている。全ての角度での回折強度パターンセットを利用した位相回復計算が終了した時点をも 1 ループとし、計 5 ループとなるよう反復計算した。それぞれのループでは、選択する角度の順序がランダムになるようにしている。4つ目の方法でも提案する計算法を利用しているが、位相回復計算に 3PIE を利用している。3PIE では、層数を 2, 層間距離を $1.6 \mu\text{m}$ に固定して、100 回行った。全体の反復計算は上で述べたような 5 回のループの内、ePIE で 2 回計算した後、3PIE で 3 回計算した。なお、4つ全ての計算法で入射波動場は既知として固定して計算している。

図 5.15(c), (d), (e), (f) に上述したそれぞれの方法で再構成した 3次元位相像の図 5.15(a) の赤線で囲まれている中央断面像を示している。図 5.15(c) では均一であるはずのスチレン・ブタジエンゴムの

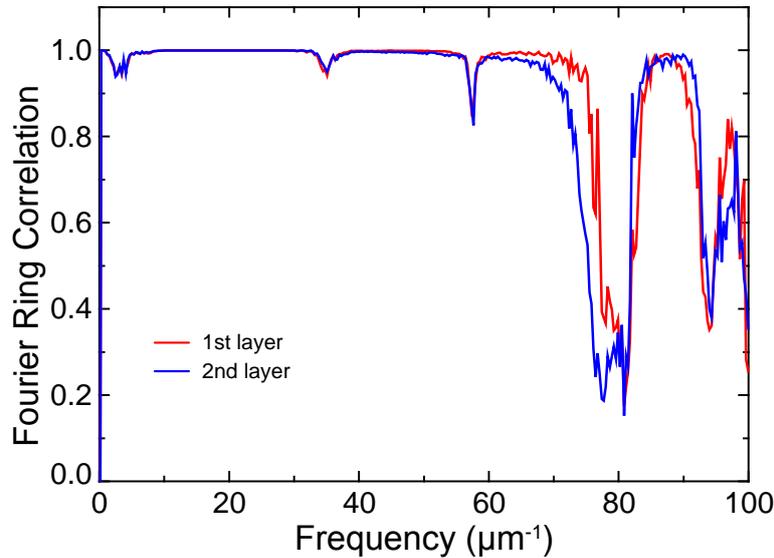


図 5.12 円柱状試料の 0° における 3PIE 再構成位相像の FRC.

領域に線状のアーティファクトが多数見られる。フィルター補正逆投影法を利用した 3 次元再構成では、Crowther limit に満たない試料角度数での再構成において特に線状のアーティファクトが出やすいとされており [109]、本再構成像でもこの傾向が見られる。さらに、赤矢印で示される金ナノ粒子の形状は本来、球形であるはずだが、歪んで再構成されている。一方、逐次近似的に 3 次元再構成している図 5.15(d), (e), (f) では、アーティファクトが平均化されることにより、ゴムの領域は比較的一様な値を示している。しかしながら、金ナノ粒子の構造は図 5.15(c) では僅かに歪んだ形状が、図 5.15(d) ではぼけた形状が再構成されている。これらはそれぞれ試料角度数が不足していること、被写界深度を超える試料厚さの再構成計算を行っているために 2 次元投影像の空間分解能が悪化していることが原因である。これらの再構成像に比べ、図 5.15(e) では金ナノ粒子の構造が鮮明に再構成されており、位相シフト量もオリジナル画像に近いものが得ることができていた。図 5.16 に図 5.15(b) のオリジナル画像と (c), (d), (e), (f) の再構成位相像をそれぞれ利用して算出した FRC を示す。提案した計算法である逐次近似法と 3PIE の組み合わせでは、全ての空間周波数領域で 0.5 以上の値を示しており、ほぼ正しく再構成計算ができていると結論付けられる。一方、その他の再構成法では、 $20 \mu\text{m}^{-1}$ 辺りを境に FRC の落ち込みが見られた。これらは、角度数の不足によるアーティファクトや被写界深度を超える厚さの試料を再構成したことにより、空間分解能が悪化していることを示している。以上のように、Crowther limit の $1/6$ 以下の角度サンプリング数であっても、提案した計算法により 3 次元再構成が可能であることが実証された。

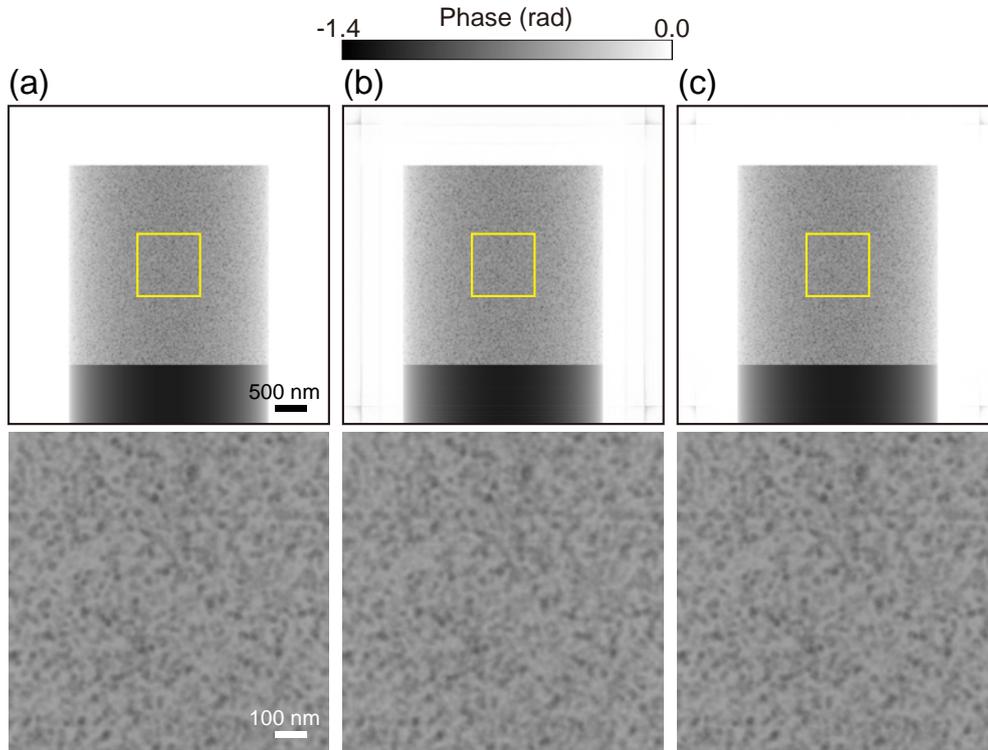


図 5.13 円柱状試料の 0° における ePIE, 3PIE 再構成計算による投影位相像. (a) オリジナル位相像. (b)ePIE. (c)3PIE. 図 5.11(c), (d) を足し合わせることで算出した.

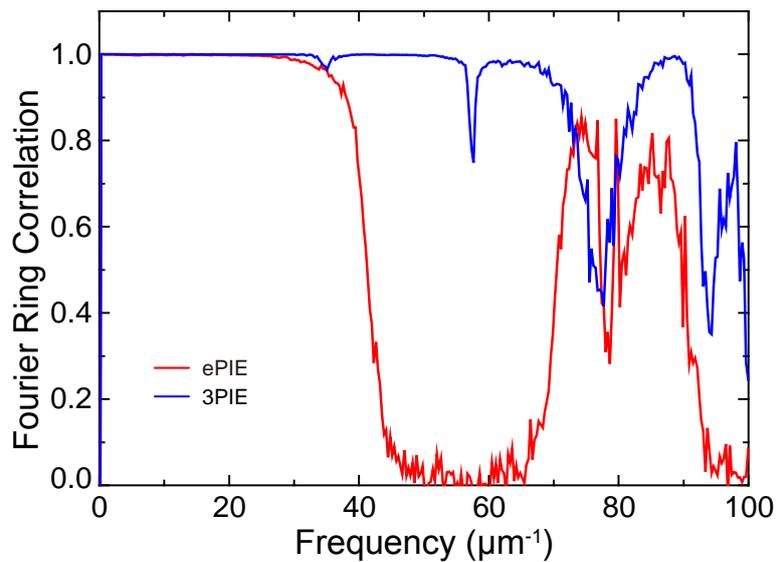


図 5.14 円柱状試料の 0° における ePIE, 3PIE 再構成計算による投影位相像の FRC.

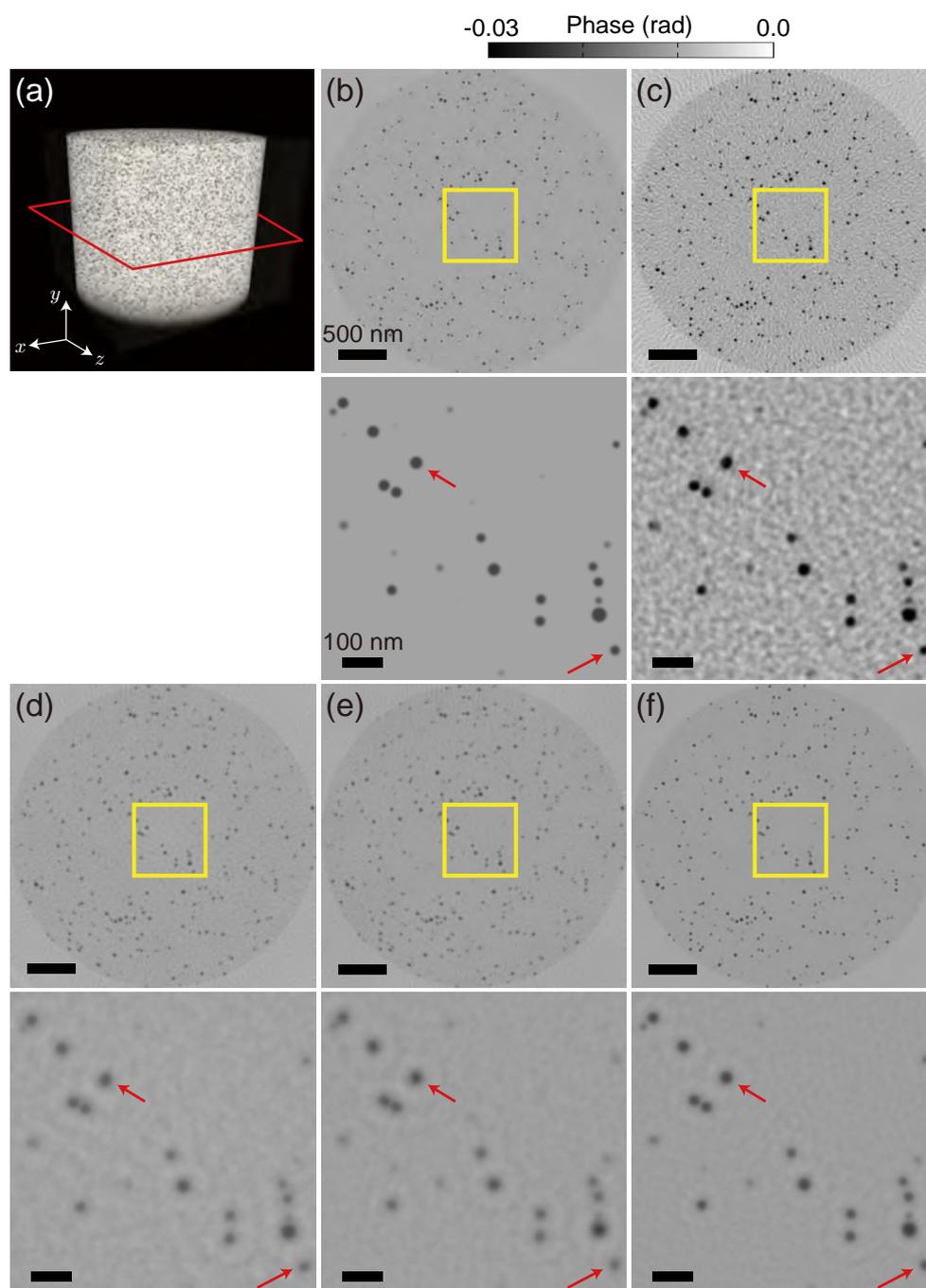


図 5.15 測定角度数が不足した条件における 3 次元再構成位相像. (a) 計算機シミュレーションに利用した試料の 3 次元モデル. Crowther limit よりも小さな測定角度数でシミュレーションを行うために, $-90^\circ \sim 90^\circ$ を 1.2° 間隔, 合計 150 の試料角度でタイコグラフィ回折強度パターンを算出し, 再構成計算を行った. (b-f)(a) の赤四角で囲われた領域に相当する $x-z$ 断面位相像. (b) オリジナル画像. (c) フィルター補正逆投影法と 3PIE を利用 (FBP+3PIE). (d) 加算型 ART と 3PIE (ART+3PIE). (e) 提案アルゴリズムと ePIE (IR+ePIE). (f) 提案アルゴリズムと 3PIE (IR+3PIE).

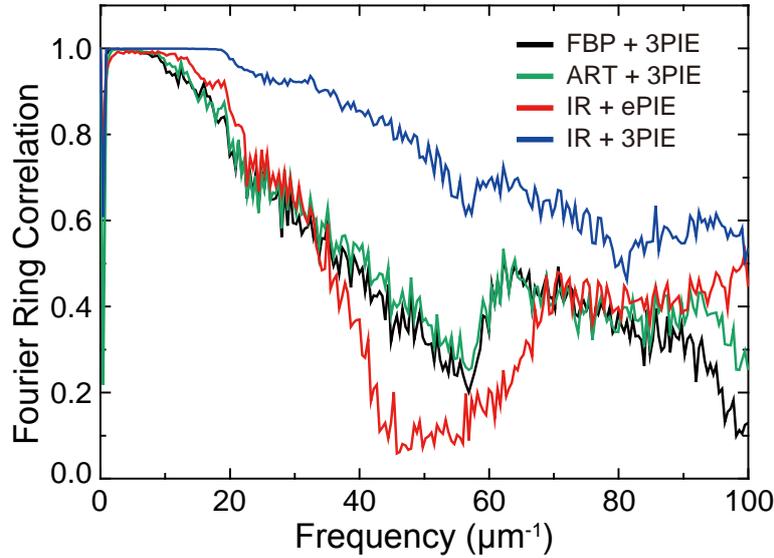


図 5.16 測定角度数が不足した条件における 3 次元位相像の回転軸垂直方向中央断面像の FRC

5.4.3 制限角度条件における 3 次元再構成

制限角度下でも提案する計算法に優位性があるか調査するため計算機シミュレーションを行った。シミュレーション条件は、モデル試料、測定角度を除き、5.4.2 項と同様のものを利用している。モデル試料には外形が立方体、内部構造は 5.4.2 項と同様のものを利用した。サンプリング角度数は、 φ , ω の両方向に $-5^\circ \sim 5^\circ$ の間を 1° 間隔で回転させた計 121 とした。ここで、 φ , ω はそれぞれ x , y 軸からの回転角度を表し、両軸回転では我々の測定光学系を想定したオイラー角による回転行列演算子を利用した。制限角度条件下のコンピューター断層撮影法における光軸方向の空間分解能は以下の式で表される [110]。

$$d_z = d_{x,y} \sqrt{\frac{\alpha + \sin \alpha \cos \alpha}{\alpha - \sin \alpha \cos \alpha}} \quad (5.10)$$

ここで、 d_z は光軸分解能、 $d_{x,y}$ は面内分解能、 α は最大傾斜角度を表し、本シミュレーション条件では $d_z=200$ nm と算出される。図 5.17 は各再構成法で得られた 3 次元試料位相像を 200 nm 厚毎に積算して 16 つの投影像を算出し、そのうちの 1, 9 層目を表示している。図 5.17(b), (c), (d) では、欠損領域によりスチレン・ブタジエンゴムの領域にアーティファクトが顕著に現れている。また、金ナノ粒子は図 5.17(b) では垂直方向に歪んだ構造が、(c), (d) では粒子の周りに円環状のアーティファクトが見られる。一方、提案した計算法では図 5.17(d) に示すように、マルチスライス位相回復計算で得られた光軸方向の情報が欠損領域の一部を埋めることで、オリジナル画像に近い試料像が再構成されている。像質の改善は図 5.18 に示す FRC から確認できる。提案した計算法では、 $0 \mu\text{m}^{-1}$ 付近を除く全領域で 1 に近い値を示している。 $0 \mu\text{m}^{-1}$ 付近の値の落ち込みは、図 5.17(d) 上の低空間周波数成分のアーティファクトと対応しており、欠損領域を完全に埋めることができていないために生じている。以上のように、マルチスライス位相回復で再構成した複数層を投影することなく 3 次元再構成に有効利用することで、試料厚さによる面内分解能の低下を防ぐだけでなく、未測定領域のデータの補完が可能であることが示された。

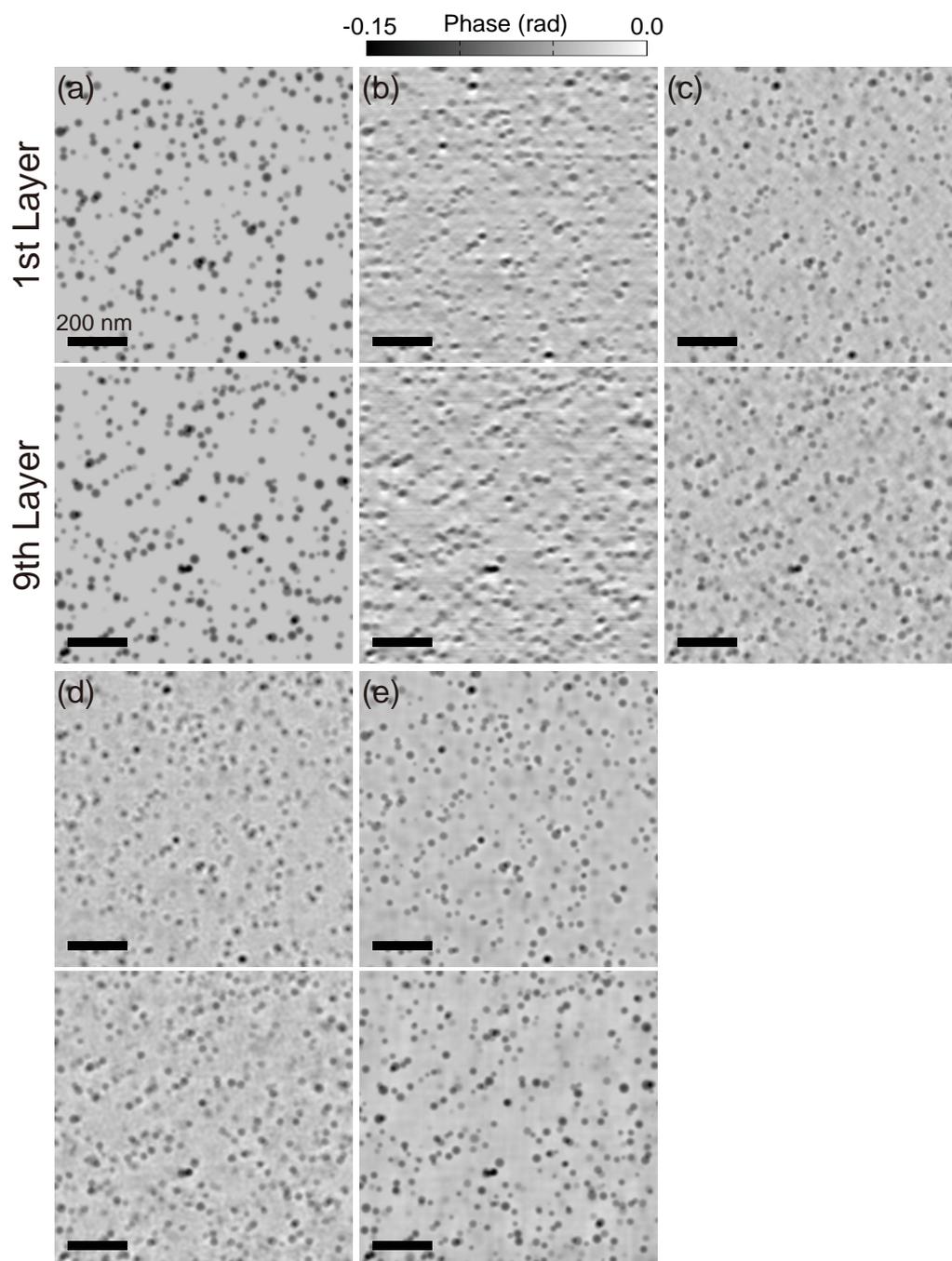


図 5.17 制限角度条件における 3 次元再構成位相像. サンプル角度数は, φ, ω の両方向に $-5^\circ \sim 5^\circ$ の間を 1° 間隔で回転させた計 121 とした. 各再構成法で得られた 3 次元試料位相像を 200 nm 厚毎に積算して 16 つの投影像を算出し, そのうちの 1, 9 層目を表示している. (a) オリジナル画像. (b) フィルター補正逆投影法と 3PIE を利用 (FBP+3PIE). (c) 加算型 ART と 3PIE (ART+3PIE). (d) 提案アルゴリズムと ePIE (IR+ePIE). (e) 提案アルゴリズムと 3PIE (IR+3PIE).

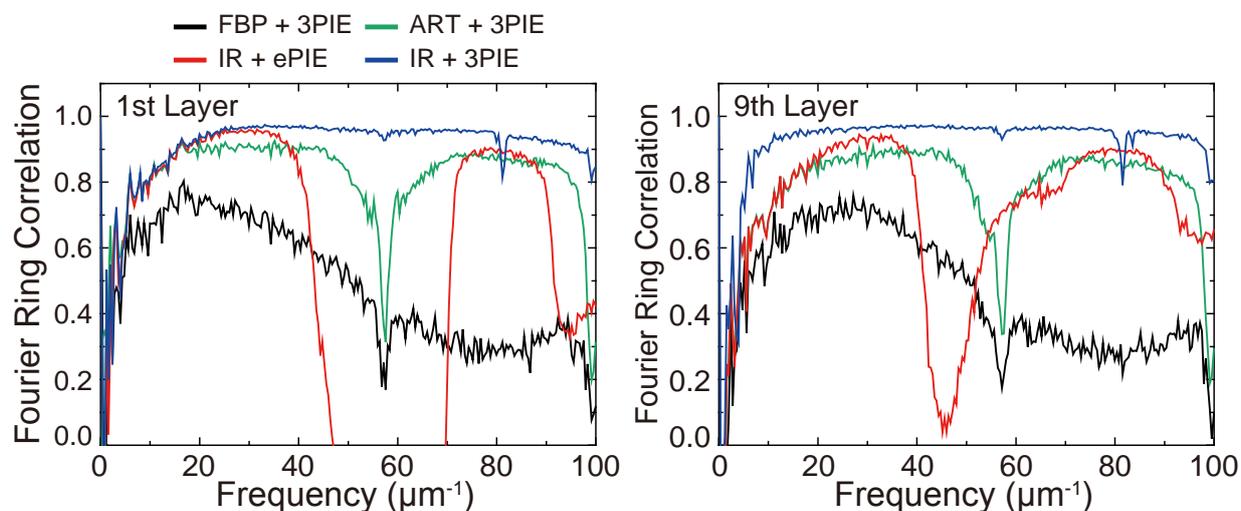


図 5.18 制限角度サンプリング条件における 3 次元位相像の光軸垂直断面像の FRC

5.5 3次元マルチスライス位相回復計算法を利用した Intel 社製 CPU の 3次元観察

5.5.1 タイコグラフィ測定

提案した計算法の有用性を実験的に実証するために、SPring-8 BL29XULにて Intel 社製 CPU のタイコグラフィ測定を行い、提案した計算法による 3次元再構成計算を行った。図 5.19 に測定模式図と試料の表面、裏面のデジタル写真を示している。6.5 keV の X 線を K-B ミラーにより $500 \times 500 \text{ nm}^2$ に集光し、幅 300 nm の格子状 11×11 点に照射して回折強度パターンを取得した。測定試料には 14 nm のデザインルールで作製された Intel 社製 CPU を利用した。表面に照射位置決め用の四角穴を FIB により加工、また写真で示されているように裏面の一部を厚さ $30 \mu\text{m}$ 程度となるようドライエッチングにより薄片化加工している。試料からの回折波はピクセルアレイ検出器 (Dectris 社製 EIGER 1M) で測定した。明視野領域を欠損なく測定する、また回折強度パターンの実行的なダイナミックレンジを増加させるために、検出器の前方 830 mm に大きさ $800 \times 800 \mu\text{m}^2$ 、厚さ $88 \mu\text{m}$ の Si アテネーターを配置した [103]。さらに、高い散乱角の回折強度を高い S/N 比で測定するため、また検出器上の一部に存在する測定モジュール間の欠損領域を補完するために、2 つ検出器位置で測定を行い、解析で利用するにはそれらを繋ぎ合わせた回折強度パターンを作成し計算に利用した。タイコグラフィ測定は、 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (2^\circ, 0^\circ), (3^\circ, 0^\circ), (4^\circ, 0^\circ), (5^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (-2^\circ, 0^\circ), (-3^\circ, 0^\circ), (-4^\circ, 0^\circ), (-5^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, 2^\circ), (0^\circ, 3^\circ), (0^\circ, 4^\circ), (0^\circ, 5^\circ), (0^\circ, -1^\circ), (0^\circ, -2^\circ), (0^\circ, -3^\circ), (0^\circ, -4^\circ), (0^\circ, -5^\circ)$ の計 21 の試料角度で行った。フルローテーションでの測定時の同様に考えると Crowther limit は φ, ω 方向それぞれ 56、計 112 と算出され、本実験は制限角度かつ測定角度が不足した条件となる。本実験条件における $d_{x,y}, d_z$ 、被写界深度はそれぞれ 12 nm, 238nm, $3.92 \mu\text{m}$ と算出された。以上のタイコグラフィ測定条件は表 5.2 にまとめている。

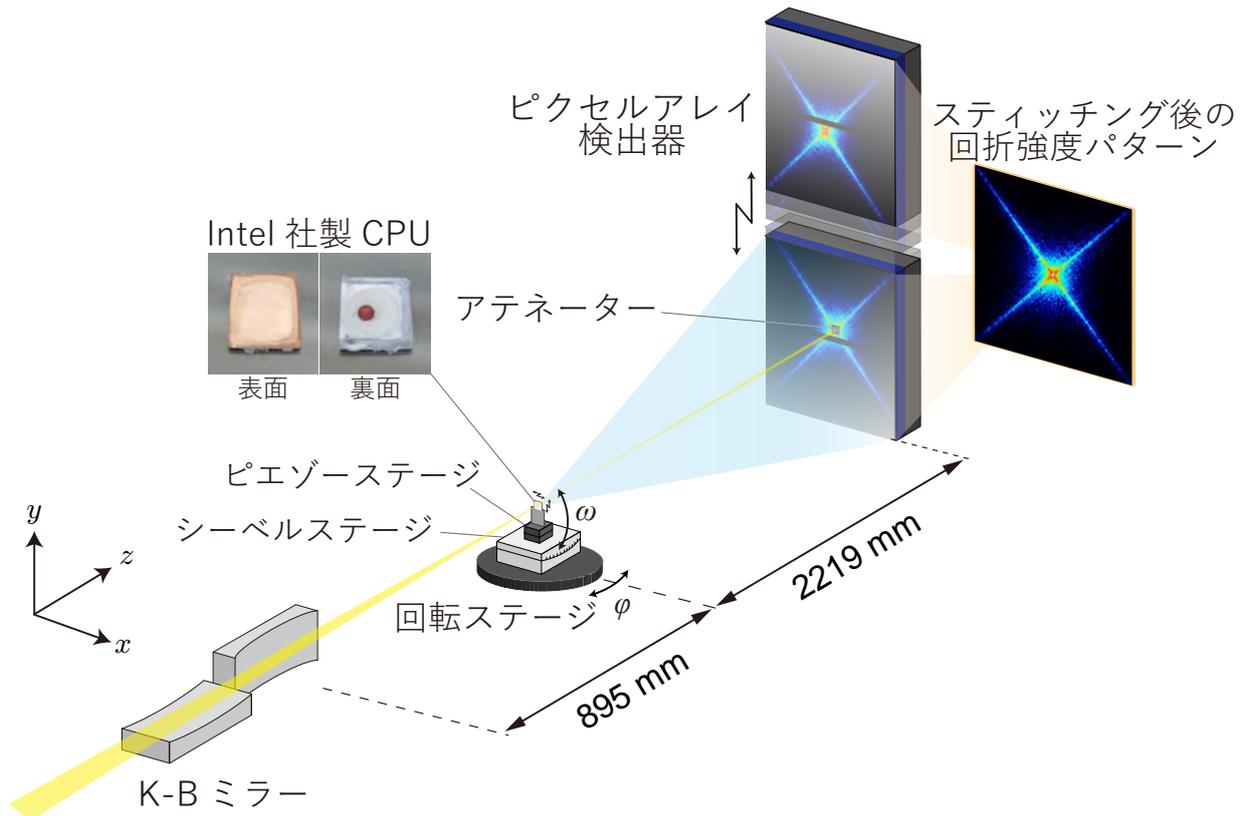


図 5.19 Intel 社製 CPU のタイコグラフィ測定実験模式図. 6.5 keV の X 線を K-B ミラーにより $500 \times 500 \text{ nm}^2$ に集光し, 幅 300 nm の格子状 11×11 に照射して回折強度パターンを取得した. 試料にはデザインルール 14 nm の Intel 社製 CPU を利用し, 試料準備として X 線が十分に透過するように裏面をドライエッチングにより薄片化している. 回折強度パターンの測定は, 1 つの照射点に対し 2 回測定し, 2 枚の回折強度パターンをステッチングすることで検出器のモジュール間に存在する未測定領域を補完している. また, 検出器の前方に厚さ $800 \mu\text{m}$, 大きさ $800 \times 800 \mu\text{m}^2$ の Si アテネーターを配置することで, 実効的なダイナミックレンジを増加させている. 測定は回転ステージ, シーベルステージを用いて $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ), (1^\circ, 0^\circ), (2^\circ, 0^\circ), (3^\circ, 0^\circ), (4^\circ, 0^\circ), (5^\circ, 0^\circ), (-1^\circ, 0^\circ), (-2^\circ, 0^\circ), (-3^\circ, 0^\circ), (-4^\circ, 0^\circ), (-5^\circ, 0^\circ), (0^\circ, 1^\circ), (0^\circ, 2^\circ), (0^\circ, 3^\circ), (0^\circ, 4^\circ), (0^\circ, 5^\circ), (0^\circ, -1^\circ), (0^\circ, -2^\circ), (0^\circ, -3^\circ), (0^\circ, -4^\circ), (0^\circ, -5^\circ)$ の計 21 の試料角度で行った.

表 5.2 Intel 社製 CPU の X 線タイコグラフィ測定条件

X 線エネルギー (keV)	6.5
ステップ点数	9 × 9
ステップ幅 (nm)	300
集光ビームサイズ (nm ²)	~ 500 × 500
露光時間 (s)	20
回折強度パターンピクセル数	941
検出器ピクセルサイズ (μm)	75
カメラ長 (m)	2.219
再構成像ピクセルサイズ (nm)	6

5.5.2 2次元再構成位相像

3次元再構成に先立ち、 $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ において2次元試料像の再構成計算を行った。初めに層間距離を決定するために、試料の層数を2層に固定、層間距離を変化させながら試料像を3PIE再構成し、その像質から適切な層間距離を決定した。図5.20に層間距離を2 μm, 6 μm, 10 μm, 50 μmにした際の2層の再構成位相像を利用して算出した投影像を示している。層間距離に対応して像質が変化する様子を確認でき、適切な層間距離は6 μmと決定した。この結果から試料厚さは12 μmと決定し、3PIEの計算においては各層の厚さが被写界深度3.92 μmよりも小さくなるように分割層数を4層に設定した。

図5.21に $(\varphi, \omega) = (0^\circ, 0^\circ)$ においてePIE, 3PIEにより再構成した位相投影像を示している。ePIEの照射関数のモード数は2とし、初期関数にはフレネル回折で算出されるK-Bミラーの理想的な集光波動場を第1モードに(付録Aを参照)、第1モードの振幅を0.01倍、位相をランダムとした波動場を第2モードとして入力した。初期試料関数には均一な値を入力し、反復回数が300回となるまで計算を続けた。3PIEでは、ePIEによる反復計算を100回行い再構成した照射波動場と複素透過関数を1/4乗したものをそれぞれ初期照射関数、初期試料関数とし、200回の反復計算を行った。図5.21の再構成位相像の拡大図からもわかるよう、ePIEによる再構成像では配線の端部がぼけて見えるのに対し、3PIEでは端部が鮮明に再構成されている。図5.21(a), (b)の各再構成位相像上の赤線部のラインプロファイルを図5.21(c)に示している。3PIEのラインプロファイルはePIEのものに比べ急峻なプロファイルが得られている。また、ラインプロファイルを微分し、ガウス関数でフィッティングした際のFWHMから空間分解能を算出したところ、 12.4 ± 1.2 nmと算出され、ePIEの 13.9 ± 2.5 nmよりも高い空間分解能が実現されていることが確認された。

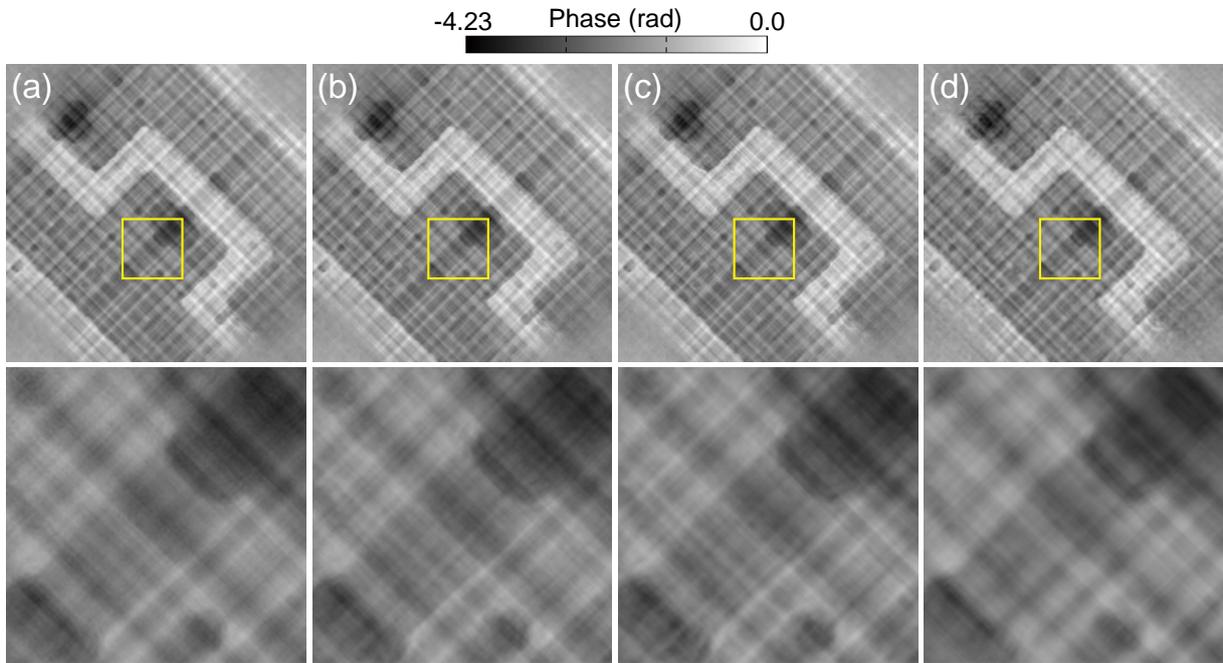


図 5.20 Intel 社製 CPU の 3PIE 再構成計算を層間距離を $2 \mu\text{m}$, $6 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ を変化させて行い、再構成された位相像の投影像から適正な層間距離を決定した。(a) 層間距離 $2 \mu\text{m}$. (b) $6 \mu\text{m}$. (c) $10 \mu\text{m}$. (d) $50 \mu\text{m}$.

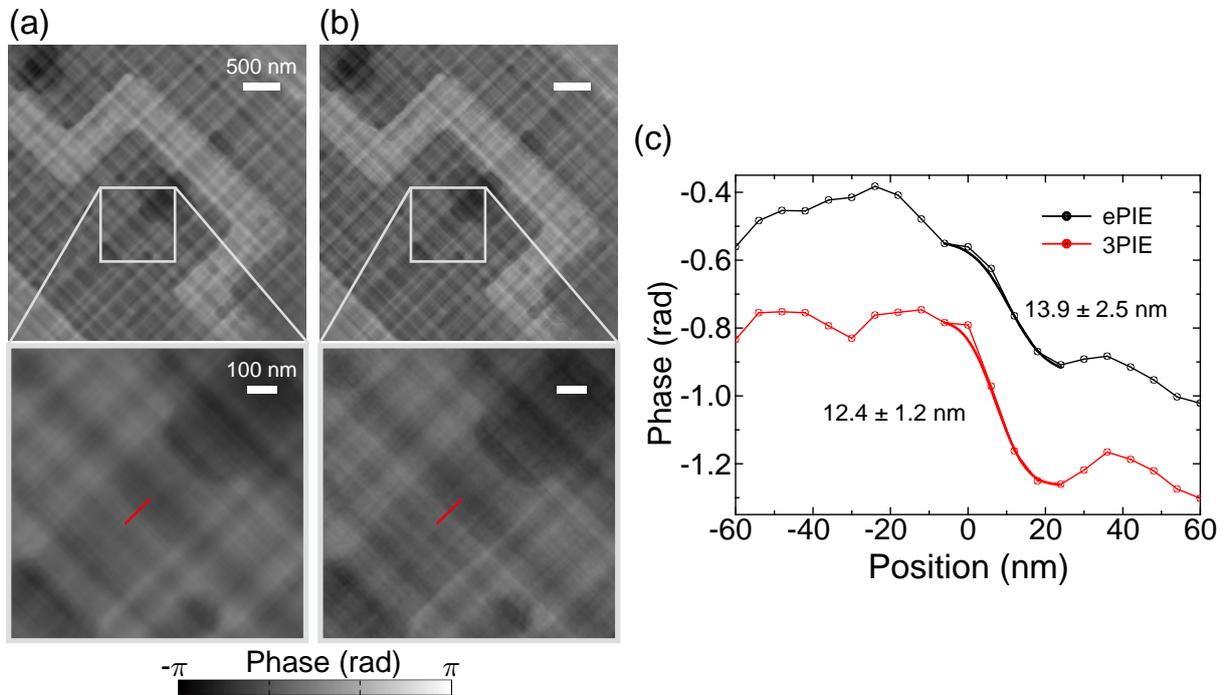


図 5.21 Intel 社製 CPU の ePIE, 3PIE による再構成投影位相像. 3PIE は層数を 4, 層間距離を $2 \mu\text{m}$ として再構成した位相像の足し合わせを表示している。(a)ePIE. (b)3PIE. (c)(a), (b) の赤線部のラインプロファイル.

5.5.3 3次元再構成位相像

5.3.1項で紹介した3次元位相回復計算法を利用した3次元再構成計算を行った。角度間での測定領域のズレを補正するために、3PIEで算出された2次元投影像をもとに相対的なズレ量を算出し、3次元位相回復計算へ入力した。さらに、この照射位置ズレの情報を保持するため、また測定中における入射X線波動場の変化を考慮するために、それぞれの試料角度での位相回復計算では照射関数を共有せず、3PIEで得られた照射関数を初期関数としてそれぞれ入力した。1回のループにおいて、それぞれの試料角度での位相回復計算での反復回数を100回とし、合計で3ループさせた。なお、1ループ目ではePIE、2、3ループ目では3PIEの層数をそれぞれ2、4層として計算した。3次元複素透過関数を再構成した後、5.4.3節の計算シミュレーションと同様に、厚さ240 nmの31層に分割した。図5.22に31層の再構成位相像を示す。光軸方向の構造が鮮明に再構成されており、例えば21層目のようなピア構造や25層目のように25 nmの配線構造を確認することができており、実験データに対しても提案する計算法が有効に機能することを実証した。以上のように、本手法は10 nm程度の高い面内分解能と数100 nmの光軸分解能を簡易的な試料準備と測定で実現できる3次元観察法であり、今後様々な応用展開が期待される。

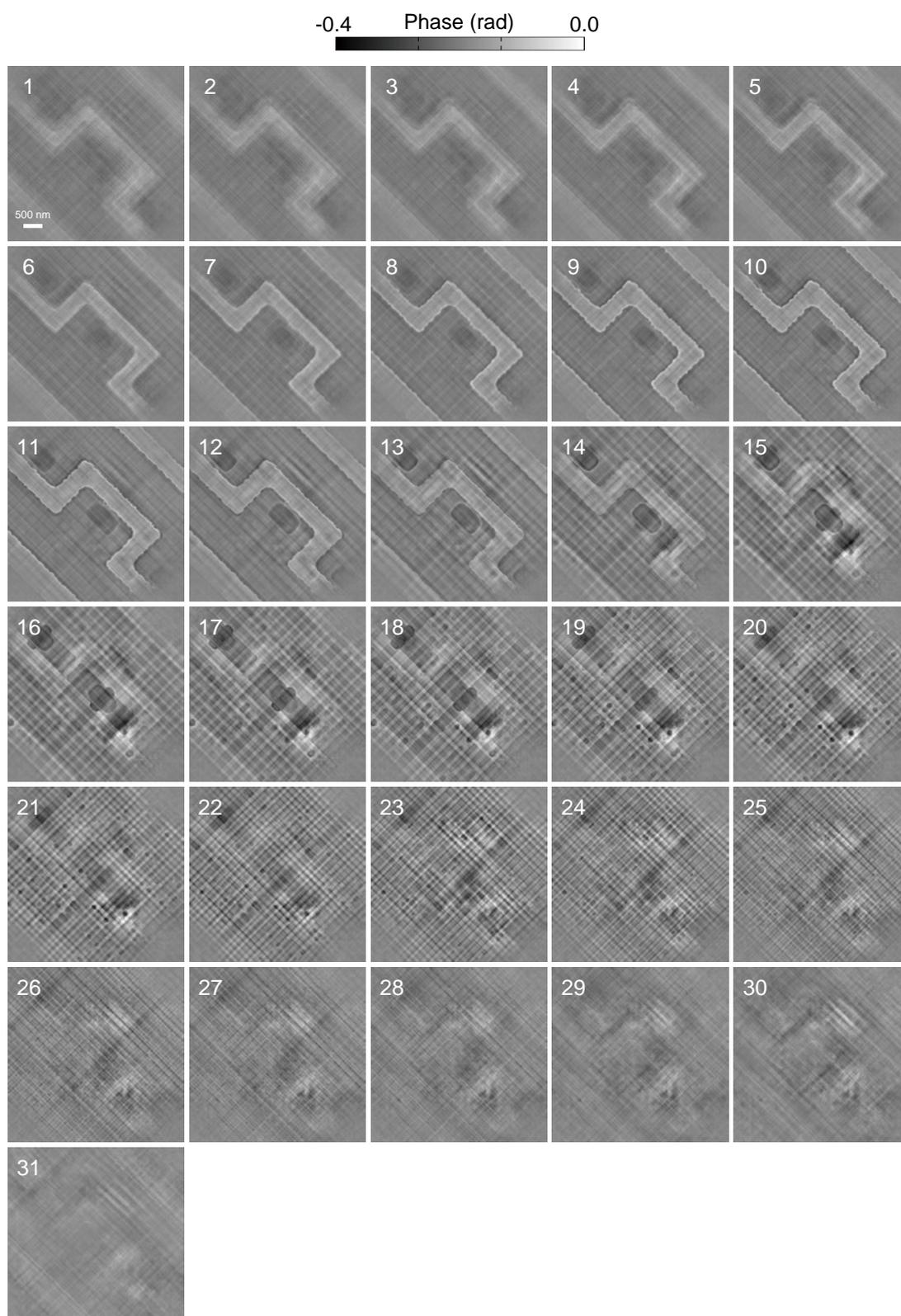


図 5.22 提案した3次元位相回復計算法による Intel 社製 CPU の3次元再構成位相像。等方的なボクセルサイズの3次元像を再構成した後、厚さ 240 nm 毎に積算した 31 層を表示している。

5.6 結言

本章では、3次元再構成に必要な試料角度数の低減を目的として、マルチスライス位相回復計算で得られた各層の投影像を有効に利用した3次元マルチスライス位相回復計算法を提案した。また、計算機シミュレーションによる本手法の性能評価を行い、Intel社製CPUの観察を通して本手法の有用性を実証した。以下にその内容をまとめる。

- (1) マルチスライス位相回復計算で得られた光軸垂直方向の複数の断面像を利用した3次元再構成法として Angle extension と呼ばれる手法を紹介した。また、プリセッション 3PIE の適用可能条件から Angel extension が X 線領域では適用が難しいことが示された。
- (2) マルチスライス位相回復計算で取得した複数層の投影像を有効に利用した3次元再構成法として、逐次近似法とマルチスライス位相回復計算を同時並行で行う3次元位相回復計算法を提案した。また、モデル投影像を利用した計算機シミュレーションにより、Crowther limit を満たさない測定角度数での3次元再構成でも、(分割層数) × (測定角度数) の角度数を利用した従来法の像質に近い3次元像の再構成が可能であることが示された。
- (3) スチレン・ブタジエンゴム、Au ナノ粒子からなる円柱状試料を用いた計算機シミュレーションにより、測定角度が不足した条件において提案した計算法の性能評価を行った。従来法では測定角度数が不足することにより、本来均一であるべきゴムの領域にアーティファクトが発生し、Au 粒子の球形構造が歪んで再構成されていたが、提案した計算法では信頼性の高い3次元像を再構成することに成功した。再構成3次元像の回転軸垂直面の中央断面像を FRC を用いて定量的な評価したところ、提案手法では全ての空間周波数領域で 0.5 以上の高い値を示していた。
- (4) スチレン・ブタジエンゴム、Au ナノ粒子からなる直方体状試料を用いた計算機シミュレーションにより、測定角度が制限された条件において提案した計算法の性能評価を行った。従来法では Missing wedge の存在により、本来均一であるべきゴムの領域や Au 粒子の球形構造の周りに多数のアーティファクトが発生していたが、提案した計算法では信頼性の高い3次元像を再構成することに成功した。再構成3次元像を光軸分解能に分割した各層を FRC を用いて定量的な評価したところ、提案手法では全ての $0 \mu\text{m}^{-1}$ を除く全ての空間周波数領域で 1 に近い値をとっており、未測定領域のデータ補完に対して有用であることが示された。
- (5) SPring-8 にて Intel 社製 CPU のタイコグラフィ測定を測定角度が不足している、かつ測定角度が制限された条件で行い、提案した計算法を利用した3次元位相回復計算を実行したところ、面内方向 12 nm、光軸方向 240 nm のボクセルサイズで3次元再構成することに成功し、被写界深度を超えた厚さの試料の高分解能3次元観察が可能であることを実証した。

第6章

結論

X線タイコグラフィは、コヒーレントなX線を光軸垂直方向に走査した試料に照射して複数の回折強度パターンを測定し、計算機による位相回復計算を実行することで試料像を取得するイメージング法である。現在、放射光施設で幅広く利用されている走査型・結像型X線顕微鏡の空間分解能は、主に光学素子の作製精度に依存しているが、本手法は計算機が理想的な光学素子として機能することで、現存するX線イメージングの中で最高水準の空間分解能が実現されている。また、試料の走査範囲を広げることで、比較的広い観察視野を確保することができる。X線タイコグラフィはコンピューター断層撮影法と組み合わせることで3次元観察法へ拡張することが可能であるが、今後、他のイメージング法では実現の難しい広視野・高空間分解能・非破壊3次元イメージング法へ発展するためには、(1)3次元再構成に必要な投影像数の低減、(2)被写界深度による観察可能な試料厚さの制限の解消が課題として挙げられる。本論文ではこれらの課題の解決策の1つであるマルチスライスX線タイコグラフィの研究に関してまとめた。

第1章では、被写界深度を超えた厚さの試料を空間分解能を損なうことなく観察可能な手法としてマルチスライスX線タイコグラフィが実証されてから現在に至るまでの歴史的背景をまとめた。さらに、本手法の更なる高度化に向けた課題を指摘し、本研究の目的、意義、概略について述べた。

第2章では、X線タイコグラフィの原理とマルチスライス法を含むその要素技術についてまとめた。また、X線タイコグラフィを3次元イメージング法へ拡張するコンピューター断層撮影法の原理とその要素技術についてまとめた。

第3章では、X線タイコグラフィ測定の高速化を目的として、ピクセルアレイ検出器、部分コヒーレントX線を利用したX線タイコグラフィ測定光学系を構築した結果について報告した。以下にその内容をまとめる。

- (1) 読み出し時間が4 μ 秒程度と非常に短いピクセルアレイ検出器 EIGER 1M を導入し、タイコグラフィ測定の高速化を試みた。EIGER に入射するX線強度をAl箔により減衰させながら入射X線強度と表示される光子数の線形性が保障される最大光子数を評価したところ、電子バンチモード依存性が見られ、Aモード、Dモード、Fモードそれぞれ 1200000 photons/pixel/s, 150000

photons/pixel/s, 200000 photons/pixel/s 程度となった。

- (2) EIGER 1M を導入したタイコグラフィ測定装置を利用して Ta 200 nm ジーメンスターチャートのタイコグラフィ測定を、走査点数 16×16 、ステップ幅 300 nm、露光時間 3 秒として行った。取得データに ePIE を実行したところ試料振幅像、位相像と照射波動場を鮮明に再構成することに成功した。測定時間は 50 分程度であり、直接撮像型 CCD 検出器を利用した従来の測定光学系に比べ、26 倍程度の測定の高速化に成功した。
- (3) 部分コヒーレント光を利用した X 線タイコグラフィ測定の高速化の実現に向け、空間コヒーレンス度を調整する 4 象限スリットサイズと混合状態再構成計算における照射関数の各モードの光子密度の関係を計算機シミュレーションにより調査した。計算機シミュレーションは 2 種類行い、水平、垂直方向のスリットサイズを $10 \sim 70 \mu\text{m}$ と変化させながら 1 次元ずつ独立で計算した。水平方向のスリットサイズ $S_x=50 \mu\text{m}$ までは第 1 モードの光子密度が線形的に増加していたが、それより大きな S_x では大きく変化せず、高次モードの光子密度の増加が見られた。一方、垂直方向では $S_z=70 \mu\text{m}$ まで第 1 モードの光子密度が線形に増加しており、高次のモードは現れなかった。この結果から、高次のモードの出現を抑制しつつ、コヒーレント光の光子密度を最大化するためのスリットサイズは水平方向は $S_x=50 \mu\text{m}$ 付近が、垂直方向は回折限界集光が達成可能な $S_z=50 \mu\text{m}$ 付近が最適値であることがわかった。
- (4) SPring-8 にて 4 象限スリットサイズを垂直方向は $S_z=50 \mu\text{m}$ に固定、水平方向は $S_x=10 \mu\text{m}$, $30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ と変化させながらタイコグラフィ測定を行った。それぞれのスリットサイズで測定した回折強度パターンに対し、ePIE、照射関数を第 3 モードまで考慮した混合状態再構成計算を実行したところ、ePIE では完全コヒーレント照明と見なせる $S_x=10 \mu\text{m}$ の場合のみ試料像が再構成され、部分コヒーレンス照明となっている $S_x=30 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ では試料像が再構成されなかった。一方、第 3 モードまで考慮した混合状態再構成計算では、すべてのスリットサイズで鮮明な試料像の再構成に成功した。PRTF で半周期空間分解能を評価したところ、 $50(\text{H}) \times 50(\text{V}) \mu\text{m}^2$ で最も高い空間分解能 13 nm を達成した。
- (5) 混合状態再構成計算で算出した各モードの占有率と PIN フォトダイオードで測定した光子密度から第 1 モードの光子数を算出したところ、スリットサイズが大きいほど高い光子数となっており、第 1 モードの光子数と空間分解能に相関が見られた。さらに、 $S_x=10 \mu\text{m}$, $50 \mu\text{m}$ の第 1 モードの光子数を比較すると後者が ~ 6 倍となっており、部分コヒーレント光を利用することで 6 倍速くタイコグラフィ測定が可能であることが実証された。

第 4 章では、マルチスライス X 線タイコグラフィにおける光軸分解能の向上を目的として、プリセッション測定に着目し、プリセッション測定で取得したデータを利用した計算法としてプリセッション 3PIE を提案した。また、計算機シミュレーションによる本手法の実現可能性を検討し、4 層構造体、多

層配線の観察を通して本手法の有用性を実証した。以下にその内容をまとめる。

- (1) マルチスライス X 線タイコグラフィの光軸分解能の向上に対し、試料を歳差運動の軌道上に配置し測定を行うプリセッション測定が有効であることを、エバルト球を用いた幾何学的考察により示した。また、プリセッション測定に伴う試料の微小回転を 3PIE 再構成計算における複数層の相対位置の調整で近似可能な条件について考察し、この近似を利用した位相回復計算法として“プリセッション 3PIE”を提案した。
- (2) 2 層構造体を用いた計算機シミュレーションにより、マルチスライス X 線タイコグラフィにプリセッション測定を組み合わせることで光軸分解能の向上が可能か検討した。通常の 3PIE では光軸分解能の不足により他の層への試料構造の写り込みが見られたが、プリセッション 3PIE を利用することで各層を鮮明に再構成することに成功した。また、利用する回折強度パターンの組み合わせを変化させながらプリセッション 3PIE を実行したところ、およそその目安として各層の相対的な並進移動量が 4 ピクセル以上であるとプリセッション 3PIE が有効に機能することが確認された。さらに、1 方向の試料回転のみでは試料回転させてない方向にアーティファクトが残存してしまうため、両方向の回転が必要であることが示された。
- (3) 4 層構造体を用いた計算機シミュレーションにより、マルチスライス X 線タイコグラフィにおいて再構成すべき未知数が増加することで発生するアーティファクトに対して、プリセッション測定が有効であることを示した。
- (4) 連続体を用いた計算機シミュレーションにより、連続体に対してプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィを適用したとき、各層の構造は部分的に再構成されるが、各層の境界付近の試料構造が他方の層の再構成像に混在する傾向が見られ、各層の完全な投影像を取得することは困難であると示唆された。
- (5) SPring-8 BL29XUL にて層間距離 10 μm , 100 μm , 10 μm の 4 層構造体のプリセッションタイコグラフィ測定を 5 つの試料角度で行い、測定データに対してプリセッション 3PIE を実行した。通常の 3PIE 再構成計算では、全ての層に未知数が増加することによるアーティファクトが出現し、さらに 2, 3 層目では光軸分解能の不足により試料構造が再構成されなかったが、プリセッション 3PIE ではすべての層を鮮明に再構成することに成功した。これはプリセッション測定により試料情報の冗長性が付加されたこと、光軸分解能の理論値が 16.8 μm から 2.0 μm に向上したことに起因している。
- (6) SPring-8 BL29XUL にて化学機械研磨評価用の TEG 基盤を 1.4 μm 間隔で積層した 2 層配線のプリセッションタイコグラフィ測定を 9 つの試料角度で行い、測定データに対してプリセッション 3PIE を実行したところ、各層の配線構造を ~ 10 nm の面内分解能で再構成することに成功した。各層の再構成位相像を足し合わせたマージ画像から相対配置が水平、垂直方向に ~ 30 nm 並進移

動していることが確認でき、この変化はフィルター補正逆投影法と ePIE の組み合わせにより算出したマージ画像からは確認できなかった。

- (7) 本章で提案したプリセッションマルチスライス X 線タイコグラフィは面内分解能 10 nm, 光軸分解能 1 μm 程度であるが, トモグラフィやラミノグラフィに比べ薄片試料を簡易的に 3 次元観察することが可能であり, 例えば 3 次元集積回路の TSV 構造をナノメートルオーダーの面内分解能で簡易的に検査する手法として有用である。

第5章では, 3次元再構成に必要な試料角度数の低減を目的として, マルチスライス位相回復計算で得られた各層の投影像を有効に利用した 3次元マルチスライス位相回復計算法を提案した。また, 計算機シミュレーションによる本手法の性能評価を行い, Intel 社製 CPU の観察を通して本手法の有用性を実証した。以下にその内容をまとめる。

- (1) マルチスライス位相回復計算で得られた光軸垂直方向の複数の断面像を利用した 3次元再構成法として Angle extension と呼ばれる手法を紹介した。また, プリセッション 3PIE の適用可能条件から Angle extension が X 線領域では適用が難しいことが示された。
- (2) マルチスライス位相回復計算で取得した複数層の投影像を有効に利用した 3次元再構成法として, 逐次近似法とマルチスライス位相回復計算を同時並行で行う 3次元位相回復計算法を提案した。また, モデル投影像を利用した計算機シミュレーションにより, Crowther limit を満たさない測定角度数での 3次元再構成でも, (分割層数) \times (測定角度数) の角度数を利用した従来法の像質に近い 3次元像の再構成が可能であることが示された。
- (3) スチレン・ブタジエンゴム, Au ナノ粒子からなる円柱状試料を用いた計算機シミュレーションにより, 測定角度が不足した条件において提案した計算法の性能評価を行った。従来法では測定角度数が不足することにより, 本来均一であるべきゴムの領域にアーティファクトが発生し, Au 粒子の球形構造が歪んで再構成されていたが, 提案した計算法では信頼性の高い 3次元像を再構成することに成功した。再構成 3次元像の回転軸垂直面の中央断面像を FRC を用いて定量的な評価したところ, 提案手法では全ての空間周波数領域で 0.5 以上の高い値を示していた。
- (4) スチレン・ブタジエンゴム, Au ナノ粒子からなる直方体状試料を用いた計算機シミュレーションにより, 測定角度が制限された条件において提案した計算法の性能評価を行った。従来法では Missing wedge の存在により, 本来均一であるべきゴムの領域や Au 粒子の球形構造の周りに多数のアーティファクトが発生していたが, 提案した計算法では信頼性の高い 3次元像を再構成することに成功した。再構成 3次元像を光軸分解能に分割した各層を FRC を用いて定量的な評価したところ, 提案手法では全ての $0 \mu\text{m}^{-1}$ を除く全ての空間周波数領域で 1 に近い値をとっており, 未測定領域のデータ補完に対して有用であることが示された。

- (5) SPring-8にてIntel社製CPUのタイコグラフィ測定を測定角度が不足している、かつ測定角度が制限された条件で行い、提案した計算法を利用した3次元位相回復計算を実行したところ、面内方向12 nm、光軸方向240 nmのボクセルサイズで3次元再構成することに成功し、被写界深度を超えた厚さの試料の高分解能3次元観察が可能であることを実証した。

最後にマルチスライス法を用いた高空間分解能3次元X線タイコグラフィの将来展望を述べたい。第5章で提案した位相回復計算をより効果的に機能させるためには、“1方向のマルチスライス位相回復計算で各層の投影像をどれだけ正確に再構成できるか”が重要な鍵となる。これまで、試料前面に構造体を配置することでマルチスライスX線タイコグラフィの光軸分解能の向上を目指した実験にも取り組んできたが、構造体の存在により外乱に対してより敏感になるため、実証実験には成功していない。また、すでに述べたように多層Laueレンズ[65]を利用することで光軸分解能の向上が可能であることが報告されており[19]、他の論文ではRandom Hole Arrayのような構造体を試料前面に配置することで光軸分解能の向上が可能であると指摘されている[108]。さらに“Cross-talk”とも呼ばれる低空間周波数の構造の層間での混在をフィルター処理によりある程度は防ぐことも可能と考えられ、これらの技術的な研究の推進は今後の課題の1つであると言えるだろう。

また、単純に低エネルギーX線を利用することも有効であるといえる。現在、新たに建設が計画されている東北放射施設ではテンダーX線領域(1~5 keV)においてSPring-8の100倍以上の輝度が実現されると言われており、このエネルギー領域を有効利用することが重要になると考えられる。テンダーX線を利用することで、被写界深度が浅くなり、提案した3次元マルチスライス位相回復計算法がより有効に機能することが期待される。また、輝度が現状に比べ100倍になることで、現在、制限角度条件では数日、フルローテーション条件では10日程必要となる3次元タイコグラフィ測定がそれぞれ数10分、数10時間に短縮可能となる。これにより、広い視野と高い空間分解能を両立した3次元観察、平板上の試料の実利用環境下での3次元観察などが現実的な測定時間で実現可能となり、実試料の3次元ナノ構造を可視化する技術として物質科学や生物学に大きく貢献することが期待される。

付録 A

本論文で利用した波動光学計算法

本論文では、マルチスライス法での計算において角スペクトル法を、第3章のモデル1における伝播計算に点充填法を、モデル2での伝播計算やK-Bミラーによる理想的な集光プロファイルの算出にフレネル回折を利用しており、本章ではこれらの概要を簡単に紹介する。

初めに角スペクトル法による伝播計算を紹介する [52]。複数の単色光源からなる波動場が z 方向に伝播する系を考え、 $z=0$ における複素波動場を $U(x, y, 0)$ とする。この波動場の2次元フーリエ変換を

$$A(q_x, q_y, 0) = \int_{-\infty}^{\infty} U(x, y, 0) \exp[-i2\pi(q_x x + q_y y)] dx dy \quad (\text{A.1})$$

と定義する。このとき、 $U(x, y, 0)$ は

$$U(x, y, 0) = \int_{-\infty}^{\infty} A(q_x, q_y, 0) \exp[i2\pi(q_x x + q_y y)] dq_x dq_y \quad (\text{A.2})$$

ここで、時間依存性を無視した波数ベクトル \mathbf{k} で伝播する平面波を

$$p(x, y, z) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) = \exp[i2\pi(\alpha x + \beta y)/\lambda] \exp[i2\pi\gamma z/\lambda] \quad (\text{A.3})$$

とする。ここで、 \mathbf{x} , \mathbf{y} , \mathbf{z} をそれぞれ x , y , z 方向の単位ベクトル、 α , β , γ を方向余弦としたとき

$$\mathbf{k} = \frac{2\pi}{\lambda} (\alpha \mathbf{x} + \beta \mathbf{y} + \gamma \mathbf{z}) \quad (\text{A.4})$$

$$\gamma = \sqrt{1 - \alpha^2 - \beta^2} \quad (\text{A.5})$$

の関係をもつ。つまり、複素指数関数 $\exp[i(q_x x + q_y y)]$ は $\alpha = \lambda q_x$, $\beta = \lambda q_y$, $\gamma = \sqrt{1 - (\lambda q_x)^2 - (\lambda q_y)^2}$ の方向余弦をもって伝播する平面波と考えられ、式 (A.2) において $U(x, y, 0)$ は複素振幅 $A(q_x, q_y, 0)$ をもつ平面波の集合と捉えることができる。このとき、

$$A\left(\frac{\alpha}{\lambda}, \frac{\beta}{\lambda}, 0\right) = \int_{-\infty}^{\infty} U(x, y, 0) \exp\left[-i2\pi\left(\frac{\alpha}{\lambda}x + \frac{\beta}{\lambda}y\right)\right] dx dy \quad (\text{A.6})$$

は $U(x, y, 0)$ の角スペクトルと呼ばれる。ここまでの議論と同様に、式 (A.2) から $z = z$ 面における波動場 $U(x, y, z)$ は角スペクトル $A(\alpha/\lambda, \beta/\lambda, z)$ を用いて

$$U(x, y, z) = \int_{-\infty}^{\infty} A\left(\frac{\alpha}{\lambda}, \frac{\beta}{\lambda}, z\right) \exp\left[i2\pi\left(\frac{\alpha}{\lambda}x + \frac{\beta}{\lambda}y\right)\right] d\frac{\alpha}{\lambda} d\frac{\beta}{\lambda} \quad (\text{A.7})$$

と表せる。 U は光源のない空間内でヘルムホルツ方程式

$$\nabla^2 U + k^2 U = 0 \quad (\text{A.8})$$

を満たすので、式 (A.7) を代入すると、

$$\frac{d^2}{dz^2} A\left(\frac{\alpha}{\lambda}, \frac{\beta}{\lambda}, z\right) + \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^2 (1 - \alpha^2 - \beta^2) A\left(\frac{\alpha}{\lambda}, \frac{\beta}{\lambda}, z\right) = 0 \quad (\text{A.9})$$

と書き換えることができる。この微分方程式の基本解は

$$A\left(\frac{\alpha}{\lambda}, \frac{\beta}{\lambda}, z\right) = A\left(\frac{\alpha}{\lambda}, \frac{\beta}{\lambda}, 0\right) \exp\left(\frac{i2\pi z}{\lambda} \sqrt{1 - \alpha^2 - \beta^2}\right) \quad (\text{A.10})$$

となる。この式から $\alpha^2 + \beta^2 < 1$ が満たされる場合では、波動場が距離 z 伝播するとき、角スペクトルの複素振幅は変わらず、各成分の相対的な位相が変わるだけであることがわかる。以上をまとめると、(1) 伝播前の波動場を 2 次元フーリエ変換により平面波 (角スペクトル) に分解、(2) それぞれの平面波を伝播計算、(3) 伝播後の平面波を 2 次元逆フーリエ変換により重ね合わせ、という計算過程で伝播計算を行う。伝播計算の過程で近似を利用していないことから、高い精度での伝播計算が可能であるとされている。また、計算可能な伝播距離を伸ばす方法や伝播面毎にピクセルサイズを変更する方法などの様々な応用計算法が開発されている [111, 112]。

点充填法による伝播計算では、伝播元の波動場を点光源に分割し、各点光源から伝播面の各点への光の伝播を計算する。どのような形状の波動場でも計算が可能、また伝播先の座標のとり方も自由になるが、伝播元、伝播先のピクセル数の増加に応じて計算時間も膨大になってしまう。分割した点光源 i の座標を (x_i, y_i, z_i) 、振幅を a_i 、位相を ϕ_i とすると、この点光源の伝播面上 (s, t, z) における複素振幅は

$$U'_i(s, t, z) = \frac{a_i}{r_i} \exp[-i(2\pi r_i/\lambda + \phi_i)] \quad (\text{A.11})$$

で表される。ここで、 r_i は点光源と伝播面上の点 (s, t, z) との距離を表す。これを全ての点光源で計算、つまり

$$U'(s, t, z) = \sum_i U'_i(s, t, z) \quad (\text{A.12})$$

を計算することで、伝播先の波動場が算出される。

フレネル近似による回折理論は光の性質を理解するためには不可欠であるが、数値計算手法としてのフレネル回折計算法は近接場を取り扱える角スペクトル法より特に優れたところはなく、存在意義を失いつつある。詳細な計算方法は様々な教科書に詳述されているため割愛するが、伝播元、伝播先の光軸垂直面の複素波動場をそれぞれ $U(x, y)$ 、 $U'(s, t)$ 、伝播元と伝播面の距離を z_0 とし、フレネル・キルヒホッフの回折積分中の距離 r の項を x 、 y の 2 次の項まで近似、つまり

$$r = \sqrt{(s-x)^2 + (t-y)^2 + z_0^2} \quad (\text{A.13})$$

$$\approx \frac{s^2 + t^2}{2z_0} - \frac{sx + ty}{z_0} + \frac{x^2 + y^2}{2z_0} + z_0 \quad (\text{A.14})$$

を代入することで

$$U'(s, t) = \frac{1}{i\lambda z_0} \exp(ikz_0) \int \int_{-\infty}^{\infty} U(x, y) \exp\left[\frac{ik}{2z_0}((s-x)^2 + (t-y)^2)\right] dx dy \quad (\text{A.15})$$

$$= C \cdot \{U(s, t) * h(s, t)\} \quad (\text{A.16})$$

と変換することができる。ここで C は定数を表し、 $h(s, t)$ は

$$h(s, t) = \exp\left[\frac{ik}{2z_0}(s^2 + t^2)\right] \quad (\text{A.17})$$

で表される伝達関数である。 $h(s, t)$ のフーリエ変換は

$$H(q_x, q_y) = \mathcal{F}\left[\frac{\exp(ikz_0)}{i\lambda z_0} \exp\left[\frac{i\pi}{\lambda z_0}(s^2 + t^2)\right]\right] \quad (\text{A.18})$$

$$= \exp(ikz_0) \cdot \exp[-i\pi\lambda z_0(q_x^2 + q_y^2)] \quad (\text{A.19})$$

となっている。この式と式 (A.10) の伝達関数との比較からフレネル回折が伝達関数を

$$\sqrt{1 - (\lambda q_x)^2 - (\lambda q_y)^2} \approx 1 - \frac{(\lambda q_x)^2}{2} - \frac{(\lambda q_y)^2}{2} \quad (\text{A.20})$$

と近似したものであることがわかる。このとき q_x , q_y に対する要請は角度が小さいことのみとなるので、小角回折のみが関与する場合にはフレネル近似は正確であり、これが近軸近似と呼ばれる所以となっている。さらに、式 (A.15) は

$$\begin{aligned} U'(s, t) &= \frac{1}{i\lambda z_0} \exp(ikz_0) \exp\left[\frac{ik}{2z_0}(s^2 + t^2)\right] \\ &\quad \times \int \int_{-\infty}^{\infty} U(x, y) \exp\left[\frac{ik}{2z_0}(x^2 + y^2)\right] \exp\left[-\frac{ik}{z_0}(sx + ty)\right] dx dy \\ &= \frac{1}{i\lambda z_0} \exp(ikz_0) \exp\left[\frac{ik}{2z_0}(s^2 + t^2)\right] \mathcal{F}\left[U(x, y) \exp\left[\frac{ik}{2z_0}(x^2 + y^2)\right]\right] \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

と書き換えることが可能である。K-B ミラーの集光プロファイルの算出では、伝播元、伝播先がそれぞれ瞳面と焦点面になるので

$$G(s, t) = \exp\left[\frac{i\pi}{\lambda} \left(\frac{(pd_p)^2}{f_p} + \frac{(qd_q)^2}{f_q}\right)\right] DFT[g_0(x, y)] \quad (\text{A.22})$$

$$d_p = \frac{\lambda f_p}{M d_m} \quad (\text{A.23})$$

$$d_q = \frac{\lambda f_q}{N d_n} \quad (\text{A.24})$$

という関係式を用いて、焦点面での理想的な集光プロファイルを算出している [113]。ここで、 $G(s, t)$ は焦点面での複素波動場、 λ は入射 X 線の波長、 f_p , f_q はそれぞれ水平、垂直方向の焦点距離、 d_p , d_q は瞳面における水平、垂直方向のピクセルサイズ、 $g_0(x, y)$ は瞳関数、 M , N は水平、垂直方向のピクセル

数を表す。K-B ミラーによる集光では、ミラーの有効領域で X 線の一部を反射して集光していると考えられるために

$$g_0(m, n) = \begin{cases} 1 & (m, n) \in \text{effective area} \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} \quad (\text{A.25})$$

のように表される。このように、矩形開口からのフレネル回折と考えることができるので、sinc 関数上の強度分布をもった集光プロファイルが算出される。

付録 B

制限角度条件における 2 軸回転の有用性

一般的なトモグラフィ測定では、 $-90^\circ \sim 90^\circ$ の方向から測定を行うために、試料を円柱状に加工しなければならず、試料準備が非常に複雑になるという欠点がある。例えば実作動環境下で 3 次元構造を観察したいという要求に応えるためには、なるべく試料準備が簡易である方が望ましい。制限角度条件下での測定では等方的な空間分解能を得ることはできないが、1 方向の分解能が劣化しても 3 次元構造を簡易的に観察したい場合に適している。しかしながら、制限角度下ではフーリエ空間において原点付近の空間周波数領域の情報を取得できないために、1 方向の空間分解能の劣化に加え、低空間周波数のアーティファクトが試料像上に現れることが知られている。このアーティファクトを少しでも抑制するためには、2 軸回転による測定が有効であるとされている [114]。図 B.1(a), (b) は x, y 方向それぞれに試料を回転したときに取得できる空間周波数領域に表している。 $-\theta \sim \theta$ まで回転させながら測定した場合には、橙点線で囲まれた領域が測定され、灰色の三角柱の領域が未測定領域となる。この未測定領域は形状が楔形であることから “Missing wedge” と呼ばれる。 y 方向への回転では、異なる領域に Missing wedge が生じ、 x, y 両方向に試料を回転させた場合には、図 B.1(a), (b) の Missing wedge の重なった四角錐が未測定領域 (“Missing pyramid” と呼ばれる) として残存する。このように、制限角度条件においては 2 軸回転を行うことで未測定領域を減らすことが可能であり、アーティファクトの抑制に繋がると知られている。また、 x, y 方向どちらか一方の回転だけでなく、両方向の回転を同時に行うことで未測定領域をさらに低減できると考えられる。

5.4.3 項で利用した 3 次元モデルを利用した計算機シミュレーションにより、両方向の回転が有効であるかを調査した。図 B.2 から B.4 はモデル試料を 3 次元フーリエ変換した複素振幅に対し、測定角度に対応する 2 次元平面以外を 0 とし、3 次元逆フーリエ変換した 3 次元像を 16 層に分割した試料像を示しており、図 B.2 は未測定領域がない場合 (つまりオリジナル画像)、図 B.3 は φ, ω どちらか片方向ずつを $-5^\circ \sim 5^\circ$ の間を 1° 間隔で回転させた計 21 の角度を、図 B.4 は φ, ω の両方向に $-5^\circ \sim 5^\circ$ の間を 1° 間隔で回転させた計 121 の角度を測定角度とした計算結果である。ここで、両軸回転では我々の測定光学系を想定したオイラー角による回転行列演算子を利用した。それぞれの試料像を比較すると、特に低空間周波数のアーティファクトの発生が抑制されていることが明らかである。我々の測定光学系のように、 ω 方向の回転角度に制限があり、測定角度が十分でない場合には、Missing pyramid が大きくなり、特に低空間周波数のアーティファクトが顕著に現れる場合があるが、両軸を使った回転による測定が未測定領域の低減に有効であることが確認できる。

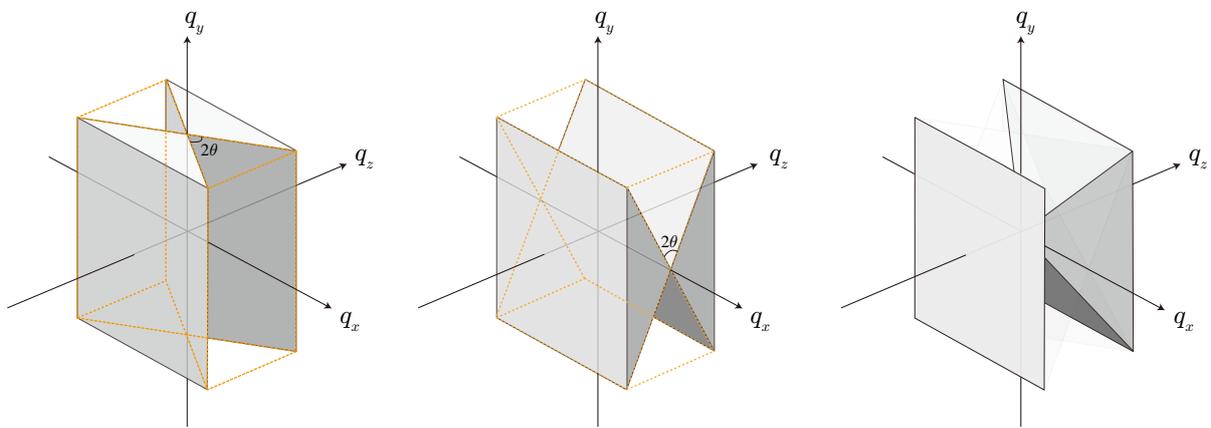


図 B.1 制限角度条件における Missing wedge. 試料を y 軸, x 軸を回転軸として $-\theta \sim \theta$ 回転させて投影像を測定したとき, フーリエ空間においては投影切断面定理によりそれぞれの (a), (b) 上の橙点線に囲まれた 2 つの三角柱の領域の空間周波数領域が測定され, 灰色の領域が未測定領域 (Missing wedge) として残る. 式 (2.48), (5.10) の空間分解能の 3 次元像を完全に再構成するためには直方体全域の情報が必要となるため, 未測定領域の存在はアーティファクトが発生に繋がる. y 軸, x 軸それぞれを回転軸とした測定を両方行うことにより, 未測定領域は (a), (b) の Missing wedge の重なった四角錐 (Missing pyramid) となり, 3 次元再構成像のアーティファクトを低減することが可能である. (a) y 軸を回転軸とした測定における Missing wedge. (b) x 軸. (c) x 軸, y 軸の 2 軸を回転軸とした測定における Missing pyramid.

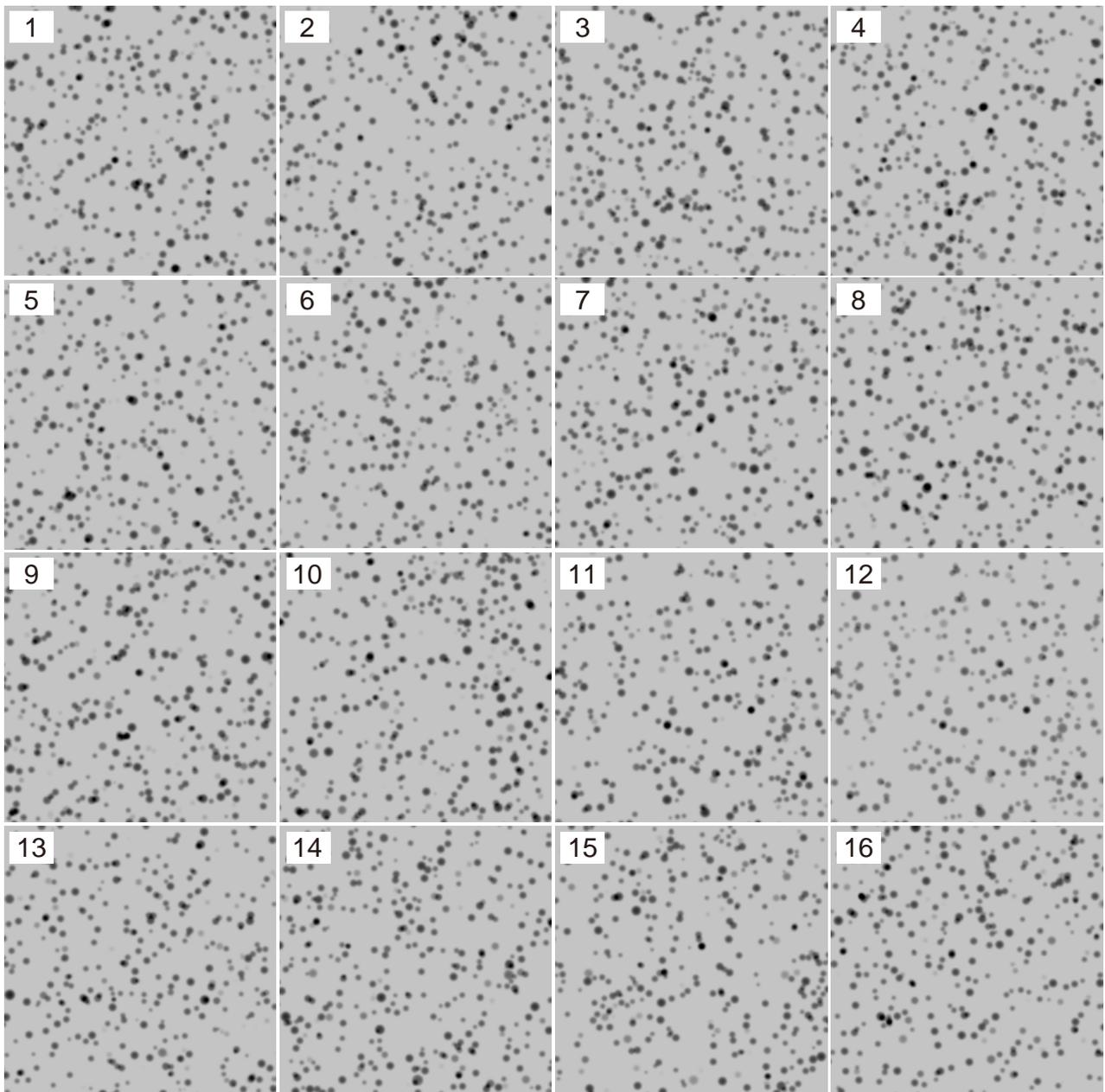


図 B.2 5.4.3 項で利用した 3 次元モデルを 16 層に分割した各層の投影像.

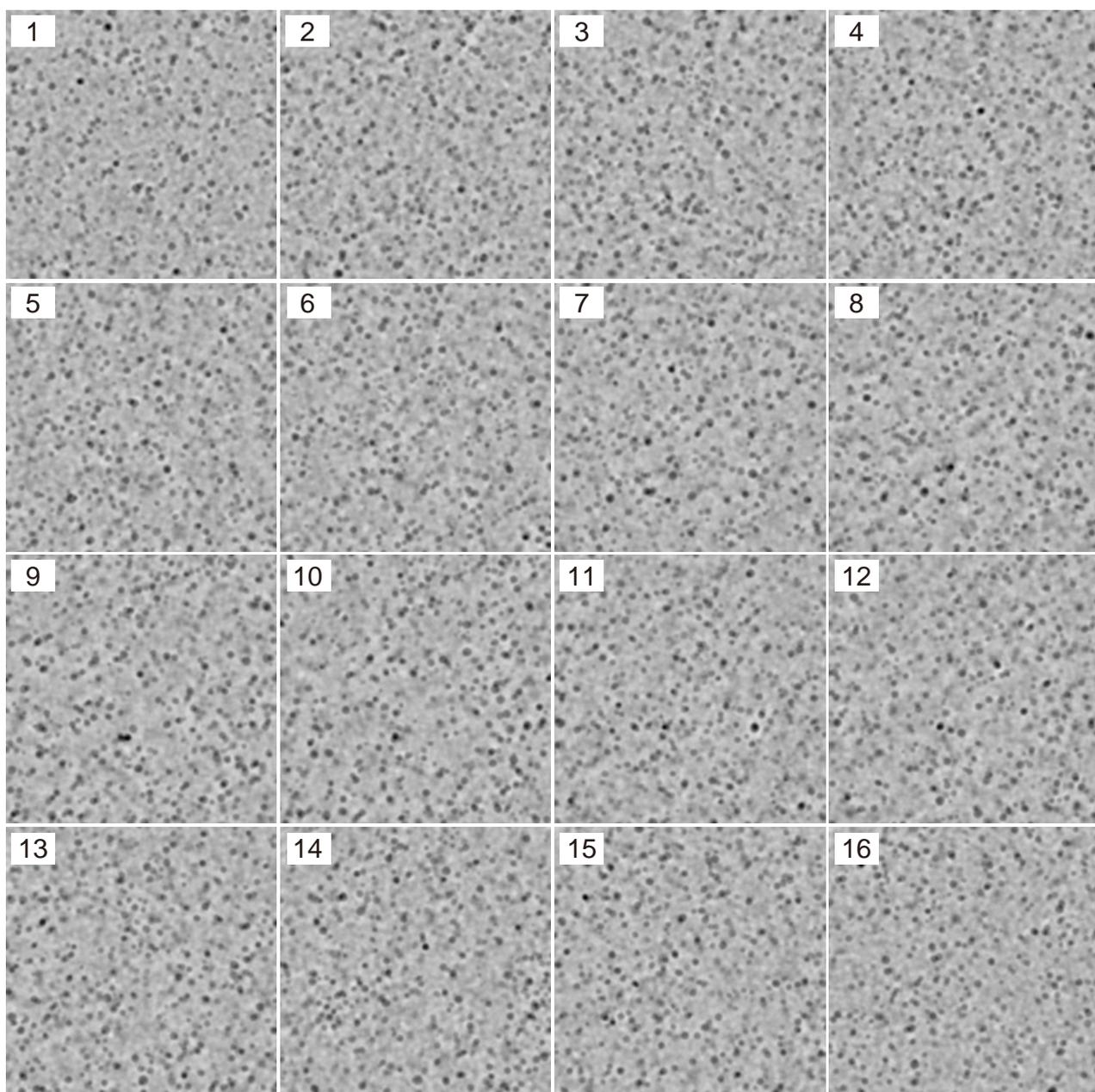


図 B.3 21 角度の測定を想定したフィルター処理後の各層の投影像.

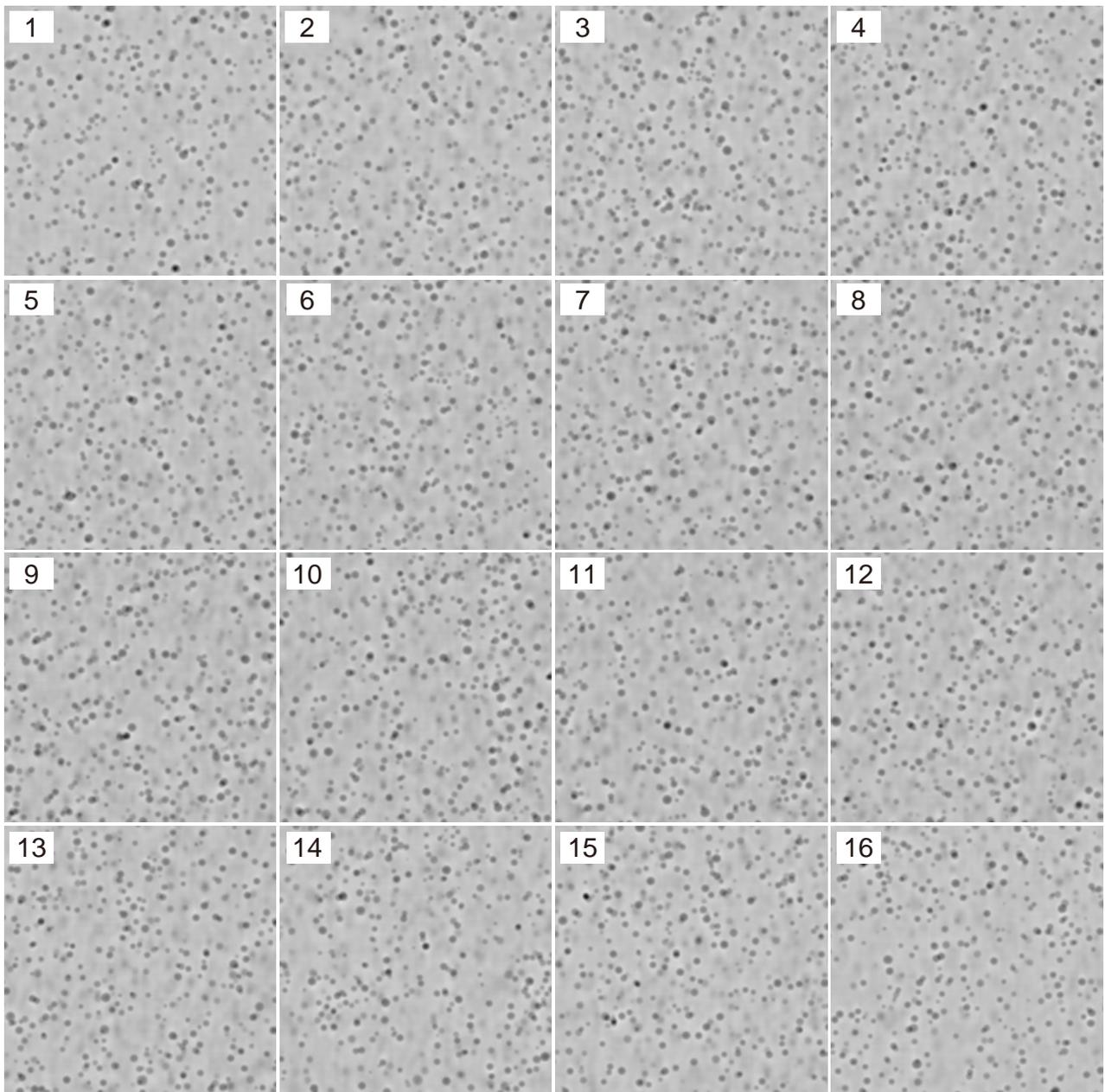


図 B.4 121 角度の測定を想定したフィルター処理後の各層の投影像.

参考文献

- [1] W. C. Röntgen. On a New Kind of Ray. *Nature*, Vol.53, pp.247-276, 1896.
- [2] J. M. Rodenburg, A. C. Hurst, A. G. Cullis, B. R. Dobson, F. Pfeiffer, O. Bunk, C. David, K. Jefimovs, and I. Johnson. Hard-X-Ray Lensless Imaging of Extended Objects. *Physical Review Letter*, Vol.98, p.034801, 2007.
- [3] J. Radon. Über die Bestimmung von Funktionen durch Ihre Integralwerte Längs Gewisser Maning-faltigkeiten. *Berichte Sächsische Akademie der Wissenschaften*, Vol.69, pp.262-277, 1917.
- [4] A. M. Cormack. Representation of a Function by Its Line Integrals, with Some Radiological Applications. *Journal of Applied Physics*, Vol.34, p.2722, 1963.
- [5] A. M. Cormack. Representation of a function by its line integrals, with some radiation applications. II. *Journal of Applied Physics*, Vol.35, p.2908, 1964.
- [6] G. N. Hounsfield. Computerized transverse axial scanning (tomography):Part I. Description of system, Vol.46, p.1016, 1972.
- [7] M. Dierolf, A. Menzel, P. Thibault, P. Schneider, C. M. Kewish, R. Wepf, O. Bunk, and F. Pfeiffer. Ptychographic X-ray computed tomography at the nanoscale. *Nature*, Vol.467, pp.436-439, 2010.
- [8] M. Holler, M. Guizar-Sicairos, E. H. R. Tsai, R. Dinapoli, E. Müller, O. Bunk, J. Raabe, and G. Aeppli. High-resolution non-destructive three-dimensional imaging of integrated circuits. *Nature*, Vol.543, p.402, 2017.
- [9] M. Holler, A. Diaz, M. Guizar-Sicairos, P. Karvinen, E. Färm, E. Härkönen, M. Ritala, A. Menzel, J. Raabe, and O. Bunk. X-ray ptychographic computed tomography at 16 nm isotropic 3D resolution. *Scientific Reports*, Vol.4, p.3857, 2014.
- [10] R. N. Wilke, M. Priebe, M. Bartels, K. Giewekemeyer, A. Diaz, P. Karvinen, and T. Salditt. Hard X-ray imaging of bacterial cells: nano-diffraction and ptychographic reconstruction. *Optics Express*, Vol.20, pp.19232-19254, 2012.
- [11] A. Diaz, B. Malkova, M. Holler, M. Guizar-Sicairos, E. Lima, V. Panneels, G. Pigino, A. G. Bittermann, L. Wettstein, T. Tomizaki, O. Bunk, G. Schertler, T. Ishikawa, R. Wepf, A. Menzel. Three-dimensional mass density mapping of cellular ultrastructure by ptychographic X-ray nanotomography. *Journal of Structural Biology*, Vol.192, pp.461-469, 2015.

- [12] J. Deng, Y. H. Lo, M. Gallagher-Jones, S. Chen, A. Pryor Jr., Q. Jin, Y. P. Hong, Y. S. G. Nashed, S. Vogt, J. Miao, and C. Jacobsen. Correlative 3D X-ray fluorescence and ptychographic tomography of frozen-hydrated green algae. *Science Advances*, Vol.4, p.eeau4548, 2018.
- [13] K. E. Herkenhoff, S. W. Squyres, R. Anderson, B. A. Archinal, R. E. Arvidson, J. M. Barrett, K. J. Becker, J. F. Bell III, C. Budney, N. A. Cabrol, M. G. Chapman, D. Cook, B. L. Ehlmann, J. Farmer, B. Franklin, L. R. Gaddis, D. M. Galuszka, P. A. Garcia, T. M. Hare, E. Howington-Kraus, J. R. Johnson, S. Johnson, K. Kinch, R. L. Kirk, E. M. Lee, C. Leff, M. Lemmon, M. B. Madsen, J. N. Maki, K. F. Mullins, B. L. Redding, L. Richter, M. R. Rosiek, M. H. Sims, L. A. Soderblom, N. Spanovich, R. Springer, R. M. Sucharski, T. Sucharski, R. Sullivan, J. M. Torson, and A. Yen. Overview of the microscopic imager investigation during spirits first 450 sols in Gusev crater. *Journal of Geophysical Research*, Vol.111, p.E02S04, 2006.
- [14] A. M. Maiden, M. J. Humphry, and J. M. Rodenburg. Ptychographic transmission microscopy in three dimensions using a multi-slice approach. *Journal of the Optical Society of America A*, Vol.29, pp.1606-1614, 2012.
- [15] J. M. Cowley, and A. F. Moddie, *Acta Crystallographica*, Vol.10, p.609, 1957.
- [16] T. M. Godden, R. Suman, M. J. Humphry, J. M. Rodenburg, and A. M. Maiden. Ptychographic microscope for three-dimensional imaging. *Optics Express*, Vol.22, pp.12513-12523, 2014.
- [17] A. Suzuki, S. Furutaku, K. Shimomura, K. Yamauchi, Y. Kohmura, T. Ishikawa, and Y. Takahashi. High-Resolution Multislice X-Ray Ptychography of Extended Thick Objects. *Physical Review Letter*, Vol.112, p.053903, 2014.
- [18] E. H. R. Tsai, I. Usov, A. Diaz, A. Menzel, and M. Guizar-Sicairos. X-ray ptychography with extended depth of field. *Optics Express*, Vol.24, pp.29089-29108, 2017.
- [19] H. Öztürk, H. Yan, Y. He, M. Ge, Z. Dong, M. Lin, E. Nazaretski, I. K. Robinson, Y. S. Chu, and X. Huang. Multi-slice ptychography with large numerical aperture multilayer Laue lenses. *Optica*, Vol.5, pp.601-607, 2018.
- [20] S. Gao, P. Wang, F. Zhang, G. T. Martinez, P. D. Nellist, X. Pan, and A. I. Kirkland. Electron ptychographic microscopy for three-dimensional imaging. *Nature communication*, Vol.163, p.163, 2017.
- [21] D. Sayre. Some implications of a theorem due to Shannon. *Acta Crystallographica*, Vol.5, p.843, 1952.
- [22] J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, and D. Sayre. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature*, Vol.400, pp.342-344, 1999.
- [23] W. Chao, P. Fischer, T. Tyliczszak, S. Rekawa, E. Anderson, and P. Naulleau. Real space soft x-ray imaging at 10 nm spatial resolution. *Optics Express*, Vol.20, pp.9777-9783, 2012.
- [24] G. E. Ice, J. D. Budai, and J. W. L. Pang. The Race to X-ray Microbeam and Nanobeam Science. *Science*, Vol.334, pp.1234-1239, 2011.
- [25] Y. Takahashi, Y. Nishino, R. Tsutsumi, N. Zettsu, E. Matsubara, K. Yamauchi, and T.

-
- Ishikawa. High-Resolution Projection Image Reconstruction of Thick Objects by Hard X-ray Diffraction Microscopy. *Physical Review B*, Vol.82, p.214102, 2010.
- [26] W. Hoppe. Beugung im inhomogenen Primärstrahlwellenfeld. I. Prinzip einer Phasenmessung von Elektronenbeugungsinterferenzen. *Acta Crystallographica Section A*, Vol.25, pp.495-501, 1969.
- [27] W. Hoppe. Beugung im inhomogenen Primärstrahlwellenfeld. III. Amplituden- und Phasenbestimmung bei unperiodischen Objekten. *Acta Crystallographica Section A*, Vol.25, pp.508-514, 1969.
- [28] R. Hegerl, and W. Hoppe. Dynamische Theorie der Kristallstrukturanalyse durch Elektronenbeugung im inhomogenen Primärstrahlwellenfeld. *Berichte der Bunsengesellschaft für Physikalische Chemie*, Vol.74, pp.1148-1157, 1970.
- [29] R. Hegerl, and W. Hoppe. Phase evaluation in generalized diffraction (ptychography). *Proceeding of the 5th European Congress on Electron Microscopy*, pp.628-629, 1972.
- [30] W. Hoppe. Trace structure analysis, ptychography, phase tomography. *Ultramicroscopy*, Vol.10, pp.187-198, 1982.
- [31] R. H. T. Bates, and J. M. Rodenburg. Sub-ångström transmission microscopy: A fourier transform algorithm for microdiffraction plane intensity information. *Ultramicroscopy*, Vol.31, pp.303-307, 1989.
- [32] B. C. McCallum, and J. M. Rodenburg. Two-dimensional demonstration of Wigner phase-retrieval microscopy in the STEM configuration. *Ultramicroscopy*, Vol.45, pp.371-380, 1992.
- [33] J. M. Rodenburg, B. C. McCallum, and P. D. Nellist. Experimental tests on double-resolution coherent imaging via STEM. *Ultramicroscopy*, Vol.48, pp.304-314, 1993.
- [34] H. N. Chapman. Phase-retrieval X-ray microscopy by Wigner-distribution deconvolution. *Ultramicroscopy*, Vol.66, pp.153-172, 1996.
- [35] H. M. L. Faulkner, and J. M. Rodenburg. Movable Aperture Lensless Transmission Microscopy: A Novel Phase Retrieval Algorithm. *Physical Review Letters*, Vol.93, p.023903, 2004.
- [36] J. M. Rodenburg, and H. M. L. Faulkner. A phase retrieval algorithm for shifting illumination. *Applied Physics Review Letters*, Vol.85, p.4795, 2004.
- [37] J. M. Rodenburg, A. C. Hurst, and A. G. Cullis. Transmission microscopy without lenses for objects of unlimited size. *Ultramicroscopy*, Vol.107, pp.227-231, 2007.
- [38] P. Thibault, M. Dierolf, O. Bunk, A. Menzel, and F. Pfeiffer. Probe retrieval in ptychographic coherent diffractive imaging. *Ultramicroscopy*, Vol.109, pp.338-343, 2009.
- [39] A. M. Maiden, and J. M. Rodenburg. An improved ptychographical phase retrieval algorithm for diffractive imaging. *Ultramicroscopy*, Vol.109, pp.1256-1262, 2009.
- [40] R. Hoppe, J. Reinhardt, G. Hofmann, J. Patommel, J.-D. Grunwaldt, C. D. Damsgaard, G. Wellenreuther, G. Falkenberg, and C. G. Schroer. High-resolution chemical imaging of gold nanoparticles using hard x-ray ptychography. *Applied Physics Letters*, Vol.102, p.203104, 2013.
- [41] P. Thibault, M. Dierolf, A. Menzel, O. Bunk, C. David, and F. Pfeiffer. High-Resolution

- Scanning X-ray Diffraction Microscopy. *Science*, Vol.321, pp.379-382, 2008.
- [42] Y. Takahashi, A. Suzuki, N. Zettsu, Y. Kohmura, Y. Senba, H. Ohashi, K. Yamauchi, and T. Ishikawa. Towards high-resolution ptychographic x-ray diffraction microscopy. *Physical Review B*, Vol.83, p.214109, 2011.
- [43] M. Dierolf, P. Thibault, A. Menzel, C. M. Kewish, K. Jefimovs, I. Schlichting, K. von König, O. Bunk, and F. Pfeiffer. Ptychographic coherent diffractive imaging of weakly scattering specimens. *New Journal of Physics*, Vol.12, p.035017, 2010.
- [44] J. M. Rodenburg, P. Thibault, A. Menzel, C. M. Kewish, K. Jefimovs, I. Schlichting, K. von König, O. Bunk, and F. Pfeiffer. Ptychography and Related Diffractive Imaging Methods. *Advances in Imaging and Electron Physics*, Vol.150, pp.87-184, 2008.
- [45] M. Born, and E. Wolf. *Principles of Optics* 7th edition, Cambridge University Press, 1999. 草川徹訳, 光学の原理 第7版 III, 東海大学出版会, 2006.
- [46] K. A. Nugent. Coherent methods in the X-ray sciences. *Advances in Physics*, Vol.59, pp.1-99, 2010.
- [47] J. M. Rodenburg, and R. H. T. Bates. The theory of super-resolution electron microscopy via Wigner-distribution deconvolution. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A*, Vol.339, p.521, 1992.
- [48] H. N. Chapman, A. Barty, S. Marchesini, A. Noy, S. P. Hau-Riege, C. Cui, M. R. Howells, R. Rosen, H. He, J. C. H. Spence, U. Weierstall, T. Beetz, C. Jacobsen, and D. Shapiro. High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy. *Journal of the Optical Society of America A*, Vol.23, pp.1179-1200, 2006.
- [49] S. Hönig, R. Hoppe, J. Patommel, A. Schropp, S. Stephan, S. Schöder, M. Burghammer, and C. G. Schroer. Full optical characterization of coherent x-ray nanobeams by ptychographic imaging, *Optics Express*, Vol.19, pp.16324-16329, 2011.
- [50] A. Schropp, R. Hoppe, V. Meier, J. Patommel, F. Seiboth, H. J. Lee, B. Nagler, E. C. Galtier, B. Arnold, U. Zastra, J. B. Hastings, D. Nilsson, F. Uhlén, U. Vogt, H. M. Hertz, and C. G. Schroer. Full spatial characterization of a nanofocused x-ray free-electron laser beam by ptychographic imaging, *Scientific Reports*, Vol.3, p.1633, 2013.
- [51] F. Seiboth, A. Schropp, M. Scholz, F. Wittwer, C. Rödel, M. Wünsche, T. Ullsperger, S. Nolte, J. Rahomäki, K. Parfeniukas, S. Giakoumidis, U. Vogt, U. Wagner, C. Rau, U. Boesenberg, J. Garrevoet, G. Falkenberg, E. C. Galtier, H. J. Lee, B. Nagler, and C. G. Schroer. Perfect X-ray focusing via fitting corrective glasses to aberrated optics, *Nature Communications*, Vol.8, p.14623, 2017.
- [52] J. W. Goodman. *Introduction to Fourier Optics* 3rd edition, W. H. Freeman, 2004. 尾崎義治, 朝倉利光訳, フーリエ光学 第3版, 森川出版株式会社, 2012.
- [53] P. Li and A. Maiden. Multi-slice ptychographic tomography. *Scientific Report*, Vol.8, p.2049, 2018.
- [54] M. A. Gilles, Y. S. G. Nashed, M. Du, C. Jacobsen, and S. M. Wild. 3D x-ray imaging of

- continuous objects beyond the depth of focus limit. *Optica*, Vol.5, pp.1078-1085, 2018.
- [55] P. Thibault, and A. Menzel. Reconstructing state mixtures from diffraction measurements. *Nature*, Vol.494, pp.68-71, 2013.
- [56] D. J. Batey, D. Claus, and J. M. Rodenburg. Information multiplexing in ptychography. *Ultramicroscopy*, Vol.138, pp.13-21, 2014.
- [57] B. Enders, M. Dierolf, P. Cloetens, M. Stockmar, F. Pfeiffer, and P. Thibault. Ptychography with broad-bandwidth radiation. *Applied Physics Letters*, Vol.104, p.171104, 2014.
- [58] K. S. Raines, S. Salha, R. L. Sandberg, H. Jiang, J. A. Rodriguez, B. P. Fahimian, H. C. Kapteyn, J. Du, and J. Miao. Three-Dimensional Structure Determination From a Single View. *Nature*, Vol.463, pp.214-217, 2010.
- [59] J. Miao, T. Ishikawa, E. H. Anderson, and K. O. Hodgson. Phase retrieval of diffraction patterns from noncrystalline samples using the oversampling method. *Physical Review B*, Vol.67, p.174104, 2003.
- [60] T. B. Edo, D. J. Batey, A. M. Maiden, C. Rau, U. Wagner, Z. D. Pešić, T. A. Waigh, and J. M. Rodenburg. Sampling in x-ray ptychography. *Physical Review A*, Vol.87, p.053850, 2013.
- [61] D. J. Batey, T. B. Edo, C. Rau, U. Wagner, Z. D. Pešić, T. A. Waigh, and J. M. Rodenburg. Reciprocal-space up-sampling from real-space oversampling in x-ray ptychography. *Physical Review A*, Vol.89, p.043812, 2014.
- [62] O. Bunk, M. Dierolf, S. Kynde, I. Johnson, O. Marti, and F. Pfeiffer. Influence of the overlap parameter on the convergence of the ptychographical iterative engine. *Ultramicroscopy*, Vol.108, pp.481-487, 2008.
- [63] X. Huang, H. Yan, R. Harder, Y. Hwu, I. K. Robinson, and Y. S. Chu. Optimization of overlap uniformness for ptychography. *Optics Express*, Vol.22, pp.12634-12644, 2014.
- [64] C. Kewish, P. Thibault, M. Dierolf, O. Bunk, A. Menzel, J. Vila-Comamala, K. Jefimovs, and F. Pfeiffer. Ptychographic characterization of the wavefield in the focus of reflective hard X-ray optics. *Ultramicroscopy*, Vol.110, pp.325-329, 2010.
- [65] X. Huang, H. Yan, E. Nazaretski, R. Conley, N. Bouet, J. Zhou, K. Lauer, L. Li, D. Eom, D. Legnini, R. Harder, I. Robinson, and Y. Chu. 11 nm hard X-ray focus from a large-aperture multilayer Laue lens. *Scientific Reports*, Vol.3, p.3562, 2013.
- [66] H. Vogel. A better way to construct the sunflower head. *Mathematical Biosciences*, Vol.44, pp.179-189, 1979.
- [67] M. Guizar-Sicairos, M. Holler, A. Diaz, J. Vila-Comamala, O. Bunk, and A. Menzel. Role of the illumination spatial-frequency spectrum for ptychography. *Physical Review B*, Vol.86, p.100103R, 2012.
- [68] A. Maiden, G. Morrison, B. Kaulich, A. Gianoncelli, and J. Rodenburg. Soft X-ray spectromicroscopy using ptychography with randomly phased illumination. *Nature Communication*, Vol.4, p.1669, 2013.
- [69] J. N. Clark, X. Huang, R. J. Harder, and I. K. Robinson. Continuous scanning mode for

- ptychography. *Optics Letters*, Vol.20, pp.6066-6069, 2014.
- [70] X. Huang, K. Lauer, J. N. Clark, W. Xu, E. Nazaretski, R. Harder, I. K. Robinson, and Y. S. Chu. Fly-scan ptychography. *Scientific Reports*, Vol.5, p.9074, 2015.
- [71] P. M. Pelz, M. Guizar-Sicairos, P. Thibault, I. Johnson, M. Holler, and A. Menzel. On-the-fly scans for X-ray ptychography. *Applied Physics Letters*, Vol.105, p.251101, 2014.
- [72] J. Deng, Y. S. G. Nashed, S. Chen, N. W. Phillips, T. Peterka, R. Ross, S. Vogt, C. Jacobsen, and D. J. Vine. Continuous motion scan ptychography: characterization for increased speed in coherent x-ray imaging. *Optics Express*, Vol.23, pp.5438-5451, 2015.
- [73] M. Odstrčil, M. Holler, and M. Guizar-Sicairos. Arbitrary-path fly-scan ptychography. *Optics Express*, Vol.26, pp.12585-12593, 2018.
- [74] P. Thibault, and M. Guizar-Sicairos. Maximum-likelihood refinement for coherent diffractive imaging. *New Journal of Physics*, Vol.14, p.063004, 2012.
- [75] R. A. Crowther, L. A. Amos, J. T. Finch, D. J. De Rosier, and A. Klug. Three dimensional reconstructions of spherical viruses by Fourier synthesis from electron micrographs. *Nature*, Vol.226, pp.421-425, 1970.
- [76] D. J. Derosier, and P. B. Moorei. Reconstruction of Three-dimensional Images from Electron Micrographs of Structures with Helical Symmetry. *Journal of Molecular Biology*, Vol.52, pp.355-369, 1970.
- [77] J. Frank. *Three-Dimensional Electron Microscopy of Macromolecular Assemblies*. Oxford University Press, Oxford, 2006.
- [78] T. Ekeberg, M. Svenda, C. Abergel, F. R. N. C. Maia, V. Seltzer, J.-M. Claverie, M. Hantke, O. Jönsson, C. Nettelblad, G. van der Schot, M. Liang, D. P. DePonte, A. Barty, M. M. Seibert, B. Iwan, I. Andersson, N. D. Loh, A. V. Martin, H. Chapman, C. Bostedt, J. D. Bozek, K. R. Ferguson, J. Krzywinski, S. W. Epp, D. Rolles, A. Rudenko, R. Hartmann, N. Kimmel, and Janos Hajdu. Three-Dimensional Reconstruction of the Giant Mimivirus Particle with an X-Ray Free-Electron Laser. *Physical Review Letters*, Vol.114, p.098102, 2015.
- [79] R. Gordon, R. Bender, and G. T. Herman. Algebraic Reconstruction Techniques (ART) for three-dimensional electron microscopy and X-ray photography. *Journal of Theoretical Biology*, Vol.29, pp.471-482, 1970.
- [80] P. Gilbert. Iterative methods for the three-dimensional reconstruction of an object from projections. *Journal of Theoretical Biology*, Vol.36, pp.105-117, 1972.
- [81] R. A. Crowther, D. J. DeRosier, and A. Klug. The reconstruction of a three-dimensional structure from projections and its application to electron microscopy. *PROCEEDINGS OF THE ROYAL SOCIETY A*, Vol.317, pp.319-340, 1970.
- [82] M. Guizar-Sicairos, A. Diaz, M. Holler, M. S. Lucas, A. Menzel, R. A. Wepf, and O. Bunk. Phase tomography from x-ray coherent diffractive imaging projections. *Optics Express*, Vol.19, pp.21345-21357, 2011.
- [83] D. Ghiglia, and M. Pritt. Two-dimensional phase unwrapping: theory, algorithms, and soft-

- ware. Wiley New York, 1998.
- [84] M. Zhao, L. Huang, Q. Zhang, X. Su, A. Asundi, and Q. Kemao. Quality-guided phase unwrapping technique: comparison of quality maps and guiding strategies. *Applied Optics*, Vol.50, pp.6214-6224, 2011.
- [85] Y. Ye, H. Yu, Y. Wei, and G. Wang. A General Local Reconstruction Approach Based on a Truncated Hilbert Transform. *International Journal of Biomedical Imaging*, Vol.2007, p.63634, 2007.
- [86] H. Kudo, M. Courdurier, F. Noo, and M. Defrise. Tiny a priori knowledge solves the interior problem in computed tomography. *Physics in Medicine and Biology*, Vol.53, pp.2207-2231, 2008.
- [87] M. Guizar-Sicairos, J. J. Boon, K. Mader, A. Diaz, A. Menzel, and O. Bunk. Quantitative interior x-ray nanotomography by a hybrid imaging technique. *Optica*, Vol.2, pp.259-266, 2015.
- [88] J. C. da Silva, P. Trtik, A. Diaz, M. Holler, M. Guizar-Sicairos, J. Raabe, O. Bunk, and A. Menzel. Mass Density and Water Content of Saturated Never-Dried Calcium Silicate Hydrates. *Langmuir*, Vol.31, pp.3779-3783, 2015.
- [89] J. B. Fløystad, E. T. B. Skjønsvell, M. Guizar-Sicairos, K. Høydalsvik, J. He, J. W. Andreasen, Z. Zhang, and D. W. Breiby. Quantitative 3D X-ray Imaging of Densification, Delamination and Fracture in a Micro-Composite under Compression. *Advanced Engineering Materials*, Vol.17, pp.545-553, 2015.
- [90] M. Guizar-Sicairos, I. Johnson, A. Diaz, M. Holler, P. Karvinen, H.-C. Stadler, R. Dinapoli, O. Bunk, and A. Menzel. High-throughput ptychography using Eiger: scanning X-ray nano-imaging of extended regions. *Optics Express*, Vol.22, pp.14859-14870, 2014.
- [91] M. Holler, J. Raabe, A. Diaz, M. Guizar-Sicairos, C. Quitmann, A. Menzel, and O. Bunk. An instrument for 3D x-ray nano-imaging. *Review of Scientific Instruments*, Vol.83, p.073703, 2012.
- [92] M. Holler, J. Raabe, R. Wepf, S. H. Shahmoradian, A. Diaz, B. Sarafimov, T. Lachat, H. Walther, and M. Vitins. OMNY PIN-A versatile sample holder for tomographic measurements at room and cryogenic temperatures. *Review of Scientific Instruments*, Vol.88, p.113701, 2017.
- [93] M. Holler, J. Raabe, A. Diaz, M. Guizar-Sicairos, R. Wepf, M. Odstreil, F. R. Shaik, V. Panneels, A. Menzel, B. Sarafimov, S. Maag, X. Wang, V. Thominet, H. Walther, T. Lachat, M. Vitins, and O. Bunk. OMNY-A tOMography Nano crYo stage. *Review of Scientific Instruments*, Vol.89, p.043706, 2018.
- [94] P. Trueb, C. Dejoie, M. Kobas, P. Pattison, D. J. Peake, V. Radicci, B. A. Sobott, D. A. Walkoe, and C. Broennimanna. Bunch mode specific rate corrections for PILATUS3 detectors. *Journal of Synchrotron Radiation*, Vol.22, pp.701-707, 2015.
- [95] A. Casanas, R. Warshamanage, A. D. Finke, E. Panepucci, V. Olieric, A. Nöll, R. Tampè, S. Brandstetter, A. Förster, M. Mueller, C. Schulze-Briese, O. Bunk, and M. Wang. EIGER detector: application in macromolecular crystallography. *Acta Crystallographica Section*

- D, Vol.72, pp.1036-1048, 2016.
- [96] Y. Takahashi, A. Suzuki, S. Furutaku, K. Yamauchi, Y. Kohmura, and T. Ishikawa. High-resolution and high-sensitivity phase-contrast imaging by focused hard x-ray ptychography with a spatial filter. *Applied Physics Letter*, Vol.102, p.094102, 2013.
- [97] K. Stachnik, I. Mohacsi, I. Vartiainen, N. Stuebe, J. Meyer, M. Warmer, C. David, and A. Meents. Influence of finite spatial coherence on ptychographic reconstruction. *Applied Physics Letters*, Vol.107, p.011105, 2015.
- [98] Y. Takahashi, Y. Nishino, H. Mimura, R. Tsutsumi, H. Kubo, T. Ishikawa, and K. Yamauchi. Feasibility study of high-resolution coherent diffraction microscopy using synchrotron x rays focused by Kirkpatrick–Baez mirrors. *Journal of Applied Physics*, Vol.20, pp.19233-19254, 2009.
- [99] B. E. Warren. *X-ray Diffraction*. Dover, 1990.
- [100] G. Cardone, K. Grünwald, and A. C. Steven. A resolution criterion for electron tomography based on cross-validation. *Journal of Structural Biology*, Vol.151, pp.117-129, 2005.
- [101] A. Denisyuk, T. Hrnčír, J. V. Oboňa, Sharang, M. Petrevec, and J. Michalička. Mitigating Curtaining Artifacts During Ga FIB TEM Lamella Preparation of a 14 nm FinFET Device. *Microscopy and Microanalysis*, Vol.23, pp.484-490, 2017.
- [102] S. Gondrom, J. Zhou, M. Maisl, H. Reiter, M. Kröning, and W. Arnold. X-ray computed laminography: an approach of computed tomography for applications with limited access. *Nuclear Engineering and Design*, Vol.190, pp.141-147, 1999.
- [103] R. N. Wilke, M. Vassholz, and T. Salditt. Semi-transparent central stop in high-resolution X-ray ptychography using Kirkpatrick–Baez focusing. *Acta Crystallographica Section A*, Vol.69, pp.490-497, 2013.
- [104] J. U. Knickerbocker, P. S. Andry, B. Dang, R. R. Horton, M. J. Interrante, C. S. Patel, R. J. Polastre, K. Sakuma, R. Sirdeshmukh, E. J. Sprogis, S. M. Sri-Jayantha, A. M. Stephens, A. W. Topol, C. K. Tsang, B. C. Webb, and S. L. Wright. Three-dimensional silicon integration. *IBM Journal of Research and Development*, Vol.52, pp.553-569, 2008.
- [105] S. H. Lee, K.-N. Chen, and J. J.-Q. Lu. Wafer-to-Wafer Alignment for Three-Dimensional Integration: A Review. *Journal of Microelectromechanical Systems*, Vol.20, pp.885-898, 2011.
- [106] A. Maiden, D. Johnson, and P. Li. Further improvements to the ptychographical iterative engine. *Optica*, Vol.4, pp.736-745, 2017.
- [107] C. Jacobsen. Relaxation of the Crowther criterion in multislice tomography. *Optics Letter*, Vol.43, pp.4811-4814, 2018.
- [108] P. Li, D. J. Batey, T. B. Edo, A. D. Parsons, C. Rau, and J. M. Rodenburg. Multiple mode x-ray ptychography using a lens and a fixed diffuser optic. *Journal of Optics*, Vol.18, p.054008, 2016.
- [109] A. C. Kak, and M. Slaney. *Principles of computerized tomographic imaging*. IEEE Press, 1988.
- [110] M. Randermacher. Three-Dimensional Reconstruction of Single Particles From Random and Nonrandom Tilt Series. *Journal of Electron Microscopy Technique*, Vol.9, pp.359-394, 1988.

- [111] T. Shimobaba, K. Matsushima, T. Kakue, N. Masuda, and T. Ito. Scaled angular spectrum method. *Optics Letters*, Vol.37, pp.4128-4130, 2012.
- [112] K. Matsushima, and T. Shimobaba. Band-Limited Angular Spectrum Method for Numerical Simulation of Free-Space Propagation in Far and Near Fields. *Optics Express*, Vol.17, pp.19662-19673, 2009.
- [113] G. R. Brady, and J. R. Fienup. Nonlinear optimization algorithm for retrieving the full complex pupil function. *Optics Express*, Vol.14, pp.474-486, 2006.
- [114] P. Penczek, M. Marko, K. Buttle, and J. Frank. Double-tilt electron tomography. *Ultramicroscopy*, Vol.60, pp.393-410, 1995.

謝辞

本研究を遂行するにあたり、終始懇切なる御指導御鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科 高橋 幸生准教授に深甚の謝意を表します。日頃から数々の御指導を賜り、さらに本論文を御精読頂き有益な御助言と御教示を賜りました大阪大学大学院工学研究科 遠藤 勝義教授、山内 和人教授に謹んで感謝を申し上げます。研究会等で日頃から御指導頂きました大阪大学大学院工学研究科 佐野 泰久准教授、松山 智至助教、大久保 雄司助教、姜 正敏特別研究員に心より感謝いたします。また、日頃の事務的な御支援を頂きました遠藤研究室秘書 松原 知子氏、山内研究室秘書 橘 弓子氏、久保 英里子氏、寺井 嘉奈子氏に深く感謝いたします。さらに、日頃より多くの御指導を頂きました安武 潔教授、森田 瑞穂教授、山村 和也教授、荻 博次教授、桑原 裕司教授、森川 良忠教授、渡部 平司教授をはじめとする大阪大学大学院工学研究科精密科学教室の諸先生方に御礼を申し上げます。

SPring-8 BL29XUL を利用した研究において、多くの示唆を賜りました理化学研究所放射光科学研究センター 石川 哲也センター長、並びに放射光イメージング利用システム開発ユニット 香村 芳樹ユニットリーダーに心からの感謝を申し上げます。

研究生活では多くの素晴らしい仲間恵まれました。精密科学教室で共に大学院博士後期過程を過ごした平野 嵩氏、山田 純平氏をはじめ、栗生 賢氏、西原 明彦氏、そして遠藤研究室、山内研究室の諸兄、諸氏に深く感謝を申し上げます。また、肉体的にも精神的にも多くの困難の伴う放射光実験を共に実施し、昼夜分かたず研究に取り組んだ鈴木 明大氏、古宅 伸氏、広瀬 真氏、Nicolas Burdet 研究員、竹ヶ鼻 仁氏、東野 嵩也氏、瀬戸 洋介氏に心からの感謝を申し上げます。最後に、本研究の遂行にあたっては家族と友人の終始変らぬ暖かい励ましがあったことを記し、謝辞と致します。

2019 年 1 月

下村 啓

研究業績

主たる論文

- (1) **K. Shimomura**, M. Hirose, T. Higashino, and Y. Takahashi, “Three-dimensional iterative multislice reconstruction for ptychographic X-ray computed tomography”, *Optics Express* **26**, 31199 (2018).
- (2) **K. Shimomura**, M. Hirose, T. Higashino, and Y. Takahashi, “Multislice imaging of integrated circuits by X-ray ptychography”, *Microscopy and Microanalysis* **24**, 26 (2018).
- (3) **K. Shimomura**, M. Hirose, Y. Takahashi, “Multislice imaging of integrated circuits by precession X-ray ptychography”, *Acta Crystallographica Section A* **74**, 66 (2018).
- (4) N. Burdet, **K. Shimomura**, M. Hirose, A. Suzuki, and Y. Takahashi, “Efficient use of coherent X-rays in ptychography: Towards high-resolution and high-throughput observation of weak-phase objects”, *Applied Physics Letters* **108**, 071103 (2016).
- (5) **K. Shimomura**, A. Suzuki, M. Hirose, and Y. Takahashi, “Precession X-ray Ptychography with Multislice Approach”, *Physical Review B* **91**, 214114 (2015).

その他の論文

- (1) M. Hirose, N. Ishiguro, **K. Shimomura**, N. Burdet, H. Matsui, M. Tada, and Y. Takahashi, “Visualization of Heterogeneous Oxygen Storage Behavior in Platinum-Supported Cerium-Zirconium Oxide Three-Way Catalyst particles by Hard X-ray Spectro-Ptychography”, *Angewandte Chemie International Edition* **130**, 1490 (2018).
- (2) M. Hirose, **K. Shimomura**, N. Burdet, and Y. Takahashi, “Use of Kramers-Kronig relation in phase retrieval calculation in X-ray spectro-ptychography”, *Optics Express* **25**, 8593 (2017).
- (3) A. Suzuki, **K. Shimomura**, M. Hirose, N. Burdet, and Y. Takahashi, “Dark-field X-ray ptychography: Towards high-resolution imaging of thick and unstained biological specimens”, *Scientific Reports* **6**, 35060 (2016).
- (4) M. Hirose, **K. Shimomura**, A. Suzuki, N. Burdet, and Y. Takahashi, “Multiple defocused coherent diffraction imaging: Method for simultaneously reconstructing objects and probe using X-ray free-electron lasers”, *Optics Express* **24**, 11917 (2016).

- (5) A. Suzuki, S. Furutaku, K. Shimomura, K. Yamauchi, Y. Kohmura, T. Ishikawa, and Y. Takahashi, “High-resolution multislice x-ray ptychography of extended thick objects”, *Physical Review Letters* **112**, 053903 (2014).

和文誌記事

- (1) 広瀬 真, 下村 啓, Nicolas Burdet, 高橋 幸生, “放射光 X 線イメージング分光”, *光学* **47**, 232 (2018)
- (2) 鈴木 明大, 下村 啓, 古宅 伸, 高橋 幸生, “X 線タイコグラフィによる磁性細菌の観察”, *医学生物学電子顕微鏡技術学会誌* **25**, 12 (2014).

国際会議発表

口頭発表

- (1) **K. Shimomura**, M. Hirose, T. Higashino, and Y. Takahashi, “Multislice Imaging of Integrated Circuits by X-ray Ptychography”, The 14th International Conference on X-ray Microscopy (XRM2018), Saskatoon, Saskatchewan, Canada, August 2018.
- (2) **K. Shimomura**, M. Hirose, T. Higashino, and Y. Takahashi, “Multislice observation of integrated circuits by X-ray ptychography”, Coherence 2018: International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering, Port Jefferson, USA, June 2018.
- (3) **K. Shimomura**, M. Hirose, N. Burdet, and Y. Takahashi, “Feasibility study of multislice X-ray ptychography with precession measurement towards high-resolution 3D imaging of thick objects”, The 24th Congress of the International Commission for Optics (ICO-24), Tokyo, Japan, August 2017.
- (4) **K. Shimomura**, M. Hirose, N. Burdet, and Y. Takahashi, “Multislice x-ray ptychography towards 3D high-resolution imaging”, SPIE2017, San Diego, California, USA, August 2017.

ポスター発表

- (1) **K. Shimomura**, N. Burdet, M. Hirose, A. Suzuki, and Y. Takahashi, “Efficient use of coherent X-rays in ptychography: Towards high-resolution and high-throughput observation of weak-phase objects”, The 13th International Conference on X-ray Microscopy (XRM2016), Oxfordshire, UK, August 2016.
- (2) **K. Shimomura**, N. Burdet, M. Hirose, A. Suzuki, and Y. Takahashi, “Efficient Use of Coherent X-rays in Ptychography”, Coherence 2016: International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering, SAINT MALO, France, June 2016.

- (3) **K. Shimomura**, A. Suzuki, M. Hirose, and Y. Takahashi, “High-resolution multislice x-ray ptychography with precession measurement”, The 12th International Conference on X-ray Microscopy (XRM2014), Melbourne, Australia, October 2014.
- (4) **K. Shimomura**, A. Suzuki, M. Hirose, Y. Takahashi, “High-resolution multislice x-ray ptychography in combination with precession measurement”, Coherence 2014: International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering, Evanston, USA, September 2014.

国内会議発表

口頭発表

- (1) 下村 啓, 広瀬 真, 東野 嵩也, 高橋 幸生, “マルチスライス逐次近似再構成法を利用した高分解能三次元 X 線タイコグラフィ”, 第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 福岡国際会議場, 福岡, 2019 年 1 月.
- (2) 下村 啓, 広瀬 真, 東野 嵩也, 高橋 幸生, “マルチスライス X 線タイコグラフィによる厚い試料の高分解能観察”, 第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, つくば国際会議場, 茨城, 2018 年 1 月.
- (3) 下村 啓, 広瀬 真, 高橋 幸生, “マルチスライス X 線タイコグラフィによる多層配線回路の観察”, 2017 年度精密工学会秋季大会, 大阪大学豊中キャンパス, 大阪, 2017 年 9 月.
- (4) 下村 啓, 広瀬 真, Nicolas Burdet, 高橋 幸生, “ランダムアレイを利用したマルチスライス X 線タイコグラフィの高分解能化”, 第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 神戸芸術センター, 兵庫, 2017 年 1 月.
- (5) 下村 啓, Nicolas Burdet, 鈴木 明大, 広瀬 真, 高橋 幸生, “部分コヒーレント X 線を用いたタイコグラフィ”, 第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 東京大学フューチャーセンター推進機構, 千葉, 2016 年 1 月.
- (6) 下村 啓, 鈴木 明大, 広瀬 真, 香村 芳樹, 石川 哲也, 高橋 幸生, “プリセッション測定による高分解能 X 線タイコグラフィ”, 第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 立命館大学, 滋賀, 2014 年 1 月.

ポスター発表

- (1) 下村 啓, 広瀬 真, 高橋 幸生, “マルチスライス X 線タイコグラフィによる多層配線回路の観察”, 2017 年度精密工学会秋季大会, 大阪大学豊中キャンパス, 大阪, 2017 年 9 月.
- (2) 下村 啓, 広瀬 真, 高橋 幸生, “マルチスライス X 線タイコグラフィによる高分解能三次元イメージング”, 新学術領域「ナノ構造情報のフロンティア開拓-材料科学の新展開」第 5 回若手の会, 晴海グランドホテル, 東京, 2017 年 7 月.
- (3) 下村 啓, 鈴木 明大, 広瀬 真, 高橋 幸生, “プリセッション測定によるマルチスライス X 線タイコグラフィの高分解能化”, 日本放射光学会代第 6 回若手研究会コヒーレント X 線が拓く構造可視

化の新しい世界, SPring-8 キャンパス, 兵庫, 2015 年 8 月.

特許

- (1) 高橋 幸生, 鈴木 明大, 下村 啓, 広瀬 真, 2016-138772 号, “イメージング装置及び方法”, 2016 年 1 月, 公開.

受賞歴

- (1) Coherence 2016 poster award, Coherence 2016: International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering, 2016 年 6 月.

研究費獲得実績

- (1) 特別研究員奨励費 (H28-H30), “マルチスライス X 線タイコグラフィによる広視野・高分解能・三次元バイオイメージング”, 2,800 千円.