

X線タイコグラフィ技術の進展

Recent Advances of X-ray Ptychography Technique

高 橋 幸 生^{a, b}

Yukio Takahashi

^a大阪大学大学院工学研究科 精密科学・応用物理学専攻

^b理化学研究所 放射光科学総合研究センター

要 旨 コヒーレント X 線回折イメージングは、試料にコヒーレント X 線を照射した際、遠方で観測されるコヒーレント X 線回折強度パターンに位相回復計算を実行することで、試料像を再構成するレンズレスイメージング技術であり、高い空間分解能を達成可能である。X 線タイコグラフィは、広がった試料のコヒーレント X 線回折イメージングを可能にする手法であり、測定対象を格段に広げることができる。我々は、大型放射光施設 SPring-8 において、X 線集光鏡と空間フィルターを駆使した高分解能・高感度 X 線タイコグラフィを開発した。また、マルチスライスアプローチを利用した X 線タイコグラフィを実証し、投影近似の成立しない厚い試料の高分解能 X 線タイコグラフィを可能にした。

キーワード：コヒーレント回折イメージング，タイコグラフィ，放射光，位相回復，マルチスライスアプローチ

1. はじめに

X 線は高い透過力を有することから、古くから試料の内部構造を可視化するプローブとして用いられてきた。空港における手荷物検査や健康診断における胸部 X 線写真は、その代表的な例である。また、X 線はオンゲストロームオーダーの波長を有する電磁波としての性質も有し、レーリーの基準からも分かるように、原理的に X 線波長程度の高い空間分解能を有する顕微鏡を構築できる。しかしながら、X 線は、電子線のように開口数の大きなレンズを作製することが技術的に難しく、顕微鏡の空間分解能が大きく制限されている。実際、X 線の代表的な結像素子であるフレネルゾーンプレートを備えた X 線顕微鏡の実用的な空間分解能は 30 nm 程度であり、X 線波長の数十倍以上のスケールである。X 線顕微鏡におけるレンズの問題を回避して、X 線顕微法の空間分解能を飛躍的に向上させるのが、コヒーレント X 線回折イメージングというレンズレス顕微法である。コヒーレント X 線回折イメージングは、試料のコヒーレント回折強度パターンに位相回復計算を実行することで、試料像を再構成する。すなわち、レンズを用いることなく、X 線の波長程度の空間分解能を実現する潜在的可能性を有している。

コヒーレント X 線回折イメージングは、試料にコヒーレントな X 線を照射した際、遠方で観測される回折強度パターンから試料像を再構成する。位相問題として良く知られているように、回折強度パターンには回折波複素振幅の位相情報が

欠落している。1952 年に Sayre¹⁾ は結晶学における位相問題を解決する一つの方法としてオーバーサンプリング位相回復法の可能性を説いた。オーバーサンプリング位相回復法では、コヒーレント回折強度パターンを細かくサンプリングし、計算機上で位相回復計算を実行することで、試料電子密度分布を再構成する。1999 年に Miao ら²⁾ が軟 X 線を用いた実験で、コヒーレント X 線回折イメージングを初めて実証し、これが契機となって、多くの放射光施設でコヒーレント X 線回折イメージングに関する研究が実施されるようになった。

コヒーレント X 線回折イメージングは、その測定系からいくつかに分類される³⁾。現在、主流となっているのは、図 1 に示す平面波照明型コヒーレント X 線回折イメージングと走査型コヒーレント X 線回折イメージング（通称：X 線タイコグラフィ）である。先に述べた Miao らの実証した方法は、平面波照明型コヒーレント X 線回折イメージングに分類される。平面波照明型コヒーレント X 線回折イメージングでは試料への平面波照明を仮定するため、試料は X 線ビームサイズより十分に小さい孤立物体に限定される。一方、X 線タイコグラフィは、この問題を解決し、ビームサイズより大きな試料においてもコヒーレント X 線回折イメージングが可能である。X 線タイコグラフィの登場により、コヒーレント X 線回折イメージングによる様々な実試料観察が実現し、その研究は大きな広がりを見せている。

本稿では、タイコグラフィの歴史、原理について述べた後、2010 年以降、大型放射光施設 SPring-8 において行ってきた高分解能・高感度 X 線タイコグラフィ^{4,5)}、マルチスライスアプローチを用いた厚い試料に対する高分解能 X 線タイコグラフィ⁶⁾ の開発ならびにそれらの実証について述べる。

^a 〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

^b 〒 679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

2014 年 4 月 30 日受付

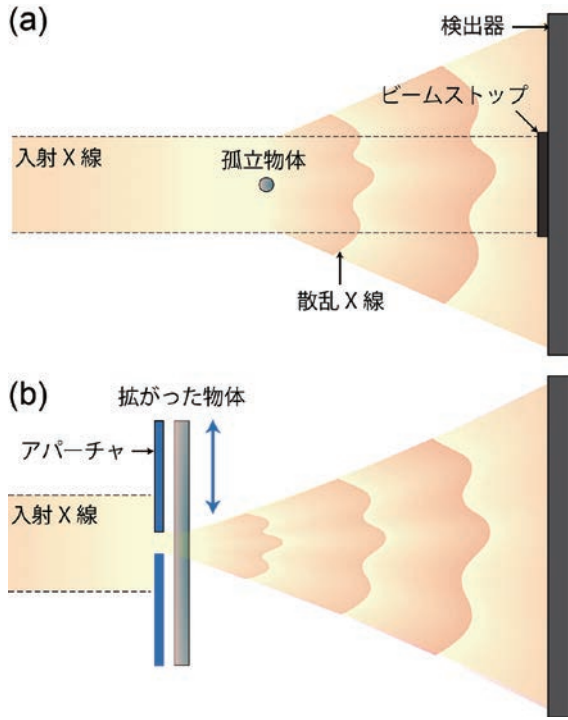


図1 コヒーレント X 線回折イメージングの実験配置の概念図。(a)平面波照明型コヒーレント X 線回折イメージング。(b) X 線タイコグラフィー。

2. タイコグラフィーの歴史

1969年にHoppe⁷⁾が電子顕微鏡コミュニティの中で位相問題を解決する一つの方法論としてタイコグラフィーを提案した。試料に光を照射し、試料背面における光の波動場を試料関数と照射関数の積で記述できる場合、遠方で観測される回折強度パターンは試料関数と照射関数のフーリエ変換の畳み込みで表せることが知られている。タイコグラフィーの基本原理は、これを利用し、ビーム照射位置の関数として試料の回折波の干渉強度を取得することで、回折波の位相を決定することにある。1989年にBatesら⁸⁾は走査型透過電子顕微鏡の分解能を向上させるために、タイコグラフィーに改良を加えた“Wigner-deconvolution Phase-retrieval Microscopy”を提案した。この方法では、プローブ径以下のステップで収集した二次元回折強度パターンにデコンボリュート演算を実行することで試料像を再構成する。これは1990年代中期に走査型透過電子顕微鏡⁹⁾や走査型透過X線顕微鏡¹⁰⁾において実証された。2004年にFaulknerら¹¹⁾はビーム照射領域の一部が重なるように試料あるいはビームを二次元走査し、回折強度パターンを取得し、回折強度パターンに反復的位相回復計算¹²⁾を実行して試料像を再構成する方法“Movable Aperture Lensless Transmission Microscopy”を提案した。2007年にRodenburgら¹³⁾は可視レーザーを使い、この方法を実証した。この報告の中で、彼らは、この方法はタイコグラフィーにおける位相決定の代替法とみなせるとし、開発した反復的位相回復アル

ゴリズムを“Ptychographic Iterative Engine (PIE)”と名付けた。その後、放射光X線¹⁴⁾、電子線¹⁵⁾をプローブとするPIEを用いた回折強度パターンからの像再生の報告がなされた。先に述べたデコンボリュート演算による直接的な位相決定法に比べて、PIEを用いた反復的位相回復法は良く機能することから、多くの研究者がこれを研究するようになった。現在、タイコグラフィーは後者の反復的位相回復法を指すようになっており(本稿でも2章以外では、反復的位相回復法を用いる方法として“タイコグラフィー”を使っている)、コヒーレント回折イメージングの一手法として分類されている¹⁶⁾。

3. X線タイコグラフィーの原理

X線タイコグラフィーでは、X線照射領域の一部が重なりあうように試料をステップ走査し、各点においてコヒーレントX線回折強度パターンを取得する。この時、 j 番目の走査位置における回折強度パターンは次のように表される。

$$I_j(\mathbf{q}) = |\mathcal{F}[P(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j)O(\mathbf{r})]|^2. \quad (1)$$

ここで、 \mathcal{F} は二次元のフーリエ変換、 P は照射関数、 \mathbf{r}_j は走査位置ベクトルである。 O は試料関数であり、透過配置におけるX線タイコグラフィーでは、投影近似を用いて次のように表せる。

$$O(x,y) = \exp\left[\frac{2\pi i}{\lambda} \int \delta(\mathbf{r}) + i\beta(\mathbf{r})dz\right]. \quad (2)$$

ここで、 λ はX線波長、 δ および β は、 $1-\delta+i\beta$ で与えられる複素屈折率の実部および虚部である。このように試料関数を記述することで、試料中での多重散乱の寄与が実効的に考慮される。

X線タイコグラフィーにおける位相回復アルゴリズムPIE¹²⁾は、実験で得られる回折強度パターンから試料の複素透過関数を反復的に導出する。逆空間では、次式で表すように回折波複素振幅 $F_j(\mathbf{q})$ の大きさを回折強度の平方で置き換える。

$$F_j(\mathbf{q}) = \sqrt{I_j(\mathbf{q})} \frac{\mathcal{F}[\Psi_j(\mathbf{r})]}{|\mathcal{F}[\Psi_j(\mathbf{r})]|}. \quad (3)$$

ここで、 Ψ は P と O の積で与えられる試料背面の波動場を表す関数である。そして、この回折波複素振幅に逆フーリエ変換を施したものを $\Psi'_j(\mathbf{r})$ とし、試料の複素透過関数 O を次のように更新する。

$$O_{j+1}(\mathbf{r}) = O_j(\mathbf{r}) + \alpha \frac{P_j^*(\mathbf{r})}{|P_j(\mathbf{r})|_{\max}^2} (\Psi'_j(\mathbf{r}) - \Psi_j(\mathbf{r})). \quad (4)$$

ここで、 α は更新の重みを表す定数、 $*$ は複素共役を表す。また、照射関数も同時に導出する extended PIE (ePIE)¹⁷⁾では、照射関数に関しても同様に次のように更新する。

$$P_{j+1}(\mathbf{r}) = P_j(\mathbf{r}) + \gamma \frac{O_j^*(\mathbf{r})}{|O_j(\mathbf{r})|_{\max}^2} (\Psi'_j(\mathbf{r}) - \Psi_j(\mathbf{r})). \quad (5)$$

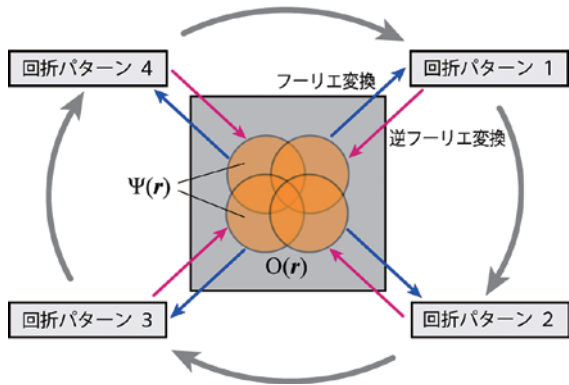


図2 X線タイコグラフィーにおける位相回復計算の概念図。

ここで、 γ は更新の重みを表す定数である。図2に示すように、回折パターン1での逆空間拘束条件を満たす試料関数の一部が回折パターン2での逆空間拘束に引き継がれる。これを全回折パターンについて行うことを1サイクルとし、このサイクルを繰り返すことで、試料関数ならびに照射関数が導出される。ここで得られる試料関数は、試料の2次元投影像に相当する。試料の3次元像は、入射X線の角度を変えて測定して得られる複数の2次元投影像から3次元像を導出するトモグラフィーの手法によって得られる¹⁸⁾。

4. 高分解能・高感度X線タイコグラフィー

コヒーレントX線回折イメージングの空間分解能は、原理的にはX線波長程度まで到達可能であるが、実験的には、高Q領域における散乱強度の信号対雑音比(S/N比)によって制限される。従って、高分解能化を達成するには、高フラックス密度のコヒーレントX線が不可欠となる。既存の放射光源を用いて高フラックス密度のコヒーレントX線を得る唯一の方法がX線を集光することである。我々は、高い精度で作製された楕円面鏡をKirkpatrick-Baez配置することで、1 μm 以下のスポットサイズの高強度コヒーレントX線ビームを形成した。そして、これを試料に照射することで、平面波照明型コヒーレントX線回折イメージングの高分解能化を達成してきた^{19,20)}。X線タイコグラフィーもこの高強度コヒーレントX線ビームを用いることで高分解能化を達成可能である。これに加えて、X線タイコグラフィーでは、X線照射の位置精度によっても空間分解能が制限される。従って、試料上の正確な位置にX線を照射することが極めて重要である。我々は、X線照射位置エラーの原因となる装置系の熱膨張・収縮を抑えるために、恒温化システムを開発し、光学系の温度変化 $\sim 0.01^\circ\text{C}/\text{日}$ まで抑えることに成功した。さらに、暗視野ナイフエッジ走査法を応用したX線照射位置修正法を開発し、ナノメートルオーダーの位置精度でのX線照射を実現した⁴⁾。また、X線タイコグラフィーは、平面波照明型のコヒーレントX線回折イメージングと比べて、弱い散乱体の観察が難しいことが知られている。これは、照明光学系に由来する散乱X線がノイズとなり、試料からの散

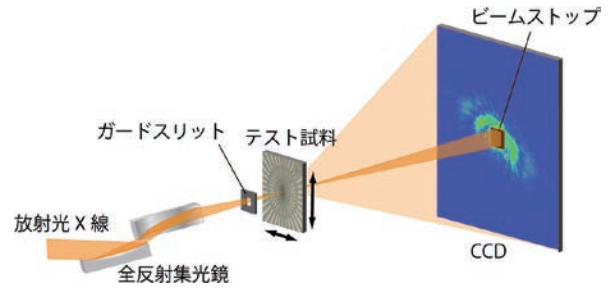


図3 高分解能・高感度X線タイコグラフィーの実験配置。

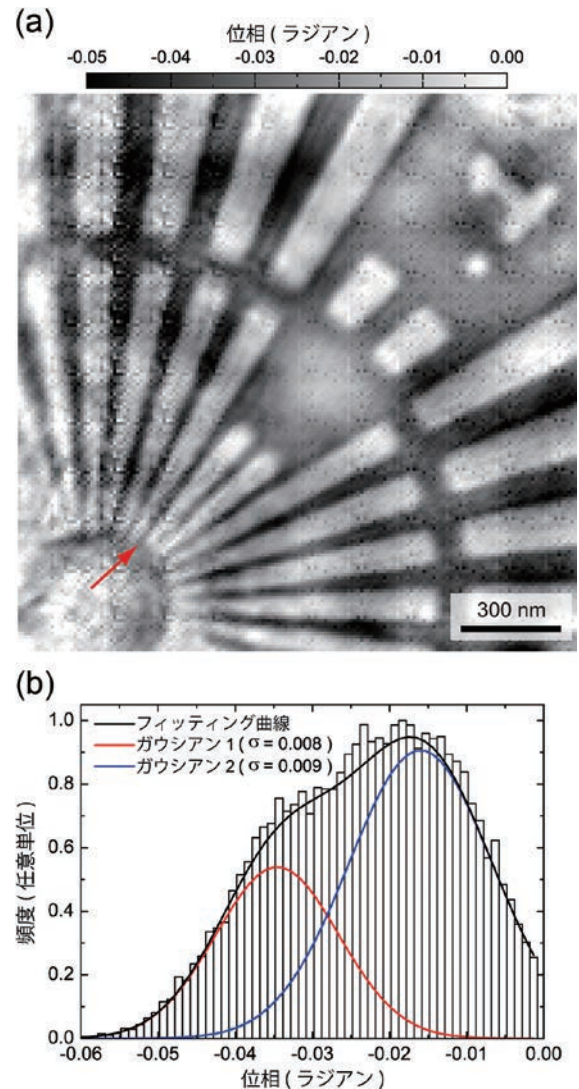


図4 (a) 高分解能・高感度X線タイコグラフィーによる弱位相物体の再構成像。(b) (a)の再構成像の位相のヒストグラム。

乱X線強度のS/N比を低下させるからである。我々は、X線集光鏡に由来する散乱X線を除去し、試料からの散乱X線強度を高いS/N比で測定するために、矩形開口スリットを空間フィルターとして備えた照明光学系を開発した⁵⁾。

図3に高分解能・高感度X線タイコグラフィーの実験配置を示す。8 keVの放射光X線を全反射集光鏡によって半直

幅 100 nm のスポットを形成する。集光点におけるフラックスは $\sim 6 \times 10^7$ photons/s である。集光点近傍に空間フィルターとして開口サイズ $\sim 100 \times 100 \mu\text{m}^2$ のスリットを配置した。試料には、NTT-AT 製の特注のテストチャートを用いた。このテストチャートは、厚さ 12 nm のタンタルで構成されている。タイコグラフィ測定で得られた 81 枚の回折パターンに位相回復計算 ePIE を実行することで、試料像を再構成した。図 4 (a) に再構成像を示す。 $\sim \lambda/320$ の極めて小さい位相シフトを可視化できている。また、図中の矢印で示している放射状のパターン中心部の 17 nm の最小構造も分解されている。図 4 (b) に位相分布をヒストグラム化したものを示す。このヒストグラムを二つのガウス関数で近似すると、それぞれの幅 (σ) が 0.01 ラジアン以下であり、極めて高い位相分解能を有していることが分かる。また、二つのガウス関数曲線のピーク間距離は、 ~ 0.02 ラジアンであり、これは、12 nm 厚さのタンタルから見積もられる位相シフト量と概ね一致している。すなわち、本手法は、高い分解能と感度に加えて、定量性にも優れていると言える。本稿では述べないが、高分解能・高感度 X 線タイコグラフィにより、異常散乱を利用した元素識別イメージング²¹⁾ や転位歪み場のイメージング²²⁾ にも成功しており、今後、物質科学・生命科学のイメージング研究への更なる展開が期待される。

5. マルチスライスアプローチによる厚い試料の高分解能 X 線タイコグラフィ

X 線タイコグラフィの重要な特長の一つが厚い試料を高い空間分解能で観察できることにある。しかしながら、X 線タイコグラフィに限らず、X 線イメージングで厚い試料を高い空間分解能で観察することは容易でない。これは、試料関数を透過関数で記述することで、試料中での X 線波面の変化を無視してしまうからである。すなわち、X 線タイコグラフィの空間分解能は、試料の最大厚みによっても制限されてしまう。このことは、エバルト図形を使って定性的に理解できる。図 5 にエバルト球面上での 2 次元回折パターンの断面を模式的に示す。厚さ D_2 の試料の回折波のゼロ次成分の縦方向の幅は、 $1/D_2$ で与えられる。投影近似とは、エバルト球面のある範囲を平面で近似することと等価である。ここで、エバルト球で横切る範囲が $1/4D_2$ までは投影近似を満足すると定義すると、横方向空間周波数の最大値 $q_{x,\max}^{\text{projection}}$ 、 $q_{y,\max}^{\text{projection}}$ は、次のように表すことができる。

$$q_{x,\max}^{\text{projection}} = q_{y,\max}^{\text{projection}} \approx \frac{1}{\sqrt{2}D_2\lambda}. \quad (6)$$

例えば、厚さ 10 μm の試料を波長 1 \AA の X 線で観察する場合、横方向空間周波数の最大値は $44.72 \mu\text{m}^{-1}$ となり、横方向の最小分解能は $\sim 22 \text{ nm}$ となる。従って、投影近似下では、厚さ 10 μm の試料を波長 1 \AA の X 線でタイコグラフィ観察する場合、22 nm より優れた横方向分解能を達成できない。一方、平面波照明型の CXDI では、試料を微小角度回転させ

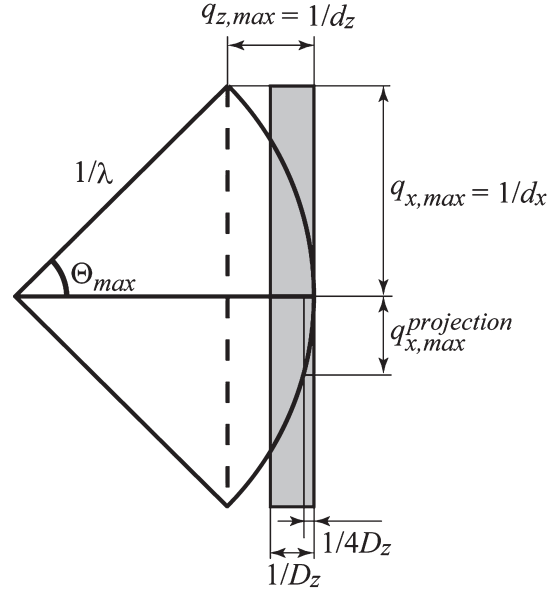


図 5 エバルト球面上の二次元回折パターンの断面。

回折パターンを測定すること（プリセッション測定）で、高 Q まで縦方向の回折波のゼロ次成分の取得が可能であり、横方向の最小分解能は投影近似によって制限されない。しかしながら、X 線タイコグラフィは平面波照明を仮定しないため、プリセッション測定による横方向分解能の大きな改善は見込めない。

マルチスライスアプローチは、試料を入射光に対して垂直な薄い層の積み重ねとして表し、層間での光の伝播を計算する解析法であり、多重散乱を考慮した電子顕微鏡の像シミュレーションで一般的に用いられている²³⁾。近年、タイコグラフィの像再生においてマルチスライスアプローチを用いたアルゴリズム（通称：3PIE）が提案され、可視光を用いたタイコグラフィにおいて実証された²⁴⁾。図 6 に 2 層の場合の 3PIE の概念図を示す。3PIE では、試料関数を投影近似の満足する複数の層に分割し、層間の X 線波面の伝播と逆伝播を角スペクトル法により計算する。伝播の過程で、各層での照射関数（1 層目： $P(\mathbf{r})$ 、2 層目： $\Psi_{i,2}(\mathbf{r})$ ）と試料関数（1 層目： $O_1(\mathbf{r})$ 、2 層目： $O_2(\mathbf{r})$ ）との積で各層の背面波動場（1 層目： $\Psi_{e,1}(\mathbf{r})$ 、2 層目： $\Psi_{e,2}(\mathbf{r})$ ）を与えるため、下流側の層に対する照射関数には、試料の上流側の層による位相変化が考慮されている。従って、試料背面の波動場をフーリエ変換することで与えられるコヒーレント回折パターンには、試料の厚みの寄与が実効的に含まれる。回折面上では、式 (3) で与えられる拘束を付与する。逆伝播の過程では、回折波複素振幅を逆フーリエ変換することによって試料背面波動場 $\Psi'_{e,2}(\mathbf{r})$ を導出し、2 層目の試料関数 $O'_2(\mathbf{r})$ と照射関数 $\Psi'_{i,2}(\mathbf{r})$ を次式に基づいて更新する。

$$O'_2(\mathbf{r}) = O_2(\mathbf{r}) + \alpha \frac{\Psi'_{i,2}(\mathbf{r})}{|\Psi'_{i,2}(\mathbf{r})|_{\max}^2} (\Psi'_{e,2}(\mathbf{r}) - \Psi_{e,2}(\mathbf{r})). \quad (7)$$

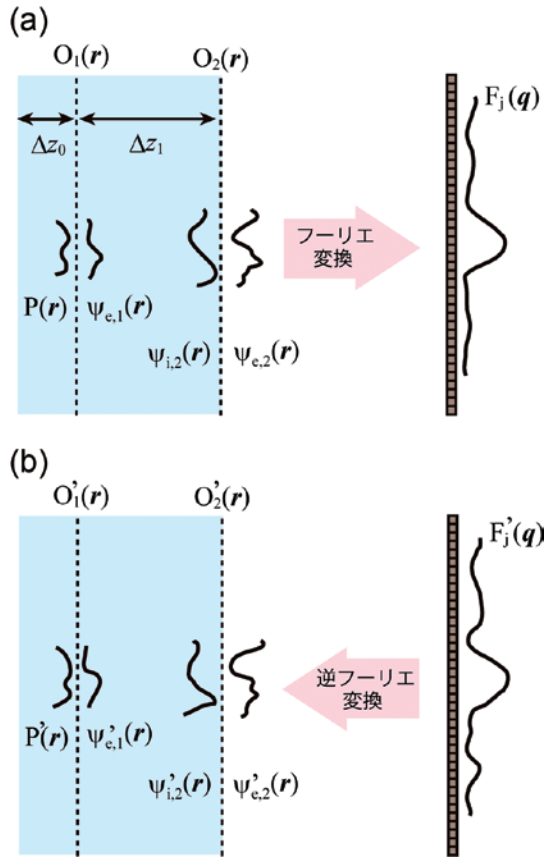


図6 マルチスライスアプローチを組み合わせた位相回復(3PIE)の概念図。(a) 伝播過程。(b) 逆伝播過程。

$$\Psi'_{i,2}(\mathbf{r}) = \Psi_{i,2}(\mathbf{r}) + \alpha \frac{O_2^*(\mathbf{r})}{|O_2(\mathbf{r})|_{\max}^2} (\Psi'_{e,2}(\mathbf{r}) - \Psi_{e,2}(\mathbf{r})) \quad (8)$$

そして、照射関数 $\Psi'_{i,2}(\mathbf{r})$ を角スペクトル法によって逆伝播させ、一層目の背面波動場 $\Psi'_{e,1}(\mathbf{r})$ を導出し、1層目の試料関数 $O'_1(\mathbf{r})$ と照射関数 $P'(\mathbf{r})$ を同じ手続きで更新する。そして、照射関数 $P'(\mathbf{r})$ を用いて、次の照射点についての伝播計算をスタートさせる。このプロセスを全照射点について行うことを1サイクルとし、各層に対する照射関数、試料関数が収束するまでサイクルを繰り返す。

可視光をプローブとするタイコグラフィーでは、試料厚みに比べて焦点深度の浅い照明光学系を用いることで、投影近似が大きく破綻し3PIEが機能する。一方、X線は可視光とは異なり、開口数の大きな光学系を構築することが技術的に難しい。従って、所望の空間分解能に対して投影近似を満足しない場合に対してのみマルチスライスアプローチが機能する。マルチスライスアプローチを用いたX線タイコグラフィーを実証するために次のような実験を行った。図7に実験配置を示す。7 keV (波長 0.1771 nm) のX線を全反射集光鏡によって集束し、半値幅約 500 nm のスポットを形成する。試料には 105 μm のギャップを有する2層構造体を用いた。この2層構造体は 50 nm 厚さの Pt が蒸着された窒化珪素膜から構成されており、集束イオンビーム加工によって1層目に SACLA,

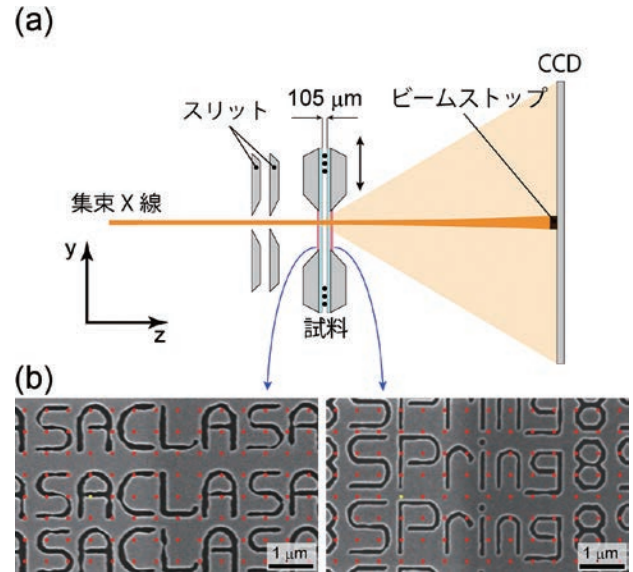


図7 (a) 2層構造体のX線タイコグラフィー測定の実験配置。(b) 試料の走査型電子顕微鏡像。X線を照射した位置を点で示している。

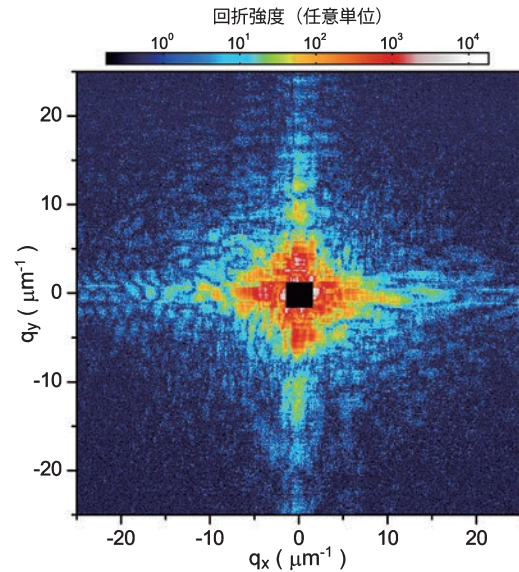


図8 2層構造体のコヒーレントX線回折パターン。X線は図7(b)で黄色の点で示した位置に照射されている。

2層目に SPring8 の文字が加工されている。試料は集光点に配置された。集束したX線の焦点深度は約 6 mm と試料厚みに比べて十分大きい。図8にある照射位置における試料からの回折パターンを示す。回折パターンで投影近似を満足する領域を見積ると $-5.2 \mu\text{m}^{-1} < q_x < 5.2 \mu\text{m}^{-1}$, $-5.2 \mu\text{m}^{-1} < q_y < 5.2 \mu\text{m}^{-1}$ となり、一部であることが分かる。ちなみに $-5.2 \mu\text{m}^{-1} < q_x < 5.2 \mu\text{m}^{-1}$, $-5.2 \mu\text{m}^{-1} < q_y < 5.2 \mu\text{m}^{-1}$ の回折パターンのみを使って達成される再構成像の分解能は $\sim 192 \text{ nm}$ と見積もられる。次に、タイコグラフィー測定によって得られた 112 枚の回折パターンに対して、3PIEによる位相回復計算と試料全体に投影近似を適用する ePIEによる位相回復計算を行っ

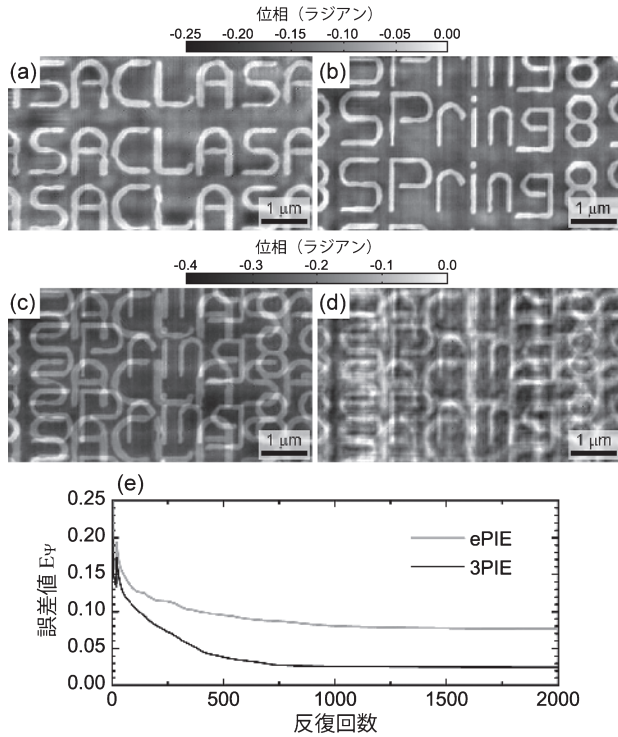


図9 (a, b) 3PIE による再構成像。(a) 上流側, (b) 下流側。(c) (a) と (b) を重ねあわせた像。(d) ePIE による再構成像。(e) 位相回復過程における誤差値の反復回数依存性。

た。3PIE による再構成では、層数と層間隔を既知として解析を行った。図9に再構成像を示す。3PIE による像再生(図9(a), (b))では、二つの層が分離して再構成されており、それらを重ねあわせることで投影像を導出した(図9(c))。これとePIEによる再構成像(図9(d))と比較すると、差は歴然としている。ePIEによる再構成像では、試料全体に投影近似が適用されているため、分解能が悪く、多くのアーティファクトが出現しているが、3PIEによる再構成像では、アーティファクトが少なく分解能も高い。

ePIE や 3PIE による位相回復計算の収束性は次式で定義される誤差値 E_ψ を反復過程でモニターすることである程度評価できる。

$$E_\psi = \frac{\sum_j \sum_q \left| \sqrt{I_j(q_x, q_y)} - |\Psi_j(q_x, q_y)| \right|^2}{\sum_j \sum_q I_j(q_x, q_y)} \quad (9)$$

ここで、 j は回折パターンの番号、 I は回折強度、 ψ は位相回復によって導出される回折面上での波動場を表す複素関数である。図9(e)に3PIEとePIEによる像再構成の誤差値 E_ψ の反復回数依存性を示す。誤差値 E_ψ が小さいことは、回折波複素振幅の大きさが実験値と位相回復計算値で近いことを表しており、今回の位相回復計算では、3PIEの方がePIEに比べて小さい E_ψ を与えている。また、3PIEによる再構成像の断面プロファイルの微分曲線をガウス関数で近似することで分解能を評価した結果、 ~ 50 nmの分解能が得られてい

ることが分かった。これは、試料全体に投影近似を適用した場合での分解能の下限の ~ 192 nmを遥かに凌駕しており、マルチスライスアプローチを用いることで投影近似によって制限される空間分解能の限界を超えることを実証している。マルチスライスアプローチによるX線タイコグラフィーの理論空間分解能は、次式で与えられる。

$$d_x = d_y = \frac{\lambda}{\sin(\Theta_{\max})}, \quad d_z = \frac{\lambda}{2\sin^2(\Theta_{\max}/2)} \quad (10)$$

ここで、 d_x, d_y, d_z はそれぞれ x, y, z 方向に対する分解能、 Θ_{\max} は回折パターンの最大散乱角度を表す。この式は、図5のエバルト図形から幾何学的に導出することができる。この式に基づいて本実験で達成可能な分解能を見積もると $d_x = d_y = 40$ (nm), $d_z = 18$ (μm) となる。 d_x, d_y は実験と同等の値であり、 d_z は層間隔に比べて十分小さいことが分かる。先に述べたように、今回、3PIEを用いた再構成では、層数と層間隔を既知として解析したが、それらが未知であっても誤差値 E_ψ をモニターすることである程度は推定できる。また、層数が増えることによって、像再生で必要とされる情報が増え、位相回復計算による収束性が悪化することが容易に想像できる。これは、試料に照射するX線ビームの形状や入射X線角度を変化させるなどして複数の条件で回折データを取得し、回折強度パターンの冗長性を増やすことで解決できると考えており、現在、様々な検討を行っている。

6. まとめと今後の展望

本稿では、X線タイコグラフィーの原理ならびに、近年、著者らの取り組んできたX線タイコグラフィーの高分解能化・高感度化に関する取り組みについて述べた。今後、X線タイコグラフィー技術による様々な試料観察への応用が期待されている。諸外国では、X線タイコグラフィー測定に特化したビームラインが運用されている放射光施設もあり、共同利用実験の中で様々な成果をあげている。一方、日本はX線タイコグラフィーに限らずコヒーレントX線回折イメージング全般において試料観察への応用に立ち遅れており、今後、専用ビームラインの整備が望まれる。また、電子線や可視レーザーを用いたタイコグラフィーも技術的に進展している。近年、電子線では、原子分解能を達成したタイコグラフィーが同時期に二つのグループから報告された^{25,26)}。可視レーザーを用いたタイコグラフィーは、方法論を実証するためのものがほとんどであるが、近年、回折格子を使ったシングルショットタイコグラフィー²⁷⁾が報告され関心を集めている。これは、X線自由電子レーザーに転用することが可能であり、シングルショットでの広視野・高分解能イメージングが実現するかもしれない。今後、X線タイコグラフィー技術が益々進展し、物質科学・生命科学に貢献する構造イメージング手法として発展することを期待したい。

謝 辞

本稿で述べた X 線タイコグラフィーは、大阪大学大学院工学研究科の鈴木明大氏、古宅伸氏、下村啓氏、山内和人教授、理化学研究所放射光科学総合研究センターの石川哲也センター長、香村芳樹ユニットリーダーとの共同研究である。放射光利用実験は、SPring-8 の理化学研究所専用ビームライン BL29XUL を利用して行われた。また、本研究は、科学研究費補助金若手研究 A (No. 25709057)、挑戦的萌芽研究 (No. 24651137) ならびに X 線自由電子レーザー重点戦略研究課題の事業の一環として実施された。

文 献

- 1) Sayre, D.: *Acta Crystallogr.*, **5**, 843 (1952)
- 2) Miao, J., Charalambous, P., Kirz, J. and Sayre, D.: *Nature*, **400**, 342–344 (1999)
- 3) Chapman, H.N. and Nugent, K.A.: *Nature Photonics*, **4**, 833–839 (2010)
- 4) Takahashi, Y., Suzuki, A., Zetsu, N., Kohmura, Y., Senba, Y., Ohashi, H., Yamauchi, K. and Ishikawa, T.: *Phys. Rev. B*, **83**, 214109 (2011)
- 5) Takahashi, Y., Suzuki, A., Furutaku, S., Yamauchi, K., Kohmura, Y. and Ishikawa, T.: *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 094102 (2013)
- 6) Suzuki, A., Furutaku, S., Shimomura, K., Yamauchi, K., Kohmura, Y., Ishikawa, T. and Takahashi, T.: *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 053903 (2014)
- 7) Hoppe, W.: *Acta Cryst.*, **A25**, 495–501 (1969)
- 8) Bates, R.H.T. and Rodenburg, J.M.: *Ultramicroscopy*, **31**, 303–308 (1989)
- 9) Nellist, P.D., McCallum, B.C. and Rodenburg, J.M.: *Nature*, **374**, 630–632 (1995)
- 10) Chapman, H.N.: *Ultramicroscopy*, **66**, 153–172 (1996)
- 11) Faulkner, H.M.L. and Rodenburg, J.M.: *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 023903 (2004)
- 12) Rodenburg, J.M. and Faulkner, H.M.L.: *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 4795–4797 (2004)
- 13) Rodenburg, J.M., Hurst, A.C. and Cullis, A.G.: *Ultramicroscopy*, **107**, 227–231 (2007)
- 14) Rodenburg, J.M., Hurst, A.C., Cullis, A.G., Dobson, B.R., Pfeiffer, F., Bunk, O., David, C., Jefimovs, K. and Johnson, I.: *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 034801 (2007)
- 15) Liu, C., Walther, J.M. and Rodenburg, J.M.: *Ultramicroscopy*, **109**, 1263–1275 (2009)
- 16) Chapman, H.N. and Nugent, K.A.: *Nat. Photo.*, **30**, 833–839 (2010)
- 17) Maiden, A.M. and Rodenburg, J.M.: *Ultramicroscopy*, **109**, 1256–1262 (2009)
- 18) Dierolf, M., Menzel, A., Thibault, P., Schneider, P., Kewish, C.M., Wepf, R., Bunk, O. and Pfeiffer, F.: *Nature*, **467**, 436–440 (2010)
- 19) Takahashi, Y., Nishino, Y., Tsutsumi, R., Kubo, H., Furukawa, H., Mimura, H., Matsuyama, S., Zetsu, N., Matsubara, E., Ishikawa, T. and Yamauchi, K.: *Phys. Rev. B*, **80**, 054103 (2009)
- 20) Takahashi, Y., Zetsu, N., Nishino, Y., Tsutsumi, R., Matsubara, E., Ishikawa, T. and Yamauchi, K.: *Nano Lett.*, **10**, 1922–1926 (2010)
- 21) Takahashi, Y., Suzuki, A., Furutaku, S., Yamauchi, K., Kohmura, Y. and Ishikawa, T.: *Appl. Phys. Lett.*, **102**, 094102 (2013)
- 22) Takahashi, Y., Suzuki, A., Furutaku, S., Yamauchi, K., Kohmura, Y. and Ishikawa, T.: *Phys. Rev. B*, **87**, 121201(R) (2013)
- 23) Cowley, J.M. and Moddie, A.F.: *Acta Crystallogr.*, **10**, 609 (1957)
- 24) Maiden, A.M., Humphry, M.J. and Rodenburg, J.M.: *J. Opt. Soc. Am.*, **29**, 1606–1614 (2012)
- 25) Humphry, M.J., Kraus, B., Hurst, A.C., Maiden, A.M. and Rodenburg, J.M.: *Nat. Commun.*, **3**, 730 (2012)
- 26) Putkunz, C.T., D’Alfonso, A.J., Morgan, A.J., Weyland, M., Dwyer, C., Bourgeois, L., Etheridge, J., Roberts, A., Scholten, R.E., Nugent, K.A. and Allen, L.J.: *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 073901 (2012)
- 27) Pan, X., Liu, C. and Zhu, J.: *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 171105 (2013)