

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5531009号
(P5531009)

(45) 発行日 平成26年6月25日 (2014. 6. 25)

(24) 登録日 平成26年4月25日 (2014. 4. 25)

(51) Int. Cl.

F I

G O 1 N	23/20	(2006. 01)	G O 1 N	23/20	
G 2 1 K	1/00	(2006. 01)	G 2 1 K	1/00	Z N M X
G 2 1 K	1/02	(2006. 01)	G 2 1 K	1/02	C
G 2 1 K	1/06	(2006. 01)	G 2 1 K	1/06	B

請求項の数 18 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2011-504197 (P2011-504197)	(73) 特許権者	509241889
(86) (22) 出願日	平成21年4月10日 (2009. 4. 10)		リガク イノベティブ テクノロジーズ
(65) 公表番号	特表2011-516892 (P2011-516892A)		インコーポレイテッド
(43) 公表日	平成23年5月26日 (2011. 5. 26)		アメリカ合衆国 ミシガン州 4 8 3 2 6
(86) 国際出願番号	PCT/US2009/040178		オーバーン ヒルズ テイラー ロード
(87) 国際公開番号	W02009/126868		1 9 0 0
(87) 国際公開日	平成21年10月15日 (2009. 10. 15)	(74) 代理人	100083806
審査請求日	平成24年2月13日 (2012. 2. 13)		弁理士 三好 秀和
(31) 優先権主張番号	61/044, 148	(74) 代理人	100095500
(32) 優先日	平成20年4月11日 (2008. 4. 11)		弁理士 伊藤 正和
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100111235
			弁理士 原 裕子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリキャピラリ光学系を有する X 線発生装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

X 線発生装置において、
 拡散した X 線照射を出力する X 線照射のマイクロフォーカス源と、
 前記マイクロフォーカス源からの X 線照射を受け入れる入力と、平行、又は収束する X
 線ビームを出力するための出力とを有しており、該マイクロフォーカス源により発した X
 線照射を取り込む導波路束光学系と、
 前記導波路束光学系から焦点に前記 X 線ビームを集束するための回折反射面を有する多
 層光学系と
 を備える X 線発生装置。

【請求項 2】

前記導波路束光学系はポリキャピラリ光学系である請求項 1 の X 線発生装置。

【請求項 3】

前記導波路束光学系はカーボンナノチューブである請求項 1 の X 線発生装置。

【請求項 4】

前記多層光学系は、多層ブラッグ X 線反射面を有するカークパトリック・バエズ並列光
 学系である請求項 1 の X 線発生装置。

【請求項 5】

前記カークパトリック・バエズ並列光学系は 2 つの楕円反射体を有する請求項 4 の X 線
 発生装置。

【請求項 6】

前記カークパトリック・バエズ並列光学系は 2 つの放物面反射体を有する請求項 4 の X 線発生装置。

【請求項 7】

前記カークパトリック・バエズ並列光学系は 2 つの双曲線反射体を有する請求項 4 の X 線発生装置。

【請求項 8】

前記多層ブラッグ X 線反射面は勾配型格子面間隔を有する請求項 4 の X 線発生装置。

【請求項 9】

前記勾配型格子面間隔は横方向の勾配である請求項 8 の X 線発生装置。

10

【請求項 10】

前記勾配型格子面間隔は、横方向の勾配と深さ方向の勾配の両方である請求項 8 の X 線発生装置。

【請求項 11】

前記多層光学系は、多層ブラッグ X 線反射面を有する二重湾曲光学系である請求項 1 の X 線発生装置。

【請求項 12】

前記二重湾曲光学系は楕円面を有する請求項 11 の X 線発生装置。

【請求項 13】

前記二重湾曲光学系は放物面を有する請求項 11 の X 線発生装置。

20

【請求項 14】

前記二重湾曲光学系は双曲面を有する請求項 11 の X 線発生装置。

【請求項 15】

前記多層ブラッグ X 線反射面は勾配型格子面間隔を有する請求項 11 の X 線発生装置。

【請求項 16】

前記勾配型格子面間隔は横方向の勾配である、請求項 15 の X 線発生装置。

【請求項 17】

前記勾配型格子面間隔は横方向の勾配と深さ方向の勾配の両方である、請求項 15 の X 線発生装置。

【請求項 18】

30

前記 X 線照射の未使用部分を取り除くための開口を更に備え、

該開口は、前記多層光学系と前記焦点との間に位置している請求項 1 の X 線発生装置。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

本発明は、X 線回折法、X 線分光、又は、他の X 線分析用途を含む分析計のための、X 線照射を発生して集束する装置に関する。

【0002】

分析的又は測定学用途のために X 線照射が対象上へ導くための多数の分析計と手順がある。この種の分析計の例は、X 線散乱と X 線回折のような X 線干渉性散乱の原理に基づくものを含み、X 線分光学と X 線元素マッピング顕微鏡法のような X 線蛍光分析の原理に基づいている。多くの同様の用途において、制御ビーム特性を有する X 線の強いビームを対象に相互作用で導く必要がある。これらの特性は、空間定義（発散、ビームサイズ、焦点サイズと異なる場所への強度照射）、スペクトル純度及び強度を含む。しかしながら、これらの特性パラメータは、それぞれに最大限に利用される可能性はない。改善は、他の値で到達することがしばしばある。X 線は、本質的に導くのが困難である。異なる技術は、X 線ビーム形式に適用されるビームを有している。これらは全反射する反射体を含み、光学系は、超小型サイズの導波路、天然結晶、及び、多層光学系と呼ばれる人工階層構造の束でできているキャピラリ及びポリキャピラリのような全反射原理に基づくものである。場合によっては、比較的広い範囲以上のエネルギー・スペクトルを有する多色放射が要求

40

50

されることがある。他の用途において、高度な単色放射が要求される。光学系は、受入可能な費用を維持しながらビーム必要条件に適合するために選択された技術によって作られる。

【0003】

優れた性能を有するX線ビームは、多様なビーム調整光学系とマイクロフォーカス源と共に開発されている。これらのマイクロフォーカス源の代表的な焦点投影は、100マイクロメートル未満で、10マイクロメートルと同程度小さい。源技術と光学系技術の将来の開発は、より高い輝度とより小さい焦点サイズに動きがあるであろう。焦点サイズと焦点位置との安定は、分析的用途におけるX線ビームのために重大である。優れた性能に加えて、エネルギーをほとんど使わないマイクロフォーカス源は、運転費用がより安く、そして、環境問題がより少ないものである。密封管マイクロフォーカス源は、良い性能を提供するだけでなく、良い性能対コスト比率をも提供する。ビームシステムに基づくマイクロフォーカス源における代表的な光学系は、多層光学系、結晶光学系、全反射ミラー、単一キャピラリ光学系及びポリキャピラリ光学系を含む。光学系は、一次元光学系（1D光学系）と呼ばれる、一つの方向だけにX線を行き移るように設計され、又は、二次元光学系（2D光学系）と呼ばれる、単一の相互作用、2つの相互作用、又は、多重相互作用を通じて、或いは、2つの垂直方向におけるX線を行き移るように設計される可能性がある。高強度ビームのために、X線源に対する密結合は、大きな固体取込み角を得るために重要である。単色ビームを得るために、回折素子は、システムのキーとなる部分でなければならない。

10

20

【0004】

多層光学系は単色ビームを自然に照射する。ビーム特性（例えば、空間定義、スペクトル純度及び強度）は、様々な設計で最大限に利用される可能性がある。多層光学系は、X線を拡散させたり回折したりするための重要なビーム調整光学系である。

【0005】

多くの分析において、例えば、X線粉末回折と薄膜分析において、プローブビームは、一方向だけのビームを形成し移行するために定めた、一次元光学系によって典型的に調整されている。これらの光学系は、平面多層光学系、放物線状多層光学系、及び、楕円多層光学系を含む。これらの光学系はシリンダ曲線の輪郭を有し、すなわち、ビーム伝播方向の垂直な方向の曲率は直線であり、ビーム伝播方向の方向における曲率は、直線（平面光学系）、又は、放物状の一部（コリメート光学系）、又は、楕円の一部（集束光学系）のいずれかである。これらの光学系は定型的に非常に効率的であり、高フレックスビームを照射する際に能力がある。

30

【0006】

多くの他の用途のために、例えば、小さい分子結晶学及びマクロ分子結晶学（タンパク質結晶学）によって表される単結晶の結晶学において、プローブビームは二次元ビーム、すなわち2つの垂直方向で形成される「鉛筆のような（pencil-like）」ビームでなければならない。同様のビームは、二次元の光学系によって形成される可能性がある。多層二次元の光学系は、二次元のビーム調整に必要な、重要なビーム調整光学系である。これらの光学系は、明確な空間特性と良いスペクトル純度とを有するビームを照射する。

40

【0007】

光学系は導波路原理に基づいており、例えば、導波路束光学系は、X線分光測定法及び選択されたX線回折用途で用いられる、ポリキャピラリ光学系によって表される。多層光学系に比較して、導波路束光学系は、非常に大きな取込み角と、それによって、潜在的に非常に高いフラックスと輝度を提供する。導波路束光学系における問題は、事実上、連続スペクトルを有するX線を出力し、X線弾性散乱とX線回折に適していない。

【0008】

小さい試料を分析することに有能であることは、小さく利用できる試料体積から、大きい試料上、又は、得ている十分な信号強度上、の局所的な関心を原因として生じるのであるかどうか非常に重要である。明確なスペクトル及び空間特性を有する高フラックスは、

50

集束多層光学系によってよく照射される。同様の光学系は2つの円筒楕円ミラーから成っており、各ミラーは2つの垂直方向の1つにX線を集束し、2つのミラーは、カークパトリック・バエズ幾何学(Kirkpatrick-Baez geometry)と呼ばれており、順次、又は、「並列」の配置のいずれも米国特許第6,041,099号に述べられている。同様の光学系では、また、多層コーティング内部を有する楕円面の部分であり、光学系からの単一の反射体は、2次元においてX線を導いている。

【0009】

さらに、多層集束光学システムの強度を改善することは、源と光学系との間での密結合によって決まる。残念なことに、結合距離は、低い格子面間隔端における構造の物理的に可能な寸法によって制限される。人工階層構造の最小層の厚さは、原子のサイズによって制限される。極めて低い格子面間隔端(例えば、10オングストローム未満)で、内層の粗さは高く、ピークの反射率は低く、ロッキング曲線は狭い。

【0010】

それが理解されるように、上述で提案する解決案のいずれも源を有する効率的な結合を議論するものではなく、その一方で、制御可能な、十分なスペクトルを有するビームを提供するものではない。米国特許第6,504,901号は、X線集束ミラーに結合する光学システムが提案されている。しかし、提案された解決案は、システムが単色のビームを照射することを証明せず、また、その効率改善を例示していなかった。実際には、特許の説明は、より効率的でなく、実用的に重要性のない光学方式を描く解決案に至るものであった。目的に見られるように、その取込み角によって制限される反射体である第2の光学系と、小さくて、強く、小さな発散の「仮想源」との形態にするためにポリキャピラリ光学系を用いることは、源の効果を得ることができる(すなわち、小さく、より強い、小さい発散で、より高いフラックスを照射することができる)。

【0011】

しかしながら、我々が知っている物理学の法則においては、運動学的システム(すなわち、エネルギー入力なし)としてのポリキャピラリ光学系の第1の光学系は、仮想源の焦点サイズを拡大することなく、大きい発散ビームを小さい発散ビームに変換することができない。これは、また、熱力学を光学システムに適用することで例示されることがあり、外部のエネルギー入力がない、絶縁したシステムの、エントロピー、又は焦点サイズと発散によって表される配列は、良くても維持され減少することがない(又は、焦点及び発散に関して改善される)。米国特許第6,504,901号において説明では、「ポリキャピラリレンズは、X線源の焦点の直径と、X線の角度発散とが共に減少するように配置される複数のテーパ状のキャピラリを備える」、同じ輝度の、最良の状態において必然的な結果としてなる、ことが説明されている。従って、システムの効率は、最良の状態において、第2の光学系と源との間で直接結合の効率に等しい。

【0012】

米国特許第6,504,901号で提案されるシステムの低い効率は、同様に、幾何学的方法で例示されている。単一のキャピタリによるX線光子伝播のメカニズムは、多数の外部の全反射である。それは入射角が全く小さい範囲で発生し、回折実験のために共通に用いられる波長用の、0.3度以下である。図3で図示するように、コリメート導波路束光学系は、源により間近の距離で小さい断面積を有している。キャピラリの内側で伝播するX線光子のために、キャピラリ壁での入射角は、各々の連続的な全反射によって小さくなる。一方、光学系が集束光学系である場合は、反射角は、X線光子がポリキャピラリ光学系の最も大きい直径を有するポイントに達するまでの最初より小さくなり、そして、X線光子が最大の直径を有するポイントを通過した後、各々の連続的な反射によって大きくなる。光子が「ボトル形状」の光学系である米国特許第6,504,901号で提案される光学系の出口に達するとき、キャピラリの直径は光学系の入口よりも小さく、それらのいくつかの部分は、外部の全反射の臨界角よりも大きい入射角を有しており、光学的なシステム効率を減少し、消失する。

【発明の概要】

【 0 0 1 3 】

上記のニーズに満たす際の、関連技術の列挙された欠点と他の制約を解決するためのものとして、本発明は改良された X 線発生装置を提供する。X 線発生装置は、X 線照射の源と、前記源により発する X 線放射を大きな取込み角で集光するポリキャピラリ光学系のような導波路束系光学部品と、前記第 1 の光学系からのビームを取込み、単色 X 線放射を焦点に集束する集束回折光学系と、を含む。

【 0 0 1 4 】

集束ポリキャピラリ光学系のために前述で確認されている問題を回避するため、前記導波路束光学系は、発散ビーム、平行なビーム、又は、僅かな収束ビームを出力する同様の方法で、設計しなければならない。

10

【 0 0 1 5 】

通常、集束光学系は、横方向に、又は、横と深さ方向に勾配した多層ブラッグ X 線反射面を有するカークパトリック・バエズ並列光学系にすることができる。集束反射体は、放射線、楕円及び双曲線の円筒面にすることができる。集束光学系は、放物面、楕円、双曲線、ドーナツ型の光学系のような、二重湾曲光学系にもすることができ、横方向又は横と深さ方向の勾配した多層ブラッグ X 線反射面を有している。

【 0 0 1 6 】

導波路束光学系と回折光学系との間の結合は、回折光学系の幾何学的焦点が導波路束光学系の又は反対の虚焦点にあるような同様の方法である。導波路束光学系がコリメート光学系である場合は、回折光学系は、その焦点を無限に有している放物面又は双曲線状の光学系である。また、導波路束光学系が発散ビームを照射する場合には、回折光学系は、導波路束光学系により照射された拡散ビームの虚焦点に幾何学的焦点を有する、楕円又は長円の光学系である。また、導波路束光学系が僅かに集束（収束）ビームを照射する場合には、回折光学系は、双曲線と双曲面の光学系である。

20

【 0 0 1 7 】

本発明による X 線システムは、源からの X 線照射を大きな取込み角で取込み、その X 線照射を制御したビームサイズと所望の光線構成における更なる回折素子に導く、X 線源に密接に連結した、導波路束系光学素子を提供することによって前述で説明した従来技術の設計問題を解決する。例えば、平行なビーム構成は、容易に提供することができる。適切な追加的な回折光学系（例えば、前述で言及したカークパトリック・バエズ多層放物線光学系又は放物面光学系）の使用では、相当高い強度を有するビームを得ることができる。

30

【 0 0 1 8 】

本発明者の更なる目的、特徴及び効果は、以下の説明をレビューした後、この明細書の部分を形成する添付した請求の範囲や図面に関して、当業者に容易に明確になる。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 1 9 】

【図 1】図 1 は、導波路束光学系（例えば、ポリキャピラリ光学系及びカークパトリック・バエズ並列多層光学系）を有する X 線発生装置を示す図である。

【 0 0 2 0 】

【図 2】図 2 は、導波路束光学系（例えば、ポリキャピラリ光学系）及び二重湾曲多層光学系を有する X 線発生装置を示す図である。

40

【 0 0 2 1 】

【図 3】図 3 は、図 1 及び図 2 の導波路束光学系のより詳細な図を例示する図である。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 2 2 】

X 線分析装置 1 0 は、X 線源 1 2，導波路束光学系（例えば、ポリキャピラリ光学系）1 4，集束光学系 1 6 a，開口 1 8，試料 2 0 及び X 線検出器 2 2 を含む。X 線源 1 2 は、高輝度回転アノード X 線発生装置又はシールド管マイクロフォーカス源のような、研究ソースであっても良い。X 線源 1 2 は、一般に、電子ビーム集束装置 2 4 と対象 2 6 とを含んでいる。電子ビーム 2 8 は、電子ビーム集束装置 2 4 によって対象 2 6 へ導かれる。

50

【 0 0 2 3 】

導波路束光学系 1 4 は、入力 3 0 と出力 3 2 とを含む。導波路束光学系の入力 3 0 は、一般に、X 線源 1 2 の焦点から約 3 mm から 1 5 mm に位置されているが、制限されていない。導波路束光学系 1 4 の入力 3 0 と X 線源 1 2 との間のこの距離は、焦点距離としてより周知である。一旦、X 線が導波路束光学系 1 4 の入力 3 0 によって入力すると、導波路束光学系 1 4 は、その入力から出力まで X 線を導く。導波路束光学系 1 4 の出力をでる X 線は、拡散、平行、又は僅かに収束する。

【 0 0 2 4 】

本実施形態における集束光学系 1 6 a は、米国特許第 6, 0 4 1, 0 9 9 号に説明されているように、多層ブラッグ X 線反射面 3 4 を有するカークパトリック・バエズ並列光学系であり、本願明細書において引用したものである。ブラッグ X 線反射面 3 4 は、一般的に、横方向の、又は、横と深さ方向の勾配である勾配型格子面間隔を有している。

10

【 0 0 2 5 】

集束光学系 1 6 a のブラッグ X 線反射面 3 4 によって入力した X 線 2 9 は、ブラッグ X 線反射面 3 4 によって焦点 3 6 に反射される。回折光学系のミラーの表面形状は、第 1 の導波路束光学系のデザインによって依存する。第 1 の光学系が発散ビームを出力する場合、ミラーの表面は楕円形状を有している。第 1 の光学系が平行ビームを形成する場合、ミラーの表面は放物線形状を有している。第 1 の光学系が僅かな集束ビームを出力する場合、ミラーの表面は双曲線形状を有している。何れかの組み合わせにおいても、回折光学系は、光学系のうちの 1 つの虚焦点が他の光学系の実焦点と一致するような方法で、配置されている。この条件は重大であり、導波路束光学系からすべての光線の回折光学系による受入れを提供する。回折光学系 X 線 3 1 によって反射した X 線は、不必要な X 線のいずれかを取り除くために、更に開口 1 8 によって定められている。試料 2 0 は、焦点 3 6 に隣接して位置しており、開口 1 8 によって形づくられた反射した X 線を入力する。試料 2 0 は、生物学的試料、ポリマー、又は、構造が研究の関心である結晶化タンパク質のような何れかの試料であっても良い。試料によって変わる X 線は、X 線検出器 2 2 によって取り込まれる。

20

【 0 0 2 6 】

図 2 を参照して、他の X 線発生装置 1 0 b が示される。X 線発生装置 1 0 b は、図 1 における X 線発生装置 1 0 a と同様であるが、X 線発生装置 1 0 b の集束光学系 1 6 b は、X 線発生装置 1 0 a の集束光学系 1 6 a とは異なっている。本実施例において、集束光学系 1 6 b は、多層ブラッグ X 線反射面を有する、楕円、放物面、又は、双曲面の光学系のような二重湾曲光学系である。更に、反射光学系 1 6 b の多層ブラッグ反射面 3 5 は、横方向の勾配、又は、横方向と深さ方向の勾配である勾配型格子面間隔を有している。

30

【 0 0 2 7 】

図 1 に示した実施例と同様に、導波路束光学系又はポリキャピラリ光学系の出力 3 2 からの予め調整された X 線 2 4 が、回折光学系 1 6 b によって反射される。反射した X 線 3 1 は、焦点 3 6 に集束される。試料 2 0 は焦点 3 6 の近くに位置しており、反射した X 線 3 1 を入力するよう構成される。その後、検出器 2 2 は、試料 2 0 を通じて進行する X 線、又は、試料 2 0 によって拡散した X 線又は回折した X 線を入力する。

40

【 0 0 2 8 】

図 3 を参照して、導波路束光学系（例えば、ポリキャピラリ光学系）のより詳細な説明が示される。X 線 2 8 を発する源 1 2 は、焦点距離としての公知の、距離 f によって導波路束光学系 1 4 の入力 3 0 から分離されている。前述のように、焦点距離 f が、一般に、約 3 ミリメートルから 1 5 ミリメートルの間であるが、この距離は制限されない。

【 0 0 2 9 】

導波路束光学系 1 4 は複数の中空導波管 4 0 を含んでおり、この複数の中空導波管 4 0 は一緒に束にされており、X 線源 1 2 から発生する拡散的な X 線の効果的な取込みを可能にする構成で、可塑的に成形されている。この例では、取込まれた X 線 2 8 は、平行な X 線 2 9 に導波路束光学系 1 4 によって形づくられる。導波路束光学系 1 4 の入力 3 0 に位

50

置するチャンネル口 42 は、X 線源 12 に向いている。光学系は、発散ビームを出力する図 3 に示すものよりも短くすることができ、又は、僅かな収束ビームを出力するものよりも長くすることができる。説明した実施例のいずれかにおいて、導波路束光学系 14 の入力 30 における個々のチャンネル口 42 の直径が、出力 32 のチャンネル直径よりも小さい。

【0030】

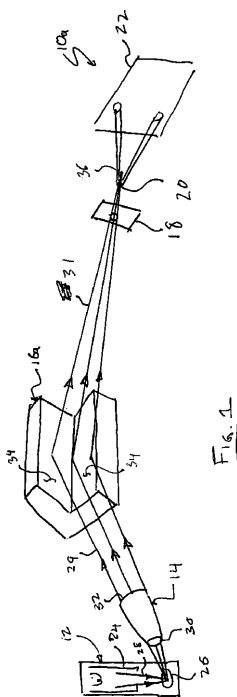
通常、中空導波管又はポリキャピラリ 40 は、数マイクロメートルからミリメートル未満の直径範囲を有したガラスで形成されている。しかしながら、中空ポリキャピラリは、チャンネルの直径がより小さいカーボンナノチューブから形成しても良い。

【0031】

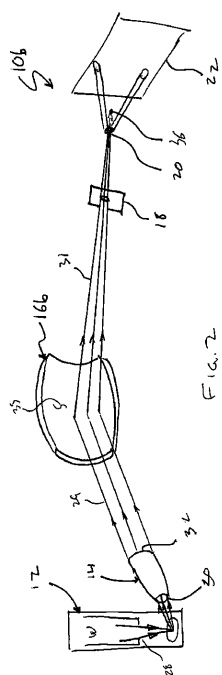
当業者が容易に理解するよう、上記の説明は、本発明の原理の具現的な例として意味するものである。この説明は、以下の請求項に記載の本発明の精神から逸脱することなく、本発明が修正、バリエーション及び変化に影響されやすいという点で、本発明の範囲又は用途に制限することを目的とするものではない。

10

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(72)発明者 ヴァーマン、 ボリス

アメリカ合衆国 4 8 3 0 2 ミシガン州 ブルームフィールド ケンドリー アベニュー 4 1
0

(72)発明者 ジャン、 リカイ

アメリカ合衆国 4 8 0 3 9 ミシガン州 ロチェスター ヒルズ ウェザーズフィールド コー
ト 1 6 9 0

審査官 藤田 都志行

(56)参考文献 米国特許第06333966(US, B1)

国際公開第2007/019053(WO, A1)

米国特許第06041099(US, A)

米国特許第06317483(US, B1)

深町 哲昭, 「マイクロフォーカスX線による内部検査技術」, 回路実装学会誌, 1996年, Vo
l. 11, No. 3, p. 181-188

伊藤 通浩, 「マイクロフォーカスX線源とその応用」, RADIOISOTOPES, 日本アイソトープ協会
, 2003年12月15日, Vol. 52, No. 12, p. 699-703

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G 0 1 N 2 3 / 2 0

G 2 1 K 1 / 0 0

G 2 1 K 1 / 0 2

G 2 1 K 1 / 0 6

J S T P l u s / J M E D P l u s / J S T 7 5 8 0 (J D r e a m I I I)

C i N i i