



平成 26 年 3 月 7 日

報 道 機 関 各 位

国立大学法人東北大学
金属材料研究所
多元物質科学研究所

縞状 X 線格子を過冷却液体金属でインプリント成形

— X 線位相像による医療診断や非破壊製品検査の大視野・鮮明撮像に期待 —

〈概要〉

国立大学法人東北大学【総長 里見 進】金属材料研究所【所長 新家光雄】の加藤秀実准教授、並びに、同大学多元物質科学研究所【所長 河村純一】の矢代航准教授、百生敦教授らの研究グループは、生体画像診断および工業製品の非破壊検査機器への本格的な実用化が期待される X 線タルボ干渉計用の X 線格子を、金属ガラスのインプリント技術によって作製することに成功し、実際にこれを用いて樹脂内部を観察できることを証明しました。

X 線位相イメージングは、硬 X 線が物体を通過した際に生じる位相シフトを用いて高感度の X 線像を撮影する技術であり、特に、従来の X 線吸収イメージングが苦手とする生体軟組織等を鮮明に観察できることに大きな利点があります。JST 先端計測分析技術・機器開発プログラムの一環として、実験室 X 線源を用いた X 線位相イメージングを可能にした X 線タルボ干渉計が開発され、病院での医療画像診断や生産工場での製品非破壊検査への実用化に目処が立ちました。この X 線タルボ干渉計には、X 線格子と呼ばれる周期的縞状構造の金属製格子が必要であり、現在は、X 線リソグラフィーあるいはディープエッチング、および、メッキの技術によって作製されています。X 線タルボ干渉計の本格的な実用化には、その撮像範囲の広さや鮮明さを決定づける X 線格子の大面积化や高アスペクト比化が必要ですが、従来の作製方法では、長い時間が掛かって歩留まりが悪い上、高い精度を維持することが困難です。また、X 線の代わりに中性子を用いた中性子位相イメージング用に、中性子吸収係数の大きいガドリニウムを主成分とする格子が必要ですが、その作製方法は未だに確立していません。今回、加藤准教授らは、X 線吸収係数の大きい元素を含む金属ガラスを昇温することによって得られた水飴状の過冷却液体金属を、シリコン製の金

型に押し当て転写するインプリント成形によって、ナノスケール加工精度を有するX線格子を短時間で作製する技術を確立しました。ガドリニウムを主成分とする金属ガラスを用いることにより、中性子用の回折格子の作製にも応用が可能です。技術的には、大面積化や高アスペクト比化に課題を残しますが、大型X線・中性子回折格子の安価製造を実現し得る新たな製造方法として期待されます。

尚、この成果の詳細は、公益社団法人日本応用物理学会レター誌 *Applied Physics Express* 7 (2014) 032501 に 2014 年 2 月 25 日付けで掲載され、また、公益社団法人日本金属学会 2014 春期大会 (3 月 23 日東京工業大学大岡山キャンパス) において口頭発表されます。

〈開発の社会的背景〉

1895 年にレントゲンによりX線が発見されて以来、硬X線は物体内部を観察するためのツールとして広く利用されてきました。現在、広く社会に普及しているX線撮像装置の多くは、本質的には百年以上前と同様の方法で、物質に依存して生じるX線吸収の差異を利用したもの（吸収コントラスト）です。しかしながら、この方式では、軽元素で構成される弱吸収物体には感度が不十分という問題がありました。これを解決する方法として、1990 年代に入って、電磁波であるX線が物体を透過したときに生じる位相シフトを利用するいくつかの方法が提案され、大きなブレイクスルーをもたらしました。X線の位相シフトの相互作用断面積は、吸収のそれに比べて数桁（軽元素に対しては約三桁）も大きいため、吸収では区別できない内部構造でも位相イメージングでは十分なコントラストが実現できます。当初はシンクロトロン放射光源など大規模な施設を利用する方法が主でしたが、最近、実験室X線源（連続X線、球面波）でも機能するX線タルボ干渉計あるいはX線タルボ・ロー干渉計が世界的に注目されています。リウマチ、乳癌などの医療診断機器や、工業用非破壊検査機器の開発に向けて、日本、欧州、米国、中国など各国の研究グループの間で激しい競争が繰り広げられています。この技術の本格的な応用を考えた場合、撮像視野は干渉計で使用する吸収型X線格子（以降、X線格子と呼ぶ）の面積で決まります。高アスペクト比の大面積X線格子をいかに作製するかが課題となっており、コスト面の課題も浮き彫りになっています。従来の製法であるX線リソグラフィあるいはディープエッチング、およびメッキ法に対し、これとは異なるアプローチの模索も必要となっていました。

インプリント法は製造装置が簡便で、製造時間も短縮できる可能性があることから、経済産業省「技術戦略マップ 2010」のナノテクノロジー分野や部材分野で取り上げられ、新産業の創造やリーディングインダストリーの国際競争力強化に必要な重要技術の一つとして挙げられています。インプリント成形は、被加工材料を水飴状態の過冷却液体にして転写を行うため、金属系材料では、過冷却液体の熱的安定性が高い金属ガラスが主に用いられ、図 1 に示す数十 nm の超精密加工が可能であることが最近の研究開発で示されています。

〈研究開発の内容〉

金属ガラスのインプリント技術を用いたX線格子の作製プロセスを図2に模式的に示しました。誘導結合プラズマエッチング法によりシリコン表面に10 μ m深さの格子パターンを8 μ m間隔で作製し、シリコン製金型とします。その後、Pd（パラジウム）：Ni（ニッケル）：Cu（銅）：P（燐）=42.5：7.5：30：20（原子数比）で含有する金属ガラス（以降、単に金属ガラスと呼ぶ）薄帯を不活性雰囲気中で330 $^{\circ}$ Cまで加熱して水飴状にし、40 MPaの圧力で100秒間、先述のシリコン製金型に押し付けた後に、これを室温まで冷却します。その後、これを水酸化ナトリウム水溶液に浸漬してシリコン製金型のみを溶出し、水洗・乾燥作業を経て、金属ガラス製X線格子を得ました。作製したシリコン製金型および金属ガラス製X線格子の走査型電子顕微鏡写真を図3(a)および図3(b)-(d)にそれぞれ示しました。図3(b)-(d)より、金属ガラス表面の広い領域にわたって、シリコン製金型の表面が均一、かつ正確に再現されていることがわかります（金型作製時に生じた金型側壁面の波状模様に至るまで正確に転写されている）。

この金属ガラス製X線格子を用いたX線位相イメージングを図4に模式的に示したセットアップを用いて行いました。図5にこのセットアップで得られた画像を示します。図5(a)は試料がないときのモアレ縞の画像で、縞模様が直線に近いことから、作製された格子のゆがみが非常に小さいことが分かります。図5(b)は不透明なプラスチック試料（直径2.4 mm ポリアセタール樹脂球）を挿入したときに得られたモアレ縞の画像で、試料の挿入によって生じたモアレ縞のわずかなゆがみは、試料によってX線が屈折され、X線の進行方向が変化したことに起因しています。このように本方法では、試料による屈折によって生じるX線の進行方向のわずかな変化を敏感に捉えることで、通常のレントゲン写真よりもはるかに高感度な撮影が実現できます。図5(c)は、図5(b)のようなモアレ縞画像を、条件を変えて複数枚撮影し、画像演算を行うことによって得られるX線の屈折角分布（微分位相像）に相当する画像です。試料内部の空洞がはっきりと描出できているのが分かります。以上のように、本研究の方法で作製した金属ガラス格子を用いて、実際にX線位相イメージングが可能であることが実証されました。

〈今後の課題〉

本研究では、金属ガラスを用いた過冷却液体金属のインプリント技術により、従来の作製方法よりも簡便に均質なX線タルボ干渉計用X線格子が作製可能であることを示しました。今後の展開としては、より明瞭なイメージコントラストを得るために、更に高いアスペクト比を有するX線格子のインプリント条件の導出が望まれます。本研究ではシリコン製金型を溶出除去して金属ガラスX線格子を得ていますが、量産効率を考えれば、インプリント後に金属ガラスを金型から離型し、この金型を再利用する検討が必要です。また、中性子タルボ干渉計あるいはタルボ・ロー干渉計を構築することにより、磁区構造の可視化など、X線位相イメージングにはない特徴を有する中性子位相イメージングが可能となるため、中性子吸収係数の大きいガドリニウムなどの金属を多く含む金属ガラスを用いて、

同様に回折格子を開発することが望まれます。

〈参考図〉

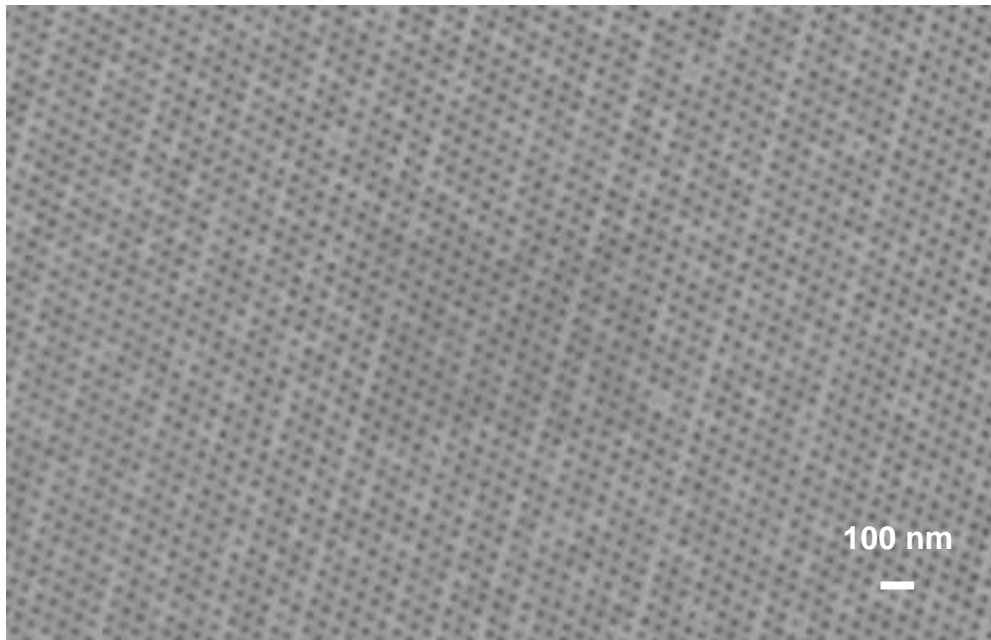


図1 Pd-Cu-Ni-P系金属ガラス表面に転写して掘られた円形状ナノパターンの拡大走査電子顕微鏡像(一つの穴の直径は約20 nm)

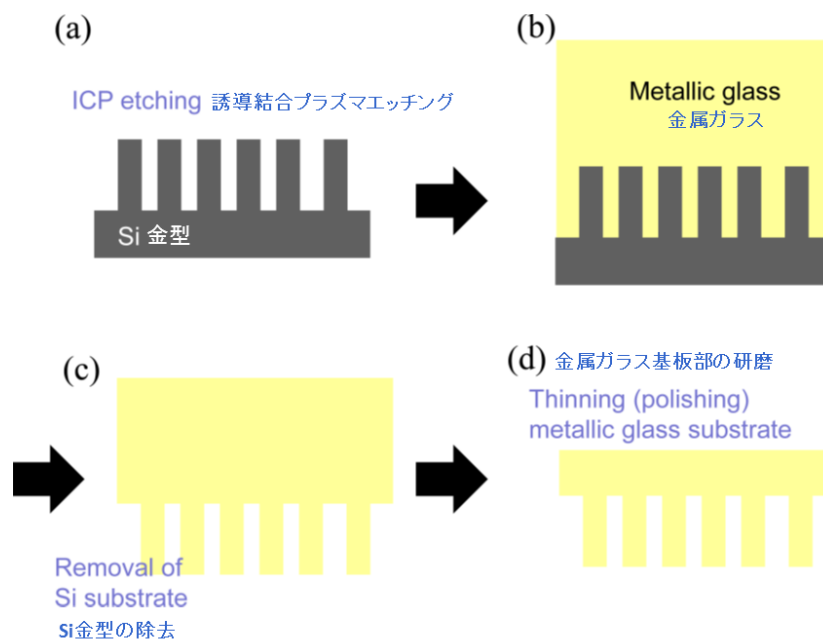


図2 金属ガラスのインプリント技術を用いたX線格子の作製プロセスを示す模式図

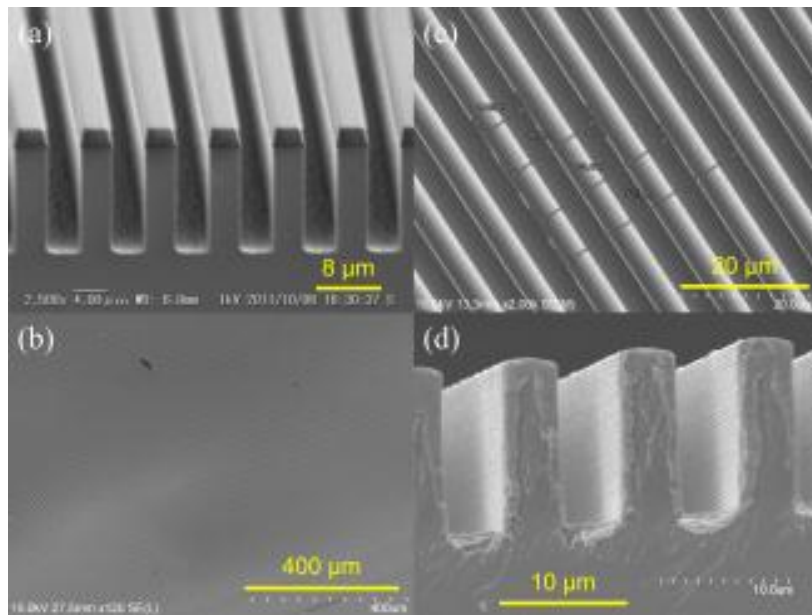


図3 (a)シリコン製金型、(b)-(d)インプリント技術により作製した金属ガラス製X線格子の走査電子顕微鏡像

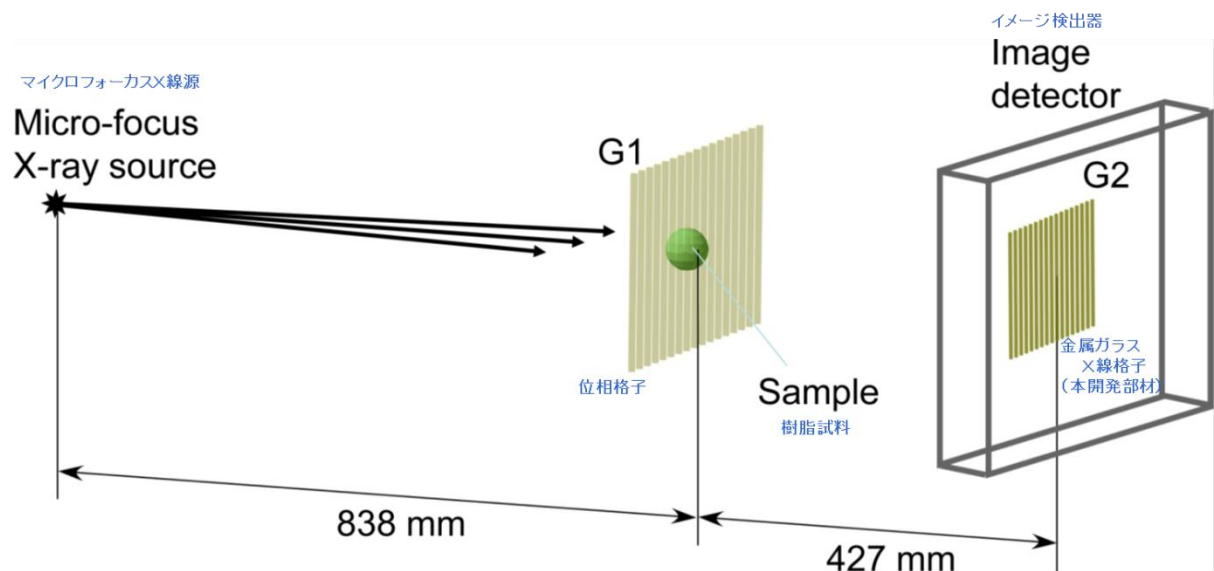


図4 X線位相イメージング用セットアップ (G2 で示した金属ガラスX線格子が今回の開発部材)

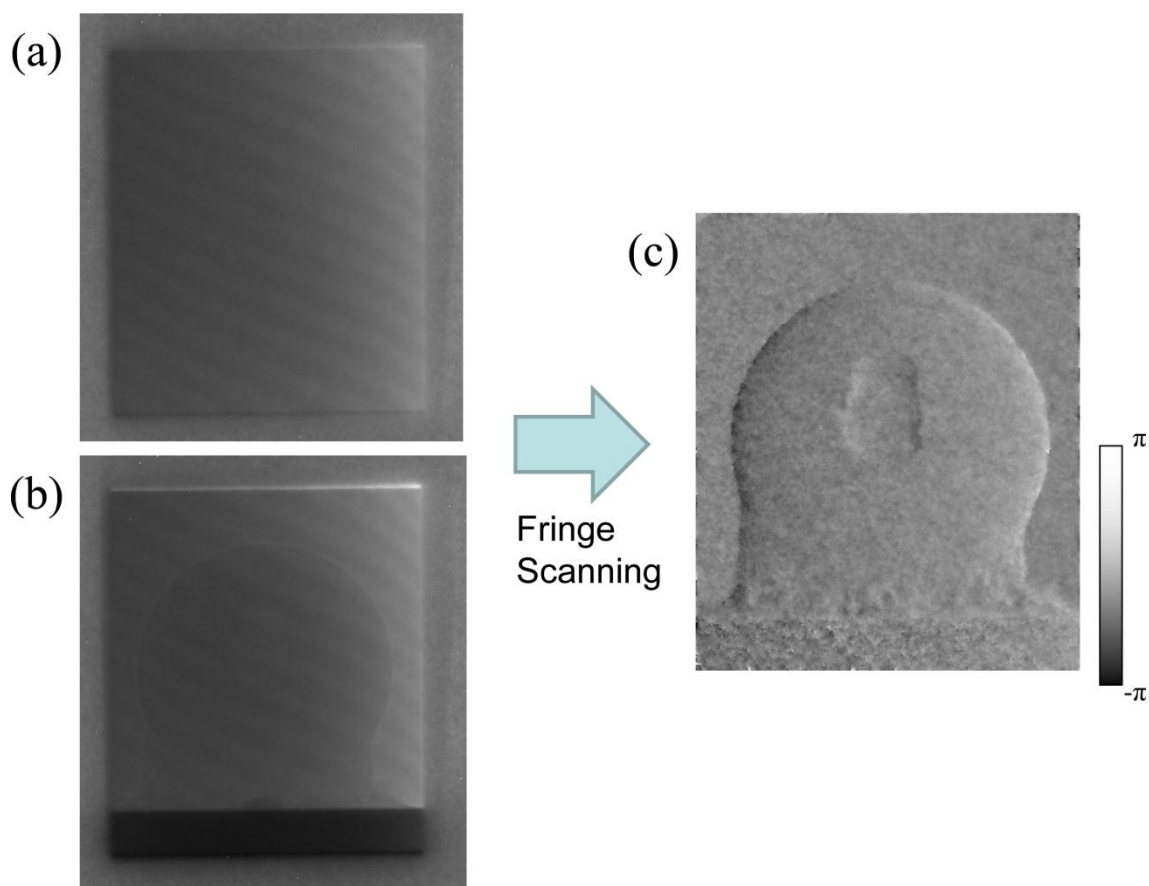


図5 X線位相イメージングによって撮影したイメージ ((a):容器のみの場合のモアレ画像、(b):容器内に不透明球状樹脂試料がある場合のモアレ画像、(c): (a)および(b)より得られた微分位相像)。球状樹脂内中心付近に気孔が存在していることがわかります。

〈本研究の共同研究者〉

野田 大二 (ノダ ダイジ)

一般財団法人 マイクロマシンセンターMNOIC 開発センター (つくば)

名古屋大学大学院工学研究科 マイクロ・ナノシステム工学専攻

服部 正 (ハットリ タダシ)

名古屋大学大学院工学研究科 マイクロ・ナノシステム工学専攻 客員教授

林 好一 (ハヤシ コウイチ)

東北大学金属材料研究所 ランダム構造物質学研究部門 准教授

〈研究内容に関する問い合わせ先〉

加藤 秀実 (カトウ ヒデミ)

東北大学金属材料研究所 非平衡物質工学研究部門 准教授

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL: 022-215-2114 FAX: 022-215-2111 E-mail: hikato@imr.tohoku.ac.jp

矢代 航 (ヤシロ ワタル)

東北大学多元物質科学研究所 量子ビーム計測研究分野 准教授

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL/FAX: 022-217-5394 E-mail: washiro@tagen.tohoku.ac.jp

百生 敦 (モモセ アツシ)

東北大学多元物質科学研究所 量子ビーム計測研究分野 教授

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL: 022-217-5388 FAX: 022-217-5826 E-mail: momose@tagen.tohoku.ac.jp

〈プレス発表/取材に関する窓口〉

東北大学金属材料研究所 総務課総務係

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL: 022-215-2181 FAX: 022-215-2184 E-mail: imr-som@imr.tohoku.ac.jp

東北大学多元物質科学研究所 総務課総務係

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

TEL: 022-217-5204 FAX: 022-217-5211 E-mail: syomu@tagen.tohoku.ac.jp