

(様式 2)

議事録番号

提出 2023 年 1 月 11 日

## 会合議事録

研究会名: 固体分光研究会

日 時: 2022 年 12 月 17 日 10:00-12:00

場 所: Zoom(オンライン開催)

出席者: (議事録記載者に下線)五十音順、敬称略

新井 龍志(ソニー)、新里 恵多(産総研)、有本 太郎(ウシオ電機)、石川 芳光(東ソ  
一)、石山 修(分子研)、磯村 典武(豊田中研)、稲葉 雅之(日産アーク)、今田 真(立  
命館大)、上田 茂典(NIMS)、上原 康(JASRI)、梅咲 則正(大阪大)、大浦 正樹  
(RIKEN)、川崎(村田製作所)、久保田 圭(NIMS)、榊 浩司(AIST)、櫻井 吉晴  
(JASRI)、雀部 矩正(JASRI)、Sanada(所属不明)、角田 一樹(JAEA)、関山 明(阪  
大基礎工)、曾田 一雄(名大名誉教授、前代表)、高木 康多(JASRI)、田口 秀之(日  
本パーカラライジング)、谷田 肇(JAEA)、為則 雄祐(JASRI)、豊田 智史(NEDO)、中  
村 哲朗(JASRI)、西尾 隆宏(DNJP)、西原 克浩(日本製鉄)、野末 悟郎(大阪大)、  
Hanada(所属不明)、濱本 諭(RIKEN)、東谷 篤志(摂南大)、藤川 誠司(JAEA)、藤  
原 秀紀(大阪大)、町田 雅武(ScientaOmicron)、丸山 隆之(ブリヂストン)、三村 功  
次郎(大阪公立大)、保井 晃(JASRI)、山神 光平(JASRI)、山本 達(東北大)、吉木  
昌彦(東芝)、吉越 章隆(JAEA)、吉村 政人(台湾 BL)、和達 大樹(兵庫県立大)

計 46 名

趣旨・議題: SPring-8 における硬・軟 X 線両方の電子分光についてのアップグレード  
状況も含め現状を広く情報共有するとともに、短中期的な課題についてユーザーと施  
設の間で議論し、ユーザー側の要望をまとめる。

議事内容: 以下のプログラムに沿って、講演・議論が行われた。

プログラム:

座長: 関山 明(大阪大)

10:00-10:05 挨拶

関山 明(大阪大、固体分光研究会代表)

10:05-10:30 「BL09XU と BL46XU における HAXPES アップグレードの状況と利用制度変更の現状」

保井 晃(JASRI)

10:30-10:45 「大気圧・雰囲気下 HAXPES の導入について」

高木 康多(JASRI)

10:45-11:00 「HAXPEEM の現状と将来」

濱本 諭(RIKEN)

11:00-11:20 「BL25SU 軟 X 線光電子分光の現状」

山神 光平(JASRI)

11:20-12:00 総合討論

液体ヘリウム価格高騰への対応、年6回募集への取り組み、SPring-8-II に向けた軟 X 線 BL への要望、その他

固体分光研究会代表の関山 明氏(大阪大)による開催の挨拶の後、保井晃(JASRI)から「BL09XUとBL46XUにおけるHAXPESアップグレードの状況と利用制度変更の現状」のタイトルで講演があった。その中で、2021年度に実施されたBL09XUアップグレード後のビームラインスペック、および、利用状況と、2022年に実施予定のBL46XUのアップグレード計画について報告があった。また、BL09XUはBL46XUと同様に年6回の利用募集に変更されたことが紹介された。液体ヘリウム供給を取り巻く現状について、2007年からの液体ヘリウム単価の推移が示された。2022B1期以降、低温実験が大幅に減少している、また、低温実験に関する測定内容の変更が相次いでいることが報告された。

保井の講演に対する質疑応答では、2022年の前半と後半でも液体ヘリウム価格が変化したのかという質問があった。これに対して、前半から後半で大幅に価格が上

昇した。この価格上昇の要因は当面消えないため、来年以降更なる価格上昇も考えられ、最悪の場合は、供給停止の可能性もあると回答があった。また、他の出席者から、課題申請申請の時期について問い合わせがあった。約4か月ごとに申請のチャンスがあるとの回答であった。これに関して、産業利用で利用されてきた課題募集の方法を踏襲したのかという質問があり、それに対して、その通りであり、BL46XU と同じ募集方法にすることにより、HAXPES として一体化した課題募集が可能になるとの回答があった。

高木康多(JASRI)による「大気圧・雰囲気下 HAXPES の導入について」の講演では、最初に差動排気型光電子アナライザーの概要を説明するとともに、現在、日本の放射光施設で稼働中の大気圧(AP)-光電子分光装置の一覧と、今後の変化についてまとめられた。続いて、BL36XU から BL46XU に移設される AP-HAXPES 装置について、移設のスケジュール、スペック、整備計画について紹介した。光電子アナライザーの入り口部であるアパーチャーの形状を最適化することでチェンバーレスの HAXPES 計測を実現するとともに、ガス雰囲気下の測定用にも対応し、ターボ分子ポンプ排気による高真空から大気圧までの広い範囲における環境での測定を可能とする装置となることが紹介された。

講演後の質疑応答では、導入可能なガス種は何か、CO<sub>2</sub> は可能かという問い合わせがあった。それに対し、ビームライン備え付けのものとして He、Ar、N<sub>2</sub>、O<sub>2</sub>、H<sub>2</sub> のガスラインあり、その他に持ち込み用のラインも整備しているので CO<sub>2</sub> のような無害なものならば利用可能であり、CO や NO なども今後、除害装置をつけるなどして対応できるようにしていきたいとの回答があった。また他の出席者からは、BL09XU とソフトウェアなどが共通化されるのかという質問があり、できる限り共通化を進め、ユーザーの使い勝手がよくなるように整備していくとの回答があった。

濱本諭(RIKEN)から「HAXPEEM の現状と将来」というタイトルで講演があった。光電子顕微鏡(PEEM)は現状、主に紫外線～軟 X 線を励起光として用いられているが、硬 X 線励起による PEEM である HAXPEEM では、従来の PEEM に比べ、バルク敏感になるとともに、Pt や Ir などの触媒として有用な 5d 遷移金属元素の L 端といった有用な吸収端を利用することが可能であるとの説明があった。バルク感性性を利用した

薄膜界面などの埋もれた微細構造の観察や硬 X 線光電子イメージングも今後の展開として期待できるとのことであった。その HAXPEEM の実行可能性を探るために PEEM 装置を硬 X 線ビームライン SPring-8 BL19LXU へ導入し、GdFeCo 薄膜の HAXPEEM 観察を試みた。Gd  $L_3$  端を利用した Gd 元素マッピングにより、100 nm 厚の Au に埋もれた GdFeCo のシグナルを検出できた。同様に Gd  $L_3$  端を利用した磁気円二色性 (XMCD) の観測を試行し、Au をコートしていない領域では磁区を反映した XMCD コントラストが明瞭に観察できたことが報告された。空間分解能は 150 nm 程度であることが分かった。

講演後の質疑応答では、二次電子検出による HAXPEEM 観察では、バルク敏感にはなっておらず、従来の方法とほとんど検出深度は変わっていないのではないかという質問があった。それに対し、その通りと考えるとのことであった。例えば、5 keV 以上の光電子のみを選別すると、バルク敏感性が上がるのではとのコメントがあった。本件に対し、会議終了後に JASRI の木下氏から以下のコメントがあった。軟 X 線と硬 X 線での光の侵入深さの違いは出るであろう。また、PEEM に硬 X 線を利用した場合の結果は、JJAP 45, 1886 (2006) に報告されており、50 nm の薄膜の下の情報が観測されている。硬 X 線励起による高エネルギー電子ではプラズモンやそのほかのエネルギーロス過程で、モーメントトランスファーが小さいため、2 次電子であっても空間分解能をそれなりに保持したバルクの情報を保持した成分が多いのではないかと (Surf. Sci. 601, 4754 (2007))。

山神光平 (JASRI) から「BL25SU 軟 X 線光電子分光の現状」というタイトルで講演があった。角度分解光電子分光 (ARPES) 測定、BL25SU のビームライン、および、BL25SU の A ブランチに設置されている  $\mu$ -ARPES 装置の概要が紹介された。また、ユーザーとの共同開発により、試料面内方向の二次元マッピングやエネルギースキャン測定など、光電子測定と他の機器との連動制御を自動で行う測定ソフトウェアの開発が進んでいることが紹介された。凹凸の大きい試料や不均一試料に対する 10-20  $\mu$ m サイズの局所領域での ARPES 計測の例を示した。最後に、 $\mu$ -ARPES に関する課題申請数や採択率を示した。

講演直後の質疑応答では、試料上でのフットプリントはどの程度かという質問があ

った。その質問に対して、 $5^\circ$  入射だと  $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$  程度であるとの回答があった。自動測定ソフトウェアについて、実空間マッピング測定ができるかという質問があり、既に実現できており、典型的な領域・ステップサイズでは、1・2 時間程度でマッピング可能であるとのことであった。

総合討論では、主に、(1) 液体ヘリウム価格高騰への対応、(2) SPring-8-II に向けた軟 X 線 BL への要望、(3) 自動化測定に向けた取り組みに関する議論が行われた。その主な内容を以下に記す。

#### (1) 液体ヘリウム価格高騰への対応

- (コメント)2022 年秋の段階で約 7000 円/L と高すぎる。さらに、今後、供給停止の可能性もあり、低温実験を行う上で不安である。
- BL25SU には再凝縮装置(ATL)が入っているが、どのように利用されているのか。  
⇒少量使用(<50 L)のユーザー(~10 L/day の消費量)には ATL から供給している。ATL には最大 160 L 程度の液体ヘリウムを貯蔵できる。また、大量使用(>50 L)ユーザーの余り分を ATL で貯蔵している。
- ATL から供給された場合の液体ヘリウム代はどうか  
⇒通常利用と同じ料金である。
- (コメント)全体の使用量が減って調達量が減るので単価が少しでも安くなることを期待する。
- 装置で使用したヘリウムの回収ラインを整備する予定はあるのか。  
⇒現段階では、装置類をそろえている段階。いずれは回収・再凝縮を行う予定。
- BL09XU はどうなっているか。プランがあれば教えてほしい。  
⇒来年度の所内予算要求で 15~20 L/day の再凝縮能力を持つ装置導入を提案している。
- (コメント)我々としては是非導入してほしい。さらに、液体ヘリウム使用料をディスカウントしてほしい。

- (コメント) BL12XU で既に再凝縮装置 (LHEP15、CRYOMECH 社製、 $\geq 15$  L/day) を導入済みである。20 K 程度の HAXPES 実験を 1 週間程度実施可能。

## (2) SPring-8-II に向けた軟 X 線 BL への要望

- (コメント) キッカーマグネットはいずれ廃止される。別の高速軟X線円偏光スイッチングの方法はないか。
- BL19LXU の XMCD-HAXPEEM の測定時間は。  
⇒ダイヤモンド移相子による偏光切り替えは一瞬で、切り替えごとのスキャンで 1・2 分要している。
- 新しい BL17SU でのアンジュレータにおける偏光切り替えの時間は。  
⇒円偏光の切り替えにはアンジュレータギャップを一旦フルオープンにしないといけないため、20~30 分程度の時間を要する。今冬の停止期間でフルオープンにしなくても偏光切り替えが可能になる予定であり、もう少し切替時間が短縮されると予想する(それでも 10 分以上は要する)。
- リボルバータイプのアンジュレータではどうか。  
⇒BL15XU で利用していたが、ギャップフルオープンにしないとアンジュレータ面を切替えられないため、同じく 20~30 分程度の時間を要する。
- (コメント) 10 分以上かかるというのはアドバンテージにはならない。硬X線のダイヤモンド移相子と同様に高速に偏光スイッチングできれば嬉しい。
- (コメント) BL17SU では偏光切り替え時にギャップフルオープンにしているため、22 分程度の時間を要している。今冬にギャップ 100 mm でフェージングを行うことで切り替え可能にする。これにより 13 分程度で切り替え可能になる (Fe L-edge 近辺で)。さらに、ユーザーがよく利用するエネルギーでフェージングを行えるようになれば、ギャップを動かす必要がないため、3・4 分まで時間を短縮できる可能性がある。ID グループにスタディーをお願いする予定である。BL17SU と同じアンジュレータが SPring-8-II の段階で BL25SU に導入される予定である。
- フェージングで偏光切り替えを行う場合、3・4 分が限界か。

⇒蓄積リングの電子軌道を乱さないようにしなくてはならない。フェーシングするための機器モーターや補正電磁石の動作をどこまで早くできるかによるのではないか。

- (コメント)円偏光スイッチングだけでなく、直線偏光スイッチングの技術開発の議論も進めていくべき。
- (コメント)硬X線ではダイヤモンド移相子で簡単に切り替えられる。硬X線とシームレスに実験できるようにするべき。
- (コメント)新しい ID17 はヘリカルエイトアンジュレータである。ヘリカルモードとフィギュアエイトモードをフェーシングで切り替える。フィギュアエイトモードにすると直線偏光切り替えが早い(1分以内)。
- BL27SU で直線偏光スイッチングを行ったが、2次光の影響が大きかった。新しい ID17 ではどうか。

⇒エネルギー帯によっては影響があるかもしれない。高次光カットミラーを入れることによって対処可能だが、使用できるエネルギー帯は大きく制限を受ける。

### (3) 自動化測定に向けた取り組み

- (コメント)メーカーによっては機器制御のコマンドが公開されていないため、自動化が進んでいないのでメーカーに対応を要望していくべき。
- BL19LXU の HAXPEEM の状況は。  
⇒偏光切り替えは PEEM 測定ソフトウェアから制御可能。ただ、切り替えが終了したことをソフトウェアが確認することはできないため、十分なウエイトをかけて対応している。
- LabVIEW のライセンス料が高騰しているが、施設側でその対応はどうなっているか。  
⇒BL09XU では Python ベース(GUI は Web ベース)のソフトウェアに変更していく予定。
- (コメント)BL25SU も LabVIEW から Python ベースに移行したい。ただし、XMCD 装置のほうは LabVIEW ベースとなっており、今後どうするかを検討して

いく必要がある。

- ソフトウェア開発は、現状、BL 担当者が行っているようだが、ヨーロッパではソフトウェア開発チームが BL サイエнтиストと連携して開発を進めている。ソフトウェアチームの開発を構築することが必要ではないか。SPring-8 でそのような動きがあるか。

⇒BL 担当者としても専門家と協力して開発を進めていきたい。BL09XU には Web アプリ開発経験がある方が加わる予定。

- BL25SU ではどのような体制でソフトウェア開発が進んでいるのか。

⇒BL 担当者とテクニカルスタッフ、ユーザーが連携して開発を進めている。

BL 間での技術共有は進んでいないので、進めていくべき。

最後に、関山明代表から総括があり、本研究会での意見をまとめて要望を SPRUC に提出するとのことであった。

以上