

## BL47XU 光電子分光・マイクロCT

BL47XUは標準的なリニアアンジュレータを光源としたビームラインで、主として結像顕微鏡を用いた高分解能イメージング実験と、硬X線光電子分光実験に使用されている。2012年度に各々の実験において行われた高度化について述べる。

### 1. 結像顕微鏡/CTの高度化

BL47XUでは投影型のCTと平行してFZP (Fresnel zone plate) を対物レンズとする高分解能結像顕微鏡及びそれを利用した結像顕微鏡CTを開発し、ユーザー利用に供してきた。最外線幅 50 nm の対物FZPを用いた場合、二次元像では空間分解能 100 nm 以上が得られていたが、実用的な結像顕微鏡CTとしての解像度は 200 nm 程度が限界であり、最高分解能の再現性にも問題があった。また、高分解能条件では視野が狭く、100 nm 分解能顕微鏡や 200 nm 分解能CTでの視野サイズは 30  $\mu\text{m}$  程度であった。これらの問題を解決するため、個々の要素技術開発を長期的視点で進めている。

結像顕微鏡における二次元分解能と実用レベルでのCTでの三次元分解能の違いは主に以下のような原因から来ていると考えられる。

1. CT計測時の回転ステージ軸ぶれ精度に起因する分解能低下
2. 計測中の装置ドリフト
3. 計測中の試料自体の変形

また、視野の問題は画像検出器と結像顕微鏡光学系のマッチングが取れていないことが問題であった。さらに、高速読み出し CCD における画素間のクロストークによる応答関数の劣化という問題も明らかになってきた。

軸ぶれやドリフトに関しては、試料にマーカー粒子を付着させることにより位置補正を行う方法が可能である。また、理想的なCT像計測条件が満たされている場合には重心演算による回転中心補正も可能である。しかしながら、BL47XUのCT装置開発では Stardust や「はやぶさ」プロジェクト等のサンプルリターン計画における地球外鉱物試料の計測をその第一目標としており、試料汚染を引き起こす前処理は許容されない。また、屈折コントラストや不完全投影(視野より大きい試料サイズ)にも対応できることが求められるため、画像処理による回転軸補正は困難である。そこで、高分解能CTの高度化を目指して

1. 高分解能CT用精密回転ステージの開発
2. 高分解能高感度画像検出器の開発(ビームモニタ蛍光

板の改良とsCMOSセンサーの導入)

3. 高スループット計測による測定時間の短縮  
を行った。特に装置のドリフトや試料変形の影響を低減するには、単純ではあるが高速化が非常に有効であると考えられる。

図1にBL20XUやBL47XUでの高分解能CT実験での利用を考えて神津精機(株)で開発された精密回転ステージを示す。従来の一般的な回転ステージに使われている転がり軸受けや精密回転軸に使われる空気軸受けでは無く、オイル潤滑の滑り軸受けを使用している。このため高荷重での使用や高速回転は不可能であるが、低負荷条件では試料位置の最小錯乱球直径 100 nm 以下 (p-v 値) が達成されている。

図2にsCMOSセンサーとビームモニタを組み合わせた画像検出器を示す。BL47XUではビームラインの構造上の制約で、実験装置全長は 9 m 以下に制限される(実験ハッチ1と2の合計)。このため拡大結像顕微鏡における倍率に制限があり、解像度が比較的高く(～5  $\mu\text{m}$  レベル)かつ感度の高い画像検出器を必要とする。蛍光板として、単結晶LSO、微結晶GOS (Gd<sub>2</sub>O<sub>2</sub>S: Tb)、CsI(針状結晶)、単結晶YAG等各種蛍光体をテストした結果、検出効率を多少犠牲にしても、膜厚を薄くした(7  $\mu\text{m}$  程度)微粒子GOSが比較的良好な結果を与えることが分かった。また、sCMOSカメラ(浜松ホトニクス製ORCA-Flash 4.0)を用いることにより、クロストークが少なく、ナイキスト限界まで高いMTFが実現され、パウダー蛍光体であるGOS

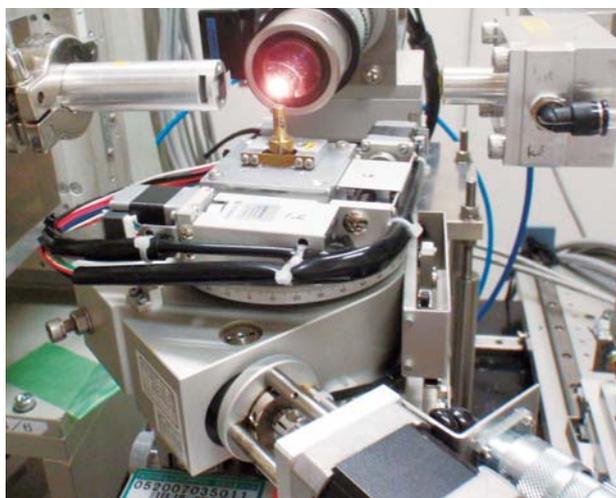


図1 BL47XUの結像顕微鏡CT装置に組み込まれた高精度回転ステージ。

の限界分解能に近い5  $\mu\text{m}$ 程度まで良い応答関数が得られている。また、高速読み出し（最大100 Hz）においても空間分解能やS/N比の劣化が無いシステムが構築できた。

BL47XUの結像顕微鏡では図3に示すように回転セクターゾーンプレートコンデンサーを用いた疑似ケーラー照明

を利用しているが、このコンデンサー回転機構も高速化し、最大6回転/秒まで可能とした。これにより6フレーム/秒までの高速撮影が可能となった。

これらの改造により、これまでより画質を向上した上で、CT像計測時間を5分程度まで短縮することに成功した（空間分解能240 nm、視野128  $\mu\text{m}$ の条件）。この高速化により、従来問題とされていた試料や装置のドリフトが無視できる時間内での測定が可能になった。

図4にテストパターンの顕微鏡画像の一例を示す。この画像は直径310  $\mu\text{m}$ 、最外線幅100 nm、焦点距離200 mm（8 keV）の対物FZPを用いて、X線光学系倍率35、実効画素サイズ75.9 nmの条件で分解能テストチャートを測定したものである。このときの視野サイズは128  $\mu\text{m}$ 、露光時間は150 msである。測定画像では周期長240 nmのパターンまで解像されている。また、この空間分解能を損なうことなく三次元CT計測が可能である。



図2 画像検出器。BM2とORCA-Flash4.0の組み合わせ。蛍光体は膜厚約7  $\mu\text{m}$ の微粒子GOS。

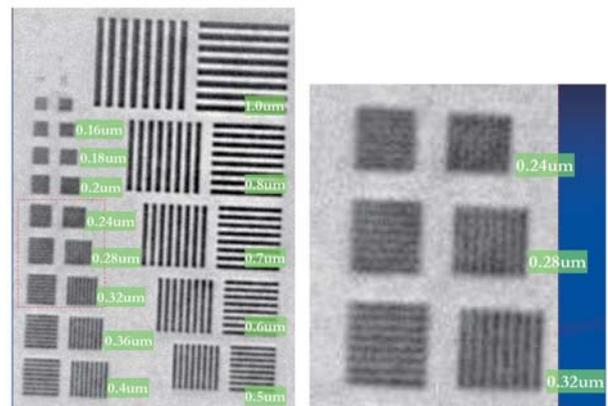


図4 分解能評価チャートのX線顕微鏡像。右図は左図の赤点線枠内を拡大表示。

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

上杉 健太郎、竹内 晃久、鈴木 芳生

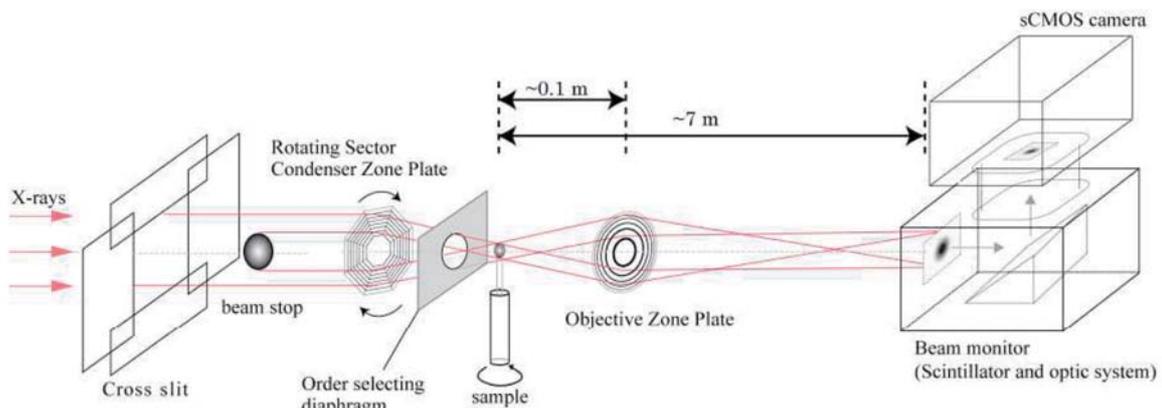


図3 BL47XUにおける結像顕微鏡CT装置の構成。

## II. 硬X線光電子分光

BL47XUの硬X線光電子分光(Hard X-ray Photoemission Spectroscopy: HAXPES)は、バルク感応性を生かし、埋込まれた界面における化学結合状態の非破壊観測を目的とした多くの利用研究に供されている。2011年度には、ドイツ-日本戦略国際科学技術協力推進事業(DFG-JST)による研究課題「室温で動作するスピントロニクスナノデバイスの設計」(研究代表者:猪俣浩一郎教授(NIMS)及びClaudia Felser教授(Max Planck Institute))の一環として、長期課題(2008年後期から2011年前期まで)が採択され、透過型ダイヤモンド移相子の導入・整備が行われた。これにより新たにX線(8 keV)用の厚さ0.6 mmのダイヤモンド移相子機構の導入が完了し、これまで半導体等の非磁性材料を中心に行われてきたHAXPESの利用研究が、円偏光X線を用いた磁性材料の共用利用研究に発展された<sup>[1-3]</sup>。また同じく2011年度から利用を開始した、広角対物レンズを用いた角度分解深さ分析法やマイクロビームを用いた微小領域電子状態のイメージング計測技術も、利用研究に供されている<sup>[4]</sup>。本稿では、2012年度に実施したイメージング計測における自動測定システムの開発と光学集光ミラーの整備状況を報告する。

### II-1. イメージング計測における自動測定システムの開発

BL47XUのHAXPESエンドステーションでは試料を走査するイメージング計測法が採用されている。この計測法の空間分解能は光学集光サイズに依存するため、後述する

カークパトリック・バエズ(Kirkpatrick-Baez: K-B)配置型集光ミラーを設置し、1  $\mu\text{m}$ サイズの集光を用いて微小領域イメージング計測が行われている。この空間分解能は結像型レンズシステムを用いるPEEM(Photoemission Electron Microscopy)から得られる数10 nm以下の高い空間分解能には及ばないが、本イメージング法の利点は、比較的高いエネルギー分解能を選択できることとHAXPESの最大の特徴である深さ分析が可能であることが挙げられる。

またXYZ $\theta$ 試料位置制御と静電型アナライザー分析器を連動させた自動測定システムの構築は2010年度から行われてきた。従来の方式はLabviewと他プログラムを組み合わせた複雑な制御であったため、簡便に操作できず、観測する光電子の運動エネルギーに誤った値を入力すると、急激な昇圧によりアナライザーの放電や電源ボードの破損が発生する問題があった。そこでLabviewプログラムで統一した新たな制御プログラムの再構築を行った結果、電圧昇降レート設定及び観測条件に関する元素エネルギー領域設定や試料位置条件の同期設定が利便化され、操作性が大きく向上した。これは微小領域イメージング計測を利用しない従来の測定でも利用可能で、試料位置とエネルギー領域設定を行うだけで複数の試料測定が可能となり長時間の自動計測が行える。また本イメージング計測と広角対物レンズによる深さ計測を組み合わせた3次元計測も可能である。

しかし、一度に多量の角度分散情報を取り込めることか

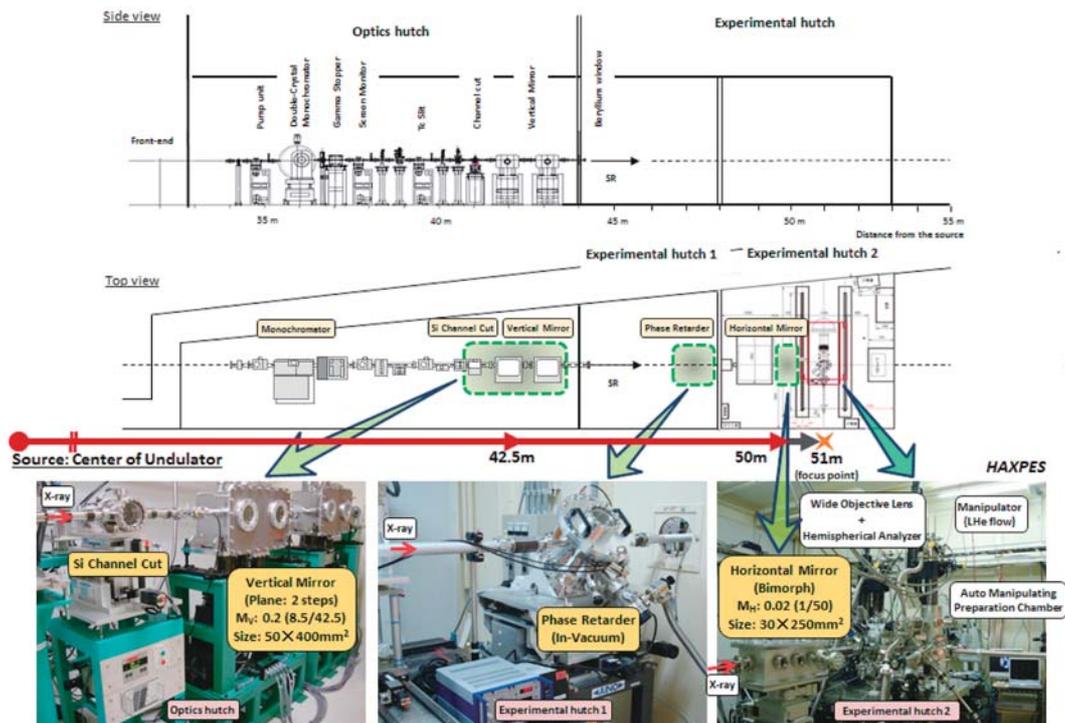


図1 HAXPES計測ステーションを含むBL47XU光学全体レイアウト。

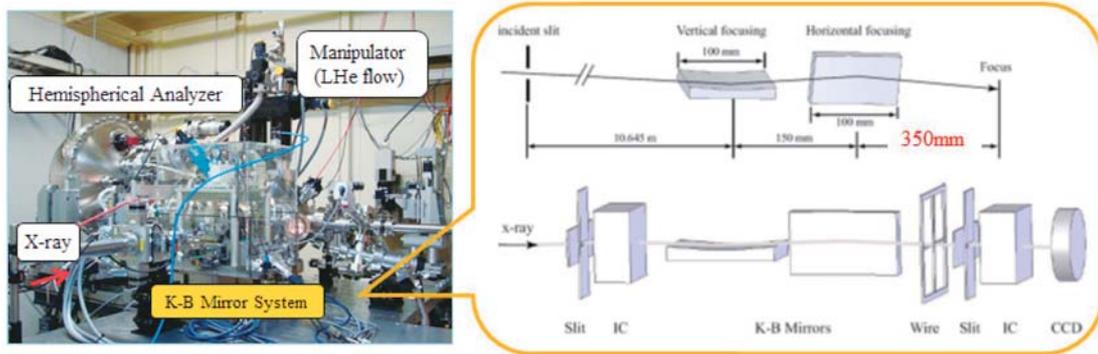


図2 K-B集光ミラーを配置した写真図。X線透過率が高いヘリウムに置換することで高い光強度を得ている。

ら、データ解析が複雑となることが問題である。これを解消し、測定中でも解析を行えるように深さ分析の自動解析システムの構築も行っている。

### II-2. 光学集光ミラーの整備

通常の共同利用に供している汎用X線集光サイズは30(H)×40(V) μmである。図1にBL47XU光学全体レイアウトを示す。Si(444)チャンネルカットのBragg反射を用いることにより、入射X線のエネルギーが8 keVの際にバンド幅が40 meV程度になり、分解能を大きく向上させている。光強度は8 keVの入射エネルギーで $2.8 \times 10^{11}$  photons/s/0.0005%BW程度である。また集光光学系は光学ハッチに縦集光ミラー2枚を配置し、発散角を小さく緩やかに試料位置まで集光させ、横集光ミラーは試料位置から1 m上流側に配置している。このように縮小率が異なる両集光ミラーを整備している。また実験ハッチ1には透過型ダイヤモンド移相子の導入が可能であり、2011年度から円偏光X線を用いた磁性材料研究に利用されている<sup>[3]</sup>。

HAXPESイメージング計測ではK-B配置型集光ミラーを用いた集光X線が利用され、汎用集光ミラーとは別の高精度集光ミラー機構をイメージング計測実験の度に設置させる。図2にK-B集光ミラーを配置した写真図を示す。集光点より350 mmの距離に本K-Bミラーを配置し、 $\phi 1 \mu\text{m}$ 集光を形成する。これまで本ミラーの駆動機構は大気圧下で動作していたため、特に入射X線の低いエネルギー領域(6~8 keV)では大気圧下の光学パス距離に依存して、著しくX線強度の減衰を生じる問題があった。そこでK-Bミラー駆動機構全体をX線透過率が高いヘリウムに置換することにより、光強度の減衰の低減を行った。図3に金薄膜で光電子検出強度を比較したFermi端近傍のスペクトルを示す。ヘリウム置換なしの場合と比較して67%の光電子検出効率の増大が確認された。これによりイメージング計測における積算時間の大幅な短縮が可能となっている。

自動測定システムならびにK-B配置型集光ミラーを用いた微小領域イメージング計測は、微細パターン(反応する

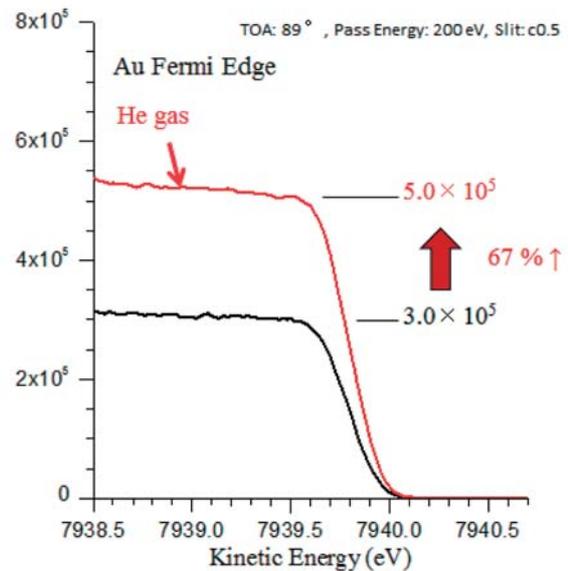


図3 金薄膜で光電子検出強度を比較したFermi端近傍のスペクトル。赤スペクトルがヘリウム置換後の価電子強度を示す。

電極、基板を井戸化することにより高集積化を図るSi-LSI多層薄膜やカーボンナノチューブ(CNT)等の走査計測法として広がりつつある。2012年度は、最先端研究開発支援プログラム「グリーン・ナノエレクトロニクスのコア技術開発」において、CNTの高い熱伝導性に着目した高密度CNTの生成に向けた研究開発に利用されている。

### 参考文献

- [1] SPring-8年報, 2011年度版, pp97-98.
- [2] M. Suzuki, et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* **37** (1998) L1488.
- [3] S. Ouardi, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **107** (2011) 036402.
- [4] SPring-8年報, 2010年度版, pp98-99.

利用研究促進部門  
 応用分光物性グループ  
 材料電子状態解析チーム  
 池永 英司