

BL47XU 光電子分光・マイクロCT

BL47XUは標準的なりニアアンジュレータを光源としたビームラインで、主として結像型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。2014年度に行われた高度化について述べる。

1. 可視光変換型検出器用高効率型蛍光面の導入

X線画像検出器は、X線CTや屈折コントラストイメージングのようなX線画像計測において重要なデバイスである。硬X線領域の画像計測実験では、検出器は図1に示すような可視光変換ユニット・可視光学系・撮像デバイスから構成されるタイプを使用することが多い。この検出器では、まずX線画像を薄膜蛍光面により可視光画像に変換する。つぎに可視光学系によりその画像を撮像素子面上に拡大あるいは縮小投影する。最後に撮像素子により画像は電気信号に変換され、フレームグラバやPCに伝送される。

近年開発されたsCMOS (Scientific complementary metal oxide sensor) は低ノイズ・高速読み出しが可能な撮像デバイスである。このデバイスにより、画像計測の大幅な高速化が進んだ。たとえば、X線CTでは interline CCD (interline transfer charge-coupled device) では30-40分程度必要とした測定が、1投影あたり同じ露光時間で比較すると、sCMOSでは8分程度まで短縮された。実際には低ノイズ化の寄与もあるため、同等の画質の画像が5分程度で計測可能である。

BL47XUで行っている投影型X線CT実験では、このような最新のデバイスを導入しつつ高速化を進めているが、これだけでは限界がある。これ以上の高速化を進める方法のひとつとして、X線の光束密度を上げる方法がある。しかし、この方法は、同時に試料や検出器内の蛍光面の損傷を伴う。試料を液体窒素温度程度で冷却す

ば放射線損傷は軽減されるが、それは万全な措置ではなく実験の難易度が上がるだけのケースもある（当然、ガスハイドレートなどのような冷凍が必須の試料の場合は冷却している）。さらに深刻なのは蛍光面の損傷である。高分解能検出器で用いる蛍光面は、単結晶を10-20 μm程度まで研磨し、基板に接着剤を用いて貼り付ける。この接着剤が放射線損傷で分解し薄膜蛍光面を破壊する。特に8 keV程度の低エネルギーの場合は深刻で、蛍光面1個が一晩で使い物にならなくなったケースもある。

これを解決するひとつの方法が、新奇蛍光体を導入しX線から電気信号への変換効率を上げることである。単純に発光効率を上げるだけでなく、発光波長を撮像素子の得意な領域（量子効率が高い波長領域のこと）に設定することも含まれる。2014年度はその試みとして、 $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^+$ (LuAG) を導入した。表1に主な蛍光体のパラメーターの比較を示した。従来使用してきた $\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^+$ (LSO) と比べると、発光波長が420 nmから535 nmへと長くなっている。これは上記sCMOS

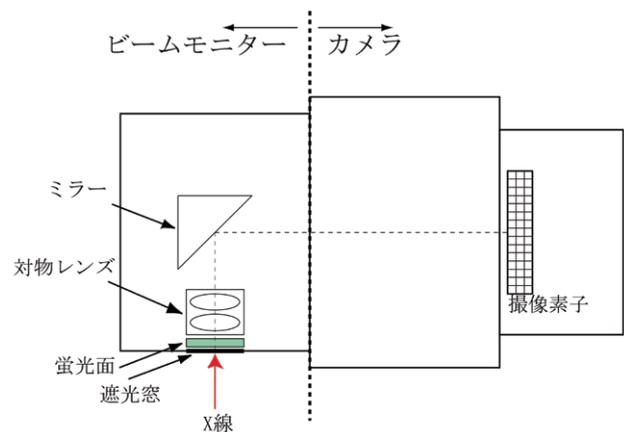


図1 高分解能X線画像検出器の模式図。

表1 X線画像検出器に用いられる蛍光体のパラメーター。厚さはこれまでBL47XUあるいはBL20XUで製作した実績のある値を示している。

	LSO	P43	YAG	LuAG
組成	$\text{Lu}_2\text{SiO}_5:\text{Ce}^+$	$\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S}:\text{Tb}^+$	$\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^+$	$\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}^+$
密度 (g/cm ³)	7.4	7.3	4.5	6.73
発光波長 (nm)	420	545	530	535
減衰時間 (nsec)	40	1500	300	70
形状	単結晶	粉末	単結晶	単結晶
厚さ (μm)	10 - 20	7 - 50	10 - 200	20 - 1000

カメラ（浜松ホトニクス製ORCA Flash 4.0）において、量子効率が40%から70%へと向上することに対応し、2倍程度の効率化が期待出来る。また、X線から可視光への変換効率も上がっていると考えられ、LuAGとLSOにおいて同程度の信号量を得るために必要なX線光子数はおおよそ1/3程度になった（正確な数値は現時点では未測定）。

効率は上がったものの、空間分解能に関しては若干の注意が必要である。図2にテストチャートのX線像を示した。これは10 keVのエネルギーで撮影され、実効画素サイズは0.49 μm である。LSOの場合はピッチ1.2 μm まで分解出来ているのに対し、LuAGの場合はピッチ1.6 μm の分解にとどまっている（おそらく1.4 μm の分解は出来る）。しかし、LSOでは画像全体に霧のような散乱が発生しており、LuAGで分解可能な領域における変調伝達関数（Modulation transfer function, MTF）は、LSOの方が低いと思われる。これはおそらく、LSO表面からの散乱光が影響しているのであろう。その理由は、LSOの方がLuAGよりも軟らかく、研磨時に結晶表面に微少な凹凸が発生しているためと考えられる。

X線照射に対する耐久性に関しても、LuAGの方が優れており、これはX線照射強度の低減だけでなく結晶の硬さにも依存していると思われる。今後投影型のX線CT計測はLuAGを軸に据え、さらに新奇蛍光体の探索を進

めることとする。また、kHzオーダーの超高速撮影を可能にするような新しい構造の蛍光体も検討する。

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

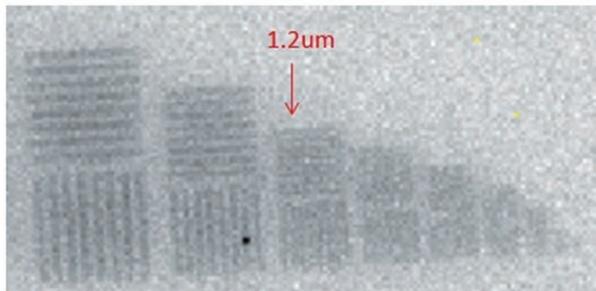
上杉 健太朗、竹内 晃久、星野 真人

2. 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。2012年度までに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。具体的には、ダイヤモンド偏光素子をBL47XUに新たに導入し、円偏光を用いた光電子分光の磁気円二色性（MCDAD）法でTMR素子の研究を行っている^[1, 2]。特に、10 nmもの厚みがあるIrMn層（反強磁性）の下部に存在するホイスラー合金 Co_2FeAl （強磁性）のFeのMCDADから、強磁性層が反強磁性層にピン止めされた磁化を持つことを明らかにした。これは、従来の検出深さの浅い光電子分光では観測できない成果であり、また Co_2FeAl のFeが持つ大きな磁気モーメント（2.8 μB ）が、Fe 3d軌道の局在性に起因するものであることを明らかにした。また $\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{CoFeB}$ の系で注目されているアニーリング効果によるTMRの増大が、 CoFeB 層のBがTa層（トンネル接合の下部のサポート層）への拡散に起因することを、HAXPESの非破壊測定で明らかにしている^[3, 4]。2012年後期からClaudia Felser教授（Max Planck Institute）の「Development of Spin-HAXPES technique for the exploration of the electronic structure of buried layers and interfaces」長期課題が採択され、埋もれた界面におけるスピン偏極度を直接的に観測するスピン電子検出器の開発が行われた。本稿では、2014年前期までBL47XUで実施したスピン電子検出器開発について報告する。

本スピン電子検出器は、ターゲットにスピン軌道相互作用の大きなW単結晶（重元素）を用い、そのLEED（Low Energy Electron Diffraction）スポットを観測してスピン偏極度を求めるSP-LEEDの原理から、電子を照射したW単結晶から放出される2次電子がスピン偏極していることを利用してスピン分解する。図3にスピン電子検出器の断面図からW結晶から放出される光電子回折方位（0, 2）シリーズをチャンネルトロンで検出する機構を示す。本スピン電子の検出効率は極端に悪いことが最

a. LSO



b. LuAG-001

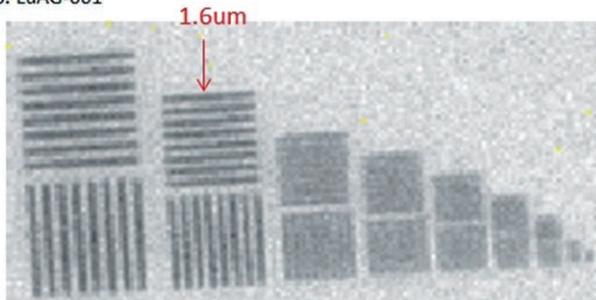


図2 LSOおよびLuAGにて撮影したテストチャート像。数値はline and spaceのピッチを表している。撮影エネルギーは10 keV、実効画素サイズは0.49 μm である。

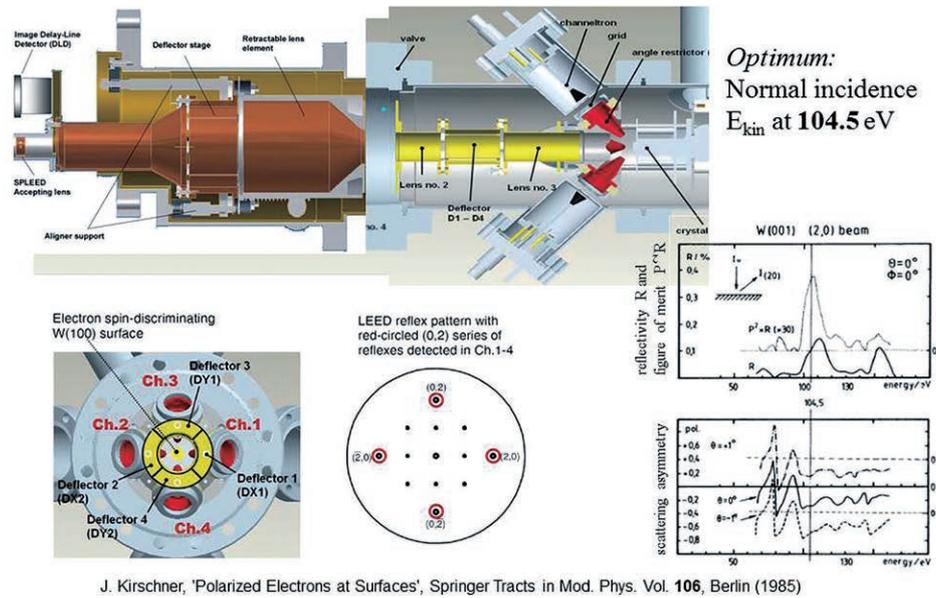


図3 スピン電子検出器の断面図とW結晶から放出される方位(0,2)シリーズをチャンネルトロンで検出する機構。

大の難点である。これは硬X線領域では光電子の励起断面積が軟X線に比べ2桁減少し、さらにスピン分解測定では検出効率が4桁程度減少するためであり、本スピン光電子検出器開発は世界でも成功例が無い、極めてチャレンジングな開発と言える。この微弱な信号を検出するために、非常に高い光強度を望めるアンジュレータビームラインの集光ミラー機構と組み合わせ、高精度・高効率スピン電子検出を実現することを目標としている。検出器開発では図3の断面図に示すようにW結晶ターゲットに照射される光電子を収束させるレンズ機構の電圧調整および印可精度を向上させている。また数時間程度でW結晶表面の清浄度が奪われ、スピン検出効率が大きく減ってしまう問題がある。これをなるべく回避するため、超高真空中にターゲットを保持しなくてはならない。測定中にW結晶表面が汚染劣化した場合は、酸素雰囲気中600°C程度でフラッシュアニールすることにより、清浄表面を回復させる必要がある。これを3時間毎に繰り返し施すので、フラッシュアニール操作を簡便に行える工夫を施している。このように試行錯誤して得られたFe 2p_{3/2} スピン分解スペクトルを図4に示す^[5]。試料は図に示したように埋もれたハーフメタルホイスラー合金Co₂FeAl_{0.5}Si_{0.5} (CFAS) 磁性層をもつ多層膜である。S/Nは低いものの明瞭なUp-downスピン分裂を示しており、スピン交換分裂が1.3 eVと大きい値を観測できている。詳細は参考文献^[5]に譲るが、このように内殻電

子状態に関するスピン分解計測に成功している。

現状は本検出器をBL09XUに導入し、価電子情報、特に電子状態密度が小さいフェルミ近傍のスピン分解計測を行っている。従来のMCD-HAXPESで観測されたTMR素子の性能は、ホイスラー合金の界面でのスピン偏極度が大きく影響すると考えられるが、これを直接解明する実験手法が存在しなかった。またBL47XUにて開発済のMCD-HAXPESと本スピン電子検出器計測の両手法から得られる情報は相補的に議論することができるため、本

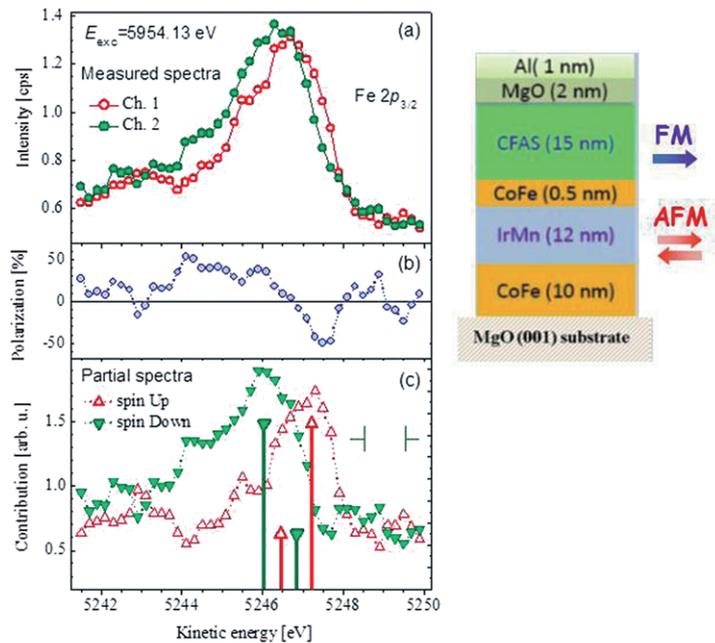


図4 Co₂FeAl_{0.5}Si_{0.5} (CFAS) 磁性層からのFe 2p_{3/2} スピン分解スペクトル。(a) スピン検出効率 (b) spin polarization (c) スピン分解スペクトル。

開発および高性能化は、今後、磁性多層膜研究や実磁性デバイス材料開発の強力なツールになると期待される。

参考文献

- [1] Gerhard H. Fecher, et. al.: *Phys. Rev. B*, **84**, (2011) 054449.
- [2] Xeniya Kozina, et. al.: *Appl. Phys. Lett.*, **96**, (2010) 072105.
- [3] Xeniya Kozina, et.al.: *Appl. Phys. Lett.*, **99**, (2011) 221908.
- [4] Siham Ouardi, et. al.: *Phys. Rev. Lett.*, **107**, (2011) 036402.
- [5] Gregory Stryganyuk, et. al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, (2012) 016602.

利用研究促進部門
応用分光物性グループ
池永 英司