

## BL47XU 光電子分光・マイクロCT

### 1. 硬X線光電子分光

硬X線を用いた光電子分光（Hard X-ray Photoemission Spectroscopy：HAXPES）は、バルク敏感で界面における電子状態を観測可能な測定手法である。2007年度は前年に引き続き一般共用、ナノテク支援、産業重点課題に対して、円滑な支援が実施された。学術研究利用とともに産業利用も大きく増大した。2005年度から参画している先端計測分析機器開発事業（JST）では、3次元化学状態走査硬X線光電子顕微鏡装置の開発をさらに進め、微小領域の電子状態を観測するに至った。また本年度後期から、新たにCREST研究領域「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究」、研究課題名「LSI用3次元カーボン・アクティブ配線の開発」プロジェクト（JST）が展開している。これはプラズマCVDを用いたグラフェン成長過程の詳細な評価に必要なシステムを構築し、特に絶縁膜上での高品質多層グラフェン形成技術の確立を目的とするもので、グラフェン構造の深さ分析した電子状態評価を行っている。

硬X線光電子分光では、物質の光イオン化断面積が小さいために捕集効率、スループットが小さくなる。この問題を克服し、更なるハイスループットを目指して光学ハッチに縦集光ミラー（反射材：Rh）2部の増設を行った。この縦集光ミラーと実験ハッチに横集光光学ミラーを配置、組み合わせることで、試料位置でのビームサイズ垂直 $38\mu\text{m}$ ×水平 $34.8\mu\text{m}$ 程度の集光を達成している。図1にX線光学系の概要を示す。この高度化により、従来よりも50倍程度の光電子捕集強度向上が達成できたとともに、金の

Fermi端近傍を実測した結果として、 $228\text{meV}$ の高い総エネルギー分解能を実現している（2006年度年報参照）。

さらに、ユーザーフレンドリーなシステムの導入、整備も進めている（図2参照）。

- (1) 水晶振動子膜厚モニターを導入した試料蒸着機構およびArイオンスパッタ銃や劈開装置を導入した真空準備槽の設置。
- (2) 主真空解析槽には、放出光電子に対する地磁の影響を防ぐために $\mu$ -metal材を適応。
- (3) 極低温依存を測定するために液体Heフロー型クライオスタットを導入して、振動を抑えるとともに可能測定温度領域を $600\sim 8\text{K}$ 程度まで拡大。

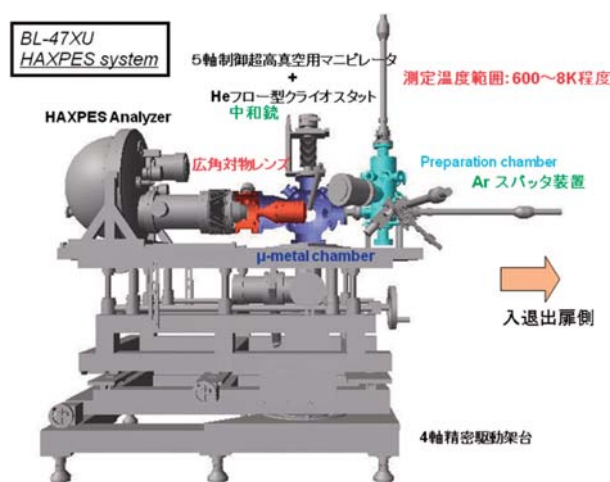


図2 BL47XUに常設しているHAXPES装置

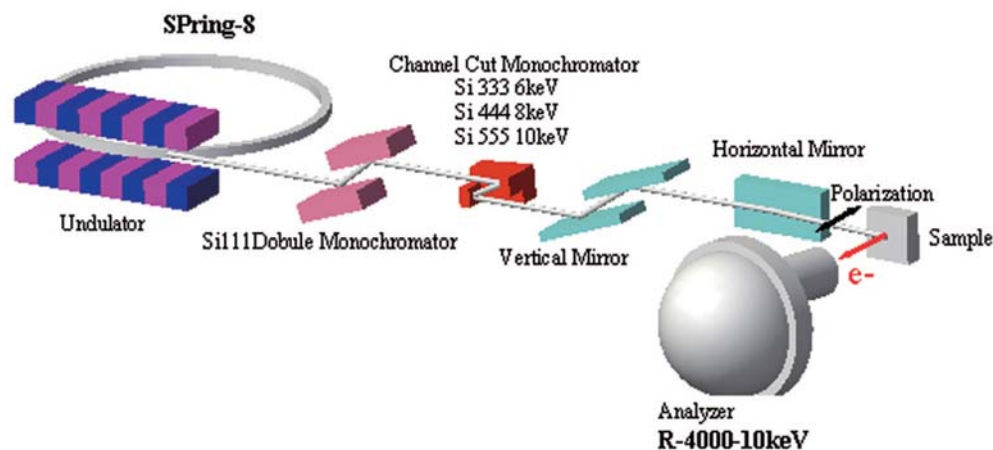


図1 大型放射光施設SPring-8/BL47XUで行われているHAXPESの実験配置例。アンジュレーターからの高輝度X線は二結晶分光器、Siチャンネルカット後置分光器（333、444、あるいは555反射）を経てX線のバンド幅を数十meVまで狭め、縦・横集光ミラーを経て試料に照射される。

- (4) 高輝度なX線励起による試料帯電を補う中和銃の導入。
- (5) 駆動操作プログラム構築により、X線光学系であるミラー機構を含めた全ての操作のハッチ外からの遠隔操作を実現。

この高度化したシステムはユーザーから大変な好評価を得ており、試料の適応範囲を大きく広げるに至り、ユーザー利用拡大につながっている。液体HeポンペをBL47XUのハッチ内に設置し、試料を8K程度まで低温冷却している様子とともに全体写真像を図3に示す。

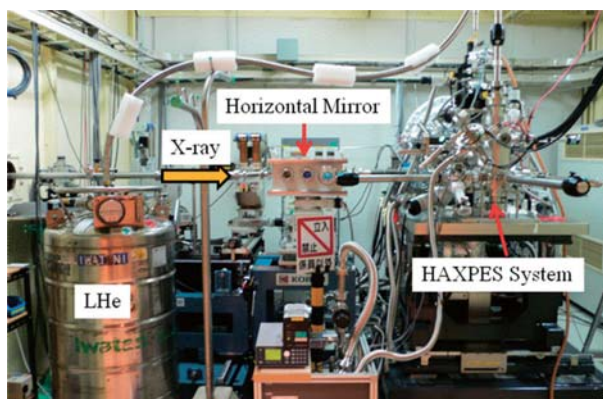


図3 BL47XUハッチ内全体写真

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、室 隆桂之

## 2. マイクロCT

### 2-1 結像型高分解能CT

当ビームラインでは高空間分解能を必要とする3次元観察のため、X線結像光学を用いた顕微CTの開発を進め、2006年度よりこの装置の一般ユーザー利用を始めている。BL20XUのところでも述べられているように、フレネルゾーンプレートを対物素子に、回折格子型コンデンサプレートを照明系に用いて、ケーラー照明型の結像光学系が導入されており、現段階で、10keV前後のエネルギー領域において、視野直径50～100μm、空間分解能300nm以下での3次

元観察が可能となっている。典型的な条件（8keV、1800投影）での1回のCT測定の所要時間は約30分である。

今年度は、光学ハッチに鉛直方向集光/高次光カット用の全反射ベントミラーが導入されたことによって、この装置も、二つの高度化が成された。ひとつは分光器からの高次光の除去である。回折型の光学素子を利用したこの光学系は、色収差を持つために、高次光の存在は像の質を低下させる。これまでは、必要に応じ分光器の $\Delta\theta$ をデチューンすることによって回避してきたが、高次光カット用ミラーの導入によってその必要がなくなった。もう一つは、鉛直集光ミラーの「逆」ベンドにより、使用している光学素子の大きさに合わせてビーム幅を変更することが可能になった点である。現在使用しているコンデンサは直径が1mmであるが、元々このビームラインで得られるビームの縦幅はそれよりも小さく、コンデンサの開口全てを均一に照射することが不可能であった。これは光学特性の異方性を招く。そこで、ミラーを逆ベンドすることによってビーム幅を広げ、コンデンサを均一に照射することが可能となった。

### 2-2 結像CTへの位相コントラスト法の導入

物質のX線に対する複素屈折率  $n = 1 - \delta - i\beta$  において、X線のエネルギーが高いほど、若しくは物質の原子番号が小さいほど一般的に $\delta/\beta$ が大きくなるために、位相変化を利用したイメージングは従来の吸収イメージングと比べて非常に高い感度でしかも低い被爆線量での測定が可能とされている。このことから、結像CTの利用実験の中でも特に生物系や軽元素材料を扱う測定については位相コントラスト法導入の意義は大きい。更に、比較的大きいスケールでは吸収で十分なコントラストが得られていた物質に対しても、高分解能化に伴う観察対象の微細化に伴い、もはや吸収では十分なコントラストが得られないケースが出てくる。これらのことから、結像CT装置のオプションとして位相コントラスト法の導入を検討し、今年度からはゼルニケ型位相コントラスト法を導入した。

ゼルニケ位相コントラスト法は、光学的にフーリエフィルタリングを施す手法である。実際には、図4に示すよう

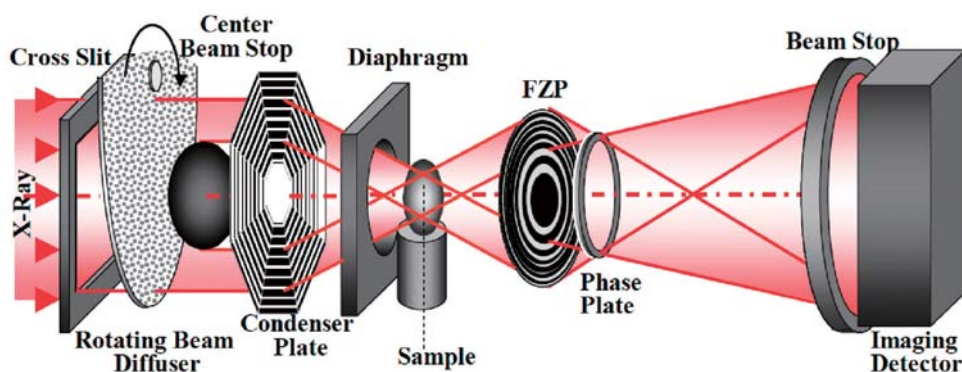


図4 ゼルニケ型位相コントラストX線顕微鏡/CT光学系

に、試料のフーリエ変換面に相当する対物素子の後焦点面位置に位相板を挿入し、試料の回折波と非回折波の間で意図的に $\lambda/4$ の位相変調を生じさせることで位相差によるコントラストを反映した像を得る。回折波に対し、非回折波の位相を進ませるか遅らせるかによって明暗が反転し、それぞれBright phase contrast (BPC)、Dark phase contrast (DPC) と呼ばれる。位相板は、NTT-AT社製のものであり、厚さ $0.96\mu\text{m}$ のタンタルで描画されおり $8\text{keV}$ のX線に対して丁度 $\lambda/4$ の位相変化を生じさせる。前述のケーラー照明系は、この後焦点面位置において試料の回折波と非回折波が空間的に分離される光学系であるため、ゼルニケ位相コントラストに適した光学系である。この手法は、従来の吸収法からの装置のモード変更が簡便であり、測定方法も同じであるにも関わらず、高い位相感度を有するという利点がある。図5に、吸収法、ゼルニケBPC、DCPによるヒト子宮頸ガン由来HeLa細胞の像を示す。吸収では十分なコントラストが得られないため存在が全く確認できないのに対して、ゼルニケによる各像はそれぞれ鮮明な像を示している。ゼルニケ位相コントラストの欠点は、位相定量が

難しいということである。軽元素系の物質でも厚さ数 $\mu\text{m}$ 程度までしか像コントラストと位相変化の間の線形性が成り立たない。また、エッジ強調の効果が出やすいという問題もある。このエッジ強調アーティファクトは主に光学系設計に依存する問題であるが、これを完全に排除するような光学系は実際上不可能である。これらの問題はCTにおいては定量性を欠くだけでなく、偽像を生じ、再構成像の解釈を困難なものにする可能性があるため、ゼルニケ型位相コントラスト法によるCTを利用するユーザーはこれらの特性を事前によく理解しておく必要がある。図6に、ガラスロッドに付着したラテックス球（直径 $8\mu\text{m}$ ）の、吸収、ゼルニケBPC、DPCのCT像を示す。一様になるはずのラテックス球内部のCT値が、上記の理由から一様になっていないという問題はあるものの、ゼルニケ法では吸収法よりSNが向上していることが分かる。

利用研究促進部門

バイオ・ソフトマテリアルグループ

竹内 晃久

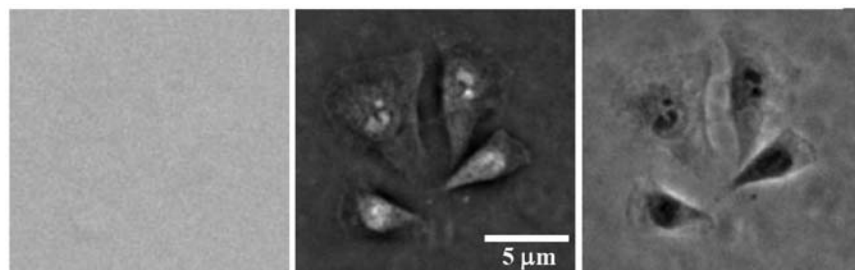


図5 ヒト子宮頸ガン由来HeLa細胞（ドライ）。左：吸収像、中：ゼルニケBPC像、右：ゼルニケDPC像。X線エネルギー $8\text{keV}$ 。

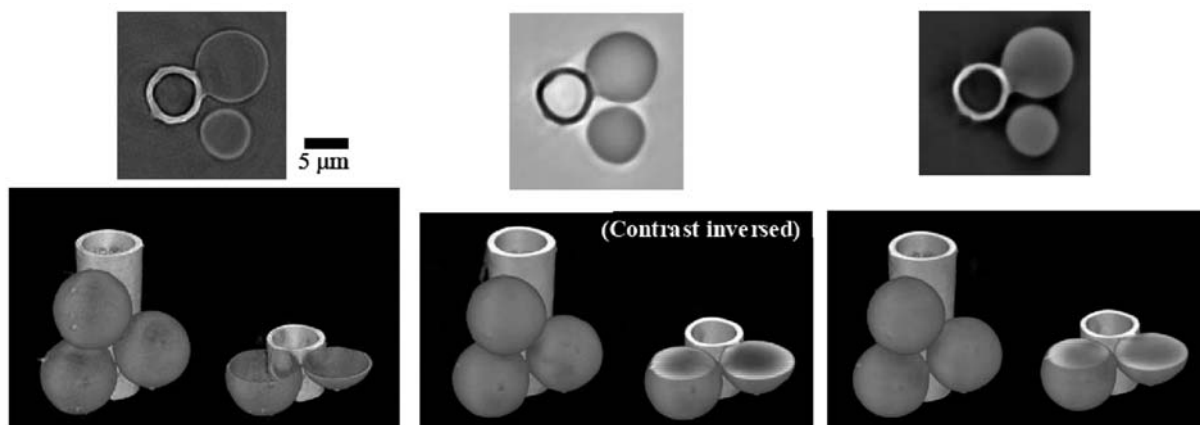


図6 ガラスキャピラリに付着したラテックス球（直径 $8\mu\text{m}$ ）のCT像。左：吸収、中：ゼルニケBPC、右：ゼルニケDPC。X線エネルギー $8\text{keV}$ 。露光 $0.3\text{sec}$ 、 $1800$ 投影。