

## I X線顕微鏡の開発と物質・生命科学への応用研究

### Development of X-ray Microscopes and the Applications to Material and Life Sciences

高山裕貴・籠島 靖

Takayama, Y., Kagoshima, Y.

物質機能の基盤となる空間階層構造を高い時空間分解能で可視化することを目指し、X線光学素子および光学系の開発とX線顕微イメージングへの応用を展開している。材料や生体の機能メカニズムの理解には、対象の構造をマクロな構造から電子状態に至るまで広い空間スケールに亘って可視化することが重要である。これまでに、SPring-8兵庫県IDビームラインBL24XUにおいて、ゾンプレートを用いた走査型X線顕微鏡や広視野結像型X線顕微鏡を開発し、高度化を進めている。走査型顕微鏡では、蛍光X線による極微量元素空間分布と広角X線回折による局所構造分布をサブミクロン分解能で同時マッピング可能とし、様々な機能性材料の構造解析へ応用した。結像型顕微鏡では、特に密度差の小さい試料において、デフォーカス撮像法と波動光学計算を組み合わせることで従来法より数倍高い空間分解能かつ自然なコントラストでイメージングできることを見出し、実用化を進めている。また、結像光学素子の加工精度限界を超える、ナノメートル分解能での構造可視化を目指し、コヒーレントX線回折イメージング法を開発を行っている。本手法はコヒーレントX線回折パターンから計算機アルゴリズムにより試料像を得る方法であり、従来技術では観察が極めて難しいサブミクロン金属粒子中の空孔構造などを30 nmより高い空間分解能で可視化することに成功している。本手法にマイクロ集光ビームによるスキャン測定を導入して広視野化を図り、50 nm線幅を十分解像可能な像を得ることに成功した。

回折限界サイズのX線集光ビームを生成する場合やコヒーレントX線回折イメージング法などを行う場合、入射X線ビームのビーム特性を評価しておくことが重要である。現在、ビーム特性としてデュモンド図形(DuMond diagram)と位相空間(phase space)のマッピング測定に関する研究を行っている。これにより、入射X線ビームの水平・鉛直両方向のエミッタンスを実験的に求めることを目指している。

## II 電子材料等の局所構造に関する研究

### Studies of Microstructure of Electronic Device Materials

津坂佳幸

Tsusaka, Y.

半導体をはじめとする最近の電子デバイスの構造は、超高集積回路や高速光通信素子に代表されるように極めて微細かつ複雑になりつつある。これらの構造を構築するには、表面酸化、エッチング等の局所加工、薄膜堆積など各種のプロセスが必須である。デバイスサイズの縮小化によって結晶構造や応力の分布もまた多様化しており、局所的な解析が不可欠となりつつある。本研究は平面波マイクロビームを形成し、数ないし  $1\ \mu\text{m}$  の位置分解能をもって局所歪みなどの空間分布を測定することを目的としている。これにより将来の我が国の産業を支える電子デバイスの発展、プロセス改良に寄与するための基礎研究を行う。

現在 SPring-8 の兵庫県 ID ビームライン(BL24XU)において、高精度 X 線回折計を組み合わせた装置の開発・改良を進めており、これまでに縦  $0.4\ \mu\text{m}$ 、横  $1.1\ \mu\text{m}$ 、水平面内発散角  $40\ \mu\text{rad}$  の平面波マイクロビームの形成に成功し、シリコン基板上的酸化膜境界付近や多波長発光素子などのロッキングカーブ測定、逆格子空間マップ測定にも成功している。また、CMOS カメラを利用した多波近似条件近傍での明視野トポグラフィの開発もあわせて進めている。これらの結果は電子デバイスに関する新しい情報を提供しており、本研究の今後の進展が期待される。

### III 放射光ナノテクセンター運営への参画

#### Participation in Synchrotron Radiation Research Nanotechnology Center

籠島 靖・津坂佳幸・高山裕貴  
Kagoshima, Y., Tsusaka, Y. Takayama, Y.

兵庫県では、放射光研究における産業利用を促進するため、平成 10 年度に 1 本目の県専用ビームラインである BL24XU の供用を開始し、マイクロビームを使った各種イメージング・局所分析等に対応し、具体的な研究成果を挙げてきた。その後、産業界においてより製品化に直結する技術開発段階での材料分析ニーズが増加し、また材料利用技術の高度化に伴って、新しい機能を有する材料の開発等が盛んになってきたことなどから、BL24XU が有する手法に加え、小角 X 線散乱、広域 X 線吸収微細構造解析、高精度粉末 X 線回折、単色 X 線トポグラフィ等の手法についても対応すべく、2 本目の県専用ビームラインである BL08B2 を建設し、平成 17 年度より供用を開始した。平成 20 年 1 月には、SPring-8 の利用企業等を支援し、多様な共同研究プロジェクトの拠点となる兵庫県放射光ナノテク研究所の供用を開始した。

これら施設の管理・運営については、BL24XU の供用開始当初から公益財団法人ひょうご科学技術協会が兵庫県からの委託を受けて実施してきたが、平成 25 年度から公立大学法人兵庫県立大学が、放射光ナノテクセンターとして実施することとなった。本研究室の教員は、放射光ナノテクセンターの連携教員としてその運営に参画している。

#### 発表論文 List of Publication

I-1 Yuki Sekiguchi(慶應大), Amane Kobayashi(慶應大), Yuki Takayama, Mao Oide(慶應大),

- Asahi Fukuda(慶應大), Takahiro Yamamoto(慶應大), Koji Okajima(慶應大), Tomotaka Oroguchi(慶應大), Takeshi Hirakawa(東京理科大), Yayoi Inui(東京理科大), Sachihiko Matsunaga(東京理科大), Masaki Yamamoto(理研) and Masayoshi Nakasako(慶應大), Coherent X-ray diffraction imaging of Cyanidioschyzon merolae, in Cyanidioschyzon merolae: A New Model Eukaryote for Cell and Organelle Biology, Chapter 15, Springer (2017). [査読有]
- I-2 Yuki Takayama, Yuki Takami, Keizo Fukuda, Takamasa Miyagawa, Yoshimasa Urushihara, Shigeo Kuwamoto and Yasushi Kagoshima, Coherent X-ray Diffraction Imaging at SPring-8 Hyogo Beamline BL24XU, The 24th Congress of the International Commission for Optics, Tokyo, Japan, Aug. 2017.
- I-3 Hikaru Hayakawa, Atsushi Mineshige, Takuma Nishimoto, Akie Heguri, Tetsuo Yazawa, Yuki Takayama, Yasushi Kagoshima, Hidekazu Takano, Shingo Takeda(SES) and Junji Matsui, Preparation of Lanthanum Silicate Electrolyte with High Conductivity and High Chemical Stability, 21st International Conference on Solid State Ionics, Padua, Italy, Jun. 2017.
- I-4 Yuki Takayama, Yuki Takami, Takamasa Miyagawa and Yasushi Kagoshima, Coherent X-ray Diffraction Imaging at SPring-8 Hyogo Beamline BL24XU, International Conference on X-ray Optics and Application 2017, Yokohama, Japan, Apr. 2017.
- I-5 H. Takano, K. Sumida, H. Hiroto, T. Koyama, S. Ichimaru, T. Ohchi, H. Tanenaka, and Y. Kagoshima, Hard X-ray multilayer zone plate with 25-nm outermost zone width, Journal of Physics: Conference Series **849**, 012052 (2017) (3 pages). [査読有]
- I-6 Y. Kagoshima, T. Miyagawa, S. Kagawa, S. Takeda and H. Takano, Measurement of synchrotron radiation phase-space beam properties to verify astigmatism compensation in Fresnel zone plate focusing optic, Rev. Sci. Instrum. **88**, 086110 (2017) (3 pages).
- I-7 宮川天将, 香川咲貴, 竹田晋吾, 高山裕貴, 籠島 靖: 「位置-角度-波長の3次元空間における放射光ビームの特性評価に関する研究」、第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2018年1月つくば国際会議場
- I-8 籠島 靖: 「ディープフォーカスゾーンプレートの提案」、第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2018年1月つくば国際会議場
- I-9 籠島 靖: 「ディープフォーカスゾーンプレートの提案」、第13回X線結像光学シンポジウム、2017年11月、筑波大学
- II-1 M. Imanishi, T. Yoshida, T. Kitamura, K. Murakami, M. Imade, M. Yoshimura, M. Shibata, Y. Tsusaka, M. Matsui and Y. Mori, Homoepitaxial Hydride Vapor Phase Epitaxy Growth on GaN Wafers Manufactured by the Na-flux Method, Cryst. Growth Des. **17**, 3806 (2017) (6 pages). [査読有]
- II-2 津坂佳幸, 鶴丸哲也, 松井純爾: 「Si中ミスフィット転位のバーガスベクトル決定に有利な多波回折明視野X線トポグラフィ」、X線トポグラフィ研究会、2017年8月、大阪大学吹田キャンパス

- II-3 堀川智之、菊地慧、仙田剛士、藤森洋行、津坂佳幸、松井純爾：「放射光 X 線散漫散乱法による Si 結晶中の酸素析出物解析」、第 14 回 SPring-8 産業利用報告会、2017 年 8 月、川崎市産業振興会館
- II-4 鶴丸哲也、水落博之、鎌本春花、津坂佳幸、籠島靖、松井純爾：「Si 中ミスフィット転位のパーガースペクトル決定に有利な多波回折明視野 X 線トポグラフィ」、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、2017 年 9 月、福岡国際会議場
- II-5 水落博之、鶴丸哲也、津坂佳幸、松井純爾、今西正幸、今出完、森勇介：「多波回折明視野 X 線トポグラフィによる Na フラックス法 GaN 基板中転位の同定」、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018 年 3 月、早稲田大学

## 大学院物質理学研究科

### 博士前期課程

- 鶴丸哲也：多波回折明視野 X 線トポグラフィによる Si 中のミスフィット転位観察
- 宮川天将：位置-角度-波長の 3 次元空間における放射光ビームの特性評価に関する研究
- 鎌本春花：多波近似明視野トポグラフィによる SiC 基板の評価
- 福田敬三：ゾーンプレートを用いた X 線タイコグラフィ法の開発
- 水落博之：Na フラックス法 GaN 基板の結晶性評価

## 科学研究費補助金等

- 1 科学研究費補助金（平成 28-30 年度）基盤研究(C) 課題番号 16K05019  
 研究課題 回折限界を超える X 線用回折格子型集光素子の提案とシミュレーションによる原理検証  
 研究代表者 籠島 靖（代表者）
- 2 科学研究費補助金（平成 28-29 年度）若手研究(B) 課題番号 16K21621  
 研究課題 ホログラフィック X 線回折イメージング法による単細胞藻類細胞分裂機構の研究  
 研究代表者 高山裕貴（代表者）
- 3 独立行政法人科学技術振興機構 (JST) 戦略的創造研究推進事業 ALCA (先端的低炭素化技術開発) (平成 24 年度～30 年度)  
 研究課題 省エネデバイス用 8 インチ超大口径 GaN ウェハ  
 研究分担者 津坂佳幸
- 4 ひょうご科学技術協会（平成 29 年度）学術研究助成  
 研究課題 材料・細胞試料の階層構造可視化に向けた広視野・高分解能 X 線顕微鏡の開発  
 研究代表者 高山裕貴（代表者）