

## 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 Their Applications to Material and Life Sciences

高野秀和・籠島 靖・津坂佳幸

Takano, H., Kagoshima, Y., Tsusaka, Y.

物質、生体、プラズマあるいは天体における構造や生起する現象を原子レベルで解明するには、軟 X 線から硬 X 線領域での空間的、エネルギー的、時間的に高い分解能による計測が不可欠である。それには高性能の X 線光学素子や光学系の開発が重要である。最近の X 線光学素子や光学系に関する研究の進捗は著しく、10 keV 近傍の X 線領域でサブ-100 nm の空間分解能が容易に得られるようになってきている。

我々のグループも SPring-8 の兵庫県 ID ビームライン(BL24XU)において、タンタル製位相ゾーンプレートを集光素子に用いてサブ-100 nm のマイクロビームの形成に成功しており、このマイクロビームを用いた X 線顕微鏡システムを開発しその高度化と応用研究を進めている。産業応用を主な目的として、生体試料中の極微量元素の定量分析とその空間分布マッピング測定、微小領域の回折実験による半導体素子の歪み解析や高分子材料の結晶構造解析等への応用を展開している。さらに将来 10 nm 以下の空間分解能を実現するために、新しい X 線レンズの開発も進めている。

一方、マイクロイメージング研究についての研究も行っている。従来より進めている結像型 X 線顕微鏡の開発のみならず、時間分解能向上へのアプローチも行っている。高速 CMOS センサーを利用したミリ秒オーダーでの X 線画像システムを開発し、これを応用したサブ秒オーダーでの X 線マイクロ CT や、物体内部のダイナミクスをリアルタイムで捉える 4 次元 CT を実現している。

## 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・高野秀和・籠島 靖

Tsusaka, Y., Takano, H., Kagoshima, 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クングカーブ測定、逆格子空間マップ測定にも成功している。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 MOCVD を用いた半導体低次元構造の成長機構に関する研究

#### Studies of Growth Mechanism of MOCVD Film

籠島 靖・津坂佳幸・高野秀和

Kagoshima, Y., Tsusaka, Y. Takano, H.

近年ナノテクノロジーの進展に伴い種々のナノ構造材料の研究が進められておりボトムアップアプローチによる一次元半導体ナノワイヤーもその一つとして注目されている。これらのナノワイヤーは一次元性の量子閉じ込め効果を発現することから将来の量子コンピューター・量子通信用単光子素子としての期待も大きい。半導体ナノワイヤーは通常金属微粒子を触媒粒子として用いた VLS(Vapor-Liquid-Solid)により作製されることが多いが、成長が主として気相中で行われることもあり、その詳細は明確ではなかった。そこで本研究では透過率の高い X 線を用いて、気相成長中におけるナノワイヤーの構造・形状変化を観察することにより、成長機構の原子レベルからの解明を進めるとともにナノワイヤーの品質・制御性向上を図り、未来の量子デバイスの実現に貢献する。このため SPring-8 兵庫県ビームライン(BL24XU)に設置した MOCVD 成長可能な斜入射 X 線回折装置を用い、InP 系ナノワイヤーの作製および放射光を用いたナノワイヤーの成長中リアルタイム観察を試みている。現在までに我々は InP 基板上において InP および GaP ナノワイヤーのエピタキシャル成長に成功しており、また X 線小角散乱を用い成長中の触媒粒子の形状変化を観察した。さらに成長雰囲気での X 線回折測定によりしばしばナノワイヤーに発生する内部歪みが成長後の酸化膜形成過程によって生じている可能性が高いことを明らかにした。

※この研究は兵庫県立大学と NTT 物性科学基礎研究所との共同研究である。

## IV 兵庫県放射光研究施設の管理・運営

### Management of the Hyogo Prefectural Beamline in SPring-8

籠島 靖・津坂佳幸・高野秀和

Kagoshima, Y., Tsusaka, Y. Takano, H.

兵庫県は、第3世代大型放射光源 SPring-8 に硬 X 線アンジュレータ型挿入光源のビームライン(兵庫県 ID ビームライン; BL24XU) を設置した。これは、SPring-8 で得られる高輝度 X 線を用いて初めて達成できる高輝度マイクロビームに関する装置技術の開発研究を中心に据え、放射光関連の新産業の創造や革新的な医療技術の開発と、高輝度放射光利用研究の産業界への普及を図ることを目的としている。また、SPring-8 の特色を生かした研究課題を材料とバイオ・メディカル分野から選択して、産学官の研究者・技術者の参画を得たプロジェクト研究を実施し、放射光研究者・技術者層の拡大も目指している。本講座は、兵庫県ビームラインの管理運営を兵庫県ナノテク研究所と協力して行っている。

#### 発表論文 List of Publications

- I-1 H. Takano, T. Tsuji, T. Hashimoto, T. Koyama, Y. Tsusaka and Y. Kagoshima, Sub-15 nm hard X-ray focusing with a new total reflection zone plate, *Appl. Phys. Express* **3** (2010) 076702.
- I-2 H. Takano, T. Hashimoto, T. Tsuji, T. Koyama, Y. Tsusaka and Y. Kagoshima, A simple hard X-ray “nanoslit” for measuring wavefront intensity, *Rev. Sci. Instrum.* **81** (2010) 073702.
- I-3 H. Takano, T. Tsuji and Y. Kagoshima, Reply to Comment on “Sub-15 nm hard X-ray focusing with a new total-reflection zone plate”, *Appl. Phys. Express* **4** (2011) 019102.
- I-4 Y. Kagoshima, H. Takano, T. Koyama, Y. Tsusaka, A. Saikubo, Tandem-phase zone-plate optics for high-energy X-ray focusing, *Jpn. J. Appl. Phys.* **50** (2011) 022503.
- I-5 T. Koyama, H. Takenaka, S. Ichimaru, T. Ohchi, T. Tsuji, H. Takano, Y. Kagoshima, Development of multilayer Laue lenses; (1) linear type, in XRM2010, 10th International Conference on X-ray Microscopy, August 15 - 20, 2010, Chicago, USA.
- I-6 T. Koyama, T. Tsuji, H. Takano, Y. Kagoshima S. Ichimaru, T. Ohchi and H. Takenaka, Development of multilayer Laue lenses; (2) circular type, in XRM2010, 10th International Conference on X-ray Microscopy, August 15 - 20, 2010, Chicago, USA.
- I-7 T. Tsuji, H. Takano, T. Hashimoto, S. Konishi, M. Morikawa, T. Koyama, Y. Tsusaka, Y. Kagoshima, Development of a reflection zone plate for hard X-ray nanofocusing, in XRM2010, 10th International Conference on X-ray Microscopy, August 15 - 20, 2010, Chicago, USA.
- I-8 H. Takano, Y. Nakayama, T. Hashimoto, T. Tsuji, T. Koyama, Y. Tsusaka, Y. Kagoshima, New nanoscale imaging with a simple hard X-ray “nano-slit”, in XRM2010, 10th International Conference on X-ray Microscopy, August 15 - 20, 2010, Chicago, USA.

- I-9 T. Koyama, T. Tsuji, S. Konishi, H. Takano, Y. Kagoshima S. Ichimaru, T. Ohchi and H. Takenaka, Development of linear and circular multilayer Laue lenses, in The 6th International Workshop on Nano-scale Spectroscopy and Nanotechnology, October 25 - 29, 2010, Kobe, Japan.
- I-10 佐野則道・竹田晋吾・松井純爾・高野秀和・竈島 靖：「SPring-8 を利用した毛髪内部の構造変化測定」、光学 **39** (2010, No. 11) pp. 550-552.
- I-11 高野秀和：「X線ナノ集光の現状と展望」、X線分析の進歩 **42** (X線工業分析 45集)、pp. 83-94、日本分析化学会・X線分析研究懇談会編、アグネ出版 (2011).
- I-12 小西繁輝・小山貴久・辻 卓也・森川美穂・高野秀和・津坂佳幸・竈島 靖・市丸 智・大知渉之・竹中久貴：「X線円形多層膜ラウエレンズの集光特性評価」、2010年秋季第71回応用物理学関係連合講演会、2010年9月長崎大学
- I-13 森川美穂・小西繁輝・高野秀和・津坂佳幸・竈島 靖：「高速X線マイクロCT光学系の高度化」、2010年秋季第71回応用物理学関係連合講演会、2010年9月長崎大学
- I-14 高野秀和・小西繁輝・森川美穂・橋本琢人・辻卓也・小山貴久・津坂佳幸・竈島 靖：「SPring-8 兵庫県ビームラインにおけるマイクロCTおよびナノ集光の現状」、シンポジウム「X線結像光学の最前線」、第46回X線分析討論会、2010年10月広島県情報プラザ.
- I-15 高野秀和・中山裕貴・小西繁輝・森川美穂・橋本琢人・津坂佳幸・竈島 靖：「金属ワイヤーのみで可能な新しいX線ナノイメージング法」、第24回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2011年1月つくば国際会議場.
- I-16 辻 卓也・高野秀和・小山貴久・津坂佳幸・竈島 靖・寺田靖子・宇留賀朋哉・竹内晃久・鈴木芳生：「硬X線用全反射ゾンプレートの開発および集光特性評価」、第24回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2011年1月つくば国際会議場
- I-17 高野秀和・森川美穂・小西繁輝・橋本琢人・津坂佳幸・竈島 靖：「4次元X線マイクロCTの現状」、第24回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2011年1月つくば国際会議場
- II-1 Y. Tsusaka, H. Takano, Y. Kagoshima, J. Matsui, S. Park, Y. Ishikawa and K. Wada, Crystallinity estimation of area selective Ge epitaxial layer grown on Si substrate by means of high-resolution X-ray micro diffraction, in the 7th International Conference on Synchrotron Radiation in Materials Science, July 11-14, Oxford, UK
- II-2 大野知佐・荒井美智子・衣笠陽輝・小西繁輝・森川美穂・津坂佳幸・高野秀和・竈島 靖・竹田晋吾・石田成：「放射光分岐分光用結晶の評価」、第24回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2011年1月つくば国際会議場
- III-1 H. Omi, M. Tateishi, T. Tawara, H. Komatsu, S. Takeda, Y. Tsusaka, Y. Kagoshima and J. Matsui, Abnormal temperature dependence of photoluminescence from erbium silicates on SiO<sub>2</sub>/Si substrates, in E-MRS (European Materials Research Society) 2010 Spring Meeting, June 7-11, 2010, Strasbourg, France

## 大学院物質理学研究科

博士前期課程

大野知佐：放射光分岐用分光器の開発

荒井美智子：X線導波路ラウエレンズの開発研究

衣笠陽揮：フォトニクス用 Si 梁構造の歪み評価

小西繁輝：X線円形多層膜ラウエレンズの集光特性評価に関する研究

森川美穂：高速 X線マイクロ CT 光学系の高度化

## 科学研究費補助金等

科学研究費補助金（平成 21～23 年度）基盤研究(C) 課題番号:21604006

研究課題 放射光 X線用ソフトフォーカシング光学素子の開発

研究代表者 籠島 靖