

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、ゾー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。ホログラフイー技術の援用による高空間分解能化や集光ビームを用いた広視野化を進めている。

X線集光ビームを生成する場合、放射光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。

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、シリコン基板上の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 A. Kobayashi(慶應大), Y. Sekiguchi(慶應大), Y. Takayama, T. Oroguchi(慶應大), K. Shirahama(慶應大), Y. Torizuka(理学相原精機), M. Manoda(理学相原精機), M. Nakasako(慶應大) and M. Yamamoto(理研), TAKASAGO-6 apparatus for cryogenic coherent X-ray diffraction imaging of biological non-crystalline particles using X-ray free electron laser at

- SACLA, Review of Scientific Instruments 87, 053109 (2016) (15 pages). [査読有]
- I-2 H. Kameda(鳥取大), S. Usugi(鳥取大), M. Kobayashi(鳥取大), N. Fukui(鳥取大), S. Lee(鳥取大), K. Hongo(鳥取大), T. Mizobata(鳥取大), Y. Sekiguchi(慶應大), Y. Masaki(慶應大), A. Kobayashi(慶應大), T. Oroguchi(慶應大), M. Nakasako(慶應大), Y. Takayama, M. Yamamoto(理研) and Y. Kawata(鳥取大), Common structural features of toxic intermediates from α -synuclein and GroES fibrillogenesis detected using cryogenic coherent X-ray diffraction imaging, Journal of Biochemistry (Tokyo) 161, 55-65 (2017)
- I-3 Y. Takayama, M. Yamamoto(理研), K. Yonekura(理研), Y. Sekiguchi(慶應大), A. Kobayashi(慶應大), K. Okajima(慶應大), T. Oroguchi(慶應大), M. Nakasako(慶應大), Y. Inui(東京理科大) and S. Matsunaga(東京理科大), Cryogenic coherent diffraction imaging of biological samples with synchrotron and X-ray laser, 13th International Conference on X-ray Microscopy, 18 Aug. 2016, Oxford, UK
- I-4 Y. Kagoshima, K. Sumida, H. Takano, T. Koyama, S. Ichimaru, T. Ohchi, H. Takenaka, Hard X-ray multilayer zone plate with 25-nm outermost zone width, 13th International Conference on X-ray Microscopy, 18 Aug. 2016, Oxford, UK
- I-5 高山裕貴：「X線レーザーと放射光による細胞内空間階層構造のイメージング研究」、多重極限物質科学研究センター・高度産業科学技術研究所合同研究会、2016年12月、兵庫県立先端科学技術支援センター
- I-6 高山裕貴、山本雅貴(理研)、米倉功治(理研)、小林周(慶應大)、関口優希(慶應大)、岡島公司(慶應大)、荳口友隆(慶應大)、中迫雅由(慶應大)、乾弥生(東京理科大)、松永幸大(東京理科大)：「XFELによる細胞の構造解析に向けたホログラフィック X線回折イメージング法の開発」、第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2017年1月、神戸芸術センター
- I-7 香川咲貴、宮川天将、竹田晋吾、籠島 靖：「デュモンド図形測定による放射光ビームの特性評価」、第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2017年1月、神戸芸術センター
- I-8 高山裕貴、高見侑希、宮川天将、籠島靖：「SPring-8兵庫県ビームライン BL24XUにおけるコヒーレント X線回折イメージング法の開発」、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年3月、パシフィコ横浜
- II-1 津坂佳幸、鶴丸哲也、竹田晋吾、松井純爾：「同時回折条件近傍での明視野トポグラフィ」、X線トポグラフィ研究会、2016年8月、大阪大学吹田キャンパス
- II-2 松井純爾、津坂佳幸、鶴丸哲也、阿部孝夫：「長時間成長停止した CZ Si 結晶 (III) - 転位群の SR トポグラフィ -」、第77回応用物理学会秋季学術講演会、2016年9月、朱鷺メッセ (新潟市)
- II-3 津坂佳幸、鶴丸哲也、松井純爾：「転位バーガースベクトル決定のための等価な面からの同時回折による放射光 X線トポグラフィ」、第77回応用物理学会秋季学術講演会、2016年9月、朱鷺メッセ (新潟市)
- 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：「表面直入射配置における明視野同時回折 X線トポグラフィ」、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年3月、パ

大学院物質理学研究科

博士前期課程

香川咲貴： デュモンド図形測定による放射光ビームの特性評価に関する研究

鶴丸哲也： Si 中ミスフィット転位のバーガスベクトル決定に有効な多波回折明視野
X線トポグラフィ

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

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 ウエハ

研究分担者 津坂佳幸