

## 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。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 線幅を十分分解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、シリコン基板上の酸化膜境界付近や多波長発光素子などのロックインカーブ測定、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。

## 発表論文 List of Publications

- I-1 Y. Kagoshima · Y. Takayama : Inverse-phase composite zone plate providing deeper focus than the normal diffraction-limited depth of X-ray microbeams, *J. Synchrotron Rad.* **26**, 52-58 (2019)
- I-2 A. Mineshigea · H. Hayakawaa · T. Nishimotoa · A. Heguria · T. Yazawaa · Y. Takayama · Y. Kagoshima · H. Takano · S. Takeda · J. Matsui : Preparation of lanthanum silicate electrolyte with high conductivity and high chemical stability, *Solid State Ionics* **319**, 223–227 (2018)
- I-3 A. Kobayashi (理研) · Y. Takayama · K. Okajima (慶応大) · M. Oide (慶応大) · T. Yamamoto (慶応大) · Y. Sekiguchi (慶応大) · T. Oroguchi (慶応大) · M. Nakasako (慶応大) · Y. Kohmura (理研) · M. Yamamoto (理研) · T. Hoshi · Y. Torizuka : Diffraction apparatus and procedure in tomography X-ray diffraction imaging for biological cells at cryogenic temperature using synchrotron X-ray radiation, *J. Synchrotron Rad.* **25**, 1803-1818 (2018)
- I-4 Y. Takayama · Y. Takami · K. Fukuda · T. Miyagawa · Y. Kagoshima : Atmospheric coherent X-ray diffraction imaging for in situ structural analysis at SPring-8 Hyogo beamline BL24XU, *J. Synchrotron Rad.* **25**, 1229-1237 (2018)
- I-5 Y. Kagoshima · Y. Takayama : Inverse-phase composite zone plate providing deeper focus than the normal diffraction-limited depth of X-ray microbeams, *J. Synchrotron Rad.* **26**, 52-58 (2019)
- I-6 Y. Kagoshima · Y. Takayama : Proposal for inverse-phase composite zone plate for deeper depth of focus, *Microscopy and Microanalysis* **24**, Supplement S2, 280-281 (2018)
- I-7 A. Kobayashi (理研) · Y. Takayama · T. Oroguchi (慶応大) · K. Okajima (慶応大) · M. Oide (慶応大) · M. Yamamoto (理研) · M. Nakasako (慶応大) : Cryogenic coherent X-ray diffraction imaging techniques for structural analyses of biological cells and cellular organelles, *Microscopy and Microanalysis* **24**, Supplement S2, 14-15 (2018)

- I-8 中迫雅由 (慶應大)・高山裕貴・小林周 (慶應大)・山本隆寛 (慶應大)・大出真央 (慶應大)・岡島公司 (慶應大)・荳口友隆 (慶應大)・山本雅貴 (理研) : 生物細胞の低温 X 線回折イメージング, 放射光 **31**, 189-201 (2018)
- I-9 Y. Kagoshima・Y. Takayama : Proposal for inverse-phase composite zone plate for deeper depth of focus, in XRM2018, 14th International Conference on X-Ray Microscopy, August 19-24, 2018, Saskatchewan, Canada
- I-10 A. Kobayashi (理研)・Y. Takayama・T. Oroguchi (慶応大)・K. Okajima (慶応大)・M. Oide (慶応大)・M. Yamamoto (理研)・M. Nakasako (慶応大) : Cryogenic coherent X-ray diffraction imaging techniques for structural analyses of biological cells and cellular organelles, in XRM2018, 14th International Conference on X-Ray Microscopy, August 19-24, 2018, Saskatchewan, Canada
- I-11 籠島 靖・高山 裕貴 : ディープフォーカスゾーンプレートの提案 (2), 第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2019 年 1 月福岡国際会議場
- I-12 高山裕貴・小林周 (理研)・大出真央 (慶応大)・山本隆寛 (慶応大)・溝口陽太 (慶応大)・岡島公司 (慶応大)・荳口友隆 (慶応大)・山本雅貴 (理研)・中迫雅由 (慶応大)・米倉功治 : XFEL 回折イメージングの空間分解能向上に向けた金ピラーパターンニング試料基板の開発, 第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2019 年 1 月福岡国際会議場
- I-13 中迫雅由 (慶応大)・山本隆寛 (慶応大)・小林周 (理研)・大出真央 (慶応大)・岡島公司 (慶応大)・溝口陽太 (慶応大)・高山裕貴・荳口友隆 (慶応大)・山本雅貴 (理研) : 酵母核内核酸分布の多様性と普遍性 XFEL-低温 X 線回折イメージングによる構造解析, 第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2019 年 1 月福岡国際会議場
- I-14 朝倉健太 (慶応大)・小林周 (理研)・高山裕貴・大出真央 (慶応大)・岡島公司 (慶応大)・山本隆寛 (慶応大)・溝口陽太 (慶応大)・大野哲 (慶応大)・荳口友隆 (慶応大)・香村芳樹 (理研)・山本雅貴 (理研)・中迫雅由 (慶応大) : 低温 X 線回折イメージング・トモグラフィによる酵母細胞の三次元構造解析, 第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2019 年 1 月福岡国際会議場
- I-15 小林周 (理研)・高山裕貴・山本隆寛 (慶応大)・朝倉健太 (慶応大)・大出真央 (慶応大)・大野哲 (慶応大)・溝口陽太 (慶応大)・岡島公司 (慶応大)・荳口友隆 (慶応大)・香村芳樹 (理研)・山本雅貴 (理研)・中迫雅由 (慶応大) : 細胞の低温コヒーレント X 回折イメージングトモグラフィ実験における計測手法の高度化, 第 32 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2019 年 1 月福岡国際会議場
- I-16 百相瑞木・嶺重温・早川光・矢澤哲夫・籠島 靖・高山裕貴・松井純爾・吉岡秀樹 : ランタンシリケートセラミックスにおける伝導特性の支配因子, 公益社団法人日本セラミックス協会第 31 回秋季シンポジウム、名古屋工業大学、2018 年 9 月 5-7 日
- I-17 高山裕貴 : 放射光と X 線自由電子レーザーによる X 線ナノイメージング, 株式会社日産アーク 第 4 回放射光利用セミナー、品川、2018 年 8 月 31 日
- II-1 I. Kamata (電力中央研究所)・Y. Tsusaka・R. Tanuma (電力中央研究所)・J. Matsui : X-ray topographical analysis of 4H-SiC epitaxial layers using a forward-transmitted beam under a multiple-beam diffraction condition, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 090314 (2018)
- II-2 Y. Tsusaka・H. Mizuochi・M. Imanishi (大阪大)・M. Imade (大阪大)・Y. Mori (大阪大)・J. Matsui : Identification of dislocation characteristics in Na-flux-grown GaN substrates

using brightfield X-ray topography under multiplediffraction conditions, *J. Appl. Phys.* **125** 125105 (2019)

- II-3 津坂佳幸・水落博之・鶴丸哲也・松井純爾・今西正幸（大阪大）・今出完（大阪大）・森勇介（大阪大）：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, X 線トポグラフィ研究会、2018 年 8 月大阪大学
- II-4 鎌本春花・藤田優・水落博之・津坂佳幸・松井純爾：多波回折明視野 X 線トポグラフィによる SiC 単結晶基板中転位の同定, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、2018 年 9 月名古屋国際会議場
- II-5 水落博之・津坂佳幸・松井純爾・今西正幸（大阪大）・森勇介（大阪大）：単点 Na フラックス法 GaN 基板中転位, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、2018 年 9 月名古屋国際会議場
- II-6 藤田優・鎌本春花・水落博之・堀川智之（グローバルウェーブ・ジャパン株式会社）・津坂佳幸・松井純爾：スーパーボルマン効果を利用した CZ-シリコンネッキング部の転位観察, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会、2019 年 3 月東京工業大学

## 大学院物質理学研究科

### 博士前期課程

- 鎌本春花：多波回折明視野 X 線トポグラフィによる SiC 単結晶基板中転位の同定  
福田敬三：縮小結像照明を用いた X 線タイコグラフィの開発  
水落博之：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  
青井雄幹：X 線ナノ計算機トモグラフィに関する研究  
赤田 樹：アンジュレータ放射光のビームエミッタンスの ID ギャップ依存性に関する研究  
藤田 優：スーパーボルマン効果を利用した CZ-シリコンネッキング部の転位観察  
山本知樹：雰囲気制御型硬 X 線光電子分光装置による Al 腐食データにおける重回帰分析手法の開発

## 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
- 2 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 24-30 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
- 3 兵庫県「農」イノベーションひょうご研究開発プロジェクト支援事業「実用化研究枠」（平成 30 年度）  
研究課題 有機栽培ケールの構造・栄養学的観点による相関解析に基づいた機能性野菜チップスの開発

プロジェクトリーダー 高山裕貴

4 兵庫県最先端技術研究事業(COE プログラム)「可能性調査研究」(平成 30 年度)

研究課題 栄養学的・構造学的評価による高たんぱく・高栄養の新規スマイルケア食品の開発

研究分担者 高山裕貴