

## 大気中微量有害金属化学種のマルチスケール解析

姜 明玉・宇都宮 聡 (九大院・理・化学)

汚染大気微粒子中に存在する微量有害金属のサイズ分布、化学状態は、生体への影響を推定する上で不可欠な情報である。本研究は、シンクロトロン放射光X線吸収端分析 (XANES)、粉末X線回折 (XRD)、走査型電子顕微鏡 (SEM)、透過電子顕微鏡 (TEM) まで、バルクからナノのマルチスケール解析法を確立し、有害元素化学種のより正確な情報を得ることを目的とした。その解析法を米国標準物質研究所 (NIST) の標準大気試料 (石炭灰標準、市街地標準大気、室内標準大気) に適用した。

XANESによる化学種同定はPb, Mn, Crを対象として、それぞれの元素に対して、数種類の異なる純化合物のスペクトルを測定して、結合状態によってXANESの形状に変化が現れることを確認した。

実際のサンプルにおいて、Pbは二価で、屋内標準大気中で硫化物として、市街地標準大気中では硫酸塩として存在することがわかったが、SEM、TEMによる分析からは、市街標準においてPbはより細粒のナノ粒子として大量に存在する一方、屋内標準では比較的粗粒の粒子として存在した。Mnはどの標準試料においても二価で、硫化物が主な化学種であることが示唆された。Crはクロマイトという鉱物が主に存在することが示唆された。

本研究ではマルチスケール解析の確立とその適用に成功し、有害金属粒子がナノスケールで多く存在することも明らかにした。これらの粒子は、その微細なサイズのため、潜在的に呼吸器官深部に侵入する可能性があることが示唆される。

# Multiscale Analysis on Speciation of Toxic Metals in Atmospheric Particulates



Mingyu Jiang<sup>1</sup>, Keld A. Jensen<sup>2</sup>, Satoshi Utsunomiya<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Department of Chemistry, Kyushu University, Fukuoka, 810-8560, Japan (utu@chem.rc.kyushu-u.ac.jp)

<sup>2</sup>National Institute of Occupational Health, Lersø Parkallé 105, DK-2100 Copenhagen, Denmark

## Introduction

Atmospheric pollution caused by fine fraction of particulate matter (PM) is of great concern in many countries at the present, which includes the influence on climate and visibility and the adverse health effects.

The adverse health effects of toxic heavy metals, such as Pb, Mn, Cr, Ni, As, and Cd, in atmospheric particulates have also been an critical concern, and thus it is important to investigate concentrations, occurrence, and the speciation of those elements. Up until now, there are a large number of previous studies reporting distribution of toxic metals in local and/or global atmosphere and a variety of techniques, bulk analytical technique and individual particle analysis, have been employed for the analysis.

## Aim

To develop a systematic multi-scale (nano to bulk) analysis of the speciation of toxic heavy metals in three NIST standards: urban dust (SRM 1649a), indoor dust (SRM2584) and coal fly ash (SRM1633b), respectively.

To apply the method to analyze actual samples, steel company samples and Fukuoka samples.

To assess the threat to human health and source identification of fine particles according to the investigations of speciation of toxic heavy metals.

## Methods

A systematic multi-scale analytical method from bulk-scale to nano-scale.

- XRD, to identify the main crystalline phases of the samples. Rigaku D-MAXUA X-ray diffractometry with Cu-K $\alpha$  radiation source ( $\lambda=1.5406\text{\AA}$ )
- XANES, to determine oxidation state of element and the speciation of toxic heavy metals. Saga Synchrotron Light Source in Japan with fluorescence geometry mode using a germanium (Ge) detector.
- SEM/TEM, to detect the distribution of toxic metals from micro-scale to nano-scale. SEM Shimadzu, SS-550 Operation Manual. TEM FEI TECNAI-F20, EDX detector and a high-angle annular dark field (HAADF) detector with TDS scattering.

## Results and Discussion

### 1. NIST standards

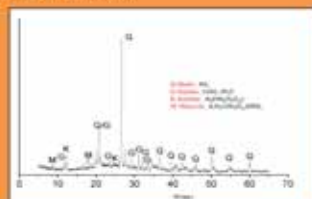


Fig. 1 Characteristic X-ray diffraction patterns of the SRM1649a

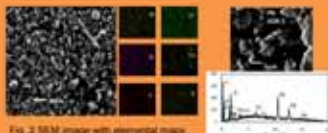


Fig. 2 SEM image with elemental maps and edx spectrum of SRM1649a

Based on the XRD patterns(Fig. 1), it shows the main phases in urban dust (SRM1649a) which were consistent with SEM image with elemental maps(Fig. 2). From the SEM image with edx spectrum it also shows the micro-scale Pb particle in urban dust.



Fig. 3 HAADF-STEM image of heavy metals particles with elemental maps in SRM1649a

From the HAADF-STEM data, bright particles are heavy metals. Many ultrafine Pb particles (dozens of nm) were determined (Fig. 3). We also found some spherical Fe-particles which could come from combustion(Fig.4).

Compared with urban dust(SRM1649a), indoor dust(SRM2584) and coal fly ash(SRM1633b) were also analyzed using the same method. For the indoor dust, some toxic metals of Pb, Cr and Mn were also detected. But it rarelyly contains large Pb-particle which could come from interior decoration materials. For coal fly ash, many spherical Fe-particles and some Cr, Ti-particles were determined using SEM and TEM techniques.

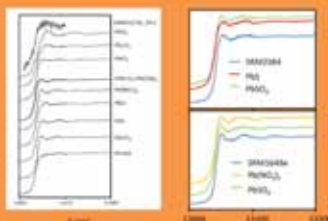


Fig. 5 Pb L-edge XANES spectra of lead standards and SRM1649a, SRM2584, SRM1633b

Combined with the standards spectra(Fig. 5), the speciation of Pb in the urban dust(SRM1649a), indoor dust(SRM2584) and coal fly ash(SRM1633b) were PbS, PbSO<sub>4</sub> and a mixture of Pb oxide respectively.

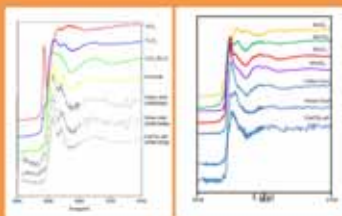


Fig. 6 Cr K-edge XANES spectra and Mn K-edge spectra of SRM1649a, SRM2584 and SRM1633b

Based on the Fig. 6, it shows that the speciation of Cr in these three standards were chromite both in urban dust and coal fly ash, a mixture of chromite and Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in indoor dust. The speciation of Mn were MnSO<sub>4</sub> both in urban dust and coal fly ash. For indoor dust, it seemed like a mixture of MnCO<sub>3</sub> and Mn-chromite based on TEM data(not shown here).

### 2. Steel company samples (industry dust)

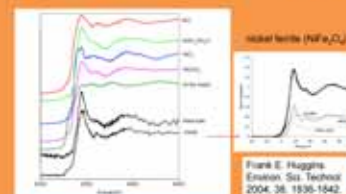


Fig. 7 Ni K-edge XANES spectra of steel company samples in different positions, west side and inside of the company

Fig. 7 shows the speciation of Ni sample in west side of the company was Ni-sulfate. For the inside sample, it was suggested to be Ni ferrite as Huggins, F. E. et al had reported.

### 3. Fukuoka samples (urban dust)

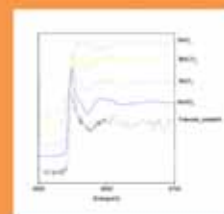


Fig. 8 Mn K-edge XANES spectra of Fukuoka urban dust for total particles

Based on the XANES data, the speciation of Mn in Fukuoka urban dust was Mn-sulfate. The speciation of Cr and Pb were also analyzed by XANES technique. As the absorption intensity were too low to detect, the concentrations of Cr and Pb could be lower than 100ppm in these samples.

## Conclusion

- The systematic multi-scale (nano to bulk) analytical techniques have successfully applied to investigate the speciation of Pb, Mn and Cr in NIST SRMs and actual samples.
- Comparison of the data from urban dust and indoor dust suggests that the source of fine particles are different.
- Most of the toxic metals associate with fine fraction at the nanometer scale in both SRMs, indicating that these toxic metals can penetrate into the deeper part of the respiratory system.
- The speciation of toxic metals in atmospheric particulates were different with different samples. So they had different toxicity and effects on human health as different speciation.
- In addition, the nanometer-sized phases (~10 nm) of toxic metal may have different thermodynamic property from that in bulk, resulting in significant under estimation of bioavailability.

## Acknowledgements

This project was financially supported by the Steel Industry Foundation for the Advancement of Environmental Protection Technology. We are also thankful to staffs of Saga Synchrotron Light Source for their technical support.

## Extreme Ultraviolet露光機多層膜ミラーの耐酸化性評価

松成秀一、角谷幸信、青木貴史、河田真太郎、村上勝彦  
株ニコン 精機カンパニー

次世代半導体露光装置として Extreme Ultraviolet 光 (EUV,  $\lambda=13.5\text{nm}$ ) を用いた EUV 露光装置開発は実験機から量産用露光機へと進んでいる。露光光学系としては従来のような透過光学系は使用できないため、EUV 光を反射する多層膜(Si/Mo 多層膜) を用いた反射光学系が採用されている。

EUV 露光装置は露光波長が短波長であるため、高解像度が期待できることが最大のメリットである一方、光子エネルギーが高いため、EUV 光と装置の残留ガスである水分子とが光化学反応を起こし、多層膜表面を酸化させ、ミラーの反射率を低下させる問題がある。

ミラーの耐酸化性を向上させるためにミラー多層膜上に保護層 (capping 層、約 2nm) が付けられているが、保護層により耐酸化性に差が出てくるため、保護層の選定が重要となる。

14種の保護層付きミラーサンプルの耐酸化性を評価した(酸化物保護層1.7nm厚:  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Mn}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{RuO}_2$ ,  $\text{Rh}_2\text{O}_3$ ,  $\text{PdO}$ ,  $\text{SnO}_2$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{WO}_3$ )。評価 (EUV光照射) はNTT Super ALIS, New SUBARU BL9, SAGA-LS BL18にて行われた。各サンプルを真空中 (水蒸気圧 $1\times 10^{-4}\text{Pa}\sim 9\times 10^{-4}\text{Pa}$ ) に置き、EUV光照射 ( $150\sim 1600\text{J}/\text{mm}^2$ ) によるミラー反射率変化 (酸化の影響) を評価した。

サンプル中では $\text{TiO}_2$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{CeO}_2$ 保護層ミラーは反射率低下が小さく、下層のSi層の酸化も抑制されていた。これら酸化膜の金属イオンはほぼ同じイオン半径を持ち、緻密な構造に成っていると考えられる。保護層膜の局所構造解析を実施 (SPring-8にて)、例えば $\text{RuO}_2$ 層はアモルファス状態で八面体6配位の密な構造を持ち、アモルファスであるため第二近接以降の秩序が失われ、第一近接のRu-O 距離は短くなることが明らかになった。種々の保護膜について局所構造解析を進める予定である。

昨年、露光機光学系評価のためにSAGA-LSのBL18を立上げ、運用を開始した。これにより保護層の局所構造と極端紫外線照射による耐酸化性との関係、さらにはEUV露光装置関連の調査も加速できると考えている。



# Extreme Ultraviolet露光機多層膜ミラーの耐酸化性評価

榎ニコン  
松成秀一、角谷幸信、青木貴史、河田真太郎、村上勝彦

九州大学超高温電子顕微鏡室・九州シンクロtron光研究センター合同シンポジウム  
第9回九州シンクロtron光研究センター研究成果報告会(09/03/09)

## 背景

### 実験背景

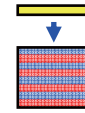
EUV露光装置内の残留H<sub>2</sub>O(水蒸気)による反射光学系ミラーの酸化による反射率の低下が問題となる。

EUV露光装置の多層膜ミラー酸化保護層(capping layer)の耐酸化性及び膜構造を酸化物保護層について評価した。

### 評価サンプル

Capping layer	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Mn <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
ΔReflectance%	-0.3	-0.2	-0.3	-0.7	-0.5	0.1	0.1
Density(g/cm <sup>3</sup> )	2.95	4.25	3.36	5.22	5.03	5.03	4.5
Capping layer	RuO <sub>2</sub>	Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	PdO	SnO <sub>2</sub>	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CeO <sub>2</sub>	WO <sub>3</sub>
ΔReflectance%	0.2	0.1	-0.3	-2.3	-0.5	-0.7	-0.4
Density(g/cm <sup>3</sup> )	7.04	8.02	9.7	7	6.51	7.65	7.3

Δ Reflectance:  
Si/Mo 多層膜 (Γ=0.39, d=7.014nm  
+保護層)の反射率差。  
反射率は計算値(表中の密度を使用)。



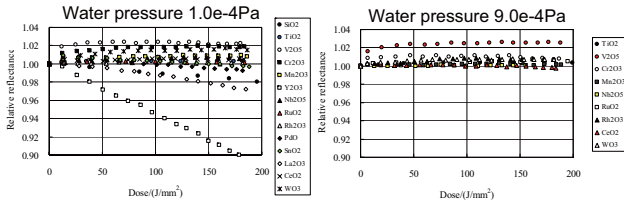
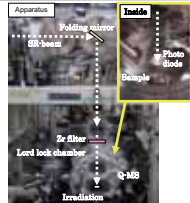
Oxide capping layer 1.7nm with low absorption

Si/Mo multi-layer mirror

第9回九州シンクロtron光研究センター研究成果報告会(09/03/09)

## 耐酸化性一次評価

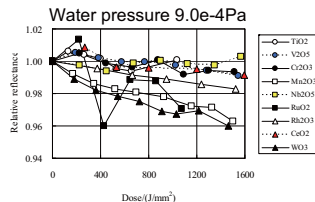
SR-beam: SuperALIS SBL2  
Light intensity: 24mW/mm<sup>2</sup>  
Light dose: 180J/mm<sup>2</sup>  
Background Pressure: 5e-7Pa



第9回九州シンクロtron光研究センター研究成果報告会(09/03/09)

## 耐酸化性二次評価

SR-beam: NewSUBARU BL9 (long undulator)  
Light intensity: 250mW/mm<sup>2</sup>  
Light dose: 1500J/mm<sup>2</sup>  
Background Pressure: 2e-7Pa



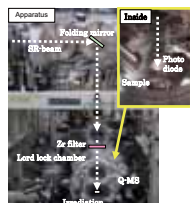
Cap	(ΔR/R) × 10 <sup>2</sup> / (kJ/mm <sup>2</sup> )
1 Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.19 × 10 <sup>2</sup>
2 TiO <sub>2</sub>	0.07 × 10 <sup>2</sup>
3 Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-0.43 × 10 <sup>2</sup>
4 CeO <sub>2</sub>	-0.53 × 10 <sup>2</sup>
5 V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-0.59 × 10 <sup>2</sup>
6 Rh <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-1.12 × 10 <sup>2</sup>
7 Mn <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-2.48 × 10 <sup>2</sup>
8 RuO <sub>2</sub>	-2.67 × 10 <sup>2</sup>
9 WO <sub>3</sub>	-2.73 × 10 <sup>2</sup>
10 Ru	-3.25 × 10 <sup>2</sup>

Reference

第9回九州シンクロtron光研究センター研究成果報告会(09/03/09)

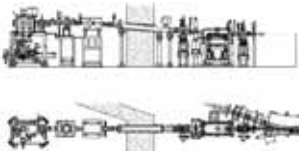
## SAGA Light Source

SR-beam: SAGA-LS BL18  
Light intensity: 70mW/mm<sup>2</sup>  
Light dose: 1500J/mm<sup>2</sup>  
Background Pressure: 5e-7Pa



SuperALISより移設

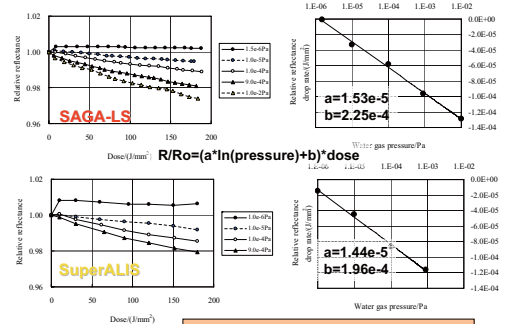
BL18: 2008年専用BLとして運用開始。



第9回九州シンクロtron光研究センター研究成果報告会(09/03/09)

## データ比較

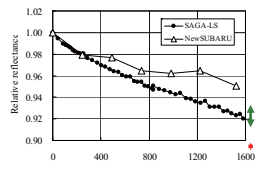
### 反射率変化(照度及び水蒸気圧依存性)(Ru-cap)



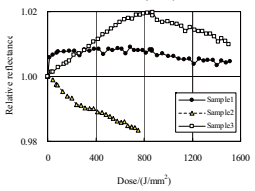
SR光依存性はない。照射データは一致

第9回九州シンクロtron光研究センター研究成果報告会(09/03/09)

## 耐酸化性三次評価

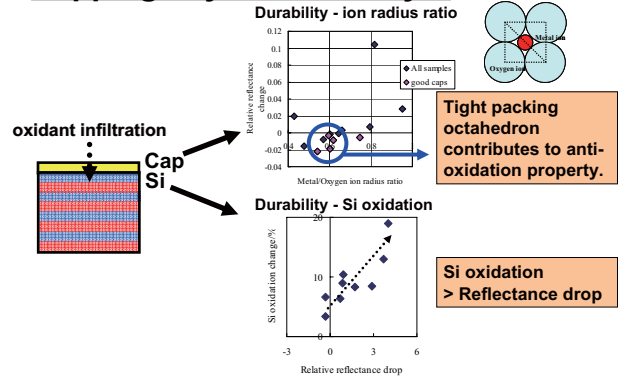


SAGA-LSにて長時間照射による耐酸化性評価が可能になった。  
⇒データの信頼性が向上。



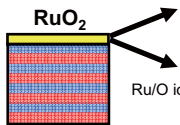
次世代EUV露光装置(ミラー)の耐酸化性が今後の評価対象となる。  
⇒多層膜保護層の適正化。

## Capping Layer and Si Layer



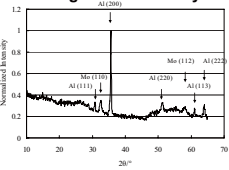
## RuO<sub>2</sub> Layer 構造

Measurement:  
Spring-8  
BL46XU, BL18B2



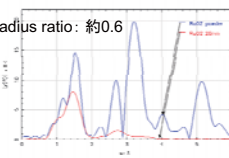
同じ構造を持つ他の保護層に比べ、RuO<sub>2</sub>層の耐酸化性は低かった。他のfactorを考える必要がある。

### Grazing Incidence X-ray Diffraction



No RuO<sub>x</sub> peaks  
**Amorphous**

### Radial Distribution Function from EXAFS



Ru/O ion radius ratio: 約0.6  
**Short range order:  
6 coordination octahedron.**

## まとめ

- > SR光を使い、酸化物EUVミラー保護層の耐酸化性を評価した(EUV照射量150-1600J/mm<sup>2</sup>)。
- > TiO<sub>2</sub>, V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, CoO<sub>2</sub>-保護層が良い耐酸化性を示した。
- > 耐酸化性のよい保護層は八面体の密な構造を持っている。この構造が、酸性物質の拡散防止・耐酸化性改善に寄与していると考えられる。
- > RuO<sub>2</sub> 保護層の局所構造解析を行った。アモルファス状態で八面体6配位の構造をもつが、同構造の他の酸化膜ほど、良い耐酸化性を示さなかった(継続調査中)。
- > SAGA-LSに専用ビーライン(BL18)を新設した。照射実験を開始し、照射結果は他のSRでの結果と一致した。専用BLにより長期間の耐久試験・高精度データの取得が可能となり、量産用EUV露光装置の光学系(ミラー)開発の加速が可能と考えている。

本研究の一部は、極端紫外線(EUV)露光システム開発プロジェクトの一環で極端紫外線露光システム技術開発機構(LEUV)が新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)から委託を受けて、実施したものです。

## 新設軟 X 線ビームライン(BL10)の現状

吉村大介

九州シンクロトロン光研究センター(SAGA-LS)

佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター(SAGA Light Source)では、県有ビームライン整備の第Ⅱ期計画に基づき、可変偏光型アンジュレータを利用する軟 X 線ビームライン(BL10)の建設を進めている。BL10 は、可変偏光アンジュレータからの光を、不等刻線間隔平面回折格子を用いた可変偏角式斜入射分光器によって分光し、30～1200eV のエネルギー範囲での利用するビームラインである。アンジュレータは APPLE-II 型を採用し、4 列からなる磁極列の配置を変更することで水平～楕円、円～垂直といった多様な偏光を持つ光が利用可能である。アンジュレータ磁極列は周期長が 72mm、周期数が 28、最小ギャップ値 30mm である。また、エンドステーションに設置する実験装置としては、光電子顕微鏡(PEEM)、高分解能角度分解光電子分光装置(ARPES)、等を予定している。

平成 18 年度よりビームライン光学系のデザインから開始した本計画は、平成 19 年度に BL 機器の詳細設計及び製作の発注、昨年末までに施設への機器設置及び真空立ち上げが完了し、順調に進捗している。現在は、平成 21 年度半ばのユーザーへの供用開始を目指して、ビームライン及び測定装置の立ち上げ・調整作業を進めている。本発表では、ビームラインの詳細デザインや建設の状況、立ち上げ・調整作業の途中経過について報告する。

九州シンクロトロン光研究センター(SAGA Light Source:SAGA-LS)では、昨年4月から12月にかけて2本の新設ビームラインの建設を行った。ひとつはアンジュレータを光源とする軟X線利用のビームライン(BL10)、もう一つは硬X線利用ビームライン(BL11)である。本報告ではBL10の詳細デザインや建設時の様子に関しての報告を行う。

## ビームライン概要

### ・軟X線利用ビームライン(BL10)

位置系系有ビームライン整備計画に基づき4本目の軟X線BL

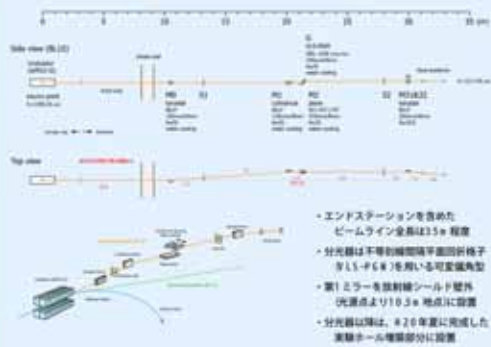
光源：偏光可変型アンジュレータ(APPLE-II型)  
 エネルギー範囲：30~1200eV  
 分光器：偏角可変型-不等間隔平面回折格子(VLS-PGM)  
 分解能：3000~20000  
 フラックス： $10^9 \sim 10^{12}$  photons/sec  
 実験手法：光電子顕微鏡(PeEM)、角度分解光電子分光法(H PES)、等



## 建設スケジュール

- ・2006年～ BL概要デザイン検討開始
- ・2007年 1月：BL検討委員会
- ～3月：概要設計業務委託
- 8月：BL製作図詳細輸入
- ～3月：BL構造図詳細設計及び製作
- ・2008年 4月：BL建設工事開始
- 7月：施設整備機完成
- 10月：アンジュレータ設置
- 12月末：BL建設完了
- ・2009年 1月：BL立ち上げ・調整開始
- 3月：ARPES&PEEM 実験装置設置
- 9月：供用開始予定

## BL光学系デザイン概要



- ・エンドステーションを含めたビームライン全長は35m程度
- ・分光器は不等間隔平面回折格子(VLS-PGM)を用いる可変偏角型
- ・第1ミラーを放射線シールド壁外光源点より10.5m地点に設置
- ・分光器以降は、H20年度に完成した実験ホール増設部分に設置

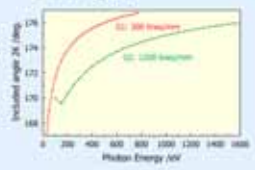
## 分光器パラメーター等

### ・VLS-PGMパラメーター

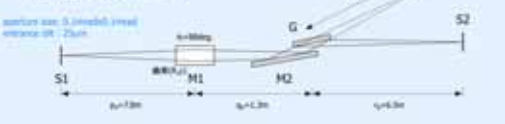
回折角度( $h, k, l$  Plane Angle  $\theta_{hkl}$  [rad])  
 \* 回折格子中心での回折角度  
 \* 回折格子上のC- $h, k, l$ 方向の座標  
 $h, k, l$  (Å) as and  $l$  (Å) as  $l$  (Å) as  $l$  (Å) as

$R_1$ (Radius [m])	0.1	0.2
$R_2$ (Radius [m])	100	1200
$\theta_1$ (deg)	-3.0424E-04	-3.0340E-04
$\theta_2$ (deg)	6.9107E-05	6.9013E-05
$\theta_3$ (deg)	-2.4188E-11	-2.4155E-11
$\theta_4$ (deg)	-6.3310	-6.3307

### ・エネルギーと偏角

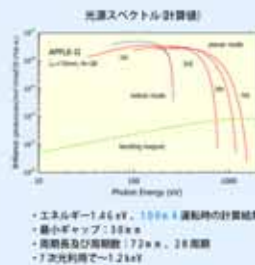


### ・分光器光学系の模式図(側面)

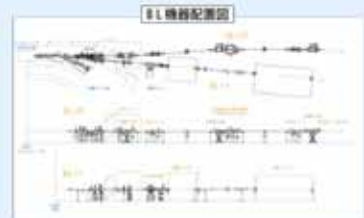


## ビームライン建設の様子

### ・偏光可変型アンジュレータ (APPLE-II)



APPLE-II型アンジュレータ



- ・エネルギー1.46 keV、1000 Å 運転時の計算結果
- ・最小ギャップ：150 mm
- ・周期長及び周期数：172 mm、28 周期
- ・7次光利用で $\sim 1.2$  keV

・4つの磁極の位置を任意に移動させることで、水平、垂直、傾斜、円と様々な偏光を得る

S. Smith, Natl. Inst. Stand. and Metro. in Phys. Res. 13447, 91 (1994)

### ・BL構成機器設置



偏角可変型VLS-PGM



M0ミラーチャンバー



出射スリット及びM3ミラーチャンバー



基幹部機器

### ・各種光学素子の取り付け



M0ミラー



M1ミラー



M3ミラー



平面回折格子



M2と回折格子G



M2&G設置



BL全景

SAGA-LSのBL整備計画に基づき、新規軟X線利用ビームライン(BL10)の建設を行った。建設は予定通りに終了し、H21年の年明けよりBL立ち上げ・調整を開始している状況である。また、実験装置の設置と立ち上げ・調整も順次開始し、H21年秋の一般供用開始を目指す。

## 新 X 線利用ビームライン (BL11) の立上げ状況

岡島敏浩

九州シンクロトロン光研究センター

ビームライン BL11 は平成 20 年度に新たに設置された偏向電磁石を光源とする X 線ビームラインである。本年 3 月より XAFS 測定的一般ユーザーへの供用が開始されている。本ビームラインは BL15 と同様に Si(111) 結晶を用いた 2 結晶分光器を設置し、2.1 から 23keV 程度の X 線を利用することができる。実験ハッチは前後 2 箇所 (第 1 実験ハッチ, 第 2 実験ハッチ) に分離して建設されている。これら実験ハッチの間には集光ミラーを設置する予定で、第 2 実験ハッチにおいては集光した X 線を利用することが可能である。本ビームラインでは主に XAFS や小角散乱等の X 線を利用した汎用的な実験が行えるようになる。また、2 つの実験ハッチの間に設置された真空パスを利用して、カメラ長が 10m 以上の超小角散乱が行えるようになるもの一つの特徴である。

本発表では、ビームラインの性能や今後の整備計画について報告する。



図 BL11 第 1 実験ハッチの様子 (上) と設置された XAFS 測定システム (下)。



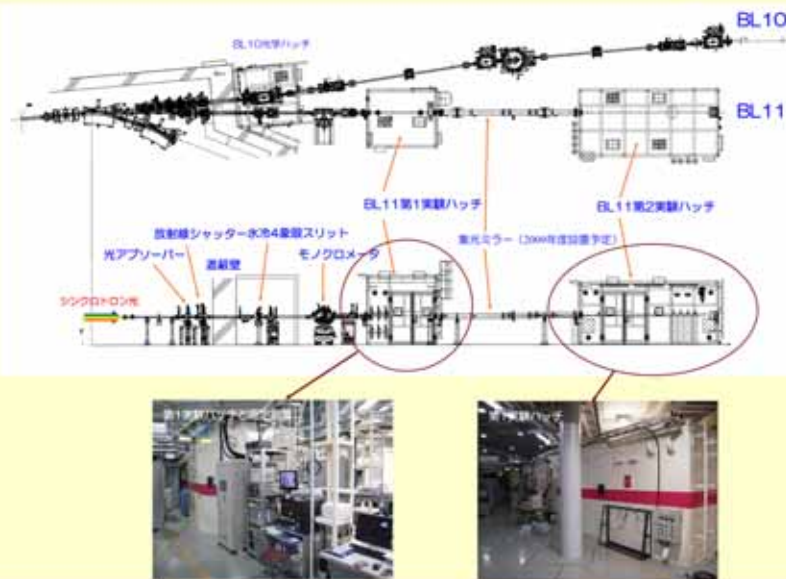
## BL11の概要

- 光源 : 偏向電磁石  
 磁界エネルギー : 1.9 keV  
 水平取り込み角度 : 8 mrad (最大)
- 分光器 : 二結晶分光器  
 第一結晶 : 低温冷却Si (111) 平板結晶  
 第二結晶 : Si (111) 平板結晶
- エネルギー範囲 : 2.1keV ~ 23keV
- 光子数 :  $3 \times 10^9$  photons/sec @ 300mA, 7.2keV  
 (slit size : 5mm X 1mm)
- 主な実験装置 : XAFS (透過法, 蛍光法, 転換電子収集法)  
 蛍光分析  
 小角散乱 (整備中)

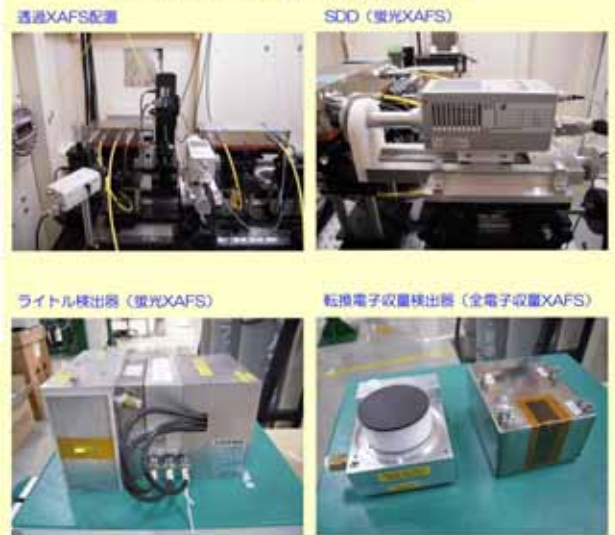
増築後の実験研究棟 1F平面図



佐賀県 唐津市 西土が丘  
 福岡空港→福岡空港→約2h  
 福岡空港→センター→約1h

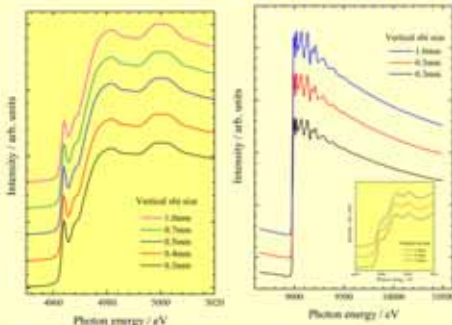


BL11で利用可能なXAFS測定のための検出器



## 水冷スリット縦開口サイズによるスペクトルの変化

Ti Kα吸収線のEXAFSスペクトル Cu Kα吸収線のEXAFSスペクトルとXANESスペクトル



スリットサイズとシンクロトロン光放射角の換算

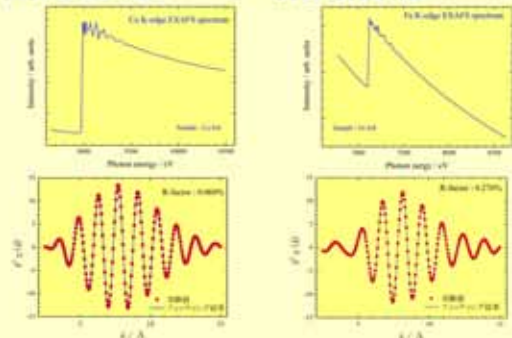
スリットの縦開口幅 / mm	シンクロトロン光の放射角 / mrad
0.3	0.042
0.4	0.056
0.5	0.070
0.7	0.097
1.0	0.14

- Ti Kα吸収線では開口サイズが1.0mmでもフリエジピークが明確に観察されている。
- 開口サイズが1.0mmにおいてCu Kα吸収線ではフリエジピークがショルダーとしてしか観察されない。
- シンクロトロン光のエネルギーが高いと偏向角の広がりが大きく、また、反対にエネルギーが低いと広がりが小さくなるため、光の取り込み角度で同じ向きを比較して、Ti Kα吸収線領域では分解能の劣化があまり起こらず、一方、Cu Kα吸収線領域では、分解能の劣化が大きいと考えられる。

- 測定目的: XANES測定 or EXAFS測定) やエネルギーに応じてスリット幅を変えた運用を計画

## EXAFSスペクトルの解析例

Cu Kα吸収線のEXAFSスペクトル (上図) と Fe Kα吸収線のEXAFSスペクトル (上図) とフィッティング結果 (下図)



前と後のEXAFSスペクトルから得られた各種パラメータ

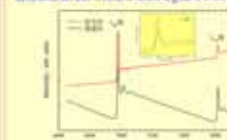
	格子系	数配原子	配位数 (固定)	原子間距離 (Å)	σ <sup>2</sup> (eV)	DW因子 (Å <sup>2</sup> )	MF (Å)
前 (Cu)	fcc	Cu (第一近隣)	12	2.539	10.662	0.09	5.716
後 (Fe)	bcc	Fe (第一近隣)	8	2.473		0.071	
		Fe (第二近隣)	6	2.855	7.173	0.081	3.781

## まとめ

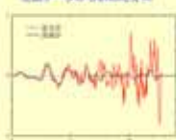
- 供用ビームラインとして4番目のビームラインとなるビームラインBL11は2008年11月に完成した。
- 2009年3月より第1実験ハッチに設置したXAFS測定装置の供用が開始された。
- XAFS測定は、透過法、蛍光法、転換電子収集法での測定が可能である。
- 2009年度中に、BL15からX線小角散乱装置の移設用のステージを移設する。また、第1実験ハッチと第2実験ハッチの間に集光ミラーを設置する予定であり、第2実験ハッチでのX線小角散乱実験の環境を整えていく。

## 測定法の違いによるデータの違い

透過法と蛍光法で測定したCu L<sub>2,3</sub> EXAFSスペクトル



実験データから求めたχ(k)



- 材料 : 自分で実験したCu<sub>2</sub>O粉末
- 検出器 : 透過法 (Cu, L<sub>2,3</sub>)、蛍光法 (Cu, L<sub>2,3</sub>)
- χ(k) (単位: Å<sup>-1</sup>)
- χ(k) (単位: Å<sup>-1</sup>)
- 測定時間 : 透過法 (30分)、蛍光法 (30分)

## 県有ビームライン (BL9, BL12, BL15) の現状

岡島敏浩

九州シンクロトロン光研究センター

3本の県有ビームライン (BL9, BL12, BL15) は、佐賀県の第1期整備計画で整備されたのもで、2006年度の供用開始当初からの運用が行われている。これらのビームラインは全て偏向電磁石を光源としている。BL9はBL9aとBL9bの2本の分岐ビームラインで構成されている。BL9aは分光器は設置されておらず、白色光を利用するビームラインである。シンクロトロン光はクリーンルームに導かれ、白色トポグラフ、照射などの実験が行われている。2008年度の増築完了後にはビームラインの延長が行われ、それに伴い、クリーンルームの移設も行われた。BL9bは10~50eVの真空紫外光を利用することが可能である。BL12は40~1500eV程度の軟X線を利用することの可能なビームラインである。実験装置には光電子分光装置と軟X線吸収分光装置が設置されており、入射光エネルギーを変化させながら光電子スペクトルを測定する深さ方向分析や軟X線吸収スペクトルの偏光角度依存性を測定することにより基板上有機分子の配向測定などを行うことが可能である。BL15は2.1から23keV程度のX線を利用することのできるX線ビームラインである。実験装置は実験ハッチの中に設置されている。本ビームラインでは、XAFS、蛍光分析、粉末X線回折、表面X線回折、X線小角散乱等、X線を利用した様々な実験が行えるようになっている。

本発表では、ビームラインと実験装置の現状、最近の成果、そして今後の整備計画について報告する。

## 今年度の動き

- ◆県有BL関係
  - ◆BL09
    - ◆クリーンルームの移設
    - ◆白色トポグラフィの整備
  - ◆BL12
    - ◆試料準備チャンバーの導入
    - ◆in-situ測定システムの開発・導入（特許申請準備中）
  - ◆BL15
    - ◆DEI測定システムの整備
    - ◆新規県有ビームライン（BL10, BL11）の建設
- ◆専用BL関係
  - ◆浜二コン専用ビームライン（BL18）の建設（2008年8月より稼動中）
  - ◆九州大学専用ビームライン（BL06）の建設開始
- ◆共通設備
  - ◆恒温水設備とガス排気設備の新設



## 増築後の実験研究棟 1F平面図



佐賀県 唐津市 伊佐が丘  
 福岡空港→福岡空港：約2h  
 福岡空港→センター：約1h

## 全ビームラインの概要

ビームライン	光源	単色器	光子エネルギー	実験手法	設置者	状況
BL06	BM	2結晶分光器	2.1keV- 23keV	XAFS, XRD, Imaging	九州大学	建設中/2009
BL07	W	2結晶分光器	検討中	XRD, XAFS, Imaging	佐賀県	設計中/2010
BL09A	BM	なし	白色	LIGA process, Topo	佐賀県	稼動中
BL09B	BM	群母-波長分光器	10 eV - 50 eV	Photo chemistry	佐賀県	稼動中
BL10	U	VLS-PGM <sup>a)</sup>	30 eV - 1200 eV	PEEM, ARLPS	佐賀県	調整中
BL11	BM	2結晶分光器	1.75 keV - 23 keV	XAFS, SAXS, etc.	佐賀県	調整中
BL12	BM	VLS-PGM <sup>b)</sup>	40 eV - 1500 eV	XPS, XAFS, etc.	佐賀県	稼動中
BL13	U	VLS-PGM <sup>b)</sup>	15 eV - 800 eV	ARPES, etc.	佐賀大学	稼動中
BL15	BM	2結晶分光器	2.1keV- 23keV	XAFS, XRD, Imaging	佐賀県	稼動中
BL18	BM	多重膜ミラー	~92eV	EUV露光	浜二コン	稼動中



a) BM：群母線区、U：アンジュレータ、W：ウィング  
 b) VLS-PGM：非共振領域中置型群母線分光器 (Variable-line seeding plane grating monochromator)

## BL09 白色トポグラフィ実験

透過配置で約1000μm径の線維束から、組み立てて検出器に分布している特長分布の検出が行われる。  
 透過配置に入射したX線・反射配置である。マイクロハイパスフィルターからの透過光は検出器に入射し、検出器に分布する。またマイクロハイパスフィルターの透過光も検出される。

透過配置のSGC検出器と1000μm径の線維束

透過配置

反射配置

移動後のBL09A

## BL12

### 軟X線電子分光スペクトル <入射光エネルギー依存性>

SR-PES-SO2-Si(100 wafer)

強度 (Arb. Unit)

Binding Energy (eV)

NEAXFS装置での測定例：偏光依存性

SR-PES Si 2p, Si 2s (High resolution)

強度 (Normalized)

Photon Energy (eV)

材料電圧測定法  
 測定時間：25分/1束

## BL15

### 新しい三次元CT法による<高分子材料>の観察

CCD camera

Sample (rotation system)

X-rays

Analyzer Si 111 or 220 crystal / Asymmetric Si 111 or 220 crystal

様包用ビニール紙 電池スタップル  
 360° DEI像から再構成したCT像の例

（図9から）第22回日本放射光学会年会、放射光応用シンポジウム11P075）

### Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001)基板上に成長した単相β-AlN薄膜の放射光X線回折による評価

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0006) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(00012)

Intensity (arb. unit)

Two Theta (deg.)

放射光X線回折による評価

セファリア基板上からのθ-2θ反射のほかにC4の反射ピークを観察

Zinc (β)型電子束源 7.913Åのβ-ANが生成

（図9から）2008年放射光学会九州支部学術講演会30A-14）

### クロメートめっきのCr-K吸収線XANESスペクトル

Cr K-edge XANES spectra showing intensity vs. photon energy (eV) for various samples.

クロメートめっき

ニクロムめっき

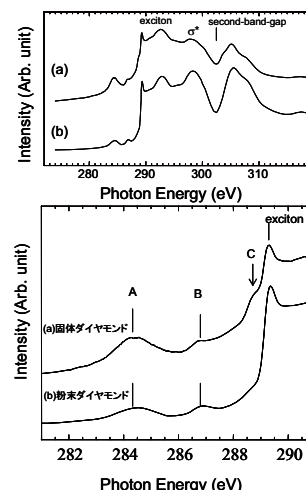
# 軟X線内殻分光法による粉末ダイヤモンド表面の研究

瀬戸山寛之、小林英一、岡島敏浩  
九州シンクロトロン光研究センター (SAGA-LS)

ダイヤモンドは数多くの優れた特質を持つため、様々な分野で利用されている。また、微粒子化により、新規材料やバイオセンサー、薬剤キャリア等への応用を目指した研究も盛んになっている。そのような微粒子化により、表面の性質がますます重要な役割を果たす。本研究では、微粒子の粒径と表面電子状態との関連について着目し、固体および粉末ダイヤモンドに対して吸収端近傍 X 線微細構造 (NEXAFS) 分光測定を行い、炭素 K 殻近傍の空準位状態が異なる事を確認した。

図 1 (上)に、BL12 にて行った炭素 K 殻領域 NEXAFS スペクトルを示す。(a)固体ダイヤモンド(100)および(b)粉末ダイヤモンドの NEXAFS の、どちらにおいても  $C1s \rightarrow \sigma^*$  軌道遷移由来のピーク及びエキシトン由来ピーク (289.2eV)、バンドギャップ (302.5eV) が観測され、これまでの報告例と同様のスペクトル形状であることが確認された。

次に、低エネルギー領域 (図 1 (下)) に着目すると、(a),(b)どちらにも、 $C1s \rightarrow \pi^*$  軌道遷移由来に帰属されるピーク A、B が観測された。一方で、ショルダー C 付近のスペクトルの形状が、結晶と微粒子とでは異なっていることが分かった。今後、微粒子化による電子状態の変化や粒子サイズ依存性に関して、光電子分光測定結果と併せて解析を進めていく予定である。



図(上) (a)固体および(b)粉末ダイヤモンドの NEXAFS スペクトル (炭素 K 殻近傍)。 (下)低エネルギー領域の拡大図。

# 軟X線内殻分光法による粉末ダイヤモンド表面の研究

○瀬戸山 寛之, 小林 英一, 岡島 敏浩

九州シンクロtron光研究センター(SAGA-LS)

※ e-mail: setoyama@saga-ls.jp

Phone: 0942 - 83 - 5017

FAX : 0942 - 83 - 5196

## Abstract

ダイヤモンドは数多くの優れた特質を持つため、様々な分野で利用されている。バンドギャップは室温で5.47eVであり絶縁体だが、不純物を添加することによる不純物半導体化の試みがなされている。例えば、ホウ素添加によりp形、リン添加によりn形が得られるため、デバイスへの応用開発が期待されている。また、ダイヤモンド微粒子には高い表面修飾性があるため、ダイヤモンド表面を利用した新型のDNA、RNAチップおよびプロテイン-マイクロアレイの開発などが行われている。このような微粒子ダイヤモンドを利用した新規材料やバイオセンサー、薬剤キャリア等の性能は、現象が表面で起こるため、その表面の性質がますます重要な役割を果たすことになる。そこで我々は、微粒子の粒径と表面電子状態との関連について興味を持ち、固体および粉末ダイヤモンドに対して軟X線吸収分光(NEXAFS)、X線光電子分光(XPS)を用いて研究を行った。

## 【粉末ダイヤモンドの応用例】

○ダイヤモンド微粒子へのCNT固定  
→発光デバイスへの応用

○ダイヤモンド微粒子へのプローブDNAを固定  
→バイオセンシングの実現

○CVDによるダイヤモンド薄膜成長の核として利用

安定なダイヤモンドの微粒子化により、デバイスやセンサーの安価な機能性材料特性の向上が期待される。

→ 微粒子ダイヤモンド表面の電子状態と粒子径サイズとの関係を明らかにしたい。

## ダイヤモンドの典型的な物性値

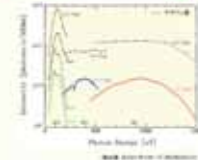
	天然ダイヤモンド	多結晶ダイヤモンド	DLC
密度(g/cm <sup>3</sup> )	3.52	3.52	1.7~1.8
スレープ硬度(kg/mm <sup>2</sup> )	10,000~12,000	8,000~1,000	1,500~3,000
電気抵抗率(Ω・cm)	10 <sup>12</sup> ~10 <sup>16</sup>	10 <sup>10</sup> ~10 <sup>15</sup>	10 <sup>7</sup> ~10 <sup>14</sup>
熱伝導率(W/mK)	22(10)	8~10	0.2
屈折率 n	2.4	2.3~2.4	1.8~2.4
ヤング率 n (×10 <sup>3</sup> kg/mm <sup>2</sup> )	115	115	60
熱化開始温度(°C)	600	600	300~400
耐食性 (フッ酸 濃縮=1:1)	大	大	大

※ 出典: 丸山 隆夫(編)「ダイヤモンド」, 丸山 隆夫(編)「ダイヤモンド」

## Apparatus

### ■ SAGA-LS BL12

- ・軟X線(40~1500eV)
- ・ペンディングビームライン
- ・不導体結晶表面分析器
- ・斜入射型分光器  
(偏角切替式: 174, 172, 167°)
- ・エネルギー分解能(E/ΔE)
- ・~2200@400eV



### ■ NEXAFS測定

- ・超高真空下
- ・試料電流測定法
- ・直入射条件



### ■ 光電子アナライザー

- ・偏向角: 180°
- ・電子軌道中心径: 279.4mm
- ・検出器: MCP(16分割アノード)
- ・アパーチャー: 0.8 mm φ



## Sample

### 【粉末ダイヤモンド】

平均粒径:

- 11.6 μm, 4.9 μm, 2.4 μm, (市販品)
- 500nm, 400nm, 300nm, 200nm, 100nm



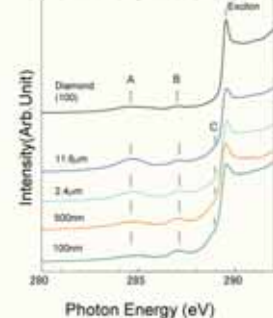
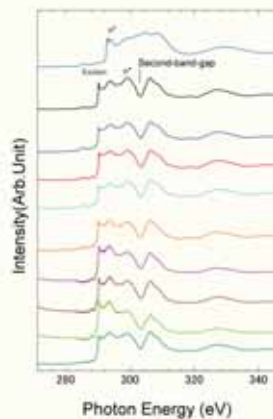
※各種粉末試料は、購入後、特に表面処理等を行わず、インク用シートに圧着させたため、試料ホルダーに固定した。

### 【単結晶ダイヤモンド】

- ・Diamond(100)



## NEXAFS <C K-edge>



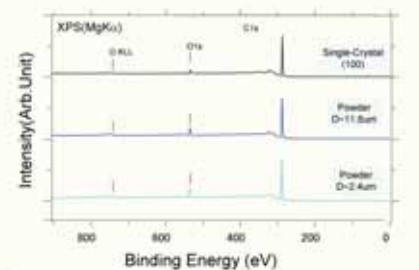
	Peak Position relative to Exiton		
	A	B	C
Single-Crystal	-4.73	-2.45	-
11.6μm	-4.81	-2.44	-0.82
4.9μm	-4.83	-2.45	-0.83
300nm	-4.73	-2.45	-0.83
100nm	-4.72	-2.51	-0.83

- Single-crystal (100)
- Diamond (Powder)
- 11.6μm
- 4.9μm
- 2.4μm
- 500nm
- 400nm
- 300nm
- 200nm
- 100nm

- 従来の測定に、構造A, B, Cが観測された。
- 粒子径が小さくなると、
- ・Aの相対強度は減少
- ・Bの相対強度は増加
- ・Cの相対強度は増加

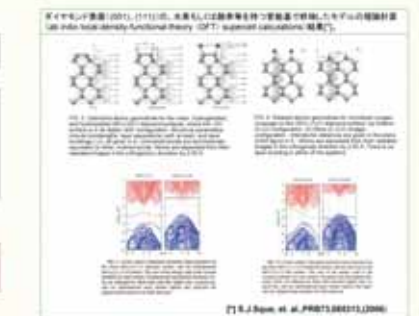
- 一B, Cは表面吸着種である酸素に起因するピークと推測される。

## XPS (Survey, MgKα)



Atom%	酸素	炭素
Single-Crystal	33.4	66.6
Powder(11.6μm)	33.2	66.7
Powder(2.4μm)	33.7	66.3

※ 炭素および酸素のピーク強度比から求めた原子数比。



## ピークの帰属

- A: sp<sup>2</sup>(C=C)
- B: sp<sup>3</sup>(C-H), sp<sup>3</sup>(C-O), sp<sup>3</sup>(C-C)
- C: sp<sup>2</sup>(C=O), sp<sup>3</sup>(C-OH)



表面に吸着していると想定される官能基

## Conclusion

○ 固体および異なる粒子径サイズの粉末ダイヤモンドに対して軟X線吸収分光(NEXAFS)、X線光電子分光(XPS)測定を行った。その結果、粒子径サイズの変化に対応して、(i) XPSにおいて、O1sピーク強度の増加、(ii) NEXAFSにおいてピークA, B, Cの相対強度変化、が観測された。以上のことから、粉末ダイヤモンド表面に吸着する官能基を想定したモデルを検討した。

## Future

- 今後、ナノサイズの粉末ダイヤモンドに対しても光電子分光測定を行い、電子状態と粒子径との相関を明らかにする。
- 測定上の問題であるが、チャージアップに対する中和条件の最適化を図る。
- 昇温脱離法測定を用いた表面吸着種の観測を試みたい。

## References

### 【\*】NEXAFSの帰属

- ・J.F.Morar, et al., Phys. Rev. Lett. 54, 1960 (1985)
- ・F. Settle, et al., J.Chem. Phys. 81, 4906 (1984).
- ・D. A. Outka et al., J. Chem. Phys. 88, 3539 (1988).
- ・O. Dhez, et al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 128, 85 (2003).
- ・S. J. Sque, et al., Phys. Rev. B 73, 085313 (2006).

平成20年度

九州大学超高温電子顕微鏡室・九州シンクロtron光研究センター 合同シンポジウム  
(於 九州大学医学部百年講堂, 2009年3月9日)

## 超伝導ウィグラービームライン (BL7) 設置計画について

河本正秀、隅谷和嗣、岡島敏造  
九州シンクロトロン光研究センター

九州シンクロトロン光研究センターでは、県有ビームラインの第Ⅱ期整備計画が進行中で、平成 20 年度までに実験研究棟の増築とビームライン BL10 (可変偏光アンジュレータビームライン) および県有ビームライン BL11 (硬 X 線偏向電磁石ビームライン) の 2 本の増設が完了している。ビームライン BL7 は本計画で整備する 3 本目のビームラインで、超伝導ウィグラーを挿入光源とし、30 keV 程度までの高エネルギー領域をカバーすることで、ソフトマテリアルやバイオ分野等での新規ユーザー獲得が期待される。現在、挿入光源を含むビームライン全体の仕様策定・設計がほぼ終了し、平成 21 年度中の建設完了と平成 22 年度の早い時期での共用開始を目指して作業を進めている。本発表では、策定されたビームライン仕様の概略について述べる。

本ビームラインで光源に採用する超伝導ウィグラーは、メインポールが超伝導電磁石、両端のサイドポールが永久磁石から構成される。メインポールの磁場強度を 4 テスラとすることで、既存の偏向電磁石光源より高エネルギー側にシフトした (臨界エネルギー 5.2 keV) スペクトルの放射光を得ることができ、その X 線強度は 10 keV で約 1 桁、20 keV で 3 桁以上高くなることが見込まれる。

ビームライン光学系は、Si (220) を分光結晶とする 2 結晶分光器と、湾曲円筒型集光ミラーで構成する予定である。実験ステーションは、タンパク質結晶 X 線構造解析用と、X 線イメージング・高エネルギー XAFS 用の 2 つのハッチをミラー下流にタンデムに配置し、集光ミラーの視斜角と曲率を変更することで、両ハッチ内に集光ビームを供給することができる。また、分光器上流に光学ハッチを設置し、白色トポグラフィ等の利用実験も可能とする。

# 超伝導ウィグラービームライン (BL7) 設置計画について

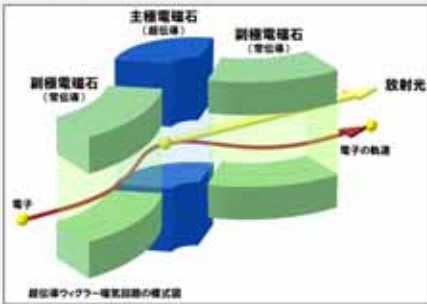
河本 正秀、隅谷 和嗣、岡島 敏浩  
九州シンクロトロン光研究センター

## ○ 概要

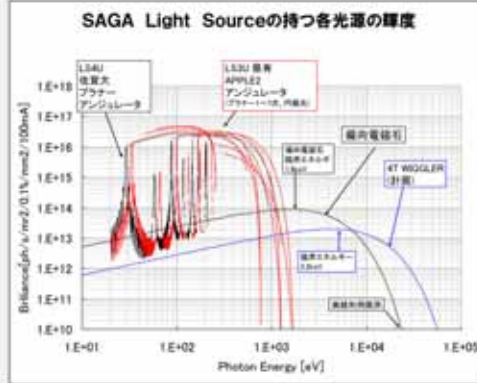
九州シンクロトロン光研究センターは、SAGA Light Source における県有ビームライン整備計画の6本目として、超伝導ウィグラーを光源とするビームラインの建設を予定している。

このビームラインでは、超伝導ウィグラーからの高エネルギーX線を生かし、既存5本の県有ビームラインでは利用の難しかった「バイオ分野」「ソフトマテリアル分野」を含む、広い範囲での応用研究を行えるよう、ビームラインデザインの検討を行った。

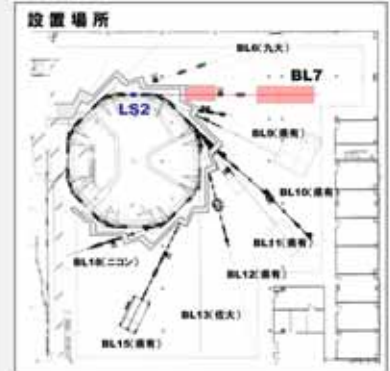
## ○ 超伝導ウィグラー



副極電磁石で元の軌道から電子を引き出した後、高磁束密度の主極電磁石で小さな半径で曲げることで、高エネルギーの放射光を発生させる。主極電磁石には、磁束密度4Tの超伝導電磁石を用いる予定である。

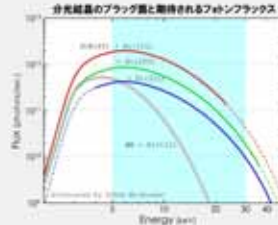
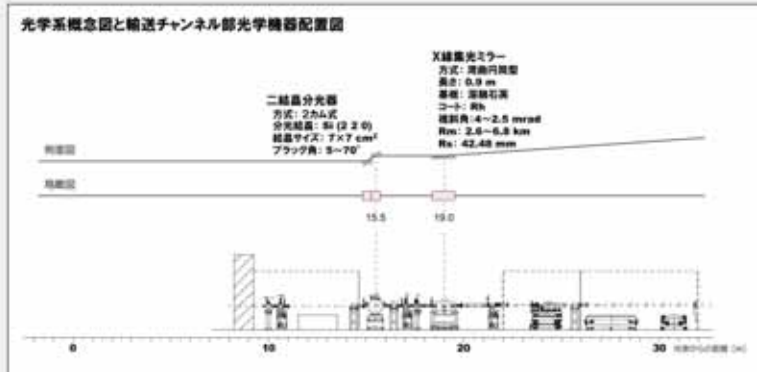


偏向電磁石と比較して、20keVで約2桁の輝度向上が見込まれる



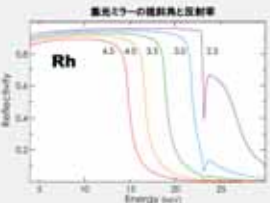
ビームライン設置可能長さの関係から、第2直線部(LS2)に設置する。(ビームラインNo.7)

## ○ ビームライン光学系

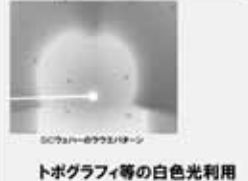
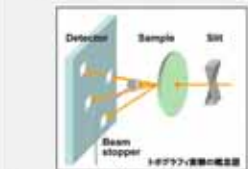


Si(220)を用いることで、低～高エネルギー領域を分光結晶の切換えなしで利用可能

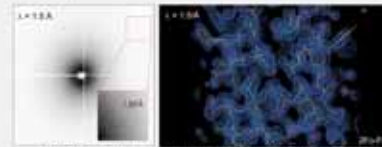
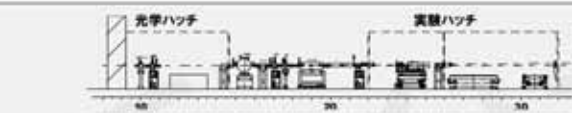
ロジウムコートミラーを用い、利用エネルギーに応じて視斜角を変更する



## ○ 利用実験



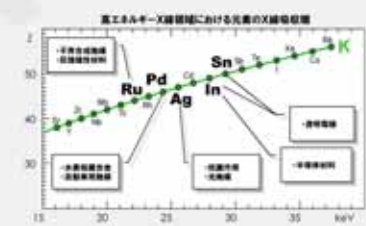
トポグラフィ等の白色光利用



低～中エネルギーX線を利用したタンパク質結晶構造解析



中～高エネルギーX線を利用したX線イメージング



高エネルギーX線を利用したXAFS・蛍光分析

## SAGA-LS BL15 における DEI 測定システム

隅谷和嗣<sup>1</sup>、米山明男<sup>2</sup>、河本正秀<sup>1</sup>、岡島敏浩<sup>1</sup>、平井康晴<sup>1</sup>

<sup>1</sup>九州シンクロトロン光研究センター

<sup>2</sup>株式会社日立製作所基礎研究所

回折強調イメージング法(Diffraction Enhanced Imaging: DEI)は、位相イメージング法と呼ばれる X 線撮像法の 1 つで、近年注目を集め開発が進められている手法である。従来の透過型 X 線撮像法、いわゆるレントゲン写真が物質の吸収差をコントラストとして像を得る。これに対し、DEI では、試料透過後の像をアナライザークリスタルを用いて分析することで、屈折によるコントラストを結像し、位相シフトを可視化する。これにより、生体試料や高分子材料のように軽元素で構成され吸収の非常に少ない物質について高感度の観察が可能になる。

我々は、SAGA-LS の硬 X 線ビームライン BL15 において、この DEI 測定システムの整備を行い、この性能評価実験を行った。モノクロメータからの入射 X 線は Si の非対称反射結晶を用いて縦方向のビームサイズが拡大されて試料に入射する。試料を透過したイメージは Si の対称結晶により分析されて CCD カメラで画像を取得する。試料は 360° 回転するステージに設置されており、これを回転させながら順次イメージングを行うことにより DEI-CT 像を撮影することができる。

発表では BL15 に設置された DEI 測定システムの概要とこれを用いた測定結果について紹介する。



# SAGA-LS BL15におけるDEI測定システム

隅谷和嗣<sup>1</sup>、米山明男<sup>2</sup>、河本正秀<sup>1</sup>、  
岡島敏浩<sup>1</sup>、平井康晴<sup>1</sup>  
1SAGA-LS、2日立基礎研

# Diffraction Enhanced Imaging (DEI)

従来の透過X線像・・・密度のコントラストの低い部分の描写は苦手

例： 関節の軟骨組織、肺、がん細胞等の生体組織  
水、高分子等の軽元素からなる物質

位相コントラストイメージング法

⇒ X線の位相のずれを可視化することで、  
軽元素に対して高感度になる

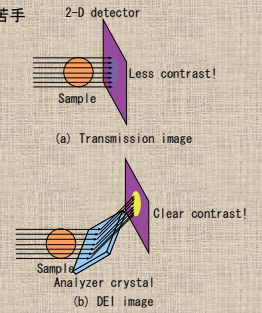
**Diffraction Enhanced Imaging (DEI) 法**

試料からの透過X線像をアナライザ結晶  
で角度分析  
→ $\delta$ の空間微分を検出

$n=1-\delta+i\beta$

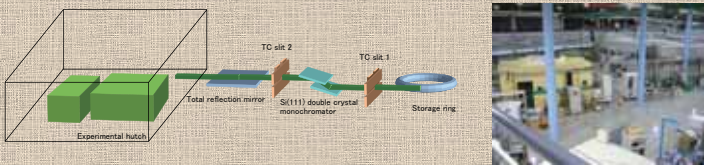
n: 屈折率、 $\delta$ は位相シフト、 $\beta$ は吸収に寄与する

軽元素では $\delta$ は $\beta$ の2~3桁大きい  
→高感度の撮影が可能



目的： SAGA-LSの硬X線ビームライン  
BL15においてDEI測定装置を導入し、DEI  
測定を確立する。

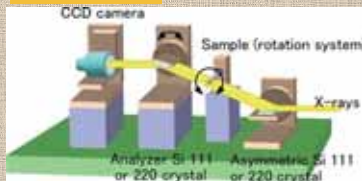
# SAGA-LS BL15における DEI測定システム



構造科学イメージング分析ビームライン

- ↓X線吸収分光 (XAFS)
- ↓蛍光X線分析
- ↓X線回折 (粉末、薄膜等)
- ↓イメージング (トポグラフィ、DEI等)
- ↓小角X線散乱

DEI測定システム



# DEI測定装置



↓CCDカメラ

- ・解像度 4872 pixel × 3248 pixel
- ・有効入力エリア 36 mm × 24 mm
- ・1ピクセルあたりの分解能 7.5 $\mu$ m以下
- ・シンチレータ GaO<sub>2</sub>、2~30keV(5~15keVに最適化)



↓試料回転機構

- ・試料を360°回転(CT撮影に用いる)
- ・円柱(3mm $\phi$ )の先端部に試料を固定



↓精密回転装置

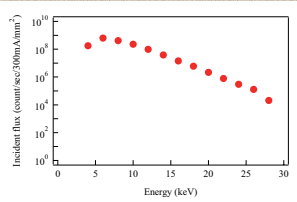
- ・最小角度送り0.01arcsec
- ・アナライザ結晶の制御に使用

↓対称・非対称Si結晶

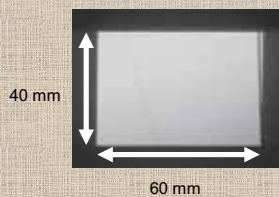
- ・非対称結晶はビーム拡大、対称結晶はアナライザに使用
- ・反射は220、111の2通りを用意
- ・非対称角 111は6.7°、220は11°
- ・14keV時に入射ビームの縦幅を約10倍に。  
(縦幅10mm以上のビームを利用可能)
- ・結晶の歪をなくすため結晶両側に溝加工。

# BL15のビーム特性

非対称結晶に入射するフォトンフラックス



拡大後のビーム断面



X線のエネルギー： 14 keV  
ビーム拡大、アナライザ結晶にはSi(111)を使用

14 keVでは、 $4 \times 10^7$  photon/sec/mm<sup>2</sup>のフォトンが入射する  
(蓄積リング電流値300 mA換算)

# DEI測定結果

アナライザ結晶のロッキングによる像の変化

サンプル： ビニール紐 (各画像の明度はオートスケールで表示)



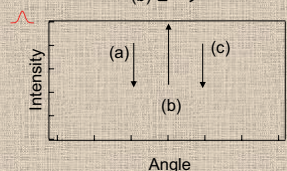
(a) 低角側



(b) ピーク



(c) 高角側



## DEI測定結果

### Phase gradient image



角度のずれの可視化

$$\phi_s(x,y) = \frac{\sum \theta_s I(x,y,\theta_s)}{\sum I(x,y,\theta_s)}$$

$\theta_s$ : アナライザー結晶の角度  
 $I$ : ピクセルごとの強度

### DEI CTによる断面像



ビニール紐



発泡スチロール

位相像の計算

$$\Phi(x,y) = \frac{2\pi}{\lambda} \int \phi_s(x,y) dx$$

$\lambda$ : X線の波長

サンプルを回転させながら順次撮影を行い、これを合成することで、物体のCT像を得る

高分子材料の内部構造を明瞭に観察することができた

## まとめ

- SAGA-LSの硬X線ビームラインBL15IにDEI測定装置を導入した。
- ビニール紐、発泡スチロールなどの高分子材料のDEI CTの撮影を行った。この結果、このような軽元素からなる材料の内部構造を明瞭に観察することができた。

### 今後の計画

- 測定時間の短縮(時分割測定などの可能性を探る)
- より高エネルギーX線の利用(透過力の増大により、測定試料を大きくできる)

## イオン注入 SiC 結晶の転位構造観察

石地耕太朗, 大谷亮太, 川戸清爾, 平井康晴  
九州シンクロトロン光研究センター  
白神智, 長町信治  
(株)イオンテクノセンター

次世代パワーデバイスとして SiC を実用化するためにイオン注入処理は不可欠であるが、それによって欠陥密度が増大すると考えられる。とくに、イオン注入によって結晶成長時から存在する転位がどのように構造変化するのか重要であり、興味深い。そこで、X線トポグラフィーによってイオン注入した SiC 結晶の欠陥構造を観察した。イオンテクノセンターのイオン加速器を用いて、SiC ウェハー(2 インチ径, 0.38 mm 厚)の一部に  $Al^{3+}$  イオンを注入した。注入後、SAGA-LS BL09A で白色 X 線トポグラフィー観察を行った。004 回折斑点のイオン未注入領域と注入領域のトポグラフィー像を図に示す。未注入領域では、刃状転位(筋状)とらせん転位(ドット状)が混じっていた。しかし、注入領域では様子が異なり、イメージサイズ 100  $\mu m$  前後のマイクロパイプ欠陥が多く見られた。Al イオンの衝突によって転位のホローコアが損傷を受けて空洞化し、大型欠陥(マイクロパイプ)へと発達するのではないかと考えられる。

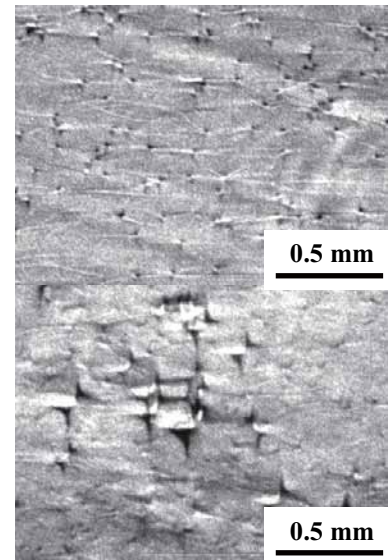


図 SiC 結晶 004 回折斑点のイオン未注入領域(上)と注入領域(下)のトポグラフィー像。

# イオン注入SiC結晶の転位構造観察

石地耕太郎, 大谷亮太, 川戸清爾, 平井康晴: 九州シンクロトン光研究センター  
白神智, 長町信治: (株)イオンテクノセンター

## 1.はじめに

SiC結晶は次世代パワーデバイス半導体として注目されている。

	Si	4H-SiC
禁制帯幅(eV)	1.12	3.26
電子移動度(cm <sup>2</sup> /Vs)	1350	1000
絶縁破壊電界(MV/cm)	0.3	2.8
熱伝導率(W/cm·K)	1.5	4.9
量産性	○	△

表1 SiとSiC結晶の主な特徴[1]

大電流・高温に耐えられるうえに、非常に硬い。高運動作用・大電力用・高周波用・パワーデバイスへの応用への期待が高い。

パワーデバイスとして実用化するためにはイオン注入が不可欠。

イオン注入によって非晶質化が進行し、欠陥密度が増大することは知られている[2]が、結晶内部の転位構造を観察した例は無く、どのような状態に変化するのに興味深い。

イオン注入処理をしたSiC結晶の転位構造をX線トポグラフィーで観察し、イオン注入による転位構造の変化を調べた。

## 2.実験

昇華再結晶法4H-SiCウェハ(2インチ径, 0.38 mm)にイオン注入加工(ウェハ温度500度)を行った。

### 《イオン注入条件》

- ・ 注入量:  $3.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  @600 keV,  $6.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  @1200 keVの2段階
- ・ 打ち込みイオン種: Al<sup>3+</sup>
- ・ 注入時ウェハ温度: 500度



図1 0 MeVタンデム型イオン加速器  
©(株)イオンテクノセンター

### イオン注入後

結晶性評価

転位構造観察

ラザフォード後方散乱(RBS) 白色X線トポグラフィー観察( $\theta=1^\circ$  斜入射配置)



図2 X線トポグラフィー装置  
©SAGA-LS BL09A

## 3.結果と考察

RBS測定でイオン注入・未注入領域の結晶性を評価(図3)。

- ・ 高温状態(500度)で結晶性回復を促した(非晶質化抑制)が、完全に回復していない。
- ・ 非晶質化率は20%前後(TRIMシミュレーションで計算)。

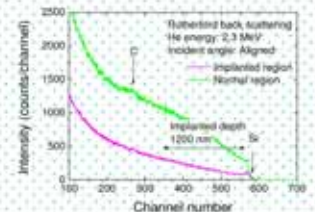


図3 イオン注入RBSスペクトル(緑)。未注入(ピンク)も示す。

白色X線トポグラフィーによって004回折斑点(10 keVに対応)を観察。

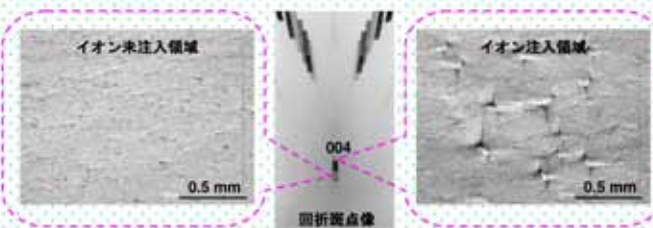


図4 SiC結晶の白色X線トポグラフィー像

- ・ 互枝転位(筋状)とらせん転位(ドット)の混合[3]。
- ・ マイクロパイブ密度:  $25 \text{ 個/cm}^2$
- ・ イメージサイズ100  $\mu\text{m}$ 程度の多数のマイクロナイブ欠陥[4]。
- ・ マイクロパイブ密度160個/cm<sup>2</sup>

非晶質化抑制と同時にらせん転位の一部がマイクロナイブへと大型化した様子。

表面付近のらせん転位にAlイオンが高速で衝突、その衝撃で転位の中実芯が損傷を受けて空洞化したのではないかと考えられる。

## 4.まとめと今後

- ・ 高温イオン注入により、非晶質化抑制と欠陥導入が起こるが、それらと同時に転位が拡大した様子を捉えた。
- ・ 元々存在するらせん転位がAlイオン注入によって衝撃を受け、空洞化・発達すると考えられる。
- ・ 今後、アニール処理を行い、転位構造の変化を調べる。

[1] 松波弘之 編著、半導体SiC技術と応用、日刊工業新聞社(2003)。  
[2] A. Hallén, et. al., Nucl. Instr. and Meth. B 186, 186 (2002)。  
[3] J. Takahashi, et. al., J. Cryst. Growth 135, 61 (1994)。  
[4] X. R. Huang, et. al., Appl. Phys. Lett. 74, 353 (1999)。

## SAGA-LS 蓄積リングの概要

江田茂、岩崎能尊、高林雄一、金安達夫  
九州シンクロトロン光研究センター (SAGA-LS)

国内においてハード X 線領域に達する放射光発生が可能な 1GeV 以上の電子蓄積リングのうち、外部ユーザー利用を前提としたものは、4 台 (SPring-8、KEK-PF, AR、SAGA-LS) のみであり、このうち SAGA-LS は兵庫県の SPring-8 以西唯一の施設である。

SAGA-LS 光源加速器は 1.4GeV 電子蓄積リングと 255MeV 入射用リニアックから成る。リニアックから電子ビームを蓄積リングに入射、軌道を保持したまま 1.4GeV に加速した後、蓄積状態を維持しユーザーに放射光を供給する。蓄積リングは周長 75.6m で、2 台の偏向電磁石と 5 つの 4 極電磁石からなる基本磁石配列が 8 回繰り返された構造となっている。

蓄積リングの基本光源は曲率半径 3.2m 磁場強度 1.46T の偏向電磁石である。臨界エネルギーは 1.9keV で、ユーザー利用実績としては真空紫外領域から 20keV 程度のハード X 線領域に及ぶ。またこれに加え真空紫外-軟 X 線領域の高輝度光源として可変偏光 APPLE II 型アンジュレータ (佐賀県) 及び水平偏光アンジュレータ (佐賀大) が蓄積リング長直線部 (それぞれ LS3, LS4) に設置されている。また現在、より高エネルギーの X 線ニーズに応えるため、超伝導ウイグラーの開発を進めている。磁場強度 4T、臨界エネルギー 5.2keV で現偏向電磁石の光子エネルギー上限から 50keV 程度までの高エネルギー領域をカバーする計画である。2009 年度設計製作が本格化し 2010 年春設置を行う予定である。



概要

SAGA-LS光源加速器は1.4GeV電子蓄積リングと255MeV入射用リニアックから成る。リニアックから電子ビームを蓄積リングに入射、軌道を保持したまま1.4GeVに加速した後、蓄積状態を維持しユーザーに放射光を供給する。蓄積リングは周長75.6mで、8回対称の磁石列から構成される。偏向電磁石の臨界エネルギーは1.9keVで、利用領域は真空紫外から20keV程度のハードX線領域に及ぶ。これに加え真空紫外軟X線領域の高輝度光源として可変偏光APPLE II型アンジュレータ(佐賀県)及び水平偏光アンジュレータ(佐賀大)が設置されている。現在、より高エネルギーのX線ニーズに応えるため超伝導ウィグラーの開発を進めている。

まとめ

SAGA-LS電子蓄積リングは現在安定にユーザーに放射光を供給している。加速器の性能向上を継続的に行いつつ、平行して蓄積電流増大による高フラックス化、可変偏光アンジュレータによる高輝度化、超伝導ウィグラーによる光エネルギー増大の計画を進めている。今後、光源加速器としてのさらなる性能向上を進める。

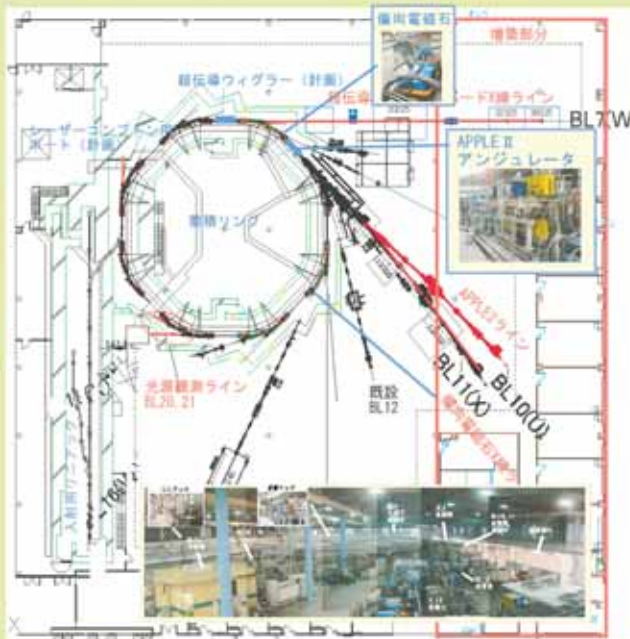
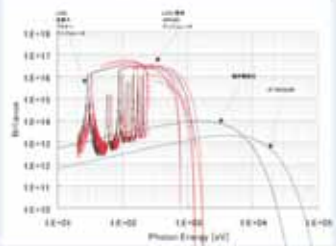
国内1GeV以上の放射光用電子蓄積リング

蓄積リング	電子エネルギー
SPring-8	8GeV
NewSUBARU(兵庫県立大)	1-1.5GeV
KEK PF AR	2.5GeV 6.5GeV
<b>SAGA-LS</b>	<b>1.4GeV</b>

入射用リニアック  
 全長 30m  
 電子エネルギー 255MeV  
 繰り返し周波数 1Hz  
 ビーム強度(Max) 12nC/パルス

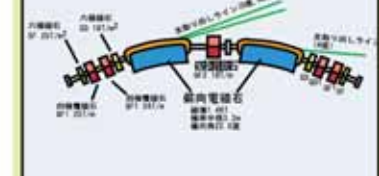
蓄積リング  
 周長 75.6m  
 電子エネルギー 1.4GeV  
 蓄積ビーム電流 250mA  
 エミッタンス 25nmr  
 ビーム寿命 ~10時間@250mA  
 臨界エネルギー 1.9keV

放射光スペクトル

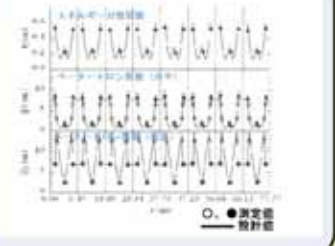


蓄積リング磁石配列

基本配列(セル)



ラティス関数



APPLE-II アンジュレータ

基本仕様  
 光子エネルギー 30eV-1.2keV (1-7次光)  
 偏光 水平、垂直、楕円  
 磁気回路 APPLE II型  
 磁石長 72mm  
 隙間幅 20mm  
 セットアップ 30mm~200mm  
 磁石 NEOMAX48(40x40x18)

磁場測定



BL10 1st Light

2009年1月23日 BL10 アンジュレータ光初導入

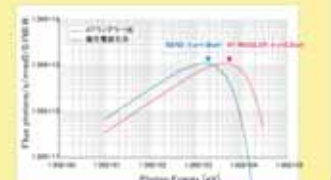


超伝導ウィグラー(計画)



磁場構成 3種

メインポール×1  
 サイドポール×2  
 メインポール 超伝導 4T@ビーム軸上  
 サイドポール 常伝導 ~1T@ビーム軸上  
 ヨーク C型  
 材料 NbTi  
 冷凍機 直冷式6K冷凍機  
 真空ダクト ウォームポンプ



APPLE II型磁気回路



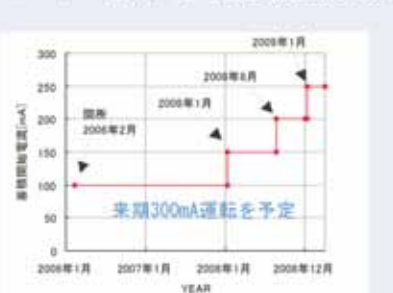
SAGA-LS実験ホールへ搬入



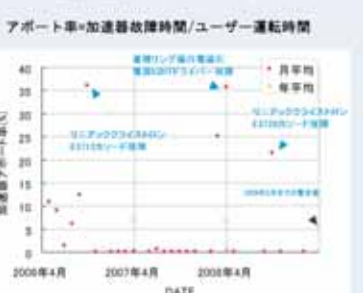
蓄積リング内へ分割設置



ユーザー運転における蓄積電流増大

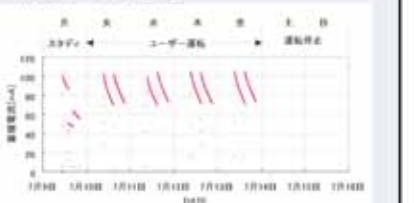


加速器運転アポルト率



週間運転サイクル

基本運転サイクル 1週5日  
 マシンスタディ 1日  
 ユーザー運転 4日  
 ユーザー利用時間 40時間/週程度  
 点検日 1日(土)/月



## アンジュレータギャップ変更起因する COD 補正と ビームラインユーザ制御系からのギャップ制御システム

岩崎能尊, 金安達夫, 高林雄一, 岩崎能尊, 江田茂  
九州シンクロトロン光研究センター

SAGA-LS 電子蓄積リング長直線部 LS3 に設置された可変偏光アンジュレータ APPLE-2 のギャップ変更に伴う軌道変動を抑制するため、フィードフォワード方式の COD(Closed Orbit Distortion)補正システムを構築した。システム構築にあたり、アンジュレータギャップおよび位相変更に伴う COD 変位を計測し、ダイポール成分の不正磁場の大きさを評価した。またアンジュレータ上下流のステアリング電磁石によるキック角に対しても同様に COD の変位より強度を評価した。補正のためのステアリング電磁石電源設定値は、各 BPM での COD 変位が最小になるように最小 2 乗法により決定した。プラナーモードにおいて COD 補正をしない場合、水平・垂直方向とも各 BPM の標準偏差の最大で 100 $\mu\text{m}$  程度であったが、補正により各方向とも 10 $\mu\text{m}$  以下とすることができた。各位相に対しても同様の計測を行い、任意のギャップおよび位相に対して軌道補正を行うテーブルを作成した。アンジュレータ上下流のステアリング電磁石電源制御サーバは、アンジュレータのギャップおよび位相情報を 10Hz で読み取り、補正テーブルに従い必要な電源設定値を自動的に出力している。

SAGA-LS においては加速器制御系とビームライン制御系間はファイアウォールによりネットワークが遮断されている。ビームラインユーザによるギャップの変更許可に対しては、特定の 1 台のビームライン PC から特定の加速器 PC のシングルポートに対するアクセスのみを許可し、セキュリティレベルの維持が可能な TCP/IP による専用のアプリケーションを開発した。

# APPLE-II アンジュレータギャップ変更起因するCODの補正と ビームラインユーザ制御系からのギャップ制御システム



岩崎 能尊, 金安 達夫, 高林 雄一, 江田 茂

## Introduction

線形加速器により加速された電子の群れは、ある有限の位置と角度とエネルギーの幅を持ったビームとして電子蓄積リングに入射されます。

光速近くまで加速された荷電粒子は、進路が変更される際にシンクロトロン光を放出し、放出した分だけのエネルギーを失います(放射減衰)。失われた分だけのエネルギーが加速空洞により補われます。

電子蓄積リングに入射された電子ビームは、偏向電磁石の強さのバラつき、4種電磁石の設置誤差により、理想軌道に対するキックを受けますが、放射減衰を行うことにより、ある閉じた軌道を描きます(Closed Orbit)。

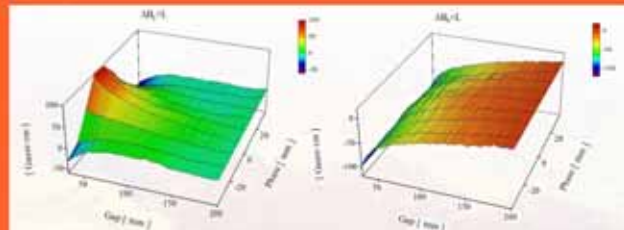
シンクロトロン光は、電子の進行方向に放射されます。従って、電子ビームの軌道が常に変化しないことは、シンクロトロン光を利用する上で非常に重要です。

昨年秋、九州シンクロトロン光研究センター電子蓄積リング長直線部LS3に、可変偏光タイプのアンジュレータAPPLE-IIがインストールされました。

アンジュレータのギャップおよび位相を変化させることで、磁場の2成分が変化すると、閉軌道の変形(COD: Closed Orbit Distortion)を生じます。

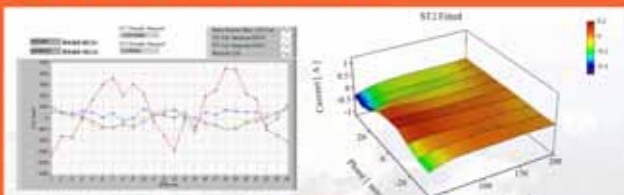
APPLE-IIに起因する不正磁場の大きさを、ビームの挙動を通じて調査しました。また、任意のギャップと位相に対する閉軌道補正システムを構築しました。

## Dipole Kick and the COD



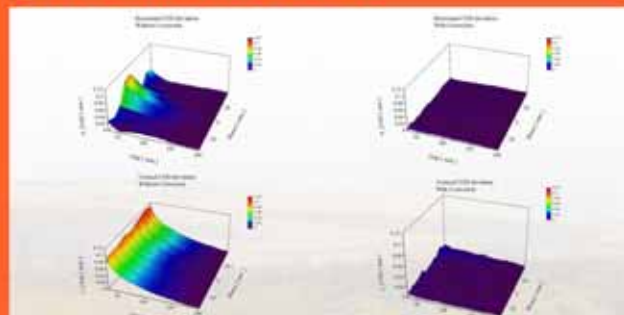
位相ごとにギャップを最大値から最小値まで変更し、軌道の変化量を水平・垂直各24台のBPMで測定しました。キック力が蓄積リングのある1点で生じたとき、閉軌道の中がみは、 $\Delta x = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{\frac{2}{\beta_x}} \theta$  (  $\theta$  はある場所) で受けるキック角) として表されます。この式を逆に解いて、キック力として評価しました。水平方向の軌道変位を生じさせるBy成分は位相によって傾向が異なりました。実測による磁場データとの比較は、<sup>1)</sup>で報告しています。

## Correction Method



蓄積リングのグローバルCOD補正は、実測に基づく応答行列を用いたSVDによる方法により標準偏差20  $\mu\text{m}$ 以下に抑えています。<sup>2)</sup> ギャップおよび位相に応じたステアリング電磁石電源の出力値は、CODが最小になるように最小二乗法により求めました。キック力を調査するためのCOD測定は、ギャップおよび位相に対してそれぞれ2mm、9mm間隔で行っています。必要な電源出力値は、ギャップ方向に対しては6次の多項式、位相方向に対しては線形補間によりフィッティングを行い、任意の位置に対して必要な値が得られるようにしました。例として、製作した解析ソフトウェア画面と、上流側水平方向ステアリング電源出力値を示します。

## Correction Result



ギャップおよび位相毎のCOD標準偏差を示します。左図が補正前、右図が補正後です。補正により100  $\mu\text{m}$ 程あったCOD標準偏差がほぼ20  $\mu\text{m}$ 以下になりました。

## Feedforward Control Systems



APPLE-II用ステアリング電磁石サーバは、ギャップおよび位相を10Hzで読み取り、COD補正に必要な出力値を演算しています。フィードフォワード方式としたのは、ギャップおよび位相の変化に対して、COD変位に再現性があるためです。加速器、ビームライン、研究室など、ネットワークはファイアウォールにより保護されています。セキュリティを維持するため、ビームライン側からの操作に対しては、ActiveXCAではなく、シングルポートのみを使用する専用のTCP/IPソフトウェアを作成しました。

## Summary

- APPLE-IIのギャップおよび位相変化に起因するCODを計測しました。得られたCODデータより、Dipole成分の不正磁場を評価しました。最大で100gauss $\cdot$ cm程度でした。By成分には位相依存性が見られました。
- APPLE-IIに起因するCODを補正するアンジュレータ上下流のステアリング電磁石強度を最小二乗法により求めました。ギャップ方向に対しては6次の多項式、位相方向に対しては線形フィットにより、任意のギャップと位相に対して必要な、電源出力値が得られるようにしました。
- フィードフォワード方式による、ギャップおよび位相に応じたCOD補正システムを構築しました。CODの標準偏差は最小ギャップ時100  $\mu\text{m}$ 程度であったが、補正により20  $\mu\text{m}$ まで抑制できました。
- ファイアウォールのセキュリティレベルを下げることなく、BLユーザLAN経由でのアンジュレータ制御を可能としました。
- 更なる軌道の安定性、カップリング補償について現在スタディ中です。

References  
 1) "SAGA-LSにおけるAPPLE-IIアンジュレータの動作", S. Suzuki et al., 放射光学誌, 2009年  
 2) "SAGA Light Sourceにおけるローバックス補正", Y. Iwamoto et al., 放射光学誌, 2007年  
 3) <http://www.slac.stanford.edu/computing/packages/epics/epics-3.12.1/>



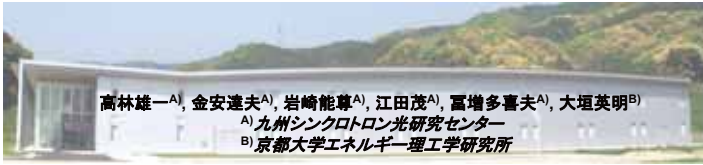
## 放射光干渉計によるビームサイズ測定

高林雄一<sup>1</sup>, 金安達夫<sup>1</sup>, 岩崎能尊<sup>1</sup>, 江田茂<sup>1</sup>, 富增多喜夫<sup>1</sup>, 大垣英明<sup>2</sup>  
<sup>1</sup>九州シンクロトロン光研究センター, <sup>2</sup>京都大学エネルギー理工学研究所

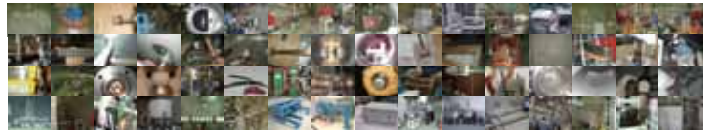
蓄積リングにおけるビームサイズが設計どおり実現されているかどうかを確認するため、放射光干渉計を用いてビームサイズの測定を行った。干渉計は10数年前にKEK-PFの三橋によって開発された手法である。放射光の可視光成分を用い、ダブルスリットによって生じた干渉縞のコントラスト(ピークとディップの強度比)からビームサイズを決定することができる。干渉計は、昨年度整備した放射光モニタ用ビームラインBL20の暗室内に構築した。暗室内まで輸送されてきた可視光を、ダブルスリット、アクロマティックレンズ(焦点距離 $f=500$ )、NDフィルター、拡大レンズ、偏光フィルター( $\sigma$ 偏光を選択)、バンドパスフィルター( $500\pm 5$  nm)の順に透過させ、CCDカメラ上に干渉縞として結像させた。干渉縞の形状を理論式とフィットして解析した結果、水平・垂直方向のビームサイズはそれぞれ、 $\sigma_x=215\pm 3$   $\mu\text{m}$ ,  $\sigma_y=59\pm 2$   $\mu\text{m}$ と求まった。計算値は $\sigma_x=203$   $\mu\text{m}$ ,  $\sigma_y=52$   $\mu\text{m}$ であり、ほぼ一致していることが確認された。なお、今回の測定では、放射光取出しミラーの熱変形は考慮されていない。今後、測定精度を向上させるため、ミラーの熱変形を光線追跡法で評価するためのハルトマンマスクをBL20に設置する予定である。



# 放射光干渉計による ビームサイズ測定



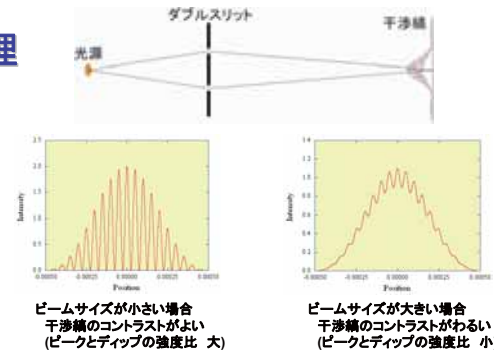
高林雄一<sup>A)</sup>, 金安達夫<sup>A)</sup>, 岩崎能尊<sup>A)</sup>, 江田茂<sup>A)</sup>, 冨増多喜夫<sup>A)</sup>, 大垣英明<sup>B)</sup>  
<sup>A)</sup>九州シンクロtron光研究センター  
<sup>B)</sup>京都大学エネルギー理工学研究所



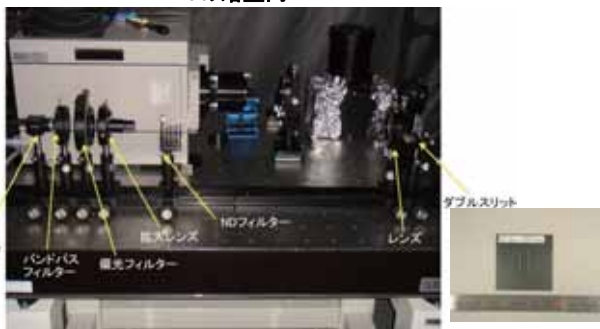
## 目的

SAGA-LSの蓄積ビームの診断 ⇒ ビームサイズの測定

## 原理



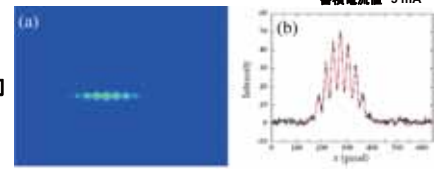
## 実験装置 放射光(可視光)モニタ用ビームライン BL20の暗室内



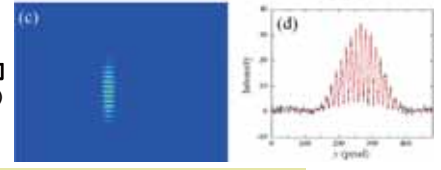
レンズ: 焦点距離  $f = 500$  mm  
 偏光フィルター:  $\sigma$ 偏光を選択  
 バンドパスフィルター:  $500 \pm 5$  nm

## 測定結果

水平方向  
( $D = 5$  mm)



垂直方向  
( $D = 10$  mm)



理論式 
$$I(z) = I_0 \left[ \sin c \left( \frac{\pi w}{\lambda R} (z - z_1) \right) \right]^2 \left[ 1 + \gamma \cos \left( \frac{2\pi D}{\lambda R} (z - z_2) \right) \right] \sin c(z) = \frac{\sin z}{z}$$

ビームサイズ 
$$\sigma = \frac{\lambda L}{\pi D} \sqrt{\frac{1}{2} \ln \left( \frac{1}{\gamma} \right)}$$
  
 $z = \kappa$  または  $\gamma$ : visibility (コントラストを表す量)  
 $w$ : スリットの幅,  $\lambda$ : 光の波長,  $R$ : スリットと結像点との距離,  
 $D$ : ダブルスリットの間隔,  $L$ : 光源点とスリットとの距離

## 計算値との比較

	$\sigma_x$ ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_y$ ( $\mu\text{m}$ )
測定値	$215 \pm 3$	$59 \pm 2$
計算値	203	52

(BL20: 偏向電磁石5°ビームライン)

$$\sigma_x = \sqrt{\beta_x \epsilon \frac{1}{1+\kappa} + \left( \eta \frac{\Delta p}{p} \right)^2} \quad \sigma_y = \sqrt{\beta_y \epsilon \frac{\kappa}{1+\kappa}} \Rightarrow \text{エミッタンス} \epsilon, \text{カップリング} \kappa$$

$\beta_x, \beta_y$ : ベータ関数 ( $\beta_x = 1.133$  m,  $\beta_y = 9.763$  m)  
 $\eta$ : 分散関数 ( $\eta = 0.1704$  m)  
 $\Delta p/p$ : 運動量ひろがり ( $\Delta p/p = 6.73 \times 10^{-4}$ )

	$\epsilon$ (nm-rad)
測定値	$29 \pm 4$
計算値	25

	$\kappa$
ビームサイズから求めた値	$0.012 \pm 0.002$
チューン測定から求めた値	$0.011 \pm 0.003$

## まとめ

蓄積リングのビームサイズを測定するため、放射光モニタ用ビームラインBL20の暗室内に干渉計を構築した。  
 ビームサイズ(エミッタンス)は計算値とほぼ一致していることが確認された。

## 今後

ハルトマンマスクを用いた光線追跡法による放射光取出しミラーの熱変形の補正

## 謝辞

放射光モニタ用ビームラインの建設並びに干渉計の測定に関して、KEK-PFの三橋利行教授にご指導いただきました。深く感謝いたします。

## SAGA-LS におけるレーザーコンプトン散乱ガンマ線生成の検討

金安達夫, 高林雄一, 岩崎能尊, 江田茂  
九州シンクロトロン光研究センター

SAGA-LS 蓄積リングにおけるビームエネルギーモニターの構築及び将来的なガンマ線利用実験を目的として, レーザーコンプトン散乱(LCS)によるガンマ線生成の検討を進めている. 特に CO<sub>2</sub> レーザーの実用上の有用性に着目し, CO<sub>2</sub> レーザーを用いた LCS 実験系のデザイン, ガンマ線生成率の評価を行った.

蓄積電子エネルギー1.4 GeV において波長 10.6 μm の CO<sub>2</sub> レーザーによる LCS ガンマ線の最大エネルギーは 3.5 MeV である. これに対し蓄積リングの運動量アクセプタンスは 14 MeV で, LCS による反跳を受けた電子は RF バケットから蹴り出されない. そのため LCS は他の放射光利用と共存可能であり, CO<sub>2</sub> レーザーの使用は常用のガンマ線生成およびビームエネルギーモニターとしての運用上大きなメリットとなる. また CO<sub>2</sub> レーザーは他のレーザーと比較してコスト当たりの出力に優れるため, 大強度ガンマ線生成にも有利である.

本計画ではレーザー光を蓄積リング第1セル偏向部下流ポートから入射長直線部 LS8 へ導入する. レーザー光と電子ビームの相互作用領域の長さは LS8 前後の四極, 六極電磁石部を含め 5 m 程度である. レーザー光学系には波長 10.6 μm のレーザー光の透過性に優れる ZnSe 製レンズと高反射率の Si ミラーを用いる. LCS イベントレートはレーザー光と電子ビームの光学関数を用いてルミノシティ計算により評価した. 水冷フランジとミラーによる減衰を考慮した実効的なガンマ線強度は, 電子ビームカレント 100 mA, レーザー出力 10 W の条件で  $3 \times 10^6$  photons/sec (エネルギー幅 10%) と見積もられた.

# SAGA-LSにおけるレーザーコンプトン散乱ガンマ線生成の検討

金安達夫, 高林雄一, 岩崎能尊, 江田茂  
SAGA-LS, 九州シンクロtron光研究センター

## 計画の概要

SAGA-LS蓄積リングにおけるビームエネルギーモニターの開発および将来的なガンマ線利用実験を目的として、レーザーコンプトン散乱によるガンマ線生成の検討を進めている。本計画では波長10.6 μmのCO<sub>2</sub>レーザーを用いて最大光子エネルギー3.5 MeV(電子ビームエネルギー1.4 GeV)の大強度ガンマ線を生成する。LCSビームライン(蓄積リングへのレーザー光導入ポート)の整備状況、レーザー光学系の検討結果、ガンマ線イールド評価を報告する。

### ビームモニター開発

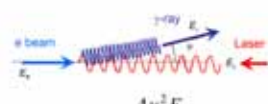
- ・小出力レーザーによる基礎実験
- ・ビームエネルギー常時モニター

### 大強度LCSガンマ線生成

- ・高出力(kWクラス)CO<sub>2</sub>レーザー
- ・将来的なユーザー利用

## Laser Compton Scattering (LCS)

電子ビームとレーザー光の head-on collision

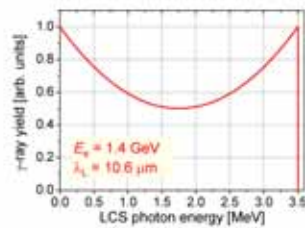


$$E_\gamma = \frac{4\gamma^2 E_L}{1 + (\gamma\theta)^2 + 4\gamma E_L / (mc^2)}$$

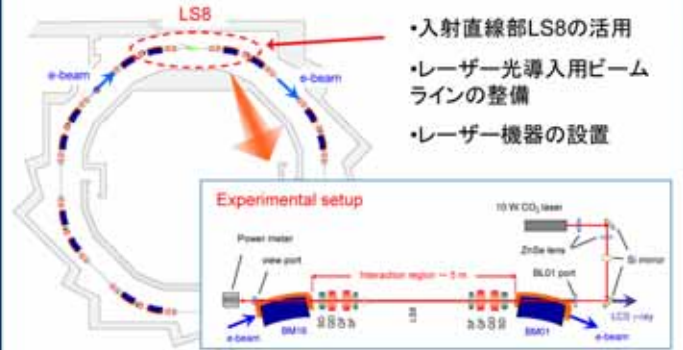
最大ガンマ線エネルギー計測

↓  
ビームエネルギーの決定

LCSガンマ線スペクトル



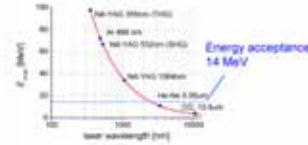
## LCS Experiment at SAGA-LS



- ・入射直線部LS8の活用
- ・レーザー光導入用ビームラインの整備
- ・レーザー機器の設置

## CO<sub>2</sub>レーザーによるLCS

各種レーザーと最大ガンマ線エネルギー



LCS基礎実験用レーザー



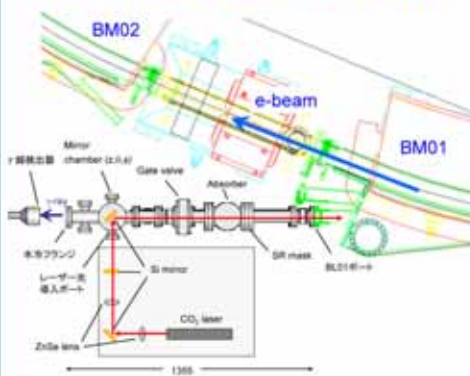
最大出力: 10W (CW)  
波長(最大): 10.6 micrometers  
M<sup>2</sup>: < 1.2  
full angle div.: ~4 mrad  
beam waist: ~3.5 mm

反跳された電子がRFバケットから蹴り出されない

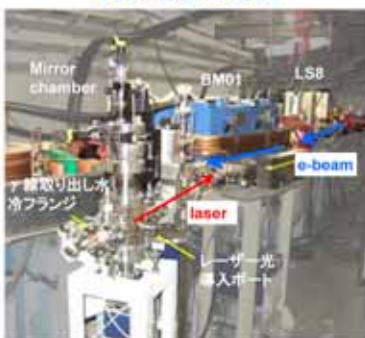
- ユーザー運転との共存可能
- コスト当たりの出力に優れる
- ガンマ線の大強度化に有利
- 3.5 MeVガンマ線のエネルギー測定
- 高分解能の検出器を利用可能

## LCS Beamline BL01

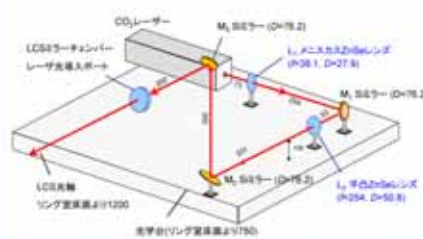
Beamline BL01とレーザー機器の構成



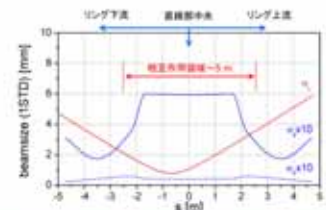
BL01付近の現状



## レーザー光学系とガンマ線イールド



ビームサイズの比較



## LCSガンマ線イールドの評価

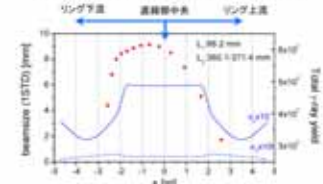


分布関数  $f_x, f_y$  ガウス分布を仮定からルミノシティを計算  

$$L = \rho_e \rho_L 2c \iiint f_x(x, y, s) f_y(x, y, s) dx dy ds$$
  
 γ-ray yield (散乱断面積とルミノシティの積)  

$$N_\gamma = \sigma L$$
  
 beam current: 100 mA, laser power: 10 Wとして評価

レーザー集光位置の最適化



LS8直線部中央より0~2m下流にレーザー光のウエスト

→  $N_\gamma \geq 6 \times 10^7$  photons/sec (total)

## 実効的なガンマ線強度

- ・コリメータによる切り出し(エネルギー幅10%): 透過率15%
- ・ミラー、氷冷フランジによる減衰: 透過率30%  
→  $N_\gamma = 3 \times 10^6$  photons/sec
- ・制動放射ガンマ線強度 (ビーム電流100 mA,  $5 \times 10^{17}$  Pa)  
 $N_\gamma = 1 \times 10^8$  photons/sec ( $E \geq 1$  MeV)  
 $N_\gamma = 2 \times 10^8$  photons/sec ( $E = 3.15 - 3.5$  MeV)  
 → SN比 ~  $10^3$

## ビームエネルギー測定精度

Ge検出器の分解能, 1.4 GeV電子ビームのエネルギー広がり, レーザーバンド幅, アライメント精度から評価

→  $\Delta E_\gamma / E_\gamma = 1.7 \times 10^{-3}$

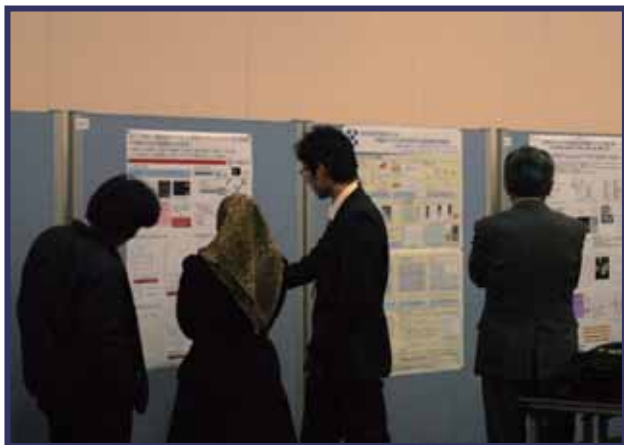
要因	Uncertainty (1STD)
検出器	$\Delta E_\gamma / E_\gamma = 5 \times 10^{-4}$
電子ビームエネルギー広がり	$\Delta E_\gamma / E_\gamma = 6.725 \times 10^{-4}$
レーザーバンド幅	$\Delta E_\gamma / E_\gamma = 3 \times 10^{-3}$
アライメント	< 3 mrad

## シンポジウムの記録



会場 — 九州大学医学部 百年講堂 —





## あ と が き

九州大学超高压電子顕微鏡室と九州シンクロトロン光研究センターは、「超高压電子顕微鏡／シンクロトロン放射光が拓くナノワールド」をテーマとして、2009年3月9日に九州大学医学部百年講堂で合同シンポジウムを開催しました。本報告書はその内容をまとめたものです。また、今回のシンポジウムは、九州シンクロトロン光研究センターの第三回研究成果報告会、九州大学超高压電子顕微鏡室の第162回 HVEM 研究会、さらに両機関が文部科学省から受託している「先端研究施設共用イノベーション創出事業・ナノテクノロジーネットワークプログラム」の九州地区ナノテクノロジー拠点ネットワーク事業の一環として実施しました。やや冗長な前置きになりましたが、要は、ナノレベルで材料やバイオ試料の計測・分析を行うにあたって互いに相補的な関係にある電子顕微鏡とシンクロトロン放射光を、今後より一層ユーザーの皆様に使いこなして頂きたいとの思いで合同開催に至ったものです。

当日は、特別講演、基調講演をはじめとする14件のご講演、29件のポスター発表が行われました。とくに、電子顕微鏡を用いた三次元ナノレベル観察やシンクロトロン放射光を用いた *in-situ* 観察等の重要性と有用性を再認識させられました。また、年度末の多忙な時期にもかかわらず約90名の参加をいただきました。これもひとえに皆様方のご期待とご理解の賜物と深く感謝申し上げます。次第です。

今回のシンポジウムは世界的な経済危機が私たちの生活をも脅かしかねない厳しい状況の下で開催されましたが、その状況は今も続いています。電子顕微鏡やシンクロトロン放射光を用いたナノ計測・分析支援と経済危機の間には隔たりがあるかに思えます。しかし、科学技術の成果が現下の实体经济を支え、その将来を拓くであろうことを考えますと、私たちもそのことを肝に銘じて今後共より一層皆様のご期待にそえますよう努力する所存です。益々のご指導、ご鞭撻を宜しくお願い申し上げます。

九州シンクロトロン光研究センター  
副所長 平井 康晴