

NanoTerasu 共用ビームライン BL06U の紹介

公益財団法人高輝度光科学研究センター

ナノテラス事業推進室 利用研究推進グループ 保井 晃、神田 龍彦

Abstract

NanoTerasu の共用ビームライン BL06U は 50～1000 eV の真空紫外から軟 X 線領域の幅広いエネルギー領域で高フラックス、高エネルギー分解能、高空間分解能を有するビームを利用した角度分解光電子分光 (ARPES) 計測が利用可能なビームラインである。B ブランチの最下流にはマイクロ集光ビームが利用でき、かつ、四端子電圧印加機構によるオペランド計測が可能な ARPES 装置が配置されており、共用に供されている。本稿では、BL06U の概要や整備状況のほか、我々 JASRI が進めている、ユーザー実験の利便性向上や測定可能試料の広範化を目的とした高性能化研究について紹介する。

1. 光電子分光・ARPES について

放射光施設には多くの装置があり、様々な測定手法により物質の性質が調べられている。ほとんどの手法が X 線を試料に照射したときに試料から発せられる X 線を検出する中で、光電子分光は試料から発せられる電子（光電子）を検出する数少ない手法の一つである。放射光を用いずとも実験室 X 線源による Al K α 線などの固定エネルギーの X 線を利用することで、物質の性質を知ることができるため、メジャーな実験手法でもある。

光電子分光の概要を説明する。本手法は、あるエネルギー $h\nu$ の X 線を物質に照射したときに、光電効果により物質から放出される光電子のエネルギー

を観測することで、物質内の電子のエネルギーを調べるものである^[1,2]。その原理は、次のエネルギー保存則で表される。

$$h\nu = E_B + \phi_{\text{Ana}} + E_K, \text{ つまり, } E_B = h\nu - \phi_{\text{Ana}} - E_K$$

ここで、 E_B は電子が物質内で有していた束縛エネルギー、 ϕ_{Ana} は光電子アナライザーの仕事関数、 E_K は光電子アナライザーで観測した光電子の運動エネルギーである。 E_B は物質中の元素、化学結合状態などによって値が異なるため、これを調べることで物質の性質を知ることができる。光電子分光は、物質の中の電子を直接取り出し観測するため、物質の電子状態を詳細に評価することが可能である。一方で、X 線を検出する手法と比べると、表面敏感であり、また、電場、磁場、圧力といった外場を印加した状態での測定が難しいという弱点もある。

ここまでの通常的光電子測定の概要であるが、角度分解光電子分光 (ARPES) 測定の場合、さらに光電子の放出角度を分解して検出する。ARPES 測定の模式図を図 1 に示す。この時、光電子の放出角度、エネルギーと物質内で有していた電子の運動量の間に次の関係式が成り立つ。

$$K_{\parallel} = k_{\parallel} = \frac{\sqrt{2m E_K}}{\hbar} \cos \theta$$

$$K_{\perp} \neq k_{\perp} = \frac{\sqrt{2m(E_K \sin^2 \theta + V_0)}}{\hbar}$$

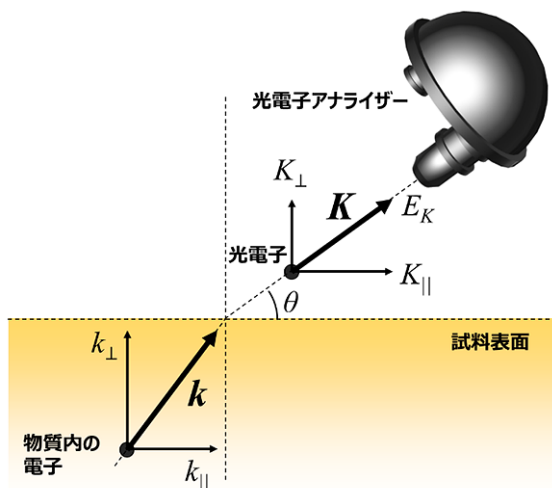


図 1: ARPES 測定の模式図。

ここで、 $K_{\parallel(\perp)}$ は光電子の試料表面平行（垂直）方向の運動量、 θ は試料表面と光電子放出方向のなす角、 $k_{\parallel(\perp)}$ は物質内の電子の試料表面平行（垂直）方向の運動量、 m は物質内の電子の質量、 $\hbar$ はプランク定数、 V_0 は内部ポテンシャルである。この関係式から、物質中の電子がどのように運動しているかがわかる。この情報は、超伝導体の形成機構やトポロジカル絶縁体の表面伝導機構など、様々な魅力的な物性起源の解明に必要なものである。ARPES測定を高効率かつ高精度に測定するには、光電子を高スループットで高エネルギー分解能かつ高角度分解能で検出可能な光電子アナライザーだけでなく、ビーム性能としても、高フラックス、高エネルギー分解能、高空間分解能が必要である。

2. BL06Uの概要

NanoTerasu 共用ビームラインは量子科学技術研究開発機構（QST）と高輝度光科学研究センター（JASRI）が共同で運営を行っており、2025年3月3日より共用利用が開始された^[3]。そのうちの1つである、軟X線ナノ角度分解光電子分光ビームラインBL06Uは50～1000 eVの真空紫外から軟X線領域の幅広いエネルギー領域でARPES計測が可能なビームラインである^[4]。光源として、Apple-II型アンジュレータが用いられており、水平・垂直直線偏光、および左右円偏光を利用可能である。

図2にBL06Uのビームラインレイアウトを示す。本ビームラインには、共用実験に供されているBブランチと2026年度の共用開始が計画されている100 nm程度の集光ビームの利用を目指したナノARPES

装置を有するAブランチがある。本稿では、ビームライン光学系、およびBブランチ最下流に配置されているマイクロARPES装置に焦点を絞って紹介する。

BL06Uでは、分光器として等刻線間隔平面回折格子を用いた可変偏角平行化分光器が採用されており、ビームの縦方向の角度発散を自由自在に制御可能である。これにより、エネルギー分解能を優先させるモード（高発散角モード）と試料位置でのフラックスを優先させるモード（低発散角モード）といった異なる性格のモードを全エネルギー領域で使い分けることが可能である。回折格子としては1200本/mmと600本/mmの刻線本数のものを備えている。回折格子で分散されたビームはM3ミラーでAまたはBブランチに振り分けられ、各々の出射スリット（S2）位置に集光される。ビームのエネルギー分解能は、S2の縦スリット開口幅に依存する。例えば、ビームエネルギー $E = 65 \text{ eV}$ で1200本/mmの回折格子のときに、S2縦開口幅を $30 \mu\text{m}$ に設定することで、ビームのエネルギー分解能 $\Delta E \sim 1.1 \text{ meV}$ （つまり、 $E/\Delta E \sim 60000$ ）と非常に高分解能なビーム性能が達成されている。S2で分光されたビームはARPES装置の直前に設置されたMonolithic Wolter型ミラー（M4）で集光され、試料に照射される。M4ミラーによるビームサイズの縮小比は約1/10である。すなわち、S2開口が $100 \mu\text{m}$ （縦） $\times 100 \mu\text{m}$ （横）のとき、試料位置では $10 \mu\text{m}$ 角程度の集光ビームが得られる。一方、薄膜試料など、ビームサイズに拘りが無い場合は、S2横開口を広げることで、ビームエネルギー分解能は維持した状態で高強度のビームを利用した効率良い測定も可能である。

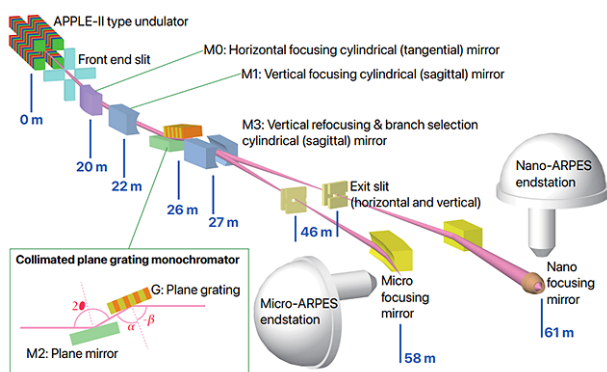


図2：BL06Uのビームラインレイアウト^[4]。

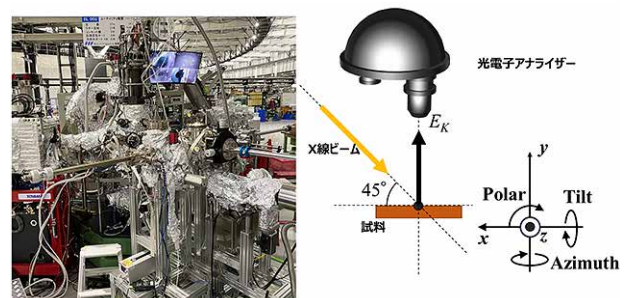


図3：マイクロARPES装置の写真と試料周りの座標系。本装置にはR4000光電子アナライザーと6軸試料マニピュレータを搭載している。

図3にマイクロARPES装置の写真、および試料周りの配置構成を示す。本装置にはX、Y、Z、Polar (θ)、Tilt、Azimuthの6軸電動マニピュレータ（ただし、Azimuthは手動）とシエンタオミクロン社製のR4000光電子アナライザーが備わっている。本装置は、元々は広島大学HiSORで低エネルギーレーザーを用いたARPES研究に利用されていた装置であり、本アナライザーの高エネルギー分解能、高角度分解能を活かして、数々の先端研究がなされていた^[5]。さらに、NanoTerasuに移設後、試料マニピュレータには、世界的に見ても数少ない電流電圧印加によるオペランド測定が可能な四端子電圧印加機構が搭載された。試料は液体ヘリウムフローにより冷却可能であり、試料最低温度は約15Kである。試料の表面処理として測定槽での劈開のほか、試料準備槽で、アニール処理が可能である。アニール処理にはセラミックヒーターによる背面輻射加熱（ $\leq 600^{\circ}\text{C}$ ）と試料通電加熱（ $\leq 10\text{A}$ ）の2種類がある。

なお、光電子アナライザーは、2026A期にシエンタオミクロン社のDA30アナライザーにアップグレードされる予定である。このDA30アナライザーは、R4000アナライザーには無い、ディフレクター機能を有することが特徴である。広い波数空間の電子状態を調べるためには、広い角度範囲の光電子を検出する必要がある。R4000アナライザーでは、アナライザースリットと平行方向の約 $\pm 15^{\circ}$ の電子を取り込むことが可能であるが、アナライザースリットと垂直方向は取り込み角度が小さいため、広い角度範囲の光電子を検出するには、その方向に試料を回転させる必要がある（BL06UではTilt方向）。一方で、DA30アナライザーの場合はディフレクター機構により、試料を回転せずとも、アナライザースリットと垂直方向に関しても約 $\pm 15^{\circ}$ の広い角度範囲の光電子を取得可能である。この機能はマイクロ集光ビームを用いた局所測定を行っているときに非常に効果的である。特に、試料に不均一なドメイン構造がある場合、試料を回転させることでX線照射位置がずれ、ドメイン間にまたがった測定となってしまう恐れがあるが、DA30であれば、試料位置は固定のため、単一ドメインでの測定を容易に実施可能である。なお、DA30アップグレード後には、さ

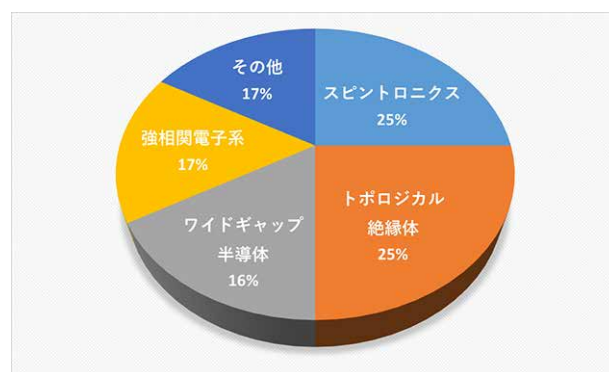


図4：2025A期のユーザー層割合。

らに光電子の持つスピン自由度を分解可能なスピン検出器が導入される予定である。

2025A期におけるユーザー実験の研究分野の割合を図4に示す。トポロジカル絶縁体、スピントロニクス材料、ワイドギャップ半導体、強相関電子系が大部分を占めている。ただし、それらの境界線は曖昧であり、あくまでも参考程度としていただきたい。

3. ユーザビリティ向上・試料環境整備のための高性能化

我々JASRIスタッフは主にユーザー成果の最大化を目的とし、ユーザー実験の利便性向上や測定可能試料の広範化などに主眼を置いて、ARPES装置の高性能化を行っている。これまでに我々は、1. 光学系制御・ARPES測定連動ソフトウェア、2. ビーム同軸観察ミラー機構、3. 四端子電圧印加ホルダーの開発を行った。

3.1 光学系制御・ARPES測定連動ソフトウェア

これまで述べたとおり、幅広い3次元波数空間の電子状態を調べるためには、試料をTilt回転させてARPES測定を行う k_x - k_y 面内スキャン、および入射光ビームエネルギーを変えて測定を行う k_z スキャンを行う必要がある。これには、それぞれ、試料マニピュレータ駆動機構の制御、ビームライン光学系機器の制御と光電子アナライザーの制御を連動させる必要がある。

NanoTerasu BL06UとSPRING-8 BL09XU（HAXPES I ビームライン）では、ビームのエネルギー領域が大きく異なるものの、光電子測定手法には多くの

共通点がある。例えば、SPring-8 BL09XUでは、SPring-8 パートナーユーザー課題の下で、軟X線領域では盛んにおこなわれている共鳴光電子分光計測を硬X線領域に拡張した共鳴HAXPES計測手法の開発が行われた^[6-8]。その手法は、元素吸収端付近のエネルギー領域でビームエネルギーを掃引しながら、光電子測定を行うというものであり、 k_z スキャンと必要な技術要素は同じである。また、SPring-8 BL09XUでは1 μ m角のマイクロ集光ビームを利用した3次元空間分解電子状態解析も行われており、試料位置を走査しながら光電子強度を取得するソフトウェアの整備を行っている。また、どちらのビームラインでも、光学系制御にBL-774、光電子アナライザー制御にシエンタオミクロン社のアナライザーが利用されているという共通点がある。そこで、SPring-8 BL09XUおよびBL46XU (HAXPES II) で利用しているビームライン制御用Webアプリケーションソフトウェア^[9]（以降、単にビームライン制御ソフトウェアと呼ぶ）をNanoTerasu BL06U用に改造し導入した。SPring-8 BL09XUのユーザー層とNanoTerasu BL06Uのそれは大きく重なるため、ソフトウェアの共通化は、ビームライン・施設間の横断利用の促進に繋がると考える。

導入したビームライン制御ソフトウェアは以下のものである。

i. Sequence Measurement Control (図5)

光電子測定と各種光学系機器および試料マニピュレータの制御を連動したシーケンシャルな自動測定を行う。3次元波数空間のバンドマッピング測定などに利用される。

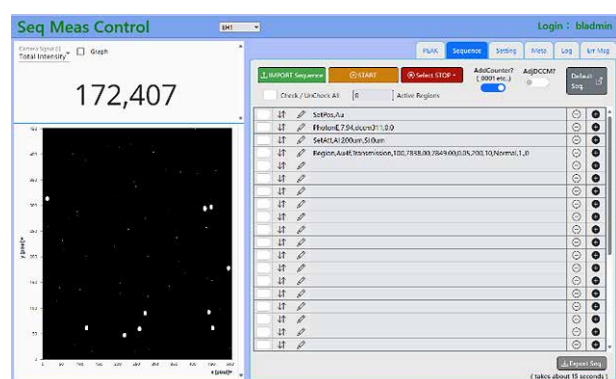


図5：光学系制御とAPRES測定の連動Webアプリケーション“Sequence Measurement Control”の画面。

ii. 2D Mapping

試料表面方向に2次元的に走査しながら光電子強度を取得する。試料中の測定位置決めに利用する。

iii. Control optics

測定に利用するビームエネルギーに応じて、アンジュレータギャップ幅、M2・回折格子の角度などの光学系機器を制御する。

iv. Stage scan

光電子強度やビーム強度を利用して、光学系機器、試料位置を調整するために使用する。

v. Energy scan

全電子収量法による吸収測定を行うために使用する。

さらに、ソフトウェア導入に先だってアナライザー制御ソフトウェアをSPring-8 BL09XUで利用されているシエンタオミクロン社製のPEAKソフトウェアに更新した。これは従来使用されていたシエンタオミクロン社のSESソフトウェアには無い光電子測定と外部機器との連携機能を持つものである。

移植・導入されたビームライン制御ソフトウェアは、これまでにSPring-8でユーザー利用されてきたもので、主要なトラブルは修正してきたため、NanoTerasu BL06Uへの導入において、大きな障害は無いであろうと甘く考えていたが、光学系制御機器が異なることや、ネットワーク・PC環境の違いにより、大きな修正が必要であることが判明した。そのため、様々な最新技術を導入することで、ソフトウェアの安定化を図った。その結果、ソフトウェアのインターフェイスはほぼ同じであるが、中身はより進化したものになっている。進化した技術はBL09XUのソフトウェアにも相互にフィードバックされる予定である。さらに、試料マニピュレータ制御ソフトウェアや、各種光学系機器の状態監視ソフトウェアなども独自開発している。

3.2 ビーム同軸観察ミラー機構

試料内の元素や組成に不均一がある試料や、単結晶試料であっても劈開や破断により得られた表面、デバイス構造を有する薄膜試料などでは、電子状態に空間的なドメイン構造ができる。測定したい

ドメインが非常に小さい場合、測定希望箇所にピンポイントにビームを照射する必要がある。マイクロARPES装置における試料位置出しの際に、試料観察のためのカメラが光電子アナライザー側に設置されたものしか無く、アナライザースリット越しに観察するため、不鮮明な像しか得られないことから、試料位置出しに多くの時間を要していた。いくら高フラックスビームを利用でき短時間に測定を完了できるとしても、試料の位置出しに多くの時間を割いてしまうようであれば、効率の良い実験はできない。そこで試料位置出しの高速化に繋がる高性能化を行った。

SPring-8 BL09XU（および統合前のBL47XU）において、同じ困難を克服するために、ビーム同軸から試料表面を観察する機構を開発した^[10]。この機構は、ビーム軸に45°傾けた穴あきミラーを配置し、ビーム軸と垂直方向から穴あきミラーを通して試料表面を長作動距離顕微鏡により観察するものである。ビームはミラーの穴の中を通して試料に照射される。ユーザー試料の位置出しの前に、X線照射により発光するCe:YAGなどの物質を使ってビーム位置を記録しておけば、ユーザー試料の測定希望箇所をその位置に配置することで、ビームを照射することが可能である。その後、ビーム光軸方向に走査し、アナライザーレンズ軸に試料を位置させれば試料の位置出しが完了する。長作動距離顕微鏡の分解能は数十 μm のため、より詳細な位置出しには、3.1章の2D Mappingソフトウェアが必要であるが、位置出しに要する時間は大幅に短縮される（BL09XUでは約4時間要していたものが30分に短縮された例がある）とともに、その信頼性は大きく向上する。本機構は2025B期からの利用開始予定である。

3.3 四端子電圧印加ホルダー

上述のとおり、BL06Uの試料マニピュレータには四端子電流電圧印加機構が搭載されている。これにより、デバイス動作下のバンド分散解析が可能である。例えば、グラフェン試料に電圧を印加することで、電子を注入しディラックコーンの位置を変化させ、表面電気伝導を変化させることができるが、その時のバンド構造変化を直接観測した先行研究が

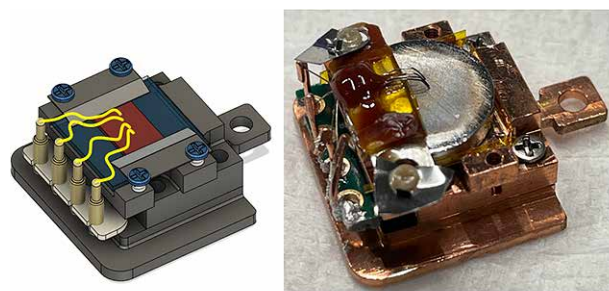


図6：四端子電圧印加ホルダーの模型図と写真。

ある^[11]。これまで、共用ユーザー向けの四端子試料ホルダーが無かったため、その開発を行った。そのプロトタイプの実験図、および写真を図6に示す。ホルダー下部の電極がホルダー内の端子台と繋がっており、そこから試料に配線することで、試料に電流/電圧を印加可能である。このホルダーを用いた予備測定を実施しており、四端子法を用いた電流電圧測定を行いながら、ARPES測定を行うことに成功している。さらに、本試料ホルダーを用いれば、全電子収量法によるX線吸収分光測定も可能である。今後も予備測定を通して試料ホルダーの改良を続けていき、ユーザー共用に繋げる。

4. 今後の展望

NanoTerasu 共用ビームラインBL06Uの現状について紹介した。本年2025年3月に共用を開始して、本稿執筆時点で4か月ほど経過しており、いくつかの成果について論文投稿されている。新しいビームラインが稼働し始めて初期ということもあり、多くのトラブルが起り、ユーザーの皆様にはご迷惑をおかけしているが、徐々にトラブルの頻度も収まってきている。今後も、QSTスタッフの皆様と情報共有をより密にし、連携して、不具合事象の修正や高性能化を進めていきたい。BL06Uでは、今後も大きな改造・高度化が実施される予定である。2026年度からは、Aブランチで100nm程度のナノ集光ビームの利用を目指したナノARPES装置が共用開始される予定である。ビームの集光にゾンプレートではなくミラーを用いる予定であり、非常に明るいナノ集光ビームを利用した局所ARPES解析が可能となる。また、試料の搬送の自動化やスピン検出器の導入も予定されている。一方、Bブランチ

のマイクロARPES装置は上述の通り、DA30アナライザーへの更新やスピン検出器の導入が予定されている。また、試料準備槽の機能充実も予定されている。今後も多くの皆様のご利用を期待している。

謝辞

本稿の執筆にあたり、QST NanoTerasuセンターの北村未歩 博士、岩澤英明 博士、西野史 博士、堀場弘司 グループリーダーから専門的・技術的コメントをいただきました。原稿の全体構成についてはJASRIナノテラス事業推進室の本間徹生 グループリーダーと大石泰生 室長から多くのアドバイスをいただきました。ビームライン制御ソフトウェアの改造・導入につきましてはJASRI分光・イメージング推進室の藤保友希 様のご尽力をいただきました。ここに深く御礼申し上げます。また、マイクロARPES装置の開発にご尽力いただいた広島大学HiSORの方々に感謝いたします。

参考文献

- [1] S. Huefner: “*Photoelectron Spectroscopy, Principles and Applications, 3rd ed.*” (Springer Verlag, Berlin, 2003).
- [2] 高桑雄二 編著: X線光電子分光法 (講談社サイエンティフィック, 2018) .
- [3] 宮脇淳 他、放射光、**37(2)** (2024) 95.
- [4] K. Horiba *et al.*: *J. Phys.: Conf. Ser.* **2380** (2022) 012034.
- [5] H. Iwasawa *et al.*: *Ultramicroscopy*, **182** (2017) 85-91.
- [6] A. Yasui *et al.*: *J. Synchrotron Rad.*, **30** (2023) 1013.
- [7] 三村功次郎 他、SPRING-8/SACLA 利用者情報、**28(1)** (2023) 12.
- [8] E. Ikenaga *et al.*: *Sync. Rad. News*, **31** (2018) 10.
- [9] A. Yasui *et al.*: *SPRING-8/SACLA Annual Report FY2023* (2024) 33.
- [10] A. Yasui and Y. Takagi, *SPRING-8/SACLA Annual Report FY2017* (2018) 90.
- [11] 例えば、F. Joucken *et al.*: *Nano Lett.* **19** (2019) 2682.

保井 晃 YASUI Akira

(公財) 高輝度光科学研究センター
ナノテラス事業推進室 利用研究推進グループ
〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉468-1
[兼] 分光・イメージング推進室 光電子分光計測チーム
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 050-3496-8842
e-mail : a-yasui@jasri.jp

神田 龍彦 KANDA Tatsuhiko

(公財) 高輝度光科学研究センター
ナノテラス事業推進室 利用研究推進グループ
〒980-8579 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉468-1
TEL : 050-3502-6481
e-mail : tatsuhiko.kanda@jasri.jp