

文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ (ARIM)

ARIM

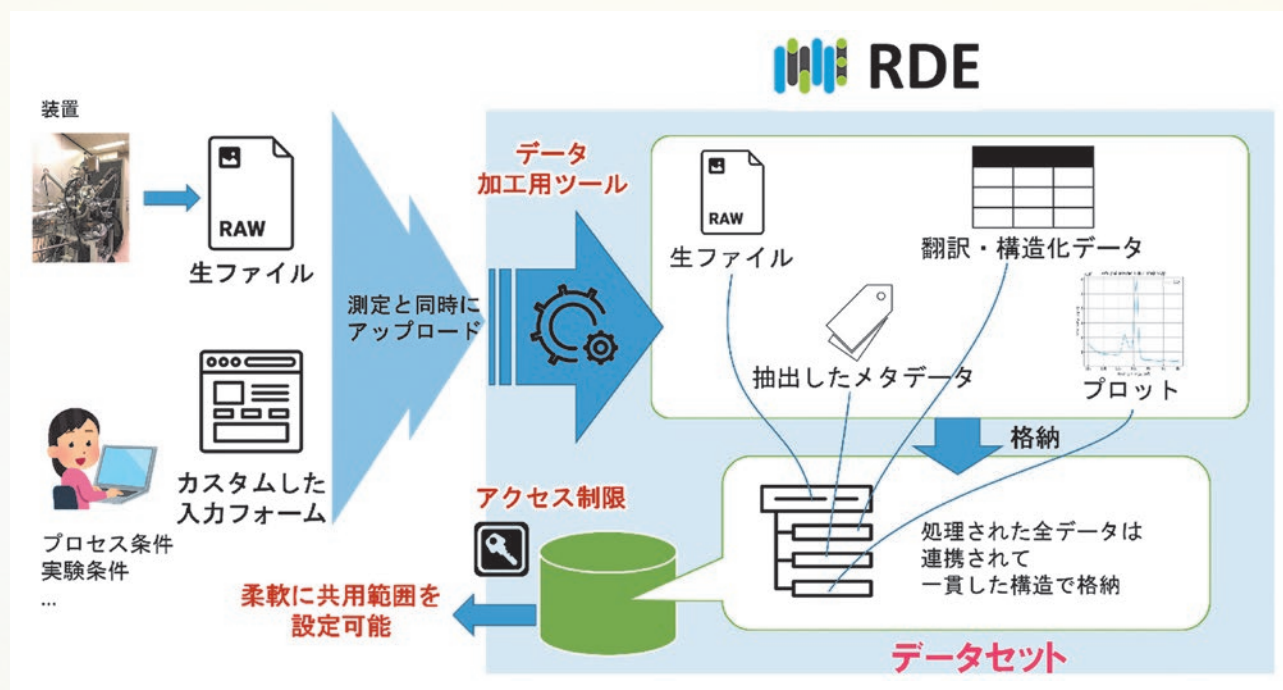
データリファレンスガイド

データ利活用のための推奨測定条件・選定メタデータ

X線光電子分光装置: シエンタオミクロン_HIPP-3編

データリファレンスガイドのご案内

材料研究における新たなアプローチとして、データ駆動型材料研究が注目されています。この手法は、大量のデータを活用し、材料の特性や挙動を解析・予測するもので、従来の実験や理論に基づく研究に加え、データの力を活用して研究の効率化や新材料の発見を目指すものです。こうしたデータ駆動型材料研究の推進に向けて、ARIM 事業では先端的な材料計測装置の共用化を進め、得られたデータを将来的に広くシェア・活用できる基盤（システム名：RDE）を構築しました。



しかし、異なるメーカーやユーザーによって取得されるデータを有効に利用するためには、データ取得方法や装置メタデータの共通化が重要です。データの記録項目が不足していたり、装置ごとの設定が異なると、データの比較や再利用が難しくなります。そこで、各メーカーの装置ごとに、推奨される測定方法や記録項目のガイダンスとなる「データリファレンスガイド」を作成いたしました。

このガイドに基づいて取得されたデータは、異なる装置で得たデータとも統合しやすく、データ駆動型材料研究の基盤として役立つことが期待されます。

なお、本リファレンスガイドはマテリアル先端リサーチインフラ（ARIM）に参画する機関が保有する装置に限って作成されており、限定された装置のみに適用されます。

用語の定義

・推奨測定条件：

データ利用を行う際に、対象の材料に応じた測定が行えるように設定された推奨の測定条件（例：サンプルサイズ、前処理、計測条件のほか装置の設定条件など）

・ARIM登録ファイル：

さまざまな測定装置で出力・保存可能なデータフォーマットのうち、ARIMにおいてRDEへ登録するときの指定フォーマット（拡張子）。

・手入力データ：

RDEでユーザーが直接入力する画面において表示される試料に関する詳細情報（例：試料の前処理方法や測定の補助情報など）。

The screenshot displays the RDE data entry interface. It is divided into two main sections: 'Basic Information' (基本情報) and 'Experiment Information' (固有情報). The 'Basic Information' section includes fields for 'Entry Date' (2023-02-16 JST), 'Instrument' (電子分析電子顕微鏡), 'Data Input Source' (KATSUNAMI, Shigeyuki (NIMS)), 'Data Name' (), 'Sample ID' (), and 'Measurement' (Resolution check at 80 kV). The 'Experiment Information' section includes fields for 'TEM Image Type' (), 'Tilt Angle' (), 'Defocus' (), 'STEM Image Type' (BF), 'Tilt Angle' (), 'Defocus' (), 'Electron Gun' (Schottky emission gun), 'Probe Current' (5 pA), 'Magnification' (1), and 'Measurement Temperature' ().

電子ラボノートのような
記録フォームで便利!

データ登録者

実験固有情報/
装置固有情報

・試料の前処理条件
・測定の補助情報
など

図：RDEにおける手入力データの入力画面

・選定メタデータ：

第三者による再現性の確保やデータ解析において特に重要な計測条件および装置情報に関するメタデータ。

・選定メタデータのjsonスキーマ：

選定メタデータをRDEで取り込むためのjson形式によるスキーマ定義で、metadata-def.jsonで規定。

```
{
  "comment": {
    "name": {
      "ja": "コメント",
      "en": "Comment"
    },
    "schema": {
      "type": "string"
    },
    "description": "コメント/Comment",
    "url": "http://nims.go.jp",
    "variable": 1
  },
  "datetime": {
    "name": {
      "ja": "測定日時",
      "en": "Measurement_Time"
    },
    "schema": {
      "type": "string",
      "format": "date-time"
    },
    "description": "測定日時/Measurement_Time",
    "url": "http://nims.go.jp",
    "variable": 1,
    "action": "get_datetime(datetime)"
  },
  "operator": {
    "name": {
      "ja": "オペレーター氏名",
      "en": "Operator_Name"
    },
    "schema": {
      "type": "string"
    },
    "description": "オペレーター氏名/Operator_Name",
    "url": "http://nims.go.jp",
    "variable": 1
  }
}
```

メタデータスキーマ

```
{
  "constant": {
    "value": "Sample"
  },
  "variable": {
    "datetime": {
      "value": "2019-03-04T11:25:43"
    },
    "operator": {
      "value": "semi_stu"
    },
    "instrument": {
      "value": "JSM-6510"
    },
    "acceleratingVoltage": {
      "value": 20.0,
      "unit": "kV"
    },
    "magnification": {
      "value": 4000
    },
    "signal": {
      "value": "SEI"
    },
    "stagePositionX": {
      "value": -12.036,
      "unit": "mm"
    },
    "stagePositionY": {
      "value": 1.036,
      "unit": "mm"
    }
  }
}
```

出力メタデータ

図：RDEにおける選定メタデータの定義スキーマとそれから得られる出力メタデータ

// 概 要

装置名	X線光電子分光装置 (XPS)
製造メーカー	シエンタオミクロン株式会社
製造モデル	HIPP-3
対象物	半導体、金属、絶縁体、有機、高分子材料など、様々な材料に適用可能。
測定対象	固体、薄膜、粉体
サンプル調整	非破壊
測定環境	超高真空下
測定情報	元素同定、元素定量、化学結合状態、化学反応リアルタイム測定

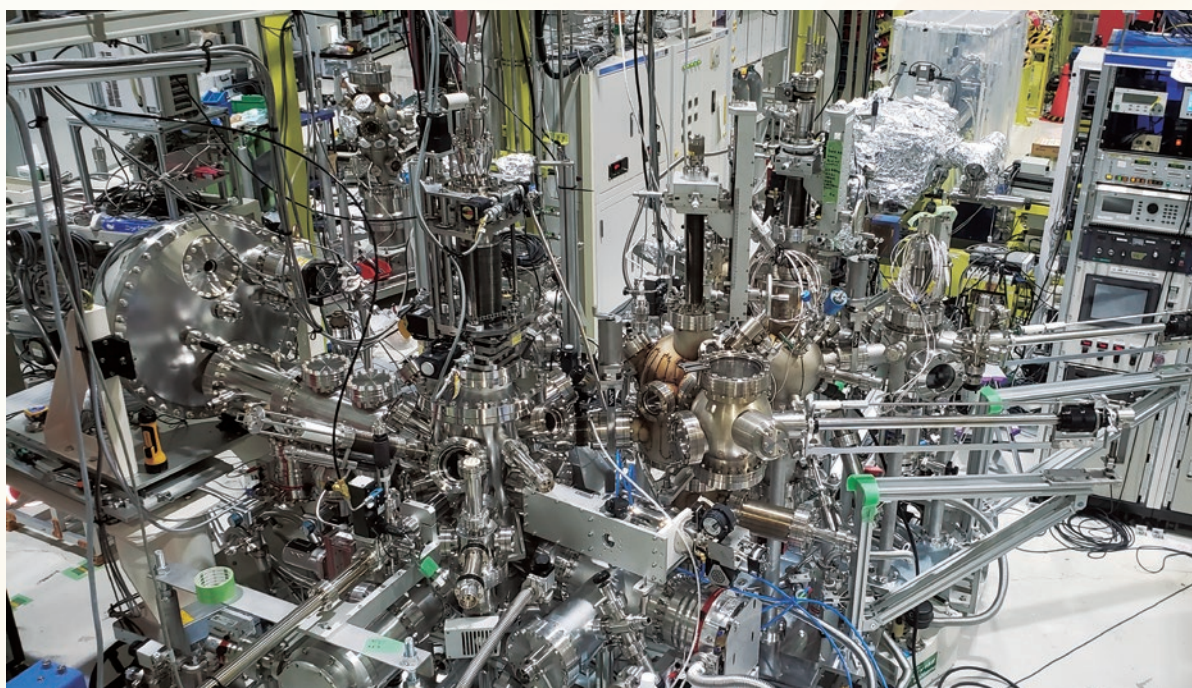
// 保有機関

機関名	機器 ID	ARIM 装置名	モデル
日本原子力研究開発機構	AE-010	表面化学実験ステーション	HIPP-3

// 装置の特長・目的

X線光電子分光法 (XPS) は固体表面 にX線を照射して表面から放出される光電子のエネルギーを分析することで、固体表面の元素同定や元素定量および化学結合状態を分析する手法です。日本原子力研究開発機構の専用ビームラインであるBL23SUの表面化学実験ステーションでは、放射光の光子エネルギー <1500 eV の軟X線領域のエネルギーを用いることで、試料表面からおよそ 10 nm の深さまでの表面近傍の情報を得られます。光源として放射光を用いていることから高分解能かつ短時間でのスペクトル測定が可能です。それにより、超高真空中で試料表面を反応ガスに曝しながら、放射光を用いて光電子分光測定を行うことで、試料表面で反応が進む過程をリアルタイムで追跡可能です。また、表面反応には、このようなガス曝露だけでなく並進エネルギーが制御された分子線も利用することができます。

// 装置外観



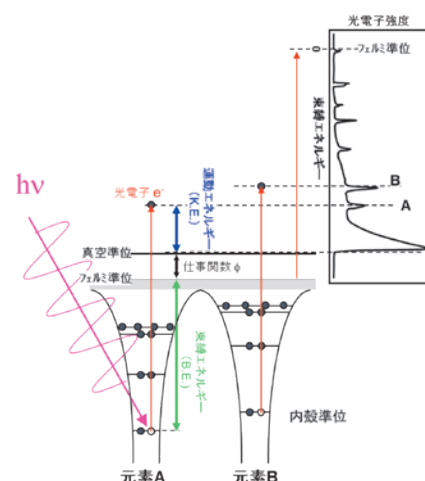
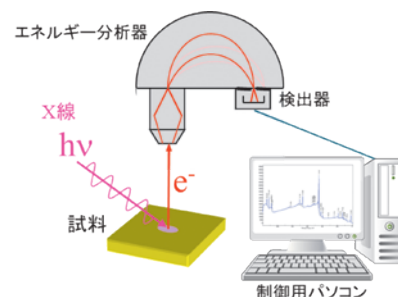
計測原理

XPSはX線を試料に照射して試料表面から放出された光電子の運動エネルギーを分析する手法です。X線の励起エネルギー ($h\nu$) と試料表面に存在する元素が持つ電子軌道の束縛エネルギー (B.E.: Binding Energy) とその電子軌道から放出された光電子の運動エネルギー (K.E.: Kinetic) との間には下記のような運動エネルギー保存則が成り立ちます。

$$h\nu = K.E. + B.E. + \Phi \quad (\Phi: \text{試料の仕事関数})$$

X線の励起エネルギーは既知であるため、光電子の運動エネルギーを測定すれば光電子が存在した電子軌道の束縛エネルギーが求まります。この束縛エネルギーは元素固有の値を持つため、元素の同定を行うことができます。また、検出された各元素のピーク面積とそれらの相対感度係数を用いて元素定量を行うことができます。さらに、同一元素の同一軌道の束縛エネルギーは、注目している原子の結合状態により変化(化学シフト)するため、この変化量を読み取ることで元素の化学結合状態を分析することができます。

(引用文献：日本表面科学会編(1998) 表面分析技術選書 X線光電子分光法 丸善出版、ISBN 978-4621081556)



推奨測定条件

- サンプルサイズ：

横方向に5 mm × 10 mm、厚さ1 mm 程度

- 前処理：

試料はMo製の押え板でMo製ホルダー（Ferrovac製：<https://www.ferrovac.com>）に固定する（図A）。真空中で試料加熱を行う場合は、ホルダーからの脱ガスを抑えるため、ホルダーをアルコールおよび超純水で洗浄後、試料をマウントせずに超高真空中で加熱したのち、取り出して試料をマウントする。

- 推奨測定条件：

推奨実験条件を表1、2に示す（ピンクでハッチングされた項目が該当条件）。

図A：試料の試料ホルダーへのセッティング方法について

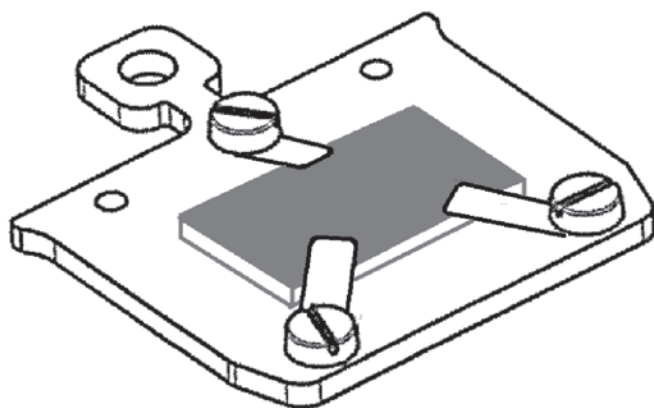


表 1 : Wide scan の推奨実験条件

<wide scan> normal

項目名		単位	値
装置機種名			HIPP-3 AE-010 表面化学実験ステーション
装置メーカー名			Scienta Omicron
提案機関			JAEA
X線源			放射光(700eV)
X線出力		W	—
Pass Energy		eV	100
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag3d _{5/2} のFWHM	eV	—
	計算値	eV	—
	Auフェルミ端	eV	0.3
計測するBinding Energyの最小値		eV	−10
計測するBinding Energyの最大値		eV	600
Energy Step		eV	0.5

表 2 : Narrow scan の推奨実験条件

<narrow scan> normal

項目名		単位	値
装置機種名			HIPP-3 AE-010 表面化学実験ステーション
装置メーカー名			Scienta Omicron
提案機関			JAEA
X線源			放射光(700eV)
X線出力		W	—
Pass Energy		eV	100
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag3d _{5/2} のFWHM	eV	—
	計算値	eV	—
	Auフェルミ端	eV	0.3
Energy Step		eV	0.025

// 較正 / キャリブレーション

標準サンプル	高純度のAu箔またはAu板
実施者	装置管理者
実施頻度	下記1. 真空解放の度に実施。 下記2. 放射光のエネルギー条件変更の度に実施。
較正方法	清浄なAu表面を用いてエネルギー分解能、感度、ピークの束縛エネルギーの位置を確認する。清浄化はアルゴンイオンスパッタ-アニール処理を用いて行う。 1. アナライザー仕事関数決定: Au 4f7/2 narrow scanスペクトルをMg-Kα X線光源を用いて測定し、ピーク位置がBinding energyで84.0 eVとなるように測定スペクトルの横軸を補正する。 2. 放射光光子エネルギー決定: 放射光の光学系調整後、Au試料の価電子帯を測定し、Fermi端の位置から光子エネルギーを決定する。

// 運用条件 (主な消耗品)

LEED用LaB₆ フィラメント

Ar イオン銃フィラメント

中和銃フィラメント

MCP 検出器

分子線ノズル

イオンゲージフィラメント

2 データ編

// 登録ファイル

ARIM 登録ファイル
測定データ：*.txt
追加メタデータ：*_metadata.json

// 手入力データ

測定にかかる手入力項目は、以下の情報を入力する項目を設けています。

手入力 パラメータ	日本語語彙	英語語彙	入力条件	単位
Annotation	アノテーション	Annotation		
Form	サンプル形状	Form	[粉末, フィルム, バルク, 線材, その他]	
Sample Mounting	サンプルのホルダーへのマウント方法	Sample Mounting		
Charge Neutralization On	帯電中和の有無	Charge Neutralization On		
Ion Sputtering On	イオンビームスパッタの有無	Ion Sputtering On		
Ion Beam Species	イオンビームスパッタのイオン	Ion Beam Species		
Ion Beam Acceleration Voltage	イオンビームスパッタのイオン銃の加速電圧	Ion Beam Acceleration Voltage		V
Ion Sputtering Time	イオンビームスパッタ時間	Ion Sputtering Time		sec
Take off Angle (TOA)	サンプルホルダーとアナライザーの角度関係(取り出し角)	Take off Angle (TOA)		deg
Vacuum	真空度	Vacuum		10 ⁻⁸ Pa
BIC-Fitting On/Off	BIC-Fittingの有無	BIC-Fitting On/Off	BIC-Fittingを実行する場合はチェックしてください。	
limit_energy_range	BIC-FittingのBinding Energy 範囲	BIC-Fitting Binding Energy Range	BIC-Fittingの対象とするBinding Energy範囲の上限値を指定してください。default: 200.0	eV
remark	備考	Remark	測定にかかる特記事項があれば記入してください	

// 選定メタデータのjsonスキーマ

ARIMのメタデータ取得にかかる選定メタデータのmetadata-def.jsonは、以下のように定義されています。

出力計測パラメータ	日本語語彙	英語語彙	単位
RAW File Name	RAWファイル名	RAW File Name	
Version	ソフトウェアバージョン	Software Version	
Region Name	リージョン名	Region Name	
Lens Mode	レンズモード	Lens Mode	
Pass Energy	パスエネルギー	Pass Energy	
Number of Sweeps	積算回数	Number of Sweeps	
Excitation Energy	励起光エネルギー	Excitation Energy	
Energy Scale	エネルギースケール	Energy Scale	
Acquisition Mode	データ取得モード	Acquisition Mode	
Center Energy	エネルギー中央	Center Energy	eV
Low Energy	低エネルギー端	Low Energy	eV
High Energy	高エネルギー端	High Energy	eV
Energy Step	エネルギーステップ	Energy Step	eV
Step Time	1ステップあたりの時間	Step Time	msec
Detector First X-Channel	検出器最初のXチャンネル	Detector First X-channel	
Detector Last X-Channel	検出器最後のXチャンネル	Detector Last X-channel	
Detector First Y-Channel	検出器最初のYチャンネル	Detector First Y-channel	
Detector Last Y-Channel	検出器最後のYチャンネル	Detector Last Y-channel	
Number of Slices	スライス数	Number of Slices	
Spectrum Name	スペクトル名	Spectrum Name	
Instrument	装置名	Instrument	
Location	場所	Location	
User	ユーザー名	User	
Sample	試料名	Sample	
Comments	コメント	Comments	
Date	日付	Date	
Time	時間	Time	
Time per Spectrum Channel	チャンネル毎の積算時間	Time per Spectrum Channel	
DetectorMode	検出器モード	Detector Mode	
Name	アナライザーモード	Name of Run Mode	

// データ構造化処理・データ解析

• 運動エネルギーから結合エネルギーへの変換

データ構造化処理時の運動エネルギーから結合エネルギーへの変換は、2 種の方法で装置編の較正 / キャリブレーションで決定した放射光光子エネルギーを登録することで行われる。

A) 放射光光子エネルギーを、測定ソフト (SES) の測定条件表の Excitation Energy に入力して測定データに登録する。

B) 放射光光子エネルギーを入力した JSON 形式の追加メタデータファイルを、データファイルと一緒に RDE に登録する。

ファイル名: “対象データ名_metadata.json”

入力例:

```
{  
  “Excitation Energy”: 放射光光子エネルギー  
}
```

A) と B) が両方登録されている場合は、B) が優先される。

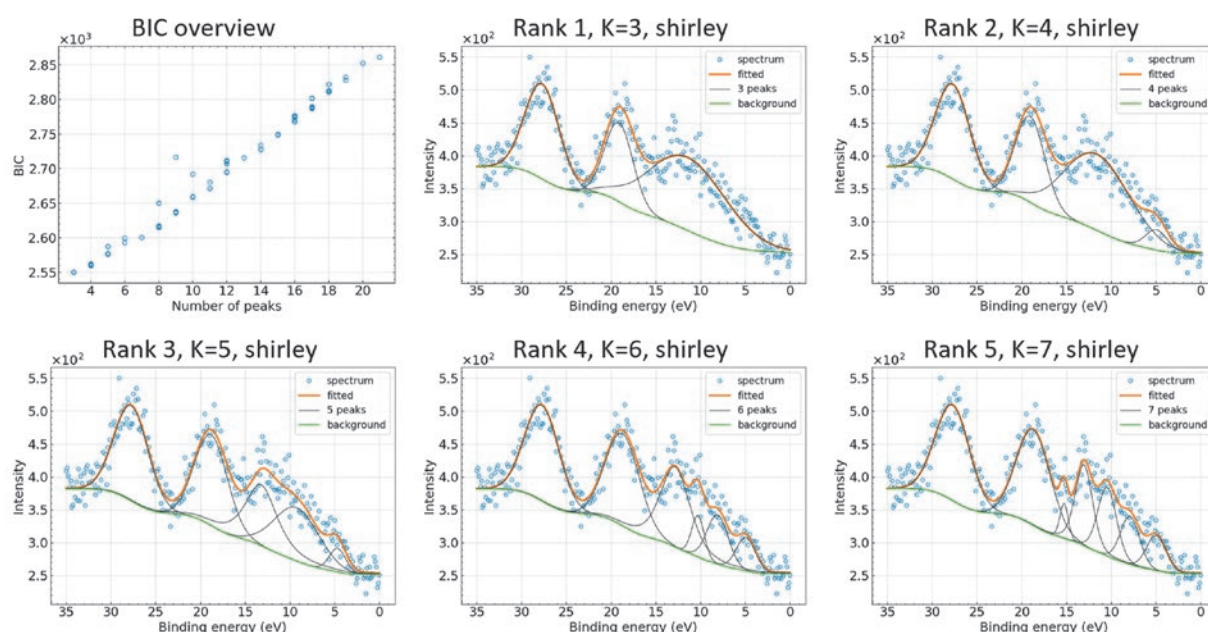
• BIC fitting ツール ^[1]

BIC fitting ツールの概要

XPS のナロースペクトルのピーク分離を自動化した BIC fitting ツールは、さまざまなピーク本数から成る最大 155 通りの初期値を元にピークフィッティングならびにバックグラウンドの自動推定を実行し、その結果をベイズ情報量規準 (Bayesian information criterion, BIC) で評価して上位の解のパターンを出力します。

以下に示す 6 枚の図のうち、左上の図はフィッティングの解を構成するピーク本数 K に対する BIC の値です。BIC はフィッティングの良さとモデルの複雑さをバランスよく評価する指標で、BIC の小さい解はピーク数が少なくかつフィッティングが良好なものとなります。その他の図は解の候補で、BIC の小さい順にランクの値を付け、ピーク本数 K の値とともに示されます。図中の shirley は Shirley のバックグラウンドを用いることを示します。

Fitting models selected by BIC, grouped by number of peaks



参考文献

[1] H. Shinotsuka et al. "Automated information compression of XPS spectrum using information criteria", *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **239**, 146903 (2020).
<https://doi.org/10.1016/j.elspec.2019.146903>

[illegible]



ARIM データリファレンスガイド

(X線光電子分光装置：シエンタオミクロン_HIPP-3 編)

発 行 日 2025年12月 (第1版)

編集・発行 国立研究開発法人物質・材料研究機構
マテリアル先端リサーチインフラセンターハブ
〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1
URL : https://nanonet.mext.go.jp/data_service/
E-Mail : arim_data@ml.nims.go.jp