



文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ (ARIM)

ARIM

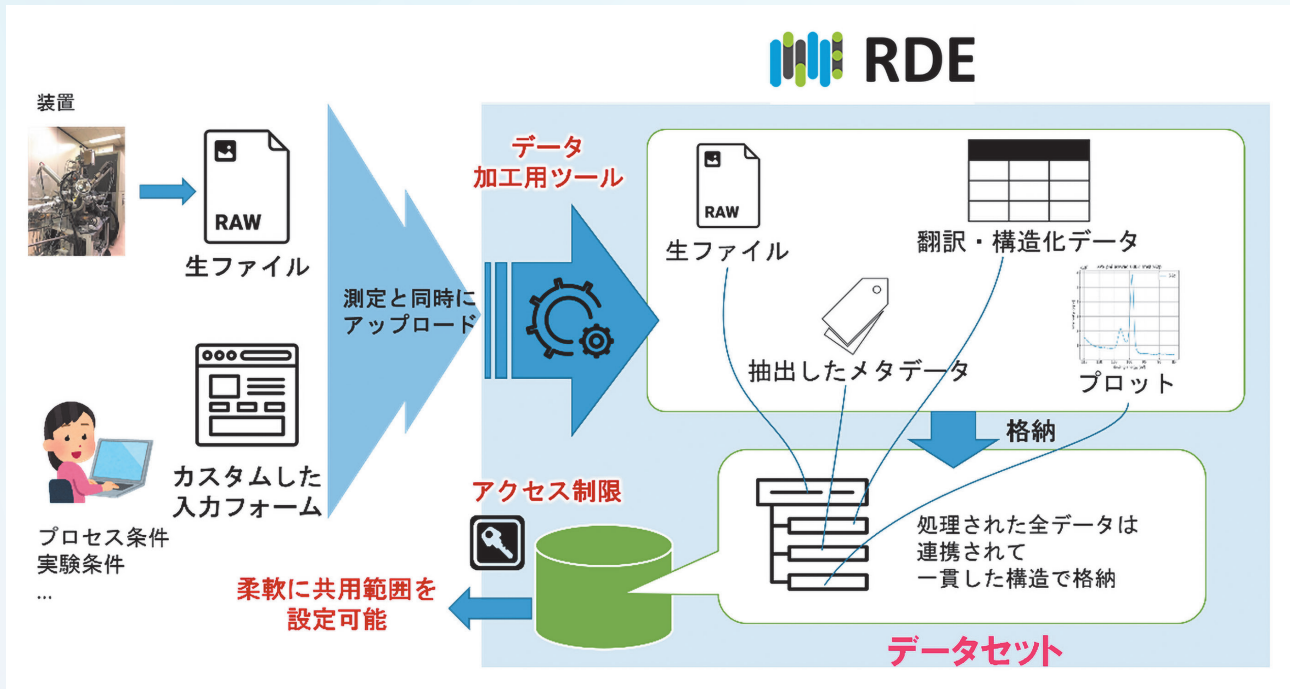
データリファレンスガイド

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:アルバック・ファイ編

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 shows a data entry form with two main sections: '基本情報' (Basic Information) and '固有情報' (Specific Information). The '基本情報' section includes fields for '記入年月日' (2023-02-16 JST), '装置' (嵐原子分析電子顕微鏡), 'データ投入者(所属)' (MATSUNAMI, Shigeyuki (NIMS)), 'データ所有者(所属)', 'データ名', '実験ID' (with a note to enter the experimental ID), and '機種' (Resolution check at 80 kV). The '固有情報' section includes fields for 'TEM像の種類(BF/DF,...)', '照射半角', '対物絞り径(半角)', 'STEM像の種類(BF/ABF/ADF/HAADF,...)', '収束半角', '取り込み半角(内側)', '取り込み半角(外側)', '電子銃' (Schottky emission gun), 'プローブ電流' (5 pA), '検出枚数' (1), '検出方位' (with a note to enter the detection direction), and '測定温度' (with a note to enter the 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": "コメント",
    "ja": "コメント",
    "en": "Comment",
    "schema": {
      "type": "string"
    },
    "description": "コメント/Comment",
    "uri": "http://nims.go.jp",
    "variable": 1
  },
  "dateTime": {
    "name": "測定日時",
    "ja": "測定日時",
    "en": "Measurement_Time",
    "schema": {
      "type": "string",
      "format": "date-time"
    },
    "description": "測定日時/Measurement_Time",
    "uri": "http://nims.go.jp",
    "variable": 1,
    "action": "get_datetime(dateTime)"
  },
  "operator": {
    "name": "オペレーター作成者",
    "ja": "オペレーター作成者",
    "en": "Operator_Name",
    "schema": {
      "type": "string"
    },
    "description": "オペレーター作成者/Operator_Name",
    "uri": "http://nims.go.jp",
    "variable": 1
  }
}
```

```
"constant": {}
"variable": [
  {
    "comment": {
      "value": "Sample"
    },
    "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": -12.836,
      "unit": "mm"
    },
    "stagePositionY": {

```

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	アルバック・ファイ株式会社
製造モデル	Quantes、Quantera II、Quantera SXM、VersaProbe II、VersaProbe III
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

保有機関

機関名	機器ID	ARIM 装置名	モデル
産業技術総合研究所	AT-103	原子層堆積装置_3付帯XPS装置	Quantera II
名古屋工業大学	NI-005	X線光電子分光装置	Quantes
物質・材料研究機構	NM-202	硬X線光電子分光分析装置 (HAX-PES/XPS)	Quantes
物質・材料研究機構	NM-225	X線光電子分光分析装置 (XPS-Quantera SXM)	Quantera SXM
奈良先端科学技術大学院大学	NR-401	多機能走査型X線光電子分光分析装置	PHI5000VersaProbe II
東京大学	UT-308	多機能走査型X線光電子分光分析装置 (XPS) with AES	PHI 5000 VersaProbe III with AES

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により、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。XPSは以下の特長を持ちます。

- 軟X線 (Al線源) を用いると～ 10 nm 程度、硬X線 (Cr線源) を用いると～ 30 nm 程度の検出深さで分析が可能
- Li以上のすべての元素が分析対象
- 検出下限はおよそ0.1 atomic%程度
- 10数 μm 程度の微小領域分析が可能
- 基本的に非破壊分析法であるが、イオンスパッタリングと組み合わせる (破壊法) ことにより深さ方向分析が可能
- 金属、無機物や有機物まで幅広い材料を分析可能
- 超高真空下で分析することが必要

XPSはこれらの特徴を活かして薄膜や積層膜の表面・界面分析、表面処理材料の状態分析、表面における劣化・故障解析などに用いられます。

(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)

装置外観



1 装置編

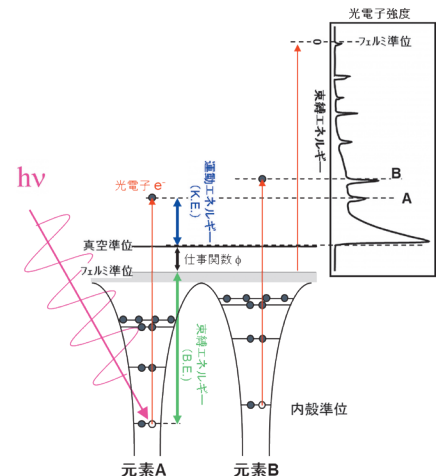
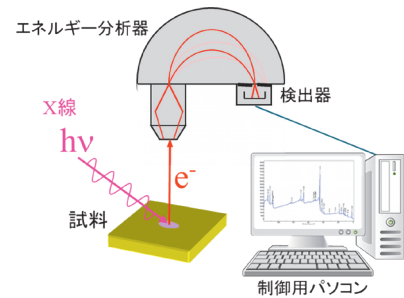
計測原理

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 energy) との間には下記のような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:

(Platen使用時) 横方向に最大60 mm × 60 mm、厚さ5 mm以下のサンプルを使用してください。特に平坦な表面を持つ試料が望ましいです。試料の形状が歪んでいる場合は、試料ホルダー内で試料観察面の傾きと位置を安定させる工夫が必要です。

• 前処理:

試料表面には何も付着させず、触れさせないようにしてください。特に有機物、塩分、皮脂等による汚染を避けるため、素手での取り扱いは避け、清浄なピンセットと手袋を使用してください。試料の試料ホルダーへの固定には原則専用の留め具を使用しますが、どうしても両面テープを使用する必要がある場合は導電性カーボンテープを用いることを推奨します。その他の固定方法を用いる場合、試料への影響がないことを事前に確認することが望ましいです。試料の固定方法や配置については、付帯情報として表1に記載します。

• 計測条件:

XPS測定においては、装置の推奨条件に準拠してください。具体的には、表2-1および表2-2にあるQuantes、Quantrall、VersaProbellの推奨実験条件を使用します。測定中のX線源の選択 (Al K α やMg K α など)、エネルギー分解能 (高分解能モードや広域スキャンモードの選択)、検出角度、及び試料の帯電補正方法は、試料の種類や分析目的に応じて調整してください。

• 推奨実験条件:

表2に、推奨される測定条件を示します (ピンクでハッチングされた項目が該当条件)。

表 1：試料の試料ホルダーへのセッティング方法について

注意事項	注意事項が考慮されなかった場合に起こる現象
試料自体とホルダーとの電氣的接触に注意する。	試料自体とホルダーとの電氣的接触が不良だと、試料帯電の程度が大きくなる。
同一のホルダーに複数の試料を取り付ける場合に、試料の高さをできる限り揃える。	試料の取り付け高さが異なると、分析器による光電子の信号検出感度が異なり、分析領域のサイズも僅かに変化する。
同一のホルダーに複数の試料を取り付ける場合に、試料間の距離をできるだけ離す。	Ion sputtering 時において、削られた成分が隣接する他の試料に付着し、cross contaminationを発生させる。
粉末試料、絶縁体試料などは特に試料の取り付け方を注意し、試料/粉粒サイズ、帯電防止策、押し固め方、ワッシャの利用など試料方法を統一する。	試料の取り付け方のばらつきに応じて、試料帯電の程度もばらつく。
励起源の大きさ、分析器の実視野サイズ (Field of View; FoV) ないしは分析している領域の大きさを知った上で、試料を準備する。	試料中の観察したい対象物の(観察したくない)周辺領域の信号も検知してしまう。

表 2 - 1：Wide scanの推奨実験条件

<wide scan> normal

項目名		単位	値			
装置機種名			Quantes	Quantes	Quanter-II	VersaProbell
装置メーカー名			ULVAC PHI	ULVAC PHI	ULVAC PHI	ULVAC PHI
提案機関			NIMS	NIMS	AIST	NAIST
X線源			Cr K α (mono)	Al K α (mono)	Al K α (mono)	Al K α (mono)
X線出力		W	50	25	25	25
Pass Energy		eV	280	280	280	117.4
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag $3d_{5/2}$ のFWHM	eV	2.05	1.71	1.62	2.01
	計算値	eV	2.33	1.95	1.95	-
	Auフェルミ端	eV	-	-	-	-
計測するBinding Energyの最小値		eV	-5	-5	-5	-5
計測するBinding Energyの最大値		eV	3000 ※	1350	1350	1350
Energy Step		eV	1	1	1	1

※ wide scanの計測範囲は測定試料の成分の全体像を捉えるために(不純物を高感度に検出できるように)3000~5 eVとするが、測定時間短縮のため3000~1500 eV、1500~5 eVの2領域に分けて(繰り返し測定の回数を領域毎に変えて)測定することを可とする。

<wide scan> fine

項目名		単位	値	
装置機種名			Quantes	Quanter-II
装置メーカー名			ULVAC PHI	ULVAC PHI
提案機関			NIMS	AIST
X線源			Al K α (mono)	Al K α (mono)
X線出力		W	25	25
Pass Energy		eV	140	140
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag $3d_{5/2}$ のFWHM	eV	1.08	1.08
	計算値	eV	1.04	1.04
	Auフェルミ端	eV	-	-
計測するBinding Energyの最小値		eV	-5	-5
計測するBinding Energyの最大値		eV	1350	1350
Energy Step		eV	0.5	0.5

表 2 - 2 : Narrow scan の推奨実験条件

<narrow scan> normal

項目名		単位	値			
装置機種名			Quantes	Quantes	Quanter-II	VersaProbell
装置メーカー名			ULVAC PHI	ULVAC PHI	ULVAC PHI	ULVAC PHI
提案機関			NIMS	NIMS	AIST	NAIST
X線源			Cr K α (mono)	Al K α (mono)	Al K α (mono)	Al K α (mono)
X線出力		W	50	25	25	25
Pass Energy		eV	112	55	55	46.95
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag $3d_{5/2}$ のFWHM	eV	1.29	0.74	0.79	0.81
	計算値	eV	1.14	0.47	0.47	-
	Auフェルミ端	eV	-	-	-	-
Energy Step		eV	0.1	0.1	0.1	0.1

<narrow scan> fine

項目名		単位	値			
装置機種名			Quantes	Quantes	Quanter-II	VersaProbell
装置メーカー名			ULVAC PHI	ULVAC PHI	ULVAC PHI	ULVAC PHI
提案機関			NIMS	NIMS	AIST	NAIST
X線源			Cr K α (mono)	Al K α (mono)	Al K α (mono)	Al K α (mono)
X線出力		W	50	25	25	25
Pass Energy		eV	55	26	26	23.5
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag $3d_{5/2}$ のFWHM	eV	1.00	0.67	0.7	0.73
	計算値	eV	0.73	0.33	0.33	-
	Auフェルミ端	eV	-	-	-	-
Energy Step		eV	0.1	0.05	0.05	0.05

<narrow scan> coarse

項目名		単位	値
装置機種名			Quanter-II
装置メーカー名			ULVAC PHI
提案機関			AIST
X線源			Al K α (mono)
X線出力		W	25
Pass Energy		eV	112
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag $3d_{5/2}$ のFWHM	eV	0.94
	計算値	eV	0.87
	Auフェルミ端	eV	-
Energy Step		eV	0.1

<narrow scan> high sensitivity

項目名	単位	値	
装置機種名		Quantero-II	
装置メーカー名		ULVAC PHI	
提案機関		AIST	
X線源		Al K α (mono)	
X線出力	W	50	
Pass Energy	eV	112	
前述のPass Energyでのエネルギー分解能	Ag $3d_{5/2}$ のFWHM	eV	1.09
	計算値	eV	1.02
	Auフェルミ端	eV	-
Energy Step	eV	0.2	

校正 / キャリブレーション

標準サンプル	高純度かつ清浄面を有するAg箔またはAg板を使用してください。
実施者	各装置の担当者が校正を行ってください。
実施頻度	1か月に1回の頻度で校正を行うことを推奨します。
校正方法	<p>校正は清浄なAg表面を用いて行い、エネルギー分解能、感度、ピークのB.E.の位置を確認します。手順は以下の通りです：</p> <ol style="list-style-type: none"> ① Ar⁺銃を使用してAg表面の清浄化を行います。 ② Ag$3d$ narrow scanスペクトルを、推奨される実験条件（例：X線出力、Pass Energy、Energy Step）を使用して測定します。 ③ 測定結果から、Ag$3d_{5/2}$ピークの半値幅を基にエネルギー分解能を確認し、ピーク強度を基に感度を評価します。 ④ ピーク位置の確認を行い、必要に応じて装置のエネルギースケールの調整を行います。

運用条件 (主な消耗品)

各パーツの寿命

部品	消耗箇所	交換時期*の目安
X線LaB ₆ フィラメント	X線発生に不可欠な部品であり、長時間使用により劣化します。	通常2~3年程度が目安です。
Ar ⁺ 銃フィラメント	試料表面のスパッタリングやクリーニングに使用され、使用時間と共に性能が低下します。	約1500時間の使用で交換を推奨します。
GCIB銃フィラメント	ガスクラスターイオンビーム(GCIB)を生成するために使用され、劣化します。	約1500時間の使用で交換を推奨します。
中和銃フィラメント	試料の帯電補正に用いられる部品で、使用頻度に応じて劣化します。	約2000時間の使用で交換を推奨します。
検出器	高電圧がかかる部品で、使用により感度が低下します。	使用環境や使用時間によって適切な電圧は時間を追って上昇します。設定電圧2350Vで交換が推奨されます。

*交換時期は、使用環境や使用時間に依存します。保証数値ではありません。
[PHI社よりの情報提供]

2 データ編

登録ファイル

ARIM 登録ファイル : .spe

• 出力フォーマット :

スペクトルモードで得られる .spe ファイルをアルバック・ファイ社のコンバーターである「MPExport.exe」で .txt へ変換します。その変換された .txt に含まれるファイルからメタデータ等を抽出します。

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	アノテーション(「予備測定」、「測定中にスペクトル形状の変化あり」などの自由記述)があれば記入してください。	
charge_neutralization_on	帯電中和の有無	Charge Neutralization On	帯電中和を使った場合はチェックしてください。True/false	
mount	サンプルのホルダーへのマウント方法	Sample Mounting	サンプルのホルダーへのマウント方法(ネジ止め、サンプル裏面に導電性粘着テープを使用)や固定具の情報(マスクやネジや粘着テープの材質や商品名や型番など)	
ion_beam_on	イオンビームスパッタの有無	Ion Sputtering On	イオンビームスパッタを使った場合はチェックしてください。True/false	
ion_beam_species	イオンビームスパッタのイオン	Ion Beam Species	イオンビームスパッタのガス種を記載してください。	
ion_sputter_acc_vol	イオンビームスパッタのイオン銃の加速電圧	Ion Beam Acceleration Voltage	イオン銃の加速電圧	V
ion_sputter_time	イオンビームスパッタ時間	Ion Sputtering Time	イオンビームスパッタ時間(秒単位)	sec
bicfitting	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。True/false	
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	eV

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
FileDate	測定日	Measurement Date	
Technique	測定手法	Measurement Technique	
InstrumentModel	測定装置	Measurement Instrument	
ExperimentID	実験名	Experiment ID	
PhotoFilename	ホルダーにマウントしたサンプルの 写真ファイル	Photo File of Samples Mounted on Holder	
FileType	測定ファイルの種類	File Type	
AnalyserWorkFcn	検出器の仕事関数	Analyser Work Function	eV
SourceAnalyserAngle	X線ビームと検出器の角度	Angle between X-ray Beam and Analyser	deg
TakeoffAngle	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
AnalyserSolidAngle	検出器の取込立体角度	Analyser Solid Angle	sr
AnalyserMode	検出器のスキャンモード	Analyser Scan Mode	
XraySource	X線源種類	X-ray Source Label	
XrayPower	X線源強度	X-ray Source Strength	W
XrayBeamDiameter	X線ビーム径	X-ray Beam Diameter	um
Peak_Name	元素種と遷移状態	Species Label and Transition	
Pass_Energy	検出器のパスエネルギー値	Analyser Pass Energy	eV
Abscissa_Start	横軸の開始点	Abscissa Start	eV
Abscissa_End	横軸の終了点	Abscissa End	eV
Abscissa_Increment	横軸間隔	Abscissa Increment	eV
Collection_Time	信号計測時間(スペクトルデータ1点 当たりの総積算時間)	Signal Collection Time per Spectral Data Point	sec
SurvNumCycles	全スペクトル領域の測定の積算回数 (サイクル数)	Cumulative Number of Measurements over All Spectral Range (Number of Cycles)	
Peak_Sweep_Number	スペクトル領域別の測定の積算回数 (スイープ数)	Cumulative Number of Measurements by Spectral Region (Number of Sweeps)	
Total_Acquisition_Number	スペクトル領域別の測定の積算回数 の総和(スイープ数にサイクル数を 乗算した値)	Sum of Cumulative Number of Measurements by Spectral Region (Multiplication of Number of Sweeps and Cycles)	
XLabel	横軸ラベル(単位)	Abscissa Label (Unit)	
YLabel	縦軸ラベル(単位)	Corresponding Variables Label (Signal Counting Mode)	
Comment	コメント	Comment	

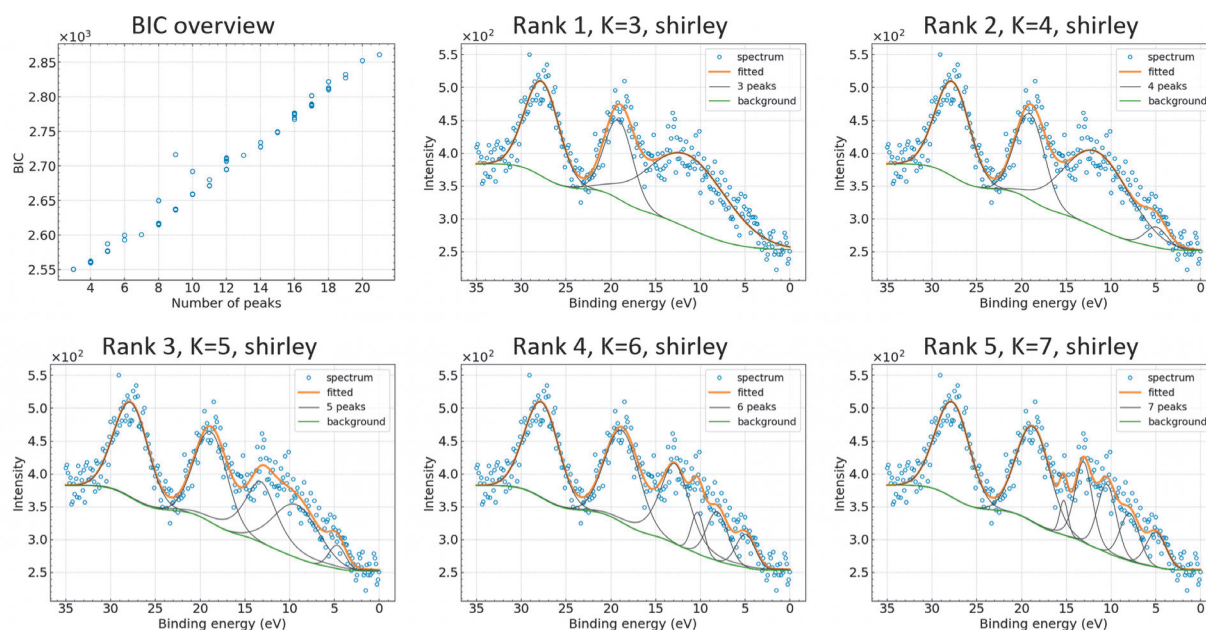
データ構造化処理・データ解析

概要：BIC fitting ツール^[1]

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>

謝辞

アルバック・ファイ社には、推奨実験条件ならびに試料ホルダーへのセッティング方法について、貴重なご助言をいただきました。厚くお礼申し上げます。

MEMO

A series of horizontal dotted lines for writing.



ARIM データリファレンスガイド

(X線光電子分光装置：アルバック・ファイ編)

発行日 2025年1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