

4D16

次世代軟X線発光分光器による軟X線ラマン・発光過程の研究

(分子研¹・総研大²・JST³・佐賀LS⁴)○初井宇記^{1,2,3}、堀米利夫¹、瀬戸山寛之⁴、繁政英治^{1,2}、小杉信博^{1,2}

【序】液体などの通常の光電子分光では電子構造に迫ることが困難な系について、近年軟X線発光分光による局所電子状態研究が報告され、改めて軟X線発光分光が注目されている。特に物質の機能を担う価電子の電子構造を、溶液中や磁場中・電場中などの機能性物質の機能が発現しているその場で計測可能な手法であり、発展が期待される。しかし軟X線領域では軟X線発光確率は0.1%程度と小さく、実験は容易でない。我々は、高効率・高エネルギー分解能を兼ね備えた分光器を目指し、新しい設計思想に基づいた次世代軟X線発光分光器を開発した。今回、この分光器の原理と特徴、および最初の適用例としてシリコン単結晶の軟X線ラマン・発光過程の測定結果について報告する。

【方法】この軟X線発光分光器の光学デザインは分割透過型回折格子(Facet Transmission Grating, facet TG)を用いた Rowland Torus 配置を採用している[1]。同様の光学配置を採用しているものに NASA が打ち上げたX線天文衛星 Chandra がある。理想的な Rowland Torus 配置では、facet TGs は法線が入射X線の焦点を向くように配置される。我々の分光器では、透過型回折格子をシリコンウェハー上に複数作成するため、理想的な配置からずれた光学配置となり、エネルギー分解能を劣化させる原因となりうる。詳細な光線追跡によるシミュレーションを行った結果、光学パラメータを最適化することで、エネルギー分解能($E/\Delta E$)が 5000 を超える性能が期待できることがわかった[2]。

開発した分光器のレイアウトを Fig.1 に示す。試料から放出される軟X線は Type I Wolter 鏡で集光され、拡大率 10 倍で検出器上に結像する。この Wolter 鏡は、筒状の鏡の内面で軟X線を反射させる鏡で、回転双曲面と回転楕円面の2つの鏡面でそれぞれ1回ずつ反射される。入射角は2つの鏡面の接合面で 89° であり、取り込み角は 1.5×10^3 sr である。結像性能の劣化原因となる鏡の形状誤差が、 $2.0 \mu\text{rad rms}$ 以下の高精度鏡を開発した[3]。鏡面の接合面から 1500 mm 下流側に焦点があり、途中で刻線本数 6250 l/mm の透過型回折格子によって分散される。検出器と透過型回折格子、0 次回折光の焦点は半径 719.5 mm の Rowland 円上に配置されている。検出器は、4 M pixel の裏面型 CCD 素子 (e2v CCD 42-40-A33) を用いている。ベーキング可能なプリアンプを真空中に設置することにより、 10^{-7} Pa 以下の真空を保持し、水等の吸着による検出効率の低下を防いでいる

この分光器は、分子科学研究所極端紫外光研究施設(UVSOR)の軟X線アンジュレータービームライン BL3U の軟X線発光分光(XES)エンドステーションに設置した[4]。軟X線発光分光では、高いエネルギー分解能を実現するために入射スリット(TGS-S)の開口を小さくする必要がある。入射スリットによる効率の低下を最小限に抑えるため、BL3U の出射スリット(S1X)の 23 mm 下流に試料を設置する。このとき、入射軟X線のビームサイズは $2-20 \times 40 \mu\text{m}^2$ である。

【結果・議論】分光器の性能評価として、0 次回折光を測定した。その結果、迷光強度は 1 次回折

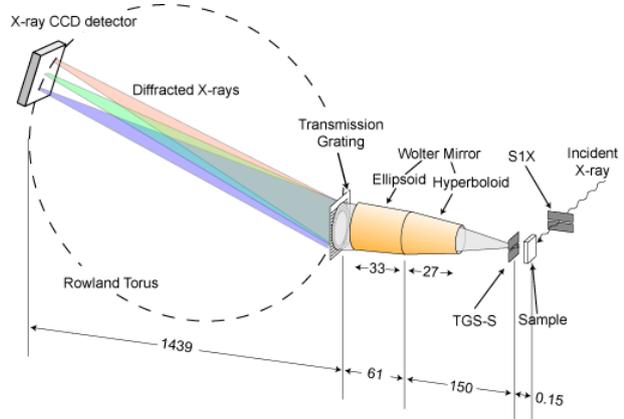


Fig. 1 Schematic layout of the transmission-grating spectrometer at the XES endstation of the undulator beamline BL3U.

光の約1%であることがわかった。次に、エネルギー分解能を調べるため、アルミニウム試料から弾性散乱によって放出された軟X線の1次回折光を計測した(Fig. 2)。ピークの半地全幅は3ピクセルで、これはエネルギー分解能($E/\Delta E$)4600 に相当する。透過型回折格子によるX線分光器のこれまでの最高エネルギー分解能は 1000 程度であり[5]、4 倍以上の性能を達成したことになる。

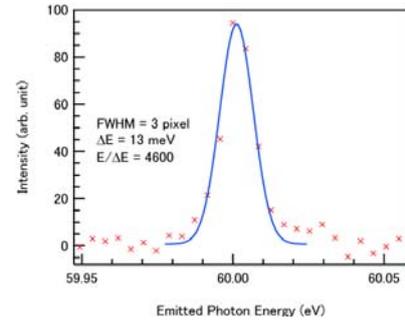


Fig. 2 1st order diffraction peak of the diffuse scattering from aluminum sample. Energy resolving power of 4600 is demonstrated.

この分光器を用いて、これまでに軟X線発光分光研究が報告されている単結晶シリコンの Si L 殻吸収端近傍での共鳴軟X線発光スペクトルを測定し、この分光器で軟X線発光過程、特にラマン過程の研究ができるのかどうか検討した[6]。シリコンは 100 eV 近傍に Si 2p

内殻電子の伝導バンドへの励起に起因する吸収構造を示す(Fig.3a)。シリコンの伝導バンドは、X 点近傍にバンドの底があり、ここへの遷移が 99.7 eV 近傍の吸収の立ち上がりとなって観測されている。入射軟X線のエネルギーを Fig. 3a に示した a-d および 105 eV で励起し、その時の発光スペクトルを測定した。得られた検出器上の像の例を Fig. 3b に示す。下側が高エネルギー側に相当する。一番下側に孤立したバンドが観測されているが、これは励起軟X線の弾性散乱出であり、中央部に観測されるのが非弾性散乱のバンドとなる。発光スペクトルを Fig.3c に示す。励起エネルギーが d や 105 eV の場合は、シリコンの価電子バンドの電子が Si 2p ホールへ遷移する発光過程で説明されるブロードなバンドが観測されている。電子系が運動量保存則を満たしていないのは、内殻励起状態での電子-フォノン相互作用が強いためである。励起エネルギーを減少させると、相互作用時間が短

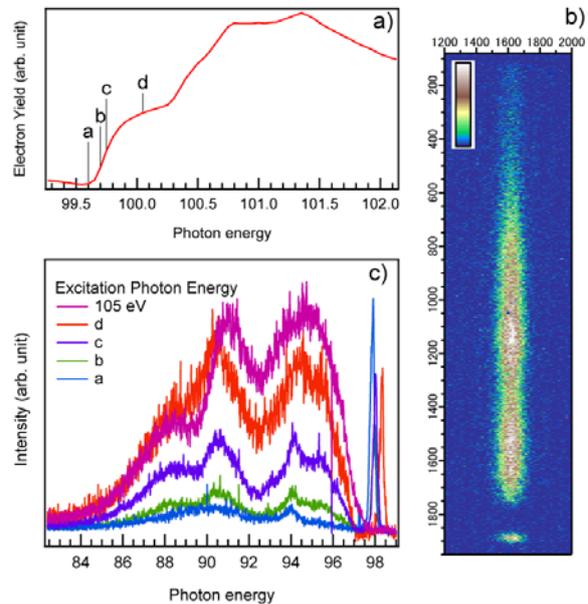


Fig. 3 Si L-edge Absorption spectra (a), and a CCD detector image when excited at the resonance d. The labels a-d shows the excitation energies applied in resonant XES spectra (c).

くなり、内殻励起状態で電子-フォノン相互作用が実効的に弱くなる。このため、運動量保存則を満たす、X 点近傍の価電子バンドのみが強調されて観測されるようになる(90 eV 94 eV のバンド)。

【結論】単結晶シリコンの共鳴軟X線発光スペクトルを次世代軟X線発光分光器を用いて測定した。ラマン過程に由来するバンドを含めて精度よく測定できることがわかった。

【謝辞】本研究を実施するにあたり、多くの方々にご協力をいただきました。ここに、心より感謝の意を表します。高精度スリットの開発は松下幸司(名大)、近藤聖彦、吉田久史(分子研)、鈴井光一(分子研)各氏と共同で行いました。Wolter 鏡開発は、大庭昌、小野田忍、杉山優(浜松ホトニクス)各氏、透過型回折格子の開発は、NTT-ATNによるものです。CCD 駆動回路、プリアンプは明星電気村尾一氏らによって製作いただきました。本研究は、科学技術振興調整費・若手任期付研究員支援、科学技術振興機構 PRESTO、科学研究費補助金の支援を受けました。

Ref [1] K.P. Beuermann, et.al., H. Bräuninger, J. Trümper, J. Applied Optics 17 (1978) 2304. [2] T. Hatsui, E. Shigemasa, N. Kosugi, J. Electron Spectrosc. and Relat. Phenom., 144 (2005) 1059. [3] A. Ohba, S. Onoda, Y. Sugiyama, private communication. [4] T. Hatsui, E. Shigemasa, N. Kosugi, AIP Conf. Proc. 705 (2004) 921. [5] C. R. Canizares, et.al., Publ. Astron. Soc. Pac. 117 (2005) 1144. [6] S. Eisebitt, et.al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 93 (1998) 245. and references therein.