

分光物性Ⅱ グループ

1. はじめに

分光物性Ⅱグループは、2005年度11月まで、軟X線チームと赤外チームの2つのチームで活動してきたが、12月より、軟X線・赤外チームと光電子チームに再編されて活動を始めた。光電子チームの発足は、光電子分光という分光分野の大きな柱で、アクティビティを外に発信していくこと、BL47XUを中心に硬X線領域での真にバルク敏感な光電子分光のユーザー利用が軌道に乗り始めたことによる。

昨年同様、グループのアクティビティは、BL25SU、27SUにおける軟X線分光、43IRにおける赤外分光、47XUにおける硬X線光電子分光に加え、理研ビームラインBL17SUにおけるハイエンド光電子顕微鏡を用いた研究、ユーザーサポート、R&Dなどである。MCDに関しては分光物性Ⅰグループに新たに発足したMCDチームと協力しながら、軟X線領域の研究をBL25SUで行っている。

従来のPRC、ナノテクノロジー支援プロジェクトに加え、先端大型研究施設戦略活用プログラムがスタートしたことで、各ビームラインともユーザーに十分なビームタイムを供給できない状況が生じている。特に軟X線領域のビームラインにおいては国内におけるリソース不足からもその影響は深刻で、すこしでもその状況を改善したいと考え、装置の再配置や光電子分光装置の新たな整備などを考えている。

又、従来わが国の研究分野では遅れ気味であった顕微分光実験が軌道に乗ってきたこともあり、今後は時間分解測定などが可能になるよう、整備を開始した。

以下に、各ビームラインと、BL17SU光電子顕微鏡装置の2005年度における状況を紹介する。

2. BL25SU (軟X線固体分光ビームライン)

BL25SUでは、ビームラインで利用できるエネルギー範囲を低エネルギー側に拡張するために、中心刻線密度300L/mmの不等間隔刻線平面回折格子を設置し、約120eV (従来と比較して約100eV低エネルギー) から約2000eVまでを利用可能となった。本回折格子は2006年度の課題で利用される。一方、実験ステーション側では、本年度より光電子顕微鏡 (PEEM) を第2ステーションとして運用し、集光された条件でのPEEM測定が可能となった。PEEM試料面上で約 ϕ 120 μ m (FWHM) のスポットサイズが得られ、特に、視野径5~25 μ mの高倍率観察時の測定精度と効率が大幅に向上した。また、MCD装置は高温試料ロッドと低温用窒素冷却放射シールドの導入により試料可変温度範囲が低温側15K (従来) →10K (改良)、高温側

300K (従来) →500K (改良) に拡張された。また、MCD測定では酸化ガドリニウム (Gd_2O_3) を利用した独自の温度校正法を確立し、特に20K以下の試料温度を誤差 ± 0.3 Kより高精度で決定することが可能となった。2006年度は第1ステーション光電子分光装置の試料マニピレーターのモーター駆動化に関する高度化を予定しており、角度分解光電子分光測定の効率化に資すると期待される。

BL25SUでは、2005A、2005B期を通じ文部科学省ナノテクノロジー支援プロジェクトで7課題 (90シフト) の利用支援を行うとともに、2005B期は文部科学省先端大型研究施設戦略活用プログラムに関わる利用支援を3課題 (39シフト) 行った。両プロジェクトでは、応用磁性材料の開発研究に関するテーマが大半を占め、MCD装置とPEEM装置の利用が大きく増加した。その一方で、一般課題の課題採択が極めて厳しくなった状況が見られる。

3. BL27SU (軟X線光化学ビームライン)

軟X線光化学ビームライン (BL27SU) は、分光素子を介さず高強度軟X線を利用できる照射実験ステーションと、不等間隔刻線平面回折格子型分光器 (VLS-PGM) により単色化された超高分解能軟X線を利用できる分光実験ステーションを備えている。現在は、原子・分子分光研究ならびに固体物性研究を中心に活発なユーザー利用が行われている。2005年度は、ユーティリティ設備を中心としてビームラインの改良を行った。

3-1 軟X線用窓なしイオンチェンバの導入

各種分光測定では、測定データの強度を規格化するために光量を常に測定しなければならない。現在は、光学素子から得られる電流量などを使用して測定データの規格化を行っているが、光学素子の表面状態や温度など様々な要因で、測定値が変動することが問題となっている。そこで、安定した光量測定を可能とするために、新たに軟X線用のイオンチェンバを製作した。通常、上下流のチェンバへのガスの漏れを防ぐためにアルミニウム薄膜などの窓材が使用されるが、光の照射による窓の汚れが光量モニタとしてのイオンチェンバの安定性を損ねることが想定されるため、窓なしで使用できるよう設計されている。現在、ユーザー利用に向けた立ち上げ・調整が進められている。

3-2 実験ステーションの真空インターロックの強化

軟X線光化学実験ステーションは、分光器の下流側に3

つの実験ステーションが直列に配置されている。これまでに、全ての実験装置をレール上に配置する改良を行うことで、ビームライン上から容易に装置を移動できるようになっている。その結果、ビームラインの各所にユーザー持込装置の受け入れスペースを確保でき、実験装置を持ち込むユーザーの利便性を向上させている。しかしながら、頻繁な装置の入れ替えは真空事故の危険性を孕んでおり、これまでも軽微な真空事故は数回発生していた。そこで、全てのユーザー持込装置とビームラインの真空取り合い点に、共通の真空インターロックを新たに導入した。

3-3 光電子分光装置・発光分光器の導入

現在、分光実験ステーションの最下流には光電子分光器と発光分光器を備えた理研の持ち込み装置が設置されており、共同利用にも提供されている。この装置が2006年の夏にBL17SUに移設される予定であるため、新たに光電子分析器と発光分光器を備えた共用装置を導入することとなった。BL27SUの直線偏光を活用した固体電子状態の研究を主な対象とする。2006年夏にビームライン上に設置し、2006B期で放射光を用いた調整実験を行う予定である。また、共同利用は2007A期からスタートする予定である。

4. BL43IR (赤外分光ビームライン)

BL43IRでは、2000年4月の供用開始から5年が経過し、ビームライン外部評価が行われた。このビームラインには当初、赤外顕微鏡、磁気光学顕微鏡、ポンププローブ分光、高分解能分光、表面科学のプロジェクトが立ち上げられた。それらの中で、高輝度のメリットを生かした赤外顕微鏡は、ユーザーを増やし研究成果を挙げた。ビームライン計画当初から懸念されていた光強度の低さとノイズレベルの高さは、ほかのプロジェクトにはネガティブに働いた。BL43IRの光強度は、広く使われている赤外熱輻射光源と同程度、またノイズレベルは高い。

今年度は、特に光強度とノイズレベルについて、今までの蓄積情報を整理し、外部評価に向けて各種測定を行った。図1は、二次元位置検出器とスペクトルアナライザーを組み合わせた、周波数帯域ごとの空間、強度揺れ評価の結果である。熱輻射光に比較して放射光のノイズレベルが高いことが分かる。また他に、赤外スペクトルのS/N比評価、加速器RFフィードバックの赤外スペクトルへの影響評価、などを行い、これらの結果をビームラインレポートにまとめ、外部評価に供した。

評価委員会からは、高輝度の優位性を活かすため、ビームラインでの赤外顕微鏡の比重をさらに高めるよう提言を受けた。それに基づき、新規近接場顕微鏡による高空間分解測定のR&D、化学、生物、ソフトマター分野のユーザー開拓、そのための広報活動、ユーザーサポートのさらなる充実、などを行っている。

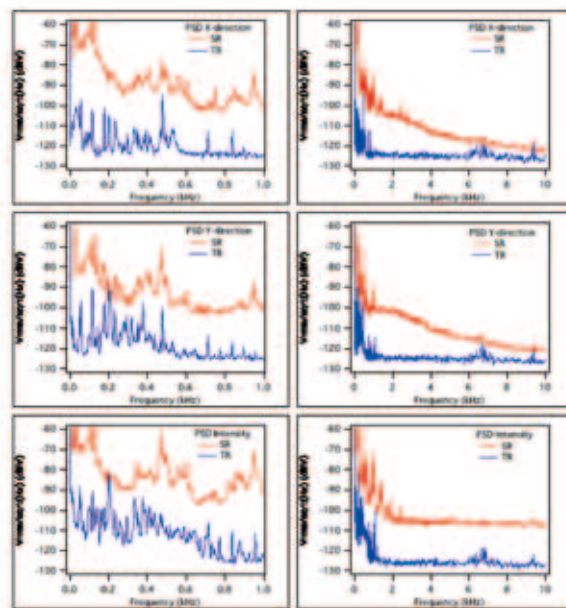


図1 スペクトルアナライザーによる空間、強度揺れ評価。
赤：放射光、青：熱輻射光、上からX、Y方向空間揺れ、強度揺れ、左：1kHzまで、右：10kHzまで。

5. BL47XU (硬X線光電子分光実験装置)

BL47XUは、前年度2004年から一般共同利用の実現を見据えてナノテク支援、兵庫県地域結集事業課題を支援する一方でR&Dテスト実験を含めた計78シフト624時間を行い、ビームライン改良準備を整えてきた。2005B期から本格的な一般共用ビームライン（硬X線光電子分光およびX線CT課題に特化）として稼動している。特に本年度はBL47XUに硬X線光電子分光装置の周辺環境を整え、ビームラインに定着させることを目標とした。現在では学術研究利用のみならず産業利用も大きく増大し、バルク敏感な電子状態や界面における電子状態を測定可能である特徴を十分に活かしたユーザー利用が継続的に行われている。さらなる発展・展望として以下の開発等を進めている。

硬X線を用いた光電子分光では、物質の光イオン化断面積が小さいために捕集効率・スループットが小さくなる問題を克服し、更なるハイ・スループットを目指し本年度9月より光学ハッチに縦集光ミラー（反射材：Rh）2部の増設を行った。これと横集光光学ミラーを実験ハッチに配置・組み合わせることで、試料位置でのビームサイズ垂直60 μm ×水平60 μm 程度の集光と目標に現在制御駆動系に関するアライメントを進めている。また、実験ハッチでは運用効率化を図るため実験装置をレール上に配置する改良を行い、X線CTとの装置切り替え時の利便性を向上させる。

3次元化学状態走査硬X線光電子顕微鏡の開発（先端計測分析機器開発事業（JST）：2006年度より）もBL47XUをホームグラウンドとして進めている。これは、SPring-8のX線アンジュレータからの6keV～10keVの高輝度高度単色化収束硬X線を試料表面に照射し、60度以上の広いアクセプタンスを持った広角対物レンズと角度分解型アナラ

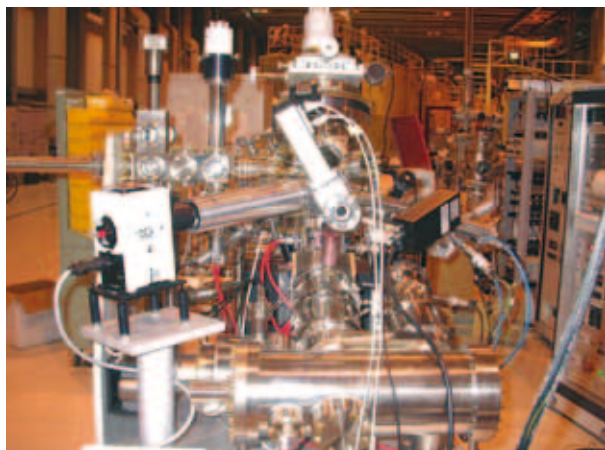


図2 ハイエンド分光分析器付き光電子顕微鏡装 (SPELEEM)

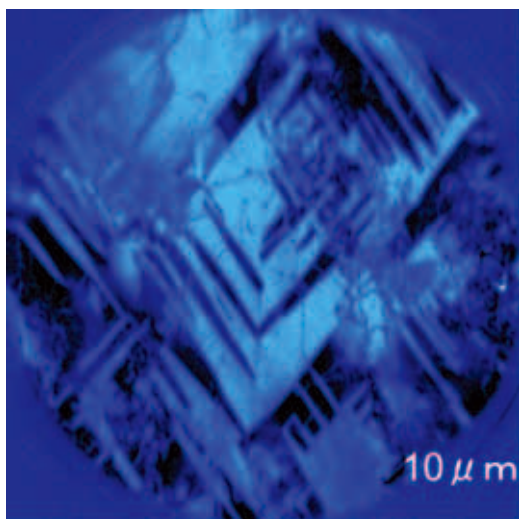


図3 SPELEEMを用いて観測した反強磁性体NiOの磁区構造

イザーの組み合わせによって試料の角度を変えずに光電子を分析し、その脱出角依存性から深さ方向の化学状態分布を知る。さらに試料を2次元走査する事により、化学状態の3次元分布を知ることが出来る装置である。この装置開発によりSi-LSIを初めとする2次元、3次元ナノ構造を持ったデバイスの研究開発に資すると期待される。

6. BL17SU光電子顕微鏡装置

分光型光電子・低エネルギー電子顕微鏡 (SPELEEM) による実験が理研ビームラインBL17SUで開始された。図2にハイエンド分光分析器付きの光電子顕微鏡装置の写真を示す。専用集光ミラーの導入により、光を $14 \times 3 \mu\text{m}^2$ のサイズまで絞ることが可能となった。光エネルギー250eVからAlのK吸収端1560eVまでの幅広い範囲での利用が可能である。振動対策など、実験環境を今後整えていく必要があるが、現在、装置の空間分解能は約85nm以下であり、エ

ネルギー分解能は0.4eV以下と評価されている。図3に示すのは、本装置を使って得られた反強磁性体NiOにおける磁区構造の観察結果である。マイクロXAFSだけでなく、微小領域の光電子分光測定などが可能で、元素選択的なイメージングの利用が始まっている。また、BL17SUの特徴である、いろいろな偏光が利用可能であるため、微小領域磁性研究におけるアクティビティも期待されている。

これまでにHigh-kゲット絶縁膜の*in situ*加熱中相分離/シリサイド化反応の研究などが行われた。また、軟X線磁気円二色性 (XMCD) を用いて、200nm四方のパーマロイパターンの磁区観察にも成功した。

利用研究促進部門

分光物性Ⅱグループ

木下 豊彦 (グループリーダー、
光電子チームリーダーを兼務)

軟X線チーム・赤外チーム：

中村 哲也 (チームリーダー；BL25SU担当)

為則 雄祐 (BL27SU担当)

森脇 太郎 (BL43IR担当)

池本 夕佳 (BL43IR担当)

光電子チーム：

室隆 桂之 (BL25SU&27SU担当)

池永 英司 (硬X線光電子分光担当)

松下 智裕 (BL25SU担当、ビームライン
技術部門制御グループと兼務)

ナノテクノロジー総合支援プロジェクト推進室
(分光物性Ⅱグループと一緒に活動しているメンバー)：

小林 啓介 (特別研究員)、

郭 方准 (光電子顕微鏡担当)

福本 恵紀 (光電子顕微鏡担当)

大沢 仁志 (MCD担当)

金 正鎮 (硬X線光電子分光担当)

上田 茂典 (硬X線光電子分光担当)

James Harries (気相分光担当)