

BL07LSU 東京大学物質科学アウトステーション

東京大学では、2006年5月に総長直轄の組織として物質科学部門、生命科学部門の2部門からなる放射光連携研究機構を開設し、既存施設の高輝度放射光を利用して先端的研究の展開を目指している。物質科学部門では、SPring-8の長直線部に世界最高水準の軟X線アンジュレータビームライン (BL07LSU) 及び先端分光実験ステーションを建設し、2009年後期から共同利用を開始している。本稿ではビームライン及び各実験ステーションの最近の動向について報告する。

1. アンジュレータビームライン

2010年度はビームラインBL07LSUに8台の水平／垂直偏光型8の字アンジュレータを組み合わせた長尺アンジュレータが光源としてSPring-8蓄積リングに設置された(図1)。ビームラインでは連続偏角可変のMonk-Gillieson型不等刻線間隔平面回折格子分光器を経て、実験ステーションにおいて①エネルギー範囲 ($h\nu$): 250~2000 eV、②エネルギー分解能: $>10,000$ 、③集光サイズ: $<10 \mu\text{m}$ 、④フラックス: $>10^{12}$ photon/s/0.01%BWの光学性能を有した軟X線が利用できる。本挿入光源は偏光可変型のクロス・アンジュレータであり、ビームラインではその偏光度測定のための解析器 (Soft X-ray Polarimeter) を準備し、97%以上の水平・垂直偏光、及び(楕)円偏光性を確認した。

2. 実験ステーション

ビームラインBL07LSUでは現在1) 時間分解軟X線分光実験、2) 三次元走査型光電子顕微鏡、3) 超高分解能



図1 SPring-8蓄積リング内に設置された8台の水平／垂直偏光型8の字アンジュレータ

軟X線発光ステーション (HORNET)、4) フリーポートの4つの実験ステーションが設置・整備されている。いずれのステーションも共同利用実験装置として一般ユーザーへ開放している。

2.1 時間分解軟X線分光実験ステーション

(TR-SX spectroscopy)

本ステーションでは、BL07LSUにおいて得られる高輝度軟X線パルスと超短レーザーパルスを組み合わせたポンプ・プローブ時間分解光電子分光測定により、光誘起表面相転移や表面化学反応などの動的現象における電子状態・化学状態・振動状態・原子構造の変化をモニターし、その機構を解明することを目的としている。

これまでに本ステーションでは、(i) 飛行時間型二次元角度分解電子分析器 (Scienta; ARTOF 10k) を用いた新規光電子測定系の整備、(ii) フェムト秒レーザーシステムの立ち上げ、(iii) レーザーパルスと軟X線パルスのタイミング同期・遅延時間の高精度制御手法の開発を行ってきた。ARTOF 10kでは従来の半球型電子分析器と異なり、光電子の飛行時間から運動エネルギーを求めるため、二次元角度 (波数) 方向 (k_x, k_y) の同時測定が可能であり試料の回転を必要としない。現在本装置を用いた三次元バンドマッピングは分解能やS/N比に応じて3~9時間で測定が可能である。次に(ii) レーザーシステムに関して、発振器とマルチパス増幅器による高パワー・低繰り返しフェムト秒レーザー (2.5 W, 1~2 kHz) が安定して利用可能である。さらに、発振器の出力をポッケルセルによりパルス切り出しする事により得られる低パワー・高繰り返しフェムト秒レーザー (0.7~3.5 mW, 0.2~1 MHz) が整備され、対象とする動的現象 (励起パワー・緩和時間) に応じて最適なレーザーを使うことが可能になった。(iii) タイミング同期・遅延時間の高精度制御に関しては、レーザーパルスと軟X線パルスを約50ピコ秒 (放射光パルス中に相当) 以下のジッターで同期させることに成功しており、電気的遅延回路により約1ピコ秒の精度で遅延時間制御が可能である。

2.2 三次元走査型光電子顕微鏡 (3D nano-ESCA)

三次元ナノESCAステーションは、ナノメータスケールの空間分解能で、物質の電子・化学状態分布を三次元的に可視化するための実験ステーションである。具体的には、東京大学アウトステーションビームラインからの超高輝度

放射光をフレネルゾーンプレート (FZP) で集光することにより得られる放射光ナノビームを用いて、空間分解 (x, y) した光電子スペクトルを測定し、さらに、そのスペクトルの放出角度依存性を最大エントロピー法で解析することにより深さ方向分析 (z) を行う。これらの技術の融合により、三次元 (x, y, z) 空間解析を実現する。

本実験ステーションは2009年9月より東京大学アウトステーションに設置され、ビームラインの利用開始とともに放射光を用いた調整・実験を開始している。架台の改良による振動対策など、装置の最適化を進めた結果として、 HfO_2 薄膜上のPoly-Siゲートパターンのエッジプロファイル測定により、面内空間分解能としては走査型光電子顕微鏡における世界最高レベルの70 nmを達成した。また同時に、ゾーンプレート集光した状態での 60° 一括取込の光電子放出角度依存性の取得にも成功した。この2つの技術を組み合わせることにより、空間分解能100 nm以下での三次元電子・化学状態分布解析が可能である。この装置を利用して、抵抗変化型ランダムアクセスメモリ等のナノデバイス、また自立グラフェン等のナノ材料といった系の電子状態解析を開始している。

2.3 超高分解能軟X線発光ステーション (HORNET)

本実験ステーションは金属、半導体、絶縁体等の固体試料、触媒粉末、溶液試料、各種ガスなど、あらゆる試料の測定が可能な軟X線発光分光システムを備えている。低エミッタンスで高輝度な光源の特性を活かしたKBミラーシステムによる1 μm オーダーの集光を利用して、400 eV～750 eVで $E/\Delta E = 8000$ の世界最高エネルギー分解能を達成しており、元素選択的電子状態測定という従来の使い方に加えて、100 meVオーダーのdd励起、フォノン励起、マグノン励起、オービトン励起のような素励起の観測や、弱い相互作用によりわずかに化学シフトする溶液中の錯体分子のような複雑な系の解析にも用いられている。また、超高分解能発光分光を用いた一般課題も受け入れており、いずれも超高分解能を活かしたアウトステーションならではの成果が得られている。

試料位置での究極集光のために縮小比1/150の後置ミラー (KBミラー) 系を試料槽の中に組み込んでおり、軟X線発光の分解能に寄与する縦方向のスポットサイズのみが1 μm オーダーに絞られている。 $E/\Delta E = 10000$ はスポットサイズ2 μm で達成するため、実際は究極集光していない条件でも分解能が出るように設計してある。このことが試料位置調整に対するユーザーの負担を軽減し、入射角依存の実験では特にその利点が活かされている。

hBNのN 1s及びMnOのMn 2p吸収端励起で取得した軟X線発光測定の結果、発光分光器の分解能としてそれぞれ40 meV及び80 meVが得られている。全エネルギー領域で、設計値の80%～100%のエネルギー分解能を達成して

いる。また、溶液専用のマニピュレータも備えており、水や大気圧ガス環境下の燃料電池触媒の反応実験も始まっている。

2.4 フリーポートステーション (Free-Port)

本ステーションでは全国の研究者が実験装置を持ち込んで、本ビームラインが発生する高輝度軟X線放射光利用実験を行う。2010年度は顕微高分解能二次元光電子分光器の開発やコヒーレント性を活かしたイメージングの実験が行われた。

東京大学放射光連携研究機構 (東京大学物性研究所)
松田 巖、柿崎 明人