

## HAXPES ビームライン BL09XU の性能

公益財団法人高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター 分光推進室  
保井 晃、高木 康多

### 1. 新しいBL09XUの概要

これまで硬 X 線光電子分光 (HAXPES) 実験は、BL09XU と BL47XU に分散して実施されるとともに、各ビームラインは他の手法との相乗りで運用されてきた。ビームライン再編の第一弾として、2021 年度に BL47XU の HAXPES アクティビティが BL09XU に移設され、BL09XU は HAXPES 専用ビームラインとして再整備が行われた。また、再編に合わせて光学系も HAXPES 実験に最適化され、HAXPES の測定性能が大幅にアップグレードされた。なお、2019 年度まで BL09XU において HAXPES と相乗りであった核共鳴散乱 (NRS) 実験は、2021 年度に BL35XU に移設されている。

アップグレード後のビームラインレイアウトを図 1 に示す。本アップグレードのポイントは以下のとおりである。

① 2 つの異なる特徴を持った光電子アナライザーを実験ハッチ (EH) 1 と 2 にそれぞれ配置した。EH1

のアナライザーは 12 keV までの光電子取得が可能であり、表面からより深い領域の電子状態観測が可能である。一方、EH2 のアナライザーは、±32°の光電子取込角を有し、角度分解測定により、表面からバルクまでの深さを分解した電子状態を一度に分析できる。

- ② 光学ハッチには高分解能チャンネルカットモノクロメータ (CCM) である Si (333/444/555) に加え、Si (220/311) のダブル CCM (DCCM) を導入した。DCCM を利用することにより、エネルギー掃引時の定位置出射化が可能となった。さらに、広範なエネルギー領域で高い縦偏光度 (> 90%) を実現する 2 連のダイヤモンド移相子 (DXPR) 機構を導入した。
- ③ EH1 には Wolter 集光ミラーを導入した。高フラックスのマイクロビームを安定的に利用できるだけでなく、再集光時の再現性が非常に高い特徴を持つ。

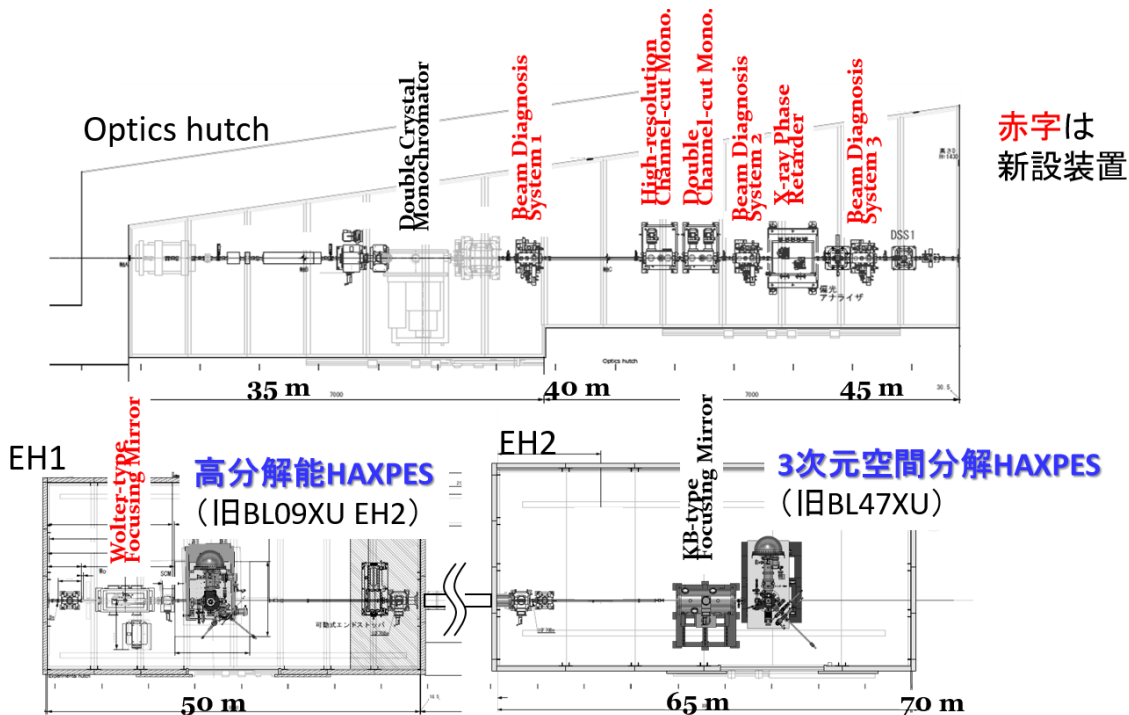


図 1 新しいBL09XUのビームラインレイアウト

④ 新たな制御系として、「BL774」が導入された。BL774 は、ほぼ全ての光学系機器・HAXPES 機器・試料ステージを同じプラットフォーム上で制御できる。これにより、機器間連携が容易になり、より高度な計測技術開発が可能になる。さらに、将来の自動計測実現につながるなどユーザビリティが向上する。

本稿では、特に、EH1 の高分解能 HAXPES 装置による共鳴 HAXPES 計測、および、EH2 の三次元空間分解 HAXPES 装置を用いた局所電子状態解析に関する整備状況について報告する。

## 2. 共鳴 HAXPES 計測に関する整備状況 (EH1)

これまでに、BL09XU では吸収端近傍でエネルギー掃引を行う共鳴 HAXPES 計測を開発し、元素・価数選択性を強化した電子状態解析環境が、パワーユーザーとの連携により整備されてきた<sup>11)</sup>。従来は、高エネルギー分解能モノクロメータに CCM を用いていたため、エネルギー分解能掃引時に入射光の高さが変動するという問題があった。本アップグレードにおいて、2つの CCM を組み合わせた DCCM が導入されたことにより、エネルギー掃引時の入射光の定位置出射の問題が解決された。

共鳴 HAXPES 計測の現状の主な利用分野は、強相関電子系物質である。その解析には、3d 系の K 吸収端、4f、5d 系の L3 吸収端をカバーする E = 4.9 keV ~ 12 keV において、HAXPES アナライザーの分解能も含めた全エネルギー分解能が 300 meV 以下である

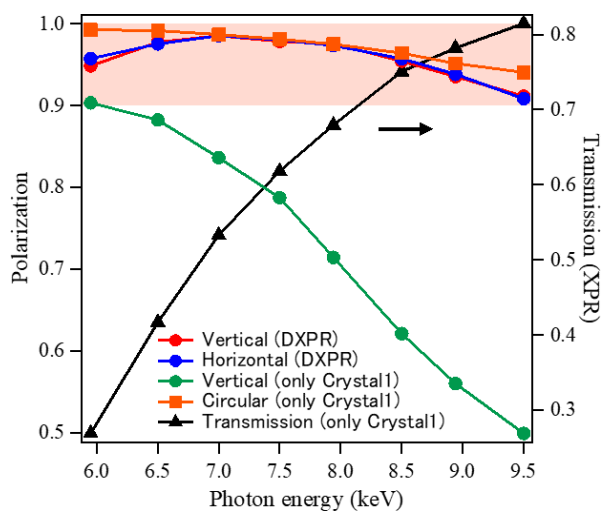


図2 入射光エネルギーと各偏光状態の偏光度とX線透過率の関係 (t = 0.2 mm, 220 Laue 反射, DCCM220)

ことが求められる。これを満たすために、Si (220/311) の2組の DCCM をエネルギー帯に応じて切り替える方式を採用した。

さらに、ダイヤモンド移相子による偏光制御と共鳴 HAXPES 計測を組み合わせることで、電子軌道対称性を強化した解析が可能である。DXPR が導入されたことにより、E = 4.9 keV ~ 12 keV の広いエネルギー領域において、高い縦偏光度を維持することが可能となった。非共鳴条件での DXPR 利用は、すでに BL19LXU で行われており<sup>12)</sup>、その機器を参考に再設計し BL09XU に導入した。コミショニング実験で得られた円・縦偏光度の入射光エネルギー依存性を図2に示す。厚さ 0.2 mm の2枚のダイヤモンド結晶を用いることで、少なくとも、5.95 keV ~ 9.5 keV の間で 0.9 以上の非常に高い縦偏光度が得られた。また、円偏光に関しては、1枚の 0.2 mm 厚の結晶で同領域において、0.9 以上の円偏光度が得られている。DXPR と共鳴 HAXPES 計測を組み合わせることで、軌道対称性と元素・価数を選別したこれまでに無い化学結合状態解析が可能になった。偏光依存共鳴 HAXPES 計測は、すでに 2021B 期のユーザー実験に利用されている。

## 3. 三次元空間分解 HAXPES 計測に関する整備状況 (EH2)

近年、複合材料中の粒界物質やデバイス中の電極間電子状態など幅広い分野で局所電子状態解析のニーズが高まっている。これまで、BL47XU の HAXPES においては、Kirkpatrick-Baez (KB) ミラーを用いた 1 μm (V) × 5 μm (H) のマイクロ集光ビームを利用した局所 HAXPES 計測が行われてきた。さらに、BL47XU の HAXPES アナライザーは前段に ±32° の広い光電子取込みを可能にする広角対物レンズを有しており、角度分解測定を行うことで、表面から深さ 20 nm 程度の化学結合状態分布を得ることができるという特徴を持つ。この深さ分解測定とマイクロ集光ビームとを組み合わせることで三次元空間分解した解析が可能であった<sup>13)</sup>。この装置を 2021A の BL47XU における全 HAXPES 実験終了後に BL09XU の EH2 に移設した。集光系には、EH2 に既設の長尺の KB ミラーを利用する。長尺ミラーであるため、フロントエンドスリットを大きく開けた状態 (0.65 mm (V) × 1.2 mm (H)) でも、ほぼビームの取りこぼし無く、

$6.3 \times 10^{12}$  photon/s 以上の非常に明るいマイクロ集光ビームを利用可能である。この場合の集光サイズは、 $1.5 \mu\text{m}$  (V)  $\times$   $11 \mu\text{m}$  (H) である。さらに、フロントエンドスリット幅を  $0.03 \text{ mm}$  まで狭めることで、集光ビームの横幅を  $1 \mu\text{m}$  に縮小できる。フロントエンドスリットを狭めるためフラックスは減少するが、それでも  $1.3 \times 10^{11}$  photon/s 程度のフラックスが得られ、BL47XU での  $1 \mu\text{m}$  (V)  $\times$   $5 \mu\text{m}$  (H) と比べて約 1.5 倍のフラックスの  $1 \mu\text{m}$  集光ビームが利用可能であることが確認された。この  $1 \mu\text{m}$  集光ビームを利用して、 $\text{SiO}_2$  基板上に  $10 \mu\text{m}$  角の Au パッチを格子状に配置した試料の局所電子状態測定を試行した (図 3)。Au パッチ間の  $\text{SiO}_2$  基板領域にビーム照射し得られた HAXPES スペクトルには Au 由来の特徴的なピークが見えないことから、少なくとも  $10 \mu\text{m}$  程度の領域の局所電子状態解析が可能であることを示している。この位置で角度分解測定を行うことで、局所領域における深さ情報を得ることができる。

#### 4. 最後に

EH1 と EH2 はタンデムに配置されている。そのため、下流側の EH2 で放射光を使用している間でも、EH1 装置の保守やユーザー実験の事前準備を行えると、ビームラインの運用効率が向上する。そこで、2022B 期には、EH2 実験中でも EH1 内に立ち入る作業が可能、アクセスモードを導入する予定である。さらに、SPRING-8-II での利用も見据えて、EH2 の集光ミラーは  $100 \text{ nm}$  程度の集光ビーム利用のためにアップグレードすることも計画されている。

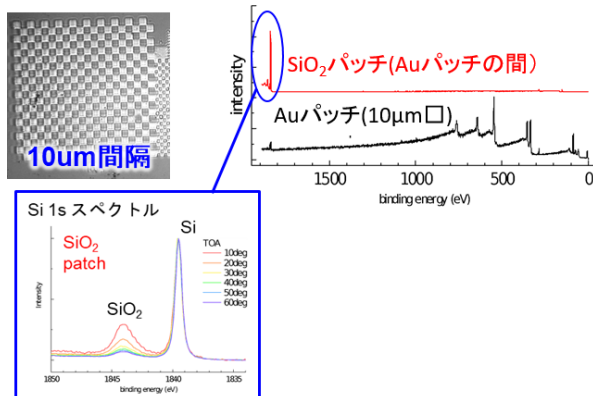


図 3 Au/ $\text{SiO}_2$  格子パターンの局所 HAXPES 解析。試料は兵庫県立大学の山口明啓教授、JASRI 大河内拓雄様から提供いただいた。

本アップグレードは、従来の共鳴 HAXPES 計測や集光ビームを利用した電子状態解析の性能向上にとどまらず、HAXPES 実験の可能性を大きく飛躍させることが期待される。BL09XU を利活用した、利用者からの新たな課題の提案を期待している。

#### 謝辞

本ビームラインアップグレードには非常に多くの方々の御尽力をいただきました。光学系全般に関しては、特に、理化学研究所の大坂様、JASRI 光源基盤部門の大橋様、仙波様、山崎様、小山様、湯本様の御協力をいただきました。また、現場工事作業では、理化学研究所の菅原様、エンジニアリングチームの皆様、JASRI のテクニカルスタッフの皆様の御協力をいただきました。BL774 関連では、理化学研究所の本村様、中嶋様の御協力をいただきました。移相子の調整作業では JASRI の河村様の御協力をいただきました。本ビームラインアップグレード全体につきまして、理化学研究所の矢橋様、玉作様、JASRI の為則様の御協力をいただきました。この場を借りて御礼申し上げます。

#### 参考文献

- [1] E. Ikenaga *et al.*: *Sync. Rad. News* **31** (2018) 10-15.
- [2] H. Fujiwara *et al.*: *J. Sync. Rad.* **23** (2016) 735-742.
- [3] E. Ikenaga *et al.*: *J. Electron Spectrosc. and Relat. Phenom.* **190** (2013) 180-187.

#### 保井 晃 YASUI Akira

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター 分光推進室  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0833  
e-mail : a-yasui@spring8.or.jp

#### 高木 康多 TAKAGI Yasumasa

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター 分光推進室  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0833  
e-mail : ytakagi@spring8.or.jp