

課題名 「物質のフェムト秒物理現象解析のためのX線散乱測定装置整備」

田中義人¹、西野吉則²、Marcus Newton²、守友浩³、伊藤基己紀¹、松原英一郎⁴

¹理化学研究所・播磨研究所 放射光科学総合研究センター

²北海道大学電子科学研究所

³筑波大学数理物質科学研究科

⁴京都大学工学研究科

概要

ポンプ・プローブ法を用いたブラッグ反射配置でのフェムト秒時間分解コヒーレントX線回折散乱測定装置整備のための試験的実験を実施した。半導体シリコン薄膜にSACLAのビームを縮小光学系の非対称反射配置で入射させることにより、ショットごとに薄膜の回折パターンを得ることに成功した。ショットごとの強度のばらつきや、パターンの広がりについて解析し、X線散乱測定装置としての問題点および改善策を示し、大きな作動距離に対応できるように検出器支持台の整備を行った。

はじめに

フェムト秒時間分解X線散乱測定装置を整備するためには、SACLAの利用実験にとってのビーム特性とその有効性を評価し、薄膜や微小結晶のコヒーレント散乱実験のデモを行うことが重要である。本課題では、半導体単結晶薄膜試料を対象として、非対称反射配置における回折実験を行うために、SACLAの光子エネルギーを特定の波長に同調し、シングルショット回折パターンを取得、その特性を調べた。他にも微小結晶やデータ処理方法についての打ち合わせや議論を行ったが、本報告書には、2011年10月14に行われた試験利用実験を中心に記す。

実験

実験はSACLAの実験ハッチ2で行われた。厚さ100 nmのSi薄膜に対して非対称縮小光学系を組み、反射角を0.5°にするために、SACLAの光子エネルギーを8.69 keVに調整した。今回は、電子ビームのエネルギーを6.632 GeVに調整することにより、調整が行われた。図1は、SACLAのスペクトルである。

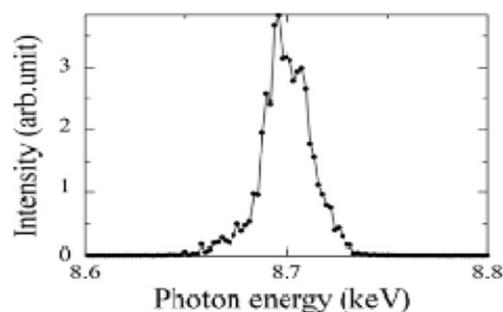


図1 SACLAのスペクトル分布

SACLA のビームを縦はねの回折ゴニオに搭載された試料ホルダーに取り付けられた Si 薄膜試料に導入し、この回折を MP-CCD にて検出した。図 2 は、回折計と検出器の配置写真である。黄色い線が SACLA の入射ビームと回折方向を示している。MP-CCD の画像サイズは縦 50 mm、横 25 mm、で、画素サイズは 50 ミクロン角である。また、今回は、蛍光板が素子の前にとりつけられたタイプのものが使用された。MP-CCD でのデータ取得は、SACLA のもつタイミング信号に同期した 60 Hz で行われた。SACLA の出力は 10 Hz であったため、データの取り出し時には、10 Hz の画像のみ対象とした。

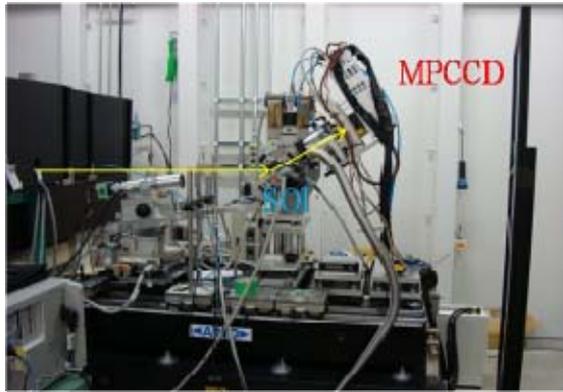


図 2 実験装置の配置と写真

結果

図 3 にシングルショットで得られた回折パターンを示す。SACLA の強度は、当時まだショットごとに大きなばらつきをもったため、大きな強度のものを示した。回折強度のショットごとのばらつきを図 4 に示す。強度ゼロのショットは希少だが、強度の小さいところで頻度が高いことがわかる。最大強度に対して、0.5 以上のものは少ないが存在することから、検出器の飽和や損傷に注意が必要である。また、実際の応用実験では、パルス毎の強度をモニターし、規格化する必要がある。



図 3 シングルショット回折パターン

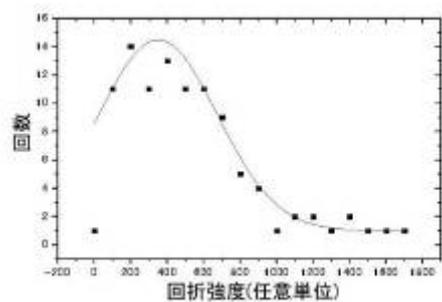


図 4 回折強度のショットごとのばらつき

図 3 の縦方向のプロファイルがラウエ関数となり、薄膜の厚み方向の形状を反映しているので、その分布を図 5 に示す。中心の強度ピークをゼロ次とすると、その左右にある 1 次のフリンジが確認できる。

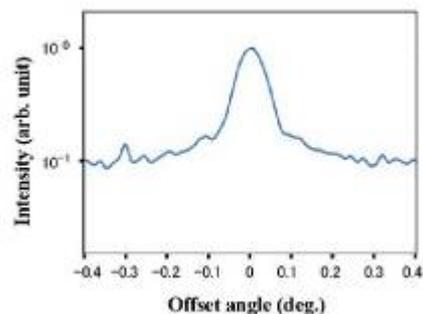


図 5 図 3 の縦方向のプロファイル

高次のフリンジ部分を含むプロファイル全体を調べるため、SACLA でのシングルショットプロファイルを積算した。図 6(a)は 100 ショット分積算したものである。図 6(b)はそのブラッグスポット近傍を拡大したものである。

考察と装置整備

比較のため、SPring-8 にて単色光 X 線で取得したときのプロファイルを図 7(a)に示す。SPring-8 では、スペクトルの分解能が 10^{-4} 程度(約 1 eV)であるため、SACLA と同様の 30 eV ほどのバンド幅のある場合を想定したスペクトルを合成したものを図 7(b)に示す。

図 7(b)と SACLA で得た図 6(b)の縦方向のプロファイルを(図 8(a))において、1 次、2 次のフリンジを比較するとその鮮明度に違いがあることがわかる。そこで、図 7(b)を、さらに角度方向に約 0.03° ぼやけ(検出器上で 100 ミクロン弱)があると仮定して合成した図と比較した。図 8 が比較図である。また、フリンジのピーク強度比も異なることもわかる。前者は、SACLA のスペクトルのばらつきの再考慮、検出系の回折角度分解能の向上を検討する必要があると思われる。後者については、強度の大きい信号が検出されたときのデータの線形性、各ショットでの S/N 等を確認する必要があると思われる。

以上のことから、データの角度分解能を向上させるために、検出器の動作距離を数倍大きくできるように、独立した架台から立ち上げた検出器支持部品の整備を行った。

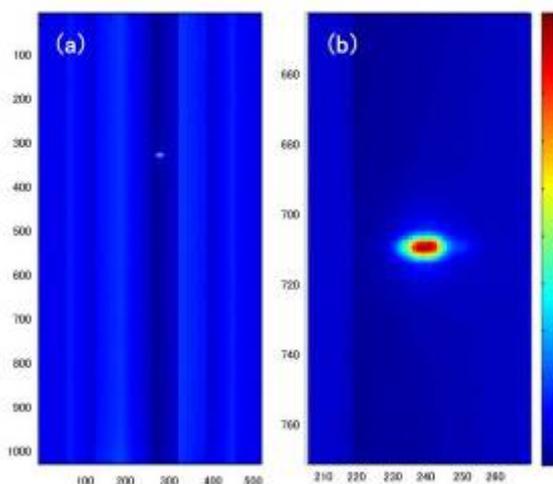


図 6 100 ショット分のデータを積算したときの画像プロファイル

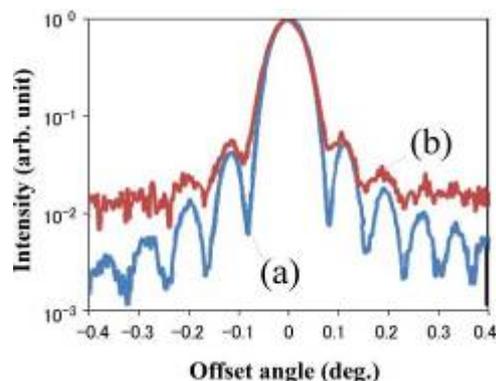


図 7 SPring-8 の単色光で得た回折プロファイル(a)と、30 eV のスペクトル幅を考慮して合成したプロファイル(b)

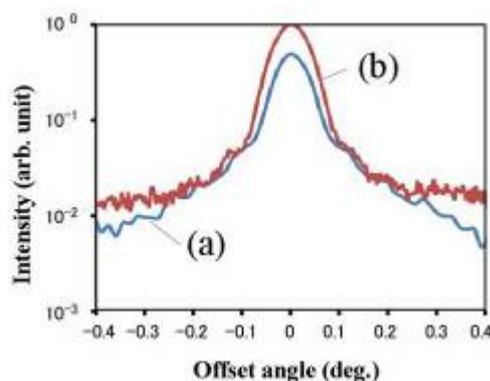


図 8 図 6 の縦方向のプロファイル(a)と、図 7(b)のグラフにぼやけを仮定して合成したもの(b)との比較

まとめ

ポンプ・プローブ法を用いたブラッグ反射配置でのフェムト秒時間分解コヒーレントX線回折散乱測定装置整備のための試験実験を2011年10月14日に実施した。半導体シリコンの薄膜にSACLAのビームを縮小光学系の非対称反射配置で入射させることにより、ショットごとに薄膜の回折パターンを得ることに成功した。ショットごとの強度のばらつきや、パターンの広がりについて解析し、その問題点についての議論を行った。反射型X線散乱測定装置の改善策として、作動距離の拡大を検討し、その支持台の整備を行った。

謝辞

本課題実施にあたり、XFEL 研究開発部門の皆様にはたいへんお世話になりました。ここに感謝いたします。