

軟X線発光の偏光分光による sp 結合半導体の
価電子緩和の研究

課題番号 11640306

平成 11 年度～平成 12 年度科学研究費補助金 (基盤研究(C)(2))

研究成果報告書

平成 13 年 3 月

研究代表者 柳 原 美 広

(東北大学科学計測研究所助教授)

東北大学図書



00021006262

附属図書館

はしがき

本研究は、平成 11 年度～平成 12 年度科学研究費補助金（基盤研究(C)(2)）「軟X線発光の偏光分光による sp 結合半導体の価電子緩和の研究（課題番号 11640306）」によって行われたものである。固体中の原子の内殻を励起すると、突然生じた正孔の影響によって外殻電子には **shake-up** 効果を始めとする様々な緩和が起こる。その顕著な例が最外殻に f 電子を持つ希土類元素の f 電子系である。f 電子と内殻正孔との顕著な相互作用は f 電子が強く局在しているために起こることが分かっている。ところが、価電子帯が局在性の弱い s 電子と p 電子の混成軌道から成る sp 結合半導体（sp 電子系）においても価電子の再配置を示唆する結果が柳原らによって得られていた。層状結晶である h-BN の B1s 電子を伝導帯に励起したときに価電子が緩和して現れるノーマル発光に比べて、内殻励起子準位を共鳴励起したときに現れるスペクテータ発光では π 発光成分が著しく減少したのである。この π 発光異常について、生成された内殻正孔のクーロン引き込み効果による π 軌道電子再配置が、スペクテータ発光の場合には励起子電子によって遮蔽されるために π 発光成分が減少すると解釈した。そこで本研究は 2 年の期限を設け、h-BN などを始めとする sp 結合半導体における内殻励起に伴う価電子の再配置を、主に軟X線発光の直線偏光分光実験によって実証することを目的とした。

まず軟X線発光の偏光分光実験を実施するため、ラミナー型回折格子を基板として、この上に Mo/B₄C 多層膜(50 周期)をマグネトロンスパッタ装置を用いて蒸着した。この多層膜回折格子の性能を放射光によって評価した結果、入射角 45° のとき 184eV の s 偏光成分の 1 次回折効率は 3.1% を記録した。また、p 偏光成分は 0.017% であり、入射光の直線偏光度を考慮して 99.1% の偏光能を有することを確認した。このように高いエネルギー領域で偏光子を兼ねた回折格子を実現したのはこれが初めてである。本研究所機械工場で作成された発光偏光分光計にこの多層膜回折格子を搭載し、放射光励起によって h-BN の B1s 発光を測定し、分解能が不十分ながら σ 発光と π 発光成分ごとにスペクトルを得ることができた。

一方、h-BN の N1s 発光スペクトルを測定し、これまでの B1s 励起と同様な π 発光異常が N1s 励起でも現れることが確認できた。これと並行して、 π 電子再配置モデルが予言している X 線光電子スペクトル(XPS)の B1s 主ピークに伴うサテライトピークの確認を行った。その結果、期待されるエネルギーより僅かながらずれた位置に小さなピークが確認できた。これらの結果も合わせて議論を行い、sp 電子系における価電子再配置による緩和を実証するという本研究の当初の目的は概ね達成された。

折りしも MgB₂ が臨界温度 39K で高温超伝導体になることが秋光教授によって発見された。この物質系は B が亀の甲状に結合した層状結晶であることが知られており、本研究で扱ってきた h-BN と極めて似ている。そこで早速、本研究で開発した偏光分光計を用いて高温超伝導発現機構の解明に取り組む予定である。本研究の成果が関連分野の発展の一助となれば幸いである。

平成 11 年度～平成 12 年度科学研究費補助金 (基盤研究(C)(2))
「軟 X 線発光の偏光分光による sp 結合半導体の価電子緩和の研究」
課題番号 11640306

研究組織

研究代表者：柳原美広 (東北大学科学計測研究所助教授)

研究経費

平成 11 年度	2,400 千円
平成 12 年度	1,200 千円
計	3,600 千円

研究発表

(1) 学会誌等

1. 石川禎之, 今園孝志, 柳原美広, 羽多野忠, 渡邊誠: 「軟 X 線偏光分光用多層膜回折格子の作製と評価」第 14 回日本放射光学会年会予稿集 (2001) p.112.
2. 石川禎之, 今園孝志, 柳原美広, 羽多野忠, 渡邊誠: 「軟 X 線 ($\sim 184\text{eV}$) 用多層膜回折格子の作製と評価」第 61 回応用物理学会学術講演会講演予稿集 No.2 (2000) p.579.
3. N. Miyata, S. Ishikawa, T. Imazono, A. Arai, M. Yanagihara, and M. Watanabe, "Interlayers of Annealed Mo/Si Multilayers Studied by Si $L_{2,3}$ Emission Spectra," Abstracts of 7th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (2000) POS2-078.
4. N. Miyata, S. Ishikawa, M. Yanagihara, T. Hatano, and M. Watanabe, "Buried Interfaces in Mo/Si Multilayers Studied by Si $L_{2,3}$ Emission Spectra," Photon Factory Activity Report 1999 Part B (2000) p.50.
5. M. Koike, T. Namioka, E. Gullikson, Y. Harada, S. Ishikawa, T. Imazono, S. Mrowka, N. Miyata, M. Yanagihara, J.H. Underwood, K. Sano, T. Ogiwara, O. Yoda, and S. Nagai, "Varied-line-spacing laminar-type holographic grating for the standard soft X-ray flat-field spectrograph," Proceedings of SPIE Vol. 4146 (2000) 163-170.
6. M. Toyoda, Y. Shitani, M. Yanagihara, T. Ejima, M. Yamamoto, and M. Watanabe, "A Soft-X-Ray Imaging Microscope with a Multilayer-Coated Schwarzschild Objective: Imaging Tests," Jpn. J. Appl. Phys. 39 (2000) 1926-1929.

7. M. Toyoda, Y. Shitani, M. Yanagihara, T. Ejima, M. Yamamoto and M. Watanabe, "A Soft-X-Ray Imaging Microscope with Multilayer-coated Schwarzschild Optics," Proceedings of VIth International Conference on X-Ray Microscopy (2000) 363-366.
8. M. Yanagihara, "Polarimetric Characterization for Synchrotron Soft X-rays Using Multilayer Elements," Abstracts of the 4th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation (2000) p.3.
9. 宮田登, 石川禎之, 柳原美広, 渡邊誠: 「軟X線発光分光法による Mo/Si 多層膜界面の非破壊評価」 第13回日本放射光学会年会予稿集 (2000) p.207.
10. 柳原美広: 「軟X線発光による界面の研究」 第五回X線結像光学シンポジウム予稿集 (1999) 22-23.
11. 小池雅人, 山寄孝, 宮田登, 柳原美広, E. Gullikson, 原田善寿, 佐野一雄: 「軟X線フラットフィールドホログラフィックラミナー回折格子」 第五回X線結像光学シンポジウム予稿集 (1999) 105-106.
12. 宮田登, 石川禎之, 柳原美広, 渡邊誠: 「軟X線発光分光法による Mo/Si 多層膜の界面の評価」 応用物理学会東北支部第54回学術講演会講演予稿集 (1999) 139-140.
13. N. Miyata, S. Ishikawa, M. Yanagihara, and M. Watanabe, "Buried Interfaces in Mo/Si Multilayers Studied by Soft-X-Ray Emission Spectroscopy," Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) 6476-6478.
14. 宮田登, 柳原美広, 渡邊誠, 渡邊正満, 原田滋久, 辛埴: 「h-BN のN1s 共鳴励起発光スペクトルII」 日本物理学会講演概要集第54巻第2号第4分冊 (1999) p.652.
15. 宮田登, 石川禎之, 志谷能崇, 柳原美広, 渡邊誠: 「軟X線発光分光法による Mo/Si 多層膜の界面層の評価」 第60回応用物理学会学術講演会講演予稿集 No.2 (1999) p.569.
16. N. Miyata, M. Yanagihara, M. Watanabe, Y. Harada, and S. Shin, "N 1s Resonance Emission Spectra in Hexagonal Boron Nitride," Photon Factory Activity Report 1998 Part B (1999) p.161.
17. T. Yamazaki, E. Gullikson, N. Miyata, M. Koike, Y. Harada, S. Mrowka, U. Kleineberg, J. Underwood, M. Yanagihara, and K. Sano, "Comparison of mechanically ruled versus holographically varied line-spacing gratings for a soft-x-ray flat-field spectrograph," Appl. Opt. 38 (1999) 4001-4003.

(2) 口頭発表

1. 宮田登, 今園孝志, 石川禎之, 荒井彰, 斎藤勝彦, 柳原美広, 渡邊誠: 「軟X線発光分光に

よる Mo/Si 多層膜界面の熱的状态変化の評価」平成 13 年春季応用物理学会講演会 2001 年 3 月 31 日 (発表予定).

2. 石川禎之, 今園孝志, 柳原美広, 羽多野忠, 渡邊誠: 「軟 X 線偏光分光用多層膜回折格子の作製と評価」第 14 回日本放射光学学会年会 2001 年 1 月 13 日.
3. 石川禎之, 今園孝志, 柳原美広, 羽多野忠, 渡邊誠: 「軟 X 線 (~184eV) 用多層膜回折格子の作製と評価」平成 12 年秋季応用物理学会講演会 2000 年 9 月 3 日.
4. N. Miyata, S. Ishikawa, T. Imazono, A. Arai, M. Yanagihara, and M. Watanabe, "Interlayers of Annealed Mo/Si Multilayers Studied by Si $L_{2,3}$ Emission Spectra," 7th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation, August 24, 2000.
5. M. Koike, T. Namioka, E. Gullikson, Y. Harada, S. Ishikawa, T. Imazono, S. Mrowka, N. Miyata, M. Yanagihara, J.H. Underwood, K. Sano, T. Ogiwara, O. Yoda, and S. Nagai, "Varied-line-spacing laminar-type holographic grating for the standard soft X-ray flat-field spectrograph," International Symposium of SPIE, August 6, 2000.
6. M. Yanagihara, "An Imaging Type Soft X-ray Emission Microscope," X 線結像光学研究会 June 29, 2000.
7. M. Yanagihara, "Polarimetric Characterization for Synchrotron Soft X-rays Using Multilayer Elements," The 4th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation, March 16, 2000.
8. M. Toyoda, Y. Shitani, M. Yanagihara, T. Ejima, M. Yamamoto and M. Watanabe, "A Soft-X-Ray Imaging Microscope Based on a Multilayer-Coated Schwarzschild Objective," The 5th International Conference on the Physics of X-Ray Multilayer Structures, March 8, 2000.
9. 宮田登, 石川禎之, 柳原美広, 渡邊誠: 「軟 X 線発光分光法による Mo/Si 多層膜界面の非破壊評価」第 13 回日本放射光学学会年会 2000 年 1 月 19 日.
10. 柳原美広: 「軟 X 線発光による界面の研究」第五回 X 線結像光学シンポジウム 1999 年 12 月 15 日.
11. 小池雅人, 山崎孝, 宮田登, 柳原美広, E. Gullikson, 原田善寿, 佐野一雄: 「軟 X 線フラットフィールドホログラフィックラミナー回折格子」第五回 X 線結像光学シンポジウム 1999 年 12 月 16 日.
12. 宮田登, 石川禎之, 柳原美広, 渡邊誠: 「軟 X 線発光分光法による Mo/Si 多層膜の界面の評価」応用物理学会東北支部第 54 回学術講演会 1999 年 12 月 9 日.
13. 宮田登, 柳原美広, 渡邊誠, 渡邊正満, 原田滋久, 辛埴: 「h-BN の N1s 共鳴励起発光スペクトル II」日本物理学会 1999 年秋の分科会 1999 年 9 月 25 日.

14. 宮田登, 石川禎之, 志谷能崇, 柳原美広, 渡辺誠 : 「軟X線発光分光法による Mo/Si 多層膜の界面層の評価」 第 60 回応用物理学会学術講演会 1999 年 9 月 1 日.
15. M. Toyoda, Y. Shitani, M. Yanagihara, T. Ejima, M. Yamamoto and M. Watanabe, "A Soft-X-Ray Imaging Microscope with Multilayer-coated Schwarzschild Optics," The VIth International Conference on X-Ray Microscopy, August 4, 1999.

(3) 出版物

1. 波岡武・山下広順共編 : 「X線結像光学」 培風館 pp. 1-309 1999 年 7 月.
柳原美広 : § 4.2.2. 表面粗さの効果 pp. 73-74.
§ 8.3. レーザープラズマX線による評価 pp. 261-265.
付録 1. 軟X線領域における薄膜の光学定数の決定法 pp. 296-299.

平成 11 年度・12 年度

発 表 論 文 等
別 刷 集

目 次

<p>“Efficiency and polarization performance of a multilayer-coated laminar grating in the 6.5–6.9-nm wavelength region” S. Ishikawa, T. Imazono, T. Hatano, M. Yanagihara and M. Watanabe To be published in Appl. Opt.</p>	1
<p>“N 1s Resonance Emission Spectra in Hexagonal BN: Effects of the Core Hole Potential” N. Miyata, M. Yanagihara, M. Watanabe, Y. Harada and S. Shin To be submitted to J. Phys. Soc. Jpn.</p>	18
<p>「軟X線多層膜回折格子の作製と偏光分光への応用」 石川禎之, 今園孝志, 宮田登, 羽多野忠, 柳原美広, 渡邊誠 多元物質科学研究所報告 2001 に投稿予定</p>	32
<p>“Electronic structure of MgB₂: X-ray emission and absorption spectra” E.Z. Kurmaev, I.I. Lyakhovskaya, J. Kortus, N. Miyata, M. Demeter, M. Neumann, M. Yanagihara, M. Watanabe, T. Muranaka and J. Akimitsu Submitted to Phys. Rev. Lett.</p>	51
<p>「軟X線偏光分光用多層膜回折格子の作製と評価」 石川禎之, 今園孝志, 柳原美広, 羽多野忠, 渡邊誠 第 14 回日本放射光学会年会予稿集 (2001) p.112</p>	55
<p>「軟X線 (~184eV) 用多層膜回折格子の作製と評価」 石川禎之, 今園孝志, 柳原美広, 羽多野忠, 渡邊誠 第 61 回応用物理学学会学術講演会講演予稿集 No.2 (2000) p.579</p>	56
<p>“A Soft-X-Ray Imaging Microscope with a Multilayer-Coated Schwarzschild Objective: Imaging Tests” M. Toyoda, Y. Shitani, M. Yanagihara, T. Ejima, M. Yamamoto, and M. Watanabe Jpn. J. Appl. Phys. 39 (2000) 1926-1929</p>	57
<p>“Buried Interfaces in Mo/Si Multilayers Studied by Soft-X-Ray Emission Spectroscopy” N. Miyata, S. Ishikawa, M. Yanagihara, and M. Watanabe Jpn. J. Appl. Phys. 38 (1999) 6476-6478</p>	61
<p>「h-BN の N 1s 共鳴励起発光スペクトル II」 宮田登, 柳原美広, 渡邊誠, 渡辺正満, 原田滋久, 辛埴 日本物理学会講演概要集第 54 巻第 2 号第 4 分冊 (1999) p.652</p>	64
<p>“N 1s Resonance Emission Spectra in Hexagonal Boron Nitride” N. Miyata, M. Yanagihara, M. Watanabe, Y. Harada, and S. Shin Photon Factory Activity Report 1998 Part B (1999) p.161</p>	65
<p>“Effects of the Core Hole Potential on the B 1s Emission in Hexagonal BN” M. Yanagihara, N. Miyata, T. Ejima, M. Watanabe and Y. Kayanuma J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 1626-1629 (参考文献)</p>	66
<p>“Effect of Coulomb Interaction in the Resonant X-Ray Emission Spectra of Hexagonal BN” K. Noba, Y. Kayanuma and M. Yanagihara J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1998) 664-669 (参考文献)</p>	70

本報告書収録の学術雑誌等発表論文は本ファイルに登録していません。なお、このうち東北大学在籍の研究者の論文で、かつ、出版社等から著作権の許諾が得られた論文は、個別に **TOUR** に登録しております。