

## 高分解能X線非弾性散乱の現状と将来

### Present and Future of High Resolution X-ray Inelastic Scattering Research

凝集体の動的構造研究会

Condensed Matter Dynamic Structure Research Group

山田和芳, 東北大学

高木英典, 理化学研究所

Kazuyoshi Yamada, Tohoku University

Hidenori Takagi, RIKEN

#### 1. 序論

本研究グループは、第三世代の放射光線源による高分解能X線非弾性散乱の利用法を極限的に高め、これにより新しい物質科学のパラダイムを開くために結成された。従来、0.1eV 程度以下の低エネルギー格子振動の波数・エネルギー情報は、中性子非弾性散乱法が独壇場だったが、非共鳴型高分解能X線非弾性散乱装置の出現で、中性子散乱と同等、あるいはそれ以上の研究がX線のできるようになってきた。特に微小単結晶の測定ではX線非弾性散乱法の独壇場になりつつある。さらにX線の持つ特性を生かし、電荷励起にまでその領域を広げつつある。またX線、中性子および光電子分光の三分光手法のエネルギーおよび波数の分解能がほぼ同程度となり、三者のデータが同じ土俵に立つにいたった。このような異なる手法の相補性を利用することで、全く新しいサイエンスへの挑戦も期待できる。ここでは、SPring-8 の非共鳴X線高分解能非弾性散乱 (BL35XU) を利用した凝集体の動的構造研究を通して得られた成果をベースとして、更なる有効利用や相補的利用の方向性を探りたい。そのためにどのような高度化が必要か、また放射光の利用研究をさらに促進するに効果的な将来性のある設備や研究組織・制度についての提言をおこなう。

#### 2. 得られた成果

BL35XU で成果が得られているサイエンスの分野は以下のような三つのカテゴリーに大別できる。

- (1) 液体・ガラスなど不規則系の格子ダイナミクス
- (2) 超伝導体など強相関電子系における格子振動と電子・格子相互作用
- (3) 格子振動が物性を大きく支配する系 (準結晶、リラクサー、ラットリング系など)

(1)のカテゴリーでは、測定対象は結晶の周期性を持たないため  $Q=0$  の周りで非弾性散乱の測定を行う必要がある。中性子ではビームの特性 (キネマティカル条件) としてこの種の高分解能実験は困難で、X線非弾性散乱法が有利となる。BL35XU の最近の成果としては、セレン液体中での動的クラスターの発見や、液体鉄における異常に長い寿命の音響的フォノン、金属ガラスにおけるナノスケールの不均一性を反映した早い音速の観測などが例としてあげられる。

(2)および(3)のカテゴリーでは、ビームの高輝度性を利用した微小単結晶による格子ダイナ

ミックスの研究が数多く出ている。大きな単結晶育成が困難な、新規超伝導体(B ドープダイヤモンド、Fe-As 系、Na-Co 系など)の研究成果が特に数多く出ている。また中性子散乱測定が可能な系でも、高い Q 分解能や、100meV を越えるエネルギー領域でも数 meV のエネルギー分解能を示す X線非弾性散乱法の有効性は高く、中性子散乱法との相補的利用も試みられている。

### 3. 将来の方向性

サイエンスとしては、(a)電荷感受性、(b)高輝度性、(c)キネマティック特性という X線ビームの特性を最大限に生かした研究の更なる発展が考えられる。(c)についてはすでに述べたので、ここでは(a)について、遷移金属イオンの d 電子励起 (d-d 励起) について述べる (図 1)。これは共鳴非弾性散乱など様々な手法で調べられてきたが、

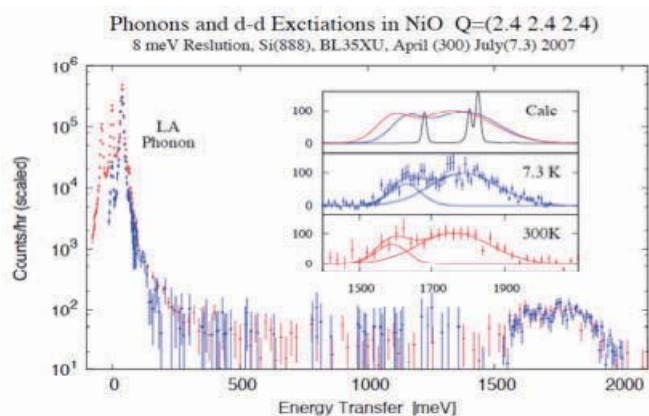


図 1. 非共鳴 X線非弾性散乱で得られた NiO の d-d 励起スペクトル。エネルギー分解能は 7meV。LA phonon に比べて 3 桁以上弱い励起スペクトルが観測されている。

d-d 励起が凝集体の中でどのように伝搬するか、その分散などはほとんどわかっていない。また物性をミクロな立場から理解する上で重要な、低エネルギーのフォノンやマグノンの集団励起と d-d 励起との結合についてもわかっていない。電荷感受性の高い、しかもエネルギー分解能が高い非共鳴型非弾性散乱が重要な手法となるが、強度の問題でまだ大きな進展はみせていない。しかし強度の向上で将来はこの種の研究は盛んになると予想される。

(b)の高輝度性を利用する研究については、従来の微少単結晶による研究は、物性特有の系統性を要求されるであろう。それに加えて、100GPa 級超高压、100T 級超強磁場下などの超極端条件下での研究は、地球科学などにも大きく貢献するであろう。特に音速の高圧下での精密測定により、鉍物の弾性常数を 1%以下の精度で求めることは、地震波伝搬メカニズム解明など大変重要な課題である。さらに表面での X線非弾性散乱も、高強度、高輝度 X線ならではの新しい分野である。X線を表面に平行近く入射することで、表面から数 nm の情報が選択的に得られる。ESRF では水銀の表面とバルクでの非弾性散乱スペクトルを比較した先行研究が行われている。

装置に関しては二つの方向性が考えられる。

#### A) 現状装置の改良

現状のアンジュレーターの磁極周期を約 2/3 程度に短くすれば、現状と比較して高エネルギー側で約二倍、低エネルギー側で約三倍の強度増加が見込まれる(図 2)。この改良により、遷移金属酸化物の酸素が関

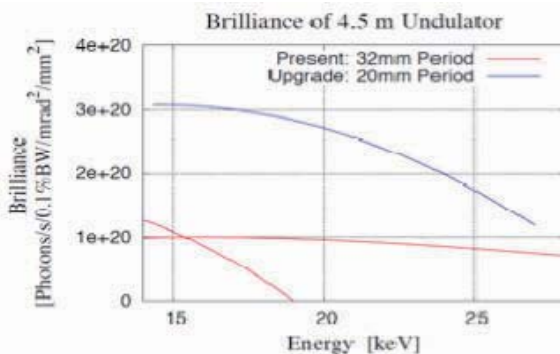


図 2. アンジュレーターの磁極周期を変えた場合の X線強度のエネルギー依存性のシミュレーション結果

与するフォノンなど散乱強度の弱いフォノン測定が系統的に行えるようになり、ドーピング依存性や温度変化などの情報が詳細に得られる。

電荷励起の研究を進展させるには、強度を一桁以上上げる必要がある。一方で電荷励起の散乱スペクトルは本質的に幅広く、10meV以下のエネルギー分解能を必要としない。そのため、エネルギー分解能を落として、強度を稼ぐ必要がある。一つの方法は、従来のバンド幅8meVのものに変えて40meVのバンド幅のモノクロメータの導入が考えられる。これにより約一桁の強度の向上と約10eVまでのスキャン領域の拡大が見込める。

また極端条件下の測定を可能とする試料周りのアクセサリーの充実は重要である。ダイヤモンドアンビルセルや表面実験の際の液体表面を安定化させるための装置などの導入は必須である。また極端条件でなくても、ビーム強度の向上により一試料の測定時間が短縮されれば、試料の *in situ* での短時間交換はビームの有効利用には欠かせない。

## B) 新しいビームラインの建設

将来的にビーム強度を一桁以上上げるには新しいビームラインが必要となる。この場合には、サイエンスの重要なターゲットは電荷励起の波数およびエネルギー依存性の研究であり、装置としては約20mの長尺型のアンジュレーターが必須のデバイスとなる。これにより、強度は現状の約20倍程度が期待される。

新しいビームラインの建設によって二台の非共鳴非弾性散乱装置が揃えば、二台の装置の役割分担を明確にする必要がある。たとえば新しく建設する装置は、電荷励起研究に軸足を置き、より強度を必要とする新しい利用分野を開拓していく。一方で従来型の装置は、強度を二、三倍に高めて格子ダイナミクスなどの系統的研究に利用する。

## C) 利用体制

中性子や光電子分光など異なる量子ビーム分光との相補利用だけでなく、同じX線でも共鳴型X線非弾性法との相補利用は重要である。この手法では原子選択性を利用することで、たとえば微量な不純物の局所電子状態を議論することが可能となり、不純物によるバルクな状態変化をみる非共鳴非弾性散乱と相補的利用が可能である。また得られた結果の解釈、あるいは実験条件をあらかじめ設定するにも、理論的検討が必要で、理論グループとの協力体制も積極的に進めていく必要がある。