

11本目以降を目指して

◇表面界面構造ビームライン建設を目指して

東京大学 物性研究所

高橋 敏男

物質の表面及び界面の構造を研究することは、基礎研究の観点からばかりでなく、電子・光デバイス、工業材料、有機・高分子材料などへの応用研究の観点からも重要である。近年、表面界面の新しい研究手法として放射光によるX線回折法が注目されている。X線は透過能が高いので、表面構造を表面層のみならず、その下の何層にもわたって構造を調べることができる点や、厚い表面層に覆われた界面の構造を非破壊的に決定できる点で、他の方法にはない特長を備えている。X線回折法は、精度が高いばかりでなく、「その場観察」にも適した方法であり、超高真空中、ガス雰囲気中、溶液中など多様な環境下での試料を測定の対象にできる。これまで、X線回折法の有効性を示す研究は数多くなされてきたが、表面界面からのX線散乱強度は極めて微弱であるため、第2世代の光源を用いた研究には様々な制約があった。我々は、第3世代光源であるSPRING-8からの放射光を利用して、表面界面X線回折の手法を高度に発展させ、従来の放射光では測定困難であった、表面界面における相転移現象、結晶成長過程、反応過程などの解明およびそれらの動的解析、希薄な系や軽元素を含む系の解析、表面界面磁気構造の解析等を目指している。

具体例としては、1) 超高真空中、ガス雰囲気中、溶液中における相転移現象、結晶成長過程、反応過程をリアルタイムでその場観察を行ない、それらの現象を支配している機構を解明する、2) 金属表面上で軽元素が作用する化学反応過程・表面構造の解析、3) 固液界面における電気化学的反応をシングルバンチモードで高時間分解動的観察、4) 磁性体薄膜や結晶表面において出現する表面界面に特有な磁気構造のX線磁気散乱による研究、などをあげることができる。これらの測定において、多波長異常分散法、表面DAFSなども利用することを考えている。表面X線回折法は、バルクのX線回折法に比べれば歴史は浅く、測定法、解析法ともに、これから改良発展していく要素を多く含んでおり、そのような開発的研究も並行して行う。実験手法としては、回折法以外にも、反射率法、散漫散乱法、定在波法、表面EXAFSなども必要に応じて併用することを想定している。将来的には、マイクロビームを用い微小領域の構造も研究する。

表面界面の分野で興味をもたれている現象や構造の研究は、多くの場合、超高真空中の良く制御された環境下で行うことが望まれる。表面界面構造SGでは、専用アンジュレータビームラインにおいて、X線多軸回折計と超高真空槽を組み合わせた表面界面X線回折装置を設計製作し実験を行うことを提案している。試料表面に対して任意の角度で入射し、

任意の方向で回折線を検出できるように、回折計には6つの回転の自由度をもたせる。真空槽は容易に交換可能できるようにしておき、真空槽を外した状態では、大気中や溶液中の実験が行えるよう付属品を用意する。将来的には、真空槽あるいは反応槽をいくつか用意しておき、目的に応じたものを回折計と組み合わせて利用できるようにしていきたい。回折装置の設計では、回転主軸を水平あるいは鉛直にする二通りの考え方が可能であり、最終的には、超高真空槽と回折計の設計の最適化を行い決定する必要があると考えている。現在、本SGは核共鳴散乱SG用の先行ビームラインにおいて、大気中で実験可能なものに的を絞り、建設協力している。本格的な表面および界面のX線回折実験を行うためには、上記のような専用のビームラインを早急に整備したい。

◇次のBLを目指して　－イオンの光電離過程の研究－

原子分子SG 立教大学 理学部

小泉 哲夫

我々のグループではSPring-8のアンジュレーターから得られる高輝度光を使って、重い原子（分子も含む。ここでは原子番号 >10 の原子を重原子とよぶ）およびその多価イオンの内殻電子の分光特性および動的過程を研究することを目的としている。

原子や少数原子からなる分子の外殻電子に対しては、既存の放射光施設やレーザーなどを用いることによって今まで多くの分光学的研究がなされてきた。しかし、得られる光子のエネルギーや強度から来る制約によって、重原子の内殻を対象として研究は少ない。その多価イオンになると電離ポテンシャルさえよく分かっていないのが現状である。相対論的効果やQED効果が顕著に現われるのは重原子の内殻準位においてであるし、電子相関も重原子では重要な役割を演じる。応用上からもこのような研究は、プラズマ物理学、天体物理学、地球物理学など高電離状態のイオンに関わる研究分野だけでなく、生物や物質・材料における放射線効果を考える上でも必要な基礎データを提供する。このように多くの重要な課題があるが、我々はまず手始めに今までR&DとしてKEK-PFで行われてきた重原子イオンの内殻の光電離過程の研究をさらに高エネルギー側に拡張しより深い殻についての分光的研究を行う。

我々の研究における標的は原子（分子）およびそのイオンである。多くの場合、標的粒子はガス状であり、密度は小さい（ 10^{10}cm^{-3} 程度）。イオン標的の場合は標的密度はさらに5、6桁小さくなり、残留気体密度と同じ程度になってしまう。最近のイオン源の発達や、大強度の放射光をもってしてもイオン標的の実験は容易ではない。これが最近まで光-イオン相互作用の実験的研究が進んでいなかった大きな理由である。本グループはSPring

-8に向けてのR&Dを、光-イオン相互作用の実験手法を開発することに重点を置き進めてきた。イオン密度が小さいことを克服するために、光とイオンの相互作用距離を長く取れるビーム合流法を採用し、この手法の確立に努めてきた。SPring-8に置ける研究でもこの成果を生かし、ビーム合流法によるイオンの光電離の分光的研究を行う。さらに光エネルギーを拡張するだけでなく、イオン源としてはECRイオン源を用い、種々の原子の多価イオンを研究対象にする。

我々がR&Dとして行ってきた Xe^{q+} ($q=1-3$)、 Ba^+ 、 Eu^+ の4d電子を100eV付近の光で電離したときの生成イオンスペクトルは、元素とイオンの価数によって様相がまったく異なっている。これらは内殻準位に電子相関がきわめて大きな影響を与えていることを示している。中性原子の4d電離ではスペクトルの原子番号(Z)依存性を調べ、実効電荷の変化という観点からスペクトルの変化を説明している。イオン標的の場合はスペクトルの価数依存性は中性原子の Z 依存性とは様相が異なり、単純な実効電荷の変化だけでは説明がつかない。理論的な計算もある程度行われているが、電子相関を完全に取り入れて実験を再現できるような計算はまだ行われていない。なにより実験データが少なく理論との十分な比較ができていない。我々は標的となるイオンやその価数、および光のエネルギーを拡張しより系統的な測定を行おうと計画している。

光源としては基本波のピークが3~4 keVあたりにある挿入光源でエネルギー範囲を1~10keVと考えている。このエネルギー領域では二結晶分光器の熱負荷の問題は検討の余地がありR&Dが必要となろう。

◇非弾性散乱ビームライン

理化学研究所

田中 良和

物質の構造および物性を議論するうえで、構造因子 $S(\mathbf{q})$ の研究と同様に動的構造因子 $S(\mathbf{q}, \omega)$ の研究は重要かつ基礎的です。動的性質を調べる手段として中性子非弾性散乱、電子エネルギー損失分光法や光学ラマン散乱が広く利用されていますが、最近、シンクロトロン放射光の出現により硬X線領域におけるX線非弾性散乱実験による物質の動的性質の研究は急速に発展しつつあります。硬X線の非弾性散乱実験の研究から誘電関数、電子-電子相関、フォノン分散、マグノン分散などの励起に関する情報を得ることができます。このビームラインでは、非弾性散乱したX線の二階微分散乱断面積 $d^2\sigma/d\Omega d\omega$ を測定することによって、散乱体の電子系の動的構造因子 $S(\mathbf{q}, \omega)$ を求め、物質内電子および原子配列の挙動や応答の詳細な知見を得ることを通じて、物質構造の総合的研究を行うことを目的

としています。この分野はX線の利用研究にとって未開拓の領域であり、今後大きく発展することが予想されます。この研究を達成するためには、低エミッタンスを特徴とする第三世代の大型放射光施設のアンジュレイター挿入光源から得られる高強度のX線源を利用することが必要不可欠です。

現在、二つの実験ステーションを計画しています。一つは、0.1-1eVのエネルギー分光を行う実験ハッチ、もう一つは、数meVのエネルギー分光を行う実験ハッチです。

前者では、X線ラマン散乱、共鳴ラマン散乱および非弾性散乱実験を行います。これらの実験により軽元素を含む物質の誘電関数 $\epsilon(q, \omega)$ や電子構造に関する情報を得ることができます。 $S(q, \omega)$ の測定から誘電関数の絶対値（実部および虚部）を決定することができます。電子構造については基底状態の電子-電子相関の大きさを評価することができます。例えば、金属のバンド計算では多体効果をどのように取り込むかが大きな問題ですが、それらに対し指標を与えることができます。測定対象物として、液体、金属、高分子などを予定しています。

後者のハッチでは、フォノンやマグノンなどの量子励起に関する研究や蛋白質（酵素）などの生体高分子の電子励起の研究を予定しています。中性子非弾性散乱実験でもフォノン分散やマグノン分散の測定が可能ですが、X線による非弾性散乱実験では次のような特徴を生かした実験をすることが出来ます。

1. 微小単結晶の測定
2. 高温、高圧、高磁場などの極端条件下での測定
3. 表面、薄膜の測定
4. 液体、アモルファスなどの長距離秩序がない物質の測定
5. Low-q領域の測定
6. 高エネルギーの励起領域の分散の測定。

さらに、フォノン励起に関しては中性子は核を見るのに対し、X線は電子系を見る事から殻構造のフォノン(deformation) が観測される可能性があります。マグノン分散の測定では、Low-q領域、高エネルギー励起領域を測定することにより、幅広い領域の分散を知ることが出来ます。酵素などの生体高分子の電子励起の研究では、catalytic reactionにともなう電子状態の変化などの新しい情報が得られることが期待されます。

以上、このビームラインで取り組むサイエンスについて簡単にご紹介いたしました。すでにESRFの同様のビームラインでは2meVの分解能が達成されており、成果が確実に始まっています。SPRING-8でも早急にビームラインの建設をしたいと考えております。