

## SPring-8 BL04B2 評価報告

委員長 鈴木謙爾 ( (財) 特殊無機材料研究所 )  
北川 宏 (九州大学大学院理学研究院)  
藤井保彦 (日本原子力研究所東海研究所)  
水谷宇一郎 (名古屋大学大学院工学研究科)  
David L. Price ( Oak Ridge National Lab. )  
Henning Friis Poulsen ( Risø National Lab. )

### 1. はじめに

本評価委員会は平成 16 年 12 月 2 日、3 日の 2 日間、SPring-8 で開催された。本委員会には予め、Beamline Report BL04B2 (High Energy X-ray Diffraction) と SPring-8 Overview 2004 for Beamline Review Committees の資料が送付され、全委員から事前に個別意見書が提出された。委員会当日には、4 名の国内委員が出席した。施設側からの評価についての概要説明、SPring-8 の全体説明に続いて、ビームライン担当者から装置の概要説明の後、ビームラインの視察を行った。引き続き、ビームライン担当者から研究成果・将来計画・課題および問題点の詳細な説明を受け、質疑・応答、意見交換を行った。以下の評価報告書は、国内委員による審議と Price、Poulsen 両氏からの意見書に基づき取りまとめたものである。

### 2. ビームラインならびに実験設備の性能と整備状況

#### \* 評価

本ビームライン (BL) は偏向磁石を光源として 1998 年に建設され、水平面内 1 回反射の水平湾曲モノクロメーターで単色化した高エネルギー X 線を用いる特色を有する。モノクロ回折角固定のため波長は離散的であり、実験目的により垂直方向集光のため Be 製 Compound X-ray Refractive Lens (CRL) を設置している。特徴である高エネルギー X 線を有効に利用するための各種の工夫が行われており、同種の BL としては国際的に最高性能を發揮している。1999 年以来、

- (1) Two-axis Diffractometer for Disordered Materials ( 2 軸 X 線回折装置 )
- (2) Imaging Plate Diffractometer for Diamond Anvil Cell ( DAC )
- (3) Small-angle Diffractometer for Metallic Fluids ( 液体金属小角散乱装置 )
- (4) Weissenberg Camera for Single Crystals ( ワイセンベルグカメラ )

の 4 台の装置がタンデム配置され、順調に稼動している。

現在は、37.8 keV (Si 111) あるいは 61.7 keV (Si 220) の高エネルギー X 線ビームが取り出され供用されている。2004 年から開始された Storage Ring の Top-Up 運転に合わせて、微小不規則構造試料を測定するために必要とされるさらなる安定かつ高強度入射ビームを得るために、challenging な試みとして CRL が導入されたが、未だ十分な成果を得るには到っていない。

本 BL に設置されている 4 台の装置は、いずれも微小単結晶、不規則構造体、高温液体等々の特異な試料の測定を目的としており、高エネルギー放射光 ( E >

50 keV)を効率よく利用できる SPring-8 ならではの特徴が活かされ威力を発揮している。この線に沿って設計された 2 軸 X 線回折装置は実際その性能をよく発揮している。特に、top-up operation の稼働と相まって入射 X 線の強度が安定化してビームのふらつきが少なくなり不規則系の研究に不可欠な高 Q におけるデータの再現性が高くなりデータの質が著しく向上している。さらにこのように世界で最先端の装置を有効に活用するため、高温、高圧の極限環境でも構造解析が行えるよう装置が整備されているのは極めて適切であり、DAC を備えた高エネルギー用 Imaging Plate 回折装置や液体水銀の超臨界状態が得られる 1700°C、2000 気圧まで耐える高圧容器が開発され小角散乱実験に威力を発揮していることは素晴らしい。しかしその一方で、研究目的の異なる 4 台がタンデムに配置されているために、空間的に極めて狭隘であり、かつ装置毎に焦点距離が異なり、波長選択とも相まって、装置のアライメントに相当な時間と労力を要し、ほぼ 1 日をそのために費やしているとのことである。各装置の利用計画はそのようなアライメント時間を最小にするような工夫が行われているようである。

各装置は、高エネルギー X 線の持つ特徴、( 1 )最小の補正( 吸収、消衰効果 )、( 2 )高次反射・高 Q データ取得、を有効に利用する目的でこの BL に設置されているが、寄せ集めの感はぬぐえない。第 1 期として各種装置の試験的運用はやむを得ないかも知れないが、汎用から専用利用に移行する第 2 期計画では明確な戦略が必要である。

#### \* 提言

( 1 ) この BL の特長を活かすために、4 台の装置の適切な再配置が望まれる。

### 3 . 研究活動

#### \* 評価

液体やアモルファス固体の構造を記述する最も基本的な構造パラメーターは、原子間距離と配位数である。正確な原子間距離と配位数を求めるには、構造因子  $S(Q)$  を可級的に高 Q 領域まで測定しなければならない。これまでパルス中性子全散乱実験の独壇場であった高 Q データへのアクセスが、本 BL に設置された 2 軸 X 線回折装置の出現により SPring-8 においても可能となった。これにより、X 線  $S(Q)$  と中性子  $S(Q)$  を組み合わせて、多元系ガラスの部分構造が実験的に解明されるようになった。さらに、ナノ領域に限定される計算機シミュレーションの結果と高 Q 測定により得られる高分解能実空間情報の比較が明確な物理的意味を持つようになった。SPring-8 の高輝度・高エネルギー X 線ビームの利用は、吸収、偏光、多重散乱、消衰効果等々の補正を容易にしたのみならず、測定時の技術上の困難を著しく緩和した。このように、ガラスの構造の研究はこの BL で特筆すべき成果であり、 $Q_{\max} = 35 \text{ \AA}^{-1}$  はパルス中性子とほぼ同じ値を達成しており、両手法の相補的利用を益々促進するものと思われる。個別の研究が、他の研究手段 ( X 線だけに限らず中性子によるダイナミクス研究も視野に入れた ) や理論と相まってガラス全体の研究に発展することを期待している。

( 1 )  $\text{SiO}_2$  ガラスと  $\text{GeO}_2$  ガラスの中距離構造の微妙な相違の解明、地球マント

ルの原型物質である非結晶  $Mg_2SiO_4$  における特異な  $SiO_4$  あるいは  $MgO_n$  ( $n=4, 5, 6$ ) 多面体の相互結合のモデル化は優れた成果である。

(2) 本来小角散乱と高エネルギー X 線は相反するが、水銀 (超臨界金属流体) の密度揺らぎ観測による金属-絶縁体転移の研究は、独自性の高い研究成果である。臨界点では非伝導性液体と高密度気体の間の揺らぎが生じているとの結論は、長年にわたり繰り返されてきた議論に画期的な方向付けを示唆したものであり、学問的に高く評価できる。しかし、他の研究分野への波及効果が小さい点は今後の発展を考える上で懸念される。研究グループならびに施設者側の計画的かつ組織的啓蒙活動が必要であろう。

(3)  $SnI_4$  アモルファス相、液体酸素及び窒素、そして  $SrCu_2O_3$  の圧力による構造変化が報告されている。高エネルギー X 線のおかげで高圧下での構造解析を可能にした例である。これら DAC を用いた超高压領域における結晶ならびに非晶質・液体状態の研究はユニークである。

(4) LDEM (low-density elimination method) を援用して Al-Pd-Re 準結晶の構造モデルを作った研究は準結晶の分野で高い評価を得ている。その一方で、ワイセンベルグカメラは実験室系に最適化した市販品をそのまま持ち込んだ感じであり、BL の特性を十分生かし切れていないと思われる。重金属を含む錯体の構造研究は当該分野では重要なものであるが、本 BL での実施が適切なものかどうか疑問である。

#### \* 提言

(1) 2 軸 X 線回折装置による非晶質・液体、並びに DAC による高圧構造解析は、高い評価を得ており、今後も引き続き発展させるべきである。

(2) ワイセンベルグカメラによる錯体の構造解析などは、他の適切な設備で行うことが望ましい。

### 4. 共同利用支援体制

#### \* 評価

##### 応募ならびに採択課題数

本 BL に対する応募課題数は、2001B 期に一挙にほぼ倍増している。この急増が 4 分野すべてに当てはまるのか、あるいは特定の分野に起因するのかが明らかにされていないが、そのために採択率が 90% 前後から 60% 前後に急落した。採択率 60% という数字は、かなり狭い門であるが、ユーザーに適度の緊張感を刺激する妥当なものであろう。他方、採択実施された課題数は、この 5 年間ほぼ一定であり、每期 20 件前後である。4 分野それぞれの採択実施課題数にも大きい変動は見られない。大つかみに見て、Disordered Materials 40%、Single Crystal 30%、High Pressure 25%、Supercritical Fluids 5% のレベルで一定していたが、2004A 期から Disordered Materials が急増している。Supercritical Fluids 分野では毎回 1 件しか採択されておらず特殊なテーマであることが伺われる。このテーマの独創性は高く引き続きサポートする一方、新たな研究対象の開拓も必要であろう。

各研究分野のアクティビティーから課題申請数が期待されているとおりなのか、それとも少ないのかを現状では判断できない。本 BL が 4 台の装置の寄り合

い世帯の様相を呈していて、各装置のビームタイムが限られていることから、ユーザーが申請を自己規制していて優れた研究課題を逃している可能性はないか疑問が残る。

### マシンタイム

採択された課題の要求するマシンタイム(シフト数)に対する充足率は、2001A期の111%を除くと、80~90%の範囲に収斂してきている。これは望ましい傾向である。

4分野に配分されたシフト数の割合は、一定ではなく、年次にしたがってかなり変化している。Disordered Materials が1999B期から2003B期にかけて3倍増になっている。Single Crystalでは各期に多少の凸凹はあるが、ほぼ一定している。他方、Supercritical FluidsとHigh Pressureの2分野のシフト数は、年次を経るにしたがって相対的に縮小してきている。しかし、いずれの分野においても一課題に割り当てられた平均シフト数は8~10シフトであり、分野による差異は顕著でない。実験の性格によるのであろうが、Supercritical Fluidsには每期20~30シフトが与えられている。

### 成果の公表

本BLで実施された研究の成果は、2001年以降その多くが審査された学術論文として専門学術雑誌に公表されている。総説、学会プロシーディングスも含めて、2004年までに60編弱に達している。年次毎に見ると、2003年の18編をピークにして、だいたい毎年10数編である。レビューは英語での発表が5年間で1件しかないのは少し淋しい。国際会議での発表件数もやや少ないという印象である。また、質の高い論文を書くべきであり必ずしも数だけの問題ではないが、一本も成果を発表しないで終わっている場合がいくつか見られたのは改善すべきである。

4分野の論文1編あたりに使用した、シフト数と実施課題数を概算すると、

Disordered Materials	: 38 シフト、	4 課題
Single Crystal	: 74 シフト、	6 課題
High Pressure	: 25 シフト、	3 課題
Supercritical Fluids	: 86 シフト、	3 課題

となる。論文1編を書き上げるのに多くのシフト数と課題数を使用する、換言すれば生産性の低い分野がSingle Crystalである。Supercritical Fluidsが最も多くのシフト数を使用しているが、実施課題数は他の2分野と同じである。一番生産性の高い分野はHigh Pressureである。このような比較をすること自体の意味を慎重に検討する必要があるが、分野により成果公表の実績にかなりの差異が生じていることは事実である。

Invited TalksやReview Articlesはその分野の活力を示す尺度と考えられるが、このような観点からするとDisordered MaterialsとSupercritical Fluidsが高い活力を保持していると判断される。論文発表数が2002年にピークになり、その後の2003、2004年には減少・飽和しているが、これが如何なる要因によるものか十分に調査する必要がある。

この5年間に採択実施された海外の大学、研究機関からの課題は5件、国内の民間企業研究所からの課題が2件である。但し、2004年以降は海外からの申請

課題数は増加する傾向が認められる。本 BL は産業応用を表看板にしているのではないので、民間企業からの採択が少ないことは目をつむるとしても、海外から魅力的なビームラインとして認知されるように努力する必要がある。

#### \* 提言

(1) 本 BL は国内的にはかなり良く認知されてきたが、海外からのユーザーを一層増やすべきである。

(2) 論文発表が皆無の課題があるが、その原因を究明し発表論文数の増加に努めるべきである。

### 5. 将来の装置開発と研究の方向性

#### \* 評価

Beamline Report BL04B2 に提案されている 6 項目の将来計画は、極めて妥当なものであり、その実現が強く要望される。将来計画を立案するに際して、考慮しなければならないポイントは、高輝度・高エネルギー X 線の特徴をさらに生かし切る方策、ユーザーがさらに魅力を感じて集まってくる方策をハード、ソフト両面から築き上げることである。

本 BL に設置されているワイセンベルグカメラは既製品であるため、カメラ半径が小さく十分な分解能が得られていない現状である。この観点から、現在 4 台混在する装置のうちワイセンベルグカメラで行われている課題を真空カメラ (BL02B1) に移行し、その他の 3 台を 2 軸 X 線回折装置に統合する計画は、第 2 期計画を進めるに当たって極めて妥当である。ワイセンベルグカメラの他所への設置、あるいは他の BL、グループとの融合は大いに推進すべきである。十分にユーザーの意向を反映して進めることが望ましい。

この BL では、高エネルギー X 線による国際的に特徴ある装置として、独自性の高い研究テーマを遂行するべきである。その意味で、試料空中浮上技術を応用した容器フリーの液体構造や過冷液体に存在すると考えられている局所構造の同定などの研究が可能になる BL として整備する計画は挑戦的であり、大いに期待される。さらに高エネルギー X 線を利用するための Si(511)モノクロメーターの導入、2 軸 X 回折装置の垂直方向観測 (PSD の利用も視野に入れて) 機能付加などの計画は妥当である。

他方、BL04B2 を担当する In-House Staff が 2 人であるということは、国際的第一級の施設としては如何にも少ない。新たに 1 ~ 2 名のスタッフの増員が望まれる。これらの In-House Staff は専門分野にとらわれることなく、広い視野で BL の維持管理運営を行うとともに研究成果を挙げて欲しい。

#### \* 提言

(1) 提案された今後 5 年間の戦略は適切である。

(2) 広い視野を持った In-House Staff の充実。

### 6. まとめ

これまでに本 BL は十分な成果を挙げてきているが、今後の一層の発展を期す

るためには、不規則構造系の高エネルギー X 線回折に研究対象分野を整合・集中することが望まれる。しかし、ここでいう整合と集中とは、狭く金属や無機ガラスに限定することではなく、水溶液、熔融塩、場合によれば有機化合物系をも包含する広い視野の下での整合と集中であるべきである。金属超臨界流体のような多くのマシンタイムを必要とするユニークな課題が本 BL で実施されていることは、特筆すべき SPring-8 のポリシーである。しかし、このような特異な課題は、課題審査において必要シフト数のみならず成果公表の時期と方法についても客観的な評価を受けべきであると考え。超臨界流体の枠を金属から他の物質までその枠を広げ新しいユーザーを開発することについても並行して努力し一層の発展をさせて欲しい。

本 BL は、高エネルギー X 線の有効性を利用する各装置の寄り合い世帯の様相を呈しているが、それは大型施設では避けられない第 1 期試用期間での経過措置であろう。この 4 台の装置の中で真に SPring-8 として世界を主導するサイエンスを発信する装置に重点を置き、第 2 期に備えることが肝要と思われる。すなわち、汎用から専用にフェイズをシフトするのが望ましい。そのためには、波及効果の大きなガラス・非晶質などの優れた特徴ある研究を推進することが望ましく、今後もランダム系（非平衡系）物質の構造測定専用ラインとして整備が十分になされていくことが大切と考える。提案されている将来計画はその方向に一致しているものと判断される。

大学と比べて大きな運転経費が投入されているので、他にない特殊な装置を開発していく必要がある。特に日本の大学では実験装置開発を主体にした研究者が育ちにくい土壌が益々強くなっているため、SPring-8 のような大きな研究施設で実験装置・手法を研究の中心とする若手研究者が今後も育成されていくことを希望する。