

BL23SU

原研 重元素科学

1. はじめに

BL23SU は、軟 X 線分光や照射実験を目的に建設された原研専用軟 X 線ビームラインである。現在では研究環境の整備が進み、表面化学、生物、電子物性などの分野で独自の放射光実験が進められている。ビームラインは大きく蓄積リング棟と RI 棟のふたつのセクションに分かている。蓄積リング棟の表面化学及び生物照射効果研究用のふたつのステーションが順調に稼働し、原研の独自研究が進められている。RI 実験棟内の電子物性ステーションの整備もほぼ終わり、2002年度には国際規制物資を用いた研究が開始される予定である。

2. ビームラインの改良・高度化

2001年度に行われたビームラインの改良・高度化は、以下の通りである。

BL23SU のアンジュレータ用真空チャンバーは、蓄積リングのコミッシュニング時に設置されたため、加速器グループの要請により断面積が広くとられていたが、1次光で0.28keVまでカバーできるように、特に鉛直方向が薄くなるように改造した。新しい真空チャンバーは内寸15mm、外寸19mmとなり、ギャップを25mmまで閉めることができるようになった。IDチャンバー交換に伴う最大放射パワー

の上昇に対して、光学ハッチ内の局所遮蔽の増強による遮蔽対策や放射線管理への変更申請が進められ実運用への準備が進んだ。

本アンジュレータの最も重要な特徴である連続左右円偏光の高速切り替えは、磁石列の位相駆動を繰り返すことによって得られる。位相変調が引き起こす電子ビーム軌道の変動を抑えるための高精度位相駆動補正励磁テーブルの精度の向上が進められた。また、偏光切り替えによるビームプロファイルの変化を精密に追えるようXBPM(光位置モニタ)の改造も行った。

(安居院あかね・吉越章隆・中谷 健)

3. 半導体および重金属表面の酸化反応素過程の研究（表面化学ステーション）

表面化学ステーションでは、半導体および重金属表面の酸化反応素過程の研究が行なわれている。表面で起こる化学反応を解析するために、(1)表面の化学組成や化学結合状態の実時間その場観察と(2)入射分子の運動エネルギーをパラメータとした表面反応ダイナミクスを主な実験テーマとしている。それを実現するための手段として、超音速分子線技術と放射光光電子分光技術を用いている。両者を併用できる世界的にも特色ある表面反応分析装置を開発し、そ

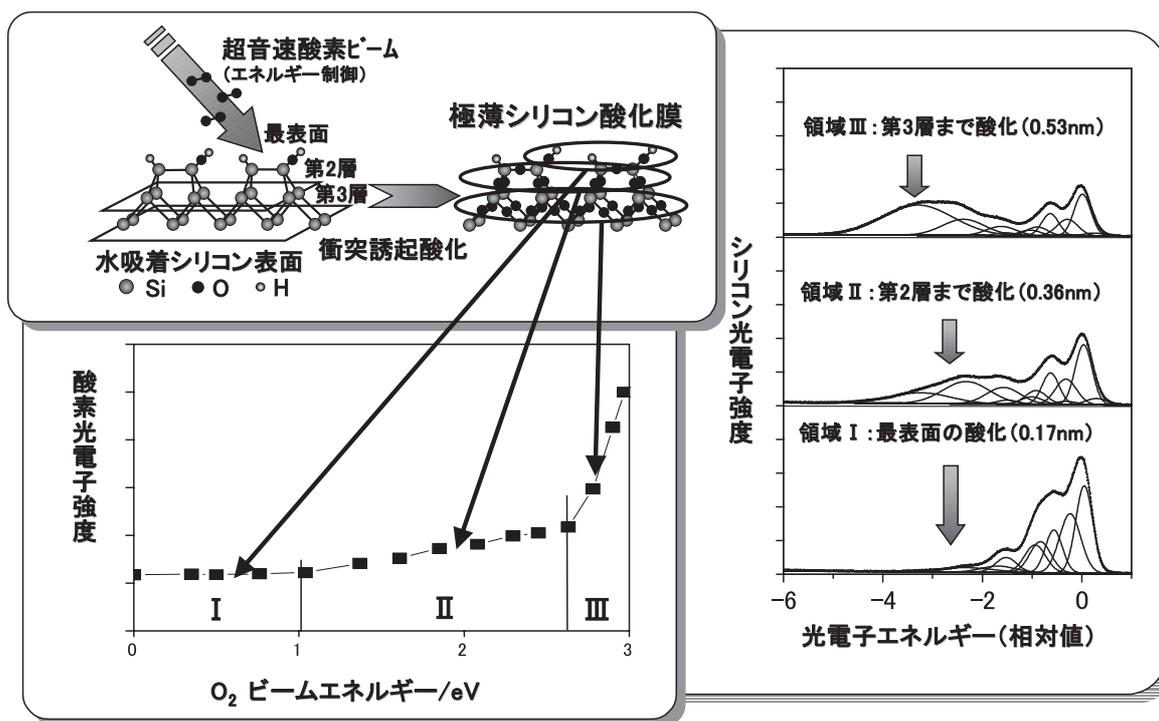


図1 水吸着 Si(001)面に対する酸素飽和吸着量の O₂ 運動エネルギー依存性と代表的な運動エネルギーでの Si-2p 内殻光電子スペクトル。

れを活用してシリコン，チタン，銅，エルビウム酸化初期過程の解明を進めた。Si (001) 表面の O₂ 分子による室温酸化においては、O₂ 分子の初期吸着確率の運動エネルギー依存性や Si- 2p、O- 1s 内殻光電子スペクトルの実時間その場観察から、清浄面、水吸着面、水素終端面それぞれにおいて O₂ 分子との反応性の違いが明確にされた。一例として図 1 に水吸着面に対する酸素飽和吸着量の運動エネルギー依存性と代表的な運動エネルギーでの Si- 2p 光電子スペクトルを示す。酸素飽和吸着量が運動エネルギーに依存して増加し、1.0eV と 2.6eV に閾値が存在することが見出された^[1]。それらの閾値で区分される三つの運動エネルギー領域の各領域で、代表的なエネルギーを持つ O₂ 分子の照射によって形成された酸素飽和吸着面の Si- 2p 準位の光電子スペクトルから^[2]、第一の閾値は最表面シリコンと第二層間での解離吸着、第二の閾値は第二層と第三層間での解離吸着と解釈された。これらの結果から、第一原理計算で予測された O₂ 分子の解離吸着過程のポテンシャルエネルギー障壁が実験的に初めて検証された。さらに、本ステーションを活用してチタン，銅，エルビウム表面の O₂ 分子による酸化過程が明らかにされつつある。これらの極薄金属酸化膜の形成過程に関する知見は、次世代真空材料や配線材料の不動態化、高誘電率薄膜の製作等、ナノテクノロジーの発展を基礎から支援するものとなる。これら重金属の酸化反応の研究は大学との共同研究として推進されている。

(寺岡有殿・吉越章隆)

4. DNA の塩基損傷の軟 X 線光化学過程 (生物ステーション)

生物ステーションでは、突然変異や発ガン・老化などの原因となると考えられる DNA など生体分子の軟 X 線光化学変化を調べることを目的として設置されたステーションである。これまでに DNA 及びその関連分子の酸素・窒素の K 殻吸収端近傍の X 線吸収微細構造の測定を行い^[3]、またこれらの微細構造を狙った時のグアニン及びチミンの短寿命ラジカルの検出に成功した^[4]。

さらに軟 X 線照射による DNA 塩基の化学的に安定な損傷の実体を追跡するため、4 つの DNA 塩基のうちの一つである thymine に対する酸素及び窒素の共鳴励起による分子変化を高速液体クロマトグラフィー (HPLC) 法を用いて調べた。試料には、シリコン基板に数十 nm 程度の厚みで蒸着させた thymine を用いた。高真空チャンパー中で、酸素あるいは窒素の K 殻共鳴励起 (1s^{*}) 波長の単色軟 X 線を照射した後、真空チャンパーから取り出し HPLC 分析を行ない、対照実験として線照射実験の結果と比較解析した。Thymine の酸素及び窒素の K 吸収端近傍での XANES スペクトルとそれぞれの波長で得られた HPLC パターンをそれぞれ図 2 と図 3 に示す。これらの結果から、(1)酸素の共鳴励起は、窒素のそれよりも全てのプロダクトで低い収率を与えること、(2)真空中であっても軟

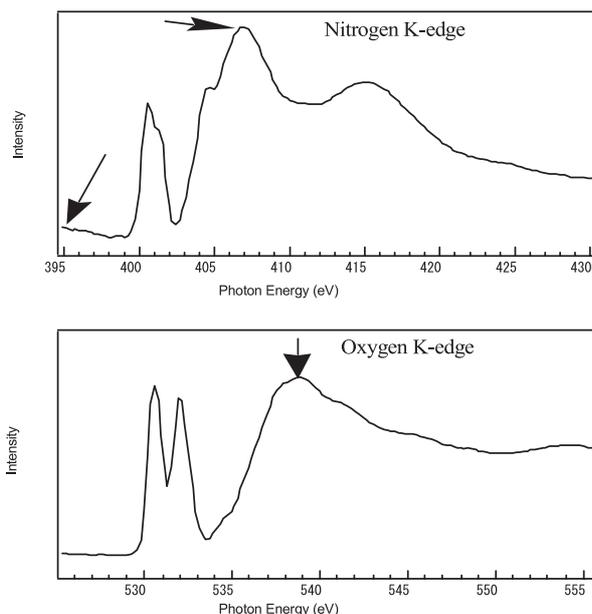


図 2 DNA 構成塩基のひとつである thymine の酸素・窒素 K 吸収端における XANES スペクトル。矢印は照射に用いたエネルギーを示す。

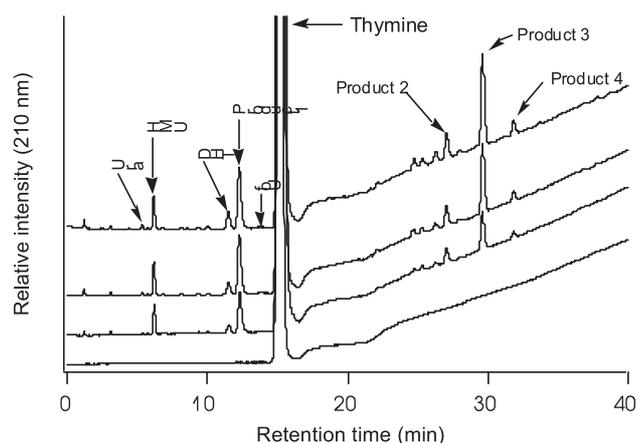


図 3 酸素・窒素 K 吸収端近傍の軟 X 線照射した thymine の HPLC スペクトル。

X 線照射により dihydrothymine や hydroxymethyluracil といった、酸化損傷として既に知られている分子種が生成すると同時に、未知のプロダクトも多く生成することが明らかになった。これらの結果から、内殻励起原子の分子内の位置が、最終生成物のスペクトルに大きく関わること、また未知プロダクトは線照射では生じないことから軟 X 線に特有のエネルギー付与構造を反映した軟 X 線光化学反応が固相 thymine 中で生じていることが示唆された^[5]。

(赤松 憲・藤井健太郎・横谷明徳)

5. 強相関電子系物質の電子状態研究 (電子物性ステーション)

強相関電子系物質の電子状態研究を目的として、RI 実験棟において高分解能光電子分光装置と軟 X 線吸収磁気円二色性分光装置の整備を進め、放射光を用いた分光実験を開始した。

5.1 高分解能光電子分光実験

実験室光源を用いた実験では 5 meV 以下のエネルギー分解能を達成し、いくつかの強相関電子系物質におけるフェルミ準位近傍の電子状態を調べた。具体的には、近藤効果や価数揺動を示す Yb 化合物 $Yb_2Co_3X_4$ ($X = Al, Ga$)、 $YbCu_{[1-x]}Ag_{[x]}$ について温度変化に応じた近藤ピークの振る舞いを明らかにし、重い電子状態の発現機構に関する知見を得た^[6]。また、角度分解光電子分光実験により一次元ハロゲン架橋錯体 $[Ni(chxn)_2Br]Br_2$ ^[7]、量子臨界点近傍に位置する重い電子系 Ce 化合物 $CeMIn_4$ ($M = Rh, Ir$)^[8] について、その物性理解の鍵となるバンド構造を決定した。

軟 X 線放射光を用いた実験では、バルク敏感光電子分光測定や共鳴光電子分光測定を行った。図 4 に $CeMIn_4$ ($M = Rh, Ir$) の 3d-4f 共鳴光電子スペクトルを示す。内殻共鳴を利用することにより、この物質の重い電子状態の鍵を握る Ce4f 部分電子状態に関する情報を得た。この他に、 $YbCu_{[1-x]}Ag_{[x]}$ のバルク電子状態の研究やスクッテルナイト型化合物 RF_4Sb_{12} ($R = Ce, Yb$) の重い電子状態の研究を進めている。

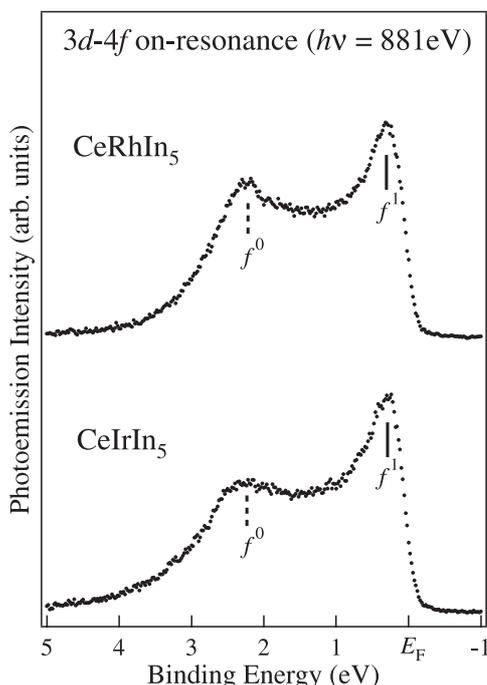


図 4 量子臨界点近傍に位置する $CeMIn_4$ ($M = Rh, Ir$) の 3d-4f 共鳴光電子スペクトル。

5.2 軟 X 線吸収磁気円二色性分光実験

RI 実験棟において、軟 X 線吸収磁気円二色性分光装置とこれに関連する光学装置を設置するとともに、ビームライン分光器駆動ソフトウェアを中心とする制御系の整備を進めた。そして、RI 棟で軟 X 線吸収磁気円二色性実験が行える環境を整え、外部磁場反転による標準試料の分光実験から、放射光の円偏光特性に関する基礎データを収集し

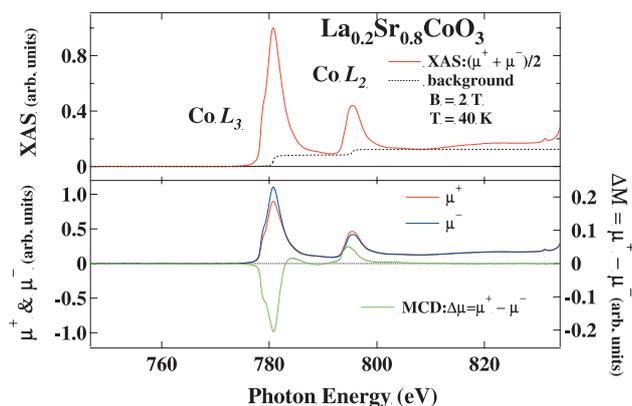


図 5 強磁性金属化合物 $La_{0.2}Sr_{0.8}CoO_3$ の $Co L_{2,3}$ 吸収端での軟 X 線吸収磁気円二色性スペクトル。(a) は吸収スペクトル、(b) は外部磁場と入射円偏光が平行・反平行配置での吸収スペクトルとその差分 (MCD) スペクトル。

た。具体的には、図 5 に示す強磁性金属化合物 $La_{1-x}Sr_xCoO_3$ の $Co L_{2,3}$ - 吸収端と O K- 吸収端、Ni 蒸着膜の $Ni L_{2,3}$ - 吸収端において分光実験を行い、500eV ~ 800eV の領域において一定の円偏光度が得られることを確認した。

本軟 X 線吸収磁気円二色性分光装置のように 10T までの外部高磁場を印加できる装置は世界的にも類がない。今後、この高磁場印加の特長を活かして、メタ磁性や巨大磁気抵抗などの外部磁場に依存する特異な磁気的性質に関する研究を進める計画である。

(岡根哲夫・藤森伸一・岡本 淳・間宮一敏・村松康司)

表面化学研究グループ

寺岡 有殿・吉越 章隆
赤松 憲・藤井健太郎
横谷 明德

日本原子力研究所 関西研究所 電子物性研究グループ

安居院あかね・中谷 健
岡根 哲夫・藤森 伸一
岡本 淳・間宮 一敏
村松 康司

参考文献

- [1] A .Yoshigoe and Y .Teraoka:Surf Sci 482-485(2001) 189 .
- [2] 寺岡,吉越:放射光 ,15(2002)27 .
- [3] K .Fujii ,K .Akamatsu and A .Yokoya:Nucl .Instr . Meth .Phys .Res .B .to be published .
- [4] A .Yokoya ,K .Akamatsu and K .Fujii:Nucl .Instr . Meth .Phys .Res .B .to be published .
- [5] K .Akamatsu ,K .Fujii and A .Yokoya:Radiat .Res . to be published .
- [6] T .Okane ,S .i .Fujimori ,A .Ino ,A .Fujimori ,S .K .

- Dhar, C., Mitra, P., Manfrinetti, A., Palenzona, and O. Sakai: Phys. Rev. B 65 (2002) 125102; T. Okane, S.-i. Fujimori, A. Ino, A. Fujimori, S. K. Dhar, C. Mitra, P. Manfrinetti, and A. Palenzona: Physica B 312-313 (2002) 349.
- [7] S.-i. Fujimori, A. Ino, T. Okane, A. Fujimori, K. Okada, T. Manabe, M. Yamashita, H. Kishida, and H. Okamoto: Phys. Rev. Lett., in press.
- [8] S.-i. Fujimori, A. Ino, T. Okane, A. Fujimori, H. Harima, D. Aoki, Y. Tokiwa, S. Ikeda, H. Shishido, Y. Haga, and Y. Onuki: Physica B 312-313 (2002) 132.