

## BL23SU 原研 重元素科学

### 1. はじめに

BL23SUは軟X線の分光実験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。ビームラインは蓄積リング棟とRI実験棟のセクションに分かれており、前者には表面化学ステーションと生物ステーション、後者には電子物性ステーションとしての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が設置されている。2002年度にはRI実験棟における国際規制物資の取扱い環境が整備され、ウラン化合物を対象とする原研独自の研究を開始した。また、ナノテクノロジー総合支援プロジェクトの一環として、表面化学ステーションに高速原子分子ビーム装置、超音速配向分子ビーム装置、および原子分子ビーム評価装置を導入し、電子物性ステーションにレーザーMBE装置を導入した。2003年度はこれらの研究環境を最大限に活かした原研独自研究と外部ユーザー支援研究を加速化させる予定である。

(村松 康司、馬場 祐治)

### 2. 軟X線ビームラインBL23SU用挿入光源

SPring-8の軌道安定化プロジェクトの活動の中で、ID23の位相駆動開始と停止時の軌道変動が問題になった。この軌道変動は、

- ・位相駆動用サーボモーターの電磁ブレーキを解除 (=サーボモーターの電源をON) した時に跳びが出る。
- ・一度位相を駆動してサーボモーターのローカルフィードバックで位置を保持している間、定周期の軌道変動が表れる。
- ・定周期の振動は電磁ブレーキをかけると消える。
- ・位相を止める位置に応じて周期が変化する。

という特徴があった。

サーボモーターからの漏れ磁場を磁場測定したところ、漏れ磁場の変動パターンと軌道変動のパターンが大変良い相関を示したので、この軌道変動の原因はモーターからの漏れ磁場であることが解った。2002年夏の長期停止期間に工事を行い、サーボモーター本体に磁場遮蔽体を取り付けた。工事後、漏れ磁場の遮蔽を磁場測定で確認して、スタディで軌道変動を測定したところ、遮蔽前は、蓄積リングの電子ビームモニターで5 $\mu$ m程度あった軌道変動はほとんど観測不可能になった。

(中谷 健、安居院 あかね、吉越 章隆)

### 3. 半導体および金属表面の化学反応ダイナミクス (表面化学ステーション)

表面化学ステーションでは、半導体および金属表面で起こる化学反応のメカニズムが研究されている。特に酸化や窒化反応における、(1)表面の化学組成や化学結合状態の実時間その場観察、(2)入射酸素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<sup>[1,2]</sup>。実験手段として、超音速分子ビーム法と放射光光電子分光法を用いている。超音速分子ビームと放射光を同時にサンプルに照射しながら光電子分光観察ができる世界的にも特色ある表面反応分析装置を開発した。2002年度ではSi(001)、Si(111)、Ti(0001)、Cu(001)、Cu(111)単結晶表面の酸化および窒化初期過程の解明を進めた。Si(001)表面のO<sub>2</sub>分子による高温酸化においては、酸化膜厚と膜質は表面温度で決定されるとの予想に反して、O<sub>2</sub>分子の運動エネルギーによって酸素の吸着曲線が全く異なることが明らかとなった。表面温度：945K、運動エネルギー：0.8eVの時には表面に酸化膜は形成されずにSiO分子が熱脱離する。1.2eVではSiO脱離と酸化膜形成が共存することによる緩やかな吸着曲線を示し、1.5eV以上ではラングミュア型に近い急峻な吸着曲線を示した。これは、表面温度とガス圧力に加えて、運動エネルギーが第三の反応制御パラメータになることを表している。さらに、大学や国立研究所と共同でTi(0001)、Cu(001)、Cu(111)

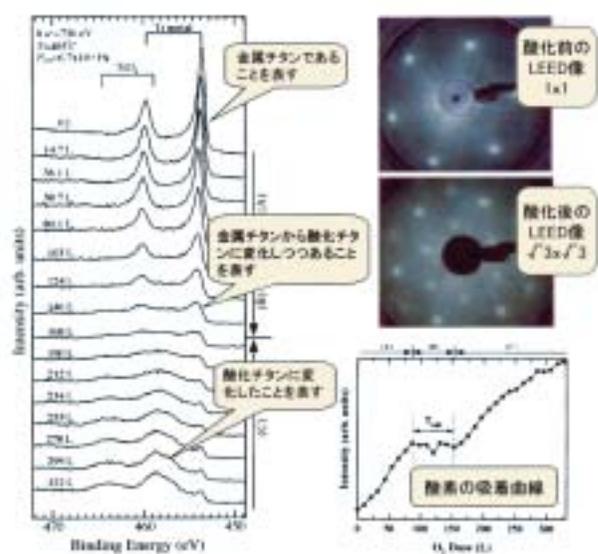


図1 Ti(0001)表面とO<sub>2</sub>ガスとの化学反応でTi(0001)表面が金属Tiから、TiO<sub>2</sub>に変化する様子を表すリアルタイム光電子スペクトルとLEED像。

Si(111) 表面のO<sub>2</sub>分子ビームによる酸化素過程の研究を推進し、運動エネルギーで誘起される反応過程がこれらの表面でも存在することを明らかにした。また、Ti(0001) 表面の窒化素過程の実時間その場光電子分光観察も実現した。図1にTi(0001) 表面の酸化過程のリアルタイム光電子分光<sup>[3]</sup>と低エネルギー電子線回折像の例を示す。これらの極薄絶縁膜の形成過程に関する基礎的知見は、純粹表面化学の発展に寄与するのみならず、次世代真空材料やLSI配線材料の不動態化、高誘電率薄膜の開発等のナノテクノロジーに関わる研究発展を基礎から支援するものとなっている。

(寺岡 有殿、吉越 章隆)

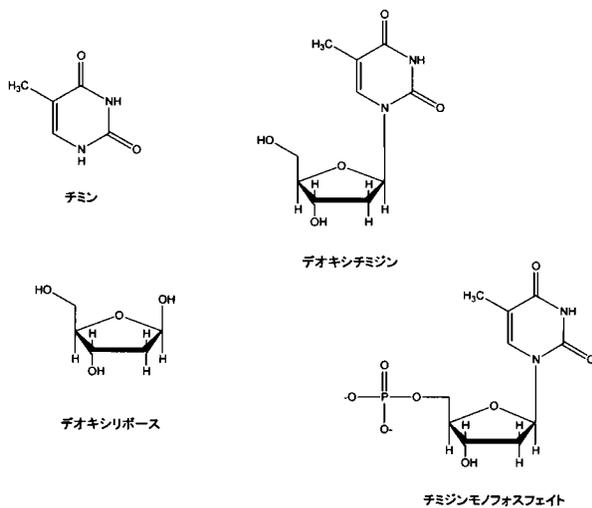


図2 デオキシリボース及びチミン系列の分子の構造。

#### 4. DNA損傷の軟X線光化学過程(生物ステーション)

生物ステーションは、突然変異や発ガンなどの直接の原因といわれているDNAの損傷過程を、軟X線領域のアンジュレタ光を使って分光学的に研究するためのステーションである。現在、電子常磁性共鳴(EPR)装置と四重極質量分析装置(QMS)のふたつの実験装置による実験が開始されており、DNAの軟X線領域における損傷過程についていくつかの重要な知見が得られている<sup>[4-7]</sup>。

特にQMSを用いて、酸素1s \*共鳴励起エネルギーでの脱離イオンの測定がデオキシリボース及びチミン系列の分子(チミン、デオキシチミン及びチミンモノフォスフェイト(図2))の薄膜試料を用いて行われ、それぞれ特徴のある脱離イオンスペクトルが得られた(図3)。これらのスペクトルの比較から、デオキシリボースは他の分子に比べて2倍以上壊れやすいことが明らかになった。これは、ペントース環の抜けた構造に起因する内部エネルギーが、不飽和結合を持つチミンのピリミジン環に比べて高いことによると推測される。また、デオキシチミン及びチミンモノフォスフェイトのイオンスペクトルは、デオ

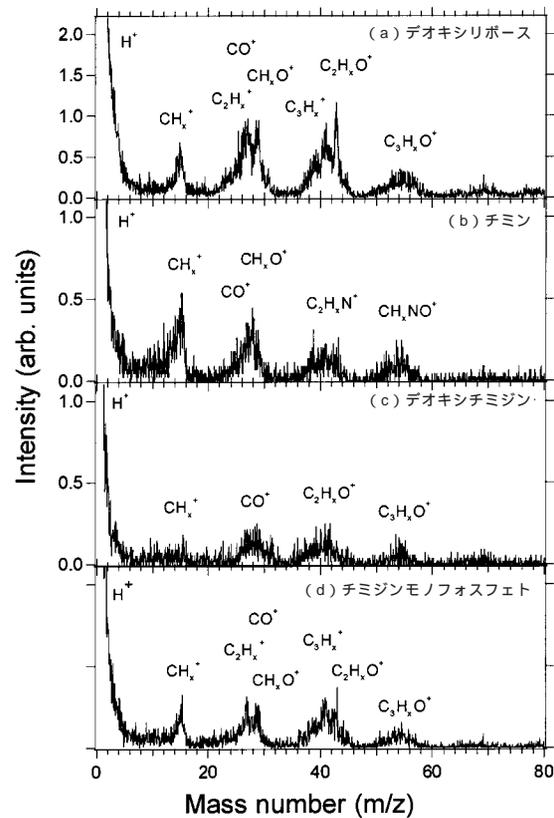


図3 酸素1s \*共鳴励起エネルギーでの脱離イオンスペクトル。

キシリボースのそれとよく似ていることから、これらの分子でもペントース部位が壊れやすいことが示唆された。デオキシリボースからの脱離フラグメントの種類から、C-C結合とC-O(または別のC-C結合)の同時的な切断が起こっていることが推測される。これはDNA分子中では、ペントース環の完全な欠落を伴う - タイプのssb(1本鎖切断)が生じる可能性を示している。以上のことから、軟X線によるDNA損傷の過程の中で、デオキシリボースの崩壊が最も起きやすい損傷のタイプとして、デオキシリボースの崩壊による1本鎖切断タイプの損傷が示された。今後は、このような損傷と近接して生じる酸化的塩基損傷の組み合わせからなるクラスターDNA損傷の解析を進めて行くと同時に、同じエネルギー領域の電子線インパクトによる脱離イオン測定も行い、フォトンと電子の比較を行う予定である。

(藤井 健太郎、横谷 明徳)

#### 5. 強相関電子系機能材料の電子状態研究(電子物性ステーション)

超伝導や巨大磁気抵抗など特異な物性を示す強相関電子系機能材料の電子状態を解明するため、これらの高分解能光電子分光実験と軟X線吸収磁気円二色性分光実験を行った<sup>[8-13]</sup>。特に、RI実験棟における国際規制物資の取扱い環

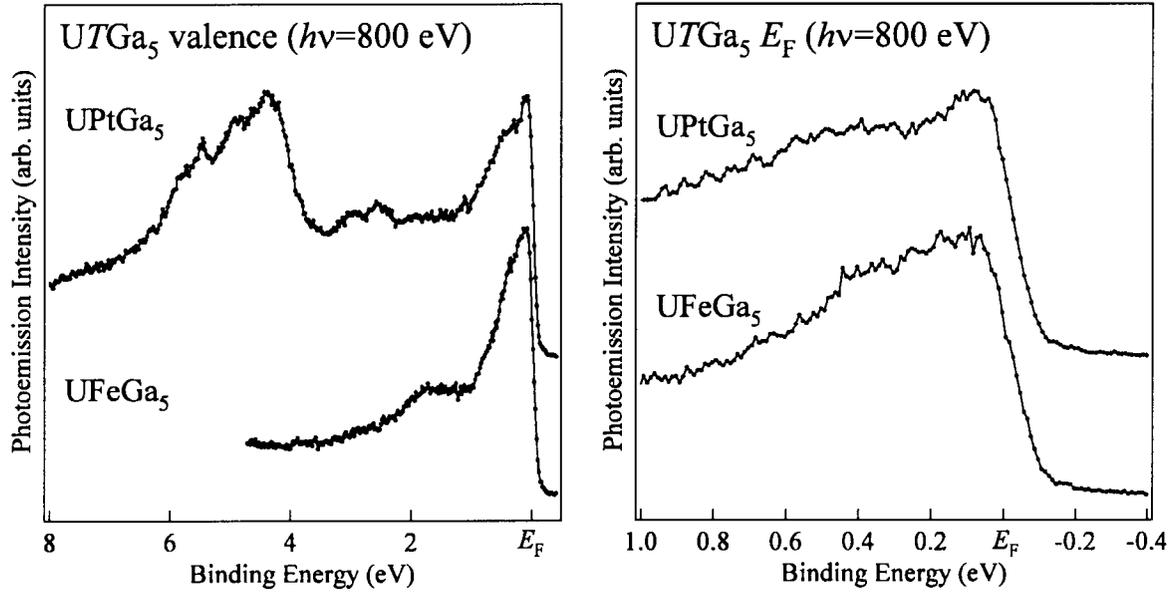


図4 ウラン化合物 $UTGa_5$  ( $T=Fe, Pt$ ) の価電子帯スペクトル (左) とフェルミ準位付近 (右) のスペクトル。

境を整備してウラン化合物の光電子分光実験を実現した。さらに、ナノテクノロジー総合支援プロジェクトの一貫としてレーザー-MBE装置を導入し、ナノ構造薄膜研究を開始した。

(1) 高分解能光電子分光実験

ウラン化合物 $UTGa_5$  ( $T=Fe, Pt$ ) は重い電子系超伝導体である $CeIrIn_5$ や $CeCoIn_5$ と同じ $HoCuGa_5$ 型構造を持ち、準二次元的な電子状態を持つと考えられている。このうち、

$UFeGa_5$ は常磁性体であり、 $UPtGa_5$ は $T_N=26K$ の反強磁性体である。そこで、これらの電子状態を解明するため、 $UTGa_5$ の放射光光電子分光実験を行った。図4に価電子帯スペクトルと、フェルミ準位近傍を詳細に測定したスペクトルを示す。フェルミ準位近傍に観測されるスペクトル構造は $U5f$ 電子状態を反映し、この電子状態が $Fe$ と $Pt$ の系で異なることが示唆された。現在、この解析を進めている。

(2) 軟X線吸収磁気円二色性分光実験

特異な反強磁性 - 強磁性転移現象を示す $SrFe_{1-x}Co_xO_3$  ( $0 < x < 0.5$ ) の電子状態を解明するため、組成比 $x=0.2$ の転移点前後における $Fe$ と $Co$ の磁気的変化を軟X線吸収磁気円二色性分光法により調べた。その結果、 $x < 0.2$ の領域では $Fe$ と $Co$ の磁化は $x$ の増加に伴って単調に増加するが、 $x > 0.2$ の領域では、ほぼ一定の磁化を示す $Fe$ に対して、 $Co$ では図5に示すように磁化の増減が明瞭に観測された。これから、 $Co$ のスピ配置は $x > 0.2$ の強磁性転移後に大きく変化することが示唆された。

(岡根 哲夫、岡本 淳)

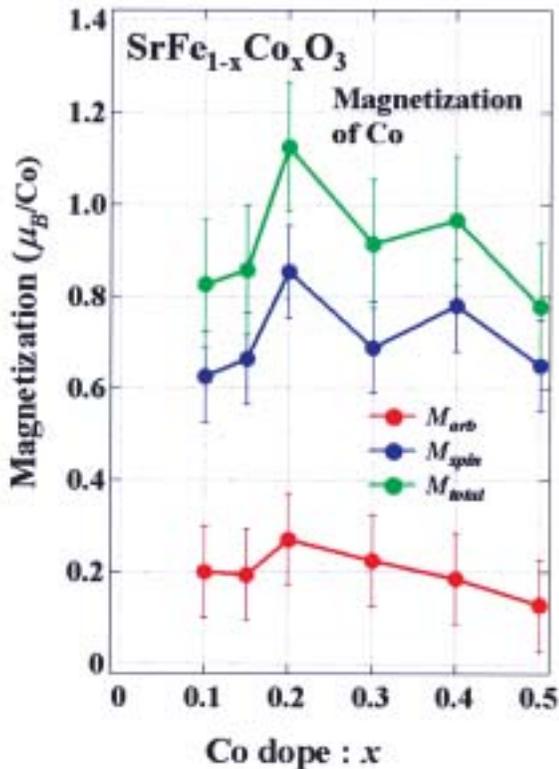


図5  $SrFe_{1-x}Co_xO_3$ における $Co$ サイトの磁化変化。

参考文献

[1] Y. Teraoka and A. Yoshigoe : Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 4253-4260.  
 [2] A. Yoshigoe and Y. Teraoka : Surface and Interface Analysis **34** (2002) 432-436.  
 [3] Y. Takakuwa, S. Ishidzuka, A. Yoshigoe, Y. Teraoka, Y. Mizuno, H. Tonda, and T. Homma : Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. **B 200** (2003) 376-381.  
 [4] K. Fujii, K Akamatsu, Y. Muramatsu, and A. Yokoya : Nucl. Instru. and Meth. **B 199** (2003) 249-254.

- [ 5 ] K. Akamatsu, K. Fujii, and A. Yokoya : Nucl. Instru. and Meth. **B 199** ( 2003 ) 328-331.
- [ 6 ] A. Yokoya, K. Akamatsu, and K. Fujii Nucl. Instru. and Meth. **B 199** ( 2003 ) 366-369.
- [ 7 ] K. Fujii, K. Akamatsu and A. Yokoya : Surf. Sci. **528** ( 2003 ) 249-254.
- [ 8 ] A. Agui, Y. Saitoh, A. Yoshigoe, T. Nakatani, T. Matsushita and M. Mizumaki : Surf. Rev. Lett. **9** ( 2002 ) 843-848.
- [ 9 ] S. -I. Fujimori, A. Ino, T. Okane, A. Fujimori, K. Okada, T. Manabe, M. Yamashita, H. Kishida and H. Okamoto : Phys. Rev. Lett. **88** ( 2002 ) 247601.
- [ 10 ] 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.
- [ 11 ] S. -I. Fujimori, A. Ino, T. Okane, A. Fujimori, K. Okada, T. Manabe, M. Yamashita, H. Kishida and H. Okamoto : Surf. Rev. Lett. **9** ( 2002 ) 1065-1069.
- [ 12 ] T. Okane, S.-I. Fujimori, A. Ino, A. Fujimori, S. K. Shar, C. Mitra, P. Manfrinetti, A. Palenzona and O. Sakai : Phys. Rev. **B 65** ( 2002 ) 125102.
- [ 13 ] T. Okane, S. -I. Fujimori, A. Ino, A. Fujimori, S. K. Dhar, C. Mitra, P. Manfrinetti, and A. Palenzona : Physica B, Condensed Matter **312-313** ( 2002 ) 349-351.

日本原子力研究所 関西研究所  
表面化学研究グループ

寺岡 有殿、吉越 章隆

藤井 健太郎、横谷 明德

電子物性研究グループ

安居院 あかね、岡根 哲夫

岡本 淳、斉藤 祐児

中谷 健、藤森 淳

藤森 伸一、間宮 一敏

村松 康司