

構造物性 グループ

1. BL08W (高エネルギー非弾性散乱)

1-1 はじめに

「高エネルギー非弾性散乱」ビームライン (BL08W) は、磁気コンプトン散乱及び高分解能コンプトン散乱用スペクトロメータを主力装置とし、国内外のユーザーに開かれた物性・材料研究のための施設である。また、SPRing-8で唯一の楕円ウイグラーの特徴を活かし、重元素のK線を利用した蛍光分析、核励起、非結晶物質等における高精度 High-q 構造因子の測定などにも利用されている。

2003年度の主要なビームライン高度化は、2002年度に行われたBL08Wビームライン評価委員会の答申に沿って実施された。また、利用者指定型重点研究課題制度のもと、パワーユーザーとの協力により、実験研究環境の整備を行った。BL08Wは世界レベルの装置性能と最も整備されている実験研究環境を有しているため、国外ユーザーからの一般課題への申請の割合が多く、2003年秋募集 (2004A) の一般課題申請数で約半分が国外ユーザー (英国、米国、インド、フィンランド、韓国) からの申請であった。

1-2 主要なビームライン高度化

(1) 高分解能コンプトン散乱スペクトロメータの高効率化^[1,2]

世界最高の入射 X 線エネルギー (115keV) を用いてほとんど全ての元素をカバーするCauchois型高分解能コンプトン散乱スペクトロメータの測定効率を向上させるために、X線イメージ・インテンシファイアー検出器 (浜松フ

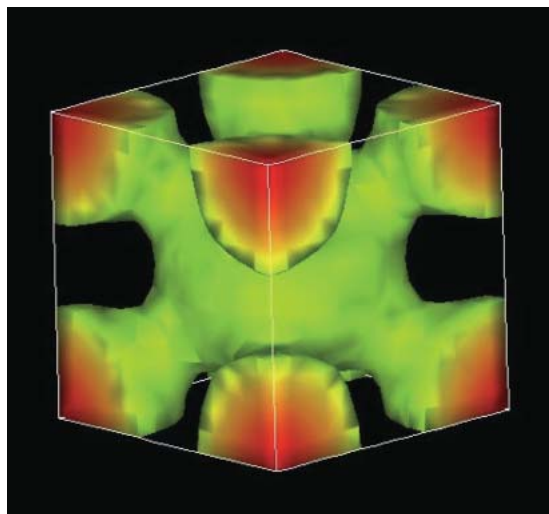


図1 高効率化に成功した高分解能コンプトン散乱スペクトロメータを利用して、初めて実験的に決定された金属水素化物PdH_{0.9}のフェルミ面形状

ォトニクス社製、V7227P/ION500)を導入し、装置の立ち上げと性能評価を行った。同X線検出器は実験目的に十分利用できることが立証され、その結果、測定効率は約20倍向上した。本高度化により、将来の水素エネルギー社会において重要な役割が期待される金属水素化物のフェルミ面形状の実験的決定が可能になった (図1)。

(2) 磁気コンプトン散乱用試料高压装置の導入

スピントロニクス関連物質の基礎物性を研究するために、磁場と温度に加え、試料の圧力もパラメータとして制御できるようにダイヤモンド・アンビル・セル (DAC) を導入した (図2)。これは、日本原子力研究所 関西研究所 放射光科学研究センター 極限環境物性研究グループとの協力により、BL08W実験ステーションAの磁気コンブ

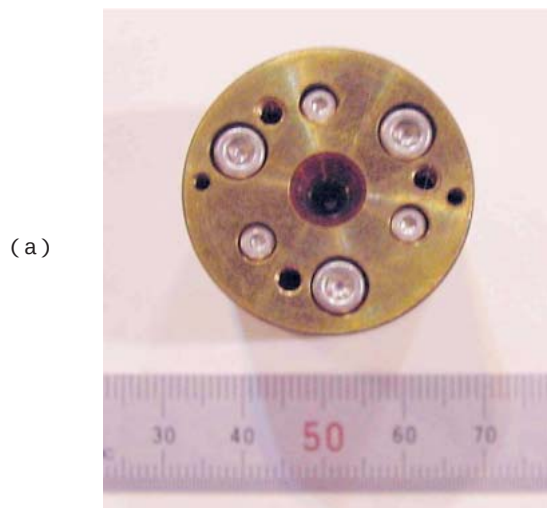


図2 (a)磁気コンプトン散乱スペクトロメータ用に開発されたダイヤモンド・アンビル・セル、(b)スペクトロメータに取り付けられた様子

トン散乱スペクトロメータ用に設計され、協和製作所により製作された。実験上の制約から大きな試料サイズが要求され、直径0.7mm、厚さ0.5mmの試料で最大3GPaまで加圧できるようになっている。 $\text{Co}(\text{S}_{0.9}\text{Se}_{0.1})_2$ を試料として用いて評価した結果、DACのダイヤモンドからのコンプトン散乱の影響により磁気効果は35%に低下するものの、本DACを用いて高圧下磁気コンプトン散乱測定が十分可能であることがわかった。

(3) ユーザー支援解析プログラムの整備

BL08Wパワーユーザーとの協力により、多重散乱計算を含むコンプトン散乱データ処理プログラム群の整備を行った。また、フェルミ面形状の実験的決定や電子占有軌道の2次元、3次元マッピングに必要な再構成プログラムを、パワーユーザー及び田中良和氏(理化学研究所)との協力により整備した。これらのプログラムを利用して、図1に示した金属水素化物 PH_x のフェルミ面が実験的に決められた。

第1原理計算バンドプログラム(BANDS01)にスピン軌道相互作用を取り込み、磁性体のスピン及び軌道モーメントを計算する機能を追加した。BANDS01は2000年度から富士総合研究所、小玉祥生氏との協力により、ユーザーによるコンプトン散乱実験の立案や実験結果の解釈の支援のために整備してきたものである。

BL08Wのユーザーはこれらのプログラム群を利用することができ、初心者にはパワーユーザーまたJASRIスタッフが、実験と同様に、利用支援をしている。

1-3 利用実験の概要

(1) 一般課題

2003年度の一般課題(特定利用課題と利用者指定型重点研究課題以外)は16課題あり、非結晶体の構造解析の1課題以外は、すべてコンプトン散乱実験であった。コンプトン散乱実験の対象試料は、金属水素化物、La系高温超伝導体、ウラン化合物、フッ化物、希土類磁性化合物、3d酸化物などと幅広く、これの物質に関してフェルミ面マッピングやスピンモーメントの実験的決定により、基礎的、応用的に重要な物性の議論が行われた。

(2) 特定利用課題と利用者指定型重点研究課題

特定利用課題「高分解能(磁気)コンプトン散乱による巨大磁気抵抗物質の電子及び軌道状態の研究」(実験責任者:小泉昭久、現:兵庫県立大)は2年目になる。2003年度は、応用上重要な $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Mn}_2\text{O}_7$ が示す巨大磁気抵抗効果を解明するために、同物質の金属相と絶縁相における電子状態及び軌道状態の違いを磁気コンプトン散乱実験^[3]と高分解能コンプトン散乱実験により重点的な研究を実施した。

利用者指定型重点研究課題(代表者:小泉昭久、現:兵庫県立大)では、装置整備、利用研究支援と並行して、「磁気多層膜等の新規磁性物質の研究」を行っている。本課題のもと、櫻井浩氏(群馬大学)は、情報記録媒体とし

て応用上重要なPd/Co多層膜の磁気コンプトン散乱を行い、垂直磁化膜と面内磁化膜における磁気コンプトンプロファイルの異方性の差を見出した。この結果は、磁気量子数別Co-3d軌道のスピン分極の違いとして説明され、磁気コンプトン散乱はナノ構造磁性体の磁気的起源を波動関数レベルで観測できる有力な実験手段であることを示した。

参考文献

- [1] M. Itou and Y. Sakurai: "Cauchy-type Compton Spectrometer Using X-ray Image Intensifier" AIP Conference Proceedings Vol. **705** (2004) 901.
- [2] Y. Sakurai and M. Itou: "A Cauchy-type X-ray spectrometer for momentum density studies on heavy-element materials", Journal of Physics and Chemistry of Solids (2004), in press
- [3] A. Koizumi, T. Nagao, Y. Kakutani, N. Sakai, K. Hirata and Y. Murakami: "Change in Mn 3d orbital state related to a metal-insulator transition in a bilayer manganite studied by magnetic Compton profile measurement" Phys. Rev. **B 69**, 060401® (2004)
- [4] M. Ota, H. Sakurai, F. Itoh, M. Itou and Y. Sakurai: "Magnetic Compton profiles of Fe thin film and anisotropy of Co/Pd multilayer", Journal of Physics and Chemistry of Solids (2004), in press

2. BL09XU(核共鳴散乱ビームライン)

2-1 はじめに

核共鳴散乱ビームラインは周期長32mmのアンジュレータ、回転傾斜型水冷モノクロメータを有するSPRING-8標準のX線ビームラインである。核共鳴非弾性散乱を利用した物質のダイナミクスの研究や時間領域でのメスバウアー分光に利用されている。放射光でのメスバウアー分光は特に極端条件下や回折条件下、メスバウアー線源に適当な核種がない場合などに威力を発揮している。またBL09XUでは精密ゴニオメータシステムを用いて、NEET(Nuclear excitation by electron transition) X線非線形現象や多波回折の研究、表面研究、残留応力測定などがおこなわれている。

2003年度、実験ステーションにおいては、FASTComTec製TDC(Time to Digital Converter)制御用LabVIEWソフトの開発、極小先端型APD検出器の開発、分解能可変型⁵⁷Fe用高分解能モノクロメータの開発などをおこなった。

また2003年度、BL09XUは5名の外部委員からなるビームライン評価委員会により1997年の供用開始から2002B期までの成果を中心としたビームライン全般についての科学的および技術的評価を受け、その結果はSPRING-8 BL09XU評価報告書にまとめられた。

2-2 極小先端型APD検出器の開発

高圧下で核共鳴非弾性散乱を測定をする場合、DAC

(ダイヤモンドアンビルセル)を利用している。しかしながら、通常のサイズのAPD検出器を使用し、DAC容器の外側に置いたのでは試料と検出器との距離が3cm程度と離れ、散乱光を見込む立体角は極めて小さくなり、シグナルが極端に減ってしまう。そこでDACの柱の間から試料に近づけられるようAPD検出器の先端部を細くしたものを兵庫県立大学、小林助教授と共同で開発した。その写真を図1に示す。(株)浜松フォトニクス製 $3 \times 5 \text{ mm}^2$ のサイズのAPD素子を利用し、製作は(株)応用光研が行なった。このような先端部が細いAPD検出器はこれまでもBL09XUで製作され利用されていたが、ノイズが発生しやすく動作が不安定である欠点を有していた。新たに開発したAPD検出器では、配線の固定と電磁シールドをしっかりとすることにより、動作の安定性に大幅な改善が見られた。



図1 極小先端型APD検出器

2-3 分解能可変型 ^{57}Fe 用高分解能モノクロメータ

通常、核共鳴非弾性散乱実験においては、より大きな強度とより高いエネルギー分解能が同時に求められることが多い。しかしながら、強度と分解能はトレードオフの関係にあり、実験により最適な強度・分解能を選ぶ必要がある。そういう意味ではコストと場所が許せば、様々な分解能をもった高分解能モノクロメータを用意しておくことが望まれる。BL09XUでは、これまで最も利用されている核種である ^{57}Fe 用モノクロメータとして、1.6 meV、2.5 meV、3.5 meVの3種類を用意していた。しかしながら、2.5 meVと3.5 meVを切り替えるためには結晶を交換する必要があり、その調整には2シフト程度を要していた。

今回、2番目と3番目の反射となるチャンネルカット結晶を兼用とすることにより、分解能を数秒程度で高速に切り替えることができる高分解能モノクロメータのシステムを構築した。図2に(a) 3.5 meVと(b) 2.5 meVにおけるX線のパスを青色で示す。図2(b)のピンクで示す結晶のブレードの背を低くして、図2(a)におけるX線のパスを邪魔しないように工夫がされている。分解能の変更は結晶を8 mm並進移動させるだけで実現される。この変更によりX線ビームの高さは0.72 mm変化するが、試料の高さ

移動で対応可能である。

図3に2.5 meVの分解能と3.5 meVの分解能により続けて測定された α - ^{57}Fe による核共鳴非弾性散乱スペクトルを示す。31 meV付近のディップが2.5 meVの分解能により、より鮮明にみとれる。このように分解能の高速スイッチが可能になり、実際の実験においては、シグナルの強度によって最適な分解能を選択することが容易になった。またこのモノクロメータを使えば、同じサンプルでもスキャンの範囲によって分解能を代えて測定することが可能となり、データの質の向上が期待される。

利用研究促進部門

構造物性 グループ 非弾性散乱チーム

依田 芳卓

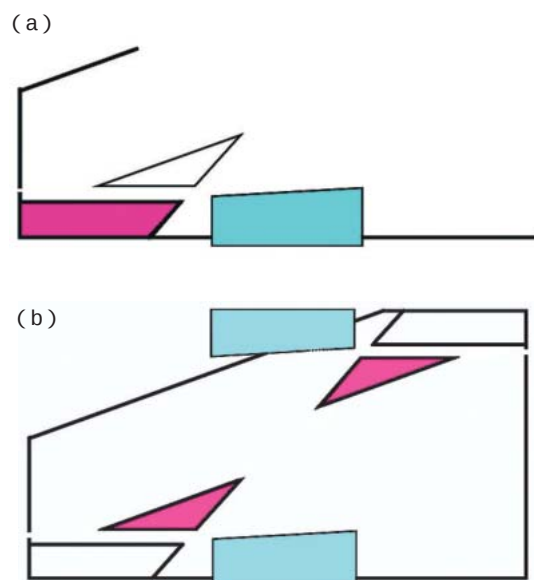


図2 (a) 3.5 meV and (b) 2.5 meV の分解能をもつ ^{57}Fe 用高分解能モノクロメータの模式図

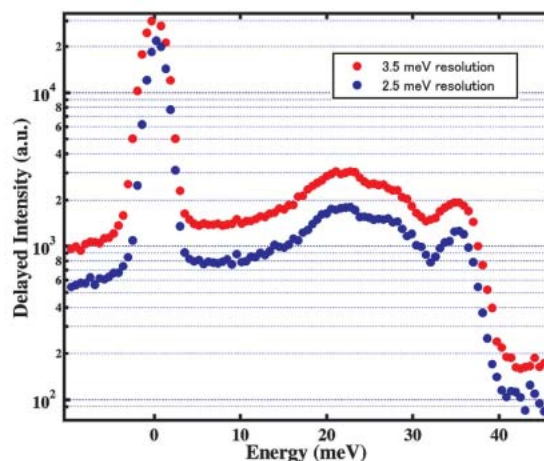


図3 2.5 meVの分解能と3.5 meVの分解能により続けて測定された α - ^{57}Fe による核共鳴非弾性散乱スペクトル。

3. BL13XU (表面界面構造解析ビームライン)

3-1 はじめに

入射X線強度の安定化、バックグラウンドX線強度の低減化、X線測定装置の安定化といった、光学ハッチから下流における基盤要素に関する更新、および、状況を前2回の年報に報告した。その後、その内容の一部を学術雑誌に発表した^[1]。さらに、金属薄膜中の応力評価^[2]、有機薄膜の表面層の格子定数の決定^[3,4]、電極金表面上の氷の構造解析^[5]、NiO 超薄膜構造評価^[6]、金属/シリコン半導体の界面構造評価^[7]などが2003年度に出版された。それぞれのユーザー実験の成果は、対応する論文を参照してください。

さて、ハードウェアとしてはユーザーの希望する実験がともかくできる状態になったので、測定方法の開発を試みた。“迅速”がセールス・ポイントになることを目指した。既存の多軸回折計を用いて開発し(2節)、その結果を反映させて、専用のナノ構造評価用のカメラを作成した(3節)。最後に、実施された実験課題の内訳などを活動状況として、報告する。

3-2 結晶表面上のナノ構造解析のための迅速測定法の開発

結晶表面上のナノ・スケール構造体評価を目標とした。ここでは、ナノ・スケール構造体とは、例えば、原子面が約数枚から成る平面形状の超薄膜や幅が数～数10nm、高さが約数枚の原子面相当のナノワイヤをさしている。開発を試みた方法の原理を紹介する(図1)。結晶性超薄膜の場合、その対応するバルク結晶のブラッグ位置を中心とし、その薄膜を突き刺す方向にX線回折条件がのびる(図1A)ことが、知られている。^[8]また、結晶性ワイヤの場合、その回折条件は、そのワイヤに垂直な平面状になる(図1B)。用いる入射X線のエネルギーを大きくすることで、これらの回折条件とエバルト球の交点、あるいは、交線が生じる頻度を大きくできることが、その方法の原理である。高さが原子4層分の縞状ナノ細線配列の構造評価に、この方法を実際に適用した。その結果、2分のX線露光で多数のX線

斑点が記録できた。その解析により、そのナノ細線中の結晶の大きさが定量できた。また、基板結晶とその細線に沿う方向との方位関係が分かった。加えて、結晶のその表面法線まわりの回転により、回折条件とエバルト球の交線形状が変化することが観察できた。詳細は論文^[9]にゆずる。

3-3 ナノ構造解析用X線カメラ

実験ハッチ1の多軸回折計を用いて、開発を始めたが、専用装置を設計、製作した(図2)。その装置の本体は、試料方位装置(直交スイベル、XY移動台、鉛直軸周りのφ軸、鉛直移動軸)、水平軸周りの回転2軸、X線イメージング・プレート(IP)ホルダ、IP、ダイレクト・ビーム・ストッパから成る。試料表面は水平面とほぼ平行な配置を用いた。この装置全体がXZステージに搭載されている。IPホルダは半径133mmと250mmが利用できる。また、そのホルダは鉛直軸、水平軸のいずれかの周りに取り付けられる。さらに装置全体が、90度回転可能であり、その場合は、試料表面は鉛直軸とほぼ平行になる。

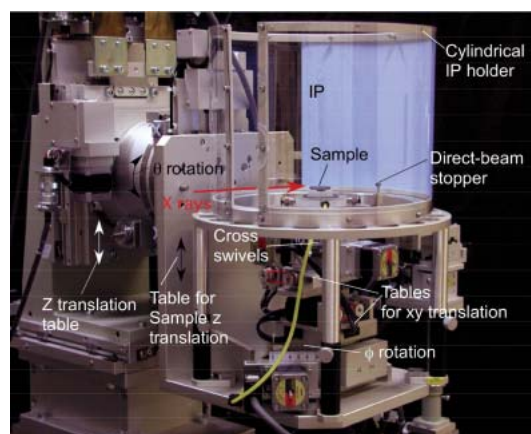


図2 ナノ構造解析用X線カメラ

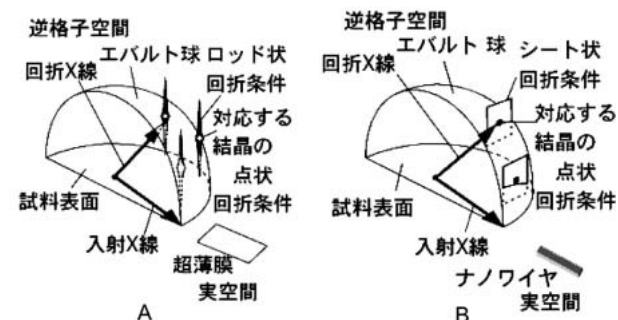


図1 エバルト球とナノ・スケール構造体のX線回折条件。超薄膜の場合(A)、ナノワイヤの場合(B)。

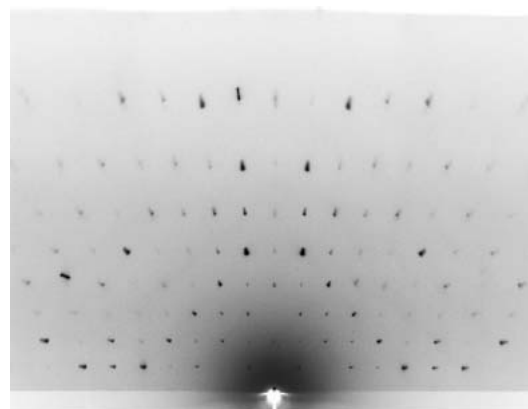


図3 X線イメージング・プレート(IP)(縦20cm x 横25cm)上に2分間露光。試料: TiO₂単結晶基板上に育成した強誘電体薄膜(酸化チタンピスマス薄膜)。膜厚50nm。

ここでは、 TiO_2 単結晶基板上に育成した強誘電体薄膜（酸化チタンピスマス薄膜、膜厚50nm）からの回折パターンを紹介する（図3）。X線エネルギーは25keV、結晶表面に対する入射角 0.1° を用いた。斜方晶（ B_{2cb} （No. 41））と単斜晶 B_{1a1} （No.7）の報告がある。このパターンと消滅則を考慮したシミュレーション・パターンと比較して、（ B_{1a1} （No.7））と予想した。回折斑点に注目すると、2個に分裂していることが観察できた。これは試料表面に垂直方向にa軸があるaドメインと試料表面に垂直方向にb軸があるbドメインが混在していることを示唆している。混在したドメイン構造を仮定し、回折強度に関わる補正因子を考慮した計算回折図形と比較することで、より詳細な構造モデルが得られると期待している。

3-4 活動状況

2003A（課題数19）、2003B（課題数18+内部スタッフ課題数1）における、ユーザー実験を整理する。ここでは試料、対象、手法、実験ハッチを分類項目とした（表1と表2）。金属結晶、半導体結晶の研究が多い。実験ハッチ1がより多く利用された（表3）。2002年度とは逆になった。機能（磁性、圧電性、超伝導性）と構造との関係を調べる研究がビームラインBL13XUとして、新しく始まった。ハッチ1

の利用実験に関して、学術論文7件が出版された。また、特許4件が出願された。

参考文献

- [1] O. Sakata et al.: *Surf. Rev. and Lett.* **10** (2003) 543.
- [2] T. Hanabusa et al.: *International Journal of Materials Research and Advanced Techniques (Zeitschrift für METALLKUNDE)* **94** (2003) 662.
- [3] H. Yakabe et al.: *Macromolecules* **36** (2003) 5905.
- [4] T. Koga et al.: *Trans. MRS-J* **28** (2003) 85.
- [5] M. Nakamura et al.: *J. Electroanalytical Chemistry* **554-555** (2003) 175.
- [6] O. Sakata et al.: *Appl. Surf. Sci.* **221** (2004) 450.
- [7] I. Takahashi et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.* **43** (2004) 1561.
- [8] A. Gunier: "X-ray Diffraction", Dover edition (1994) p 128. (The original edition was published in 1956)
- [9] O. Sakata et al.: *Appl. Phys. Lett.* **84** (2004) 4239.

利用研究促進部門

構造物性 グループ 表面構造チーム
坂田 修身

表1 2003A ビームタイムの配分。四捨五入の関係で、合計は100%にならない。実験ハッチのことをハッチと表中では記した。GID: 微小角配置、CTR: crystal truncation rod に沿う測定、Ref: 鏡面反射率測定、D: 4軸モードの測定、または、粉末回折測定like。

試料、対象	手 法	ハッチ	シフト数	%	小計%
Cu, Ni 表面	GID, CTR	3	48	23.9	37.1
Au 溶液中界面	D, CTR	1	12	5.7	
Al 配線応力	D	1	9	4.3	
Al, Ti 界面	Ref.	1	9	4.3	
Si 上 表面	GID, CTR	3	27	12.9	18.6
GaAs 上 界面	Ref.	1	9	4.3	
SiC 上 薄膜	D	1	3	1.4	
有機 薄膜	GID	1	24	11.4	11.4
Al_2O_3 上 超薄膜	D	1	12	5.7	10
MgB_2 薄膜	D	1	9	4.3	
手法開発 ナノワイヤ	-	1	30	14.3	22.9
測定装置改造 表面	-	3	18	8.6	

表2 2003B ビームタイムの配分

試料、対象	手 法	ハッチ	シフト数	%	小計%
Cu 表面	GID, CTR	3	30	16.4	32.8
Al 配線応力	D	1	15	8.2	
Al 薄膜	D	1	9	4.9	
Fe 高圧相	D	1	6	3.3	
磁性体 ナノ構造	Ref, D	1	15	8.2	14.8
圧電体 ナノ構造	D	1	12	6.6	
超伝導 MgB_2 薄膜	D	1	6	3.4	
Si 上 ナノ構造	Ref.	1	12	6.6	13.1
Si 上 表面	D	3	12	6.6	
有機 薄膜	GID	1	24	13.1	13.1
Al_2O_3 上 超薄膜	D	1	9	4.9	8.2
手法開発 表面	-	3	15	8.2	13.1
手法開発 界面	-	1	9	4.9	

表3 実験ハッチの利用率

	ハッチ 1	ハッチ 3
2003A	55.7%	44.3%
2003B	68.9%	31.1%

4. BL28B2 (白色X線回折ビームライン)

4-1 はじめに

BL28B2は白色放射光の汎用的な利用を目的として建設され、トポグラフィー、医学イメージング、エネルギー分散型時分割XAFSなどの研究が行われている。ここでは、BL28B2において新しく開発された白色放射光を利用したトポ・トモグラフィーと、血管造影のために開発された高速シャッターについて報告する。

4-2 白色放射光を利用したトポ・トモグラフィー

川戸らはBL28B2で得られる白色放射光をトポ・トモグラフィーに応用し、シリコン結晶中の転位の3次元構造を決定することに成功した^[1]。単色放射光を用いたトポ・トモグラフィーでは、転位線のコントラストに関する情報が得られないため、転位の特徴を示すバーガス・ベクトルや転位のすべり面を特定することはできない。一方、白色放射光を用いた場合、結晶を面内回転させ、転位線にコントラストがつかない方位を探し、これからバーガス・ベクトルの向きを決定することができる。更に、結晶を面内回転させたときの回折像に見える転位線の変化と、バーガス・ベクトルの向きからすべり面を決定することができる。実験配置の模式図を図1に示す。サンプルには、CZ法によって作成されたシリコン単結晶が用いられた。この結晶は、転位の発生機構などを調べるため、意図的に結晶の径を大きくしないまま成長させた結晶である。図2に、 $\omega=0, 45, 90, 135, 180^\circ$ において撮影した044反射の回折像を示す。回折像の中に見える5つの転位線にA～Eの記

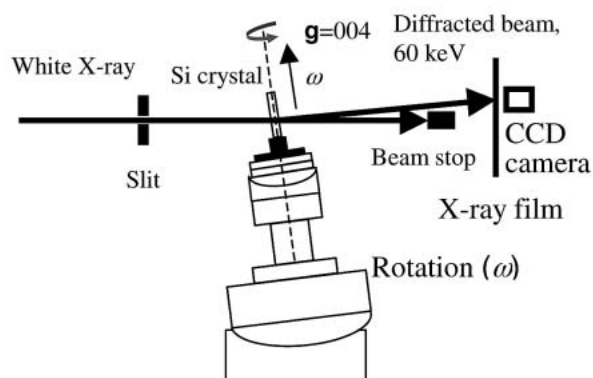


図1 白色放射光を用いたトポ・トモグラフィー実験配置の模式図

号を付してある。図3に、結晶を ω 軸周りに回転させたとき、 $\omega=0, 45, 90^\circ$ のそれぞれで撮影した $\{111\}$ と $\{022\}$ の回折像を示す。回折像によっては見える転位線と見えない転位線があることが分かる。散乱ベクトルとバーガス・ベクトルが直行すると、転位線のコントラストが消失するため、図3に示した像の解析からバーガス・ベクトルの向きを決めることができる。最終的に得られたA～Eの転位線のパラメータを表1に、空間的な分布の模式図を図4に示す。このように、白色放射光とトポ・トモグラフィーを組み合わせることにより、単結晶中の転位線の特徴を決定する方法が確立され、さまざまなサンプルへの応用が期待されている。

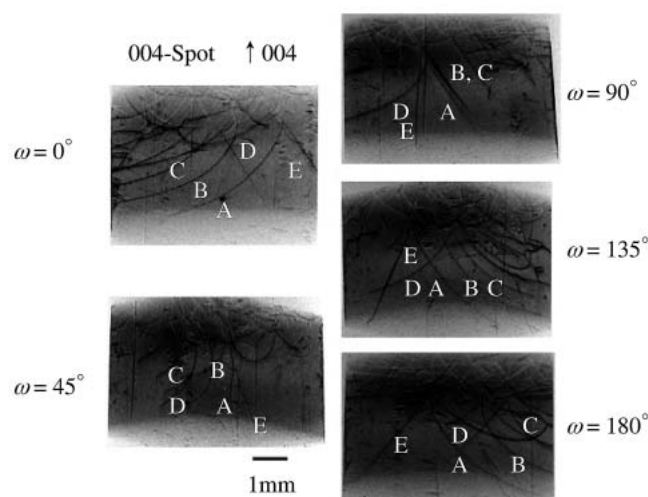


図2 結晶を ω 軸周りに回転させたとき、 $\omega=0, 45, 90, 135, 180^\circ$ のそれぞれで撮影した044反射の回折像。A～Eは転位線を識別するために付けており、それぞれの図で同じ転位によるコントラストを表している。

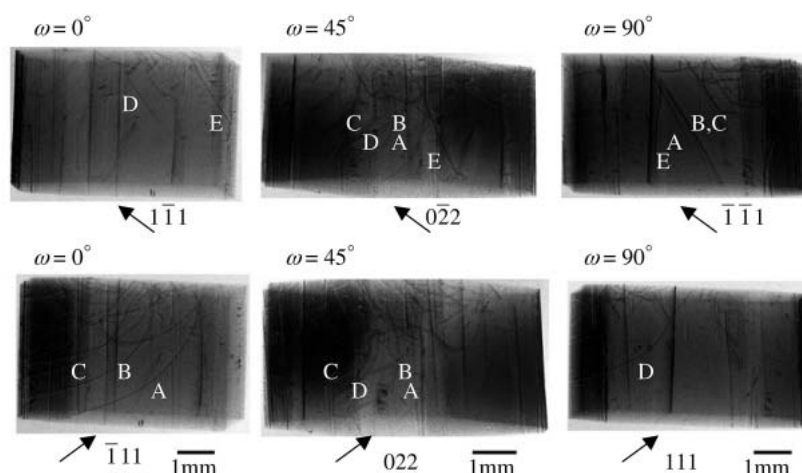


図3 結晶を ω 軸周りに回転させたとき、 $\omega = 0, 45, 90$ のそれぞれで撮影した $\{111\}$ と $\{022\}$ の面形のある反射面の回折像。A～E は転位線で、回折像によっては見える線と見えない線があることが分かる。

表1 実験によって決定されたA～Eの転位線のパラメータ

Dislocation image	Laue spot		Burgers vector	Glide plane
	Visible	Invisible		
A, B, C	$\bar{1}11, \bar{1}\bar{1}1, 022, 022$	$1\bar{1}1, 111$	$a/2[\bar{1}01]$	(111)
D	$1\bar{1}1, 111, 022, 022$	$\bar{1}11, \bar{1}\bar{1}1$	$a/2[101]$	($\bar{1}11$)
E	$1\bar{1}1, \bar{1}\bar{1}1, 022$	$\bar{1}11, 022$	$a/2[0\bar{1}1]$	($\bar{1}11$)

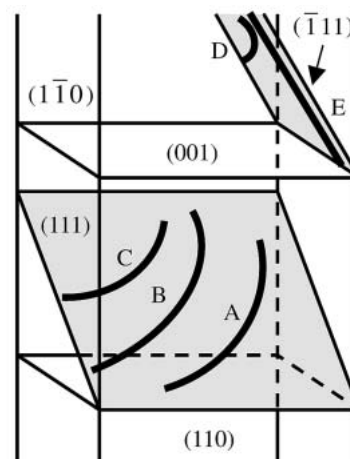


図4 A～Eの転位の空間的な配置の模式図。A, B, C の転位は、それぞれ同一ではない(111)面内にあり、DとEは($\bar{1}11$)にあることを示している。

4-3 医用画像用サブミリ秒高速X線シャッターの開発

BL28B2での医学利用研究では、ラット心臓の冠状動脈造影を行っており、ヒトの約5倍の速度で拍動する心臓血管の撮影には、X線シャッターを使ったパルスX線撮影が不可欠である。2002年度までは、ガルバノメータスキャナを利用したシャッターを使い、2003年度からは新たに開発した回転円盤型シャッターの利用を開始した。これは、所内の2002年度実験ステーション研究開発課題の一つとして開発が実施され、2003年度から利用実験に提供されるようになったものである。

従来の図5に示すガルバノメータスキャナ型シャッターは、スキャナの回転振動を利用し、図5下のようにタンタルブレードのチョッパーが、画像検出器の画像取込信号に同期してシーソーのように駆動することでパルスX線を作ってい

た。しかし、往復運動であり慣性質量のため振動速度の向上に限界があり、最短のパルス幅は2msが限界であった。

新たに開発した図6に示す回転円盤型シャッターは、円盤の半径方向に溝穴を持ち、X線ビームを横切る溝穴の幅でパルス幅を調整できる。このシャッターは2枚の円盤から成り、1枚の円盤を回転軸周りに別の1枚に対して回転させると、2枚の円盤で作られる溝幅が変わることにより、X線パルス幅を調整する構造である。回転円盤型シャッターは、2枚の円盤が作る溝幅を機械的に狭くすれば、非常に短いパルスX線を実現できる。BL28B2の1結晶分光器を使った場合のX線強度から実用的なパルス幅が決まるが、このシャッターで最短パルス幅0.1msを実現した。利用実験では実用的にはパルス幅0.5～2msを使い、高画質な動態画像撮影ができるようになった。

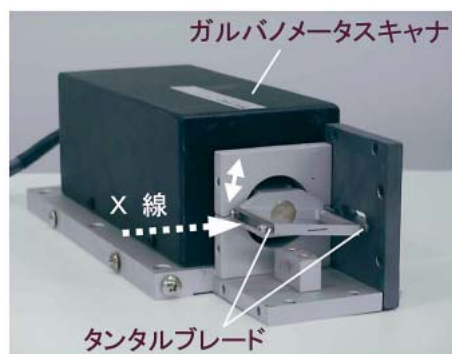


図5 ガルバノメータスキャナを使ったX線シャッターの外観と動作

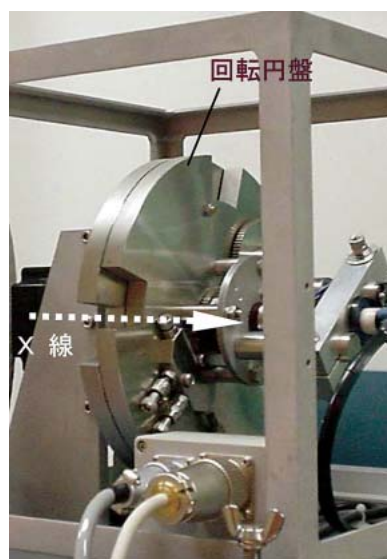


図6 回転円盤型シャッターの外観

参考文献

- [1] S.Kawado, T.Taishi, S.Iida, Y.Suzuki, Y.Chikaura and K.Kajiware : J. Synchrotron Rad. **11** (2004) 304-308.

利用研究促進部門

構造物性 グループ 表面構造チーム

今井 康彦

産業応用・利用支援 グループ

梶原 堅太郎

5 . BL35XU (High-Resolution Inelastic X-Ray Scattering)

5-1 Introduction

FY 2003 was a productive one at BL35XU ^[1]. More user experiments were published, including 4 papers accepted in Phys. Rev. Lett. In addition, very significant upgrades of beamline performance took place. Here, due to space limitations, we discuss primarily beamline improvements. Brief mention of some of the experimental work is given in section 7, but the reader is urged to consult the bibliography at the end of the annual report for more details.

5-2 Multi-Analyzer Stage.

At the end of the summer of 2003, we installed a multiple analyzer stage on the 10m horizontal arm (see fig. 1). This increased the number of analyzers from a single row of 4 crystals on separate stages to a 3×4 array, as shown. It also decreased the center-to-center spacing to 120mm which is about the minimum possible given the 102mm analyzer diameter and required space for holders and crystal motion (smaller is better, especially for measurements of crystalline materials). When matched with an appropriate detector, this increases the number of simultaneously measured momentum transfers by a factor of 3, a very significant improvement at a beamline where most experiments are flux limited. However, it also increases the complexity of the setup, tripling the number of motors for analyzer motion and, what is harder, tripling the number of channels of precision (mK) temperature control. This required a lot of work which was largely done during the latter half of FY 2003, with some fine-tuning still ongoing. Nevertheless, experiments using the central four analyzers were immediately possible with the original, 4-channel,



Fig. 1 Multi analyzer stage in the 10m vacuum chamber on the horizontal arm. Each analyzer has two degrees of motorized angular motion and a manual psi rotation, as well as temperature control stages.

detector and slit setup. The 12 analyzer setup became fully operational in the spring of 2004.

5-3 12 Analyzer Setup Completed

The installation of the multi-analyzer setup was completed during the spring of 2004. We placed a "Venetian-blind" slit system in the 6m chamber on the horizontal arm (see fig. 2). This allows motorized control over the horizontal and vertical acceptance of all the analyzers using just two motors.

A 12-element detector was installed allowing independent use of the analyzers, completing the main components of the multi-

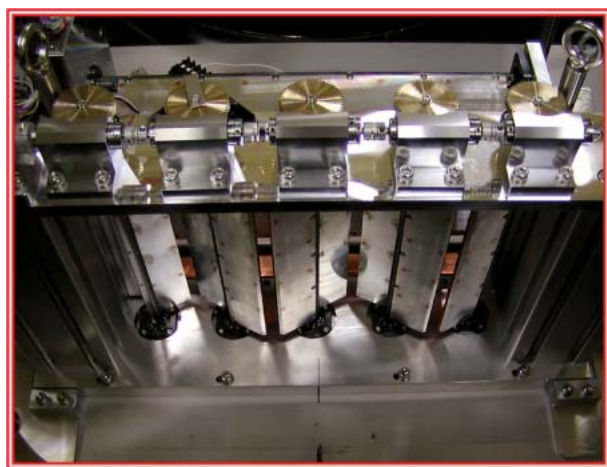


Fig. 2 Venetian-Blind type slit arrangement to allow control over analyzer aperture with minimal profile when fully open. View from above&front with the blades limiting the horizontal aperture mostly closed.

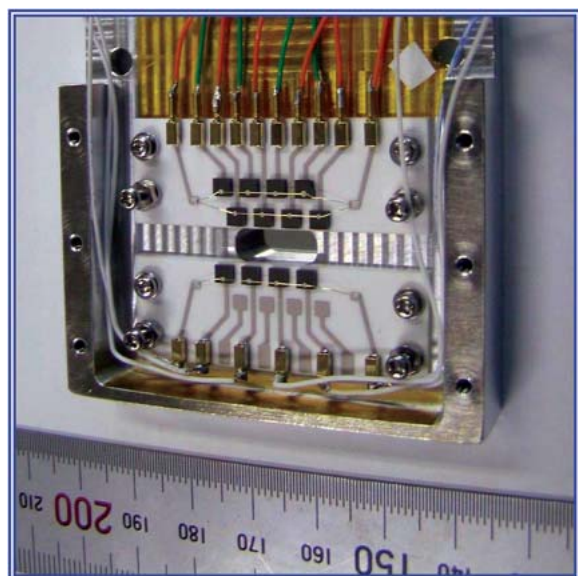


Fig. 3 Multi-Channel detector. 12CZT chips (each $2.3 \times 2.3 \times 2\text{mm}^3$) operated at room temperature are visible in the center. 4 chips are located below the beam window (lower ceramic board) and 8 chips above (upper board).

analyzer setup. The detector is shown in fig. 3. The tight constraints on the geometry that push us to operate near to backscattering meant that the detector elements are located both above and below the path of the beam from the sample to the analyzer crystals, with two rows of 4 detectors above the beam, and one row beneath. The detector elements are CZT, provided by Hamamatsu and operated at room temperature. They perform beautifully, with good pulse height response (3 to 4keV FWHM, without a low-energy tail), essentially 100% stopping power, and low dark count rates, $\sim 5 \times 10^{-4}\text{Hz}$ in our energy range of interest, 15.8 to 26keV.

5-4 Beam Conditioning Optics

In addition to the work with the multi-analyzer setup, we made a major re-arrangement of the upstream optics. This is shown in fig. 4. The main driving force for this was the heat load from the monochromatic (eV wide) beam: its $\sim 100\text{mW}$ of power were found to introduce a thermal gradient in the backscattering crystal which disturbed the energy resolution^[2]. While this problem was mostly removed at the 1.5meV resolution setup (Si (11 11 11)) by going to a grazing incidence geometry for the backscattering crystal^[2], tests at higher resolution, 1meV at the Si (13 13 13) showed that further steps were absolutely necessary to avoid heat load broadening, even with grazing incidence operation.

In the original design, fig 4a, a pair of Si (111) crystals were used *downstream* of the backscattering monochromator to shift the beam vertically and provide space at the sample position. In the new optical setup, fig. 4b, these crystals have been moved *upstream* of the backscattering monochromator. This means that we can reduce the bandwidth of the beam incident on the backscattering crystal by using Bragg reflections of higher order

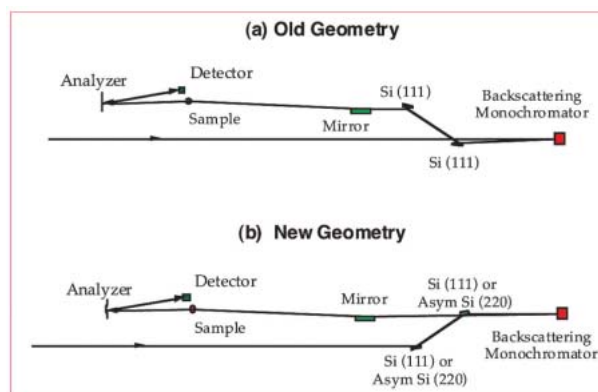


Fig. 4 Schematic of the optics before and after modification. The change in the order of the paired silicon crystals reduces the power load on the backscattering crystal making 1meV resolution possible.

than (111). Asymmetrically cutting these crystals allows acceptance of the full divergence of the beam from the high heat load monochromator. Thus, using these crystals we could reduce the bandwidth of the beam from say $\sim 3.5\text{eV}$ at the 25.7keV after the Si (111) crystals to $\sim 2.1\text{eV}$ using an asymmetric Si (220) reflection - the bandwidth scales as $\cot \Theta_{\text{B}}$. While this has no effect on the downstream experiments, which usually take place over energy ranges of $< 0.2\text{meV}$, it significantly reduces the power onto the backscattering crystal. While conceptually simple, this change involved re-design and re-alignment of a lot of the optical system. It also required determining procedures for switching efficiently between different setups.

We also re-aligned the mirror quite carefully, relative to the silicon crystals, and achieving, consistently, a spot size of $\sim 70\mu\text{m} \times 90\mu\text{m}$ (V $\times$ H, FWHM) at the sample position at all energies. Hopefully, with a return to low-emittance running next year, we will be able to reduce this even a bit further, to $\sim 70 \times 70\mu\text{m}^2$.

5-5 1meV Resolution & Spectrometer Performance

The new improved geometry for the beam conditioning optics allowed us to obtain an over-all resolution of 1 meV using the Si (13 13 13) reflection at 25.7keV . The flux onto the sample was reduced about a factor of 5 to 6 compared to our 1.5meV setup. However, it is sufficient for carefully chosen experiments, and still quite respectable compared to that at other facilities. The over-all performance at the different resolutions is reported in table 1, and represents the most recent values obtained at the beamline. One notes that the flux per meV of *resolution* actually drops quite quickly, especially as one goes from 1.5 to 1meV resolution. This is unsurprising given that the silicon reflectivity in backscattering drops at higher energy, and that geometric contributions to the resolution become increasingly noticeable at better resolutions. Finally, we emphasize that top-up operation was a great help for improving beamline stability, and was

especially important for the success of the 1 meV setup. Top-up effectively means that users can expect near peak performance of the beamline throughout their experiment.

5-6 High Resolution Monochromator for ^{119}Sn

The acceptance of two proposals employing the 23.9keV resonant transition in ^{119}Sn prompted the completion of the relevant high resolution monochromator. A flux of $\sim 2 \times 10^8$ photons/s was obtained in a $\sim 0.7\text{meV}$ bandwidth using an in-line geometry^[31] with the (444) collimating and (1975) high resolution reflections in silicon. See fig. 5.

5-7 User Experiments/Publications

Work during this (and previous) periods resulted in several publications, which include 4 papers in Physical Review Letters. These included: work on glassy selenium^[4], where high quality IXS data showed the presence of a clear propagating mode (different than expectations from some neutron data); the demonstration of fast sound accompanying the metal-non-metal transition in high-pressure/high temperature liquid mercury^[5]; and the investigation of phonon softening and electron phonon coupling in two superconductors^[6, 7]. New work during this period included that on the liquid-liquid phase transition in sulfur, a beautiful data set on sub-and super-critical water (paper now pending with prl), a good data set on acetone, an extensive data set on phonons in $\text{i-Zn}_{80}\text{Mg}_{15}\text{Sc}_{15}$, data on liquid Ge, and completion of investigations of orbitons and of iron under high pressure (DAC). Data collection continued also on several types of high T_c superconductors. The new high resolution monochromator was used to look at nuclear inelastic scattering from solid and liquid Sn, and also Sn/Pb mixtures. Please see the list of proposals and papers in the end of this volume for more details.

Table 1 Spectrometer Performance

Summary of spectrometer performance with one of the better analyzer crystals. Note results at the (13 13 13) are first tests and may improve with time. Spot size $\sim 70 \times 90\text{mm}^2$ FWHM at the sample.

Si Order (nnn)	Energy (keV)	Single Reflection Bandwidth (meV)	Flux at Sample (GHz)	Resolution FWHM (meV)
8	15.816	4.1	30	5.9
9	17.794	1.8	10	2.9
11	21.747	0.8	4	1.5
13	25.702	0.35	0.7	.95

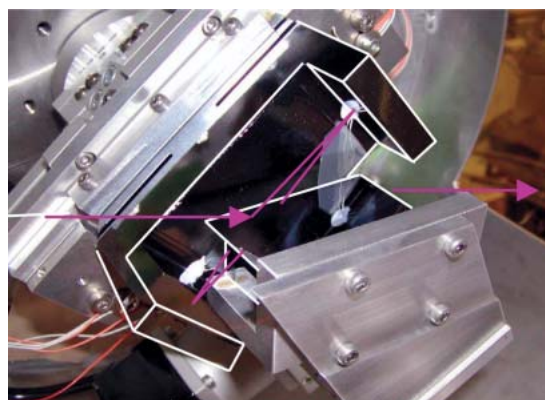


Fig. 5 High resolution mono for NRS with ^{119}Sn . Beam path is shown, and crystal are outlined.

References

- [1] A. Q. R. Baron, Y. Tanaka, S. Goto, K. Takeshita, T. Matsushita and T. Ishikawa : *J. Phys. Chem.Solids* **61** (2000) 461. A. Q. R. Baron, Y. Tanaka, D. Miwa, D. Ishikawa, T. Mochizuki, K. Takeshita, S. Goto, T. Matsushita and T. Ishikawa : *Nuclear Inst. Meth. A* **467-8** (2001) 627. A. Q. R. Baron, *et al*, in preparation.
- [2] SPring-8 Research Frontiers (2001B/1002A) : p 104.
- [3] A.Q.R. Baron, Y. Tanaka, D. Ishikawa, D. Miwa, M. Yabashi and T. Ishikawa, (2001). *J. Synchrotron Rad.* **8**, 1127. Detailed discussion of the Sn mono may be found in D. Miwa, Masters Thesis, Himeji Institute. of Technology (In Japanese).
- [4] T. Scopigno, R. DiLeonardo, G. Ruocco, A. Q. R. Baron, S. Tsutsui, F. Bossard and S. N. Yannopolous : *Phys. Rev. Lett.* **92** (2003) 025503.
- [5] D. Ishikawa, M. Inui, K. Matsuda, K. Tamura, S. Tsutsui, and A.Q.R. Baron : *Phys. Rev. Lett.* (2004) Accepted.
- [6] A.Q.R. Baron, H. Uchiyama, Y. Tanaka, S. Tsutsui, D. Ishikawa, S. Lee, R. Heid, K.-P. Bohnen, S. Tajima and T. Ishikawa : *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 197004.
- [7] H. Uchiyama, A. Q. R. Baron, S. Tsutsui, Y. Tanaka, W.Z.Hu, A. Yamamoto, S. Tajima and Y. Endoh : *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 197005.

Alfred Q. R. BARON

Satoshi TSUTSUI

John SUTTER

Daisuke ISHIKAWA

Junpei T. OKADA

Daigo MIWA

Tetsuya ISHIKAWA