

## 4．原研、理研、専用ビームライン

### 4-1 原研ビームライン

原研は物質科学を中心に研究展開を計るために4本のビームライン、BL11XU、BL14B1、BL22XU、BL23SUを稼働させている。この中でもBL22XU、BL23SUはウラン、トリウムに関する実験が出来るようにRI棟に設置されており、ウラン化合物の実験を開始した。これら4本のビームラインの2003年度における活動状況を各ビームライン担当者が分担して以下に纏めた。

#### 1．BL11XU（材料科学研究ビームライン）

##### 1-1 はじめに

標準型アンジュレータを光源とするBL11XUでは、核共鳴散乱法による物性研究、X線非弾性散乱法による強相関電子系の研究、表面X線回折計を用いたMBE結晶成長中のその場観察という研究分野に加え、XAFSによる放射性廃棄物処理に関する構造解析を行っている。昨年度は、分光器に液体窒素循環冷却装置を導入するとともに新しく開発したマルチ結晶交換システムを導入し、今年度からその運用を開始した<sup>[1,2]</sup>。マルチ結晶交換システムは、液体窒素温度かつ真空中にて、光軸調整を含めて僅か5分程度で結晶を交換できる。これまで用いたダイヤモンド結晶に比べて、6~70keVという広エネルギー領域を高輝度で使用することが可能となった。液体窒素冷却循環装置の導入と併せ、MOSTABを導入してビームの安定化を試みた。しかし今年度は、ピエゾ及びコントローラの不具合により、出射光の十分な安定化は実現されていない。今後の調整が望まれる。

（塩飽 秀啓）

##### 1-2 放射光メスバウアー分光法による物性研究

実験ハッチ1(a)では、放射光先端利用研究開発の一環として、SPring-8の高輝度X線を利用したメスバウアー顕微鏡の開発を進めた（図1参照）。本年度は、meV高分解能分光器から得られるメスバウアービームを集光するために多層膜集光ミラーの設計を行い、ビームラインへ導入することで、20 $\mu$ m以下のビームスポットを利用したメスバウアー分光実験が実現された<sup>[3]</sup>。核共鳴非弾性散乱法を利用した材料研究では、遷移金属酸化物Sr<sub>2</sub>FeCoO<sub>6</sub>、SrBaFeCoO<sub>6</sub>の低温での磁気相転移温度近傍における核共鳴非弾性散乱測定を行い、低温での磁気転移と格子振動のソフトニングとの関連性を明らかにした<sup>[4]</sup>。また、放射光核共鳴非弾性散乱法と時間領域の核共鳴散乱測定法を組み合わせることで、マグネタイトの幾何学的に異なる



図1 BL11XUに導入された放射光メスバウアー顕微鏡

るA、Bサイトに存在するFe元素の格子振動状態を分離測定することに世界ではじめて成功した<sup>[5]</sup>。このように元素とサイトを同時に特定したフォノン状態密度測定は中性子非弾性散乱法等では不可能なもので、副格子系材料の相転移機構の研究を格子振動の観点から、より精密に調べる事ができるようになった。ナノテク支援研究では、基板上や母材中に存在する微細、微量なナノ材料の磁性、電子状態、格子振動状態の分析、評価を行うための新しい実験手法の開発を目的として、斜入射を利用したメスバウアー分光法の開発を進めた。非弾性散乱測定では、検出器に多素子型高速検出器を採用することで、測定時間の高効率化を図った。この結果、基板上に僅かに存在するFe量子ワイヤーのフォノン状態密度の測定が実現し、ナノ物質系における振動状態等のダイナミクスの変化が調べられた。本実験では、ナノ物質系に特異な現象として生じるフォノンの短寿命化が観測された。さらに、二結晶分光器への液体窒素Si冷却方式の導入と前置分光器の高度化により、X線入射強度の格段の増加が実現し、（課題番号2003A0287-ND3-np）磁性量子ドット・ワイヤーの内部磁場に関する研究では、SiO<sub>2</sub>基板上に作製された、Fe量子ワイヤー内の超微細構造パラメーターの決定が可能となった。測定されたメスバウアー時間スペクトルの解析から、量子ワイヤーの内部磁場の配向性がワイヤーのサイズに依存して極端な異方性を示すという明瞭な結果が得られた。本測定法は、汎用性のある斜入射を利用した核共鳴前方散乱が利用されているので、機能性ナノ磁性体のスピン構造解析法が新たに開発できたといえる。この他の支援研究として、（課題番号：

2003B0204-ND3b-np) 次世代磁気記録メディア材料のPtFe合金薄膜のフォノン物性研究、および(課題番号: 2003B0504-ND3b-np) ナノサイズ生体試料(フェリチン)内部の鉄元素拡散状態の研究も実施された。

(三井 隆也)

### 1-3 非弾性散乱実験

実験ハッチ2では、硬X線を用いたX線非弾性散乱実験を行っている。エネルギー分解能は0.1~1eVで、数十eVまでの励起の観測が可能である。特に、3d遷移金属のK吸収端での共鳴散乱を利用して、強相関遷移金属化合物の電子励起を運動量依存性まで含めて測定することを目的としている。

本年度は、これまでに行ってきたMnのK吸収端(6.54keV)に加えて、CuのK吸収端(8.98keV)での実験も行えるように整備を進めた。入射光は光学ハッチ内のSi(111)モノクロメータと実験ハッチ内のSi(400)高分解能モノクロメータで単色化される。一方、試料により散乱されたX線はGe(733)湾曲型アナライザーによりエネルギー分光される。エネルギー分解能は約400meVが達成できた。

Mn化合物では、絶縁体のLaMnO<sub>3</sub>で見られたギャップ構造が、ホールをドーピングして金属化したLa<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub>ではギャップ位置にスペクトル強度を残しつつギャップが埋まる様子が、200meVの高分解の実験を行うことで初めて観測できた。一方、Cu化合物では軌道秩序系のKCuF<sub>3</sub>、K<sub>2</sub>CuF<sub>4</sub>、および、高温超伝導体のYBa<sub>2</sub>CuCO<sub>7</sub> についての実験を行った。

(石井 賢司)

### 1-4 表面X線回折計

BL11XUの実験ハッチ3には、GaAsなどの半導体の分子線エピタキシャル(Molecular-Beam Epitaxy, MBE)成長のメカニズムを解明することを目的として、MBE装置とX線回折計とを組み合わせた装置が設置されている<sup>[6]</sup>。本装置は、2004年度からナノテク支援課題「原子層制御結晶成長過程のその場観察」のため公開される予定になっている。一般ユーザーによる利用に対応するため、装置や制御用ソフトウェアの整備を進めている。

新たに整備されたソフトウェアの一例として、直感的な操作で実験データをグラフ化できるTPLOTを図2に示す。今回折計の制御に用いているSPEC(Certified Scientific社製)では、複数の実験データが一続きのデータファイルとして保存される。この形式は、データファイルの保守を容易にする反面、一般的なグラフ描画ソフトには適合しないものである。SPECに付属するグラフ描画ソフトCPLOTは、コマンドにより操作するもので、一般ユーザーにとっては使いにくい。そこで、CPLOTのGUIフロントエンドであるTPLOTを作成し、直感的な操作でCPLOT

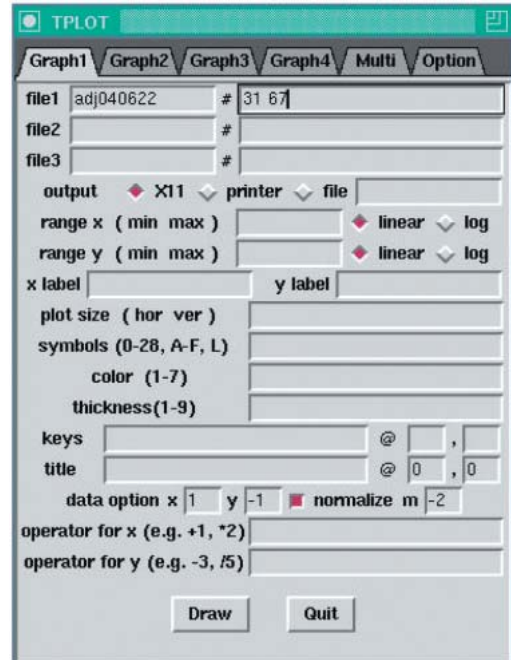


図2 TPLOTの画面。直感的な操作でCPLOTを扱うことができ、SPECのデータをグラフ化することができる。

を使用できるようにした。TPLOTは本実験ステーション以外にも、すでいくつかのビームラインで試験的に利用されており、好評を得ている。

本年度の利用研究としては、「GaAs(001)-2x4表面におけるドメイン境界」<sup>[7]</sup>、「成長条件下でのGaAs(001)-(2x4)構造のその場解析」<sup>[8]</sup>を行った。

(高橋 正光)

### 1-5 アンジュレータを用いたXAFSによる構造解析

昨年度より実験ハッチ1の後方において、アンジュレータを用いたXAFSによる放射性廃棄物再処理に関係した物質の構造解析を開始した。ランタノイドのK吸収端を中心として、乾式再処理では混合系溶融塩の構造解析、湿式再処理では溶媒抽出法のための抽出分離試薬の構造解析を行っている。

図3にアンジュレータを用いたXAFS測定システムの概略図を示す。JASRI谷田肇博士が開発された制御プログラムを、BL11XU用に最適化して使用している。分光器の角度を変えると同時に、アンジュレータの磁石列間距離を連動して駆動し、さらにピエゾ素子を制御して、試料に入射するX線強度が最大になるように制御している。BL11XUでは、マルチ結晶交換システムによって必要に応じていつでもSi(111)とSi(311)結晶を使用・交換できるので、6~70keVの高輝度X線を使用したXAFS測定が可能となった。

(塩飽 秀啓)

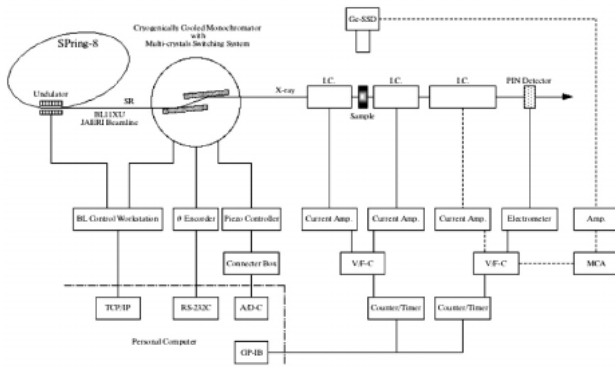


図3 アンジュレータXAFS測定システム概念図

参考文献

[ 1 ] H. Shiwaku, T. Mitsui, K. Tozawa, K. Kiriyaama, T. Harami and T. Mochizuki : AIP Conference Proceedings #705 (2004) 659  
 [ 2 ] K. Tozawa, K. Kiriyaama, T. Mitsui, H. Shiwaku and T. Harami : AIP Conference Proceedings #705 (2004) 671  
 [ 3 ] T. Mitsui et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **43**,1 (2004) 389.  
 [ 4 ] A.I.Rykov et al.: Phys. Rev. **B68** (2003) 224401.  
 [ 5 ] M.Seto et al.: Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 185505.  
 [ 6 ] M. Takahasi, Y. Yoneda, H. Inoue, N. Yamamoto and J. Mizuki : Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 6247  
 [ 7 ] M. Takahasi, Y. Yoneda, N. Yamamoto and J. Mizuki : Phys. Rev. **B68** (2003) 085321.  
 [ 8 ] M. Takahasi, Y. Yoneda and J. Mizuki : Appl. Surf. Sci. to be published.

日本原子力研究所 関西研究所 放射光科学研究センター  
 利用系開発グループ

塩飽 秀啓  
 重元素科学研究グループ  
 三井 隆也  
 重元素科学研究グループ  
 石井 賢司  
 構造物性研究グループ  
 高橋 正光

2. BL14B1 (材料科学研究ビームライン)

2-1 はじめに

BL14B1は偏向電磁石を光源とし、X線回折実験およびX線吸収実験により、高温高圧下における物質の構造、表面界面の結晶構造、ランダム系物質の構造などの研究を行なうことを目的としている。ビームラインは光学ハッチと2つの実験ハッチで構成されている。光学ハッチ内にはSPring-8の標準仕様である可変傾斜型二結晶分光器を設置

し、5~110keVの広いエネルギー範囲の単色光を利用することができる。分光器の上下流にはRhコートされた全反射ミラーを配置し、高調波除去、コリメーションおよび垂直方向の集光を可能にしている。実験ハッチ1には白色光または単色光を導入することができ、キュービックアンビルプレスをを用いた高温高圧下におけるその場X線回折実験が行われる。実験ハッチ2には単色光を導入し、表面界面、ランダム系など様々なカテゴリーの物質の構造物性を研究するための多軸回折計が設置されている。

2-2 窒化ガリウムの分解・融解挙動

青色発光素子の基幹物質である窒化ガリウムについて、その高温高圧下での分解ならびに融解挙動を明らかにする研究が重点的に行われた。その結果、6GPa以下の圧力下では、高温で窒化ガリウムはガリウムと窒素に分解してしまうが、それ以上の圧力をかけると、分解することなく約2220 で、窒化ガリウムのままで融解(一致溶融)することが実験的に初めて明らかにされた。この融液は温度を下げると可逆的に窒化ガリウム結晶に戻る。図1に得られた窒化ガリウムの温度圧力状態図を示す。この事実は、高圧下で窒化ガリウム組成の融液を徐々に冷却して窒化ガリウム単結晶を育成する新しい手法へと導くものであり、実際に6.5GPaの高圧下で2300 まで昇温して窒化ガリウム液体を得たのち、圧力を保ったまま毎分1 の速度で試料をゆっくり冷却することによって良質の窒化ガリウム単結晶が得られた<sup>[1,2]</sup>。

また、窒化アルミニウムと窒化ガリウムの混合粉末が高温高圧下で反応する様子をその場観察する実験が行われ、6GPaの圧力下で、800 付近から固相反応による合金化が始まることなどが明らかにされた。この研究の結果、任意組成の窒化アルミニウム-窒化ガリウム合金が、高圧下での固相反応により合成可能になった<sup>[3]</sup>。

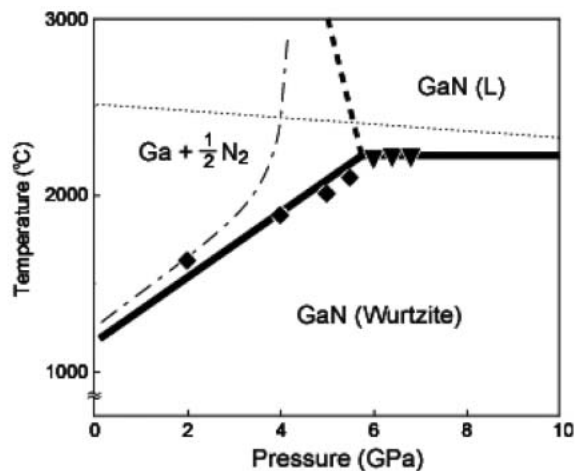


図1 窒化ガリウムの高温高圧下状態図



### 2-3 SiO<sub>2</sub>ガラス、液体ジャーマネートの高温高压下での構造変化

液体やガラスなどのランダム系物質の高温高压下における構造変化を明らかにする研究は、このキュービックアンビルプレスを用いた研究の柱のひとつであり、今年度も優れた成果が得られている。SiO<sub>2</sub>ガラスについて、その構造因子の温度依存性が高压下19.2GPaまで測定された。その結果、中距離秩序を反映するシャープな第一ピークはある温度圧力領域においては、温度上昇にともなって高波数側にシフトし、中距離秩序がより稠密な構造へと緩和していく様子が観測された。約7GPaから、この温度によるシフトは飽和する傾向を示し、一方、結晶化温度が急激に上がってくるのが明らかになった。これらの結果は、比較的安定な高密度SiO<sub>2</sub>ガラス構造の存在を強く示唆するものである<sup>[4]</sup>。

また、大阪大学との共同研究により、液体ジャーマネート(Li-Ge-O系)の高温高压下でのX線吸収(XAFS)実験が行われ、Ge原子周りの局所構造変化が調べられた。結晶ジャーマネートにおいて、Geに対する酸素の配位数が4から6へ変化する圧力誘起構造相転移が見られることから、液体ジャーマネートにおいても、高压下でGeO<sub>6</sub>八面体からなる高密度液体の存在が予想されていた。本研究では、この配位数変化を実験的に初めて観察することに成功し、その配位数変化が非常に狭い圧力範囲で急激に起こることが見出された。また、液体中のGeO<sub>6</sub>八面体の圧縮挙動が固体中のそれと有意に異なる(液体の方がより圧縮され易い)ことも明らかにされ、超高压下での液相-固相間の密度逆転の可能性が示唆されている<sup>[5]</sup>。

この他、各種バルク金属ガラスの高温高压下における結晶化に関する研究や<sup>[6-9]</sup>、黒鉛-ダイヤモンド変換のその場観察について<sup>[10,11]</sup>、これまで本実験ステーションによる実験で蓄積されてきたデータが解析され、それぞれ論文として発刊された。

### 2-4 単結晶CaFeO<sub>3</sub>の電荷秩序状態

X線異常散乱実験およびバンド理論を用いてCaFeO<sub>3</sub>の電荷分離状態を明らかにした。この物質はFeの形式価数が+4である。290Kにおいて金属-絶縁体転移を起こすが、メスパワー測定により、低温ではFeは+3価と+5価に別れると考えられていた。しかしながら、これまでの多結晶を用いた研究では、電荷分離を明確に示唆する実験は行われておらず、決定的な証拠が得られていなかった。

本研究は京大化研との共同研究であり、LaSrAlO<sub>4</sub>(001)基板上にレーザーアブレーション法により作製された単結晶試料について、型多軸回折計で調べた。11Kにおいて、ペロブスカイト構造の超格子反射(1/2, 1/2, 1/2)のFe-K吸収端近傍におけるX線異常散乱を測定したところ、特徴的なエネルギー依存性が見られた。この超格子反射は2種

類のサイトのFeの原子散乱因子が互いに打ち消し合う準禁制反射であり、それらのFeの周りの環境が異なっていることを反映していると考えられる。この実験結果に基づき、バンド理論計算(LDA+Uスキーム)がなされた。Feの3d電子の数は変化せず、Fe-O結合における3d-2p電子の混合状態が変わることが明らかになった。すなわち短い方のFe-O結合にかかわる酸素2p状態にホールが局在すると結論された<sup>[12]</sup>。

### 2-5 量子常誘電体KTaO<sub>3</sub>のX線照射効果

光コンピューター技術の基盤研究として透明無機物質の光応答を利用した光スイッチング制御技術が注目されている。ペロブスカイト型量子常誘電体酸化物は数十K以下の低温でソフトフォノンモードに起因する誘電異常が観察されることはよく知られている。この量子常誘電体に電場および紫外レーザーで励起することにより、誘電率が2桁も増大することが北大のグループにより発見された。BL14B1では、このグループとの共同研究として、構成元素の電子状態や局所構造を調べるためにHe-Cdレーザーを導入した。

量子常誘電体のひとつであるKTaO<sub>3</sub>の単結晶に電極を蒸着し、誘電率を測定しながらTa-K吸収端(67.4keV)近傍のエネルギーのX線を用いて実験を開始したところ、低温においてX線を照射しただけで同様の誘電異常が起ることが発見された<sup>[13]</sup>。図2にはX線照射のON-OFFを繰り返した時の誘電率の実部の時間変化を示す。X線照射により誘電率の増大が起るが、その時間変化には数十分を要している。またX線照射を止めると直ちに元の誘電率まで減少するが、再びX線照射を開始すると誘電率が増大する。この際、以前の誘電率までは直ちに増加するが、それ以降の増加は再び緩慢となる。このようなメモリー効果は紫外レーザーによる励起では見られず、X線による励起の特徴である。今後、メカニズム解明のため、XAFSおよびX線回折による実験を精力的に行う予定である。

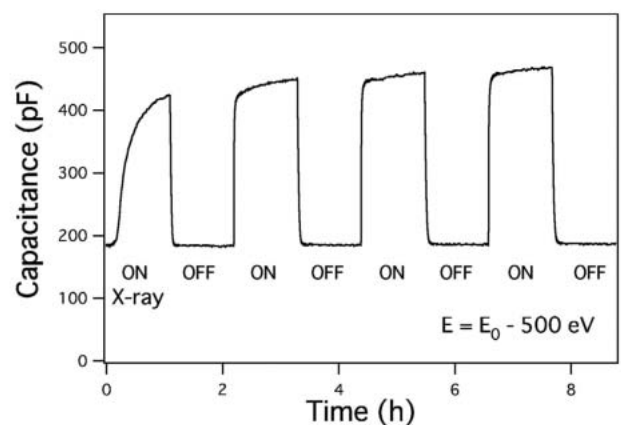


図2 X線照射によるKTaO<sub>3</sub>の誘電率の実部の時間変化(15K)

その他、鉄鋼材料の腐食、電極表面の電析過程、触媒<sup>[14-16]</sup>、誘電材料等の構造研究が精力的になされている。

#### 参考文献

- [ 1 ] W. Utsumi, H. Saitoh, H. Kaneko, T. Watanuki, K. Aoki and O. Shimomura : Nature Materials **2** (2003) 735.
- [ 2 ] 内海渉、齋藤寛之、青木勝敏、金子洋 : SPring-8利用者情報誌 **9** (2004) 42.
- [ 3 ] H. Saitoh, W. Utsumi, H. Kaneko and K. Aoki : J. J. Appl. Phys. **43** (2004) L981.
- [ 4 ] Y. Inamura, Y. Katayama, W. Utsumi and K. Funakoshi : Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 015501-1.
- [ 5 ] O. Ohtaka, H. Arima, H. Fukui, W. Utsumi, Y. Katayama and A. Yoshiasa : Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 155506-1.
- [ 6 ] W. H. Wang, P. Pen, D. O. Zhao, M. X. Pan, T. Okada and W. Utsumi : Appl. Phys. Lett. **83** (2003) 5202.
- [ 7 ] D. Q. Zhao, M. X. Pan, W. H. Wang, B. C. Wei, T. Okada and W. Utsumi : J. Phys.: Condens. Matt. **15** (2003) L1.
- [ 8 ] W. H. Wang, T. Okada, P. Wen, X.-L. Wang, M. X. Pan and W. Utsumi : Phys. Rev. **B 68** (2003) 184105.
- [ 9 ] Z. X. Wang, D. Q. Zhao, M. X. Pan, W. H. Wang, T. Okada and W. Utsumi : J. Phys.: Condens. Matt. **15** (2003) 5923.
- [ 10 ] T. Okada, W. Utsumi, H. Kaneko, V. Turkevich, N. Hamaya and O. Shimomura : Phys. Chem. Minerals. **31** (2004) 261.
- [ 11 ] W. Utsumi, T. Okada, T. Taniguchi, K. Funakoshi, T. Kikegawa, N. Hamaya and O. Shimomura : J. Phys.: Condens. Matt. **16** (2004) S1017.
- [ 12 ] T. Akao, Y. Azuma, M. Usuda, Y. Nishihata, J. Mizuki, N. Hamada, N. Hayashi, T. Terashima and M. Takano : Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 156405-1.
- [ 13 ] 西畑保雄、武貞正樹、水木純一郎、八木駿郎 : 日本物理学会2003年秋、22aXC-8.
- [ 14 ] 水木純一郎、西畑保雄、田中裕久 : 日本結晶学会誌、**45** (2003) 203.
- [ 15 ] 田中裕久、上西真里、水木純一郎、西畑保雄、木村希夫 : まてりあ **42** (2003) 571.
- [ 16 ] M. Taniguchi, M. Uenishi, I. Tan, H. Tanaka, M. Kimura, Y. Nishihata and J. Mizuki : SAE Paper 2004-01-1272 (2004).

日本原子力研究所 関西研究所 放射光科学研究センター  
構造物性研究グループ

西畑 保雄

極限環境物性研究グループ

内海 渉

### 3. BL22XU (量子構造物性ビームライン)

#### 3-1 はじめに

BL22XUは、高圧下での構造解析及び共鳴X線回折・吸収実験を目的として建設された原研専用硬X線ビームラインである。実験ステーションは、蓄積リング棟に実験ハッチ1、RI棟に実験ハッチ3があり、前者で高圧実験が、後者で共鳴回折・吸収実験(含XAFS)が行われる。3keVから70keVのX線に対応し、そのため、低エネルギー用(3~36keV)と高エネルギー用(35~70keV)に、2台の二結晶分光器を持つ。どちらも液体窒素循環装置による間接冷却である。集光光学系としては、RI棟に光を導く際は、蓄積リング棟実験ハッチ2にある4枚3組の全反射ミラーを用い、また、高圧ステーションで実験を行う際は、光学ハッチに設置したベリリウム屈折レンズを用いるようになっている。2002年度が全くの立ち上げであったのに対し、2003年度はビームライン、実験ハッチとも整備が進み、立ち上げから安定した利用実験へと移っていく過程であった。

#### 3-2 ビームライン

まず、輸送部全体としては、これまでスクロールポンプ、ロータリーポンプのみで引いていたセクションにターボ分子ポンプを導入し、これにより全体の真空度が向上した。また、分光器については、液体窒素冷却による振動の対策としてMOSTABを用いており、これにより非常に安定した光を得ることができている。ただ、分光器のピエゾ素子を頻繁に用いるためか、素子が1年足らずで壊れてしまった。その他に、BL22XUには2つの分光器があるが、この2つの分光器の切り替えは6時間程度に短縮できた。また、ミラーの調整もマニュアル化され、ほぼルーチン的に行われるようになっている。

2003年度に新しく導入したものとして、DSSの上流部に設けた強度モニターが挙げられる。Be箔を光軸に挿入し、そこから反射した光をPINフォトダイオードでカウントするもので、この強度モニターをMOSTABに使用することで、DSSの開閉に合わせてMOSTABを起動、停止する必要がなくなり、より快適な環境で実験が行えるようになった。

#### 3-3 実験ステーション

実験ハッチ1のキュービック型マルチアンビル高温高圧発生装置SMAP180に関しては、BL11XUからの移設後の調整を行った。現在、IPを用いた角度分散型X線回折実験、およびX線吸収法による密度の測定が行えるようになっている。角度分散型X線回折実験を迅速に行うために用いられる放射型スリットについては、マイクロメーターによる位置微調整が可能なものを作成し、これまで非常に時間がかかっていた光軸あわせが容易になった。2003年度には、「液体 - 化合物および液体 - 化合物の構造の圧力変化(慶大辻教授)」「銅(-)ハライドの高温高圧相の構造

と相関係 (阪大大高助教授)」「 $K_2Si_2O_5$ -FeO系メルトの構造解析と密度測定 (岡山大浦川助教授)」の3件の協力研究が行われた。これらの研究によって、高輝度、高エネルギーX線の利用によって広い波数範囲の液体の回折測定が迅速に行えること、粉末X線回折では回折強度の信頼性が高く分解能が良いデータが得られること、高輝度X線の利用によるS/Nの向上によって軽元素のようなX線吸収の少ない物質でも精度の高い吸収プロファイルが得られること、が示された。

実験ハッチ1のダイヤモンドアンビルセル (DAC) 用回折計については、動作精度の向上や測定ルーチンの自動化および最適化などの整備を段階的に行なった。現在、DACを用いた単結晶実験および粉末実験を室温および低温条件下で定常的に行なうことが可能となっている。特に、DAC内の30ミクロン程度の小さな結晶に同程度の大きさのビームを当てることが正確かつ簡便にできるので、2次元面検出器 (IP) を使いながらにして比較的S/Nの良いデータを取得することが可能である。このことは、光源の高輝度性と相まって、微弱な超格子の出現を伴う相転移の探索や軽元素物質の構造決定などにとって有利に働いている。この特徴を利用して、準結晶関連物質の圧力誘起構造相転移を見出したり、有機物圧力誘起超伝導体の構造を転移の起こる高压低温条件下で決定したり、金属水素化物の高压構造を見出すなどの成果を得た。

RI棟にある実験ハッチ3では、共鳴X線回折法により、電荷、スピン、軌道、といった電子自由度の秩序状態を観測することを主な目的としている。回折計は水平振りの二軸回折計と、鉛直振りの四軸回折計が設置されている。回折計の前にはダイヤモンド移相子が設置されており、また、両回折計には偏光解析装置が取り付けられている。これらの回折計は、光学系 (モノクロメータ、ミラー等) や冷凍機等のアクセサリとともに、一つの制御ソフトspecで操作できるようになっている。

2003年度は、まず、幾つかの共鳴 (磁気) 回折実験が行われた。特に、ウラン化合物の実験が行われ、 $UNiGa_5$ においてBL22XUでは初めてUの $M_{IV}$ 吸収端での共鳴磁気回折の測定に成功した。また、 $UNiGa_5$ と $UPtGa_5$ において非磁性元素であるGaのK吸収端での共鳴磁気回折の測定にも成功した。

一方、極限環境下でのX線回折実験の一環として、岡山大学野尻研究室との協力研究により、パルス強磁場下X線回折装置の開発を進めている。現在、30Tのパルス磁場下でのX線回折が可能になっており、 $YbInCu_4$ の価数転移 (に伴う格子の収縮) の観察に成功している。この30Tという磁場の値はX線回折実験としては現時点で最大と考えられる。これ以外にXAFS測定系の立ち上げやコヒーレント光 (スペックル散乱) を用いたドメインのスローダイナミクスの研究などが進められている。

日本原子力研究所 関西研究所 放射光科学研究センター  
重元素科学研究グループ  
稲見 俊哉  
利用系開発グループ  
菖蒲 敬久  
極限環境物性グループ  
片山 芳則、綿貫 徹

#### 4. BL23SU (重元素科学ビームライン)

##### 4-1 はじめに

重元素科学ビームライン (BL23SU) では、APPLE 型の円偏光アンジュレータを光源とし、不等間隔線型グレーティングを用いることにより、400~1500eV程度の軟X線領域での分光実験が行われている。実験ステーションは、実験ホール側に表面化学ステーションおよび生物ステーション、RI実験棟側に光電子分光ステーションおよび磁気円二色性吸収 (MCD) ステーションが設置されている。2003年度は夏期シャットダウン明けよりビームラインの再調整を行い、その後安定した利用実験が行われている。

##### 4-2 ビームライン

本年度は、2003年夏のシャットダウン期に全てのミラーとグレーティングのオゾンアッシャー洗浄を行い、また、2003Bより光軸の再調整を行った。その結果、2003B期からのマシンタイムにおいては、実験ステーションにおける光強度が2003A期と比較して約10倍に向上し、分解能も2倍程度改善された。同時に前置ミラーおよびグレーティングの冷却システムの改造および増強も行った。この結果、熱負荷に対する安定性が向上したため、数時間程度の長時間での光強度・分解能の安定性が向上した。このような改善により、光電子分光ステーションにおいては、非常に高い光強度と安定性を必要とする角度分解光電子分光などの実験が可能となった。また、リアルタイム光電子分光実験を行っている表面化学ステーションにおいても、光強度の増加によってスペクトルのS/N比が大幅に向上した。照射実験を行っている生物ステーションでは、光照射に要する時間が短縮されたため、より効率的に実験を行うことが可能となった。アンジュレータは、現在0.1Hz程度の連続位相駆動が可能であるが、本年度は実験ホールとRI実験棟間のデータ転送ラインの整備とソフトウェアの開発を行い、RI実験棟からの連続駆動を利用した実験が可能となった。現在、MCDステーションでは、連続位相駆動を利用したMCD実験が、アクチナイド化合物を含めた物質に対して行われており、磁気反転を利用した実験に比べてより信頼性の高い実験データが得られている。また、冬のシャットダウン期には光学素子装置が設置されている床の周辺に溝を刻んだ。この処置によって、各光学素子に対する床振動の影響が減少し、光強度の短時間の揺らぎ (1秒以下) が



大幅に改善されたため、二色性吸収実験などの微小なシグナルを検出する実験における精度が向上した。

#### 4-3 実験ステーション

表面化学ステーションでは、半導体と金属表面で起こる化学反応ダイナミクスの解明を目的とした実験を行っている。特に、酸化や窒化反応における表面の化学組成や化学結合状態の実時間その場光電子分光観察と、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要実験テーマとする。2003年度は、 $S(001)$ 、 $S(111)$ 、 $Ti(0001)$ 、 $Cu(001)$ 、 $Cu(111)$ 単結晶表面の酸化および窒化初期過程の解明を進め、これら極薄絶縁膜の形成過程のダイナミクスに関する新しい基礎的知見を得た。

生物ステーションでは、突然変異や発ガンの原因といわれるDNAの損傷過程を分光学的に解明することを目的とした研究を行っている。これまでに電子常磁性共鳴(EPR)装置と四重極質量分析装置(QMS)からなる実験システムを開発し、軟X線照射によるDNA関連分子の損傷過程を観察した。様々な塩基の脱離イオン測定から、デオキシリボースの崩壊が他の塩基に比べて特異的に起きやすいことを見出し、このデオキシリボース崩壊がDNA鎖切断メカニズムの主要因であることを明らかにした。

BL23SUのRI実験棟においては、光電子分光ステーションとMCDステーションを設置し、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の解明を目的とした研究を行っている。これまでに、ウラン化合物 $UTGa_5$  ( $T=Fe, Pt$ )の高分解能光電子分光実験を行い、フェルミ準位近傍の電子状態を解明した。さらに、特異な反強磁性-強磁性転移現象を示す $SrFe_{1-x}Co_xO_3$  ( $0 < x < 0.5$ )の軟X線吸収磁気円二色性分光実験を行い、転移点前後におけるFeとCoの磁気的変化を解析した。

日本原子力研究所 関西研究所 放射光科学研究センター  
電子物性研究グループ

藤森 伸一

表面化学研究グループ

寺岡 有殿

日本原子力研究所 先端基礎研究センター

放射線DNA損傷機構研究グループ

横谷 明德

日本原子力研究所 関西研究所 放射光科学研究センター  
電子物性研究グループ

村松 康司