

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スペクトロメータを主力装置とする、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、蛍光分析、核励起、非結晶物質や液体等における高精度High-q構造因子の測定などにも利用されている。BL08Wは、コンプトン散乱による物性・材料研究において、世界最高の装置性能と最も整備された実験研究環境を有しているため、ここ数年、国外ユーザーによる課題申請の割合は約30%と高い。

2004年度の主要な活動として、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、(1)マイクロビーム形成のための屈折レンズの開発、(2)コンプトンデータ解析プログラムの整備、(3)バンド計算プログラム、BANDS01、の高度化、を行った。また、欧州放射光施設 (ESRF) のスタッフとの交流も積極的に行い、2003~2004年、ESRFのID15ビームラインにおいて、新型高分解能コンプトンスペクトロメータの実験を共同で行った。

1-2 主要装置の現状^[1,2]

磁気コンプトン散乱実験は、実験ステーションAに設置されている10素子Ge半導体検出器と試料冷凍機付3T超伝導電磁石を組み合わせた装置を利用して行われている。また、実験ステーションA (入射X線エネルギー: 175keV) では、蛍光X線の影響によりアクチノイド系物質の測定は困難であるため、密封ウラン化合物、密封ネプチウム化合物の測定は、ウランおよびネプチウムのK吸収端より低エネルギー側のX線 (113keV) が利用できる実験ステーションBで行っている。そのとき、10素子Ge半導体検出器を実験ステーションAから移動し、実験ステーションBに常設されている試料冷凍機付7T超伝導電磁石を使用する。2004年にはトップアップ運転が始まり、蓄積リングカレント変動による影響が格段に軽減されたことで、両実験ステーションにおける磁気コンプトン散乱実験データの信頼性、再現性が向上した。

高分解能コンプトン散乱実験は、実験ステーションBに設置されたCauchois型高分解能コンプトン散乱スペクトロメータを用いて行われている。同スペクトロメータは、結

晶アナライザーとX線位置敏感検出器からなる。2004年度、3連型Si結晶アナライザーに代わり単連型Ge結晶アナライザーを採用し、測定効率は約20%低下したが、分解能が約20%向上した。X線位置敏感検出器はX線イメージ・インテンシファイアー検出器を使用している。試料環境としては、6Kまで冷却できる試料冷凍機と最大7Tまでの超伝導電磁石が利用可能である。

1-3 主要な活動

(1) 磁気コンプトン散乱用屈折レンズの開発^[3]

微小磁性体、多層膜、表面磁性への磁気コンプトン散乱の応用に向け、175keVのX線を縦方向にマイクロレベルに集光する屈折レンズを長峰製作所 (香川県) と共同で開発している。具体的には、パラボラ面を有するNiまたはSUS製レンズを250~300枚重ね合わせ、縦方向を5マイクロン以下に集光する。横方向はモノクロメータの集光のみで、そのサイズは約500マイクロンである。2004年度には、パラボラ面の最適化をシミュレーションにより行い、原理的に5マイクロン以下の集光が可能であることを確認した (図1)。2005年度には、SUS製とNi製レンズを製作し、集光特性、積分強度などの評価を行う。また、それに合わせ、2.5マイクロン径のタングステンワイヤーのビームプロファイルモニターを設計、製作する。

(2) コンプトンデータ解析プログラムの整備

パワーユーザーとの協力により、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。多重散乱計算プログラムの整備に加えて、(磁気)コンプトン散乱解析プログラムや2次元再構成プログラムの整備を行い、マニュアル等を追加した。

(3) バンド計算プログラム、BANDS01、の高度化

2003年度、第1原理バンド計算プログラム (BANDS01) の計算結果から、スピン軌道相互作用を考慮して、磁性体のスピンおよび軌道モーメントが計算できる機能を追加した。2004年度はこれを発展させ、バンド計算プログラムの中にスピン軌道相互作用をセルフ・コンシステントに取り込めるように改良した。強磁性Coに関するテスト計算では、実験結果と一致する計算結果をだしている。

BANDS01は、みずほ情報総研株式会社、小玉祥生博士との協力により、ユーザー支援の一環として、継続的に整備してきたものである。表1に現時点での仕様・機能をまとめた。

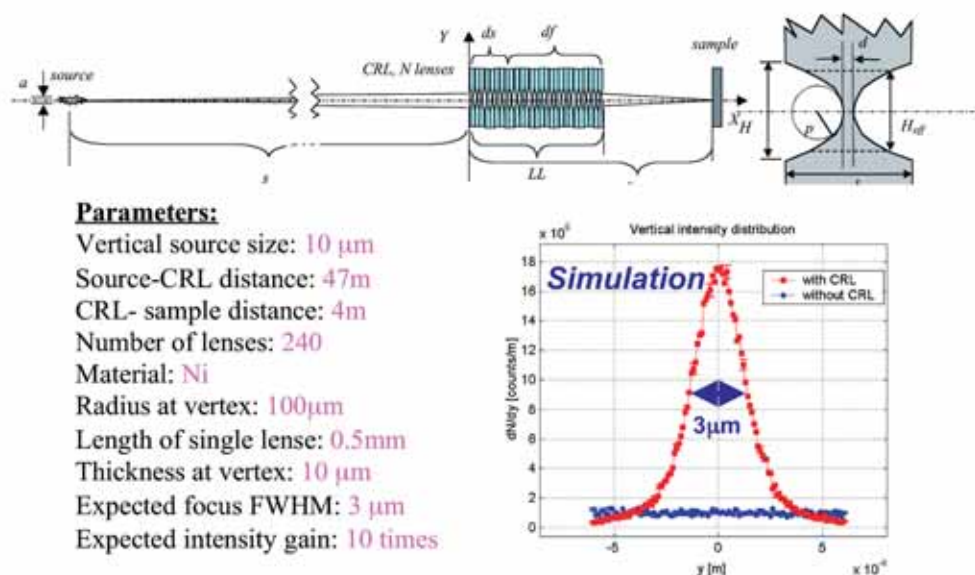


図1 Ni製屈折レンズによる175 keV X線の集光特性のシミュレーション

表1 バンド計算プログラム‘BAND01’の仕様・機能

	仕様・機能
(1) バンド計算	FLAPW、LSDA + U スピン・軌道相互作用 (2004年度、導入)
(2) 電子状態解析	バンド構造図描画 状態密度、部分状態密度計算 フェルミ面描画 電子密度、スピン別電子密度、バンド別電子密度計算 スピンモーメント、軌道モーメント計算
(3) コンプトンプロファイル	(磁気) コンプトンプロファイル計算 スピン別、バンド別コンプトンプロファイル計算 電子運動量密度計算 スピン別、バンド別電子運動量密度計算

1-4 利用実験の概要

2004年度の一般課題実験は、(1) アクチノイド化合物、CMR関連物質 (長期利用課題) 各種酸化物の磁気コンプトン散乱による磁性研究と(2) 金属水素化物、形状記憶合金、銅酸化物高温超伝導体の高分解能コンプトン散乱によるフェルミ面研究が大半を占める。また、金属ガラスの高エネルギー回折実験や高分解能コンプトン散乱実験も行われた。また、高エネルギー円偏光X線を利用する新たな試行的実験として、原子核のパリティ非保存の検証実験も行われた。

重点パワーユーザー課題では、高圧下での磁気コンプトン散乱実験技術の整備を目的とした実験を行っている。2003年度に日本原子研究所・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設計、製作された磁気コンプトン散乱用ダイヤモンド・アンビル・セル (DAC) を用いて、高圧化Fe化合物の実験が試

験的に開始された。このDACで、直径0.7mm、厚さ0.5mmの試料を最大3GPaまで加圧できる。今後、温度・磁場・圧力パラメータを変えた物性実験に広く応用されていくものと期待される。また、同課題では、磁気コンプトン散乱実験の磁性多層膜への応用も試験的に行われており、同手法による研究対象の拡大が進んでいる。

参考文献

[1] M. Itou and Y. Sakurai : “Cauchois-type Compton Spectrometer Using X-ray Image Intensifier” AIP Conference Proceedings -May 12, 2004- Volume **705**, issue 1, pp 901-904.
 [2] Y. Sakurai and M. Itou : “A Cauchois-type X-ray spectrometer for momentum density studies on heavy-element materials”, Journal of Physics and Chemistry of Solids (2004), **65** (2004) 2061-2064.

[3] A. Andrejczuk, Y. Sakurai and M. Itou : “The Refractive Collimation System at 175 keV for Compton Scattering Experiments at SPring-8”, 第18回日本放射光学学会年会・放射光科学合同シンポジウム概要集P228.

利用研究促進部門
 構造物性 グループ 非弾性散乱チーム
 櫻井 吉晴

2. BL09XU (核共鳴散乱)

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、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^[1]。核共鳴非弾性散乱を利用しての物質のダイナミクスの研究や時間領域でのメスパワー分光に利用されている。放射光でのメスパワー分光は特に極端条件下や回折条件下、メスパワ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BL09では精密ゴニオメータシステムを用いて、NEET (Nuclear excitation by electron transition) や多波回折の研究、表面研究、残留応力測定などが行われている。

2004年度、大きな改造として夏期シャットダウン中にビームラインモノクロメータをシリコンからダイヤモンドに変更した。また2004年5月から導入されたトップアップ運転の実施とあいまって核共鳴散乱で利用できる実効的なフォトン数が大きく増え、1.1meVというこれまでよりも高い分解能での⁵⁷Fe核共鳴非弾性散乱実験が可能となった。最後に隣接する兵庫県ビームラインBL08Bの建設に伴い制御機器・計数機器を移動したので報告する。

2-2 ダイヤモンドモノクロメータの導入

1997年の供用開始以来、回転傾斜型の水冷シリコン2結晶モノクロメータ^[2]がビームラインモノクロメータとして利用されてきた。これにかわり、2004年夏期シャットダウン中にビームライン部門によりダイヤモンド2結晶モノクロメータがインストールされた。ダイヤモンドモノクロメータはシリコンに比べ、熱負荷に強く、同じ格子面を利用した場合フラックスは減少するがエネルギー分解能が高くなるという特徴をもつ。核共鳴散乱実験の際は単位エネルギー当たりのフラックスが重要になるため導入が行われた。図1にダイヤモンド2結晶モノクロメータ回折系の写真を示す。ダイヤモンドはホルダーにインジウムをはさんで固定されており、大きさは約15mm x 15mm x 0.5mmである。様々な核種により核共鳴散乱実験が順調に実施された。実験が行われた6.2keVから80keVの範囲のいずれのエネルギーにおいても、ビームサイズが半分以下になるという大きな改善がみられた。また単位エネルギー当たりのフラックスについても同等から2倍までの増加が確認された。

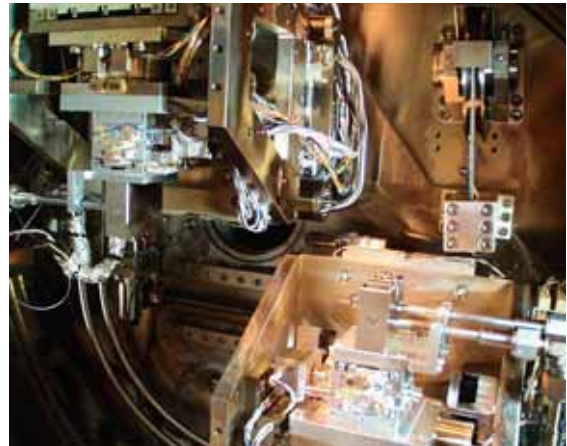


図1 ダイヤモンド2結晶モノクロメータ

2-3 トップアップ運転による実効的なフラックスの増加

核共鳴散乱がトップアップ運転により大きな恩恵を受けるのには、原子核の共鳴エネルギー幅に起因する大きな理由がある。ひとつは多くの核種の寿命がnsecからμsecの時間領域にあり、スペクトルを得るためにはセブラルパンチ運転が必須となることである。一方、核共鳴散乱はその寿命に対応して共鳴に寄与するX線のエネルギー幅がneVからμeVの領域にありシグナルレートが一般に高くない。そのため、トップアップ運転による積分強度の増加は測定の可能性を大きく広げることになる。とりわけ1/12+10パンチ等のハイブリッドパンチモードでは孤立パンチの寿命が短いことと、一日2回入射および光学系の再調整による時間的なロスがあったため、トップアップ運転の実現により3倍弱の実効的なフラックスの増加があった。これにより、より希薄な系での測定などが可能になっている。

2-4 ⁵⁷Fe用1.1meV高分解能モノクロメータの導入

酵素やタンパク質等の高分子試料での核共鳴非弾性散乱では隣接した振動モードを分解するために高分解能が要求される場合が多いが、実際の測定では強度とのトレードオフで分解能を決める必要がある。トップアップ運転とダイヤモンドモノクロメータの実現に伴い、図2に示すような

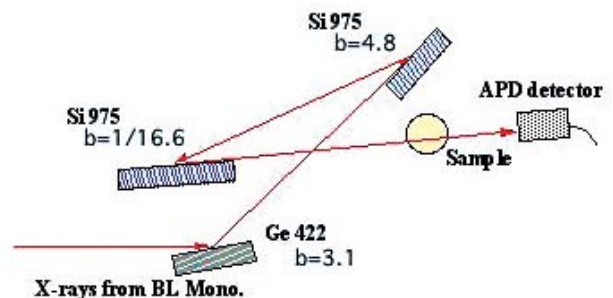


図2 1.1meVの分解能を持つ⁵⁷Fe用高分解能モノクロメータの配置図

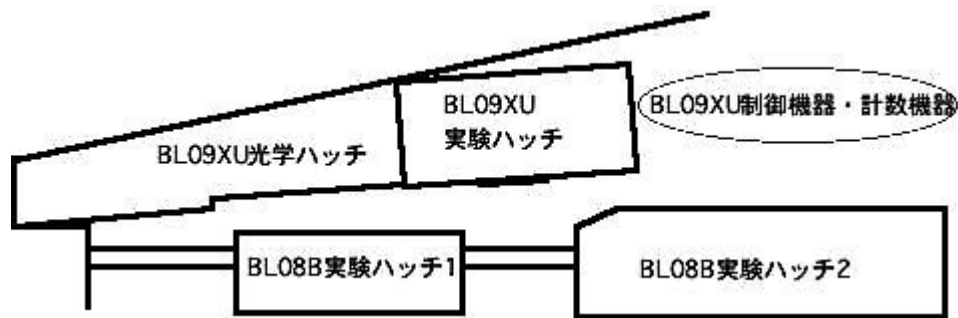


図3 BL09XUとBL08B2のハッチの位置関係

配置をもつ、より分解能の高い1.1meVの高分解能モノクロメータを導入、ユーザ実験において順調に利用された。

2-5 BL08B2建設に伴う制御機器・計数機器の移動

2005年夏期より兵庫県ビームラインBL08Bの建設が開始された。そのため、これまでBL09XU実験ハッチの横に設置されていたコンピュータ、モータコントローラ、ドライバなどの制御機器や高速回路系やスケーラ、MCA等の計測機器を従来の規定に従い実験ハッチ後方に移動した。またBL09XUとBL08B2の位置関係は図3に示すようになっている。実験ハッチの入り口に通じる通路は最小の幅が約1150mmとなっているので注意が必要である。それ以上の大型機器についてはビーム停止中にBL08B2のパイプをはずすことにより、搬出・搬入することが可能である。

参考文献

- [1] Y. Yoda et. al : Nucl. Instrum. Methods A **467-468** (2001) 715-718.
 [2] M. Yabashi et. al : Proceedings of SPIE **3773** (1999) 2-13.

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

3. BL13XU (表面・界面構造)

3-1 はじめに 概要

2001年度の年報から数えて、今回は4回目の報告である。2001年度は入射ビーム強度のより安定化、および、入射エネルギーとX線強度を報告した。2002年度では、実験ハッチ1におけるバックグラウンド強度の低減化の工夫、動力学的回折実験の準備を記録した。2003年度では、利用実験を掻い摘んで紹介するとともに、新たに導入された小型回折計を紹介した。2004年度の年報のアウトラインは以下の通りである：活動状況、新規装置の導入、整備事項、ユーザーにとっての便利なパラメータの掲載、ユーザー研究の紹介、今

後の課題などである。

2002年度、2003年度の年報では、利用実験の内容を対象試料、測定方法、実験ハッチごとに分類した結果も掲載した。その分析から受けた印象をまず列挙します。

- (1) ユーザーグループの“大衆化”。当初は立ち上げグループが利用研究の大半を占めていたが、徐々に利用グループがその立ち上げグループ以外にも拡大した。シンクロトロン放射の利用がはじめてというユーザーが増えた、その中にはX線回折の経験がそれまでにないユーザーもあった。
- (2) “X線屋”の利用から“試料屋”の利用が増えた状況に応じて、試料が多様化し、極薄膜、1Dなど将来のナノテク候補材料に関する研究課題がとくに増加した。
- (3) その多様な試料から得られる測定データを解析する手法を準備（開発）する必要性を感じた。たとえば、1D構造が1個だけ存在するというモデルでは回折データを十分に説明できず、また、規則的に1D構造が配置されている構造モデルでも説明できなかった。すなわち、その1Dの配置分布、1D同士の相関距離、1Dの直線性、下地との構造相関などより詳細な構造情報を、統計学的な観点を含めた解析方法によって得られるのではないかと期待している。

さて、実施された利用実験を分析した以上、その結果である論文の出版状況を1対1に分析するべきである。しかし短期間でその対応を考察するのは性急すぎると判断した。それぞれのユーザー実験の成果の詳細は、(例年通りなら)本年報の付録に掲載されるはずの論文リスト、あるいは、<http://uow.spring8.or.jp/public/servlet/view/>の研究成果データベースから得られる論文リストを、興味があれば参照してください。

3-2 活動状況 ナノ構造解析研究課題の増加

2004A (課題数17)、2004B (課題数17)における、ユーザー実験を、カテゴリ、試料、対象、手法、実験ハッチ、

シフト数によって分類した(表1と表2)。ナノ構造が3割、4割を占めている。薄膜を基板上のナノ構造体を含めると、約6割がいわゆるナノ構造解析と関係する。

2005年3月17日には、ナノテクノロジー総合支援プロジェクト ワークショップ(副題: BL13XUユーザー研究成果報告会、ナノ構造から微弱なX線回折)が実施された。そのワークショップの内容を63ページの報告書にまとめ

た。JASRI図書室に蔵書されていますので、その報告書を是非閲覧してください。2004年に発行された学術論文数は12本、特許出願数は2件を数えた。新聞掲載は[1] 日刊工業新聞記事、平成16年6月29日第33面(科学技術)、[2] 日刊工業新聞記事、平成16年9月27日第29面(科学技術)、[3] 日経産業新聞記事、平成16年9月27日第11面(先端技術)、[4] 科学新聞記事、平成16年10月1日第1面であった。

表1 2004Aビームタイムの配分。四捨五入の関係で、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、P: -2。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。学、産など見やすいよう、わざと直線上にのらないようにした。

カテゴリ	試料	手法	ハッチ	学/産/他	シフト数	%	小計%
ナノ構造	酸化物ナノ機能薄膜	D	1	学	15	7.5	31.3
	1D 酸化物構造	D	1	他	15	7.5	
	強磁性ナノ細線	D	1	学	12	6	
	Ge ナノ細線	D	1	産	9	4.5	
	カーボン・ナノチューブ薄膜	P	1	産	6	3	
	磁性微粒子	D	1	他	6	3	
薄膜	Bi	D	1	学	15	7.5	25.4
	コロイド/強磁性体界面	Ref	1	学	6	3	
	ポリエチレン膜	GID	1	他	15	7.5	
	有機半導体膜	GID	1	学	15	7.5	
表面	Sn/Ge	GID, CTR	3	学	15	7.5	19.4
	Ni 表面のH ₂ O	GID, CTR	3	学	15	7.5	
	SiC/Si	Ref	3	学	9	4.5	
	電極	D, CTR	1	学	12	6	
応力	薄膜内の応力緩和	D	1	学	12	6	10.4
	残留応力	D	1	学	9	4.5	
迅速法	逆格子直接観察/ナノ構造	-	1	他	15	7.5	7.5

表2 2004Bビームタイムの配分。GISAX: 微小角入射配置(反射型)の微小散乱、R: 逆格子直接観察

カテゴリ	試料	手法	ハッチ	学/産/他	シフト数	%	小計%
ナノ構造	埋もれた 1D	R	1	他	18	9.8	40.9
	表面新物質・Fe 高压相	D	1	学	12	6.6	
	Nano, super lattice	P	1	学	9	4.9	
	カーボン・ナノチューブ	P	1	産	9	4.9	
	Ge ナノ・ドット	GISAX	1	学	5.8	3.1	
	強磁性ナノ細線	D	1	学	12	6.6	
	Dy nanowire	D	1	他	9	4.9	
表面	Ru 上のH ₂ O	GID, CTR	3	学	15	8.2	19.7
	Ag/Si	GID	3	他	12	6.6	
	Ga/SiC	Ref	3	学	9	4.9	
	電極 申請課題 ダイアモンドと異なるCuを調べた	D	1	学	12	6.6	
薄膜	強誘電体薄膜	D	1	学	12	6.6	23
	ゲル/Si界面	Ref	1	学	6	3.3	
	高分子半導体	GID	1	学	9	4.9	
	高分子膜	GID	1	学	9	4.9	
	ポリオレフィンブレンド膜	GID	1	産	6	3.3	
装置の立ち上げと利用	ユーザー持ち込みの多種	Ref, GID	1	他/産	18	9.8	9.8

3-3 装置の導入、整備状況

3-3-1 薄膜構造評価用X線回折装置の導入

利用研究促進部門 産業応用・利用支援 グループ(当時の名称)によって、交付金トライアルユース予算で薄膜構造評価用X線回折装置(理学社製ATX-GSOR)をBL13XUの実験ハッチ1に設置し(図1)立ち上げた。本装置は利用者も多いと聞き、簡便な装置でもあるので、導入を決定した。試料はその表面が垂直になるようマウントされる。直交スイベル、x、y移動台を備えている。試料は鉛直軸(分解能:0.0001%/step回転範囲:-10~190°)水平軸(分解能:0.001%/step回転範囲:-170~185°)の周りに回転自由度を有する。検出器は鉛直2軸(分解能:0.0002%/step回転範囲:-3~158°)水平2軸(分解能:0.001%/step回転範囲:-3~150°)周りの回転自由度を備える。回転中心から検出器までの距離は約350mmである。反射率測定、GIDのin-plane測定、out of plane測定などの場合、代表的な試料数は3シフトのビームタイムの場合、20から30個である。サンプルはクランプもしくはマグネットによって固定されるか、または、多孔質セラミックスを用いて吸着される。自動半割調整プログラムによって迅速に試料(最大100mmのウェハ)をアライメントできている。また、入射X線が有機薄膜にダメージを与えることを避けるため、必要に応じて試料をカプトン製ドーム(直径約200mm、厚さ約100 μ m)で覆い、Heガス雰囲気中で測定している。付随した効果として、低角のバックグラウンド散乱強度を低減化できた。受光側にはダブルスリット、ソーラスリット、または、S(λ 220)アナライザーを選択できる。検出器はシンチレーションカウンタを用いる。エレクトロニクス材料・半導体の試料が多かった。1課題あたり3シフト程度での実験が実施された。

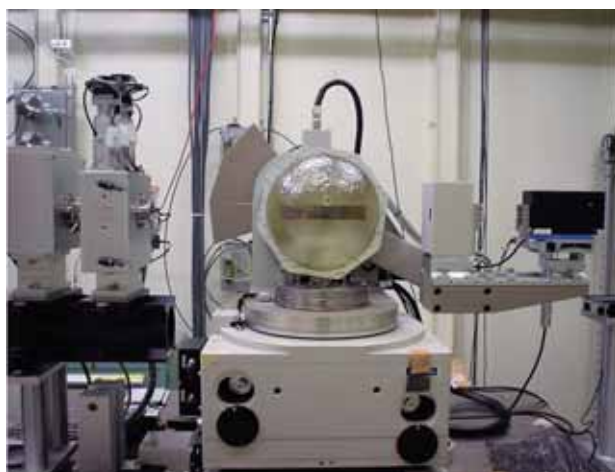


図1 2004年に導入された薄膜構造評価用X線回折装置(ATX-GSOR)。横800mm、奥行550mm、高さ600mm。重量約70kg。

3-3-2 実験ハッチ1の整備状況

整備状況のうち、2個を記す。

- (1) 実験ハッチ1にX線ビームが導入された場所に、パルスモータ駆動の4象限スリット(“スリット0”)を常設した。測定ではこのスリットでビームサイズを制限する機会が多くなった。スリット0の刃からの散乱を抑えるため、試料直前にはパルスモータ駆動の別の4象限スリットを置いた。
- (2) 多軸回折計の回転中心を入射X線ビームと一致させた後、4軸モードの散乱角を走査する軸の原点を決定するのに用いるジグを準備した(図2)。このジグの先端部には縦開口50 μ mのスリットがある。そのスリットと多軸回折計の距離は358mmである。得られた軸の原点の精度は最大に見積もって0.004°以下と考えている。(このジグは軸上のアナライザ用回転台の回転中心に取り付けることを検討したが、軸上の対峙する位置に結局取り付けられた。)実際の作業手順としては、
、
、
の回転中心と入射ビームを一致させた後、軸のゼロ点を本ジグを用いて決定する。

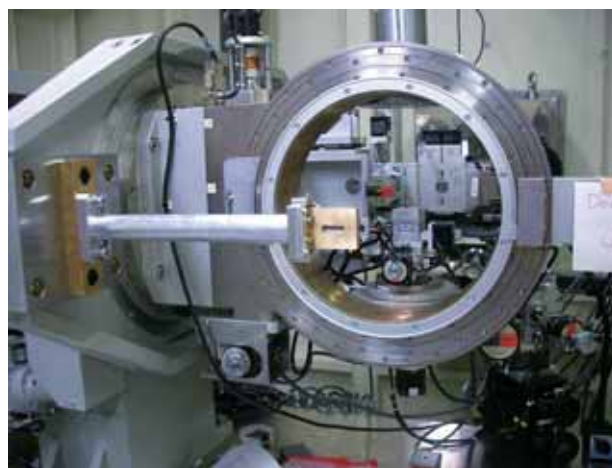


図2 軸の原点を決定するのに用いるジグを多軸回折計に取り付けたところ。

3-4 ユーザーによく使われるパラメータ

(A)	BL mono encoder 表示	Undulator gap(mm)	mirror角 表示(mrad)
0.490	4 '38 '33.5 "	13.17	-2.60
0.610	5 '44 '20.5 "	11.31	-2.97
0.990	9 '14 '35 "	17.69	-4.70
1.127	10 '30 '20.5 "	15.95	-5.35
1.24	11 '33 '44.5 "	14.86	-5.9

3-5 ユーザー研究の紹介

ユーザー研究グループの表面H₂O構造研究例^[1]を紹介する。Ni 単結晶の最近接原子間距離はOH - Oの水素結合

距離より短いため、その表面にH₂Oを吸着させてもコモンシュレートな構造を作らないことが知られている。しかし、その研究報告によると、酸素をその表面に吸着させた場合、H₂Oが秩序構造になった。Ni単結晶(111)上に基板温度25Kで酸素吸着し、p(2×2)Ni(111)Oを作成した。その表面を低速電子線回折(LEED)を用いて観察後、140Kで数分間アニール処理した。基板温度25Kにおいて、表面X線回折データを収集した。その表面のH₂O同士には水素結合ネットワークは存在しないだろうと考えられ、単量体として第1層Ni原子の直上に位置する構造モデルが提案された(図3)。Ni第1層とH₂Oとの結合距離が未アニール表面より短いことが示唆された。そのH₂Oの吸着により、Ni層に未アニール面より大きなバックリング・シフトが誘起された。

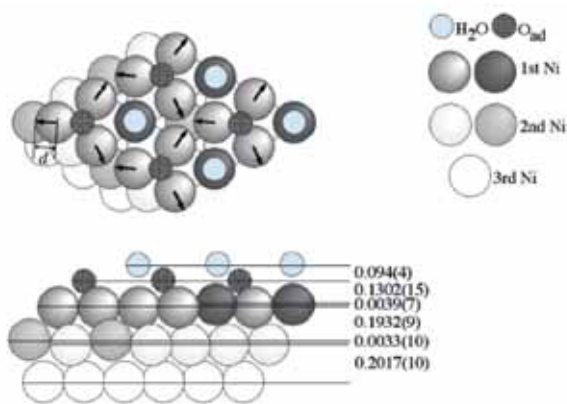


図3 表面X線回折データから得られた、p(2×2)-Ni(111)Oに吸着したH₂Oの構造モデル。アニール温度は140K。

3-6 おわりに

今後の課題を列挙させていただきます。

(1) ハードウェアの維持、更新

あ) モニタ・スタビライザを利用した実験ハッチにおける入射ビーム位置の安定化、い) X線反射率測定を前提とした、広いダイナミック・レンジのX線強度を測定できる検出器の準備、う) 2次元検出器(例えば光子計数型ピクセル検出器)を用いた迅速X線回折法の展開、え) マイクロビームを利用できる測定環境の準備、お) シンクロトロン放射の時間分解特性を生かしたin-situ測定のための機器整備、か) 外部の試料作成グループと協力し、超高真空装置の高機能化。

(2) ソフトウェアの準備

ナノ構造体(1D、ドットなど)の配置分布、同士の相関距離、形状、下地との構造相関などより詳細な構造情報を得るため、統計学的な観点を考慮した解析法の開発とそのソフトウェアの整備。

参考文献

[1] M. Nakamura and M. Ito : Phys. Rev. Lett. **94**, 035501 (2004).

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、北野 彰子

4. BL28B2 (白色X線回折)

4-1 はじめに

白色X線回折ビームラインBL28B2は、偏向電磁石を光源とする放射光をミラーや分光器を通さずに、白色放射光をそのまま汎用的に利用できるSPring-8で唯一の共用ビームラインである。現在、白色X線トポグラフィ、医学イメージング、エネルギー分散型時分割XAFS、ヘリウムガス圧による高温高圧実験などが行われている。ここでは表面構造チームがサポートを行っているトポグラフィに関係して行われた高度化について述べる。白色X線トポグラフィは単結晶の完全性の評価に有効な手法であり、放射光を用いると結晶を切ったりすることなく、成長させたままの状態に結晶内部のトポグラフィを撮影することが可能である。更に、セクショントポグラフィにより、結晶中の欠陥などの3次元的な位置を特定することもできる。そこで、実材料などの結晶性を調べたいという要求に応えるため開発したステップスキャンド・セクショントポグラフィ装置とその測定結果の例について報告する。また、新たに導入した大面積デジタルX線イメージセンサ(フラットパネルセンサ)についても報告する。

4-2 ステップスキャンド・セクショントポグラフィ装置

単結晶中の欠陥を3次元的に観察するため、試料を併進走査させながら試料全体にわたるセクショントポグラフィ像を撮影する装置を開発した。

BL28B2の第2光学ハッチにおけるセクショントポグラフィでは、利用可能なビームの形状と偏光特性を考え、ビームをスリットにより垂直方向に小さく切り出して用いている。すなわち、リボン状のビームを試料に入射し、偏光の回折を利用することになる。試料の回折角度の調整は水平軸回転である。また、試料全体にわたるセクショントポグラフィ像(断層像)を得るために試料を走査する方向は、回折面の法線方向になる。検出器の位置調整は既存のゴニオメータの検出器ステージをそのまま用いることにし、水平軸回りの回転および回折面の法線方向への並進移動機構をもつ装置を、既存のメインゴニオメータ上に設置できるよう工夫して開発した。併せて、専用のソフトウェアの開発を行い、容易で迅速な測定を可能とした。

装置の模式図を図1に示す。装置の構成は、水平軸回りの回転ステージ θ_{hor} と2方向の並進移動ステージX-Zである。表1に各ステージの仕様を示す。図2に示す写真はメインゴニオメータ上に設置したステップスキャンド・セクショントポグラフィ装置である。

本装置は2004B期の利用研究課題2004B0191-NI-npなどで

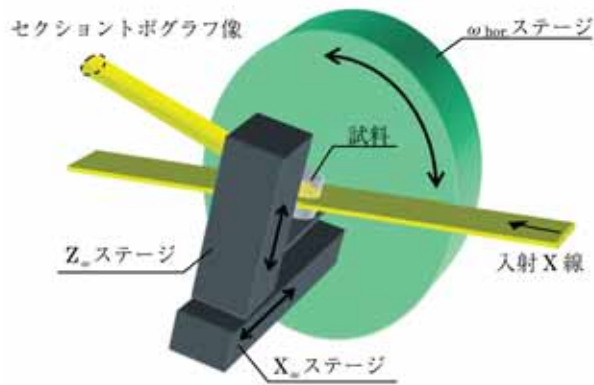


図1 ステップスキャン・セクショントポグラフィ装置の模式図。
装置の構成は、水平軸回りの回転ステージ ω_{hor} および2方向の並進移動ステージX-Z である。

表1 ステップスキャン・セクショントポグラフィ用ステージの主な仕様。

	稼動範囲	分解能
hor.	$\pm 180\text{deg}$	0.001deg
X	$\pm 50\text{mm}$	0.02mm
Z	$\pm 50\text{mm}$	0.02mm

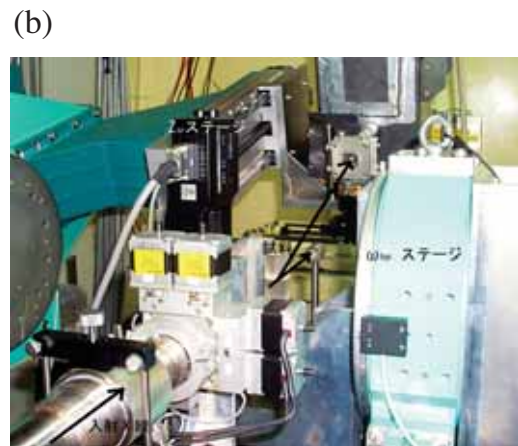
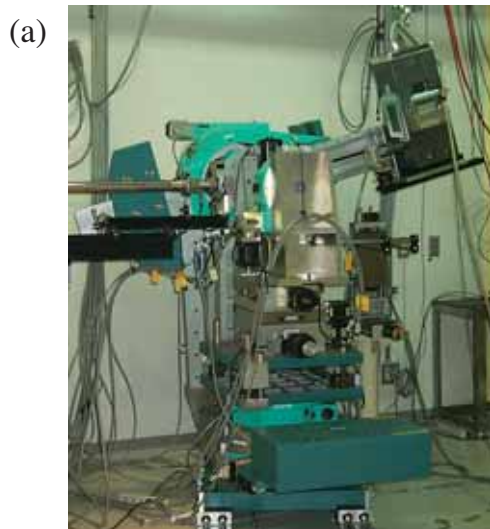


図2 ステップスキャン・セクショントポグラフィ装置の写真。
(a) メインゴニオメータに設置した状態、(b) 試料周辺

使用されている^[1]。図3に観察例を示す。試料は蛍石（フッ化カルシウム）の単結晶であり、回折面は444面、回折に関わったX線のエネルギーは60keVである。入射ビームのサイズはスリットにより、水平方向12mm、垂直方向0.1mmに成形されている。検出器にはビームモニタとCCDカメラを組み合わせたものを使用している。図3で黒く見える部分は回折強度が高いことを示しており、転位などの欠陥や隣接する結晶粒の回折像の重なりなどにより、亜粒界の回折強度が高くなっていると考えられている。図3はデジタル処理により円柱の一部を除去して表示しており、内部構造もきれいに再構成されていることが分かる。このように、本装置を利用することにより結晶粒の分布を3次的に観察することが可能となった。



図3 三次元再構成した蛍石のセクショントポグラフィ像（444回折、60keV）。
コントラストの暗い部分は回折強度が高いことを示す。検出器はビームモニタとCCDカメラを組み合わせた物を使用した。亜粒界の3次元構造が観察できる。

4-3 フラットパネルセンサ

浜松ホトニクス(株)製のフラットパネルセンサC7942-02をBL13XUとBL28B2の共用として導入した。C7942-02は蛍光体(CsI)と2次元フォトダイオードアレイで構成されており、1画素の大きさが $50\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$ で、2240(水平) \times 2344(垂直)画素(112mm \times 117.2mm)の有効受光面を持っている。本検出器は2003年度にBL20B2に導入された検出器と同じものである^[2]。大面積のリアルタイム検出器(2フレーム毎秒)のおかげで、結晶の方位を合わせる軸立ての作業などが迅速に行えるようになった。また、おおまかなトポグラフの撮影も行えるため、実験が大変楽になったとユーザーに好評である。図4に検出器の写真を示す。図5にはフラットパネルセンサで測定したCZシリコンのネック部分のトポグラフを示す。分解能が十分でないためぼやけてはいるが、転位線を確認することができる。



図4 フラットパネルセンサC7942-02の写真。四角い黒の枠内が受光面である。

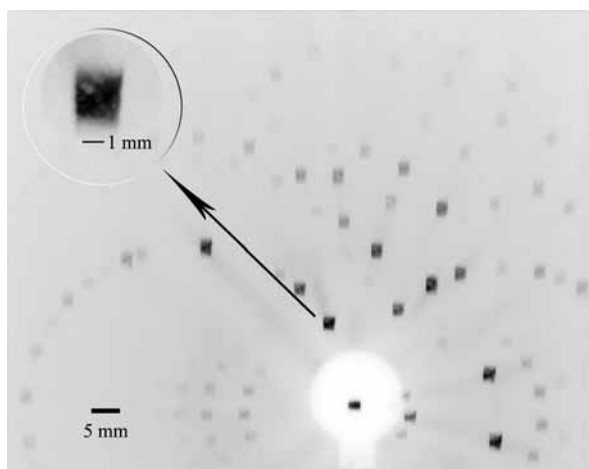


図5 CZシリコン結晶のネック部分をフラットパネルセンサで撮影した白色トポグラフ。左上の丸の中は一つのスポットを拡大したものである。転位線が見られる。

[1] User Experiment Report No.14 (2004B) p152.

[2] SPring-8年報2003年度 p96-97 .

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

産業利用推進室 産業利用支援グループ

梶原 堅太郎

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

5-1 Introduction

In FY 2004 (April of 2004-March of 2005) most effort at BL35 concentrated on incremental improvements, and establishing stable running conditions, after the rather large changes in FY2003.

5-2 Analyzer Array

The multi-analyzer array, installed in FY2003, came into regular usage in FY2004. The array is shown in figure 1. When combined with our 12 element detector, it allows users to collect 12 separate momentum transfers at one time, generally speeding data collection and/or improving the quality of results. Thus, for example, in a recent experiment in liquid selenium^[1], averaging fit results over several analyzers at nearly identical momentum transfers allowed improved accuracy for the resulting parameters.



Fig.1 12 Analyzer array. Each crystal is about 10 cm in diameter.

The largest impact of the analyzer array, however, will probably be in phonon measurements. Here the two-dimensional nature of the array gives BL35 a unique advantage, as compared to the linear arrays at other laboratories (ESRF, APS). In particular, a vertical line of analyzers allows efficient measurement of *transverse* phonon modes, allowing placement of 3 analyzers simultaneously along a high symmetry direction. Thus, to take an example from a recent measurement^[2], consider measuring the dispersion along the (100) direction of c-axis (001)

polarized modes in an orthorhombic de-twinned YBCO crystal. In order to get reasonable intensity, one requires then that the total momentum transfer be large along the (0 0 1) phonon polarization direction. By orienting the sample so that the c^* or (0 0 1) direction is in the horizontal scattering plane, and the a^* or (1 0 0) direction is vertical, one can use the three vertical analyzers to pick off three different momentum transfers in the a^* direction.

This is demonstrated in figure 2, where spectra are presented for all 12 analyzers, along with the total momentum transfer, Q , and the reduced momentum transfer, q . As one can see the vertical line of analyzers corresponds well to the dispersion in the a^* direction. The slight shift also in the c^* direction comes from working near to the (1 0 10) Bragg point - it would be smaller if one were in a more nearly pure transverse geometry near to the (0 0 10) Bragg point. In either case, the shift is not so important for this primarily 2-dimensional material (it is also magnified because the c -axis lattice constant is about 3 times the a and b lattice constants).

5-3 Mirror for Nuclear Resonant Scattering

We performed very first tests of a small, 300 mm long, bent cylindrical mirror for nuclear resonant scattering. The mirror was

polished by Nihon Pilar, and placed in a holder/bender done by Aino-Sangyo. The mirror had been designed with a small sagittal radius, for approximately a 3 m focal length, appropriate for placing between a high resolution monochromator and the sample. While the sagittal focus was good, taking the full horizontal beam to a spot of 60 microns in the full width at half maximum (FWHM) the meridonal focus was not impressive, with only about an improvement of about a factor of two, to ~ 0.25 mm in the vertical. This is not yet understood, but will be the subject of future work.

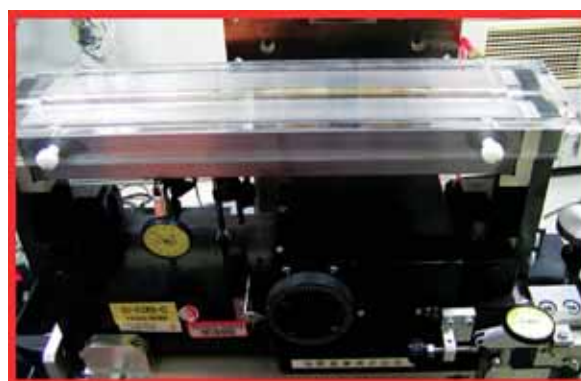


Fig.2 30 cm cylindrical mirror for Nuclear Resonant Scattering (NRS) mouned on a small bender.

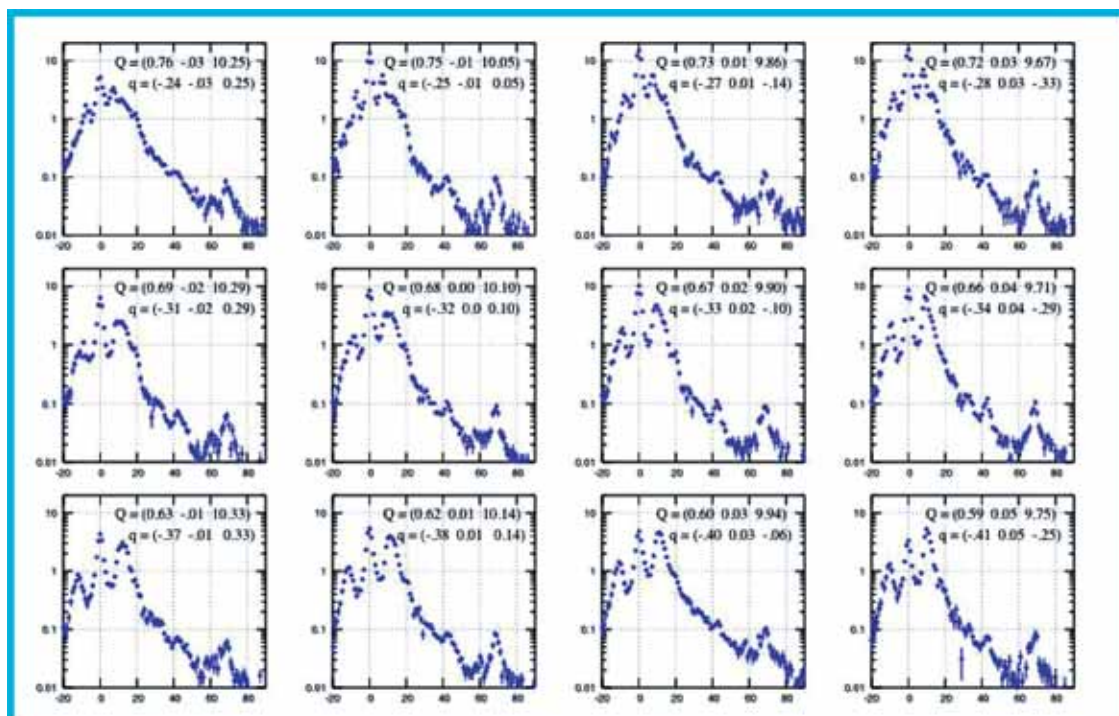


Fig.3 Results measured from YBCO at the indicated momentum transfers [2]. The horizontal axis is energy transfer in meV, the vertical axis is scaled by various factors (analyzer efficiency, x-ray polarization) but, within a factor of two or so, can be taken as counts per second - the most interesting modes in this case are the higher energy ones (near 40 and 70 meV) at about 0.1 cps. This set of data comes from about 1 day of measurement time at a fixed arm position. The 12 spectra correspond to the 12 analyzer crystals shown in Fig. 1. Note the convenient dispersion in the a^* direction in the vertical. See text for discussion.

5-4 Spectrometer Re-Alignment due to Floor Instability

During the long winter shutdown for roof repairs, the very large horizontal two-theta spectrometer arm was re-aligned by Huber/Oelze. The experimental hall floor, which includes a thick (30 cm) layer of gravel to help distribute loads, is apparently not entirely stable under large weights. Thus, with time, the granite has been shifting. Some settling after the initial installation was expected, and was found and corrected, but subsequent motion was not expected. However, beginning late in the fall of 2004 some indications of mis-alignment became clear, and by December the two-theta arm was moving poorly on its airpads. Upon detailed inspection by the manufacturer, the cause was determined to be about a 0.5 mm shift downwards of one corner of one of the granite plates (about a 3 ton plate) on the smaller, 6m, radius. This was corrected, and we are now regularly monitoring the granite alignment.

5-5 Progress toward quartz analyzers.

We was also done toward investigating quartz as a optical material for analyzers (or monochromators). This is interesting in the longer term to allow backscattering operation at more energies, or better resolution at lower energies. Quartz, having much lower symmetry than silicon, has many more back reflections, some of them rather weak, so with rather good energy resolution. Investigations showed that ~4 meV resolution was possible, and at the level of ~10 meV was even possible over macroscopic (cm size) dimensions. Given that these crystals were not so carefully selected, we are optimistic about making further progress with more careful selection.

5-6 Smaller upgrades.

In the course of the year, there were the usual collection of little upgrades to the beamline. Several analyzers were replaced after new ones with better performance were delivered from NEC. Different backscattering crystals were tested and it was found possible to operate with a more relaxed (10 degree, instead of 2.5 degree) grazing angle onto the backscattering crystal. This was the result of the optics change in FY2003. One channel of the IXS detector that had become noisy was replaced. The main beamline control computers were upgraded from the rather old 500 MHz machines with 8 GB disk space to newer 2.5 GHZ machines with more adequate storage space. Operating systems were also updated, and a new server machine installed allowing backups to be carried out more easily.

References

- [1] M. Inui, S. Hosokawa, K. Matsuda, S. Tsutsui and A.Q.R. Baron : submitted for publication.

- [2] A.Q.R. Baron, T. Fukuda, J.P Sutter, H. Uchiyama, T. Masui and S. Tajima et al : unpublished.

Alfred Q. R. BARON
Satoshi TSUTSUI
John SUTTER
Daisuke ISHIKAWA
Daigo MIWA