BL02B1 単結晶構造解析ビームライン

1. 概要

本ビームラインは、結晶構造解析と構造相転移の研究の ために建設され、現在、単結晶精密構造解析を主軸とする 物質構造と物性との相関研究が展開されている。光学ハッ チには、二結晶分光器の前後にミラー(白金コート)が設 置されており、それぞれX線ビームの平行化及び鉛直方向 の集光を行っている。また、サジタル集光結晶(第二結晶) により水平方向の集光を行っており、精密単結晶構造解析 を行うための光学系として最適化されている。実験ハッチ には、大型湾曲イメージングプレート(IP)カメラと多軸 回折計が設置されており、主に精密構造解析の実験が遂行 されている。大型湾曲IPカメラは、検出器に大面積のIP を採用しており、高い統計精度を有しているだけでなく高 エネルギーX線を用いた高分解能データを収集することが 可能である。本ビームラインは、単結晶を用いた精密構造 解析により、機能性材料の物性の起源を解明することを目 的とし、光学系、回折装置、測定・解析ソフトなどの総合 的な開発・高度化を進めている。2010年度からパワーユー ザー課題「単結晶高分解能電子密度分布解析による精密構 造物性研究 | (代表者: 澤 博教授/名古屋大学) 及び長期 利用課題「内包フラーレンの単結晶電子密度分布解析によ る分子軌道状態と分子内電荷移動の精密決定」(代表者:北 浦 良准教授/名古屋大学)の実験が行われており、今後、 これらの課題による精密構造解析研究及びビームラインの 高度化が期待される。2011年度の一般公募課題としては、 優先利用課題2課題、一般課題19課題、被災量子ビーム 施設ユーザー支援課題1課題、重点グリーン/ライフ・イ ノベーション推進課題2課題が採択され、主に電子密度分 布レベルで物性を明らかにする課題が実施された。

2. BL02B1の整備状況

2-1 クローズドサイクル冷凍機システム

本ビームラインでは、これまで既存の He/N_2 ガス吹き付け装置により試料の温度を制御してきた。しかしながら、この装置での試料部の最低到達温度は20~Kであり、分子性導体の金属—絶縁体転移など、より低温領域での現象について直接観察に基づいた構造と物性の関係を議論することはできなかった。そこで、2011年度の高度化では、20~K以下の温度領域でも単結晶X線回折実験を可能とするためにクローズドサイクル冷凍機の高度化を行った。一般的なX線回折用のクローズドサイクル冷凍機システムでは、入射及び回折X線の減衰を避けるためにベリリウムによるド

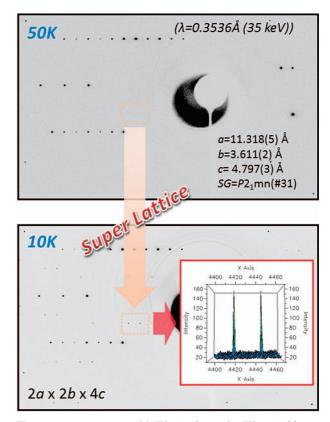


図1 α -NaV $_2$ O $_5$ の50K(上図)及び10K(下図)の回折イメージ

ーム型シュラウドを作成し使用する。しかしながら、窓材 としてベリリウムを用いたシステムでは、ベリリウムに起 因する散乱線によりバックグラウンドが上昇するため、統 計精度の良いデータを収集することは困難である。本高度 化では、ベリリウムのドームに代わってスーパーインシュ レータを円筒状に整形した内部シールドを採用した。また、 X線ビームストッパーは最外部シールドの内側に配置する ことによって、内部シールドからの散乱線を減少させるこ とができた。本冷凍機システムを大型湾曲IPカメラの一 軸ゴニオメーターに取り付けた後、試料部に設置した校正 済みセルノックス抵抗温度計により測定したところ8 K ま で冷却していることを確認した。また、図1に35 keVの X線を用いて観測したα-NaV₂O₅の10 K及び50 Kでの回 折イメージを示す。 α -NaV₂O₅は35 K付近で構造相転移を 示すが、弱い超格子反射のピークは、バックグラウンドに 埋もれることなく観測されていることがわかる。

2-2 単結晶試料のための X 線チョッパーによる時間分解 測定システム

本ビームラインでは、これまでにレーザー光や電場など がもたらす静的な励起平衡状態の結晶構造について明らか にしてきた。さらに、外場因子により生じる現象を連続的 な結晶構造の変化から解明するために、X線チョッパーを 用いた単結晶試料のための時間分解測定システムの高度化 を行った。本高度化で用いたX線チョッパーは、これまで にナノテクノロジー利用研究推進グループにより開発・整 備が進めてきたものであり、円盤上に施されたスリット溝 の幅と回転数によってX線ビームの切り出しのタイミング を制御している(図2)[1]。本高度化により、パルス放射光、 X線チョッパー、励起源を同期させ、ポンプープローブ法 による単結晶試料の時間分解X線回折データを収集するこ とが可能となった。その一例として、高電圧を付加するた めに発生させたパルス電場により、強誘電体BaTiO₃の単 結晶を用いた電場誘起歪みにより発現するイントリンジッ クな圧電応答についての直接観察を行った。この結果、単 結晶BaTiO₃の電場誘起歪みによる動的な圧電応答現象の メカニズムが明らかになった[2]。この他の外場応答実験装 置の開発・高度化などについても行っていく予定である。



図2 時間分解実験用 X 線チョッパー

3. まとめ

2011年度の主な高度化として、クローズドサイクル冷凍機システム及び単結晶試料のためのX線チョッパーによる時間分解測定システムの整備を行った。クローズドサイクル冷凍機システムでの運用が可能となったため、試料部で20 K以下の温度領域でのX線回折実験が可能となり、電気伝導性有機材料だけでなく、カゴ状物質の異常量子効果などの構造物性研究の今後の発展が期待される。また、単結晶試料のためのX線チョッパーによる時間分解測定システムの導入によりポンプープローブ法による動的な構造

解析が可能となった。現在のところ、放射光、励起源を同期させるには一定の知識が必要であるが、今後、制御・情報部門、ナノテクノロジー利用研究推進グループと連携して時間分解実験のユーザーフレンドリー化を進めて行く予定である。

参考文献

- [1] 大沢仁志 他:第24回日本放射光学会 講演番号 3B005 2011年1月.
- [2] C. Moriyoshi et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 09NE05.

利用研究促進部門

構造物性 I グループ 動的構造チーム 杉本 邦久、大隅 寛幸 ナノテクノロジー利用研究推進グループ ナノ先端計測支援チーム 安田 伸広