

BL03XU フロンティアソフトマター開発産学連合ビームライン

1. はじめに

BL03XUは、我が国初のソフトマター専用ビームラインである。日本の代表的化学・繊維企業と大学等の学術研究者で構成される19研究グループで構成された“フロンティアソフトマター開発産学連合ビームライン (FSBL)^[1]”が管理・運営している。

2. BL03XU概要

本ビームラインは光学ハッチと第一ハッチ、第二ハッチの二つの実験ハッチを有しており、二つの実験ハッチはタンデムに配置されている。SPRing-8標準型真空封止アンジュレータ及び輸送チャンネルを経由して、光学ハッチ内には、液体窒素循環冷却型のSi (111) 二結晶分光器を配し、縦・横のKirkpatrick-Baez (KB) ミラーを設置して、二次元集光を行っている。2011年度は、実験システム整備を行うとともに高精度に安定した散乱測定の実現を目的として光学系機器の整備を行った。具体的には、光学ハッチ内光学機器の振動と温度変動の対策に取り組み、ミリ秒から数時間周期のX線強度及び位置変動を低減させた。これによりユーザー実験の最中にX線位置・強度が大きく変動することなく、微小角斜入射、マイクロビーム、極小角散乱実験や時間分割測定の安定した実験が可能となった。

3. 第一ハッチ^[2]

3-1 第一ハッチ概要

BL03XUには試料水平配置型薄膜回折計を用いて、入射X線を臨界角近傍で試料表面に入射するGISAXS、GIWAXS測定、それらの同時測定、さらにXR、GIXD測定が可能な計測システムが装備されている。図1には、試料-検出器

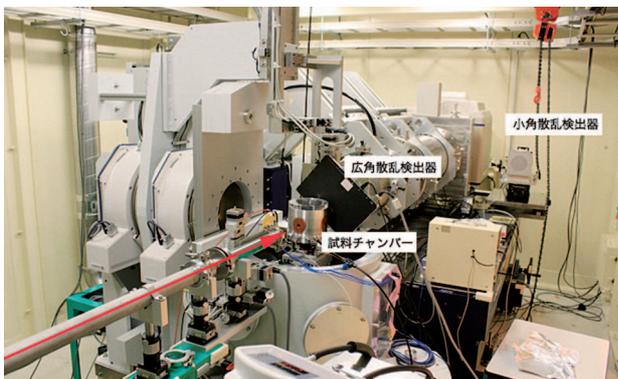


図1 カメラ距離2 mのGISAXS、50 cmのGIWAXS同時測定時のレイアウト。

距離(カメラ距離)が2 mのGISAXSと50 cmのGIWAXS同時測定のレイアウトを示す。薄膜回折計と組み合わせてGISAXS測定を行うための真空パス架台は、2本の真空パイプ、ビームストップ調整機構チャンバ、検出器自動切り替え機構を有し、カメラ距離は1 m及び2 mの実験が可能である。GISAXS測定用には、イメージングプレートX線検出器R-AXIS IV++とImage intensifier+CCD (II +CCD)、GIWAXS測定用には、Flat Panel Detector (FPD) が用意されている。また、真空パイプを薄膜回折計の真空チャンバと連結させることで、試料部から検出器直前までを同一真空下にすることも可能となり、窓材や空気散乱などの影響の少ないGISAXS測定を実現している。

3-2 GIWAXS測定システムの構築

これまで、広角散乱測定 (GIWAXS) において、試料直下に Flat Panel Detector (FPD) を設置して測定をしていたが、In plane、Out of planeともに測定角度範囲が限られていた。そこで、2011年度はイメージングプレート検出器が回折計直下にまで移動できるような整備を行った。また、このセットアップ下においても、試料の半割調整などを迅速・簡便に行うために、ソーラースリットとフォトダイオードを用いた調整機構を構築した。その結果、In plane、Out of planeがそれぞれ $2\theta = 20^\circ$ まで測定可能なGIWAXSシステムを構築した。

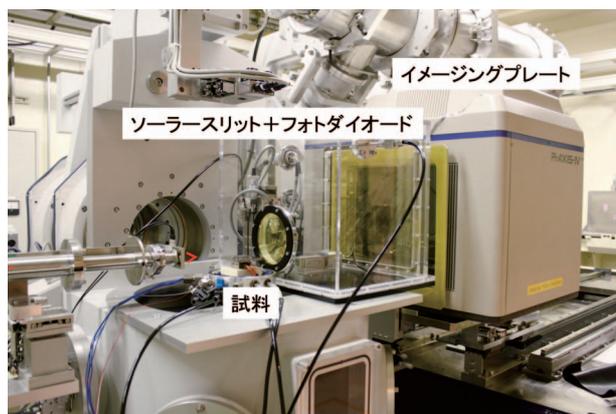


図2 カメラ距離50 cmのGIWAXS測定レイアウト。

4. 第二ハッチ

第二ハッチでは、0.25 m～4 mのカメラ距離(試料と検出器間距離)変更を小角X線散乱用真空パイプの自動昇降架台を用いて行っている。カメラ距離変更が容易に可能な

ため、広域スケールの構造評価がユーザー自身によって可能となっている。また、 $3\text{ m} \times 3\text{ m} \times 4\text{ m}$ の広いスペースを有していることが特徴的であり、ユーザー持ち込みの大型装置による温度変化・力学変形下での*in-situ*広角及び小角X線散乱測定の実施が可能である。2011年度は、高精度マイクロビーム測定のためのX線強度変動の低減化、ハイスループット化のための試料オートチェンジャの開発、*in-situ*測定システム実空間観測装置の整備を行った。下記に整備内容についての報告を行う。

4-1 X線強度変動の低減化

第二ハッチでは、数 μm の空間的局所領域における \AA ～数100 nmの階層構造評価を行うために、直径15 μm のピンホールによって整形したマイクロビームを用いた広角/小角X線散乱測定装置が利用されている。しかしながら、ピンホールにより切り出されたX線強度が数分ごとに1/10になるほど大きく変動し、精密な構造評価を行うには十分に満足が得られるものではなかった。そこで、入射X線強度変動の原因を明らかにするために、整形しない入射X線強度の時間変化の検討を行った。図3に第一実験ハッチ最上流のイオンチャンバにより計測したX線強度の時間変化を示す。約8.5分と45分ごとの周期的な強度変動とドリフトが観測された。X線強度の周期的変動は二結晶分光器における熱不安定性及び振動に起因することが大きいことが経験的に知られており、JASRI光源・光学系部門のサポートを受けながら、X線強度の安定化対策を行った。対策として、分光器第二結晶クレイドルのコンプトンシールドの冷却に用いていた冷却水をチラーから施設冷却水に変更（8.5分の周期的な強度変動の原因解消）、二結晶分光器への液体窒素用二重配管真空部分を定期的に真空引き

(ドリフトの原因解消)、光学ハッチ換気ファンを停止することにより光学ハッチ内温度の安定化（ドリフトの原因解消）、スクロールポンプに由来する機器振動の低減化を行った。図3に上記の安定化対策実施及び実験ハッチ内エアコンを停止した条件でのX線強度の時間変化を示す。安定化対策前に観測された周期的な強度変動及びドリフトは観測されず、強度ゆらぎが標準偏差0.18%の非常に安定したX線が得られた。このX線強度安定化対策によってマイクロビーム利用のみならず、すべての測定において長時間の安定した測定が可能となった。

4-2 マイクロビームの高度化

2010年度に構築した直径15 μm のピンホールを用いたマイクロビームSAXS/WAXS測定システムでは、入射X線強度安定化対策の前には数十分ごとに強度が1/10になるほど大きく変動しており、その変動がより顕著になるX線サイズの縮小化は困難であった。安定化対策後にはその変動は小さくなったため、直径15 μm の成形ピンホールから直径9 μm の成形ピンホールに切り替え、X線サイズ縮小化の検討を行った。試料から180 mm上流に直径9 μm のピンホールを配置し光を整形し、そこから150 mm下流に直径200 μm のガードピンホールを配置し寄生散乱を除去した。結果として、 3×10^{10} photons/sのフラックスを有する7 $\mu\text{m} \times 4\text{ }\mu\text{m}$ (FWHM)のマイクロビームが得られ、X線サイズの縮小とフラックスの向上が達成された。図4、図5にそれぞれワイヤースキャン法で計測した光のサイズ及びピンホールにより整形されたX線強度の時間変化を示す。安定化対策前には強度が1/10になるほど大きく変動したX線は標準偏差3.3%程度のゆらぎになり、安定したマイクロビームX線の利用が可能となった。

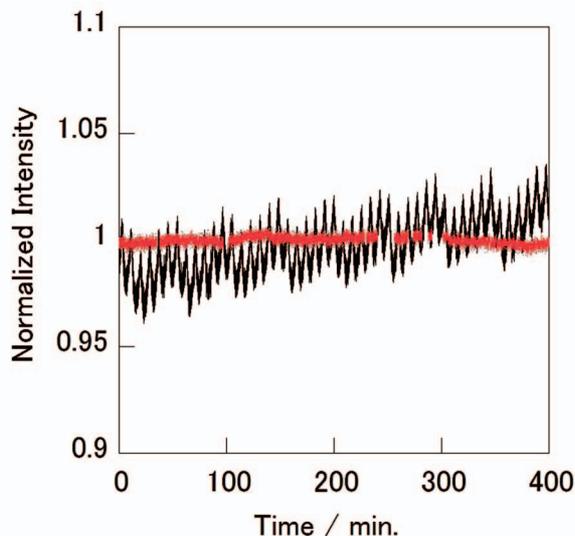


図3 イオンチャンバで測定した規格化X線強度の時間変化。黒線が安定化対策前で赤線が安定化対策後のデータである。

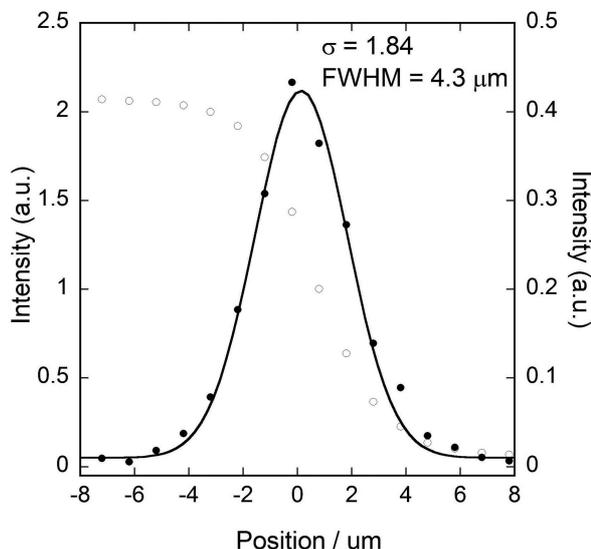


図4 Auワイヤーで計測したX線の縦方向プロファイル。

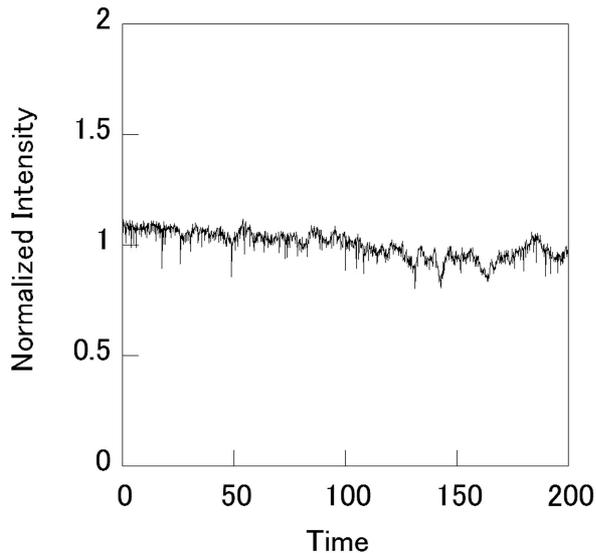


図5 μ イオンチャンバで測定した規格化X線強度の時間変化。

4-3 試料オートチェンジャの開発

材料評価のためには、成形プロセス過程を評価するその場測定に併せて、異なる調製条件の材料のスクリーニング測定もまた重要である。BL03XUにおいて散乱測定に必要なX線照射時間はミリ秒から秒のオーダーであるため、Staticな測定においては試料交換に伴うハッチ開閉が測定時間の律速となる。そこで、X線散乱測定の高スループット化を目指して、ユーザーの持ち込む試料周り装置と試料オートチェンジャの両方が使用可能なシステムを開発した。この31個の試料を連続的に測定可能なオートチェンジャシステムを使用することで、イメージ・インテンシファイア(II)+CCD及びFlat Panel Detector (FPD)を用いた場合には、30個の試料測定を行うのに所要時間が90分以上で必要であったものが、10分程度に大幅に縮小でき、小角/広角X線散乱測定の高スループット化を達成した。

参考文献

- [1] K. Sakurai and H. Masunaga, et al: Polymer Journal, **43** (2011) 471-477.
- [2] H. Ogawa and A. Takahara, et al: Polymer Journal, in press.

フロンティアソフトマター開発専用ビームライン産学連合体
 代 表 竹田 敏郎
 運営委員長 高原 淳