

BL10XU 高圧構造物性

1. 概要

BL10XUでは放射光X線の持つ高輝度・高強度・高分解能な特性を利用して、X線回折法による超高压力下での精密結晶構造解析が行われている。ここでの主な供用研究分野は、高圧発生装置ダイヤモンドアンビルセル (DAC) を用いた高圧構造物性科学・材料科学と地球惑星科学である。単体元素から新奇化合物に至る多様で幅広い物質の高圧・低温条件下で発現する複雑な構造相転移やそれら結晶構造と振動状態・電子物性相関に関する研究、および地球深部に相当する高圧・高温条件下におけるマントル・核物質の構造状態・相関係・密度変化に関する研究が行われる。2012年度においては、半期毎の15～20件の一般課題に加えて、長期利用課題や戦略的課題が採択・実施された。

超高压や極低温、超高温の極限環境発生技術は日々進歩しており、それらと随伴して測定領域の拡大と構造物性上の新発見がもたらされている。同時に新奇物質に対する高圧実験に関する質・量への潜在的な要求も存在している。それらに対応するため、BL10XUでは高圧装置および測定技術の開発とビームライン高度化が継続的に実施されている。DAC内で発生される超高压環境下の試料は非常に小さく、さらにDACが有する観察角度の制限とダイヤモンド窓材によるX線吸収のため、高エネルギーX線領域(14～60 keV)における高強度なマイクロビーム生成とその利活用が要求されている。数百GPaに至る超高压発生や静水圧性、印加圧力の遠隔操作等の高圧力発生技術に加え、高圧力下で極低温から数千度の高温状態を発生させる多重極限環境制御技術や、X線回折測定を共通基盤としたブリルアン散乱 / ラマン散乱 / 電気抵抗複合同時測定システムといった実験装置・技術の高度化にも取り組んでいる。さらに、高圧実験の高精度・高信頼性・高効率性の確保およびユーザーフレンドリーなシステム構築のため、自動制御・計測技術の改良も重要な開発要素となっている。2012年度においては、1) サブミクロンX線集光光学系の改造、2) DAC用自動圧力制御機構の導入、3) 高圧X線回折・メスバウアー分光複合同時測定装置の開発・高度化が行われた。次項で詳細を記す。

2. サブミクロンX線集光光学系の改造

BL10XUでは、集光デバイスとして複合X線屈折レンズ (CRL) を導入している。CRL X線エネルギー可変に対応できることやインライン光学配置での利用ができるなどの特徴があり、高圧実験においてミラー等の他の集光素

子にない優位性を有する。

しかしながら、放射光X線光源が原理的に点光源でなく、特に水平軸でのビームサイズが大きく広がっていることや、BL10XUに設置されるダイヤモンド分光結晶の不完全性及び熱負荷によってビーム形状の乱れや異常な発散が生じることから、レンズやミラー等の光学素子単体で理想的に集光することは困難である。この問題を解決するため、放射光X線ビームを一段目CRLで集光し、焦点位置にピンホールを置いて不要な散乱X線を除去した高強度な仮想的均質発散光源を形成した後、下流でその発散ビームを二段目CRLで再集光する光学系を考案し、2010年度以降、その装置技術開発を続けてきた。2012年度において、一段目CRLとピンホールを光学レール上で一体化し、同CRLとピンホール間距離を約3倍に拡張する光学架台を製作・導入した(図1)。

この改造により、設計値として強度が約9倍増加し、X線ビームサイズとして、試料位置で等方的に約2 μm が計測された。また、光学調整における安定性と操作性が向上した。今後、設計最小値である ϕ 0.9 μm の実現に向けて、

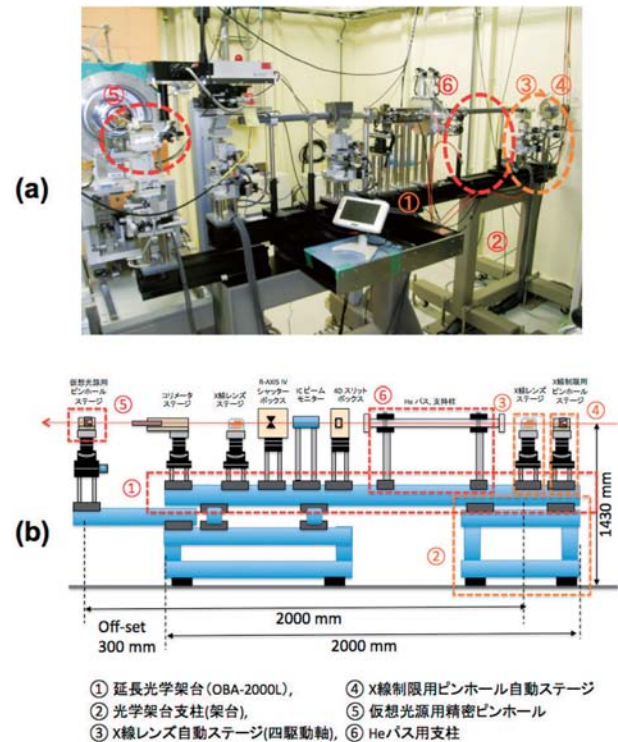


図1 新しく導入された仮想光源光学系、実験ハッチ内写真(a)と構成図(b)。

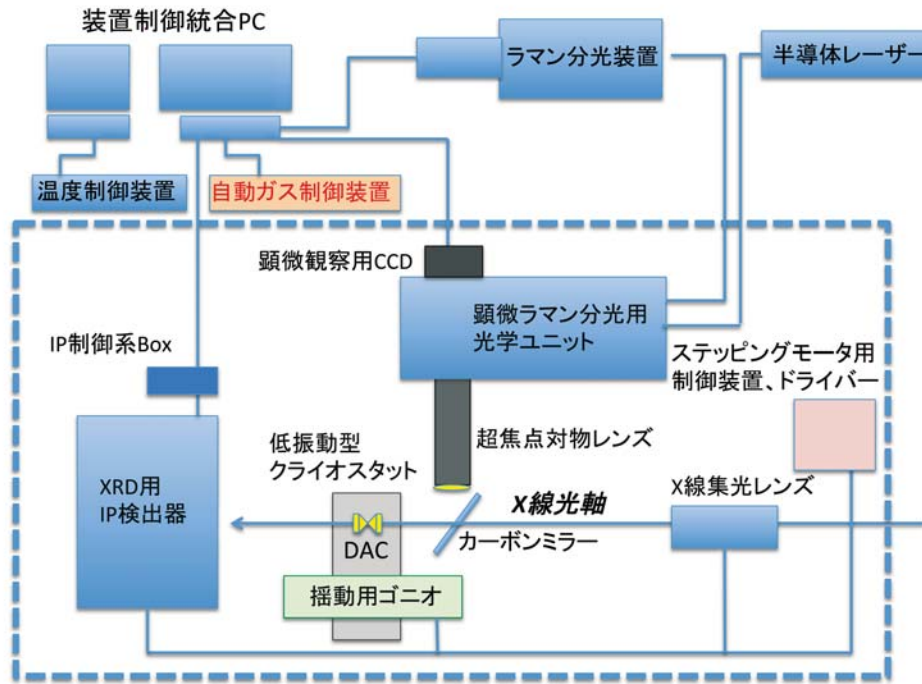


図2 低温高圧X線回折・ラマン散乱同時測定実験システム構成の概念図。

ピンホール形状・サイズや各レンズ焦点距離を最適化していく予定である。なお、本高度化は、パワーユーザーである東京工業大学廣瀬敬教授らのグループの科研費特別推進研究分担金を一部投入し、JASRIとの共同で実施された。

3. DAC用圧力自動制御装置の導入

2012年度において、高圧X線回折実験用メンブレン式ガス駆動型DAC圧力制御システムに対して、自動バルブ開閉機構付き圧力制御装置を導入した。また、PCによる外部制御ソフトウェアの作成・導入による自動化を進めた。従来の手動操作からデジタル制御への高度化により、圧力の精密制御および高速制御が可能となり、高圧装置利用の簡素化・効率化を実現した。同時にユーザー利用の際の作業安全性向上を確立することができた。また、本自動制御装置を低温高圧X線回折・ラマン散乱同時測定装置に組み込むことによって統合的システムを構築し（図2）、同実験でのハイスループット化を行った。

4. 高圧X線回折・エネルギー分散型X線同時測定装置の開発・高度化

高圧下における放射光メスbauer吸収分光とX線回折の複合同時測定実現のため、継続的に装置開発および技術開発を東北大学大谷栄治教授らのグループと共同で進めている。2012年度は、メスbauer分光法における不可欠な要素技術である核モノクロメータからの超単色X線を生成する技術を確立し、メスbauer吸収スペクトルの取得が可能となった。さらに、高エネルギー単色X線28 keV

を利用したX線回折法との複合同時測定の実証試験を開始した。2013年度からは利用研究に供する予定である。本装置を用いて、地球内部条件での鉄含有鉱物の結晶構造・弾性特性と酸化・スピン状態の相関研究や、最近の鉄系超伝導物質に対する研究の推進に大きく貢献することが期待される。

利用研究促進部門

構造物性 I グループ 極限構造チーム

大石 泰生、平尾 直久