

## BL10XU 高圧構造物性

### 1. 概要

高圧構造物性ステーションBL10XUは、短周期型アンジュレータ光源からの高輝度・高エネルギーX線を利用して、高圧発生装置ダイヤモンドアンビルセル（DAC）を用いたその場X線回折による超高圧力下での精密結晶構造解析が行われている。高圧構造物性科学・材料科学と地球惑星科学が主な対象研究分野であり、単体元素や化合物など多様な物質において高圧・低温条件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・電子物性に関する研究、新物質合成の研究、および高圧・高温条件における地球・惑星深部物質の構造状態・相関係・密度変化に関する研究が行われている。2013年度においては、半期毎15～20件の一般課題と、長期利用課題や戦略的課題が実施された。

BL10XUにおいて、超高圧に加えて高温・極低温等の極限環境発生技術は日々進歩しており、それらと随伴して観測領域の拡大と構造物性上の新発見がもたらされている。超高圧状態の試料は $10^{-10}$  cc程度の極微小体積であり、高品質なX線回折データを取得するためには大強度で集光されたX線照射が不可欠である。2013年度においては、1) 高品位で大強度のX線入射を目指した液体窒素冷却モノクロメータの導入、2) X線集光技術の継続的な開発と高度化が実施された。また、X線回折法による高圧下での結晶構造情報だけでなく、同時に振動状態や電子物性のその場物性測定によって、高圧構造物性研究として精度と完結性を高めて成果創出へと導くために、多重極限・X線

回折複合同時測定技術の開発・高度化に取り組んでいる。2013年度においては、3) 高圧X線回折・メスバウアー分光同時測定装置の高度化が進展した。次項で上記3点の高度化について詳細を記す。

### 2. 液体窒素冷却モノクロメータの導入

高輝度・高エネルギーおよび安定したX線を得るために、2013年度夏期点検調整期間を利用して、従来の人工合成ダイヤモンド二結晶分光器（DCM）から、液体窒素循環冷却システムを用いたシリコン単結晶式DCMへの交換が行われた（図1(A)）。本分光器には、分光結晶として回折面の異なるSi(111)結晶とSi(220)結晶を並列して配置されており、放射光の光軸と垂直方向に一軸並進走査で切り替え可能となっている（図1(B)）。これにより、利用可能なエネルギー範囲が61.7 keVまで拡大され、分光素子サイズの小さいダイヤモンド結晶では困難であった定位置射出が広範囲のエネルギー領域で可能になった。シリコン分光結晶からの反射強度はダイヤモンドに比べて約3倍強く、ダイヤモンド分光結晶の不完全性および熱負荷に起因するビーム形状の乱れや異常な発散が解決された結果、実験ハッチの試料位置へ導かれるX線強度は、改造以前に比べておよそ一桁大きくなった。なお、本高度化は、パートナーユーザーである東京工業大学廣瀬敬教授の科研費特別推進研究分担金を投入し、JASRI利用研究促進部門および光源・光学系部門との共同で実施された。

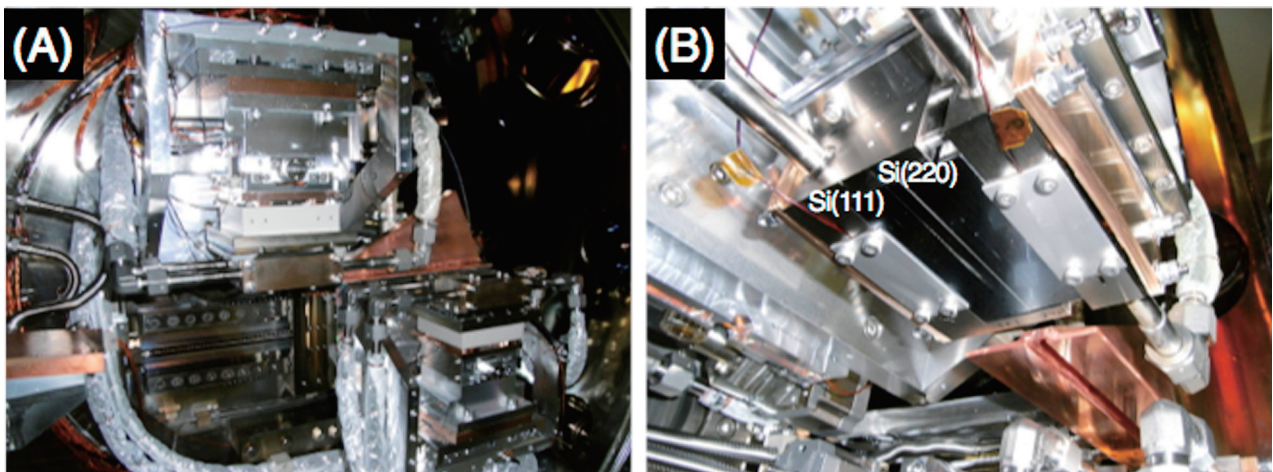


図1 (A) 真空チャンバ内に設置された液体窒素冷却用二結晶分光器、(B) 並列に配置されたSi(111)結晶とSi(220)結晶。

### 3. ナノ（ミクロン）X線集光技術の高度化

BL10XUで使用される多段式X線屈折レンズ（XCRL）は、20～60 keVの高エネルギーX線領域での集光ビーム光学系設計の容易さ・柔軟性の高さ、高いX線透過率、インライン光学配置利用が可能のため、高温発生用レーザー加熱光学系など複雑で精密な装置と組み合わされる高圧X線回折用入射光学系に、CRLを導入することは他の集光素子に対して大きな優位性を持つ。しかしながら、放射光X線光源が水平軸に大きく広がっているため、XCRL単体で理想的に集光ビームを得ることは困難である。この問題を解決するため、X線ビームを一旦XCRLで集光し、ピンホールを通過させて不要な散乱X線を除去した後、その下流に設置された二段目XCRLによって再集光する形式の光学系を考案した。2010年度以降、技術開発を続けた結果、30 keVのX線エネルギーで水平および垂直方向に2 μm程度まで均等に集光されたマイクロビームを生成することに成功した。さらに液体窒素冷却モノクロメータ導入によるX線ビームの質の向上が集光光学系へ高効果を与え、マイクロビーム強度は約20倍の強度増加が確認された。また、高温高圧下での融体のX線回折測定の利用のため、高い散乱バクトルまで測定可能な、30 keVより高いX線エネルギー領域でのマイクロビーム形成試験が開始された。

### 4. 高圧X線回折・<sup>57</sup>Feメスbauer分光複合同時測定システムの高度化

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、2013年度は、X線回折法との複合同時測定システムとしての手法確立に向けた高度化が実施され、X線回折とメスbauer分光の複合同時測定が開始された。またDCM改造に伴い、高強度・高安定・高品質な高エネルギーX線が供給可能となったため、高分解能X線強度が一桁近く大きくなった。その結果、メスbauer分光測定時間が大幅に短縮され、数時間でデータ取得が可能となった。今後、X線集光光学系を導入する計画であり、集光ビームを利用することにより、分光測定時間がさらに短縮されることが期待される。本高度化は、東北大学大谷栄治教授らのグループと、共同で継続的に装置・技術開発を進めている。

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