

BL09XU 核共鳴散乱

1. はじめに

核共鳴散乱ビームラインBL09XUは周期長32 mmのSPring-8標準アンジュレータを有する硬X線ビームラインである^[1]。ビームラインモノクロメータには液体窒素冷却シリコン結晶が使用されている。ビームラインでは高エネルギー分解能光学系と時間分解測定を組み合わせた核共鳴散乱とKirkpatrick-Baez (KB) ミラーを用いた高強度・高エネルギー分解能の硬X線光電子分光 (Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy: HAXPES) を利用した研究が行われている。

2016年度は、フロントエンドスリット開口制限の変更に伴う高輝度化やHAXPES用のKBミラーの核共鳴散乱への利用という既設のビームライン基盤機器を利用した整備・高度化に加えて、核共鳴散乱、および、HAXPESそれぞれの実験ステーションにおける整備・高度化を行った。

2. ビームライン共通機器及びビームライン共通機器化した既設機器

フロントエンドスリット開口制限の変更

従来の制限が1.0 mm (縦) ×1.0 mm (横) であったフロントエンドスリットの開口制限をビームプロファイルに合わせたものとするため、0.65 mm (縦) ×1.5 mm (横) に変更した。2016A期のユーザー運転開始前の放射線漏洩検査を経て、ユーザー運転に供することとした。各種実験における光学系の熱負荷による制限があるため、実際に利用するスリットの開口上限は制限値と一致しない。例えば、Gap19.8 mmで利用している⁵⁷Fe核の励起エネルギーである14.4 keVでは縦方向を現行の0.6 mmとしたまま、横方向の開口を1.0 mmから1.5 mmに広げることにより、約20%のフラックスの増加が得られた。

HAXPES用KBミラーの核共鳴散乱への利用

2014年度に導入されたKBミラーは10 keV以下のX線を用いるHAXPES用として設計された。設計上のエネルギーを超える⁵⁷Fe核の共鳴エネルギーである14.4 keVにおいても、計算上約50%の反射率が確保できるため、⁵⁷Fe核共鳴散乱の実験にも設計上利用可能である。

しかしながら、KBミラーの上下方向の調整可動域が狭いため、ビーム高さをKBミラーの高さに合わせる必要があるとなる。Si111二回反射の光軸調整光学系の導

入によってKBミラーを利用可能となり、高圧下や薄膜試料の放射光メスbauer分光や核共鳴非弾性散乱の実験が可能となった。光軸調整光学系導入後、⁵⁷Fe核共鳴線におけるKBミラーによる反射率はほぼ設計値に近い約44%が確保され、半値幅 (縦) 4.2 μm × (横) 10.2 μm、試料への入射強度が 2.6×10^9 cpsの集光X線を供することが確認された。このことによって、KBミラーを用いた集光X線による⁵⁷Fe核共鳴散乱のユーザー実験が可能となった。

3. 核共鳴散乱

核共鳴散乱では、放射光を励起光としたメスbauer効果測定が行われており、原子ダイナミクスのための非弾性散乱や電子や原子核の状態を観測する前方散乱や放射光メスbauer分光が行われている。前者は原子を特定したフォノン状態密度を観測できる手段として、同様にフォノンを観測する中性子非弾性散乱や高分解能X線非弾性散乱と一線を画す実験手法である。後者は放射線源を用いた実験が困難な高圧下実験や共鳴回折実験に加え、適当な親核を持たない核種の実験に利用されている。

2016年度の核共鳴散乱実験ステーションの整備・高度化として平行化レンズによる核共鳴に関わる入射強度の増大や低温下核共鳴非弾性散乱実験の無冷媒化を行った。

平行化レンズによる核共鳴に関わる入射強度の増大

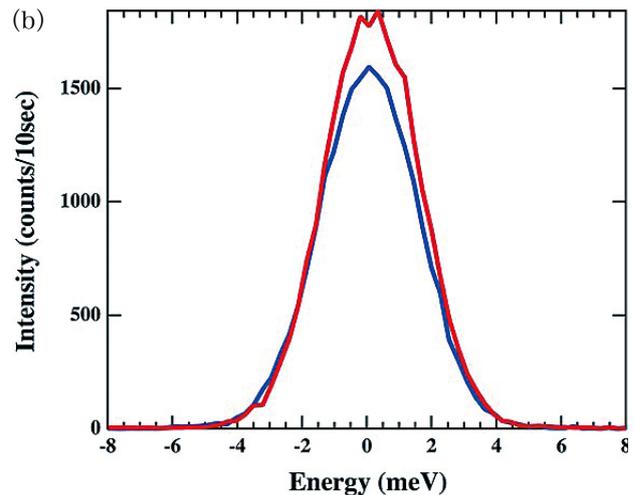
X線のビーム発散は試料位置でのビームサイズや高分解能モノクロメータのエネルギー分解能や透過率に影響を与える。BL09XUの光学系では、X線の縦方向の発散角を抑えることで、高分解能モノクロメータの分解能と試料位置での入射ビーム強度やビームサイズを向上することが可能となる。図1(a)に示す平行化レンズをビームラインモノクロメータの後方、高分解能モノクロメータの前に導入した。その結果、⁵⁷Fe用3.5 meV高分解能モノクロメータ使用時に15% (図1(b))、⁵⁷Fe用0.8 meV高分解能モノクロメータ使用時に10%の核共鳴信号強度の向上を実現した。

低温下核共鳴非弾性散乱の無冷媒化

希少資源であるヘリウムの使用量を削減するため、低温での核共鳴散乱実験においてヘリウム循環型パルス冷凍機を用いた無冷媒化を進めている。核



図1 (a)ユーザー実験用に導入した平行化レンズの写真



(b) 平行化レンズによる核共鳴散乱信号強度の変化。平行化レンズ入れた場合（赤色）と入れない場合（青色）。

共鳴非弾性散乱では微小な共鳴信号を効率的に検出するために立体角を確保することが必須である。図2に示すような冷凍機カバーを備えて試料ホルダー位置で最低到達温度6 Kを実現し、試料位置決めを容易にするための検出器用手動ステージを整備した。これらの整備によって、無冷媒での低温下核共鳴非弾性散乱実験が可能になった。

参考文献

- [1] Y. Yoda et al.: *Nucl. Instrum. Methods A*, **715** (2001) 467-468.



図2 冷凍機使用時の非弾性散乱実験配置。

4. 硬X線光電子分光 (HAXPES)

BL09XU のHAXPES は、2014年度後期からユーザー実験に供されている。BL47XUと比較して、30倍程度の光電子検出増大と100 meV程度と非常に高いエネルギー分解能を達成している。試料上での集光サイズ(3.0 μm (縦) \times 6.3 μm (横))@8 keV

と高いフラックスを活かし、ダイヤモンド移相子による光電子磁気円二色性、線二色性計測と、共鳴HAXPES 計測を推進している。本稿では、特に共鳴HAXPES 計測技術開発を報告する。

2016年度のHAXPES 実験ステーションの整備・高度化として、現在整備を進めている共鳴HAXPES 計測系のうち、連続エネルギー掃引を可能にするための高エネルギー分解能チャンネルカット機構、および、蛍光X線吸収測定 (XAS) との同時計測を可能とするためのシリコンドリフト検出器 (SSD) の導入を行った。

高エネルギー分解能チャンネルカット機構

HAXPES 計測は、これまで、6、8、10 keVといった固定入射エネルギーに限られていた。これは、従来のSi 111チャンネルカット結晶を用いた高単色化において光軸の高さ変動が大きいと、光電子アナライザーのレンズ軸を逸れて検出が著しく減少することが最大の要因であった。しかしながら、近年、強相関電子系物質の物性起源の解明、例えば、価数揺動機構解明に対して、軟X線領域で既に盛んに行われている共鳴計測の有用性が理解され、その計測系の整備が切望されていた。これまで、高エネルギー分解能化のために、ギャップ幅が41 mmのチャンネルカットを用いてきた。しかしながら、共鳴HAXPES 計測では、入射光エネルギー掃引時に光軸高さが大きく変位することが問題となる。この光軸の変位は、ギャップ幅に比例することから、ギャップ幅5 mmのものを新たに導入し、光軸変位の抑制を図った。また、細かい入射光エネルギーステップでの測定に対応するために、また、エネルギー再現性を高めるために、高分解能モノクロメ

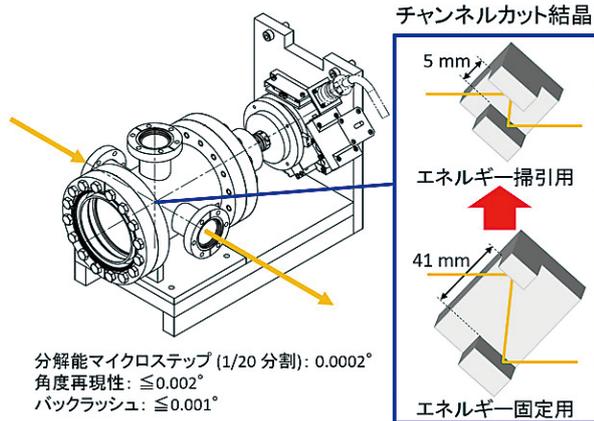


図3 高エネルギー分解能チャンネルカット機構の概要

ータ回転ステージを導入した（図3）。本機構の導入により、後置のKBミラーでの高さ補正や装置架台高さ自動追尾制御等、特別な制御を施すことなく、10 keV以下の特定元素吸収端周りの約100 eVの範囲での共鳴HAXPES計測が可能になった。

シリコンドリフト検出器（SDD検出器）

RAYSPEC社の単素子SDDを導入した。これにより、共鳴HAXPES計測とSDD検出器を用いた蛍光X線吸収測定(XAS)、さらに、全電子収量法(TEY)によるXASの複合計測により、異なる検出深さにおける同時電子状態分析が可能になった。それぞれの計測手法の典型的検出深さは、HAXPES計測：数十 nm、蛍光XAS：数 μm、TEY-XAS：数百 nmである。その適用例は、応用面では異なる深さにおける同時XAS計測が挙げられる。一方、電子とX線の異なるプローブを同時に調査できることから、基礎物理ではX線励起状態からの脱励起過程の解明に繋がる。

利用研究促進部門
 構造物性IIグループ
 依田 芳卓・筒井 智嗣

利用研究促進部門
 応用分光物性グループ
 保井 晃・池永 英司