

BL15XU 広エネルギー帯域先端材料解析

1. 概要

本ビームラインは国立研究開発法人物質・材料研究機構 (NIMS) の専用ビームラインであり、機構における新規機能性物質・材料の開発を支援するため、1) 硬X線光電子分光法による 20 nm にも及ぶ深層の電子構造解析、2) 半導体1次元X線検出器を使った高分解能X線粉末構造解析、3) 8軸X線回折装置を利用した機能性薄膜の構造解析により、高輝度放射光を用いた原子構造並びに電子構造の解析を通じた研究開発を推進している。2016年度も滞りなくSPring-8を利用した研究開発を進め、関連する研究課題の共同研究を推進してきた。ビームタイムの利用および実験装置の整備の一環として、2015年に引き続きナノ粒子、アモルファス材料の短・中距離構造解析が行えるX線全散乱測定によるX線PDF (Pair Distribution Function、2体相関分布関数) 解析基盤の整備を行った。

2. ビームタイムの利用状況

2016年度の採択課題数は64件であった。実施課題数は、NIMS内部が27件、NIMS外部が共同研究を含めて37件となり、2015年度に比べるとNIMS外部からの課題が28件から37件と増加した。利用シフト数をプロジェクト別に集計すると、a) NIMS一般課題 (33%)、b) 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム (31%)、c) 東京工業大学元素戦略 (19%)、d) ナノ材料科学環境拠点 (11%)、e) 共同研究 (6%) であり、元素戦略に関連した電子材料を始め、触媒・電池材料、磁性材料、構造材料など出口指向が明確な材料を対象とした課題を実施した。

主たる実験手法はX線回折法(XRD)とX線光電子分光法(XPS)である。XPSの割合は54.3%、薄膜X線回折が25.3%、粉末X線回折法15.8%、残りがX線全散乱法4.6%であった。硬X線光電子分光法とX線全散乱法を含むX線回折法の割合は、2015年度とほぼ同じ割合であった。

実施シフト数を研究の目的や材料別に分類したものが図1である。分野別内訳については2015年度と比べて大きな変化は見られなかった。

なおビームタイムには課題を実施したシフト以外に、XPSとXRDの切り替え時などの調整に要した時間が127.5シフトあり、調整には全ビームタイムの約25%を

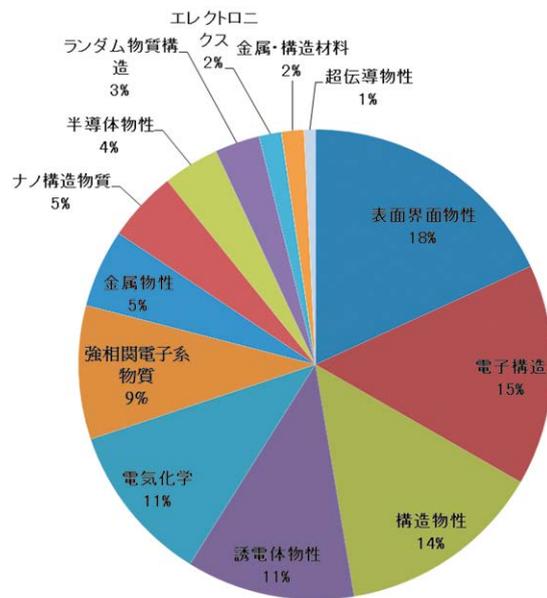


図1 実施内容によるシフト数の割合

利用しているが、その内訳は装置や実験ハッチの切り替えだけでなく、ユーザーの要望する実験装置の調整にも使われた。

2016年度に発行された研究成果は、39報の査読有り論文であった。

3. ビームラインの整備

BL15XUでは高分解能粉末回折計を設置して結晶性の試料の構造解析に活用してきた。しかし近年の物質・材料研究の進展の中で、従来の粉末結晶構造解析では解析が困難な結晶性の低いナノ粒子やアモルファス材料といった物質の原子・ナノスケールの構造解析の需要が増大してきている。このような近年のナノ粒子・アモルファス材料のニーズに対応していくため、2015年からブラッグピークの有無に依存しないX線PDF解析用のX線全散乱測定データ収集の整備を始めた。BL15XUの粉末回折計では機械的な制約から2θ範囲の上限が120°であるため、原子分解能のX線PDF解析において必要な高い散乱ベクトルQ値のデータを得るためには、30 keVといった高エネルギーX線を利用する必要がある。ところがこれまでBL15XUで粉末X線回折実験用に使用していたシリコン半導体検出器Mythen (センサー厚450 μm)では十分な検出効率を得られない。このため、2015年度に高

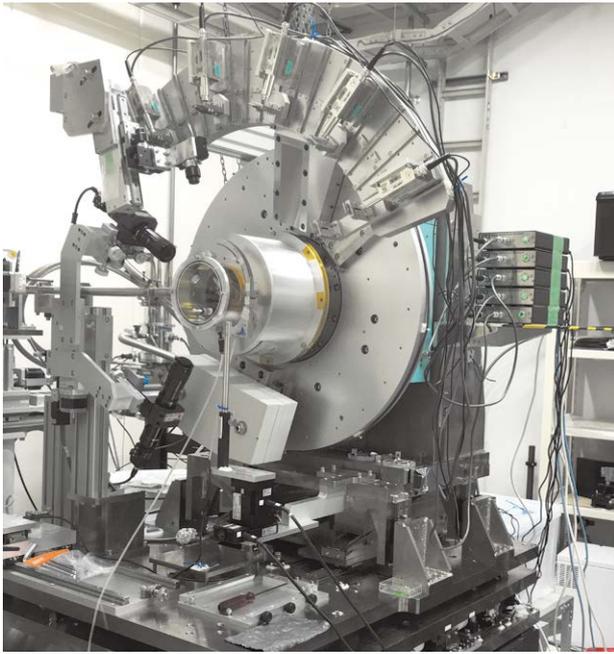


図2 5連装CdTe検出器セットアップ

エネルギー領域で十分な感度を持つCdTe検出器1台を試験的に粉末回折計に搭載してテストを行ったところ、十分なS/Nで広い角度範囲をカバーできることが分かった。この結果に基づき、またX線全散乱測定データ収集のハイスループット化も考慮してCdTe半導体検出器5台を回折計2θアームに搭載した測定システムを構築した(図2)。2016年度はデータ収集のための制御ソフトウェアの開発などシステム整備を進めた。

CdTe 検出器にはAmptek 社製XR-100T-CdTeとマルチチャンネルアナライザ(MCA)機能を内蔵したデジタルパルスプロセッサ(Amptek 社製PX5)との組み合わせを採用した。2θアーム上に24°または18°間隔で取り付けられた5台のCdTe 検出器は、それぞれ個別のデジタルパルスプロセッサで信号処理が行われる。

CdTe 検出器のエネルギー選別能力を活かしてデータを取得するためには、シングルチャンネルアナライザ(SCA)のエネルギーウィンドウを適切に設定するか、あるいはMCAの出力スペクトルを取得しての散乱X線のエネルギー範囲を切り出す必要がある。PX5デジタルプロセッサに付属のユーザーインターフェースは、ネットワーク経由で各種設定が可能な機能が提供されているものの、MCAの表示画面とSCAの設定機能が連動しておらず、エネルギースペクトルを見ながらSCAの設定を行うことができないなど操作が煩雑で入射エネルギーの変更にCdTe 検出器系を対応させることが容易ではなかった。そこでグラフィカルソフトウェア開発言語LabVIEWを用いてMCA機能とSCA機能の連動を可能にした新た

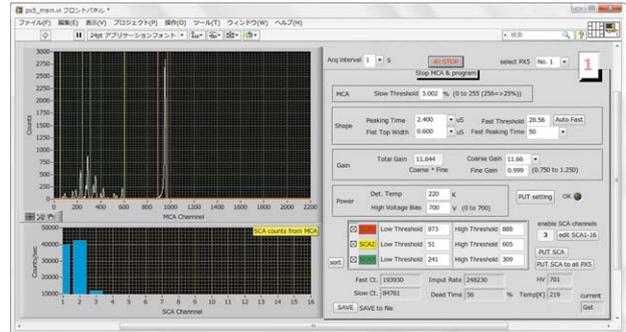


図3 デジタルパルスプロセッサ設定用GUI

なPX5パルスプロセッサ設定用のグラフィカルユーザーインターフェース(GUI)を作成した(図3)。開発したPX5設定用のユーザーインターフェースからは、ネットワーク経由でPX5の各種の設定が可能であるとともに、MCAスペクトル表示画面から、最大16領域のSCAのウィンドウの設定が可能である。

また、これまで粉末X線回折計に利用していた制御ソフトウェアは、キャピラリー試料を交換しながら粉末回折強度データを連続的に自動データ収集するシステムとして構築された物であったため、試料回りの空気からの散乱を低減するためのHeチャンバーの装着を前提していないなどX線全散乱実験に適したものではなかった。そこで新たに全散乱測定専用の制御ソフトウェアを作成した。新たなソフトウェアの開発は、デジタルパルスプロセッサPX5制御用ソフトウェアと同様にLabVIEWを用いた。

微弱なアモルファスからの散乱や結晶のブラッグピークの裾に現れる散漫散乱、あるいはナノ粒子の幅の広いピークを計測するために、装置のバックグラウンドを抑える必要がある。しかし実試料であるナノ粒子のデータにおいて、高角でサンプルからの散乱ではないバックグラウンドの混入と思われる影響が見られた。このためCdTe 検出器の前にある受光スリットを全てダブルスリット化するとともに、サンプルから検出器までに鉛で覆った受光パスを挿入することによりバックグラウンド散乱の侵入を防止する対策を行った。今後は、更なる低バックグラウンド化のために、測定パス上の遮蔽を改良していく予定である。

国立研究開発法人物質・材料研究機構

技術開発・共用部門 高輝度放射光ステーション

勝矢 良雄、坂田 修身

先端材料解析研究拠点 シンクロトロンX線グループ

小原 真司

スプリングエイトサービス(株)

嶋田 恵朋、安田 祐介