

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光源とする硬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。

ビームライン全体に共通する項目として2017年度は7月にアンジュレータの最小ギャップを9.6 mmから8.58 mmに変更した。これにより低エネルギー側は5 keVまでのX線の利用が可能となった。また2017年度末の停止期間中に光源基盤部門により、ビームラインモノクロメータの低振動化のための改造が行われた^[2]。2017年度の各実験手法による高性能化は以下のとおりである。

2. 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、主として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、同様にフォノンが観測可能な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メスbauer効果測定に利用されている。

2017年度は、核共鳴散乱実験ステーションの高性能化として集光屈折レンズによる核共鳴散乱用マイクロビームの生成や高エネルギー核種用エネルギー領域メスbauer分光装置の整備を行った。

集光レンズによる核共鳴散乱用マイクロビームの生成

2016年度にはHAXPES用のKBミラーを利用することにより、ミラー反射率44%、ビームサイズ4.2 μm (鉛直) \times 10.2 μm (水平) のビームを得て、Fe-57における核共鳴線(14.4 keV)に対しては良好なマイクロビームが利用できる環境となった^[3]。このHAXPES用のKBミラーはFe-57以外の核種、特にFe-57核以外の高エネ

ルギー核種に対応していないため、微小なビームを必要とする高エネルギー核共鳴散乱実験においては大きな制約となっていた。高エネルギー核種に対してKBミラーを整備する必要性はあるものの、全ての微小ビームを必要とする実験に対してKBミラーが必要でない。現状のユーザー利用を考えると、調整時間が短時間で済み、集光・非集光ビームの光軸が変わらない集光光学系の利用の方がむしろ望ましい。そこで、集光サイズにおいてはKBミラーに劣るが、簡便に集光ビームが得られ、比較的容易に高エネルギーにも対応できる集光レンズを整備した。

2017年度整備した集光光学系は、15 keV付近(Fe-57核用)、22 keV付近(Sm-149核用)、30 keV付近(Th-229 m核用)を対象とした集光レンズである。これらの3種類のレンズは一つのホルダーに収納されており、個々の集光レンズを実験ごとに設置する場合に比べて、光学系の変更に伴う設置及び調整時間の大幅な短縮が期待される。また、Fe-57核用とTh-229 m核用の集光レンズはFe-57核(共鳴エネルギー: 14.4 keV)及びTh-229 m核(共鳴エネルギー: 29.2 keV)に特化されている。一方、Sm-149核用は、集光位置が色収差により若干異なるが、Eu-151核(共鳴エネルギー: 21.5 keV)、Sm-149核(共鳴エネルギー: 22.5 keV)及びSn-119核(共鳴エネルギー: 23.9 keV)に利用が可能である。

集光レンズの性能に関して、Th-229 m核用を例として示す。測定は、集光レンズを光源から約49.3 m位置に設置し、スリットのナイフエッジスキャンによって行った。図1にTh-229 m核の共鳴エネルギーである29.2 keVにおける集光レンズからの各距離における鉛直方向ならびに水平方向のビームサイズを示す。鉛直、水平方向のいずれもレンズから12.8 mの定盤中央の典型的な試料位置近くにおいて集光点を持つ。定盤中央におけるビームサイズはTh-229 m核の共鳴エネルギーにおいて半値幅で41 μm (鉛直) \times 149 μm (水平) である。Fe-57核の共鳴エネルギーの14.4 keVでも同様な測定を行い、110 μm (鉛直) \times 155 μm (水平) という結果が得られている。この鉛直方向のビームサイズは今後、高分解能モノクロメータの前に置かれる鉛直方向平行化レンズと組み合わせることにより改善される見込みである^[3]。

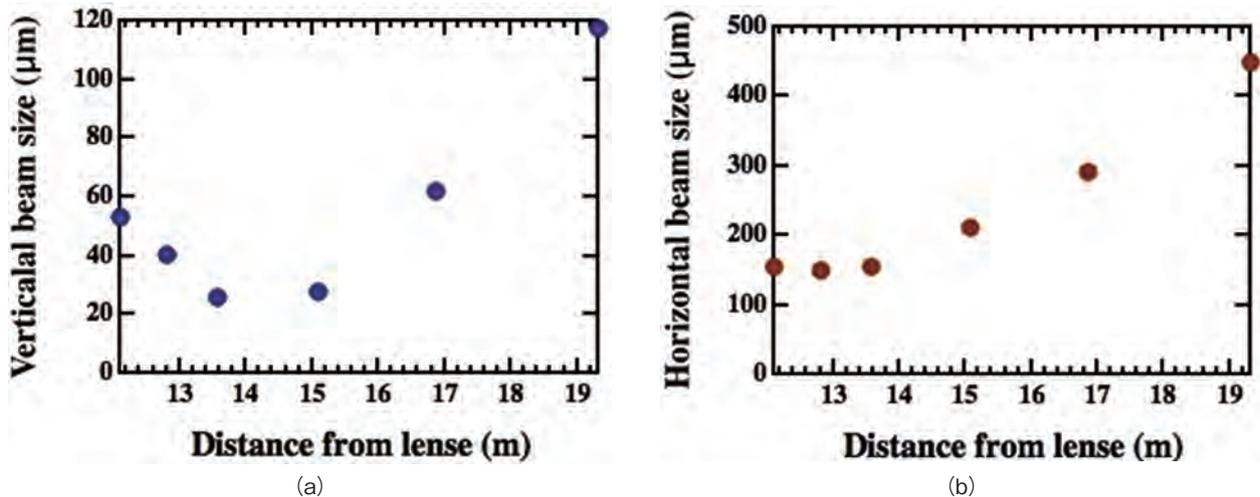


図1 エッジスキャンにより測定されたTh-229 m核用集光レンズからの各距離における29.2 keV X線の (a) 鉛直方向、(b) 水平方向のビームサイズ

高エネルギー核種用エネルギー領域メスbauer分光装置

エネルギー領域メスbauer分光は放射線源を用いた実験室系のメスbauer分光からの直感的な解釈が可能である。近年、本手法の利用拡大が進んでいるが、実験室系のメスbauer分光ユーザーを含めたポテンシャル・ユーザーによる更なる新規ユーザーが期待される手法である^{[4][5]}。また、本手法はエネルギー領域メスbauer分光法と相補的で従来利用されてきた核共鳴前方散乱実験とは異なり、大電流の単バンチX線を必ずしも必要としない。このため、次期光源で運転モードにおいて単バンチの電流値において制限があっても、本手法は核と電子の相互作用である超微細相互作用を用いた物性研究の手法として期待される。

エネルギー領域メスbauer分光では、共鳴核を含む透過体及び散乱体を光軸に配置して実験を行う。物性研究に利用する際には、透過体と散乱体のいずれか一方に測定したい試料をマウントし、他方に参照物質をアナライザーとしてマウントする。高エネルギー核種の場合には、共鳴時の反跳エネルギーが大きいため、メスbauer効果の起こる確率である無反跳分率が小さくなる。無反跳分率は一般に低温で増大することが知られているので、スペクトルを効率的に測定するためにはアナライザーを低温に保つ必要がある。例えばこれまでに利用実績のあるGe-73 (共鳴エネルギー: 66.7 keV)、Ni-61 (共鳴エネルギー: 67.4 keV) やYb-174 (共鳴エネルギー: 76.5 keV) などでは、メスbauer効果を観測するために少なくとも30 K以下が必要となる。

そこで、当該手法の開発や検出効率の向上を共に進めてきた京都大学の瀬戸グループの協力を得て、図2に示すような、BL09XUで既存のヘリウムフロー型の冷凍機を使用したメスbauer分光装置を整備した。液体ヘリウムの流量0.55 L/hourで参照試料の温度を約28 Kに保

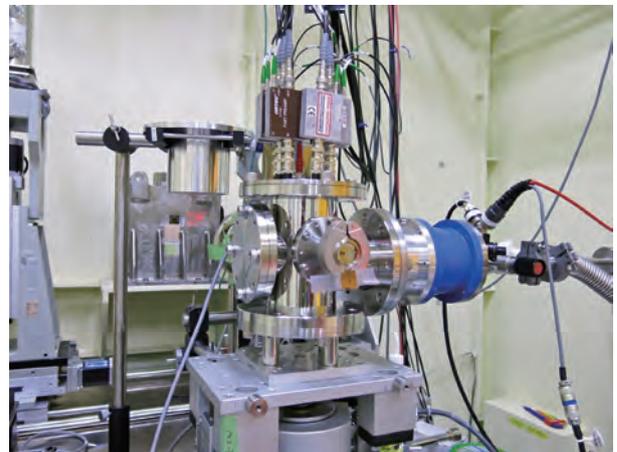


図2 高エネルギー核種用エネルギー領域メスbauer分光装置。

持し、100 Lのデューワーで標準的なビームタイムである約1週間の連続測定が可能である。今後はヘリウム循環型冷凍機と組み合わせ、無冷媒化した分光装置の開発を進める予定である。

参考文献

- [1] Y. Yoda et al., *Nucl. Instrum. Methods A*, **467-468** (2001) 715.
- [2] 田中 隆次 et al., *SPRING-8・SACLA年報 2016年度* p. 26.
- [3] 依田 芳卓 et al., *SPRING-8・SACLA年報 2016年度* p. 45.
- [4] R. Masuda et al., *Sci. Rep.* **6**, 20861 (2016) .
- [5] S. Tsutsui et al., *J. Phys. Soc. Japan* **85**, 83704 (2016) .

(依田 芳卓、筒井 智嗣)

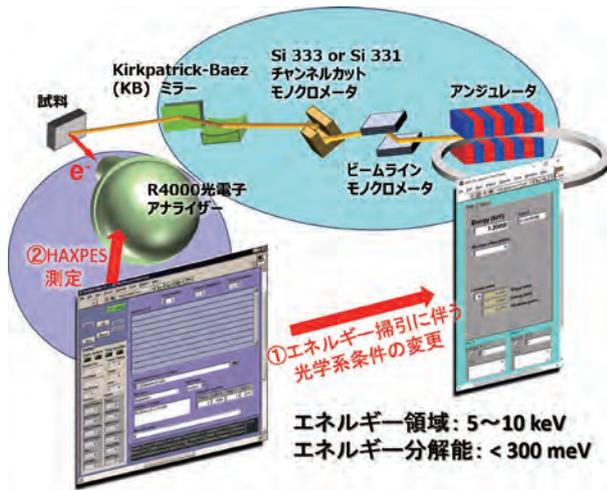


図3 共鳴HAXPES計測の自動化の概要

3. 硬X線光電子分光

BL09XUのHAXPESは長尺KB集光ミラー機構構築を中心とした光学整備が行われ、2014年度後期からHAXPES利用研究に供されている。BL47XUと比較して、30倍程度の光電子検出増大と100 meV程度の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 μm (鉛直) \times 15 μm (水平) 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。特に共鳴HAXPES計測に関しては、2017年度から、関係するパートナーユーザー (PU) 課題「強相関電子系における量子臨界現象解明のための共鳴硬X線光電子分光および発光収量X線吸収分光の構築」(研究代表:三村功次郎(大阪府立大学))がスタートした。

本稿では、2017年度のHAXPES実験ステーションの整備・高度化として、PU課題のもとで開発を進めている共鳴HAXPES計測技術のうち、エネルギー掃引時の光学系条件変更を含めた共鳴計測の自動化、及び、共鳴計測のエネルギー範囲拡大について紹介する。

共鳴計測の自動化

BL09XUの共鳴HAXPES計測では、エネルギー変更ごとに、1) アンジュレータギャップ、2) ビームラインモノクロメータ、3) 高分解能チャンネルカットモノクロメータ、4) KBミラー位置の全光学系の調整に加え、5) シエンタオミクロン社製R4000光電子アナライザーを用いた光電子計測が行われる。2016年度までに、1) ~4) の光学系調整の部分に関しては、一つのLabVIEWプログラムから一括制御できていたものの、5) の光電子計測と組み合わせるには至っていなかった。新たに、アナライザー電源ユニットの外部制御を可能にするとともに、図3のように、シエンタオミクロン社のSESWrapperライブラリを使用してR4000アナライザー

を制御するプログラムを作成し、さらに、そのプログラムから上述の光学系制御プログラムを呼び出すことにより、共鳴HAXPES計測に必要な要素全ての自動化を実現した。これにより、これまで入射光エネルギーの変更ごとに必要だった操作が無くなり、省力化だけでなく、測定時間の短縮、誤操作防止など、ユーザービリティが飛躍的に向上した。

共鳴計測のエネルギー範囲の拡大

BL09XUでは、これまで、アンジュレータギャップの制限により、6 keVが最小エネルギーであったが、CeやVなど、軽希土類、軽遷移金属の共鳴測定の高まりを受け、先に述べたようにアンジュレータのギャップ制限を緩和し、5 keVを最小エネルギーに変更した。さらに、これを受け、これまでSi333だけであったチャンネルカットモノクロメータに、Si331を追加導入し、低エネルギーでの高分解能計測(エネルギー分解能:< 300 meV)が可能になった。これにより、共鳴計測で使用できるエネルギー範囲は5~10 keVとなり、遷移金属、希土類のほぼ全ての元素が対象となった。上述の計測自動化も相まって、当初は、強相関電子系にフォーカスしていた共鳴計測も、触媒系や鉄鋼材料など、幅広い物質材料への利用拡大が進んでいる。

(保井 晃、高木 康多)

JASRI
利用研究促進部門
回折・散乱IIグループ

依田 芳卓、筒井 智嗣

分光解析IIグループ

保井 晃、高木 康多