

BL35XU

高分解能非弾性散乱

1. 概要

BL35XUは短周期アンジュレータから得られる硬X線を利用したmeV分解能の高分解能非弾性X線散乱ビームラインである。本ビームラインでは、周期配列を持つ結晶や周期配列を持たない液体やガラスなどの試料に対して、素励起観測を通じた原子ダイナミクスに関する研究を行っている。特にX線が集光できる性質を利用することにより、極限条件（高温高圧下や極低温下）における微小試料（数十ミクロンからミリ以下）の原子ダイナミクス（弾性率やフォノン分散測定などを含む）測定が可能となっている。対象となる研究分野として、液体・固体物性から地球科学分野にわたる広汎な領域で研究が行われている。BL35XUでは近年、特定のヒーターや冷凍機を用いた際、検出器に（実験に影響を与える程度の）ノイズが観測されていた。対策として、放射線源を用いて検出器感度を校正するなどして、ノイズ低減を図ったので報告する。さらに、ここ数年同一期以内での時間経過に伴う入射X線強度の減少が観測され、実験時期によって入射光強度が異なっていた。ユーザーに可能な限り均一なビーム条件を提供するため、その原因調査も行ったので報告する。さらに分光結晶がエネルギー分解能に与える影響についても検討したので報告する。

2. 検出器ノイズ低減のための感度校正

BL35XUではエネルギー $h\nu=16\sim 26$ keV 程度の入射光を用いて ± 200 meV 以下の（非）弾性散乱光を測定する。したがって検出する散乱光のエネルギーも入射光と同程度のエネルギー（ $h\nu=16\sim 26$ keV）となる。試料によって散乱された光は最終的にCdZnTe（ 2.5×2.5 mm²）素子を用いて高効率（>95%以上）で検出されている。CdZnTe素子によって散乱光は電気信号となり、前置増幅器・波形整形増幅器を介して、パルス信号として検出される。近年特定の装置（ヒーター、冷凍機など）を使用すると検出器にノイズが入って実験に支障をきたしていた。ノイズの原因として、増幅器が素子の特性に最適化されていない可能性があったため、検出器の感度校正を行った。感度校正にはCo-57放射線源（122.1 keV（85.6%）、14.4 keV（9.2%））を用いた。BL35XUには12個の検出器があり、それぞれの検出器について校正を独立に行っている。具体的には最初に増幅器の0レベルを最適化し、その後入射エネルギー（ $h\nu=16\sim 26$ keV）付

近の信号を高感度で得るために、（増幅器の）ゲインを調整した。図1に調整後の結果を示す。Co-57から放出された14.4 keVの γ 線が強く観測されていることがわかる。ノイズは通常低エネルギー（図中低チャンネル側）にバックグラウンドとして検出されることが多いが、この図から、そのようなバックグラウンドノイズも観測されておらず、信号とノイズが分離できていることが確認できた。

なお、（低エネルギー）バックグラウンドノイズが生じる原因として、周囲の電源環境が検出素子に影響を与えている可能性がある。そこで、検出素子の入った真空チャンバーを従来のものより大型にし、チャンバーから検出素子にノイズが入らないような工夫も同時に行った。このチャンバーの大型化により、従来はチャンバー外壁と検出素子の入った箱が2~3 mm程度しか離れていなかったが、現在9 mm両者を離すことができています。これら（感度校正および検出素子チャンバーの大型化）の効果（どの程度ノイズが低減できたか）については現在検証を行っている。

3. 入射エネルギー強度の安定化

まず、BL35XUでの光学系について概略図を図2に示す。高分解能非弾性X線散乱実験では原子ダイナミクスを測定するために $h\nu=16\sim 26$ keV程度のエネルギーに対して十分小さい、バンド幅数meVのX線を試料に照射している。このような単色化されたX線を得るために、アンジュレータから得られたX線を、図に示すように、3度分光している：最初に液体窒素冷却されたSi（111）結晶（図中分光結晶1）を用いて真空中で2~3 eV程度

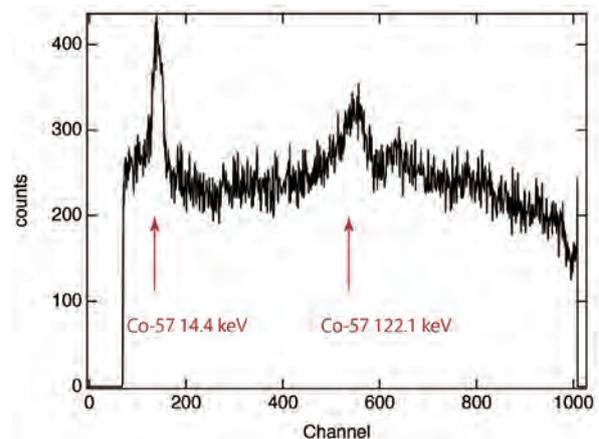


図1 Co-57放射線源を用いた検出器の感度校正

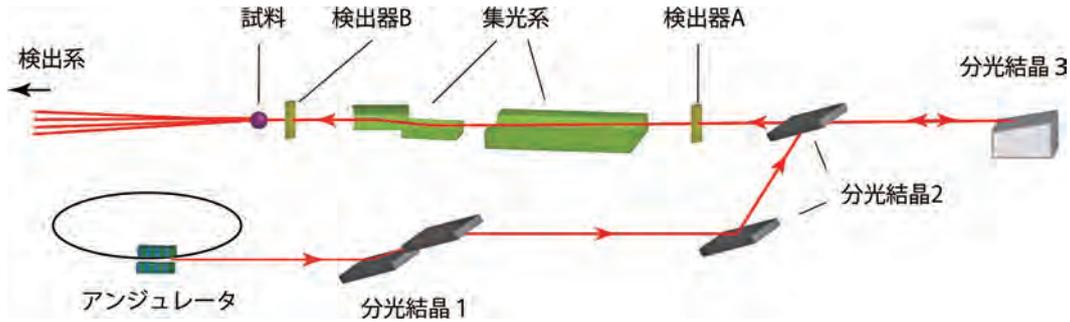


図2 BL35XU光学系の概略図

のバンド幅に分光する。次に窒素1気圧雰囲気中、室温で保持されたSi結晶（図中分光結晶2。反射面は分光結晶3の背面反射条件によって異なる）を用いて0.5~1 eV程度のバンド幅とする。最後に真空中室温付近に保持されたSi (nnn) 結晶（背面反射条件。n=8~13、図中分光結晶3）を用いて数meVのバンド幅に分光する。このように得られた光は（集光系を介して）試料に導入されている。

ユーザー運転中、常に図2中検出器A（集光前、イオンチャンバー）および検出器B（集光後、空気散乱を検出するアバランシェフォトダイオード）を用いて（数meVバンド幅に分光された）X線強度をモニターしているが、2015-2017年度のユーザー運転中、検出器A、Bから得られるX線強度は図3のような経時変化をした（赤線が検出器A、黒線が検出器B）。なお、図3の作図にあたっては、条件を（可能な限り）同じにするため、21.747 keV（分光結晶3でSi (11 11 11) 背面反射条件）の入射光で、集光系としてシリンドリカルミラーのみを使用したユーザーのデータのみを抽出している。図中には表示されていないそのほかの条件（例えばスリットのサイズ等）が各データ点でやや異なるものの、おおそユーザー運転中（図3中緑色）は強度が低下し、停止期間中（図中白色）を経て再び強度が上昇することが確認できる。最も強度が弱い場合（2017A期末）では最も強い（2015B期頭）場合に比べ、おおそ半分程度の入射強度しかなく、時期によって試料に照射されるX線量が大きく変化することがわかる。

入射強度の増減をより詳細に見ると、停止期間後に、強度の上昇する場合（図中青破線）とそうでない場合の2つの場合が確認できる。停止期間中には各分光結晶を再研磨、もしくは新品交換することがある。分光結晶の再研磨・交換とX線強度の相関を調べるために図3中下に分光結晶の研磨・交換を行った時期を示す（分光結晶1は青矢印、分光結晶2は緑矢印、分光結晶3は黒矢印）。図より明らかなように、入射X線強度の増加は分光結晶1の研磨・交換後に見られており、両者に相関があると考えられる。

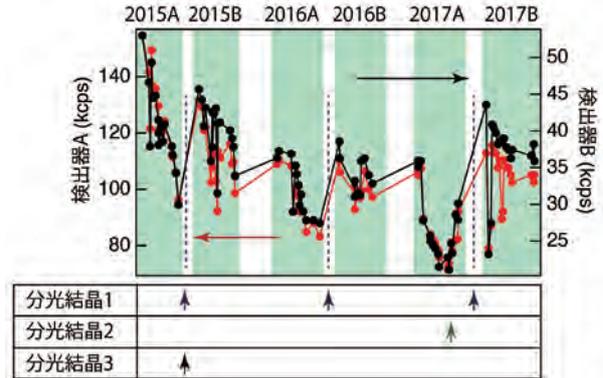


図3 2015A期から2017B期におけるバンド幅meVに分光されたX線の強度の経時変化

図3下に分光結晶の交換・再研磨の時期を矢印で示す。

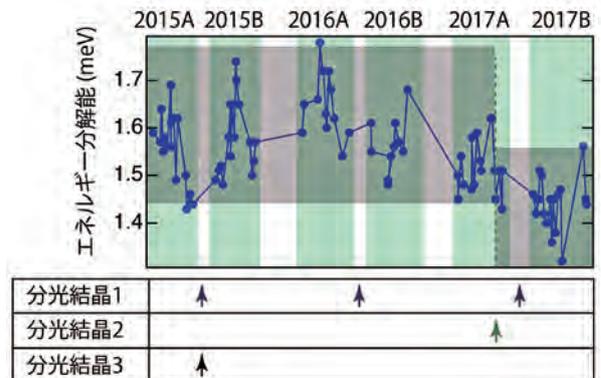


図4 2015A期から2017B期におけるX線エネルギー分解能の経時変化

図4下に分光結晶の交換・再研磨の時期を矢印で示す。

従来試料位置の入射強度減少の主たる要因は分光結晶1の振動による影響が大きく、分光結晶の長期的な劣化を十分に評価できなかった。ビームラインの設置当初以来懸案であった分光結晶1における結晶の振動は光源基盤部門による改善によって大きく抑制され、観測された現象は持続的な高熱負荷によって導入された結晶の歪みや結晶表面への付着物による分光結晶そのものの経時変化が示唆される。これらの結果をもとに光源基盤部門と協議を重ねて、2017年度末に分光結晶1を保持する真空チャンバーの改造を行った。

4. 分光結晶とエネルギー分解能の相関

図4にエネルギー分解能の経時変化を示す。時期は図3と同時期（2015A期から2017B期）である。エネルギー分解能は、標準物質（PMMA）を試料として用い、静的構造因子の最大値で得られる準弾性散乱ピークの半値幅として求められる。図4より概ね1.4~1.6 meVのエネルギー分解能が得られているが、図中黒色部で示したように2017A期より前には何度か分解能が1.7 meVを超える場合があった。一般に、1.7 meV程度のエネルギー分解能を持った入射光ではスペクトルの詳細な変化を観測することが困難となり、実験に支障をきたす。しかし、2017A期末より後は概ね1.5 meVを超えることがなくなり、エネルギー分解能の向上が見られている。図4下に結晶交換時期を再掲すると、この分解能の向上は分光結晶2の交換によるものと考えられる。この交換の際には、X線自身もつエネルギーによる結晶歪みを低減するため、従来の対称Si（400）結晶面から6°非対称（400）結晶面に反射面を変更している。なお、図3との比較から、エネルギー分解能と入射X線強度に相関はないと考えられる。

JASRI 利用研究促進部門
回折・散乱IIグループ

内山 裕士

回折・散乱IIグループ
量子状態解析チーム

筒井 智嗣