

原研ビームライン

1. 序

平成12年度末現在でSPring-8にある原研ビームラインは、BL23SU（重元素科学用）、BL14B1（材料科学用）、BL11XU（材料科学用）の計3本である。BL23SUとBL14B1は平成9年度に、BL11XUは平成10年度に建設を終了し、一部の実験装置の整備・予備実験を残しているが、ほぼ現在では利用研究を中心とする定常運転を行っている。SPring-8に本拠を持つ原研・放射光科学研究センターをはじめ、多分野にわたる原研研究者の放射光利用を推進するために、これらのビームラインはそれぞれに異なる特徴と実験装置を持っている。

原研ビームラインは原研研究者が独占的に利用するのではなく、原則的に全ビームタイムの20%を共同利用実験に開放している。外部研究者の利用は実質的には原研との共同研究として進められていることが多いが、確実な成果をあげつつある。

その反面、個々の研究者にとっては十分なビームタイムを確保できない状況になりつつある。原研としての新しい研究テーマの開拓とあわせて、現有3本のビームラインを整備した直後より4本目の建設計画を検討してきたが、平成12年度11月の補正予算によってこれが認められ、平成13年度の完成を目指して具体的な設計・製作に入ることになった。

以下には現有3本のビームラインの概略と主な利用研究を紹介するとともに、新しいビームラインの建設計画について簡単に報告する。

2. 材料科学ビームライン I (BL14B1)

2-1. ビームラインの概要

BL14B1は偏向電磁石を光源とし、X線回折実験およびX線吸収実験により、高温高圧下における物質の構造、表面界面の結晶構造、ランダム系物質の構造などの研究を行うことを目的として建設された^[1]。

ビームラインは光学ハッチと2つの実験ハッチで構成されている。光学ハッチ内にはSPring-8の標準仕様である可変傾斜型二結晶分光器を有し、5-110keVの広いエネルギー範囲の単色光を利用することができる。分光器の上下流にはRhコートされた全反射ミラーを配置し、高調波除去、コリメーションおよび垂直方向の集光を可能にしている。また第2分光結晶のバンドによる水平方向の集光により、30-60keVの高エネルギー領域での1桁以上のX線強度の増大を実現している。

このビームラインの最大の特徴は白色光または単色光を切り替えて実験ハッチに導入できることである。実験ハッ

チの放射線遮蔽性能の違いから、白色光は実験ハッチ1にだけ導入が可能で、エネルギー分散型の回折実験などに利用されている。

実験ハッチ1には高温・高圧などの極限環境下での物質構造を研究するために超高压発生装置が設置され、実験ハッチ2には表面・界面、ランダム系、高温超伝導体と言ったさまざまなカテゴリーの物質の構造物性を研究するために多軸回折計が設置されている。

平成12年には共同利用を含めて30以上の研究課題が実施された。次にその一部を紹介する。

2-2. 多軸回折計を用いた利用研究

(1) 装置の概要

構造物性研究における多様な実験配置に対応するために、型の多軸回折計が設置されている^[2]。10Kまで冷却できるヘリウムガス循環型の冷凍機や1000Kまで昇温可能な電気炉が備えられているほか、検出系にはアナライザ・結晶やSSD等を選択することも可能である。第三世代の放射光源は高輝度であるため、回折計には軸の交差精度が要求される。この回折計では、それらの機器を取り付けても全ての軸の交差精度が約60 μ mに押さえられている。また角度送りの精度と速度を両立するためにDCサーボモーターを採用している。

(2) 電析薄膜の構造および成長様式の研究

電気化学的方法で作られたPd薄膜はバルクと異なる触媒活性を示すことで興味をもたれている。

Au(111)表面に電析したPd薄膜の構造を知るために表面X線回折法を適用した^[3]。X線回折の強度分布のモデル計算を行い、Pdの吸着サイトを決定した。この研究により、Pdが下地のAu(111)の積層秩序を受け継ぎ、平坦な膜を形成している直接的な証拠を初めて示すことができた。真空中でAu(111)上にPdを蒸着させた場合は、島状成長や合金化が起こることが知られており、電気化学的手法による薄膜成長様式の解明は大変興味をもたれている。同様の手法により、太陽電池開発を視野に入れたAu基板上のCdやTeの成長様式の研究も進めている。

(3) ランダム系物質の構造研究

回折法によって液体やガラスなどのランダム系物質の構造を詳細に調べるには、できるだけ高波数までの構造因子を精度良く求め、そのフーリエ変換である2体分布関数の分解能を向上させることが重要である。そのためには高エネルギーのX線を用いることが有利である。MgP₂O₆ガラスの高エネルギーX線回折とパルス中性子回折の結果を比較し、逆モンテカルロ法を適用することにより、中距離構

造の情報を得ることに成功した^[4]。実空間での分解能向上により、Mg-O原子相関の非対称分布を議論できることが分かった。このような手法により、今後ますますランダム系の複雑な構造が明らかにされていくことが期待される。

(4) DAFSによるスピン梯子格子系物質の局所構造解析

DAFSは長距離秩序に敏感なブラッグ反射強度のエネルギー依存性を測定することにより、X線吸収原子の周りの局所構造情報をサイトを区別して得る手法である。近年、スピン梯子格子系物質が新しいタイプの高温超伝導体として期待を集めている。そこで気相成長させた $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ 薄膜にDAFSを適用し、基板と薄膜、さらには薄膜中の梯子と鎖を分離した局所構造解析を行った。吸収端近傍のスペクトルの特徴から、梯子層のCu原子は鎖層のO原子と結合を成していることが示唆された。

2-3. 高圧ステーションにおける利用研究

(1) 装置の概要

高圧下の放射光実験の主力となるマルチアンビル型高温高圧装置(SMAP1)は、当初BL11XUとBL14B1の両方で使用し、実験の都度双方の間を移動させていた。しかし平成11年度末に新たなマルチアンビル装置(SMAP2)が納入され、SMAP1は、BL11XU専用、SMAP2はBL14B1専用とすることになった。SMAP2の立ち上げ、調整作業は急ピッチで行われ、平成12年夏までには、高圧下でのエネルギー分散法によるその場観察X線回折実験ならびにXAFS実験が可能になった。また、実験のためのソフトウェア整備も合わせて行われ、時分割測定が可能になるなど、実験環境が大幅に向上した。

(2) 研究内容

新しい超硬質材料としての期待がもたれている、ダイヤモンドと立方晶窒化硼素のハイブリッド化合物である立方晶 BC_2N の研究を推進した。高温高圧下で目的の立方晶相を合成し、これを常温常圧下に回収することに成功するとともに、静水圧下での圧縮実験を行い、その体積弾性率を求めた。また前年に引き続き、高圧下での液体の構造研究を行い、液体セレンの圧力誘起半導体-金属転移に伴う構造変化をX線回折ならびにEXAFS測定により明らかにしている。さらに、高温高圧発生技術開発をすすめ、メタルカプセル中で、水流体相を触媒とした黒鉛-ダイヤモンド変換が放射光その場観察できるようになった。

外部研究機関との共同研究においても充実した成果が上がりはじめている。京都大学化学研究所との研究では、 $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ などの遷移金属酸化物について、高圧下その場X線観察実験を行い、高圧構造相転移、融解、合成に用いられる際の融剤との反応などが直接観測された。この情報は、試料合成プロセスへフィードバックされ、高圧相の単結晶育成に大きな貢献をしている。また、大阪大学理学

部との共同で、XAFSを用いた GeO_2 の高圧下での構造変化研究が行われ、石英型結晶 GeO_2 と GeO_2 ガラスの配位数変化の違いなどが明らかにされた。

3. 材料科学ビームライン II (BL11XU)

3-1. ビームラインの概要

BL11XUは、アンジュレータを光源とする材料科学研究用ビームラインである。ビームラインは一つの光学ハッチと三つの実験ハッチから成り、主として実験ハッチ1では非弾性核共鳴散乱法による物性研究と高温高圧下の物質構造解析、実験ハッチ2ではX線非弾性散乱法による強相関電子系の研究、実験ハッチ3では表面X線回折計を用いたMBE結晶成長中その場観察等が研究テーマである。^[5,6,7]

上記研究を遂行するために、実験ハッチ1には高分解能分光器、核共鳴散乱実験装置およびマルチアンビル型高圧プレス、実験ハッチ2にはX線非弾性散乱用回折計、湾曲アナライザー、後置分光器、ミラー、8T超伝導マグネット装置、実験ハッチ3には表面X線回折計とMBE真空装置をドッキングさせた装置を整備している。またアンジュレータ放射光によるXAFS測定システムの導入も進めている。これは、次期整備予定の非密封RI利用可能な硬X線ビームラインに係るR&Dの一部となっている。

以下に、BL11XUにおける最近のトピックスを報告する。

3-2. ダイヤモンド分光結晶の導入

BL11XUでは二結晶分光器用の分光結晶として、合成された人工ダイヤモンド結晶を使用している。これはほぼ透明に近い六角形の形状で、第一結晶には $8.6\text{mm} \times 3.5\text{mm} \times 0.3\text{mm}$ 、第二結晶用には $10\text{mm} \times 4.7\text{mm} \times 0.4\text{mm}$ の大きさのものを、ブラッグ配置で使用している。回折に寄与しない放射光は、薄いダイヤモンドを透過するので、ブラッグ配置用ダイヤモンド結晶専用ホルダーを作製し、間接冷却にて除熱している。間接冷却のため、循環用冷却水や冷却水循環装置フィルターはほとんど汚染されることが無く、また冷却水流量を抑えることができるために、配管による振動も実験に支障を与えることが無くなり、ほぼメンテナンスフリーで運用されている。ただしダイヤモンド結晶は、加工歪や熱歪のないシリコン結晶に比べれば、結晶の完全性が不十分であり、放射光のあたる場所によっては回折強度が下がることもある。これには、実験に支障がある都度分光器を調整して対応している。

3-3. 核共鳴散乱研究

第三世代放射光による核共鳴散乱現象を利用することで物質の電子-フォノン物性研究を行うことを目的に、実験手法の高度化、及び応用物性研究を展開している。最近の主な研究成果としては、SPRING-8の高エネルギーX線を利用することで、カリウム元素による放射光の核共鳴励起現