

「物質現象の解明と応用に資する新しい計測・分析基盤技術」
平成 17 年度採択研究代表者

瀬戸 誠

京都大学原子炉実験所・教授

物質科学のための放射光核共鳴散乱法の研究

1. 研究実施の概要

これまでの物質科学研究では、例えば金属・半導体中における微量不純物等の制御によって優れた物性を有する物質を生み出してきた。しかしながら、さらなる発展のためには、マクロスコピックな物性を調べるだけに留まらず、不純物等のミクロスコピックな観点からの研究が求められている。また、物質の超高圧等の極限的な環境下での状態やナノスケールでの状態を調べることで、新たな研究の展開も期待できる。核共鳴散乱法では、原子核の共鳴励起過程を用いることにより、物質を構成する元素の中でも、特定の元素(同位体)の性質だけを調べることが可能である。よって、このような研究に大きな可能性を有している。また、より高いエネルギー領域での測定を行うことによって、測定環境からの様々な影響を受けることなく高精度測定が可能となる。

そこで本研究では、先進的核共鳴散乱測定法として、

- ◆ 高エネルギー核種における核共鳴散乱・吸収分光法の開発研究
- ◆ 極限状態測定のための装置開発
- ◆ 超高精度測定のためのneV超単色X線分光法の開発研究

などを目的としている。

本年度は、主として高エネルギー核種用共鳴吸収分光装置の開発を行い、動作原理検証およびスペクトル測定を行うことに成功した。さらに、高エネルギー核種に対応するバックスキヤッターリング型の高分解能モノクロメータの開発に成功した。また、ハロゲン化鉛系層状ペロブスカイトを利用して高エネルギー核種用高速時間応答検出器を作製し、核共鳴散乱時間スペクトルの観測に成功した。今後はこれらの研究成果を、実用測定が可能な装置へと展開していく。

また、昨年度に開発を行った核モノクロメータを利用した超単色X線生成装置においては、問題となっていた出射位置変動を解決し、定位置出射可能な高出力のエネルギー可変超単色 X 線生成開発に成功した。現在、超単色X線強度においては世界的にも最高レベルであり、定位置出射法の開発成功により今後は顕微メスbauer分光装置への展開および neV オーダーのダイナミク

ス研究を目指していく。

2. 研究実施内容

(文中にある参照番号は 4. (1)に対応する)

本年度は、高エネルギー核種測定へ向けた光学・検出器開発および放射光共鳴吸収分光系の開発研究、超単色 X 線分光法の高度化開発研究などを実施した。

放射光核共鳴散乱法の元素選択性を活かした研究を実施するためには、これまで困難であった高エネルギー領域における核共鳴散乱計測法を開発していく必要がある。そのためにこれまで実現されてこなかった共鳴吸収型の分光装置の研究を行ってきた。この方法は、核ブラッグ散乱を利用しないため、特殊な単結晶を利用する必要がない。よって、様々な核種での測定が比較的容易に実現可能であることより、多くの元素での測定可能性を開くものであるといえる。昨年度までに開発を行った He ガスフロータイプクライオスタットを使用した温度変化計測が可能な共鳴吸収型の分光装置を用いて分光系の構築を行い、これを用いて動作原理の検証および核共鳴吸収スペクトルの測定を行うことに成功した。また、高エネルギー領域における核共鳴非弾性散乱の測定にはサファイア単結晶の利用が不可欠となるが、これを用いたバックスキヤタリングタイプのモノクロメータの開発研究を実施し、Te-125 において核共鳴散乱用高分解能モノクロメータの開発に成功した[1]。これにより今後の高エネルギー核共鳴散乱研究における進展の目処がたったものといえる。さらに、昨年度までに開発された Sb-121、Eu-151 および Sm-149 のインライン型高分解能モノクロメータを用いて、非弾性散乱測定が実施された[2-4]。さらに、高エネルギー X 線用高速応答検出器の開発も本研究にとって重要なものであるが、平成 18 年度に続き、本年度はハロゲン化鉛系層状ペロブスカイトなど、半導体励起子結合時のピコ秒発光を量子閉じ込め構造によって常温でも効率よく光を取り出せるようなサブナノ秒発光シンチレータの製作とその発光特性の評価を行った。層状ペロブスカイト型臭化鉛（フェネチルアミン臭化鉛）結晶（厚み約 1mm）を小型光電子増倍管と組み合わせたシンチレーション検出器を製作し、Ni-61 の核共鳴散乱時間スペクトルの観測に成功した。今後、引き続き、発光寿命がナノ秒以下のシンチレータの探索・試作を行う。ゲインの大きな高速増幅器と受光素子として

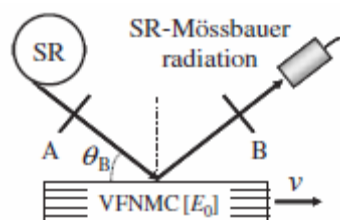


図 1. 周波数可変核モノクロメータ(VFNMC)を用いた定位置出射法の概念図

Si-APD を採用することにより検出器特性を改善する準備も行っている。

放射光 neV 超単色 X 線分光法では、励起状態の線幅が neV オーダーである Fe-57 原子核を含む単結晶からの核ブラッグ散乱により生成された X 線を利用する。これは昨年度までに開発された放射光 neV 分光装置により実現されるが、本年度は Si のブラッグ散乱を利用したエネルギー変調機構の開発[5]および、精密ドップラー振動機構を備えた核モノクロメータの利用による定

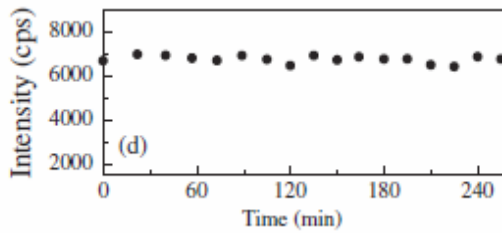


図 2. 周波数可変核モノクロメータからの超単色 X 線強度の時間依存

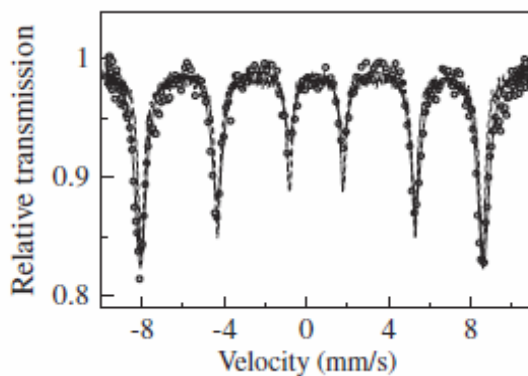


図 3. 周波数可変核モノクロメータからの超単色 X 線および放射性同位体線源を用いて測定された $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ のメスバウアースペクトルを、それぞれ白丸および点線で示す。超単色 X 線によるスペクトルを最小二乗フィットしたものを線で示してある。

の超高分解能 X 線非弾性散乱測定を実施し、圧電素子により Si 単結晶に励起された MHz オーダーのエネルギー変調の観測に成功した。本研究に関しては、来期(平成 20 年度)、検出器の多チャンネル化を進める事で、検出効率の向上を図り、高分子材料を対象とした neV 非弾性散乱実験を展開する予定である。

極限環境下計測装に関しては、昨年度導入した磁場発生装置と DAC を用いて Sm-149, Eu-151 核共鳴前方散乱法により電荷秩序希土類化合物 Sm_4Bi_3 , Eu_4As_3 の複合極限環境(低温・強磁場・高圧力)下での物性研究を行った。さらに、地球科学的に興味をもたれている化合物、酸化物での高温・高圧力下 Fe-57 核共鳴非弾性散乱測定を実施するために、加熱装置である高出力レーザーの導入を行なった。来年度は、加熱のための光学系を完成しこれらの測定を実施する予定である。

薄膜・ナノ構造体の局所磁性測定手法開発研究に関しては、高スピン分極材料としてスピントロニクス分野で注目されているホイスラー合金薄膜 Co_2MnSn およびその関連物質である

位置出射可能な高出力のエネルギー可変超単色 X 線の生成に成功した[6]。これは、図 1 に示すようにビーム進行方向に結晶をドップラーシフトさせることによって入射および出射位置を一定に保持するものであるが、広い面積に渡る高品質 $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶の作製および精密ドップラー駆動の開発によってはじめて実現されたものである。図 2 は得られた X 線強度の時間依存であるが、メスバウアースペクトル測定に十分な安定性を示している。この方法および放射性同位体(RI)線源を用いて測定された $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ のメスバウアースペクトルを図 3 に示す。両者のスペクトルはほぼ一致しており、最小二乗フィットにより得られた超微細相互作用パラメータの値(内部磁場:51.5T、四極子分裂:-0.20mm/s、アイソマーシフト:0.38mm/s)も、これまでに報告されている値と一致していることより、この方法が十分実用可能であることを示している。更に、放射光を光源とした内部転換電子 X 線メスバウアー分光計測にも初めて成功した。本実験の成功により、高輝度メスバウアービームによる材料の表面・バルク選択性のあるメスバウアー分析の実現が可能となった。また、放射光メスバウアービームをプローブとすることにより、neV オーダー

CoSn 人工合金薄膜に Sn-119 核共鳴散乱法を適用し、薄膜試料に対する Sn-119 核共鳴散乱実験条件の最適化を進めるとともに、試料の局所磁性の探査を行った。単原子層制御蒸着法によって作製された CoSn 人工合金薄膜に関しては、得られた内部磁場の値により、この合金が小さな磁気モーメントと高い磁気転移温度をもつ強磁性体であることを示唆する結果が得られ、この物質のスピン트로ニクス材料としての可能性に期待がもたれる結果となっている。

3. 研究実施体制

(1)「瀬戸」グループ

- ① 研究分担グループ長:瀬戸 誠 (京都大学、教授)
- ② 研究項目
 - ◆ 元素およびサイトを特定した非弾性散乱法の開発研究
 - ◆ 先進的メスバウアー分光計測装置の開発研究

(2)「依田」グループ

- ① 研究分担グループ長:依田 芳卓 ((財)高輝度光科学研究センター、主幹研究員)
- ② 研究項目
 - ◆ 放射光核共鳴散乱用光学系の開発研究

(3)「三井」グループ

- ① 研究分担グループ長:三井 隆也 ((独)日本原子力研究開発機構、副主任研究員)
- ② 研究項目
 - ◆ 先進的メスバウアー分光計測装置の開発研究

(4)「岸本」グループ

- ① 研究分担グループ長:岸本 俊二 (高エネルギー加速器研究機構、准教授)
- ② 研究項目
 - ◆ Si-APD (アバランシェ・フォトダイオード) 検出器の最適化研究
 - ◆ 高エネルギーX線用高速応答検出器の開発

(5)「小林」グループ

- ① 研究分担グループ長:小林 寿夫 (兵庫県立大学、助教授)
- ② 研究項目
 - ◆ 複合極限環境下計測系の開発研究

(6)「壬生」グループ

① 研究分担グループ長: 壬生 攻 (名古屋工業大学大学院、教授)

② 研究項目

- ◆ ナノ構造体計測用核共鳴散乱計測系の開発研究

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

1. Y. Imai, Y. Yoda, S. Kitao, R. Masuda, S. Higashitaniguchi, C. Inaba and M. Seto, "High-Energy-Resolution Monochromator for Nuclear Resonant Scattering of Synchrotron Radiation by Te-125 at 35.49 keV", Proceedings of SPIE, 6705 (2007) 670512.
2. S. Tsutsui, Y. Yoda and H. Kobayashi, "meV-Resolution Inelastic X-ray Scattering Using 37.133 keV ^{121}Sb Nuclear Resonance", J. Phys. Soc. Jpn., 76 (2007) 065003.
3. S. Tsutsui, H. Kobayashi, J. P. Sutter, A. R. Baron, T. Hasegawa, N. Ogita, M. Udagawa, Y. Yoda, C. Sekine, I. Shirotnani, D. Kikuchi, H. Sugawara and H. Sato, "Low-lying optical modes in filled skutterudites using inelastic x-ray scattering techniques", J. Phys.: Conf. Ser. 92 (2007) 012171.
4. S. Tsutsui, H. Kobayashi, D. Ishikawa, J. P. Sutter, A. R. Baron, T. Hasegawa, N. Ogita, M. Udagawa, Y. Yoda, H. Onodera, D. Kikuchi, H. Sugawara, C. Sekine, I. Shirotnani and H. Sato, "Direct Observation of Low-Energy Sm Phonon in $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$ ", J. Phys. Soc. Jpn., 77 (2008) 033601.
5. T. Mitsui, M. Seto, R. Masuda, K. Kiriya and Y. Kobayashi, "Synchrotron Radiation Mössbauer Spectroscopy Using Doppler-shifted 14.4keV Single-line ^{57}Fe - Mössbauer Radiation", Jpn.J.Appl.Phys. 46, (2007) L703.
6. T. Mitsui, M. Seto, and R. Masuda, "Variable-Frequency Nuclear Monochromator Using Single-Line Pure Nuclear Bragg Reflection of Oscillating $^{57}\text{FeBO}_3$ Single Crystal", Jpn.J.Appl.Phys. 46, (2007) L930.