

「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 助教授)

## 「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

本研究では、放射光と核共鳴励起過程双方の有する優れた性質を最大限に活用するために、高分解能光学系、複合極限環境下計測系および高速X線検出器系などの開発を行うことで放射光核共鳴散乱法の新しい分光法としての基盤技術を確立し、物質科学の大きな発展を目指すものである。特に、原子核の共鳴励起過程を用いることによる、元素およびサイトの特定という概念を軸にした研究を行い、複合極限環境、ナノ構造体、超微量物質、希薄不純物といった研究対象のフォノンおよび電子状態計測を実施する。

本年度は、研究全体の共通基盤となる研究開発をスタートさせると同時に、それらを利用した個別の先進的計測法の開発研究についての調査および予備的な試験も含めた前段階的な研究を開始した。実施した研究の概要を以下に示す。

- ◆ 入射強度増強を行うために、主な研究実施機関である SPring-8、BL09XU において、液体窒素冷却型シリコンモノクロメータの導入を行った。
- ◆ シンチレータ評価手法の開発と高速シンチレータとして有望な候補の絞込み、高エネルギーX線用 Si-APD 検出器の設計を行った。
- ◆ Flux 法で育成した極めて高品質な<sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub>単結晶を用い、結晶温度を放射光 X 線の超単色化に必要なネール点近傍において精密制御することで、核モノクロメータを開発した。
- ◆ 角度分解型核共鳴非弾性散乱の高効率計測へ向けた最適化研究を実施した。
- ◆ 複合極限環境計測に対する核共鳴散乱法の最適化を実施するための予備的な実験を行い、装置仕様決定のためのデータを収集した。
- ◆ <sup>119</sup>Sn および <sup>57</sup>Fe 核共鳴散乱法を用いて、金属ナノ薄膜における局所電子スピン分極および局所磁性の測定を行った。

今後、これらの研究によって得られた結果をそれぞれ他の研究にフィードバックすることで、全体として最適な条件を構築していくものとする。

## 2. 研究実施内容

### (1) 瀬戸研究グループ

放射光核共鳴散乱法の特徴である元素およびサイトを選択した計測の可能性を最大限に活用した装置開発を行うことを目的としている。特に、高分解能モノクロメータの開発および検出器開発とリンクさせながら研究を実施する。また、超高分解能 X 線生成のための、高精度モノクロメータ制御機構についての研究開発も実施するものである。

本年度は、角度分解型の核共鳴散乱計測装置についての最適化研究を実施した。原子核は電子系との超微細相互作用により、電子状態を反映したエネルギー準位の変化が生じる。そのため、共鳴励起された原子核からの脱励起に伴う非干渉性散乱の時間スペクトルパターンもその情報を含んでいる。しかしながら時間スペクトルパターンが励起放射光と散乱角とに依存して変化するため、検出器の位置と立体角とを最適化する必要がある。本年度はこのための基礎的データ収集を実施した。その結果を用いて、角度分解型の核共鳴散乱計測装置を設計し、次年度に高効率計測装置を導入し実験を実施する予定である。

### (2) 依田研究グループ

核共鳴散乱計測では、核からの微弱な散乱を計測する必要があるが、現在の大型放射光施設でもその X 線強度は充分とはいえない。そこで、主たる実験施設である SPring-8 の核共鳴散乱ビームライン BL09XU に高強度かつ高品質なビームを生成可能なモノクロメータを導入することで、X 線強度および X 線密度を増強することを目指している。

本年度においては、液体窒素冷却のシリコンモノクロメータを BL09XU に設置し、立ち上げをおこなった。シリコンは液体窒素温度での熱伝導率が高く、また熱膨張係数が小さいので、入射放射光による高い熱負荷に対しても結晶ひずみを極力抑えることができ、SPring-8 においても実績を有している。X 線テレビで、液体窒素冷却モノクロメータからの出力を観測したところ、従来のものよりも格段に均一であることを確認できた。また  $^{57}\text{Fe}$  用高分解能モノクロメータからの出力は 2 倍程度の増加があり、ビーム品質および強度において期待していたとおりの性能が得られている。

しかしながら液体窒素循環時に生じる振動から、ビームが上下方向に振動しており、特に 40keV 以上の高エネルギーにおいて実効的な強度の低下を招いている。また条件によっては安定性においても十分とはいえず、安定性の向上および振動の抑制は今後の課題である。また、この研究課題の中では、様々な核種に対応した高分解能モノクロメータシステムを開発することで、利用実験の幅を広げることを目指しており、次年度以降そのようなシステムを構築していく予定である。

### (3) 三井研究グループ

顕微メスbauer分光および超高分解能 X 線非弾性散乱等の先進的メスbauer分光法を実現することが目的であるが、本年度はその測定に必須となる超単色 X 線を放射光から

生成するための核モノクロメータの開発と放射光の超単色化の検証実験を実施した。

F l u x法により育成した完全性の高い $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶を組み込んだ精密温度制御機構を持つ核モノクロメータの設計製作を行なった。この核モノクロメータを用いて放射光の超単色化実験を行い、超単色化した X 線の強度、偏光特性、角度発散特性及びエネルギー分解能の結晶温度依存性を調べ、ネール点 ( $\sim 75^\circ\text{C}$ ) 近傍において電子散乱禁制で核散乱許容の $^{57}\text{FeBO}_3$  (3 3 3) 反射により、直線偏光した超単色 X 線を生成できることを確認した。この結果により、放射光メスバウアー顕微分光計測、超高分解能 X 線非弾性散乱計測用のプローブビームとしての超単色 X 線利用が可能になったものと考えられる。これを踏まえて、現在設計中の顕微分光装置の製作と導入を行い、時間スペクトル法や超単色 X 線を利用した材料の局所分析および超高分解能 X 線非弾性散乱への応用研究を本格的に開始する予定である。

#### (4) 岸本研究グループ

##### 1. 新シンチレータの製作・探索および放射光 X 線による特性評価

放射光パルス X 線を使って、無機有機ハイブリッド型化合物などをマイクロチャンネルプレート (MCP) 型光電子増倍管 (PMT) や小型メタルパッケージ型 PMT を使って、常温および一部は低温 (80K 程度) にて検出効率、時間応答特性などについての評価を試みた。その結果、十分な大きさ、厚みのシンチレータ試料が得られていないこと、数 10 ナノ秒以上の遅い発光成分や PMT (光電面) 起因のランダムな雑音の抑制が課題であることを確認し、今後これらの解決に向けての研究を実施する。また、シリコン・アバランシェ・フォトダイオード (Si-APD) を受光素子として使用する方法についても今後、検討する。

##### 2. シリコン・アバランシェ・フォトダイオード (Si-APD) を使った核共鳴散乱実験のための検出器の最適化設計

前方散乱配置での実験を想定して、50keV の X 線に対し 4 倍程度、検出効率を向上させる積層型 Si-APD 検出器の設計を行った。これは Si-APD 素子の間に Ge の薄板を配置して 10keV の蛍光 X 線に変換し、Si-APD 素子によって検出するものである。さらに、積層配置に適した基板に装着した 150  $\mu\text{m}$ 、直径 3mm の Si-APD 素子の設計も行った。素子を製作後、8 素子積層型検出器として組み立てを行う。これらの検出器の評価試験を次年度に実施する予定である。

#### (5) 小林研究グループ

研究目的は、複合極限環境下での核共鳴散乱計測手法を確立し、複合極限環境下での新しい物性現象を微視的な立場から議論し解明することにある。本年度は、低温・高圧力・強磁場環境下での核共鳴前方散乱測定の実験を行った。その結果、来年度に導入を予定している高圧力発生装置であるダイヤモンド・アンビル・セル (DAC)、磁場発生装置の仕様を決定するためのデータを収集することが出来た。このデータを基に、

次年度は最適化された DAC と磁場発生装置の導入を予定している。さらに、高温・高圧力下核共鳴非弾性散乱測定実現のために、放射光を用いた X 線回折実験で実現されている高温・高圧力環境を、核共鳴散乱法に適用する場合の改善点を検討した。この結果を基に次年度は予備的な実験を予定している。

#### (6) 壬生研究グループ

金属ナノ薄膜における局所電子スピン分極や局所磁性の測定を目的に、 $^{119}\text{Sn}$  および  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴散乱実験を行った。電子スピン分極のプローブとなる  $^{119}\text{Sn}$  あるいは  $^{57}\text{Fe}$  核を含む薄膜試料に、プローブ核のメスバウアー遷移エネルギーにあわせた単色放射光 X 線を入射し、核によって共鳴散乱された X 線の時間スペクトルを測定し、試料および実験条件の最適化を行った。また、厚さ 10.0 nm の Cr 層の上に 0.2 nm の  $^{57}\text{Fe}$  単原子プローブ層を配した試料においては、Cr 層の下地に 1.0 nm の強磁性  $^{56}\text{Fe}$  層を敷いた場合と敷かない場合で核共鳴時間スペクトルに明確な違いがみられ、下地の強磁性  $^{56}\text{Fe}$  層の影響を受けて Cr 層の磁気構造が変化し、 $^{57}\text{Fe}$  プローブ層の局所磁性に影響を及ぼしていることを示唆する結果が得られた。次年度は、これらの結果についてさらに詳細な研究を実施していく予定である。

### 3. 研究実施体制

瀬戸研究グループ (京都大学)

- ① 研究分担グループ長：瀬戸 誠 (京都大学、助教授)
- 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

依田研究グループ ((財) 高輝度光科学研究センター)

- 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：入射強度増強

三井研究グループ (日本原子力研究開発機構)

- ① 研究分担グループ長：三井 隆也 (日本原子力研究開発機構、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

岸本研究グループ (高エネルギー加速器研究機構)

- 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、助教授)
- 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

小林研究グループ (兵庫県立大学)

- 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

壬生研究グループ（名古屋工業大学）

- ① 研究分担グループ長：壬生 攻（名古屋工業大学、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