

「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、物質の超高压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り、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

を目的としている。

本年度は、X線集光用多層膜ミラーと核モノクロメータによる放射光neV超単色X線分光装置を作成した。それを用いて、 $\gamma$ 線源による従来法では測定不可能であるマルチメガバール領域の超高压下メスバウアー効果測定を行った。その結果、超高压発生用DAC内において鉄含有試料のメスバウアースペクトルの観測に初めて成功した。また、高エネルギー核種測定用の共鳴吸収型の分光装置を開発し、これまでには困難であった高エネルギー領域の放射光核共鳴吸収への可能性を拓いた。

超単色X線強度においては世界的にも最高レベルに到達し、今後は顕微メスバウアー分光装置への展開を目指す。また、共鳴吸収分光装置も実用レベルの装置開発を実施する。極限状態測定装置に関しては、低温強磁場発生装置の導入および高温環境装置の設計を終え、来年度から本格的なテストを開始する段階に来ている。

## 2. 研究実施内容

昨年度の前段階的な研究を経て、装置開発に関する本格的な研究開発を開始した。特に本年度は、neV超単色X線分光法の開発研究の実現に向けた分光光学系の開発、および高エネルギー核種測定のための新しい放射光共鳴吸収分光系の開発を目的とした。

放射光 neV 超単色X線生成は、Fe-57 原子核の励起状態の線幅が neV オーダーである事を利用して、Fe-57 原子核を含む単結晶からの核ブラッグ散乱を用いた。この超単色X線のエネルギーを用いて分光測定を実施するために、ドップラー効果を利用した。これらの装置の設計・製作を行い、放射光による性能試験を行った結果、放射光メスbauer吸収スペクトル測定を実現することが出来た。超単色X線分光系を図1に示す。これとX線集光用多層膜ミラーとを組み合わせることによって超高压下メスbauer分光光学系を開発し、 $\gamma$ 線源による従来法では測定不可能なマルチメガバール領域の超高压下メスbauer効果測定を行った。その結果、ミクロン程度の試料空間しか利用できない超高压発生用DAC内において、鉄含有試料のメスbauerスペクトルの観測に初めて成功した。また、これまでのR&Dの結果を踏まえて設計・製作を進めてきた放射光neV分光装置の導入を行った。neV 超単色X線に関しては、現在世界最高レベルの強度を達成している。今後、X線集光用多層膜ミラーと核モノクロメータによる放射光neV超単色X線分光法を組み合わせることによって顕微メスbauer分光法の開発にあたる。

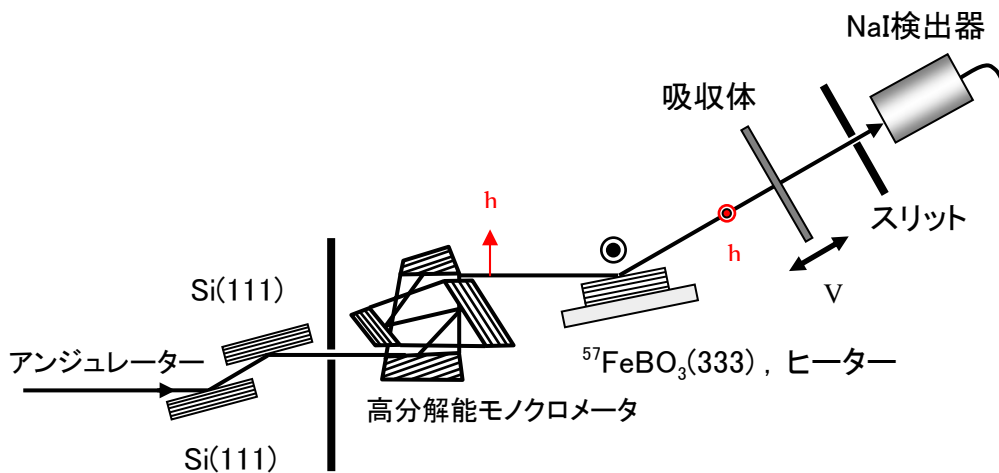


図1. 超単色X線分光系

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ため、多くの元素での測定可能性を開くものであるといえる。特に今年度は、He

ガスフロータイプの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の設計・製作を行った。放射光を用いたテストを行ったところ、電子状態測定が可能であることを確認することが出来た。今後は、これらの結果を踏まえて、本格的な測定の可能な分光系の構築を行っていく予定である。

高エネルギー核種に対応するバックスキヤタリングおよびインライン型の高分解能モノクロメータの開発もおこない、 $^{121}\text{Sb}$  の共鳴エネルギー37.1keV においては冷却シリコン結晶を用いることにより、従来 ESRF で報告されていた値 7meV を大きく上回る 1.7meV の分解能を得ることが出来た。

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、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について 1mm 以上の厚みを持つ結晶を製作した（写真）。



これらの装置を利用することにより、高温高压、強磁場、超低温での吸収散乱(メスバウアー分光、非弾性散乱)における計測技術が格段に進展するものと期待される。来年度は、本装置の基本性能試験とその応用研究として、アモルファス合金、金属ガラス等の工業材料を対象とした局所メスバウアー分析研究等を展開する。これに加えて、本手法の高度化によるメスバウアーイメージング技術の応用可能性の検討と計測装置の設計を進める予定である。

また、極限環境下測定装置に関しては、低温強磁場下での超高压測定装置の導入を行った。本格的な試験は来年度から実施する予定となっている。また、今年度には高温下での測定が可能な加熱装置の導入を実施する予定となっている。

### 3. 研究実施体制

#### (1)「瀬戸」グループ(京都大学)

①研究分担グループ長:瀬戸 誠(京都大学原子炉実験所 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((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利用研究促進部門 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((独)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((独)日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門 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(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物質構造科学研究所 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

(5)「小林」グループ(兵庫県立大学)

①研究分担グループ長:小林 寿夫(兵庫県立大学物質理学研究科 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(研究機関別)

①研究分担グループ長:壬生 攻(名古屋工業大学大学院工学研究科 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)

- R.Masuda, S.Higashitaniguchi, S.Kitao,Y.Kobayashi, M.Seto, T.Mitsui, Y.Yoda, R.Haruki, and S.Kishimoto,  
“Nuclear Resonant Scattering of Synchrotron Radiation by Yb Nuclides”,  
J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 094716.
- T. Mitsui, M. Seto, S. Kikuta, N. Hirao, Y. Ohishi, H. Takei, Y. Kobayashi, S. Kitao, S.Higashitaniguchi, and R. Masuda,

- “Generation and Application of Ultrahigh Monochromatic X-ray Using High-Quality  $^{57}\text{FeBO}_3$  Single Crystal”,  
Jpn. J. Appl. Phys. **46** (2007) 821.
- T. Mitsui, M. Seto, N. Hirao, Y. Ohishi, and Y. Kobayashi,  
“Ultrahigh-Pressure Measurement in the Multimegabar Range by Energy-Domain Synchrotron Radiation  $^{57}\text{Fe}$  -Mössbauer Spectroscopy Using Focused X-rays”,  
Jpn. J. Appl. Phys Lette. **46** (2007) L382.
- S. Tsutsui, H. Kobayashi, A.Q.R. Baron, J.P. Sutter, Y. Yoda, H. Onodera, D. Kikuchi, H. Sugawara, H. Sato, C. Sekine, and I. Shirotnani,  
“Inelastic x-ray scattering of Sm-based filled-Skutterudite compounds”,  
J. Magn. Magn. Mater. **310** (2007) 241.
- H. Kobayashi, Y. Yoda, M. Shirakawa, and A. Ochiai,  
“ $^{149}\text{Sm}$  nuclear forward scattering of  $\text{Sm}_4\text{Bi}_3$  under high pressure”,  
J. Magn. Magn. Mater. **310** (2007) 305.
- R. Masuda, S. Kitao, Y. Kobayashi, M. Seto, R. Haruki, X.W. Zhang, and S. Kishimoto,  
“Dependence of Incoherent Nuclear Resonant Scattering of Synchrotron Radiation on the Number of Resonant Nuclei”,  
J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 023710.