

核共鳴散乱法による研究の今後の展開と展望

Future Developments and Prospects of Research Using Nuclear Resonant Scattering Spectroscopy

核共鳴散乱研究会

Nuclear Resonant Scattering Research Group

瀬戸 誠, 京都大学

三井隆也, 日本原子力研究開発機構

Makoto Seto, *Kyoto University*Takaya Mitsui, *Japan Atomic Energy Agency*

高温超伝導機構の解明

高温超伝導機構の解明は、室温超伝導等への足掛かりとなる物質科学研究における大変重要な課題となっている。銅系高温超伝導体や近年発見された鉄系超伝導体においては、これまでのフォノン機構による超伝導体と異なり、磁気的な励起と超伝導との関連が指摘されている。また、磁性と超伝導との共存などといった問題についても提起がなされている。よって、これらの系においては構成原子の微視的な電子状態、とくに磁性の研究が重要である。その際、超伝導と関連する原子についてのローカルな磁気モーメントの有無や（磁気秩序の有無に関わらず）局所的な磁性についての情報を与える核共鳴散乱法は特に重要である。また、核共鳴非弾性散乱法はフォノンの寄与についての研究も可能であることより、このような超伝導化合物の研究にとって大変重要な情報を与えるものである。さらに、これらの系においては、遷移金属や希土類などの数種類の元素が超伝導体を構成しており、核共鳴散乱法の元素選択性という特徴を活かした研究が可能である。よって、このような構成元素それぞれについての測定を実施することにより、これらの系の研究が飛躍的に発展するものと考えられる。特に、SPring-8 は他の第三世代大型放射光施設と比較して 8GeV という高いエネルギーを持ち、高エネルギーX線までの利用が可能という大きな特徴を持つ。100 keV までのエネルギー領域には 67 keV の Ni をはじめとして多くの魅力のあるメスバウアー核種が存在するが、核種に対応した高分解能モノクロメータが必要とされる。高エネルギー領域における $\Delta E/E$ が 10^{-7} を越えるような高分解能モノクロメータの構築は容易ではないが、実現できれば SPring-8 でしかできない実験領域を開拓できるものと考えられる。

ナノテクノロジー・スピントロニクスへの貢献

放射光核共鳴散乱法は、国内外において nm サイズの薄膜や微小構造体にも適用され、このような試料の磁気異方性やフォノン状態に関する一連の研究成果が集積されつつある。しかしながら、ナノテクノロジーあるいはスピントロニクス分野におけるこの実験手法の最大の「潜在的」ニーズは、何といたっても局所的電子状態の解明に対する適用であり、そのためには今後のさらなる高度化と最適化が望まれる。放射光核

共鳴散乱法を電子状態の解明に適用するのに際し、ナノ薄膜・構造体試料の測定に特有の問題として、以下の二点が挙げられる。

第一に、一般に試料の厚みが薄く、通常用いられる透過型の前方散乱配置での測定では十分な核共鳴散乱シグナルが得られないため、試料内にわずかに含まれるプローブ核を有効利用できるように、試料面（基板面）すれすれ入射の全反射配置での測定が必要となる。このため、一般に実験配置が複雑になり、また測定時間も長くなる。したがって、入射X線の高輝度化および単色化、検出器の性能向上など、今後さらなる最適化の推進が望まれる。

第二に、一般に試料内の電子状態が不均一であり、多くの場合、その不均一性の評価と解明こそが測定ニーズとなる。これを達成する手段としてエネルギースペクトル測定法の確立に期待が寄せられる。現在、測定試料と参照試料との間の量子干渉時間スペクトルをエネルギースペクトルに焼きなおす吸収型エネルギースペクトル測定法が開発されつつあるが、このようなエネルギースペクトル測定法が最適化され、数nm程度の厚さの薄膜・ナノ構造試料の超微細構造パラメータを試料中のプローブ核の濃縮なしに測定することができるようになれば、様々な系に対して局所的電子状態を計測することができる真に強力な測定手段として、ナノテクノロジーおよびスピントロニクス発展に大いに貢献するものと期待される。

スローダイナミクスへの準弾性散乱の利用

ガラス転移機構の解明および（生体）高分子等におけるスローダイナミクスは現代の物質科学における重要な未解明課題である。特に、これらの研究のためには、neV程度のエネルギー分解能と広い運動量空間をカバーした測定が必要とされる。原子核の励起準位においては keV オーダー（波長： $\sim 1\text{\AA}$ ）でありながら、その線幅が neV程度のものが存在しており、これまでの電子系を利用したX線では不可能であった、超高分解能と広い運動量空間の測定が可能となる。よって、このような超単色X線を利用することにより、ガラス転移などのような未踏の研究領域を開拓可能であると考えられる。このような研究を実現するためには、広い運動量空間において、超高分解能を実現する必要があるが、そのためには測定条件に対応したさまざまな核種の利用が不可欠であるが、そのためには、低エネルギーから高エネルギーまでの十分な強度および輝度を有するX線と高い検出効率を有する高速時間応答X線検出器が必要とされる。これらが実現されれば、非常に広いダイナミックレンジの測定が可能となるものと考えられる。

高圧下物性への展開

すでに、放射光を用いたX線構造解析では超高压力下に低温や高温を組み合わせた環境で、常圧力下X線回折スペクトルに迫るS/N比のスペクトルが得られるようになってきている。その結果、多くの新たな結晶相が発見、同定されている。単体の金属のように構成原子が単純な場合、その構造から電子論的な考察もなされているが、微視的な測定により電子状態や相転移の考察がなされて、はじめてその結晶相の物性が理解される。その複合極限環境下での微視的な実験手段として、元素選択的に電子状

態を観測する前方散乱と、格子振動状態を観測する非弾性散乱の両方の測定が可能な核共鳴散乱法は、極めて有望である。研究対象は多岐に渡るが、たとえば GPa クラスの超高压下における金属水素化物などが挙げられる。これらの評価技術を確認することで、高水素圧、低温条件下における金属水素化物の磁気構造、電子状態の物性変化に関する研究が展開され、超高压水素圧を利用した高密度水素吸蔵合金の開発に指針を与える知見が得られると期待される。

今後、X線回折測定で実現されている複合極限環境に迫ることにより、多くのめざましい成果が期待できると考える。測定試料量が制限される高圧力下環境では、質のよい μm サイズのビームへの高度化が第一に必要である。さらに、温度や磁場などと同様にその場での圧力のモニターも必要不可欠である。以上のような特殊環境下での測定を実現していくことが将来性のある施設へと繋がる。

地球深部物質の解明

地球の内部は、おおまかには、珪酸塩鉱物からなる地殻・マントルと鉄化合物からなるコアとに別れている。鉄はこの三つすべてに含まれる唯一の主要元素であり、地殻では主に 3 価で、マントルでは 2 価で、コアでは 0 価の金属として存在していると考えられている。しかしながら、最近になって、地球の下部マントル領域 (圧力 135 GPa まで) における構成鉱物であるペロブスカイト $(\text{Mg, Fe})(\text{Si, Al})\text{O}_3$ やマグネシオウスタイト $(\text{Mg, Fe})\text{O}$ のスピン状態および価数が、圧縮特性や輸送特性などに大きく影響することが判りつつあり、これまで考えられてきたよりも複雑であることがわかり始めてきた。しかしながら、それらの測定は非常に限られており、定量的な議論ができていない。高温高压下における下部マントル構成鉱物のスピン・酸化状態の高压下でのメスバウアー分光測定による定量的な測定は、地球深部のダイナミクス (たとえばマントル対流) のモデリングに非常に大きく貢献できる。また、核共鳴非弾性散乱測定により、地球核条件である 135-365 GPa の圧力領域で、鉄合金の熱力学的パラメーターやデバイ音速などのデータを取得することは、地球核を物質科学的に解明する上で重要である。また、高温高压下での実験では、弾性散乱ピークを利用して、高压下での鉄合金の融点決定も可能となる。

地球の下部マントルを再現するには、30-140 GPa 程度の圧力を出す必要があり、このため、試料のサイズは直径 $25\mu\text{m}$ 程度の非常に小さなサイズになってしまう。また、含まれる Fe も原子数比で 5% 程度以下なので、現状の BL09XU の X線強度でもまだ不十分であり、KB ミラーによる集光光学系の整備が不可欠である。