

# SPring-8 BL09XU 評価報告

委員長 並河一道(東京学芸大学)  
梅野正隆(福井工業大学)  
角田頼彦(早稲田大学)  
前田 豊(関西外国語大学)  
Rudolf Rueffer (ESRF)

## 1. はじめに

SPring-8 BL09XU は核共鳴散乱実験用ビームラインであるが、BL13XU に表面・界面ビームラインが完成するまでは表面・界面を対象とする実験にも利用され、さらに精密X線計測実験にも利用されてきた。本報告はこのビームラインの建設以来今日までの技術的および科学的に達成した成果に対する上記評価委員会の評価報告である。評価委員会に先立って送付された参考資料に基づき各委員が事前に検討を行い、評価委員会当日には国外委員を除く全委員が出席し、施設側の担当者から上記資料に基づいて説明を受け質疑応答を行い、以下の評価項目について国外委員の意見を加味し国内委員がまとめたものである。

## 2. ビームラインと実験ステーションの技術的状況

このビームラインは核共鳴散乱実験と表面・界面構造解析実験および精密X線計測実験にという性格の異なる実験に使用されてきたが、表面・界面構造解析実験のための多軸回折計は2001年夏にBL13XUに移設された。現在は特殊バンチモード時には核共鳴散乱実験が行われ、マルチバンチモード時には精密X線計測実験が行われ、このビームラインの有効利用が図られている。

ビームライン BL09XU は、SPring-8 のリングの周長の長さと同環エネルギーの高さによって広範なエネルギー領域において低いエミッタンスが保証され、同類の第三世代光源である ESRF および APS の同種のビームラインに比べて核共鳴散乱実験にとって有利な状況にある。周期長 32mm の真空封止型アンジュレーターは、最も重要な核種である  $^{57}\text{Fe}$  に対する 14.4 keV と Ta, Tm, Kr などの核種に対し基本波で最大の輝度を与え、遷移エネルギーが 30 keV 以下の他の同位体に対しては 3 次波が対応している。60 keV 以上の遷移エネルギーに対しては 5 次波が一桁の輝度の低下で対応している。

しかしながら、既存の Si ピンポスト型高耐熱負荷分光器は熱負荷と分解能の点からこの高輝度ビームラインにふさわしい装置とはいえない。さらに、高いエネルギー領域では放射光ビームの縦発散と分光結晶の受光角が整合していないことが問題である。一方、核共鳴散乱実験にとって重要な高分解能モノクロメーターはエアパッド方式の 2 種類のゴニオメーターシステムを用いて、使用する核種に対応して実験の要請に合わせてそれぞれ適切なタイプのもを開發している。その結果、多数の

核種が試料として利用できるようになった。なかでも 14.4 keV でエネルギー分解能 2.5 meV と 3.5 meV とを結晶の並進で切り替えるシステムはよく出来ていて測定時間の有効利用に高く貢献している。さらにまた、比較的高いほうのエネルギーにおける標準となるであろう  $^{40}\text{K}$  同位体の 29.6 keV に対する低温冷却系の試みは特記されてもよい。また、検出器として高い時間分解能と高い検出効率が両立しないため、実験の特徴にあわせてそれぞれ適切なアバランシェ・フォトダイオード検出器を開発して対応している。実験ステーションに備えられた周辺装置は連続フロー冷却器とダイヤモンドアンビルセルである。これらは実験に有効に利用されている。

BL09XU の放射光ビームの優れた特性を有効利用するためには光学素子の改善が必要である。水冷の Si ピンポスト型高耐熱負荷分光器を液体窒素冷却方式のモノクロメーターに代えることにより、高分解能 X 線強度の増大が期待される。高分解能モノクロメーターの分解能は時間領域のメスバウアー分光については現状で十分であるが、核共鳴非弾性散乱の実験に対しては現状の 14.4 keV で 1.6 meV から 0.5 meV 以下にもっていくことが望まれる。ダイヤモンドアンビルセルをつかった実験を進めるためにはビームを集光することが望まれるが、さらに、核共鳴非弾性散乱の実験では集光したビームのエネルギーを走査することになるので、ビーム出射位置の動かないモノクロメーターが必要である。

### 3. 研究成果

このビームラインで達成された第一の功績は、これまでどちらかと言えば検証実験の域を出なかった核共鳴散乱の実験を利用実験の域にまで持ってきたことにある。核共鳴散乱の応用分野は、核共鳴前方散乱を主な実験手段とする超微細相互作用の研究分野と核共鳴非弾性散乱および準弾性散乱を主な実験手段とする分子動力学の研究分野に大別される。

時間領域メスバウアー分光とも呼ばれる前者は、放射性同位体元素を利用する通常のメスバウアー分光では実験技術的に困難な領域を対象とするべきである。このビームラインでは高輝度・高指向性・偏光・時間分割特性など放射光源の特徴を生かした研究が行われており、高圧下の物性測定やストロボ検出法など新しい実験技術の開発も進んでいる。ストロボ検出法は、これまで難しかった長寿命励起準位核( $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{67}\text{Zn}$  など)を研究対象とする可能性を持っている。

後者の分子動力学の研究は、特定の元素を対象とするフォノン状態密度と拡散に関する研究の他、核共鳴エネルギー分析によって核共鳴元素を持たない試料を対象とする動力学的研究がある。このビームラインでは、金属中の希薄元素や析出物を対象とした特定元素のフォノン状態密度測定が精力的に行われている他、高分子を含む溶液中の特定イオンの運動解析が行われた。核共鳴非弾性散乱によって特定の元素に固有な振動モードを解析する研究は、放射光による核共鳴散乱実験の新たな分野であり、このビームラインにおける成果は世界において先導的立場にある。

さらに、このビームラインでは NEET 現象の検証実験が  $^{197}\text{Au}$  を用いて行われた。この現象に関しては、30 年前に理論的に予見されて以来、多くの実験がなされてき

たが、このビームラインでの実験はこれまでの論争の歴史に終止符を打つ成果である。

核共鳴非弾性散乱の実験で得られる特定原子に関するフォノン状態密度は、材料の物性に大きく影響する特定の不純物や添加物の挙動に関する知見をあたえるので重要である。最近、このビームラインで行われたマグネタイトの核共鳴非弾性散乱実験は、時間領域とエネルギー領域の両方について解析するもので、超微細相互作用によって同定されるサイトを特定したフォノン状態密度を得ている。この実験は世界一の輝度を誇る SPring-8 の利点を生かした先駆的な材料研究手法で、今後の発展が期待される。

核共鳴散乱はユニークな手法で、単純に他のビームラインと比較できない要素もあるが、これまで実施された研究の一部については、かなりの成果が得られているにも関わらず、報告・発表がされていないものがあるように見える。

表面・界面の実験については、超高真空の実験ができないという装置上の制約の下で、多軸回折計が 2001 年夏に BL13XU に移設されるまでの 1997B から 2001A まで行われた実験は、X線定在波法、CTR 散乱、X線ホログラフィー、多重散乱などの表面・界面構造解析のいくつかの重要な研究課題を含んでいる。しかしながら、表面・界面グループによって出版された成果は割り当てられたビームタイムから期待されるよりは少ない。

#### 4. 共同利用・支援体制

これまで、原研ビームライン(BL11XU)も利用して核共鳴散乱実験設備および研究手法の整備・開発が行われるとともに、その応用研究が進められてきた。今後も、当分の間、開発的研究は重要で、人材およびマシンタイムの多くを費やす必要があると考える。しかし、ここで得られた成果を広く世界に開放し、応用分野を他の領域にまで広げ、ユーザーの拡大を図る必要もある。さらなる発展を期すには、他のビームライン(BL35XU と BL11XU)との棲み分けも含めて、ビームラインの総合的かつ効果的な運用が必要であろう。

ビームタイムの充足率を高くとっていることを考慮すれば、最近の課題の採択率は妥当な水準にある。しかしながら、ビームタイムを割り当てられた課題数と成果の出版数との対応が整合していない。ビームタイムを割り当てられた課題の4分の1は成果が出版されていない。また、資料にはバンチモードごとの課題の採択率が示されていないため判断はできないが、バンチモードによって採択率にかなりの違いがあるのではないか。

開発的研究は、協力研究機関・スタッフとの連携を密にして内部スタッフを中心に、今後も強力に推進する体制が必要である。しかし、今後、ユーザーを増やすためには、内部スタッフまたは習熟した外部研究者の援助なしに独立して実験を進めることも可能な体制を整えることが必要ではないか。

試料周辺装置をビームラインに整備することは利用者の成果を増やす上で重要である。ビームラインスタッフがユーザーの相談に乗り、助言をし、実験と結果の整理に助力できるようになるためには、ビームラインスタッフを増強し、ビームラインスタッ

フ自身が研究活動を行なえるようにすることが不可欠である。

## 5. 将来の発展

いろいろなエネルギー分解能をもつ、幅広い核種に対応する、いくつかの高分解能モノクロメーター群を用意しておき、あらかじめ調整しておけるようにするため、高熱負荷モノクロメーターと高分解能モノクロメーターを独立な2つの光学ハッチに分離する案は優れた考えである。固定された試料環境をあらかじめ調整できるようにしておくため実験ハッチを2つに分離する案も優れた考えである。

高熱負荷モノクロメーターは、現在の水冷方式から液体窒素冷却方式への切り替えを早急に実施すべきである。また、高性能の APD が開発されているが、その性能を十分に発揮するためにはエレクトロニクスの性能向上が必要と考える。ダイヤモンドアンビルセルを用いた高圧実験を発展させるためには集光光学系を整備する必要がある。応用の発展を促進するためには、超伝導電磁石、高圧装置、UHV システム、レーザー加熱装置などの試料回りの周辺装置を整備することも必要である。

SPring-8 の特徴を生かした実験が今までに多く行われ、核共鳴非弾性散乱をはじめ多くの優れた成果は世界的にも着目されているが、さらなる発展を期するためには、これまで核励起が観測された  $^{57}\text{Fe}$  以外の核種の応用研究も強力に推進すべきである。これらの核種の多くは放射線源などの利用が益々困難になっており、放射光光源に期待されるところは大きい。

特定の原子またはサイトに関連するフォノン状態密度を与える時間領域メスバウアー分光と核共鳴非弾性散乱を組み合わせた手法は、金属イオンを活性中心にもつ生体関連高分子などの機能の解明を目的とした研究においても重要であると考えられる。

また、表面・界面の物性やナノ構造をもつ機能材料などの研究は、放射光の威力が発揮できる分野であるので、核反射率測定なども含めて今後の開発が期待される。メゾスコピックな対象の研究手段として核小角散乱の研究も欠かせないと思われる。さらに、長い可干渉距離をもつ核共鳴散乱による X 線の光学も重要な研究課題である。

## 6. まとめ

### (1) ビームラインと実験ステーションの技術的状況

概ね良好である。高分解モノクロメーターと検出器は高い水準にある。高熱負荷モノクロメーターはピンポスト方式が障害になっており、改善の必要がある。

### (2) 研究の活性度

発表論文数が他のビームラインと比較して採択課題数に対して相対的に少ない。しかしながら、このビームラインの課題は開発的研究が多く、研究の途上にあるので、ある程度は容認できる。核共鳴非弾性散乱によるフォノン状態密度の研究と NEET はすぐれて挑戦的なよい研究であるが、研究開発の段階は終わり、応用への展開が期待される段階に入ったと判断される。応用研究の展開にともない論文数も増えるものと思われる。

(3) 利用者の支援

利用研究に必要な周辺機器が十分備わっていない。物性研究への展開を進めるためには互換性のあるものを複数揃える必要がある。マニュアル類を整備することも望ましい。また、試料の onsite 処理ができるような対応が望まれる。サポートの人材が不足している。課題の BL11XU, BL35XU との棲み分けを含め、総合的・効果的な運用を図る必要がある。

(4) 将来の技術的および科学的発展

解決を図っていく必要がある技術的課題は以下の項目で優先度の順に、 高熱負荷モノクロメーター、 ビームの集光、 光学ハッチの分割、 実験ハッチの分割である。科学的課題については、 取り扱える核種の範囲を広げて、メスバウアー分光でできるものも取り込んでいく必要がある (Fe, Eu, Sn, Sm, I, Au が普通に使えるようにする)、 適用対象を物性・ソフトマテリアル(合成ポリマー、バイオポリマー)・材料などに広げることが必要である。先鋭的研究(例えば、 $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{67}\text{Zn}$  などの長寿命核種に対するストロボスコピック法)はその応用への展開も考える必要がある。また、BL11XU, BL35XU などと BL09XU との学問的交流を図る(サイエンスについて議論する場を設ける)ことや、確立された技術に関しては利用の宣伝活動(ワークショップ、科研費の班を作ることなど)を行うことが必要である。

