

BL-16A における軟X線散乱実験について

物質構造科学研究所 久保田正人

1. はじめに

軟X線領域の放射光エネルギーを活用することにより、遷移金属酸化物や有機分子材料の研究上重要な、遷移金属酸化物の3d元素サイトの軌道状態や酸素などの軽元素の電子状態を直接捉えることが可能である。代表的な電子物性の実験手法には、光電子分光、MCD、発光分光、並びに軟X線散乱などがある。最近、PFに新たに軟X線共鳴散乱実験装置を建設し、強相関電子系酸化物などの研究を開始した。本記事では、ビームラインBL-16Aにおけるこれまでの軟X線散乱装置の整備状況や実験の現状について記す。

2. 軟X線散乱のメリット

軟X線を用いた共鳴散乱（共鳴軟X線散乱）は次の様なメリットがあり、物性研究上有用な実験手法である。1) 外場（電場、磁場）を用いた実験を行なうことが可能であり、マルチフェロイック材料や巨大磁気抵抗、電荷・軌道秩序などの外場応答による物性の振る舞いを捉えることが可能である。2) 硬X線領域に比べ軟X線領域は、軽元素の散乱断面積が大きいため、有機材料や生体材料に関するダイナミクス研究に有効である。3) 光の平均自由行程が電子と比べると非常に長いのでサンプル表面の汚染の影響を受けにくい。4) 電子を用いないのでチャージアップといった現象が生じず、局所的な振る舞いを示す絶縁体材料～遍歴的な金属材料といった幅広い物質を用いた系統的な物性研究が可能である。

建設した共鳴軟X線散乱装置により、機能を発現する中心元素サイトにおける電子状態と構造情報の両者を捉えることができるので、電子物性的、構造物性的な両方の見地に立ち、研究を遂行していくことが可能である。

例えば、強相関電子系3d遷移金属酸化物においては、 $2p \rightarrow 3d$ 遷移（L吸収端）により直接的に3d電子状態を捉えられるので、偏光依存性と組み合わせることにより（これまでの硬X線共鳴散乱（K吸収端）での知見以上に）詳細に軌道状態を解明することが可能である。また、磁気遷移も大きいので、磁気散乱実験を行ない中性子散乱とも相補的な磁性情報を捉えることが可能である。

3. 装置の説明

BL-16Aで建設した軟X線散乱装置は、大きく分けて1) 検出器系、2) サンプルゴニオヘッド、3) 冷凍機の3つのコンポーネントから構成されている（Fig. 1）。1) 検出器は、信号強度の大きさによりMCP（浜松ホトニクス）とフォトダイオード（IRT）を使い分けている。また、2 θ アーム長（サンプルから検出器までの距離）は130 mmであり、信

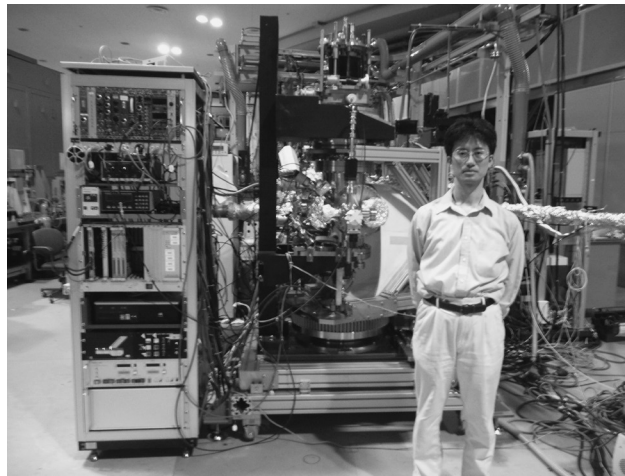


Figure 1 View of soft X-ray scattering equipment

号検出角度範囲は、0-170度である。2) サンプル位置でのビームスポットサイズは、50-100 μm （縦） \times 100-200 μm （横）である。ゴニオヘッドにおけるXYZ方向の駆動自由度を用いて、サンプル位置を光中心位置に合わせる。3) 物性の温度変化測定は、Heフロー型冷凍機を用いる。

4. 実験の遂行の仕方・手順

実験の進め方について、説明する。サンプルは、10 mm \times 10 mm（厚さ0.5 mm）の銅板にカーボンテープで装着し、サンプルホルダーに固定する。簡易的にサンプルをセットする際には、直接サンプルホルダーに固定することも可能である。低温実験においては、冷却のためヘリウムトランスファーチューブを冷凍機に挿して、液体ヘリウムをフローさせて冷却を行う（最低温度（ $\sim 10\text{K}$ ）までの到達時間は、約45分である）。目標温度に達したら、サンプルの位置調整を行う。サンプル面を規準にして半割り作業を行う。これは、下流に取り付けてあるフォトダイオードに入る光強度が（直接光の）半分の強度になるようにサンプル位置を調整する作業である。最後に、実験で用いる放射光エネルギー・偏光を選択して実験を開始する。測定は、回折計ソフトSPEC上でサンプル・検出器回転角度、信号取り込みについてコンピュータ制御しているので、マクロプログラムを用いた測定を簡便に行える。

測定例として、polystyrene and polyvinylpyridineの有機薄膜（厚さ600 \AA ）における反射率測定を示す（Fig. 2）。ドメイン構造の大きさに対応した0.005 \AA^{-1} 周期の反射率のプロファイルが観測されている。各一点ごとの観測時間は100 msecであるが、約6桁落ちの反射率領域においても明瞭な振動プロファイルが観測されている（挿絵参照）。これまでに強相関電子系の層状マンガ酸化物やマルチフ

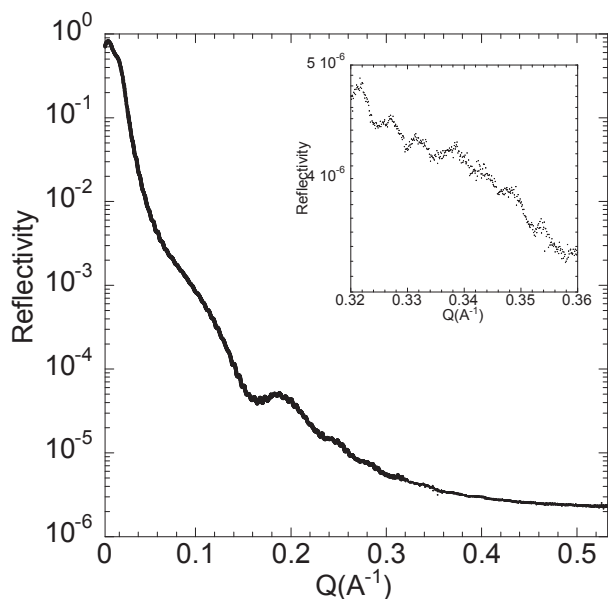


Figure 2 Reflectivity of a hybridized thin film of polystyrene and polyvinylpyridine with a photon energy of 543 eV for 100 msec. A clear periodic oscillation is observed as shown in the inset.

エロイック物質を用いた共鳴軟X線散乱による電荷・軌道秩序の観測や超格子薄膜の反射率測定も行っている。

5. ユーザー受け入れ対応について

今年度から、物質構造科学研究所（物構研）では構造物性センターが設立され、軟X線散乱実験を用いた物性研究

が益々盛んになってきている。研究を行う上で、サンプルの実験装置へのセット方法や超高真空下における実験が未経験なユーザーに対しては、軟X線散乱測定に関する実験の進め方などについて技術アドバイスも行っている。軟X線共鳴散乱実験を通じて、構造物性的観点と電子物性的観点到立ち、新たなユーザーとの研究交流を深めることに注力した活動を行っている。更に、全国のユーザーが研究利用をより行いやすくするために、サンプル位置調整の自動化、より弱い微小信号の観測、測定温度領域の拡充のための軟X線散乱装置の改良やアンジュレータと同期した共鳴軟X線散乱実験の遂行が行える実験環境を整備する予定である。今後、物構研における他の量子ビーム（中性子、ミュオン、陽電子）を用いた研究結果に対しても議論を深め、幅広い研究交流による相補的な物性の理解が進むことが期待される。

（共鳴）軟X線散乱実験を用いて新たに研究を進めたいと思った方は、メールで連絡してください（masato.kubota@kek.jp）。また、実際に装置を使って研究を始めていく中で要望などが生じたら、お気軽にご相談ください。

6. 謝辞

軟X線散乱装置の整備に関する技術的相談や初期の立ち上げでは、主に小谷佳範氏、小野寛太氏、雨宮健太氏、足立純一氏に、改良にあたっては岡本淳氏、中尾裕則氏、村上洋一氏の各方々の協力の下に進めることができましたことを、この場を借りて感謝申し上げます。