

## ユーザーぐるーぷ紹介シリーズ 核共鳴散乱ユーザーグループの紹介

兵庫県立大学大学院 小林 寿夫

### 1. はじめに

PF-AR の放射光専用化を機会として、放射光核共鳴散乱法を用いて研究を協力して行ってきた関係者が集まってユーザーグループが発足致しました。放射光を用いた無反跳核共鳴励起（メスバウアー効果）の提案がなされたのは 1971 年です。しかし、実際に放射光による核共鳴ブラッグ散乱が明確に観測されたのは、その 13 年後の 1984 年です。放射光を用いた研究分野の中でも、この実験手法自体は比較的新しいものと言えます。また、核共鳴散乱の測定には 5 keV 程度以上の大強度高エネルギー X 線が必要とされるために、国内の放射光施設においては PF-AR と SPring-8 以外の施設では研究が行われていません。そのため放射光核共鳴散乱を用いた研究自体は、現在でもポピュラーなものとは言えないかもしれません。しかし、放射性同位体線源を用いて無反跳核共鳴吸収を利用するメスバウアー分光法は、 $^{57}\text{Fe}$  原子核のメスバウアー効果測定が比較的容易なため、鉄化合物・合金研究のための実験手法として物理、化学や地球科学の分野で大きく発展してきました。一方、メスバウアー効果が観測されている元素は 40 を超えています。しかし、鉄を含まない化合物・合金研究へのメスバウアー分光法の展開は限定されています。その大きな理由は、それぞれのメスバウアー元素に対して適当な放射性同位体線源を用意しなくてはならないことにあります。しかし、大強度放射光施設の利用が可能となった現在、今までの放射性同位体線源を用いるメスバウアー分光法では測定困難な元素（核種）や、実現不可能であった測定手法（核共鳴弾性・非弾性散乱など）も可能となるなど、多くの可能性を秘めた研究分野です。

ここで、現在主として行われている時間領域での放射光核共鳴散乱測定手法では、シングルバンチもしくはセベラルバンチ運転が必要とされます。これは、核共鳴条件下においても原子核による X 線散乱強度は電子によるそれに比較して数桁以上小さいため、核共鳴散乱では放射光の短パルス性と X 線散乱過程での固有時間スケールの違いを利用することで原子核による散乱成分のみを測定しているためです。PF-AR は、常にバンチ間隔 1.2  $\mu\text{s}$  のモードで運転が行われているため、 $^{57}\text{Fe}$  (寿命:  $\tau_0=141\text{ ns}$ ) や  $^{119}\text{Sn}$  ( $\tau_0=25.6\text{ ns}$ ) といった励起状態の寿命の長い原子核を用いた電子状態の研究（核共鳴前方散乱法）に適した施設となっています。

本ユーザーグループの責任者は、瀬戸誠先生（京大）から 2007 年に私に引き継がれています。国内には PF-AR と

SPring-8 以外に測定可能な施設が存在しないため、本ユーザーグループのメンバーのほとんどが、SPring-8 の核共鳴散乱研究会のメンバーと重複しています。そのため、ユーザーグループの活動としては、合同で年 1 回の研究会を行っています。このユーザーグループのメンバーによって主として行われている研究は、核共鳴散乱過程の基礎的研究、核共鳴散乱測定のための要素技術研究及びこの手法を直接利用した凝縮系や地球惑星科学の研究など幅広い分野に渡っています。また、電子遷移による核励起という原子核物理の研究も行われています。

### 2. どのビームラインを使って研究を行っているのか

前述しましたように、現在国内で放射光核共鳴散乱実験が行える施設としては実質的に PF-AR と SPring-8 だけです。PF-AR では、1990 年に世界に先駆けて核共鳴散乱専用 X 線アンジュレータ・ビームライン AR-NE3 を建設し、多くの先端的な研究成果を生み出してきました。しかし、2008 年 3 月をもって、AR-NE3 専用ビームラインとしての利用は終了となりました。その後、2009 年からは新 AR-NE1A で核共鳴散乱法が利用できるようになっています。このステーションでは、これまでの凝縮系の研究だけでなく地球惑星科学的研究のための実験環境が整備されてきています。一方、核共鳴散乱への応用を想定した、高エネルギー X 線検出用高速シンチレーション検出器と、Si-APD リニアアレイ検出器の開発研究は BL-14A で行われています。

### 3. どのような測定環境が整いつつあるのか

現在の AR-NE1A ステーションでは、KB ミラーを用いたビーム集光により AR-NE3 でも行われていた超伝導マグネットと加圧装置であるダイヤモンド・アンビル・セル (DAC) を組み合わせた (図 1) 低温・高圧力・強磁場という多重極限環境下での  $^{57}\text{Fe}$  核共鳴前方散乱測定が可能となってきています。Si-APD 検出器の最適化などにより

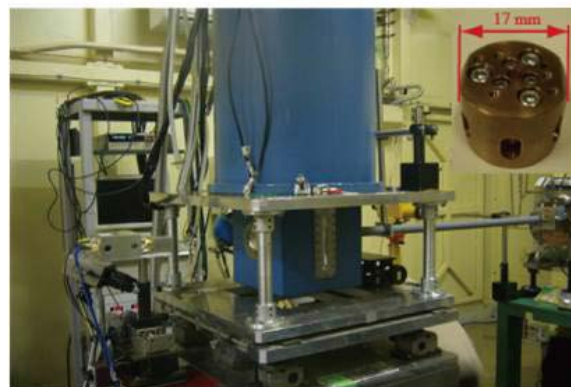


図 1 超伝導マグネットとミニチア DAC。

核共鳴前方散乱時間スペクトル測定の高効率化も行われています。さらに、BL-13Aでのレーザー加熱ダイヤモンド・アンビル・セル(LHDAC)を用いた高温・高圧力下X線回折と核共鳴前方散乱法との統合も目指しています。X線回折実験用に設置されたLHDACの回折実験用架台上で合成された試料に対し、大きな架台移動や変更作業を行わずに同一試料に対する $^{57}\text{Fe}$ 核共鳴前方散乱時間スペクトルの測定を可能にする改造を行ってきました。X線回折実験用の大型架台を電動化し、X線光学系も回折実験用のモノクロ・メータと核共鳴散乱実験用の高分解能モノクロ・メータを両実験モードでの最適値へと電動で再現することは原理的には可能です。現在、高温・高圧力下でのX線回折パターンと $^{57}\text{Fe}$ 核共鳴前方散乱時間スペクトルの連続測定を可能とするべく環境整備を行っています。

#### 4. どのような研究が繰り広げられているのか

集光した入射X線を用いることが可能な、AR-NE1Aステーションにおける核共鳴散乱法を用いた凝縮系研究でのキーワードは極限状態です。高圧力や強磁場などの環境変数を変えることによる極限環境下と、固体の表面や界面などの次元性の低下による極限状態での元素選択した電子状態の研究を行っています。

例えば、正方晶 $\text{AFe}_2\text{As}_2$  ( $\text{A}=\text{Sr}, \text{Ba}, \text{Eu}$ )化合物は、最近発見されたFeAs系高温超伝導体の母物質の一つです。常圧力下では約200 K以下で斜方晶への構造変態をとめない反強磁性状態へと転移します。この相転移は圧力で抑制され磁気秩序が不安定になる(磁気量子相転移)近傍で超伝導状態が低温で出現します。周期性の乱れを導入することなく混成・バンド幅を制御し化合物の基底状態を変化させることが可能な圧力は、超伝導機構を研究する上において最も重要な変数の一つです。さらに、この超伝導状態の出現にはFeの3d電子が直接関与していることから、AR-NE1Aステーションで実現されている多重極限環境が国内外で最も適した実験環境です。現在、単結晶試料を用いた多重極限環境下での $^{57}\text{Fe}$ 核共鳴前方散乱の測定結果から、超伝導状態と磁気秩序状態の共存など興味ある現象が観測されています。

固体の表面や界面では、対称性の低下や界面での異種原子との相互作用にとめない、しばしば固体中心とは異なる物性が発現します。そのひとつの興味ある例が、表面・界面での磁気キャンピングです。表面・界面での磁気キャンピングとは、膜内部では面内が磁化容易軸であるのに対し、表面・界面においては面直磁化を示す現象です。鉄を中心にした金属・金属酸化物の表面・界面での磁気構造を明らかにすることを目的とした研究も進められています。現在、AR-NE1Aにおける核共鳴散乱測定法を用いて、Si(111)上の鉄薄膜について実験を行い、表面磁気キャンピングを観測することに成功しています。

これらの実験は、PF-ARの特徴であるバンチ間隔1.2  $\mu\text{s}$ のモードによる運転と核共鳴励起確率の入射X線偏光依存性を利用した成果です。すなわち、AR-NE1AではKBミ

ラーによる集光ビームを利用できることで、極限状態での測定では第三世代放射光施設に匹敵する感度での実験が行われています。

マンツルの代表鉱物中の鉄の価数変化や磁気構造またスピン状態変化が地球規模のダイナミックな現象に関連していることが示唆されています。これまでの地球惑星科学における高圧力下でのその場観察手段の主流となっているX線回折実験からは、極僅かな構造変化を読み取ることが困難なため、局所プローブである $^{57}\text{Fe}$ 核共鳴前方散乱が高圧力下での有用な実験手法として着目されています。特に、LHDACを用いた高温高圧力環境下で合成された試料に対しても、様々なその場観察実験を総合して試料を評価することが望まれています。現在でも、PFでは高圧力下での合成試料を複数のステーションに利用申請を行って、X線回折実験、分光実験、マイクロイメージング等のデータを取得することは不可能ではありませんが、大変効率が悪い状況です。そこでAR-NE1Aでは、回折実験用に設置されたLHDACの回折実験用架台上で合成された試料に対し、大きな架台移動や変更作業を行わずに同一試料に対する核共鳴前方散乱測定を可能にする改造が行われ、1時間以内に二つの実験モードを切り替える整備が進んでいます。今後、高温高圧力環境下でのX線回折と $^{57}\text{Fe}$ 核共鳴前方散乱の複合測定が実現し、マンツル鉱物中の鉄の価数変化と地球規模のダイナミックな現象との相関の解明が期待されています。

#### 4. PFへの要望

十数から数十 keVの高輝度高エネルギーX線を高分解能モノクロ・メータで数 eVまで単色化して入射X線として用いる核共鳴散乱においては、SPring-8でのTopUp運転の実現により高分解能モノクロ・メータの安定性の向上という大きな恩恵を受けています。その結果、測定の高効率化などが実現されてきました。現在、KEKつくばキャンパスでは、PF-AR直接入射トンネルを建設するための工事が始まっています。その結果、PF-ARでもTopUp運転が可能になると伺っていますが、いつごろ実現されるのでしょうか。できる限り早期でのTopUp運転実現を要望いたします。

#### < PFからの回答 >

PF-ARのTop-Up運転の有効利用をご計画いただきありがとうございます。現在KEKキャンパス内で進行中のPF-AR直接入射トンネル工事は、PF、PF-ARおよびSuperKEKBへの多リング同時入射を実現するための工事ですが、その結果、PF-ARのTop-Up運転が可能となる予定です。現在の予定では、平成28年4月頃からのTop-Up運転開始を目指しています。

## ユーザーぐるーぷ紹介シリーズ 低速陽電子ユーザーグループ紹介

東京理科大学 長嶋泰之

電子の反粒子である陽電子は、古くから金属結晶のフェルミ面の観測や金属や半導体中の空孔型格子欠陥の検出に用いられ、多くの研究成果をもたらしてきました。真空中や気体中、あるいは絶縁体中におけるポジトロニウム（電子と陽電子の水素原子様束縛状態）の研究も行われ、量子電気力学の検証から原子・分子、固体物理に至るまで、様々な研究が展開されています。

陽電子消滅の研究では通常、 $\beta^+$ 崩壊する放射性同位元素から放出される陽電子が用いられます。このような放射性同位元素は多数存在しますが、陽電子消滅の実験で利用されるのは $^{22}\text{Na}$ です。 $^{22}\text{Na}$ から放出される陽電子の放出エネルギーは、 $\beta^+$ 崩壊の特徴を反映して0から546 keVまで広がっています。均一な物質内部の性質を調べる場合にはこのままでも利用可能ですが、固体表面を調べたり、あるいは、原子・分子との相互作用を調べるには不向きです。このため、焼鈍して格子欠陥を除去したタングステンに陽電子を入射して減速し、表面から3 eV程度のエネルギーで放出させて加速し単色ビームとして利用する技術が、1970年代から開発されてきました。こうして得られる陽電子ビームは、低速陽電子ビームと呼ばれます。

KEKの低速陽電子実験施設には、この減速技術を利用した低速陽電子ビーム発生装置が設置されています。ただし、 $^{22}\text{Na}$ 線源から放出される陽電子ではなく、ライナックで加速した電子をタンタルに入射し、その制動放射の対生成によって得られる陽電子を用いています。このようにして得られる低速陽電子ビームは、次のような長所を持っています。

- (i) 強度が $^{22}\text{Na}$ を用いる低速陽電子ビームと比べて数桁高いこと。KEK低速陽電子実験施設のビームは、ミュンヘン工科大学の原子炉を用いて得られる高強度低速陽電子ビームに次いで、世界第二位の強度を有しています（ミュンヘン工科大学の低速陽電子ビームの実質的な強度は公表値よりも低いという噂があり、それが正しければ、KEKのビーム強度は世界一、ということになります）。
- (ii) ライナックの特性を反映してパルス状であること。
- (iii) 電源を切れば陽電子が発生しなくなるため、安全であること。
- (iv)  $^{22}\text{Na}$ 線源の供給体制を気にせずに実験が可能であること。これは我々陽電子のユーザーにとって大変重要なことです。現在、 $^{22}\text{Na}$ を供給している施設は南アフリカにある加速器施設1箇所のみです。今後安定して供給が行われるかどうか、定かではなく、その供給体制は、陽電子消滅の研究に携わる研究者にとって大きな不安要素です。KEKの低速陽電子実験施設が存続する限り、そのような不安を全く考えることなく、安心して陽電子消滅の研究に携わることができます。

低速陽電子UGが現在行っている研究は下記の通りです。

### (1) 陽電子線回折

陽電子を表面にすれすれの角度で入射すると、電子と異なって表面で全反射されるため、表面第1層の情報が得られます。この手法は反射高速陽電子回折法（reflection high-energy positron diffraction, 略してRHEPD）と呼ばれて来ましたが、低速陽電子実験施設の高輝度高強度ビームを用いることにより、全反射を生かした一段と質の高いデータが得られるようになり、全反射高速陽電子回折（total reflection high-energy positron diffraction, 略してTRHEPD）という新しい呼び名が提唱されています。入射角度を調整すれば、再表面から2層目、3層目と奥に向かって構造を確定することが可能です。最近、この方法を用いて、他の手法では決定できなかったGe(001)表面上の(4x2)Ptナノワイヤ表面の構造を決定することに成功しました。TiO<sub>2</sub>(110)-(1x2)表面やAg(111)表面上のシリセンの構造も結果が出ています（それぞれ、投稿準備中、および投稿中）。

### (2) ポジトロニウム負イオン光脱離実験

陽電子1個と電子2個から成る3体の束縛状態であるポジトロニウム負イオンの性質を調べます。たとえば高強度レーザー光を照射して電子1個を剥ぎ取って、ポジトロニウムが形成される過程を調べています。これが可能なのは、低速陽電子施設のビームがパルス状で、パルスレーザーを同期させることが可能だからです。2011年には、ポジトロニウム負イオンの光脱離を初めて実現することに成功しました（<http://legacy.kek.jp/ja/news/highlights/2011/Positronium.html>）。ポジトロニウム負イオンの光脱離では共鳴が起こることが理論的に予測されており、現在、その検証実験を行っています。また2012年には、ポジトロニウム負イオンを電場で加速してから光脱離させることによって、エネルギー可変ポジトロニウムビームを作ることにも成功しました（<http://www.kek.jp/ja/NewsRoom/Release/20120620140000/>）。現在、このポジトロニウムビームを使った応用研究を目指しています。ポジトロニウムビームを固体表面にすれすれの角度で入射してTRHEPDと同様な回折像を撮ることも可能になるかもしれません。

### (3) ポジトロニウム飛行時間測定

低速陽電子ビームを固体に入射すると、しばしばポジトロニウムが放出されます。この現象を調べて固体表面を調べる研究が展開されています。

低速陽電子UGでは、同じメンバーが低速陽電子UAのメンバーにもなって共同利用の研究体制を作っています。この施設のスタッフは兵頭俊夫さん、和田健さんのお二人です。この体制になってから、施設が整備され、活発に共同利用できるようになりました。この施設がスタッフや資金の面でさらに充実することを望みます。

今後はこの施設を利用して、さらなる研究を展開し、世界に発信していきたいと考えています。