

## 回折・散乱に関わる共用ビームラインの再編に向けて

公益財団法人高輝度光科学研究センター

放射光利用研究基盤センター 坂田 修身、杉本 邦久

今井 康彦、関口 博史、佐藤 眞直、木村 滋

国立研究開発法人理化学研究所 放射光科学研究センター

矢橋 牧名

### Abstract

2022年度からの供用が予定されている回折・散乱を中心とした共用ビームラインの再編の現状を報告する。基盤的な分析を行う Production 装置群について、最新技術による計測の高性能化に加え、試料準備から解析に至る自動化や遠隔利用に取り組んでいる。既存および将来の潜在的な利用者の研究や開発のアクティビティの向上や産業利用・学術利用の融合を進めた産学連携の促進も目指している。また、ex-situ 構造解析の重要性を認識した上で、材料・製品開発というアウトプットにつながる、オペランド構造解析のニーズへの対応を進めている。新規整備、または BL の移設を伴う大幅な高性能化を実施する装置について概要を紹介する。

### 1. はじめに

2018年度に行われた文部科学省による SPring-8/SACLA の中間評価を受け、高輝度光科学研究センター (JASRI)・理化学研究所 (理研) では、ビームライン (BL) の再編計画を立案し、SPring-8 ユーザー協同体 (SPRUC) からのフィードバックを頂きながら実施にあたっている<sup>1)</sup>。共用 BL の大規模再編の第 1 弾として、2020年度から 2021年度にかけて、HAXPES 装置の集約と高性能化 (BL09XU)、核共鳴散乱利用基盤の高性能化と非弾性 X 線散乱との連携強化 (BL35XU)、高エネルギー X 線イメージング計測基盤の拡充 (BL20B2) を行った。これらはほぼ計画通りに実施され、2021B 期からの利用再開に向けて順調に立ち上げが進んでいる。

本稿では、2022年度からの利用が予定されている、回折・散乱を中心とした共用 BL の再編計画 (ここでは第 2 弾と呼ぶ) について、狙いや最近の取り組みなどについて報告する。本計画は、所内ワーキンググループによって取り纏めが行われた。この骨子は、2021年 3 月 6 日の SPRUC 第 3 回 BLs アップグレード検討ワークショップにおいて SPRUC に提示され<sup>2)</sup>、複数の SPRUC 研究会からフィードバックを頂いた。これらも踏まえながら、最終仕様をほぼ決定し、実際の整備に着手するところである。

### 2. 再編の狙い

これまで、共用 BL における装置の新設や更新は、個々の外部資金と連動するかたちが一般的であった。従って、その時々利用のトレンドは個別には反映されるものの、全体としてみた時の最適なポートフォリオの検討は必ずしも十分ではなかった。また、産業利用については、2000 年代より、産業利用に特化した 3 本の共用 BL を設置してその振興にあたり、大きな発展をみた。一方で、最近では産業と学術の利用の融合が進んでおり、独立した産業 BL を維持するデメリット (例：リソースの細分化) も目立つようになってきた。

これらの分析は、回折・散乱関連の BL についてもそのまま当てはまり、今回の再編計画の検討の際にも十分に考慮しながら、基本的な方針が立案された。第 1 に、基盤的な分析を行うとともに、幅広い成果を目指し、各手法を高精度・ハイスループット化を目指す Production 装置群について、俯瞰的なポートフォリオを作成しながら、個々の装置の高性能化を行うこととした。既存の利用者のみならず将来の潜在的な利用者のベネフィットも考慮している。技術的には、最新技術を投入した計測の高性能化を図るとともに、自動化 (ビーム照射時のみならず、試料の準備から計測、解析に至る一連の流れを対象)、遠隔利用にも十分に

対応する。第2に、産業利用・学術利用の融合を進め、産学連携を促進する。このために、従来の産業利用BLの境界条件を一旦取り払って、大きなリソースの中で検討を行った。

また、今回の再編では、材料・製品開発というアウトプットにつながることを重視した。材料・製品開発は、材料の探索、要素・素子の試作、製品試作、製品化という一連のサイクルで実施されるが、各フェーズにおいて放射光を利用した分析・解析の役割はますます重要になってきている。これまで広く使われているex-situ 構造解析により、基本的な結晶構造や機能・物性がそれぞれ調べられてきた。現在、これらに加えて、オペランド構造解析や材料製造過程での構造解析のニーズが非常に高まっている。これらへの対応を進める。

### 3. 高性能化

図1に、再編後の装置群の見取り図を示す。参考のために、現行の再編前の装置との対応も示した。これらの装置群を利用して、物質・材料の新規開発の基盤となる、バルク・薄膜・粉末の結晶構造や局所原子配列をex-situ だけでなくオペランド計測を駆使して解

明し、高機能材料の開発に貢献する。特に、新規製作またはBLの移転を伴う大幅な高性能化を実施する装置として、i) 高分解能粉末・PDF 構造解析装置(仮称)、ii) 自動単結晶構造解析装置(仮称)、iii) 回折計測汎用フレーム(仮称)、iv) 6軸回折計があり、それぞれの概要を以下に記載する。

#### 3.1 高分解能粉末・PDF 構造解析装置(仮称)

従来より、粉末X線回折には専ら偏向磁石光源が利用されてきた(代表例:BL02B2)。本装置は、アンジュレータBLに新たに装置を設置し、高輝度X線の特徴を活かしたサブミリ秒オーダーの構造変化を捉える。従来観察できなかった合成過程や、材料の動作時での計測を可能とする。さらに、局所的な乱れを含む粉末結晶性材料を対象とした局所原子配列構造の評価・解析も行う。高Q領域( $45 \text{ \AA}^{-1}$ )に至るまで高い角度分解能で計測するため、約70 keVまでの高エネルギーX線の利用を想定し、CdTeの2次元検出器を選択した。BL02B2で利用している検出器と比べると、量子効率が30 keVで約4倍、70 keVで約15倍になる。さらに、利用者の測定要望に応じて短いカメラ

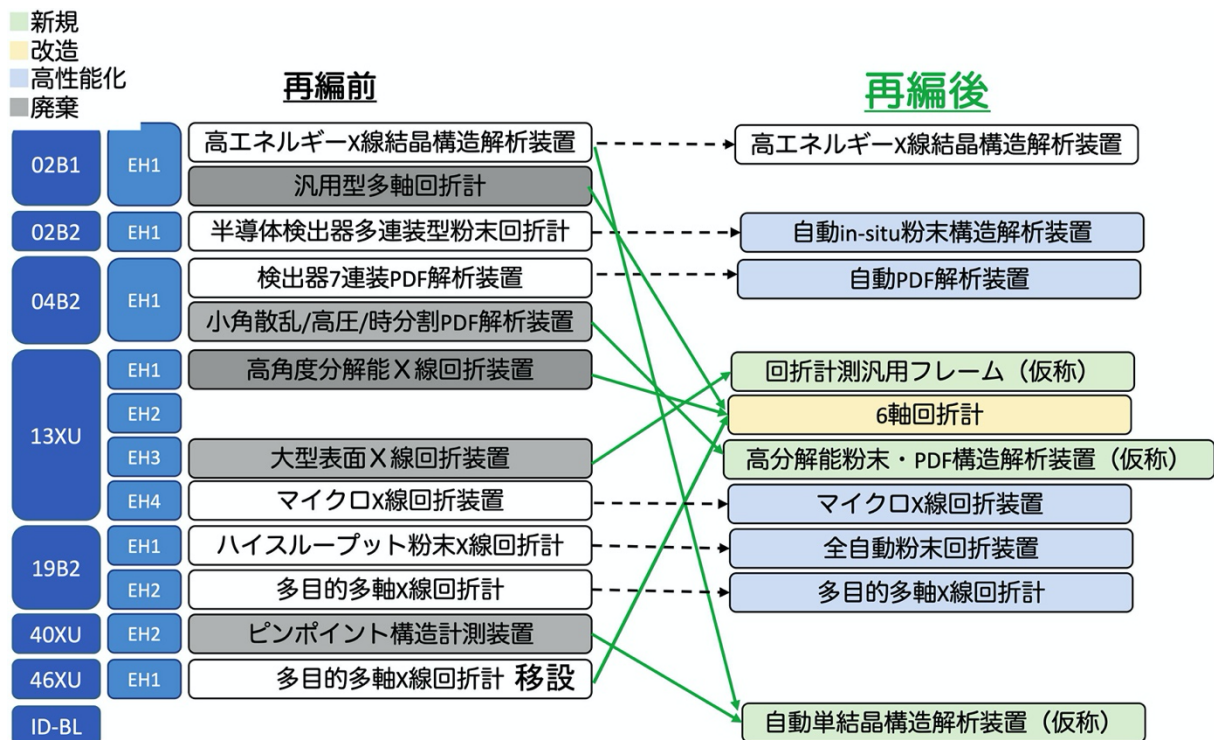


図1 再編前後の装置の対応図。実線：新規整備またはBLの移設を伴う大規模な高性能化。破線：装置の移設を伴わない高性能化。

長への自動変更や、検出器の非対称配置などにも柔軟に対応できるような装置構成をとる。また、十分広い試料周辺空間を確保する。試料環境の例として、低温／高温ガス吹付装置を利用することにより 90–1100 K までの温度制御、クライオスタット (>5 K)、電気炉 (<1800 K) など温度制御装置があり、試料交換はもとより、すべての機器の退避、交換は自動で行える機構を採用する。本装置は、BL13XU の実験ハッチ EH3 に設置予定であり、2022B 期からの利用開始を計画している。

### 3.2 自動単結晶構造解析装置 (仮称)

材料開発の初期段階の分子構造決定や、最終段階のデバイス製品内部の微細構造を解明するため、自動単結晶構造解析装置を整備する。特に、ガス雰囲気・温度制御装置を整備することにより、in-situ 測定を可能にし、生産プロセスの向上に貢献する。技術的には、マイクロメータサイズの試料の精密自動構造解析、試料自動交換システム、CITIUS 検出器を活用した高ダイナミックレンジ・高フレームレート測定という特徴を持つ。また、主軸が鉛直軸と平行なデザインを採用し、回転に伴う試料位置の偏心をキャンセルさせる方法を開発中である。将来的には、ナノ集光 X 線も利用できるようにする。アンジュレータビームライン BL15XU (2021 年 10 月から理研 BL に転換) に装置を設置し、2023 年度からの供用を目指している。

### 3.3 回折計測汎用フレーム (仮称)

オペランド計測や製造プロセスを模擬した環境などの試料環境を搭載して計測できるフレームを提供する。従来の 4 軸、あるいは 6 軸といった多軸回折計を採用する場合、試料空間の制限や回転中心の一致精度の向上が難しい。そこで、試料ゴニオメータとしてはヘキサポッドを利用し、X 線検出器はロボットアームに搭載することで、このような課題を克服することを検討している。BL13XU EH2 への導入を予定している。

なお、現在のところ、BL13XU EH2 は、利用者が計測装置一式を持ち込んで使う、所謂オープンハッチ的な使い方が専ら行われているが、今回の再編に伴い、他の BL に別途オープンハッチを整備するよう準備を進めている。

### 3.4 6 軸回折計

産業利用ビームライン BL46XU に設置されている多軸 X 線回折装置について、2021B 期終了後に BL13XU EH1 に移設予定である。従来の一般的な X 線回折・散乱測定のみならず、微小角入射 X 線回折や反射率測定による薄膜・表面・界面の構造評価、X 線回折による残留歪み測定が可能となる。試料周辺機器の高性能化も実施する。2022A 期の 6 月頃から装置利用の再開を予定している。

なお、BL46XU は、BL09XU に続く第 2 の HAXPES 専用 BL として、現在高性能化の検討を進めている。

## 4. おわりに

今回は、回折・散乱に関連した新規の装置や、BL の移転を伴う装置を中心に紹介したが、既存の BL で継続して利用される装置についても着実な高性能化を実施している。また、小角散乱、高圧関連、先端イメージング、高エネルギー利用、3DXRD などについても今後検討を行う。

最後に、本計画を契機に、産業ユーザーと学術ユーザーによる、同一の BL・装置の利用が開始される。これに関連して、利用制度の見直しも実施している。これについては、機会を改めて報告を行う。

## 参考文献

- [1] SPring-8/SACLA 利用者情報 **25** (2020) 259-261.
- [2] SPring-8/SACLA 利用者情報 **26** (2021) 152-158.

### 坂田 修身 SAKATA Osami

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0803 ext 3932  
e-mail : sakata.osami@spring8.or.jp

### 杉本 邦久 SUGIMOTO Kunihisa

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0803 ext 3428  
e-mail : ksugimoto@spring8.or.jp

今井 康彦 IMAI Yasuhiko

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0803 ext 3478  
e-mail : imai@spring8.or.jp

関口 博史 SEKIGUCHI Hiroshi

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0803 ext 3110  
e-mail : sekiguchi@spring8.or.jp

佐藤 真直 SATO Masugu

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0924  
e-mail : msato@spring8.or.jp

木村 滋 KIMURA Shigeru

(公財) 高輝度光科学研究センター  
放射光利用研究基盤センター  
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0803 ext 3726  
e-mail : kimuras@spring8.or.jp

矢橋 牧名 YABASHI Makina

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター  
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1  
TEL : 0791-58-0802 ext 3811  
e-mail : yabashi@spring8.or.jp