

ビームライン再編後のBL35XUにおける核共鳴散乱アクティビティ

公益財団法人高輝度光科学研究センター

精密分光推進室 永澤 延元、依田 芳卓、パロン アルフレッド

Abstract

SPring-8 共用ビームラインBL09XUで実験されていた核共鳴散乱アクティビティは、2021年にビームライン再編によってBL35XUへ移動した。高フラックス化をはじめとした移設による様々な利点を活かして、移設後も活発なユーザー利用が行われている。本稿ではビームライン再編後の核共鳴散乱アクティビティの成果について紹介する。

1. はじめに

核共鳴散乱は1997年にBL09XUで始まった、SPring-8において最も歴史のあるアクティビティの一つである。核共鳴散乱実験はBL11XU (QST)、BL19LXU (理研) においてもひとつの手法として行われているが、共用ビームラインとしてはBL09XUにて様々な成果が創出されてきた。

この核共鳴散乱アクティビティは、共用ビームライン再編^[1,2]に伴い2021年にその活動拠点をBL09XUからBL35XUに移動することとなった。ビームライン再編計画はSPring-8全体の成果創出の最大化及び利用支援体制の強化を目的として2019年度から検討が開始され、先陣を切って核共鳴散乱アクティビティの移動が行われた。予定通り2021A期までに装置移設、コミッショニングを終了し、2021B期からユーザー利用を再開している^[3]。BL35XUに導入されている短周期アンジュレーターは特定の入射エネルギーを除き2倍以上のフラックスを供給することが可能であり、今回の移設はスペクトルの測定に時間がかかる核共鳴散乱実験においてシグナルの増加、S/N比の向上をもたらした。またBL35XUの複数のハッチに高分解能モノクロメーターやスペクトロメーターを常設することで実験核種や測定手法の切り替えに必要な時間を短縮し、ビームタイムの効率的な利用が可能となっている^[1,3]。本稿では、ビームライン再編後のBL35XU核共鳴散乱アクティビティで得られた成果を紹介する。

2. 準弾性散乱

分子や原子の拡散などミクロなダイナミクスを調べることが可能な準弾性散乱においても核共鳴散乱をプローブにした手法が存在する。これまで核共鳴準弾性散乱はAPD検出器を用いた時間領域干渉法^[4]によって実験が行われており、シグナル効率を高めるために⁵⁷Fe₂O₃を用いたマルチライン γ 線時間領域干渉法がSPring-8で開発されている^[5]。BL35XU移設後は分光器を常設し、先に述べたアンジュレーターによるフラックス数増加の恩恵も受けたことでユーザーに効率的な測定環境を提供している^[6]。その一方で、純核ブラッグ散乱^[7]と高いダイナミックレンジを持つ2次元検出器CITIUSを組み合わせるエネルギー領域準弾性散乱法が東北大学の齋藤氏、理研等の共同グループによって開発され^[8]、BL35XUにて利用可能となった^[9]。この γ 線準弾性マルチライン分光法では時間領域干渉計を用いた方法とは異なる時間スケールのダイナミクスを測定可能にただけでなく、最大17.4kHzのフレームレートを持つ高速2次元検出器によって一度の計測で運動量トランスファー q について全領域のスペクトルを収集できる (図1)。これにより試料の異方的ダイナミクスや異なる運動量領域を一度に観測できるようになった。

3. 時間窓を用いた放射光メスbauer分光測定

2009年に瀬戸氏によって開発された時間窓を用いた放射光メスbauer吸収分光^[10]は放射光のパ

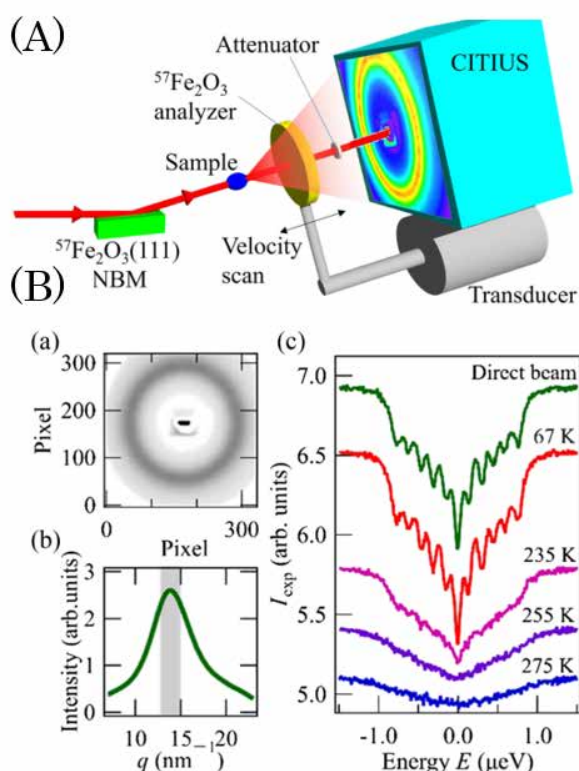


図1 (A) γ 線準弾性マルチライン分光法の模式図 (B) ポリブタジエンを用いた回折スペクトルと準弾性吸収スペクトル。(a) 2次元回折データ (b) 235 Kで測定された散乱強度の q 依存性 (c) 前方散乱と、 $q = 14 \text{ nm}^{-1}$ で測定された各温度の準弾性吸収スペクトルの温度依存性。(どちらも文献9より引用)。

ルス構造と原子核励起の長い寿命を利用することで放射線同位体線源を用いずにメスbauer分光測定を可能にした、SPRING-8独自で発展を続けてきた測定手法である。放射光のバンチ構造を利用して超微細相互作用を測定する手法はこれ以外にも核共鳴前方散乱^[11,12]が存在するが、核共鳴前方散乱測定は複数の核準位によるエネルギー差が時間スペクトルに干渉パターンとして現れるのに対し、放射光メスbauer吸収分光測定では透過体と散乱体の共鳴吸収をエネルギースペクトルとして観測できる。この手法がもつ独自のエネルギー、時間スケールを巧みに利用して、近年では異常金属相と格子振動、価数揺らぎの相関を直接観測した研究結果が報告されている^[13]。なお、この研究については利用者情報誌でも紹介されている^[14]。

BL35XUへ移設後の放射光メスbauer吸収分光は ^{151}Eu 、 ^{161}Dy 、 ^{61}Ni 、 ^{193}Ir 、 ^{174}Yb などの核種で

測定が行われてきた^[15-17]。BL35XUの高いフラックスによって従来の測定が高効率・高精度で行えるようになっただけでなく、高フラックスを活かした新たな手法開発も行われており、放射光メスbauer吸収分光測定に散乱過程のエネルギー依存性も追加した測定も開発されている。この測定は散乱体が核共鳴励起した後の脱励起過程を測定している。具体的には、 γ 線の他に蛍光X線や内部転換電子も検出しており、これらの過程で放出されるイベントのエネルギーはそれぞれ異なる。京大複合研の北尾氏らのグループはこのエネルギーの違いに着目し、2つの高速マルチチャンネル・スケーラー (MCS) と Amplitude-to-Time-Converter (ATC) を組み合わせた計測回路系によって計測した散乱エネルギーの分光を可能にしている^[18]。この報告では応用例として、 ^{151}Eu メスbauer分光測定において散乱体Eu-Cr-EuF $_3$ の薄膜状化合物の厚み方向のスペクトルの違いを示している。

4. 核共鳴非弾性散乱

BL35XUへの移設後は前述の短周期アンジュレータによる強度向上だけでなく、精密空調によるモノクロメーターの安定性の向上によってフラックスの増加以上の恩恵を受けている。常設された高分解能モノクロメーターを用いていくつかの核種 (^{57}Fe 、 ^{119}Sn 、 ^{161}Dy) についての核共鳴非弾性散乱測定^[19] (特に生物分野においては核共鳴振動分光測定、以下NRVS、と呼ばれている) が行われており、その成果も報告され始めている^[20-22]。ここでは生物分野での研究例を紹介する。カテコールジオキシナーゼは土壌に広く分布する細菌などに含まれる芳香環化合物を分解する酵素で、地球の炭素循環において重要な役割を果たしていると考えられている。Solomon氏らの研究グループはエクストラジオール型 (EDO) とイントラジオール型 (IDO) の2種類のこの酵素が異なるカテコール環開裂を行うメカニズムについて研究を行い、NRVSと密度汎関数計算を組み合わせることでその中間体の評価に成功している^[20] (図2)。

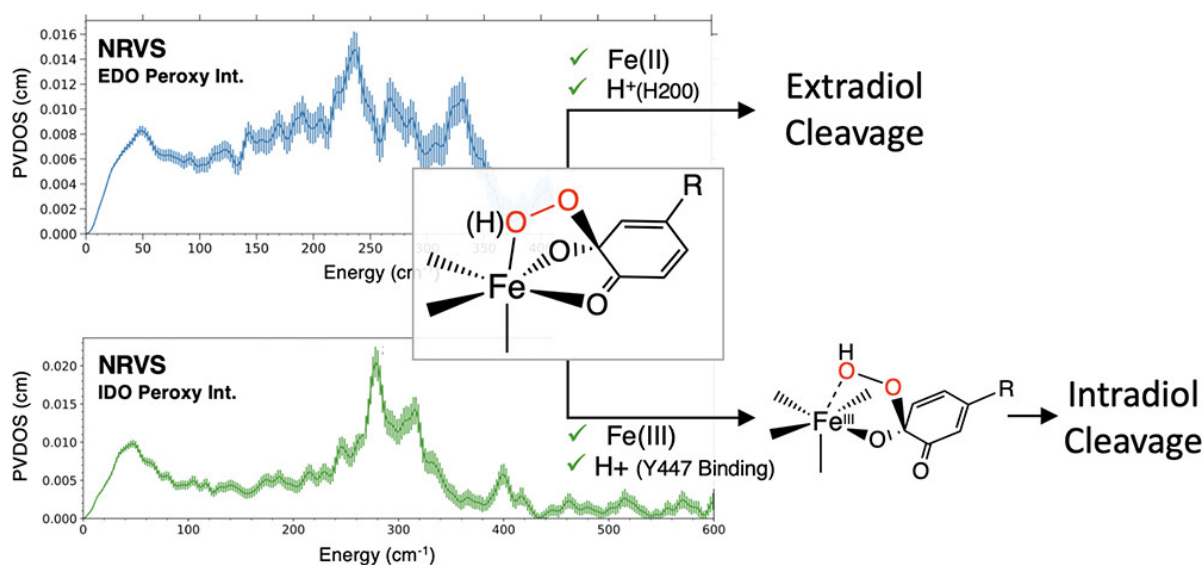


図2 NRVSによって得られた、エクストラジオール型 (EDO) とイントラジオール型 (IDO) のカテコールジオキシゲナーゼによるそれぞれのO₂中間体の⁵⁷Fe部分振動状態密度 (文献20より引用)。

5. 最後に

本稿でビームライン再編によって高フラックス化・効率化が行われた核共鳴散乱アクティビティのその後の活動と成果を紹介した。ここで述べた様に、ビームラインの移設によって従来の測定の高効率化・高精度化だけでなく、高フラックスであることを活かした新たな手法開発も行われている。

本稿では詳細を触れなかったがBL35XUのアンジュレーターでは利用できないX線エネルギー(<14keV、29–43keV)についてはBL19LXUのJASRI共用枠にて実験が可能である。核共鳴散乱測定に興味のある方は、是非ビームライン担当者にコンタクトしていただきたい。

参考文献

- [1] Y. Sakurai, M. Yabashi: *SPring-8/SACLA Information* **25** (2020) 259.
- [2] O. Sakata, et al.: *SPring-8/SACLA Information* **26** (2021) 261.
- [3] Y. Yoda, et al.: *SPring-8/SACLA Information* **26** (2021) 450.
- [4] A.Q.R. Baron, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997) 2823.
- [5] M. Saito, et al.: *Sci. Rep.* **7** (2017) 12558.
- [6] R. Mashita, et al.: *ACS Macro Lett.* **13** (2024) 847.
- [7] G.V. Smirnov, et al.: *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **9** (1969) 123 [*JETP Lett.* **9** (1970) 70].
- [8] H. Nishino, et al.: *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A* **1057** (2023) 168710.
- [9] M. Saito, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **132** (2024) 256901.
- [10] M. Seto, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 217602.
- [11] J. B. Hastings, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **66** (1991) 770.
- [12] U. van Bürck, et al.: *Phys. Rev. B* **46** (1992) 6207.
- [13] H. Kobayashi, et al.: *Science* **379** (2023) 908.
- [14] H. Kobayashi: *SPring-8/SACLA Information* **28** (2023) 232.
- [15] R. Masuda, et al.: *Hyperfine Interact.* **243** (2022) 17.
- [16] S. Hayami, et al.: *J. Phys. Soc. Jpn.* **92** (2023) 033702.
- [17] Y. Kinoshita, et al.: *New Phys.: Sae Mulli* **73** (2023) 1145.
- [18] S. Kitao, et al.: *J. Phys.: Conf. Ser.* **2380** (2022) 012136.
- [19] M. Seto, et al.: *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 3238.
- [20] J.T. Babicz, Jr., et al.: *J. Am. Chem. Soc.* **145** (2023) 15230.
- [21] A. Rulev, et al.: *Crystals* **15** (2025) 440.
- [22] A. Radovic, et al.: *Nat. Commun.* **16** (2025) 6843.

永澤 延元 NAGASAWA Nobumoto

(公財) 高輝度光科学研究センター
精密分光推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : nagasawa@spring8.or.jp

依田 芳卓 YODA Yoshitaka

(公財) 高輝度光科学研究センター
精密分光推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : yoda@spring8.or.jp

バロン アルフレッド BARON Alfred

(公財) 高輝度光科学研究センター
精密分光推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0833
e-mail : baron@spring8.or.jp