

主 論 文 要 旨

2011年 12月 26日

論文題名

多目的放射光軟 X 線 XAFS ビームラインの開発

ふりがな なかにし こうじ
学位申請者 中西 康次

主論文要旨

立命館大学 SR センター BL-10 軟 X 線 XAFS ビームラインは、1000–4000 eV の軟 X 線を用いた XAFS (X 線吸収微細構造) 測定が可能なビームラインであるが、従来の BL-10 は様々な問題を抱えており、満足な XAFS スペクトルが得られなかった。また、検出系は高真空中における試料電流測定による全電子収量法 (TEY) のみで、測定試料も制限された。この BL-10 において、様々な形態・条件の試料に対応した多目的な XAFS 測定を可能とするため、さまざまな装置開発と高度化を行った。

第一に、ビームラインの改良として、フロントエンド Be フィルターの薄膜化、集光ミラーの調整、分光器のオーバーホールを行った。これにより、改良前と比べて、S/N 比は 100 倍以上向上し、高精度の XAFS スペクトルを得られるようになった。また、シリコンドリフト検出器 (SDD) の導入により蛍光収量法 (FY) による測定が可能となり、絶縁体試料や低含有量の試料なども測定可能となった。第二に、極薄 Be フォイルによる Be 窓と、He ガスを用いた大気圧測定室を開発した。これにより溶液やゲル、真空中に挿入すると状態変化が起こるような試料の測定が可能となった。第三に検出系の高度化を図るため、部分電子収量検出器を開発した。さらに、この検出器による部分電子収量法と、TEY、FY を組み合わせ、多モード同時測定システムを開発した。第四にトランスファーベッセルと試料導入室を開発し、嫌気性試料を大気非暴露で輸送、測定可能な大気非暴露試料輸送システムを開発した。これより、リチウムイオン 2 次電池材料のような嫌気性試料を測定することが可能になった。最後に、XAFS で最も多く利用されている第一原理実空間全多重散乱理論プログラム FEFF を用いたシミュレーションについて、軟 X 線領域では実験スペクトルを再現しないことが多くあったが、改善策である Z+1 (Z: 原子番号) アプローチが内殻空孔の効果を補正し、有効に働くことを検証した。

以上の装置開発・高度化によって、BL-10 は多くのユーザーの様々な試料に対応可能な、実用的で、かつユニークな軟 X 線 XAFS ビームラインを開発することに成功した。この結果、公的プロジェクトや委託分析、スポット利用などで年間で数十件もの外部ユーザーの利用があり、また、その成果として 2007 年から現在まで計 21 報の論文誌への報告や数多くの学会発表等が行われている。

主 論 文 要 旨

2011年 12月 26日

論文題名

Development of multipurpose soft X-ray XAFS beamline

ふりがな	なかにし こうじ
学位申請者	Koji Nakanishi

主論文要旨

The beamline, BL-10, at the SR Center in Ritsumeikan University, is for X-ray absorption fine structure (XAFS) in the soft X-ray region, and available in photon energies from 1000 to 4000 eV. It was difficult for BL-10 to measure satisfactory XAFS spectra because it had many problems. Measurable samples were limited, because the total electron yield (TEY) mode recorded by a sample drain current in high vacuum was only available as a detection method at BL-10. In order to enable multipurpose XAFS measurements for different types of samples, various upgrades and developments have been carried out on BL-10.

First, the basic performance of the beamline was upgraded by thinning a Be filter in the front end, adjusting a pre-focusing mirror, and overhauling and repairing a double crystal monochromator. In addition, a silicon drift detector was installed to enable the fluorescent yield (FY) mode. Second, an atmospheric-pressure sample chamber equipped with an ultra-thin Be foil and He gas was fabricated. This allows us to measure liquid samples, gel ones, and compounds that are subject to the change in their states in vacuum. Third, a partial electron yield (PEY) detector was fabricated and evaluated to improve detection methods in the higher-energy soft X-ray XAFS. In addition, combining FY, TEY, and PEY, simultaneous multimode detection was enabled. Fourthly, a transfer vessel system was produced for anaerobic samples. Finally, X-ray absorption near edge structure simulations using the ab-initio real space multiple scattering program FEFF-8.4 were verified for the third row elements in the periodic table. It was confirmed that using “Z+1 approach” improved core-hole potentials and reproduced experimental spectra satisfactorily in many cases.

In conclusion, a useful and unique soft X-ray XAFS beamline BL-10 has been developed, resulting in many measurements and papers published.