九州大学硬X線ビームライン(SAGA-LS/BL06)の現況

九州大学シンクロトロン光利用研究センター

九州大学硬X線ビームライン(九大BL)は,SAGA-LS/BL06の偏向電磁石を光源とする2.1-23 keVの硬X線を利用できるビームラインである。[１] 九大内・外からの課題公募による利用の方式を採用しており，年間約50件の利用課題を実施し年間約250名（延べ人数）に利用されている。九大BLのエンドステーションには，X線吸収微細構造（XAFS）および小角X線散乱（SAXS)を備える。XAFSでは,Quick-XAFSの利用,ガス供給・除害設備と組み合わせたin-situ実験，He置換チェンバーを使用したP，S，Cl，K等のK吸収端，およびMo，Pd，Ag，Cd等のL吸収端等の測定が可能である。SAXSでは，検出器にイメージングプレートおよびフラットパネルセンサを備え，カメラ長は0.5-2.5 mまで段階的に変更できる。測定試料の低温・高温制御，GISAXS，GIWAXS，およびSAXS-WAXS同時測定系の整備を進めている。また，平成25年度から文部科学省光・量子融合連携研究開発プログラム「量子ビーム連携によるソフトマテリアルのグリーンイノベーション」(代表 高原淳 教授)を開始し,高速２次元Ｘ線検出器(PILATUS3 300K）および高感度Ｘ線検出器（４素子SDD）の導入・整備を行い，ソフトマテリアルを中心とする先端研究を推進している。九大BLの最近の高度化および利用研究について報告する。

[1] 吉岡 聰，石岡 寿雄，放射光，25(3)，184-187 (2012).

九州大学硬X線ビームライン(SAGA-LS/BL06)の現況

九州大学シンクロトロン光利用研究センター

SAGA-LS/BL06

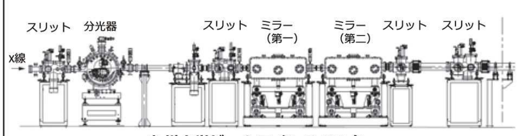
概要

高強度、高指向性、エネルギー連続性の特徴を持つシンクロトロン光を利用した分析は、最先端の材料科学、物質科学、分析科学等の分野において不可欠となっている。九州大学は幅広いユーザーの利用を目的として、九州大学ビームライン（九大BL）をSAGA-LSのBL06に設置し、物質の微細構造解析に有効なＸ線吸収微細構造（XAFS: X-ray Absorption Fine Structure）および小角Ｘ線散乱法（SAXS: Small Angle X-ray Scattering）計測システムの共同利用を九州大学シンクロトロン光利用研究センターの下で進めている。

環境・エネルギー問題の解決に貢献する材料とデバイスを始めとする最先端の研究を強力に促進するとともに、学部・大学院の研究教育に利活用することで人材育成に役立てている。大学の学術研究支援や民間企業の産業利用促進、さらに研究者の技術的な支援を行うのも本センターの重要な役割である。佐賀県立九州シンクロトロン光研究センターの県有BL、佐賀大学シンクロトロン光応用研究センターの佐賀大BL（BL13）と連携しながら、九州のシンクロトロン光研究拠点として、地域や社会に成果を還元し地域社会の発展に貢献することを目指している。

平成23-26年度は、特別経費（プロジェクト分）「放射光分析支援グリーンマテリアル研究拠点形成」（代表 寺岡靖剛 教授）を獲得し、27年度は学内経費により九大BLの維持・管理および高度化を進めている。28年度以降の特別経費の獲得を目指しながら、利用料の徴収による運営費の一部自立化を進めている。本学内外の研究者の利用を継続するとともに、新たな共同研究およびプロジェクトを積極的に受け入れている。

九州大学ビームライン光学系概略図



九州大学ビームラインスペック

光源	偏向電磁石 臨界エネルギー：1.9 keV 水平取り込み角度：5 mrad	分光器	Si (111) 二結晶分光器
エネルギー範囲	2.1 ~ 23 keV	集光ミラー	第一ミラー：Ptコート 第二ミラー：Rhコート
光子数	2×10[10] photons/s (300 mA, 6.5 keV (M1集光))		

測定法

X線吸収微細構造
(XAFS : X-ray Absorption Fine Structure)

X線吸収微細構造（XAFS）は、触媒反応やレアメタル等の研究において、元素の価数や近接原子間距離の分析により、結晶構造や反応原理の究明等に利用されている。

測定モードおよび検出器

- 透過法：イオンチャンバー
- 転換電子法：転換電子収量検出器
- 蛍光法：ライトル検出器、単素子SDD
- エネルギー掃引方式：Step scan, Quick scan
- 試料セル：高温セル、軽元素用Heガスチャンバー
- 設備：ガス供給除害設備、Q-MASS、低温チラー(-25～150°C)

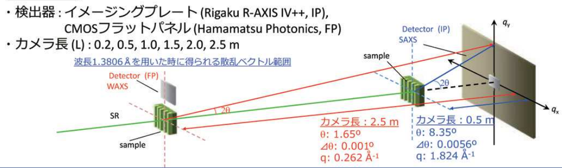
	透過法	蛍光法	転換電子収量法
情報検出域	バルク	バルク	表面
温度	RT - 800°C, -25 - 150°C	-25 - 150°C	RT
ガス供給システム	H_2, O_2, CO, CH_4, SOx, NOx	-	-
In-situ測定	ガス供給, in-situ セル	-	-
低エネルギー測定 (<4.0 keV)	(試料厚さに依存)	He雰囲気、真空下	He雰囲気
試料の形態	粉末(ペレット) 箔, 液体	何でも	粉末 薄膜, 板
導電性	不要	不要	必要

小角X線散乱
(SAXS : Small Angle X-ray Scattering)

小角X線散乱法（SAXS）は、散乱角が数度以下の散乱X線を用いてnmオーダーの構造を解析する手法である。主に、高分子、金属、セラミックスなどの微細な粒子サイズの測定、粒度分布、配向性を明らかにするために利用されている。また、CMOSフラットパネルを利用することで、SAXS・WAXS同時測定を可能にしている。

X線検出器

・検出器：イメージングプレート (Rigaku R-AXIS IV++, IP),
　　　CMOSフラットパネル (Hamamatsu Photonics, FP)
・カメラ長 (L)：0.2, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5 m



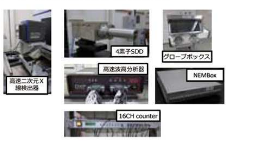
文部科学省科学技術試験研究委託事業　H25-29
光・量子融合連携研究開発プログラム

平成25年度から光・量子融合連携研究開発プログラム「量子ビーム連携によるソフトマテリアルのグリーンイノベーション」（代表 高原淳 教授）を開始した。本学を始めとする東京大学、京都大学、北九州市立大学の4大学さらにはFSBL（SPring-8/BL03XU）、J-Parcと連携しながら、環境に優しいソフトマテリアルの合成触媒の開発および階層構造の解明を進めている。

量子ビーム連携によるソフトマテリアルのグリーンイノベーションの参画研究機関

プロジェクトにより整備した主な機器

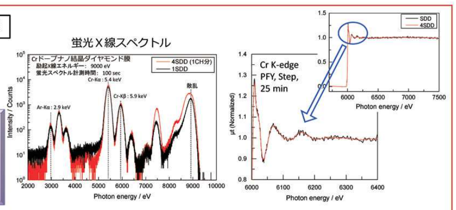
- 高速二次元X線検出器：PILATUS3 300K (Dectris)
- 4素子SDD：(UK SGX Sensortech)
- 高速波高分析器：Mercury-4 (XIA)
- グローブボックス：UN-800L (UNICO)
- 16CHカウンター：CT16-01E (ツジ電子)
- 信号処理回路(FPGA)：NEMBox NDL8 T (WIENER)



4素子SDDを用いた蛍光X線測定

蛍光X線スペクトル測定において、単素子SDD(既設)と比較して計数率が向上し、バックグラウンドが低減された。蛍光XAFS測定においてもS/N比の向上が確認できた。（４素子SDDでは４素子分の信号を合算している）

◆ 4素子SDD：UK SGX Sensortech製
・有感面積 240 mm²（4素子合計）
・結晶厚450 μm, 窓厚12.5 μm Dura-Be
・ΔE: 135eV @ 5.9 keV, PT 8 μs
・低蛍光多層コリメーター
◆ 1素子SDD：Vortex-90EX　日立ハイテクサイエンス製
・有感面積 50 mm²
・結晶厚350 μm, 窓厚25 μm Be
・ΔE: 136eV @5.9keV, PT 12 us

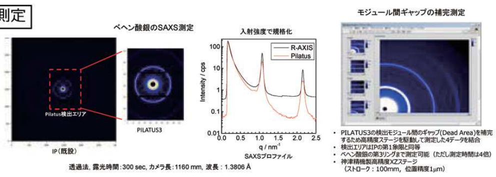


PILATUS3を用いたSAXS測定

PILATUS3により最短1ms露光での測定が可能。IP(既設)に比べてバックグラウンドレベルが極めて低い。

検出器面積：
IP：300×300 mm²
Pilatus：83.8×106.5 mm²

Pixel size：
IP：100×100 μm²
Pilatus：172×172 μm²



透過法, 露光時間：300 sec, カメラ長：1160 mm, 波長：1.3806 Å

- PILATUS3の検出モジュール間のギャップ(Dead Area)を補完するため高精度ステージを駆動して測定した4データを結合
- 検出エリアはIPの第1象限と同等
- ベヘン酸銀の第3リングまで測定可能（ただし測定時間は4倍）
- 神津精機製高精度XZステージ（ストローク：100mm, 位置精度1μm）

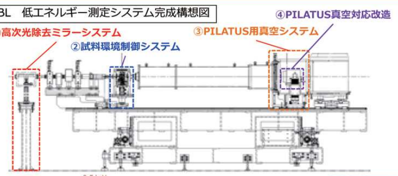
BL高度化：Tender X-ray利用システム

2-4 keV領域のX線（Tender X-rayと呼ばれる場合がある）を利用した計測システムの整備を進めている。SAXS（およびXAFS）測定を実現し、特に、リン・硫黄等のK吸収端を利用したASAXS（異常小角X線散乱）によりソフトマテリアルの架橋構造等の解析に利活用する。試料位置・角度の精密制御によりGI（Grazing-Incidence）ジオメトリーを可能にし、基板上薄膜の測定を実現する。

上述の光量子プログラムおよび内閣府・革新的研究開発推進プログラム（ImPACT）と連携して推進している。

整備	目的・内容	導入・整備時期
①高次光除去ミラーシステム	分光結晶からの高次光をミラー反射率を利用して低減し、入射X線焦点位置を試料もしくはビームストッパー位置に調節	2014年度導入済
②試料環境制御システム	試料雰囲気を真空もしくはHe置換環境にし、低エネルギーX線を利用可能とするとともに試料位置・角度を精密制御	2015年10月予定
③PILATUS用真空システム	真空対応XZステージを含めてPILATUSを内包しビームストッパー部と連結可能とするチェンバーシステム	2015年12月頃
④PILATUS真空対応改造	低ネルギーX線の検出効率をチューニングして向上させ筐体を真空対応に改造	2015年11月予定

九大BL　低エネルギー測定システム完成構想図



③PILATUS用真空システム

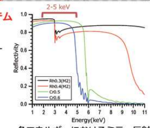
仕様
・PILATUS用真空チェンバー
・真空対応XZステージ
・ビームストッパー部改造

④PILATUS真空対応改造

仕様
・PILATUS3 300K 真空対応アップグレード

①高次光除去ミラーシステム

仕様
・Crコートフラットミラー
・ミラーチャンバ
・支柱



各エネルギーにおけるミラー反射率

②試料環境制御システム

仕様
・アクリル製チェンバー
・真空対応4軸試料ステージ

利用概況

1. 利用期間（SAGA-LSの稼働日に準ずる）
第Ⅰ期：4-7月、第Ⅱ期：8-12月、第Ⅲ期：1-3月

2. 利用区分と利用料
課題の優先度は、公共等利用、一般利用の順。
原則、依頼測定は受け付けません。

利用区分		利用料
公共等利用	大学および公共研究機関のうち、利用情報の開示が前提となる利用区分。	2,500円/時間
一般利用	上記以外の利用区分。	28,000円/時間

3. 利用可能な実験装置
XAFS（X線吸収分光）& SAXS（小角X線散乱）

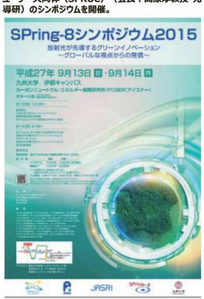
【お問い合わせ】
九州大学シンクロトロン光利用研究センター事務室
〒816-8580　福岡県春日市春日公園6丁目1番地
TEL/FAX：092-583-7643
【利用問い合わせ】
Email: riyou@rcsla.kyushu-u.ac.jp
ホームページ: www.rcsla.kyushu-u.ac.jp/

論文・学会・受賞等
査読付学術論文１３報，紀要・報告書等６報（Ceram. Int., Jpn. J. Appl. Phys., Appl. Catal.,「放射光」,「化学と工業」等）
招待・依頼講演８件，学会口頭発表３９件，学会ポスター発表３３件（放射光学会，触媒討論会，日本金属学会，X線分析研究懇談会，石油・石油化学討論会等）
アメリカ物理学会フェロー(九大初)・ACS Fluoropolymer 2014 3M Award・日本レオロジー学会賞(高原淳)，第17回XAFS討論会優秀公演賞(内山智貴)，浅田栄一賞(大橋弘範)，X線分析討論会 学生賞(山西惟)，九州分析化学奨励賞受賞(川本大祐)

教育関連
博士論文研究１件，修士論文研究１５件，卒業論文研究１１件
（総理工・物質理工，総理工・先端エネルギー理工，工学府・エネルギー量子工学，工学府地球資源システム工学，工学部・エネルギー科学，理学府化学専攻等）

外部資金・共同研究等
内閣府・革新的研究開発推進プログラム(ImPACT)，文科省・光・量子融合連携研究開発プログラム，科研費，民間企業共同研究費，学術・民間共同研究，特許等

講演会・連携・社会活動等
ソフトマテリアル量子ビーム連携ミニシンポジウム，「日本の科学と工学の原点を学ぶ」(共催)，先導物質化学研究所講演会(共催)，グリーンマテリアルワークショップ，佐賀LS一般公開事業・触媒学会共催体験教室「ゼオライト結晶模型の展示と作製体験」，SPring-8ユーザー共同体（SPRUC）代表機関，日本放射光学会年会企画講演，シンクロトロン光に関する大学間連携会議等

	H24(2012)	H25(2013)	H26(2014)	H27(2015)
XAFS件数	31	40	35	
SAXS件数	15	24	17	
論文数（累積）	1	3	13	
利用者延べ人数	204	279	258	

放射光ビームラインを所有する本学においてSPring-8ユーザー共同体（SPRUC）（会長：高原淳教授・先導研）のシンポジウムを開催。