

軟X線ビームラインBL17SU（理研・物理科学）の紹介

独立行政法人理化学研究所 播磨研究所 放射光科学総合研究センター
 辛 埴、竹内 智之、大浦 正樹、堀場 弘司
 鎌倉 望、原田 慈久、徳島 高、高田 恭孝
 財団法人高輝度光科学研究センター ビームライン・技術部門
 仙波 泰徳、大橋 治彦

1. はじめに

BL17SUは、理化学研究所専用の軟X線アンジュレータビームラインとして、平成14年から建設を始め^[1]、平成16年度末までにブランチaの建設がほぼ完了し、各種調整を経て、平成17年度9月より本格的な稼働を開始している。また、ブランチbは、現在、分光器の調整を行っており、平成17年度中に調整を完了して、平成18年度より本格的な稼働を開始する予定である。ブランチaに関してはほぼ予定の成果が出始めたので、本稿ではそこで行われる利用研究を中心にビームラインの紹介を行いたい。なお、ビームライン技術、特に分光光学系、に関しては既に大橋氏等による報告^[2]があるので、そちらを参照してほしい。その後についても、分光光学系に関して著しい進歩があったが、それについては新たな報告がそのうちあろう。

本ビームラインは以下のようなミッションを持っている。

- A) 軟X線領域のアンジュレータ、基幹チャンネル、分光光学系、測定装置のR & Dを行う、
- B) 理化学研究所 播磨研究所における物質科学の研究活動の拠点とする、
- C) 理化学研究所 和光研究所 中央研究所の物質科学研究グループと連携研究を行う拠点とする。

これまでSPring-8で稼働中の3本の軟X線ビームラインにおいては、300eV以上のエネルギーの軟X線領域においてもSPring-8が世界で最も優れた光源の1つであることが判明しつつある。このエネルギー帯は、特に、物質の機能性をにう炭素、酸素、窒素などの軽元素、遷移金属の3d電子状態、希土類4f等の電子状態を解明する上で、きわめて有用なエネルギー領域である。(1)このような元素で構成される物質は既存の物質科学に限らず、ナノ材料などの、研究すべき新しい物質群を生み出している。また、今後は生体物質や界面、触媒などの新し

い物質群が新しい物質科学の俎上に上る可能性を持ってくると思われる。新しい物質群が発見されれば新しい科学や産業が創成されるのは半導体や超伝導体の発見の例を見るまでもなくよく知られたことである。(2)一方、このような物質科学にとどまらず、光科学にとっても新しい研究分野が広がる可能性を秘めている。代表的な実験方法である光電子分光や軟X線発光分光などの高分解能化が著しく進むだけでなく、軟X線回折や時間分解分光、コインシデンス分光など新しい分光学、光科学が次々に生まれつつある。本ビームラインは理研の専用ビームラインではあるが、共同利用ビームラインでは実施が困難と思われるような利用研究を行うことは軟X線領域の光科学の将来にとってきわめて重要である。

2. ビームラインの現状

本節ではBL17SUの現状について記す。現在、ブランチaで実用的な光量として使用できるエネルギー範囲は、図1に示すように、概ね256~2000eV程

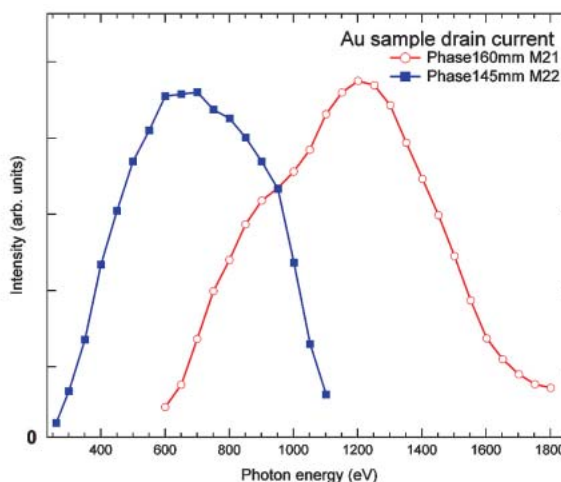


図1 金のドレイン電流の励起エネルギー依存性

度となっている。これは金を標的としたときのサン
プル電流の励起エネルギー依存性を示すものである。
ビームライン分光器の詳細については参考文献^[2]
に詳しい解説記事があるのでそちらを参照されたい。

BL17SUに設置されたアンジュレータは、永久磁
石と電磁石を併用した可変偏光型のものとなってい
る^[3]。立ち上げ当初は、当該アンジュレータの運
転条件として、永久磁石列のみを使用した垂直アン
ジュレータモードのみ使用が許可されていた。以来、
挿入光源グループ及び制御グループの鋭意努力によ
って、平成17年度6月中旬より、電磁石を併用した
擬似ヘリカルアンジュレータモードでの運用開始が
認められるに至った。現状では、完全な偏光は得ら
れないものの、左右の円偏光、水平偏光、垂直偏光
の高輝度軟X線の使用が可能となっている。但し、
エネルギーによっては実用に耐える光量や偏光度が
得られない領域もある。例として、図2に擬似ヘリ
カルアンジュレータモードで運転した場合の円偏光
度のエネルギー依存性（計算値）のグラフを示す。

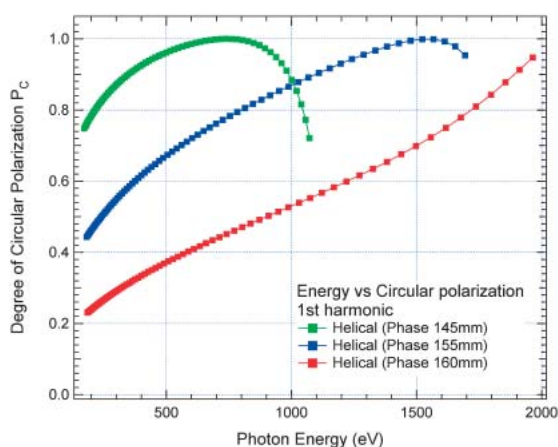


図2 アンジュレータ運転モードと円偏光度の関係（計算値）

3. 実験ステーション

BL17SUのビームラインのレイアウトは図3のよ
うになっており、分岐ミラーによって2つのブラン
チを交互に使用することができる。これは軟X線領
域では真空立ち上げや表面処理等で実験以外の時間
を使うことが多いので、ビームタイムを有効に使う
上で理想的な配置である。A1、A2、Ac、A3、
B1、B2の6つの実験ステーションがある。

(1) 超高分解能光電子分光実験ステーション

光電子分光は、固体の電子状態を直接知ることが
できる最も有用な実験方法である。特に高温超伝導
体の研究以降、その有用性が再認識され、著しく研
究が進み、装置の分解能の向上は近年において特に
著しい。しかし、軟X線領域では未だに光電子分光
の総合分解能 (E) は約100meV程度である。そ
こで、本ステーションでは分解能を限界と考えられ
る50meV (@800eV) まであげることを目標とした。

図4はBL17SUのA2ステーションに設置された
高分解能軟X線角度分解光電子分光装置^[4]の図で
ある。光電子分光の分解能は、通常、金のフェルミ
エッジの測定によって評価するが、これまで軟X線
領域での光電子分光の分解能は数千、SPring-8では
10000程度であったが、本装置では図5のように分
解能 $E/\ E=17000$ (867eVで $E=51\text{meV}$) で測定
することができる。ビームライン分光器の分解能を
考えると理論的な限界に到達しており、この分解能
は世界最高である。分解能は装置の各性能の総合力
によって決定される。分解能向上のためには丁寧に
1つ1つ問題点を解決していくしかなく、一番悪い
ところで分解能が決定される。これまで、ビームラ
イン分光器の分解能と光電子分光装置の分解能のみ
が議論されてきたが、本ビームラインのエネルギー
安定性（文献^[2]参照）と後置集光系による微小
スポットサイズが総合分解能を上げることに

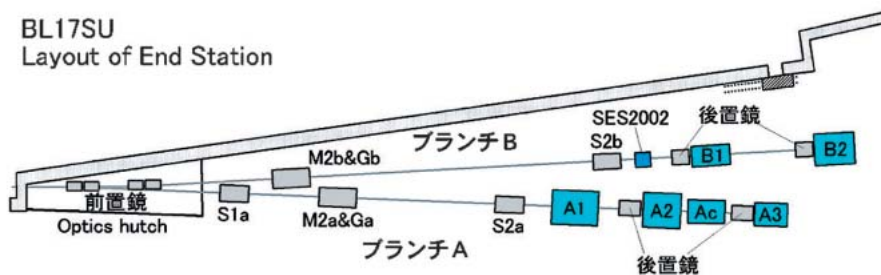


図3 BL17SUのエンドステーションの概略図

A1：原子分子科学、A2：光電子分光、Ac：持ち込み装置、A3：軟X線発光分光
B1：軟X線回折、B2：表面科学の各エンドステーション

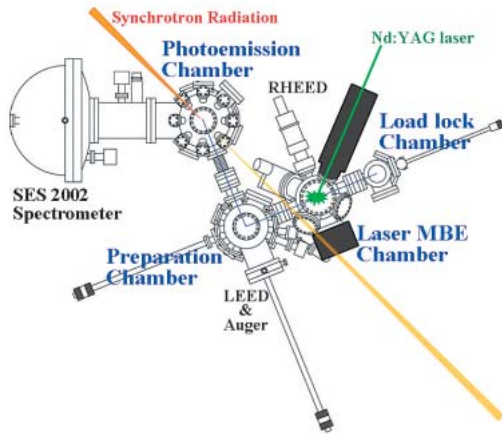


図4 A2：レーザー-MBEと高分解光電子分光装置

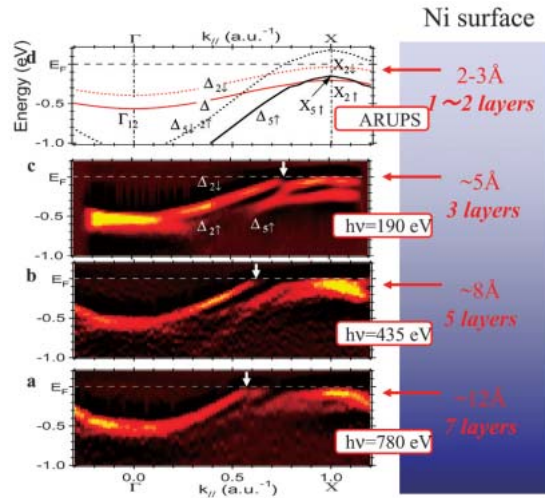


図6 ニッケルの高分解角度分解光電子分光

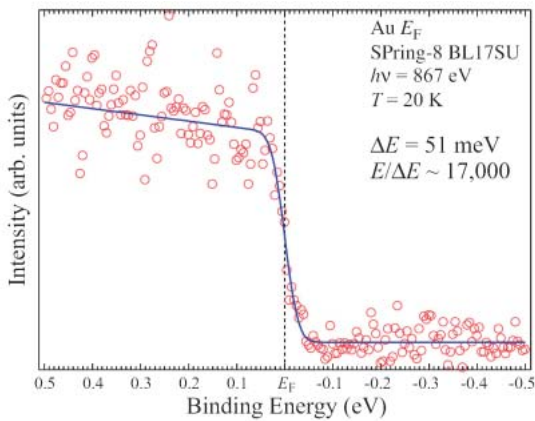


図5 高分解光電子分光装置によって測定された金のフェルミエッジ

きわめて重要であることが示された。エネルギー安定性はきわめて重要で、測定中にエネルギーの変動がないことになる。一方、微小スポットサイズになっているために、光電子分光器のスリットを小さくすることができ、強度を落とさずに、分解能をあげることができる。微小スポットや安定性はSPring-8の高輝度特性とマシンやビームライン光学系の安定性のたまものである。

本ステーションのもう一つの特徴として、レーザー-MBE (Molecular Beam Epitaxy) を備え、薄膜を作成し、その場で、測定することができる。光電子分光の最大の欠点は清浄表面を作成することが難しい物質においては測定が不可能であるという点にある。その場で試料が作成できれば新しい物質群が大幅に実験可能になるものと思われる。

図6は光電子分光の例としてニッケル清浄表面の角度分解光電子分光法による電子状態の観測結果を示す。励起エネルギーを変えると表面からの深いバルクの電子状態を測定することができる。ニッケルはバンド計算の手法を検証する上で、よく利用されるきわめて重要な物質である。実験の結果、表面は電子相関を取り入れたバンド計算がよく合い、バルクの電子状態は電子相関をほとんど取り入れない計算がよく合うことが判明した^[5]。

(2) 軟X線発光分光実験ステーション

軟X線発光分光は高輝度光源が励起光源として必要なために実験ができる場所は限られている。先行していたスウェーデン、アメリカに加え、近年ではドイツ、イタリア、フランスで可能になりつつある。日本においてもPFで行われてきたが、低エネルギー領域に限られ、しかも十分な強度を取ることはできなかった。発光の効率が低いために、軟X線発光分光法の分解能 E/Γ は通常1000程度である。しかも、効率が悪く、S/N比が上がらないのが現状である。そのために光電子分光法に比べて汎用性がとばしい欠点があった。そこで、分解能をあげ、しかもより明るい発光分光器を開発し、光電子分光法に匹敵する測定方法にすることが本ステーションの目的である。

図7はA3ステーションに設置された高効率発光分光器^[6]の写真である。図8のようにスリットレスにすることによって明るい分光系にすることができた。SPring-8の高輝度特性を利用し、スポットサ

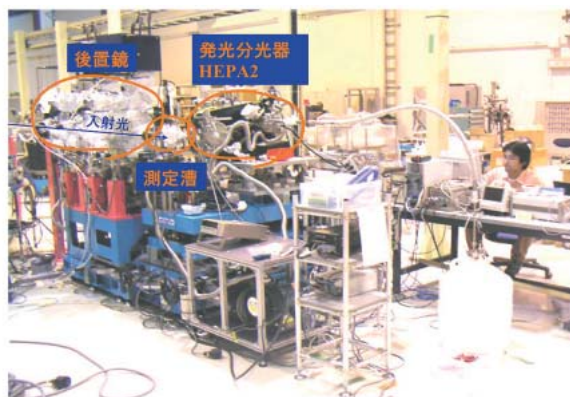


図7 A3：高分解軟X線発光分光装置

イズが4ミクロン以下と小さくできるので、スリットレスにすることができた。これはビームの安定性がきわめて良いことにもよる。スポットサイズが小さくなると分解能は比例してあげることができる。レイトレーによる評価の結果、得られるべき分解能は図8のとおりであるが、現段階で分解能 $E/\Delta E=1500$ を超えることができた。現状の分解能を制限しているのは検知器の位置分解能である。このため、次世代の発光分光器ではその対策が考慮されている。

光電子分光の最大の欠点は液体や生体物質などの実験ができないことである。このため、極めて強力

ではあるが測定できる物質の広がりが著しく少ない。軟X線発光は薄い膜で真空と試料を仕切ることによって、このような物質を測定することが可能になる。我々は、水などの液体、固体と液体の界面、タンパク・DNA等の生体物質など、これまで物性測定には不向きであった物質を物質科学の土俵に上げることを目標としている。水においてはどのようなクラスターを形成しているかが議論でき始めている。一方、タンパク質においてはd-d遷移が観測されているが、これまで議論されてきた結晶場理論の範疇で考える田辺菅野のダイアグラムのみでは解釈は不可能であることが判明した。

(3) 表面科学実験ステーション

B2ステーションに設置される表面科学実験装置は表面用の試料作成装置を備え、光電子分光と軟X線発光分光の偏光依存性測定を行うことによって表面吸着分子、界面等の電子状態の観測を行うことができる^[7]。図9はその概略図を表している。実験装置そのものは現在BL27SUに設置されており、既に共同利用に供されているが、平成18年5月の連休明け以降にBL17SUブランチbに架台を作り替えて移設される予定である。その後、前節で紹介した次世代の発光分光器を取り付け、分解能を3000以上に上げる予定である。

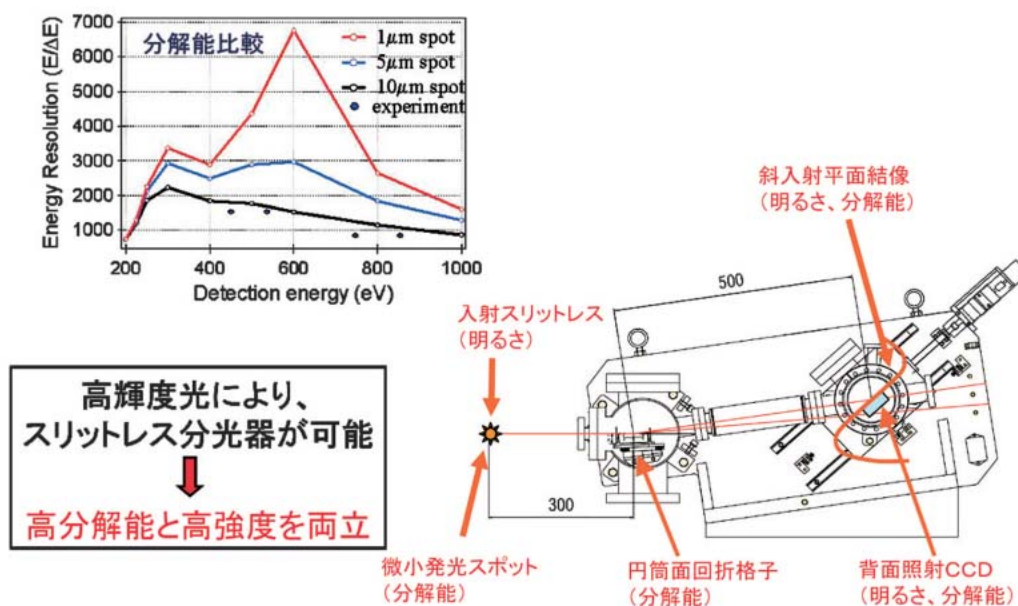


図8 高分解軟X線発光分光器の概略図

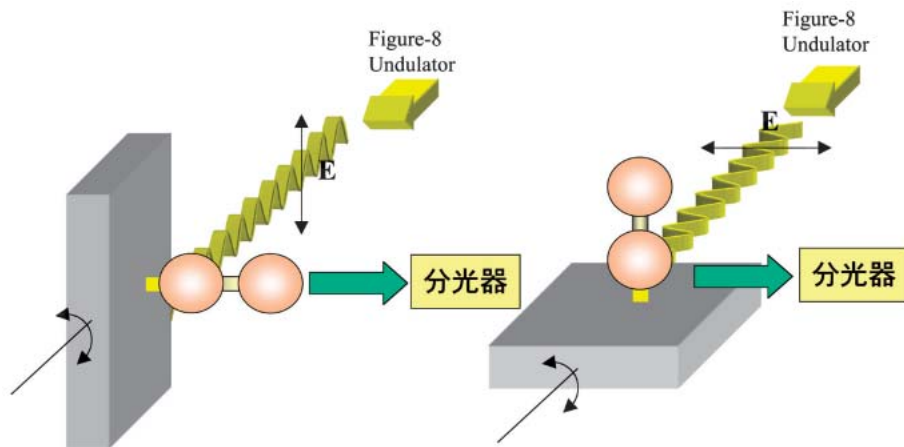


図9 表面吸着分子の化学結合状態を偏光依存性を利用して測定する

(4) 持ち込み実験ステーション

新しい測定装置の R & D を行うことは重要である。新しい分光法は常に考え出されている。現在は A c ステーションでは、主に JASRI の分光物性グループによる光電子顕微鏡 (PhotoElectron Emission Microscopy, PEEM)^[8] を用いた実験が行われている。日本は顕微分光自体が遅れているため、SPring-8 の高輝度特性を利用することによって、PEEM として世界最高位置分解能を得ることを目的の 1 つとしている。

(5) 軟 X 線回折実験ステーション

軟 X 線回折実験も新しい測定装置の R & D の 1 つである。外国ではこの 2 ~ 3 年で非常に盛んになりつつあるが、日本ではほとんど知られておらず、現在のところ実験ステーションもない。物質の長周期構造を知る上で、これまでに得ることができなかった全く新しい情報を得ることができる。B 1 ステーションで、平成 18 年春に軟 X 線回折実験装置が完成予定である。この他にも放射光のコヒーレンスを利用するようなスペックル、Dynamic light scattering、非線形光学、ポンププローブ時間分解分光などを開発研究することも重要であるが、現在のところ、ほとんど計画中の段階である。

(6) 原子分子科学実験ステーション

A 1 ステーションでは、多価イオンを標的とした光吸収過程を、等核系列や等電子系列について、系統的に調べ、多価イオンの構造や多電子系の内殻励起 ~ 脱励起といった光吸収過程のダイナミクスに関する知見を得る目的で研究を行う。このため、A 1

ステーションには、多価イオン光吸収実験装置^[9]が設置できるようになっている。放射光利用実験が長期間ないときは、当該実験装置はスライドレールによりビームラインから退避し、多価イオン源から得られるイオンビームのみを使ったオフライン実験を実施することが可能となっている。

4. 終わりに

SPring-8 における軟 X 線分光は、300eV より上では世界でもトップクラスである事が明らかになっている。これまでに行われてきたアンジュレータ、基幹チャンネル、特に分光光学系の R & D はきわめて有効であったと言える。日本における第 3 世代真空紫外・軟 X 線光源計画は現在のところすぐには実現しそうにはないので、軟 X 線領域で日本が特に遅れている利用研究をキャッチアップしたり、世界でも初めての意欲的な利用研究を新しいアイデアで試みたりすることによって、放射光物質科学の創成に貢献することは、極めて重要である。

また、継続的に人材を供給することが軟 X 線分野の重要な課題であるが、BL17SU が世界を背負って立つ若手の人材育成の場になることも願っている。

5. 謝辞

今回は利用研究を中心に記述したが、これはもちろんアンジュレータ、基幹チャンネル、分光光学系のすぐれた R & D に負っている。また、卓越した性能の維持は、制御システムの安定化にも負うところが大きい。当該ビームラインの計画から今日に至るまで、理化学研究所・播磨研究所の北村英男氏、田中隆次氏、白澤克年氏、石川哲也氏、JASRI・BL 技術部

門の高橋直氏、青柳秀樹氏、佐野陸氏、渡辺篤雄氏、大端通氏、古川行人氏、竹内政雄氏、松下智裕氏、石澤康秀氏、広野等子氏、浅野芳裕氏、谷口真吾氏、竹下邦和氏、後藤俊治氏、木村洋昭氏、岸本輝氏、三浦孝紀氏、JASRI・加速器部門の方々、琉球大の石黒英治氏、ならびに理研・研究推進部の皆様には大変お世話になりました。以上の方々以外にも、SPring-8の多くの方にも様々な形で、ご協力いただいていることをこの場を借りて感謝いたします。

参考文献

- [1] 辛 埴、大浦正樹、高田恭孝、渡邊正満、鎌倉望、北村英男、田中隆次、高橋 直、大橋治彦、SPring-8利用者情報 Vol.6 (2001) 368.
- [2] 大橋治彦、仙波泰徳、岸本 輝、三浦孝紀、竹下邦和、後藤俊治、SPring-8利用者情報 Vol.9 (2004) 94.
- [3] K.Shirasawa, T.Tanaka, T.Seike, A.Hiraya and H.Kitamura : AIP Conference Proceedings **203** (2003) 705.
- [4] K.Horiba, N.Kamakura, K.Yamamoto, K.Kobayashi and S.Shin : J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **1027** (2005) 144-147.
- [5] N. Kamakura, Y. Takata, T. Tokushima, Y. Harada, A. Chainani, K. Kobayashi and S. Shin : Europhys. Lett. **67** (2004) 240.
- [6] T.Tokushima, Y.Harada, M.Watanabe, Y.Takata, E.Ishiguro, A.Hiraya and S.Shin : Surf. Rev. Lett. **9** (2002) 503.
- [7] Y.Takata, T.Tokushima, Y.Harada, N.Kamakura, Y.Kitajima, M.Nagasono, Y.Tamenori, H.Ohashi, A.Hiraya, E.Ishiguro and S.Shin : AIP Conference Proceedings **705** (2003) 1186.
- [8] F.Z.Guo, T.Wakita, H.Shimizu, T.Matsushita, T.Yasue, T.Koshikawa, E.Bauer and K.Kobayashi : J. Phys.: Condens Matter **17** (2005) S1363.
- [9] M.Oura, T.M.Kojima, Y.Awaya, Y.Itoh, K.Kawatsura, M.Kimura, T.Koizumi, T.Sekioka, H.Yamaoka and M.Cox : J. Synchrotron Rad. **5** (1998) 1058.

辛 埴 SHIN Shik

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : sshin@spring8.or.jp

竹内 智之 TAKEUCHI Tomoyuki

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : takeuch@spring8.or.jp

大浦 正樹 OURA Masaki

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : oura@spring8.or.jp

堀場 弘司 HORIBA Koji

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : horiba@spring8.or.jp

鎌倉 望 KAMAKURA Nozomu

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : nkama@spring8.or.jp

原田 慈久 HARADA Yoshihisa

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : harada@spring8.or.jp

徳島 高 TOKUSHIMA Takashi

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : toku@spring8.or.jp

高田 恭孝 TAKATA Yasutaka

理化学研究所 播磨研究所
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-2933 FAX : 0791-58-2934
e-mail : takatay@spring8.or.jp

仙波 泰徳 SENBA Yasunori

(財)高輝度光科学研究センター
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-0831 FAX : 0791-58-0830
e-mail : ysenba@spring8.or.jp

大橋 治彦 OHASHI Haruhiko

(財)高輝度光科学研究センター
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1
TEL : 0791-58-0831 FAX : 0791-58-0830
e-mail : hohashi@spring8.or.jp