

海外放射光施設 PETRA III を訪問して

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
分光・イメージング推進室 高木 康多

1. はじめに

海外研修として8月20日から9月25日までの約1ヵ月間、ドイツの放射光施設 PETRA III に滞在した。PETRA III には、2018年から一般共用が開始された硬 X 線光電子分光法 (HAXPES: Hard x-ray photoelectron spectroscopy) の専用ビームライン (P22) がある。今回はそのビームラインの主担当である Christoph Schlueter 博士に受け入れ先になってもらい、P22 のビームラインのスタッフとともに HAXPES 実験についてビームラインの光学調整などを含めて見学・参加させてもらった。このビームライン P22 には、HAXPES、硬 X 線光電子顕微鏡 (HAXPEEM: Hard x-ray photoemission electron microscopy)、硬 X 線 k 空間顕微鏡 (k-microscope)、大気圧 HAXPES (AP-HAXPES: ambient pressure HAXPES) の4つの装置が整備されており、今回の1ヵ月の滞在中で AP-HAXPES を除く3つの装置を使った実験を経験することができた。ここではその滞在中に得られた情報について報告したいと思う。

2. PETRA III

PETRA III はドイツの北部ハンブルグ市内にある。市の中心地であるハンブルグ中央駅から西に直線距離で10 km 弱、電車とバスで30分程度の郊外にドイツ電子シンクロトロン (Deutsches Elektronen Synchrotron: DESY) があり、その中に放射光施設 PETRA III がある。

DESY は高エネルギー加速器・高エネルギー物理学の研究所であり、元々 PETRA は素粒子の実験用に周長 2.3 km の電子・陽電子の円形加速器として1978年に作られた。その後、高エネルギー物理実験の施設の大型化に伴い、1987年に DESY の敷地をはみ出し、近隣の公園や住宅地の下を通った周長 6.3 km の

電子・陽子の円形加速器 HERA が作られると、PETRA はそのための前段加速器として使用された (PETRA II)。その HERA も2007年にシャットダウンし、その後の DESY の素粒子実験はスイスにある欧州原子核研究機構 (CERN: European Organization for Nuclear Research) で行われるようになった。その一方で PETRA は、第三代放射光施設 PETRA III として再利用され、世界でも有数の高輝度光源として2010年から運用されている。

PETRA III の周長は 2.3 km と、SPRING-8 (周長 1.4 km) よりも大きい。しかし、ほとんどが地下もしくは半地下にあるため、放射光施設の象徴的な丸いリング状の建屋はなく、当初はリングの 1/8 程度の範囲に14本のビームライン (P01~P14) が建設された。その後放射光利用の需要が増えたことを受けて、2014年から、蓄積リングの北側 (Paul P. Ewald hall) と東側 (Ada Yonath hall) に新たな実験ホールの建設が始まった。2019年9月時点で北ホールに2本 (P63、P64)、東ホールで4本 (P21~P24) が稼働しており、合計で20本のビームラインが PETRA III にはある。



図1 PETRA III の東ホール (Ada Yonath hall)。この建物の中に HAXPES ビームラインである P22 とスタッフの居室がある。滞在中はこの棟の短期滞在用の居室に机を用意してもらい、そこで過ごした。

3. HAXPES ビームライン (P22)

当初の PETRA における HAXPES 実験は、P09 において他の実験手法と相乗りで行われており、全マシンタイムの 1/3 程度がシェアされている程度だった。しかし、近年の HAXPES 実験の需要の高まりに応える形で、東ホールの建設とともに HAXPES ビームラインが計画された。P22 は Wolfgang Drube 博士が設計した HAXPES 実験専用のビームラインであり、2018 年秋から共用が開始されている。Drube 博士は 2018 年に第一線から退かれ、後任として今回の滞在を受け入れていただいた Schlueter 博士が主担当となりビームラインの管理を行っている。ビームラインについては、PETRA III の Web サイトにある Technical Design Report に詳しく記載されているので参照してほしい¹⁾。

P22 ビームラインのエネルギー範囲は、データシートには 2.4~30 keV と記されているが、実際の HAXPES の実験としては 3~10 keV の範囲が使われる。二結晶分光器 (double crystal monochromator: DCM) は Si(111) と Si(311) があり、入れ替えができるようになっている。HAXPES 測定においてビーム強度が必要な時は Si(311) を使い、高分解能が必要な時は Si(333) などの高次反射を使う。ただし、アナライザーの分解能などを考慮するとエネルギー分解能よりもビーム強度が優先されることが多く、実験では主に Si(311) による 6 keV の光を使い、高分解能を必要とする時に Si(333) に変更する運用がなされている。

滞在中に Au 試料の HAXPES 測定により、DCM の各反射を使った場合に得られるエネルギー分解能を

見積った。その結果、Si(311) の場合には 100 meV 弱の分解能が得られ、一方、Si(333) の場合にはアナライザーのパスエネルギーを絞ることによって 50 meV まで分解能が上がるということが分かった。ただし Si(333) ではビーム強度が弱い上に、パスエネルギーも小さいため信号強度は弱く、長いため込み時間を必要とした。

集光については、垂直方向集光ミラーは円筒形ミラー (M1) でビームの角度補正のための平面ミラー (M2) とともに光学ハッチに入っている。一方、水平方向集光ミラーは長さが 1 m ある曲率変更可能な平面-楕円形ミラー (M3) であり実験ハッチ内の上流に設置されている。このミラーの入射角と曲率を変えることによって実験ハッチ内の各装置に合わせて焦点位置を変更している。スポットサイズの計算値は実験ハッチの上流にある HAXPES の位置で 8 μm (縦) × 8 μm (横)、下流の HAXPEEM の位置で 8 μm (縦) × 20 μm (横) 程度となっている。しかし、実際の HAXPES 実験では余裕を持たせ 20 μm 前後のスポットサイズで行っていた。スペックの上限を求めない分、光学調整の時間が短縮できる利点もあった。

P22 について発表されている論文には、Si(111) と Si(022) を用いた二段チャンネルカット結晶分光器とダイヤモンド位相子についても記述されている²⁾。これらが 1 つの真空チャンバーに入っており DCM の後ろに設置できるようになっている。しかしながら、これらは調整が複雑で難しいため、現状では使っておらず、このチャンバーはハッチ外に出されており、将来的には導入して安定稼働させる予定であるとのことであった。



図2 P22 の後方からの写真。ビームラインは地下にあり、写真は居室があるフロアの廊下から撮影した。写真奥中央にあるのが P22 の実験ハッチである。



図3 3 つ装置が並ぶ実験ハッチ。手前に HAXPES 装置、中央に k-microscope、奥に隠れているのが HAXPEEM である。滞在中は AP-HAXPES はハッチ外に置かれていた。

光学調整において非常に役に立っていたのが、モノクロメーターや各ミラーの間に設置されたビームモニターである¹³⁾。これは CVD 成長させた 100 μm ダイヤモンド板をスクリーンとして、ビームによる発光の位置、サイズ、強度を CCD カメラで読み取る。各光学素子の前後でのビームの状態が分かる上に、スクリーンを X 線が透過するので最終的な測定試料上の照射位置も弱いながらも確認できる。このビームモニターを SPring-8 の HAXPES のビームラインでも導入できると便利だろうと感じた。

ビームラインの制御はコントロールハッチ内の PC から行う。ビームラインの装置の制御には TANGO ライブラリを使っており、GUI としては Qt を用いて python でプログラムされた自作のソフトウェアを使っていた。ミラーやモノクロメーターなどの光学系とチェンバーの架台やマニピュレーターが同じような GUI で操作できるので、ユーザーにとって非常に使いやすい仕様になっていた。

また HAXPES のアナライザーは SPECS 製であり、コントロール用のソフトウェアとして同社が提供している Prodigy を用いていた。これを使うとアナライザーを TCP/IP によるリモート制御が可能になる。アナライザーの制御をビームライン制御用のソフトウェアに組み込み、HAXPES に関しては光学系やマニピュレーターと連動させて測定が行えるようになっていた。基本的には 1 つの端末から python を用いて HAXPES 装置を含めて、全ての機器が制御できるため、測定の手順のスキプトなどを作成すれば自動化が容易にできる環境になっていた。

4. 実験装置

P22 には現在 HAXPES の装置として 4 つがあるが、私の滞在期間中には k-microscope、HAXPES、HAXPEEM の 3 つの装置の実験に参加させていただいた。また AP-HAXPES のマシンタイムは 11 月末から 12 月中旬までの予定だったので今回は実験を直接見ることはできなかったが、担当のグループが装置の改良などで来所され作業を行っていたので、いろいろ話を伺うことができた。ここでは実験の内容や結果について詳しいことは記述できないが、この 4 つの装置について、それぞれ実験に参加させてもら

った上で経験したことを報告したいと思う。

HAXPES のアナライザーは実験ハッチの最上流に設置されている。アナライザーは SPECS 社製の 225HV であり検出器には delay line detector (DLD) を使っている。分光可能な光電子のエネルギー範囲は 10.5 keV までであり、また前段に広角取込のプリレンズが付属していて $\pm 30^\circ$ の取込角を持つ。マニピュレーターは xyz θ に加えて azimuth 回転が可能な 5 軸のものであり、液体ヘリウムのフローで 30 K 程度までの試料冷却した測定が可能である。

試料は 6 つのホルダをストックできるロードロックを経由して、測定槽に導入するようになっている。ホルダ自体も大きめのブロック状であり、小さな試料ならば複数個を一度に取り付けられる。マニピュレーターには azimuth 回転機構が付いているため 1 つの試料しか設置できないが、複数個の試料を同じホルダに取り付けることで、トランスファーの手間を減らすことが可能である。実際、滞在中の実験では、ホルダに 6 つの試料をのせて、それぞれの試料位置を記憶させた上でスペクトル測定と測定位置の移動をスクリプト化し、複数試料の連続測定を行っていた。始めにパラメーターをセットしておけば測定終了まで自動で測定するので、ユーザーとしては負担の少ない実験になっていた。

k-microscope は電子の運動量空間における分布の二次元マッピングが得られる装置であり、軟 X 線領域であるが UVSOR に導入が予定されているなど、光電子分光の分野で注目されている装置である。P22 の装置はマインツ大学の Schönhense 教授と Elmers 教授が中心となって開発を進めている。今回は両者のマシンタイムが 8 月下旬にあった。マシンタイムはそれぞれで割り振られていたが、中一日のシャットダウンを挟んで 10 日間ほぼ連続して実験を行っていた。k-microscope は 10 月にも 9 日間のマシンタイムが割り振られており、現在このビームラインが力を入れている実験の一つである。

k-microscope 装置は time of flight (TOF) 型のアナライザーで HAXPES 装置の下流にあり、試料とアナライザーを正対させる必要があるため、アナライザーがビームラインに対して 22° 傾いて設置されている。k-microscope の検出器として使っている DLD

のカウンtrateが 5 MHz であり、時間に直すと 200 ns になる。一方、PETRA では 40 bunch の運転モードがあり、これのバンチ間隔が 192 ns であるのでちょうど良く合うため、この運転モードに合わせてマシンタイムが割り振られている。また、最近、この装置を用いた論文が *Communication Physics* に発表された。より詳しい情報はこちらを参照して欲しい¹⁴。

PETRA III を訪れるまでは k-microscope 装置はまだ開発段階であってセットアップなどの作業に時間がかかるのかと思っていたが、装置が前期の実験からそのまま置いてあったこともあり、今回のマシンタイムの時には大がかりな調整を必要とせずにデータが取れていたことには驚いた。しかしながら、傍から見るとデータは取れているようでも、実験の調子はどうかと聞くと、「うまくいってない」という返事が頻繁に返ってきた。運動量空間の像が得られるだけで満足するような装置の開発段階は終わり、次は物理的に面白い試料をどのようにとるかというところまできているようである。

また、今回滞在中のマシンタイムでは行わなかったが、Elmers 教授は 10 月中旬のマシンタイムでスピン検出器を用いたスピン分解測定を予定しているとのことである。その準備のため k-microscope のマシンタイム後もシャットダウンの時間を使って、ベークや装置のセットアップなどの作業を行っていた。

HAXPEEM は 1 μm 以下の空間分解能で XPS スペクトルが得られる装置である。また硬 X 線を使うことから検出深度も深く、バルク内部の状態の情報を得ることができる¹⁵。この装置は P09 ビームラインで実験を行っていた頃からユーリヒ総合研究機構の Schneider 博士が主導して開発しており、今回のマシンタイムでもそのグループの Wiemann 博士が来所されて実験を行っていた。

HAXPEEM 装置は Focus 社の NanoESCA であり、二段の静電半球型アナライザーを備えている。実験ハッチの最下流にあり、ビームに対して斜め上方向に 65° 傾いて設置されている。ビームパスは k-microscope 装置の後方から真空パスをつなぎ、上流から HAXPES、k-microscope の測定槽内を通して HAXPEEM まで届いている。今回の実験では

HAXPES から HAXPEEM への切り替え作業があったが、マシンタイムの初日の朝から始めて、午前中には光学調整が終了し、午後からは HAXPEEM の測定に入ることができた。これは装置が常設されていることで各光学素子や装置のパラメーターが大きく変化しないためあたりがつけやすいのと、前述した各光学素子間に設置されているビームモニタが有効に機能している点が挙げられると思う。また PEEM であるため集光サイズについてそれほど気にかけなくてもよいことも効いているだろう。

HAXPEEM のマシンタイムは 9 月下旬に 6 日間あり、今回はシリコン基板の上に金のパターンが施されている標準試料に、入射エネルギーを変えて分解能や強度などの変化についての測定を行っていた。金のパターンは最小で 1 μm の格子になっており、エネルギー分解した PEEM 画像の測定でそれをギリギリ分解できる程度だった。分解能を引き上げるため、また現状では検出エネルギーによって視野が変わったり中心が動いたりするため、それらを修正するためのレンズパラメーター調整用の基礎データをとっているとのことであった。入射エネルギーを 3.5 keV から 8.5 keV まで 1 日毎に 1 keV 単位で変化させて 6 日間のマシンタイムを終えた。HAXPEEM は測定時間がかかり、特に信号が弱い内殻からの電子を使った場合、明瞭な像を得ようとすると長時間のため込みが必要である。今回の実験は基礎データの取得であったが、それでも潤沢なマシンタイムを配分されていた。これも専用のビームラインならではのスケジュールだと思われる。

AP-HAXPES はストックホルム大学の Nilsson 教授を中心に開発が進められている。滞在期間中に AP-HAXPES のマシンタイムは割り振られていなかったが、ちょうど同グループの Amann 博士と学生が AP-HAXPES の装置の改良を行うために PETRA に来所されたため話を伺う機会ができた。

AP-HAXPES は小径の光電子取り込み口と差動排気部を備えた光電子分光装置である。ベースは Scienta-Omicron 社の R4000-Hipp2 であるが、電子の取り込み口があるフロントコーンに一例に並べた直径 10 μm 程度のアパーチャーを設置し、その脇からガスを直接吹き付けられるようにしたことにより大気圧

以上の環境下での光電子分光測定を可能にした。

アパーチャーの列は入射光と同一の方向に並んでおり、斜入射になった時の試料表面のフットプリントをカバーするように並んでいる。また直径と穴の長さの関係も、アナライザーの電子の取り込み角範囲に収まるようになっており、全体がうまく設計されていると感じた。試料温度も液体窒素での冷却とヒーターでの加熱により-150~950°C までの変更が可能であるとしている。実際に CO ガス環境下で、表面温度を変更しながらコバルト表面の測定をしており、温度に依存した反応の変化が検出されているデータを見せていただいた。実際にマシンタイムには立ち会えなかったのは残念であるが、Amann 博士に直接いろいろと伺えたのは幸運だった。

5. おわりに

今回、PETRA III の HAXPES 専用のビームライン P22 を訪れて実際に実験などに参加させてもらったが、SPring-8 における HAXPES 実験の進め方について参考になる点がたくさんあった。

まずビームラインにおける状況をモニタするものが多く設置されており、それらが光軸や装置の調整に非常に役に立ち、その労力を抑えられることを再認識した。特に各光学素子の間に設置されているビームモニタはユーザーの切り替わりに伴う装置の入れ替え・再設定の手間を大幅に減らしていた。これらは SPring-8 の HAXPES のビームラインでもぜひ導入したいと思っている。

また、各装置・光学素子の操作のためのインターフェイスの統一も重要であると思われる。P22 では python と Qt を使ったソフトウェアにより 1 つの端末からほとんどの装置に同じような操作感でアクセスできるようになっていた。これは自分を含めて、ビームラインスタッフ以外の慣れていないユーザーにも理解しやすく扱いやすいと思われる。操作方法の見通しが良いと操作を覚えるのも容易になり誤操作も減る。このことはスタッフの負担の軽減にも繋がり利点は大きいと思える。

P22 は、最近設計・建設されたビームラインのため、比較的新しい装置が揃っており、PC も新調されているためインターフェイスの統一のための調整が

容易だったところはあるだろう。一方で、現状の SPring-8 の HAXPES のような時間をかけて装置が導入されてきたビームラインには装置のインターフェイスや PC が旧式のため対応しにくいものがあることは否めないが、それでもそれを吸収してうまくシステムを組むことには手間はかかるが利点が大いと感じた。他にも様々な点があるが、これらの経験を今後のビームラインの運営に活かしていきたい。

謝辞

今回、1 ヶ月以上にわたる滞在を快諾していただき、様々なサポートをしていただいた Wolfgang Drube 博士、Christoph Schlueter 博士、Andrei Gloskovskii 博士、また実験や装置について教えていただいた Yury Matveyev 博士、Patrick Lömker 博士に深く感謝いたします。PETRA III の他のビームラインの関係者、スタッフ、また自身の実験があるにもかかわらず色々教えていただいたユーザーの皆様にも感謝いたします。そして、今回の長期出張に関する手続きや所内のサポートを下さった SPring-8 関係者の皆様に深くお礼申し上げます。

参考文献

- [1] http://photon-science.desy.de/facilities/petra_iii/beamlines/p22_haxpes/beamline_posters_etc/index_eng.html
- [2] C. Schlueter *et al.*: *Synchrotron Radiation News* **31** (2018) 29-35.
- [3] M. Degenhardt *et al.*: *Journal of Physics: Conference Series* **425** (2013) 192022.
- [4] S. Babenkov *et al.*: *Communications Physics* **2** (2019) 107.
- [5] M. Långberg *et al.*: *Journal of The Electrochemical Society* **166** (2019) C3336-C3340.

高木 康多 TAKAGI Yasumasa

(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 分光・イメージング推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0803 ext 3722
e-mail : ytakagi@spring8.or.jp