

分子研 レターズ

49

Issue of February 2004



巻頭言

樟と樅の木.....宇田川康夫

研究紹介

UVSORにおける軟X線分子分光
の新展開..... 繁政英治
相対論的電子ビームによる光発生
法の研究.....加藤政博

レターズ

どこへいくのか研究の評価
.....岩田末廣



UVSOR における軟 X 線分子分光の新展開

極端紫外光実験施設 繁 政 英 治

1. はじめに

UVSOR の存在自体は学生時代から知ってはいたが、それは化学専用マシンの謳った共同利用の小さな放射光施設が西の方にもあるらしい程度の認識であった。前任地である物構研 PF (Photon Factory : 放射光研究施設) では、大学院以来、挿入光源と呼ばれる高輝度光源を専ら利用していたので、偏向電磁石からの通常の放射光を主に利用する小さな施設そのものにも、また、そこで行われている研究にも殆ど感心が無かった。ところが、転機は突然訪れた。97 年暮れから 1 年 3 ヶ月間、UVSOR と同規模であるフランスの放射光施設 LURE に滞在する機会を得たのである。小型放射光施設の、しかも偏向電磁石からの放射光を使ってこれまで PF でやっていたような研究が出来るのか、不安を抱えたままの渡仏だった。しかし程なくして不安は一掃されることになる。まともな分光器を用意して、実験装置の方で少し工夫さえすれば、かなりの事がやれると。ちょうどそんな時、縁あって UVSOR に来ることが決まり、帰国後バタバタと単身で着任したのが 99 年 5 月。もう 4 年半も前になる。振り返れば着任当初、極端紫外光科学研究系と極端紫外光実験施設、専用ビームラインと施設ビームライン等、外から見ていると分からない内部構造？ に少なからず驚いた事を思い出す。

着任当時の UVSOR には、軽元素の内殻励起領域で高分解能実験を可能にする高性能斜入射分光器が存在しなかった。そこで、先ず 100 eV を越える領域での振動分光を実現し、UVSOR における軟 X 線分子分光の新展開を目指して、新しい斜入射分光器

の設計・建設を行う所内グループを組織した。茅所長には金銭面で、また小杉施設長には総合的なご支援を頂いた。宇理須教授には建設用地確保のためのビームライン (BL4B) の立ち退き要求を快くお引き受け頂き、更には、UVSOR 施設の全面的な協力をと、多くの方々に支えられ、設計から利用開始まで約 1 年半という短期間で専用ビームライン (小杉グループと共同出資と共同管理) を建設する事が出来た。しかし、自分に甘い性格と浮気性が災いして、ビームライン建設と並行してひとりで進めていた独自の実験装置の開発・整備が遅れ気味なのが反省点である。以下に新型斜入射分光器の開発とそれを利用してこれまでに得られた研究成果をごく簡単に紹介する。

2. 新型斜入射分光器の開発

BL4B 建設グループでの議論を経て、新型の斜入射分光器には、不等刻線間隔平面回折格子分光器を採用するに至った。この分光器の特長は、回折格子の偏角 (入射角 + 回折角) が一定な定偏角型の分光器であり、出射光の方向や集光位置が一定である、集光素子と分散素子が分離しており、調整が容易である、回折格子の回転のみで波長操作が可能であり、波長再現性などの信頼性が高い、回折格子の刻線密度をパラメータとして収差補正を行っており、高分解能が達成できる、等があげられる。2 種類 (800 l/mm 及び 267 l/mm) の回折格子を真空中で切り替えることによって、目的のエネルギー範囲 (90 eV ~ 900 eV) 全域で高分解能の光が得られる仕組みとなっている。図 1 に BL4B の光学配置

図1 新BL4Bにおける光学配置の概念図。

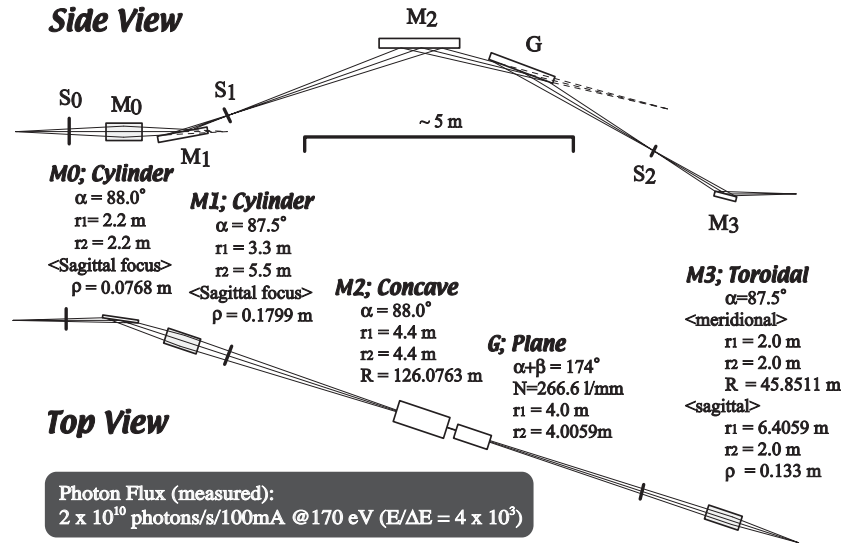
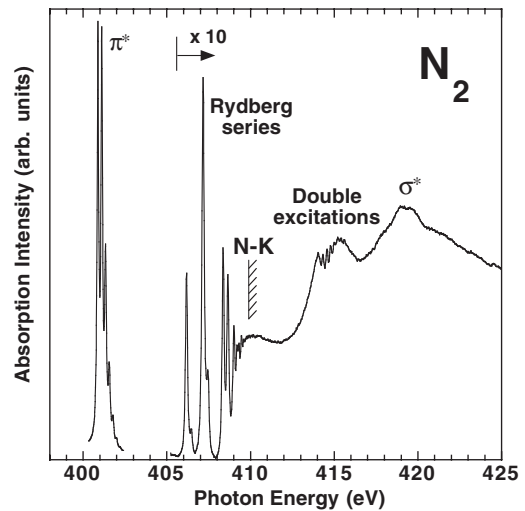


図2 窒素分子の高分解能K殻光吸収スペクトル。

を示す。UVSORでは最長尺のビームラインが建設可能な場所であるが、分解能と強度とのバランスを重視して、なるべくコンパクトな前置光学系を導入する事で、比較的長い入出射アーム長(約4.4 m)を確保することが可能となった。

2000年12月までにはビームラインの建設を終了し、2001年1月から3月にかけて性能評価実験を行った。評価実験結果の一例として、図2に窒素分子の高分解能光吸収スペクトルを示す。光強度の測定は、IRD社製シリコンフォトダイオードを用い、量子収率を考慮して蓄積電流100 mA当たりの光子数に換算した。入出射スリット幅を25 μm - 10 μm に設定(800 1/mmの回折格子の場合、400 eVにおいて理論分解能10000程度に相当)して測定した結果、90 eVから1000 eVの光エネルギー領域において、 $10^8 \sim 10^{10}$ photons/secの光強度が達成されている事が確認された。分解能に関して、綿密に光学素子の調整を行った結果、スリット開度に依存して望みの高分解能が得られることが確認された。図2に示したように、振動構造が明瞭に分離された窒素分子のK殻吸収スペクトルが観測され、文献等との比較から、400 eV付近での最高到達分解



能($E/\Delta E$)は設計段階での目安の5000を十分に上回っていることが明らかになった。¹⁾この性能は、偏向電磁石部を光源とする斜入射分光器としては世界でもトップクラスである。

3. 高分解能対称性分離分光実験

直線偏光を用いて分子を励起・電離すると、分子軸の配向や、光電子、オージェ電子、或いは発光(偏光度)に異方性が観測される。軽元素から成る分子の内殻励起では、通常、内殻正孔の電子緩和から分子解離(結合切断)へと通ずる過程は非常に速く、数fsと言われており、分子の回転(周期~ps)

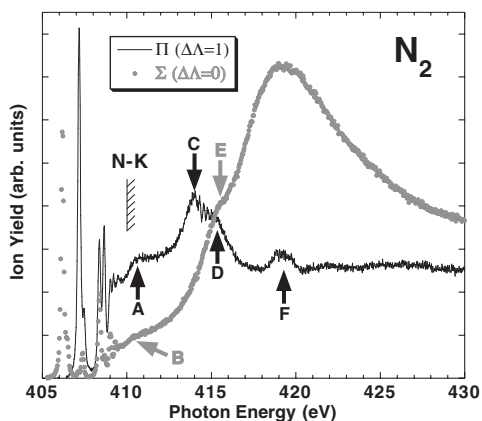


図3 窒素分子の対称性を分離した高分解能K殻光吸収スペクトル。

に比べて十分に速い。このような状況を Axial-recoil 近似が成り立つと言う。これは、分子回転や変角振動（多原子分子の場合）の影響を無視できるほど十分に大きな運動エネルギーを持った解離イオンを検出することでほぼ達成される。二原子分子の場合、Axial-recoil 近似が成立する条件下での解離イオンの放出方向は、分子が光吸収した瞬間の分子軸の方向とみなす事が出来る。直線分子のK殻励起では、遷移モーメントが分子軸に平行な平行遷移、又は垂直な垂直遷移に限られるので、偏光方向に対して平行と垂直方向に解離イオン検出器を設置し、光のエネルギーをスキャンしながらそれらの信号強度を測定すれば、平行遷移と垂直遷移を分離して観測することが出来る。この方法を対称性分離分光法（一般的には角度分解イオン収量法）と呼んでいる。²⁾

BL4Bでの利用研究として、高分解能な対称性分離スペクトルの観測及びその理論的な解釈による内殻励起分子の電子構造の解明を目指した研究を開始した。UVSORで展開して行くべき実験テーマの一つに内殻励起分子の解離ダイナミクスの解明があるが、ダイナミクスを詳細に議論するには、先ず後続過程の引き金となる内殻励起分子の電子構造を正しく理解する必要があると考えるからである。図3に、窒素分子のK殻電離しきい値近傍における対称性分離スペクトルを示す。この時の入出射スリット幅はそれぞれ25 μm-15 μmであり、分解能は約7000と見積もられた。しきい値以下のRydberg励起

状態に注目すると、ΣとΠ対称性が見事に分離されている様子が見て取れる。以前の研究により、イオン化しきい値以下の構造に関する帰属については、既にほぼ決着をみていたが、²⁾イオン化しきい値以上の連続状態に埋もれた多電子励起状態については、窒素のような簡単な分子でもあまり研究が進んでいなかった。図3のK殻イオン化領域に注目すると、Σ及びΠ対称性どちらについても、通常の吸収スペクトルでは同定が困難な多電子励起状態に関係した構造（A-F）が観測されていることが分かる。特に、419 eV付近のΠ対称性スペクトルに新たに見いだされた構造Fは、ちょうどΣ対称性スペクトル中の形状共鳴による断面積の増大と重なっており、対称性分離分光法以外での観測は不可能であった。A-Eの構造は、一光子の吸収により、K殻電子と価電子がπ*軌道へ同時に励起される、いわゆる二電子励起状態に対応する。一方、今回初めて観測された構造Fは、一光子の吸収により、K殻電子と二つの価電子がπ*軌道へ同時に励起される、三電子励起状態に帰属されることが量子化学計算より明らかになった。³⁾この研究がきっかけとなり、現在、いろいろなグループが世界各地の放射光施設で三電子励起状態の脱励起の研究を始めている。また、高分解能対称性分離分光法は、ここで紹介した二原子分子の窒素以外に、屈曲三原子分子であるSO₂やNO₂の酸素及び窒素のK殻励起領域にも適用され、従来曖昧に解釈されていたこれらの分子の内殻吸収スペクトル構造について、明確な帰属を行うことが出来た。¹⁾同様の研究は、BL4Bでカバーできるエネルギー領域に存在する元素のL殻励起領域、例えばHCl及



びCl₂分子のCl2*p*励起領域やSO₂分子のS2*p*励起領域などに於いても行われ、分子場、交換相互作用、及びスピン・軌道相互作用のために極めて複雑な構造を示すこれら分子のスペクトルの本質を理解することが可能になった。現在、これらは投稿準備中である。

4. おわりに

以上、これまで得られた成果の内、UVSORで実施された研究の一部について簡単に報告した。ここで紹介した研究は、私のグループ（とは言っても最近まで一人だけであったが）だけでは不可能であり、特に施設の下僚助手の助けと小杉グループのメンバーの助けが不可欠であった。また、先述した通り、多くの方のご協力によって、ビームライン建設という一大プロジェクトを恙無く終了させることができ、また、それを利用した研究成果も徐々に上がり始めている。UVSORの現、旧スタッフを始め、関係者の方々にこの場を借りて感謝の意を表したい。所期の目標である内殻励起分子の解離ダイナミクスの解明を目指して、継続的に成果を上げて行くためにも、実験装置の整備を急がねばならない。幸い、平成15年10月より、私の研究グループの最初の助手として彦坂泰正氏を迎えることが出来た。氏の加入により、道具立ての整備が着実に進展し、独創的な研究成果が得られることを大いに期待している。

昨年度予算化されたUVSOR高度化計画により、挿入光源を利用する新しいビームラインBL3Uの立上作業が小杉グループを中心に現在進行している。このビームラインは、私が中心となって立ち上げた

BL4Bの経験を発展させたものである。間もなく分光器への最初の光導入テストが始まり、その後、分光器の性能評価が開始される。限られたスペースに設置するため、かなりコンパクトな分光器にせざるを得なかったため、世界の最新鋭（高輝度光源）の放射光施設で達成されているような世界最高の分解能には負けざるを得ない。しかし、BL4Bと同程度の高分解能の単色光を、2桁以上高い光強度で、しかも十分の一以下のスポットサイズで得られるという、非常に魅力的な性能を発揮するはずである。高度化され生まれ変わったUVSOR-IIの性能を活かした本格的な利用実験が開始され、自分たちが実際に利用できるようになるのは、未だ数ヶ月先である。BL3Uでの素晴らしい実験結果を肴にシャンパンで乾杯できる日を楽しみにしつつ（ちょっと気が早いかな）、BL4Bの分光器と独自の実験装置の整備・調整に没頭する今日この頃である。

参考文献

- 1) T. Gejo, Y. Takata, T. Hatsui, M. Nagasono, H. Oji, N. Kosugi and E. Shigemasa, *Chem. Phys.* **289**, 15–29 (2003).
- 2) E. Shigemasa, K. Ueda, Y. Sato, T. Sasaki and A. Yagishita, *Phys. Rev. A* **45**, 2915–2921 (1992).
- 3) E. Shigemasa, T. Gejo, M. Nagasono, T. Hatsui and N. Kosugi, *Phys. Rev. A* **66**, 022508 (4 pages) (2002).

相対論的電子ビームによる光発生法の研究

極端紫外光実験施設 加藤 政博

1. はじめに

極端紫外光実験施設 (UVSOR) の光源部門である我々のグループの研究内容を手短かに言えば、相対論的なエネルギーまで加速した電子線を用いて光を生成する手法の開発研究、ということになる。相対論的な電子ビームの放出する電磁波は進行方向に集中して放出される。光を発生する物理的な過程は、制動放射、逆コンプトン散乱など、さまざまであるが、その中でもシンクロトロン放射光は指向性の高い極端紫外光やX線を生成する手法として定着し、幅広い研究分野で利用されている。

UVSORでは7億5千万電子ボルトまで加速された電子ビームをおよそ1万ガウスの磁場中で偏向させることで、極端紫外光から遠赤外線まで、幅広い波長域のシンクロトロン放射光を、分子科学を始めとする様々な分野の研究者に供給している。我々の

研究開発は、電子ビームを相対論的なエネルギー領域まで効率良く加速するための加速器技術開発から始まり、その電子ビームを安定で高品質なものとするためのビーム制御技術の開発、これら加速器技術の基礎となるビーム力学の研究、さらにその電子ビームを用いた様々な放射光発生法の研究までが含まれる。その中で今回は、我々のグループがここ3年半ほど取り組んできたUVSOR光源加速器の高度化について紹介したい。

2. そもそもUVSORとは

UVSOR加速器群は3つの電子加速器の複合体である。その初段は電子ビームを生成し1500万電子ボルトまで加速する長さ約2mの線形(直線)加速器である。線形加速器を出た電子ビームはブースターシンクロトロンへ入射される。これは周長約27



図1 高度化改造後のUVSOR (UVSOR-II) 光源リングとビームライン。

図2 運転開始から今年でちょうど20年。



mの円形加速器で、入射された電子を約0.3秒の間に6億電子ボルトまで加速する。電子ビームはさらに長さ約50 mのビーム輸送路を通して三番目の加速器である電子蓄積リング（光源リング）へ入射される。電子蓄積リングは周長が約53 mの円形加速器で、入射された電子を7億5千万電子ボルトまで加速した後、蓄積する。蓄積された電子ビームは超高真空に保たれたパイプの中を周回するが、一緒に周回する電子同士の衝突散乱、あるいは真空パイプ中にわずかに残ったガス分子との衝突散乱などにより少づつ失われていく。およそ6時間ほどで電子ビームの強度は半減するので、再び入射を行う。

電子ビームを周回させるために偏向電磁石と呼ばれる二極磁場を生成する電磁石を用いて電子ビームの向きを変えてやる。この際に電子はシンクロトロン放射するので、これを取り出して利用する。このようにして生成される放射光は直線偏光であり、遠赤外線からX線にいたる非常に広い波長領域の光を含む白色光である。また、電子ビームを右に左にと何回も蛇行させ、偏向のたびに放出される光を重畳させて取り出すことでより強度の高い放射光を生成するアンジュレータと呼ばれる装置も設置されている。アンジュレータを用いると、直線偏光だけでなく、円偏光も生成可能であり、またそのスペクトルは単色に近い。さらにこのアンジュレータ光を対面する2枚の鏡の間に閉じ込めることで、レーザー発振（自由電子レーザー）を起こすことができる。UVSORで発生可能な放射光は以上の3種類である。これらの放射光は蓄積リングを取り囲むように放射

状に配置されている約20本のビームラインに取り出され利用に供される。UVSOR電子蓄積リングとビームラインの最近の様子を図1に示す。

3. UVSORを高度化する

UVSORは約20年前に建設され（図2）、つくばのPhoton Factory等と並ぶ全国共同利用施設として順調に稼動を続けてきた。Photon FactoryがX線領域を得意とするのに対し、UVSORはもう少し波長の長い極端紫外光の生成に適している。着任早々から我々のグループが取り組んだのは、建設後約20年が経過し、最新の放射光源と比べて性能的に見劣りがするようになっていたUVSORを改造し、最先端の放射光利用研究が行える施設に生まれ変わらせるという、UVSOR高度化計画であった。

放射光源の性能はいろいろあるが、高度化計画で目指したのは放射光輝度の向上である。輝度は単位面積、単位立体角、単位時間あたりの光子数で定義される。高輝度放射光を生成するためにはアンジュレータを使えばよい。アンジュレータは偏向電磁石に比べて1000倍程度の輝度の放射光を生成できる。このアンジュレータをできるだけたくさん設置して、光源の主力を偏向電磁石からアンジュレータへ移す。このためにアンジュレータを設置できるフリースペースをできるだけ多くリング内に作り出す。一方でそれらのアンジュレータの高輝度特性をより引き出すために電子ビームの輝度も向上させる。これらを実現できる解（リング改造案）を様々な境界条件のもとで探すわけであるが、境界条件には、ビームが



図3 UVSOR-IIの機器配置図。電磁石配置の変更を中央に示してある。UVSOR-IIには3台のアンジュレータが既に設置され、更に3台が将来設置可能である。

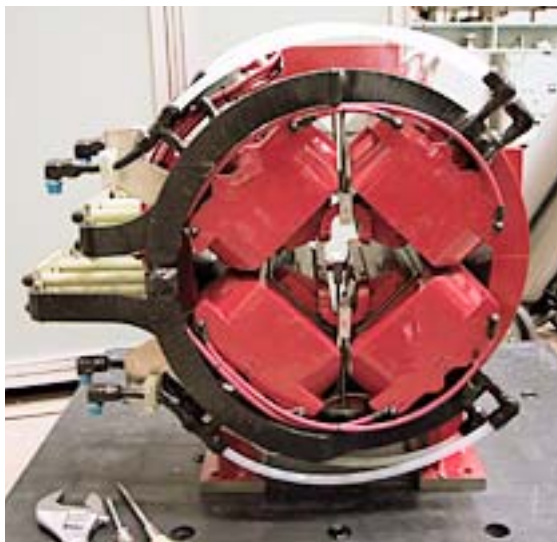


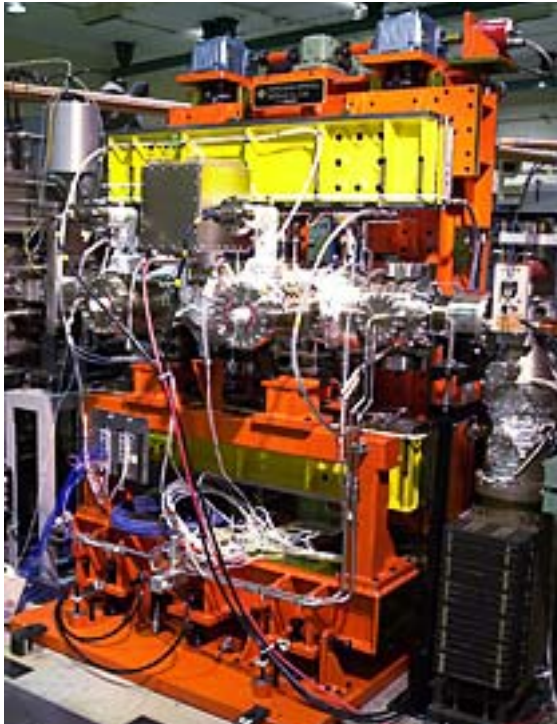
図4 複合機能型ビーム収束電磁石。1台の電磁石を3系統のコイルで励磁することで四極磁場と六極磁場を同時に生成することができる。

安定に蓄積できるか、入射はできるか、などといった加速器技術的なものだけでなく、改造に必要な予算、期間、マンパワーなども含まれる。新しい加速器を作るのに比べて格段に安い予算であること、UVSORの共同利用を長期間中断することのないこと、我々のグループのマンパワーで手におえるものであること、などなど、考慮すべき点は数多くある。

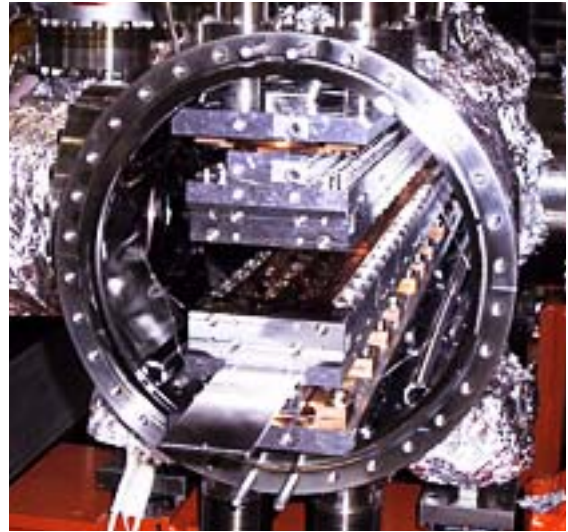
検討の結果、様々な要求事項を満足できる改造案として図3に示すようなもの考えた。改造前には最大で3台のアンジュレータが設置可能であったが、改造後は最大で6台まで設置できるようになる。同時に電子ビームの輝度も向上し、アンジュレータ放

射光の輝度は更に約10倍高まる。偏向電磁石には改造を加えないのでリングの形状は変わらない。従ってリングの接線上に建設されている既設のビームライン群はそのまま使用できる。収束電磁石及び電源は全て更新する。これまで別々の電磁石で生成していた四極磁場と六極磁場をひとつの電磁石で生成できる複合機能型の収束電磁石を導入することで、アンジュレータを設置できるスペースをできるだけ多く確保する。収束電磁石用のビームダクト（真空ダクト）及びそれらの排気系も全て更新する。老朽化したアンジュレータは、真空封止型と呼ばれる最新式のものに替える。磁石（永久磁石）が真空中に設置されているため、通常型のアンジュレータよりも磁石をビームに近づけることができ、軌道上により強い磁場が発生できる。磁場の周期長の短いアンジュレータを作るのに適しており、比較的短いスペースでも周期数を確保でき、輝度を高くできる。高度化後のUVSORには最適である。

これら全ての改造を行うのに要する期間は約3ヵ月、改造後の加速器及びビームラインの立上げ調整に約2ヶ月、合計で5ヶ月間、共同利用を停止する。



(a)



(b)

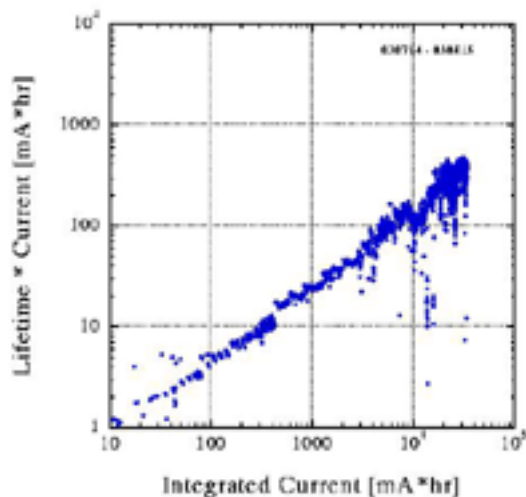
図5 (a)真空封止型アンジュレータ1号機。超伝導ウイグラの跡地に設置された。(b)真空封止型アンジュレータ磁極。真空チャンパー中に表面処理を施された永久磁石が並んでいる。

図6 改造直後の光源リングの一部。手前にアンジュレータ設置用のスペース、奥に真空封止型アンジュレータ2号機が見える。



実をいえばこれは相当厳しいスケジュールであり、作業項目をひとつひとつ積み上げていった結果こうなった、というよりは、この程度の停止期間に留めないと利用者の理解を得るのが難しくなるだろう、ということで作業スケジュールを組んだ。

着任後すぐにハードウェアの詳細設計を始め、配分していただいた特別研究費などを使って、複合機能型のビーム収束電磁石（図4）と真空封止型アンジュレータ1号機（図5）を製作した。前者については磁場測定を行い目標の磁場性能が実現できることを確認した。後者についてはリングの改造に先行して2002年春にリングに導入した。試験運転を行い、このタイプのアンジュレータがUVSORでも問題なく運転できることを確認した。



さいわい高度化計画は2002年度に予算化され、必要な加速器装置の製作を行うことができた。光源リングの改造に必要な電磁石群、真空装置群などに加えて、真空封止型アンジュレータ2号機、線形加速器部分更新用の機器なども製作した。加速器の改造は2003年春から開始し予定通り3ヵ月で完了した。偏向電磁石などを除く多くの機器を撤去し、そこへ新しく製造した装置を据付ける(図6)。新しい収束電磁石は100ミクロンの位置精度で据付た。真空ダクトはリング1周を接続し真空引きした後、約1週間かけて約200℃で加熱排気処理した。これら全てが終わったのは7月の第1週である。

2003年7月の第2週から光源リングの運転を開始した。しかしすぐにビームが蓄積できたわけではなかった。シンクロトロンからはビームはちゃんと来ている。リングに入射されたビームは何千回も周回しているのが計測システムにより確認できる。しかし何故か蓄積されない。調べて見るとハードウェアの問題が幾つか見つかった。これらを取り除いた後、7月14日に気を取り直して運転を再開するとビームが蓄積できた。その1週間後にはビーム強度が、放射線に関する法令で定められているUVSORのビーム強度の上限である500 mAに到達した。また同じ日に7億5千万電子ボルトへの加速にも成功した。7月30日には高輝度モードでの運転にも成

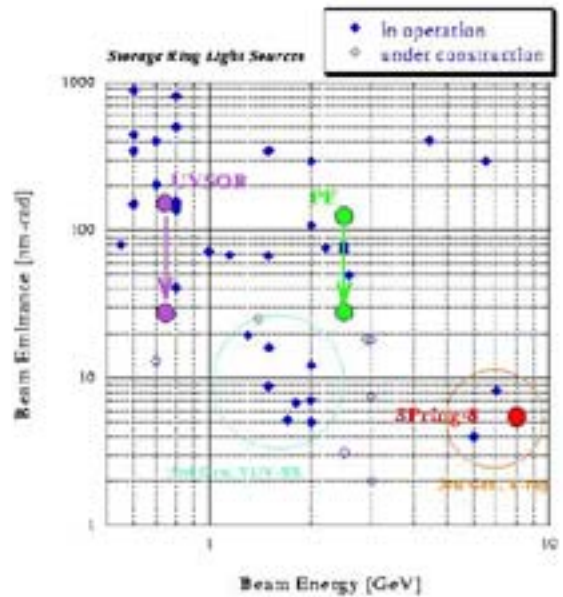
図7 運転再開後約1ヶ月でのビーム寿命の回復。横軸は時間で積分したビーム電流値であり放射光の総照射量の目安となる。縦軸はビーム寿命とビーム電流値の積。電子蓄積リングではビーム寿命とビーム電流値がほぼ反比例するためこれらの積をビーム寿命の目安として用いる。改造前の典型的な寿命は1000 A*min程度であった。

功した。改造されたUVSORはUVSOR-IIと呼ばれることとなった。

8月に入ってから一日あたり約12時間の運転時間の半分を真空調整のための大電流運転に、残りの半分をビームライン側へ放射光を取り出しての立上げ調整に充てた。今回の改造ではリングの大半の真空ダクトが新品になり、また、更新しないものも長期間大気にさらされた。このため運転再開直後は放射光がダクト内壁に照射されることで激しい脱ガスが起き、真空の悪化でビームの寿命は非常に短くなる。これは新しい加速器あるいは大きな改造をした加速器の立上げでは避けて通れない問題であり、これを解決するには電子ビームをどんどん回して、放射光の照射を続け、脱ガスを促し、ダクトが真空的に潤れてくれるのを待つしかない。このために改造完了後ユーザー運転再開までに2ヶ月間の調整期間を設けておいた。運転開始から最初の1ヶ月間でのビーム寿命の回復の様子を図7に示す。着実に回復していることがわかる。

9月第1週、当初の予定通りユーザー運転を再開した。新しいアンジュレータなどの立上げ調整を毎週月曜日の光源開発用の運転時間を利用して進めているところである。これまでのところUVSOR-IIは極めて順調に立ち上がったといえる。しかしビーム寿命、ビーム軌道の安定性など時間をかけて改善していかなくてはならない項目も数多くある。またアンジュレータは現在3台が設置され、あと3台、増設が可能である。UVSOR-IIの特長を活かせるようなアンジュレータを利用側と協議しながら整備

図8 世界各国のシンクロトロン放射光源リングのビームエネルギーとビームエミッタンス。黒は稼動中、白抜きは建設中。国内の代表的なリングは丸で示してある。ビームエミッタンスは電子ビームの指向性を表す量で、これが小さいほど指向性が高く高輝度である。1997年実施されたつくばのPhoton Factory (PF)の高輝度化と今回のUVSORの高度化による輝度の向上を矢印で示してある。高度化後のUVSOR (UVSOR-II)は1 GeV以下のエネルギーの光源としては世界的にもトップレベルの高輝度光源となったことがわかる。



していく必要がある。

4. 終わりに

我々のグループの、最近の最も大きな仕事であるUVSOR高度化計画について紹介した。我々の仕事は自然科学に関するものというよりは、むしろ自然科学研究のための道具に関するものである。この高度化計画のようなものが、研究、という言葉にふさわしいのかどうか、筆者自身もよくわからない。それで仕事という言葉を使っている。それはともかく道具としては一流のものになった、あるいはもっと正確には、そうなる素地はできたと考えている。世界の放射光源の性能をまとめたものを図8に示す。10億電子ボルト以下の比較的低エネルギーの光源の中では電子ビーム輝度は世界的にもトップレベルに達していることがわかる。今後は、ビーム電流値、ビーム寿命の改良、軌道安定化など、ビーム性能に更に磨きをかけていく必要があり、また利用者と協議しながら加速器の特長を活かせる挿入光源を導入しビームラインの整備を進めていく必要がある。