

4．点検評価と課題

4-1 極端紫外光実験施設 (UVSOR)

4-1-1 Bradshaw 博士による点検評価

極端紫外光実験施設 (UVSOR) の現状と高度化計画について外国人評議員の Bradshaw 博士 (Max-Planck プラズマ物理学研究所科学担当所長) の評価を受けた。以下にその報告書を掲載する。

なお、評価を受けたのは高度化計画が認められる前であった。

原文

The UVSOR facility: a short appraisal

Introductory remarks

UVSOR is known mainly in the international community for its fine work in molecular photoinisation, photochemistry and macromolecular physics. The author of this brief survey, a former scientific director of BESSY with research interests in molecular photoionisation and surface science, has been familiar with the research carried out at UVSOR for many years, but visited the facility itself for the first time during his stay at IMS from 21st – 24th October 2001.

Status of the beam lines

The machine has four straight sections two of which are used for insertion devices—a linear undulator (BL3A) and an undulator for circularly polarised light (BL5A), which is also used as an optical klystron for a free electron laser experiment. BL3A is equipped with an irradiation facility as well as with a constant deviation SGM used for the study of dissociative multiple photoionisation, unique among synchrotron radiation facilities. On BL5A there is a highly flexible SGM with an energy range of 5-250 eV which is used for high resolution spin- and angle-resolved photoemission studies of solids and surfaces. More insertion device beam lines are planned following an upgrade of the machine which is discussed below. There is also an impressive monochromator park on the bending magnet beam lines, including a further eight grazing-incidence monochromators and two crystal monochromators. A variable line spacing PGM has just finished trials on a bending magnet beamline (BL4B). Altogether there is a total of twenty measuring stations, including normal-incidence monochromators and beam lines for white light and IR. Eleven of these stations are used by outside users, i.e. by scientists from institutions other than IMS.

A brief overview of the research programme

It is not possible in such a brief account to do justice to the extensive research programme. The examples of world-class research work chosen by the author in the following are necessarily subjective and certainly influenced by his own research interests, as well as by some of the very fine talks he heard at a symposium held during his visit.

Both fluorescent decay and laser-induced fluorescence have been used to study the photofragmentation of molecules such as

H₂O, OCS and CH₃CN following excitation with UV synchrotron radiation as well as to characterise the fragments. Similarly, the coincidence techniques PIPICO and AEPIPICO have been employed to study fragmentation in core-ionised CF₄, CD₃OH and CH₃CO, CD₃CN, respectively. The latter study was particularly interesting in that two-body dissociation with rearrangement was found to accompany N 1s resonant Auger decay to give CD₂⁺ and DCN⁺ alongside the “normal” products (C₂D₃⁺ and N⁺) and (CD₃⁺ and CN⁺). Similarly exciting is the increased level of understanding of core level photoabsorption of diatomic molecules achieved by both new experiments and theory. In particular, a very simple experiment has recently been conceived for the new variable line-spacing PGM in which two identical detectors register the photoion current at 0° and 90° to the **E** vector of the incident synchrotron radiation. Since the absorption cross section will be largest when the transition dipole is aligned parallel to the **E** vector the anisotropy in the ion distribution will reflect the symmetry of the excited states. Thus for a linear molecule it is possible to distinguish between final states of π and σ symmetry. In the case of core level excitation of N₂ a previously unidentified state of π symmetry was found at 419 eV in the region of the σ shape resonance. Recent calculations by the same group show that this could be a bound state involving a triple excitation. Combined synchrotron radiation and laser experiments are likely to play a more important role at UVSOR in the future: The technique has already been used to study the time dependence of photo-induced phase transitions in inorganic systems as well as of the surface photovoltage (SPV) effect in semi-conductors. It was found, for example, that both for the GaAs(100) surface and for a GaAs-GaAsP superlattice that the laser-induced photoelectron core level shift is due to the SPV and that its decay can be observed on a microsecond timescale. Beamline BL6A2 has been upgraded for experiments of this kind and combined with a facility for photoemission investigations on surfaces with a spatial resolution in the micron range. A deeper understanding of the preparation and properties of Si surfaces has also been obtained, in particular of the hydrogen adlayers resulting from etching techniques. Infrared reflection-absorption spectroscopy played an important role in these measurements. Single crystal surface science studies at UVSOR have also shed new light on the chemisorption of simple molecules on metal surfaces. For example, it was shown that N₂O adopts a lying-down geometry on the Pd(110) surface and already dissociates at about 120 K, giving rise to several N₂ desorption states and leaving oxygen on the surface. Studies of the electronic structure and molecular orientation of polymer films continue at UVSOR, if not with the same intensity as in the past. Recently, angle-resolved photoemission and NEXAFS have been used to show that the heterocyclic pendant group in poly(9-vinylcarbazole) exhibits a larger average tilt angle at the surface than that expected on the basis of random orientation.

Planned upgrade and future emphasis

As is now widely known, an undulator is a periodic magnetic structure, or insertion device, which is inserted into the straight section of a storage ring, causing the electron (or positron) beam to oscillate transversally about its prescribed orbit. The intense beam of radiation produced in the forward direction is strongly peaked at one wavelength on account of the quasi-coherent addition of the radiation emitted from the points of maximum excursion. UVSOR is a so-called second-generation synchrotron radiation source which was planned and constructed at a time when the principle of the undulator was already known, but essentially untested. Third generation sources built in the last ten years are those which contain a large number of straight sections for undulators and wigglers. These, rather than the bending magnets, then provide the most important sources of synchrotron radiation on the storage ring. (The periodic excursions from the orbit are larger in the wiggler due to a stronger magnetic field and there is no quasi-coherent addition of the emitted radiation.) UVSOR has currently two undulators and a short wiggler with superconducting magnets which is intended as a “wavelength shifter.”

A modification to the lattice of the storage ring (“upgrade”) is currently in the planning stage. This will create—without changing the circumference—four new short straight sections which can also be used for insertion devices. The new lattice can be created by replacing all the separate quadrupole and sextupole magnets of the old lattice with “combined function” magnets which have both quadrupole and sextupole fields. The bending magnets would remain unchanged. A further attractive feature of the upgrade would be the lower emittance (27 nm-rad as opposed to 165 nm-rad) which is an important factor in obtaining high spectral resolution and high photon flux on the various monochromators installed on the beam lines. The use of specially constructed *in vacuo* undulators with gaps as narrow as 10 mm will give access to the photon energy range up to 500 eV with the first and third harmonics. The short length available (1.5 m) for the undulators in the new straight sections means that the flux and pseudo-monochromaticity will be somewhat lower at these photon energies than on storage rings with electron energies in the 1–2 GeV range. However, UVSOR will still become competitive in this important soft x-ray region where very exciting work is currently being performed at facilities such as MAX II (Lund), ALS (Berkeley), ELETTRA (Trieste) and BESSY II (Berlin).

At the same time, the author of this report is of the opinion that it is very important to maintain, and to expand, the undulator capacity for photon energies from 10 to 100 eV. Storage rings with electron energies of the order of 750 MeV optimally provide first-harmonic undulator radiation in this photon energy range. The last few years has seen a reduction in the number of such facilities available world-wide. BESSY I has been closed; Super-ACO in Orsay will suffer the same fate when the construction of SOLEIL begins; MAX I is used as part of the injection system for MAX II; the ISSP ring in Tokyo has been dismantled; further, it is not clear how long the UV ring in Brookhaven will remain in operation. UVSOR has the unique opportunity—particularly with the upgrade—of becoming the prime facility world-wide offering undulator radiation of very high spectral brilliance in the far UV up to 100 eV primarily for experiments in surface and solid state physics, for fundamental photoionisation studies (e.g. in the inner valence region) and for photochemistry.

The scientific programme already has many highlights, a few of which have been described briefly above. In line with the mission of IMS the main thrust of these activities lies in photochemistry (including surface photochemistry), molecular photoionisation and polymer science. However, there are several areas, particularly in surface and solid state physics, which are not as strongly represented as they could be, even though UVSOR has a very good monochromator park. (After the upgrade it will no doubt improve further!) This imbalance is all the more surprising since the ISSP ring is no longer in operation and one might have expected that outside users particularly in the area of solid state physics would have shown greater interest in coming to Okazaki. It therefore seems necessary—parallel to the implementation of the upgrade—to recruit new users or to initiate new activities at IMS itself in areas such as high energy and high angular resolution photoemission, spin-polarised photoemission, high spatial resolution photoelectron microscopy and photoelectron diffraction. This would establish UVSOR as an important multi-disciplinary, and internationally unique, facility with its most important areas of research focussed on the far UV.

M. Bradshaw

Garching, November 2001

UVSOR 施設についての短い評価

序

UVSORは分子の光イオン化,光化学や大きな分子の物性物理を主として詳細に研究する施設として国際的に知られている。以前,私は BESSY 施設の科学担当施設長の職にあったときに分子の光イオン化と表面科学の研究に興味を持っていたので,UVSOR で行われていた研究には長年,馴染みがある。しかし,施設を実際に訪問したのは2001年10月21日から24日,分子研に滞在したときが初めてである。

ビームラインの現況

光源は4つの直線部を持ち,そのうち2本は直線偏光アンジュレータ(BL3A)と円偏光アンジュレータ(BL5A)に利用されている。後者は自由電子レーザーのためのオプティカルクライストロンとしても使われている。BL3Aは世界の放射光施設を見ても例がない照射ラインと定偏角球面回折格子分光ラインの2つを備えている。後者は解離性多重光イオン化の研究に利用されている。BL5Aには固体や表面の高分解能スピン,角度分解光電子分光研究のために5-250 eVをカバーする非常に自由度のある球面回折格子分光器がある。後述するように光源の高度化のあとにもっと多くの挿入光源ビームラインが計画されている。また,偏向磁石ビームラインには8基の斜入射分光器や2基の結晶分光器など印象深い分光器群がある。不等間隔刻線平面回折格子分光器も1基,偏向磁石BL4Bビームラインにあり,今,最初の試行実験が行われているところである。直入射分光器や白色光や赤外線ビームラインを含めて全体で20基の実験ステーションがある。そのうち,11基のステーションが外部利用者(つまり,分子研以外の組織の研究者)によって施設利用されている。

研究プログラムの概観

広範な研究プログラムをこのような短い説明で評価することはできない。以下で私が選んだ世界水準にある研究例は,滞在中に開かれたシンポジウムで聞いた詳しい発表の中の数件と私自身の研究の興味に従ったものである。

真空紫外励起による H_2O , OCS , CH_3CN などの分子の光断片化の研究やフラグメントの同定に蛍光脱励起とレーザー誘起蛍光が用いられている。同様に,内殻イオン化された CF_4 , CD_3OH , CH_3CO , CD_3CN の断片化の研究のためにPIPICOやAEPIPICOのコインシデンス法が用いられている。後者では CD_3CN の $\text{N}1s$ 共鳴のオージェ脱励起において C_2D_3^+ と N^+ とか CD_3^+ と CN^+ のような通常の2体解離の生成物の他に分子内転位を含む CD_2^+ と DCN^+ という2体解離が起きることが見つかり,特に興味深い。

同様に新しい実験と理論によって2原子分子の内殻吸収の理解が増していることにも感嘆した。特に,新しい不等間隔刻線平面回折格子分光器を利用して非常に単純な実験が行われている。その実験では入射光の電場ベクトルに対して 0° と 90° の角度でイオン電流を測定する2つの同じ検出器を用いている。遷移双極子が電場ベクトルに平行になったときに最も吸収断面積が大きくなるので,イオンの分布の異方性が励起状態の対称性を反映することになる。このようにして線形分子の励起終状態で,の対称性の区別が可能となる。 N_2 の内殻励起で,形状共鳴の領域の419 eVあたりにこれまで知られていなかった対称性の状態が発見された。同じ研究グループの計算によって3電子励起を含む束縛状態であることが示された。

放射光とレーザーの併用実験は将来、UVSORでより重要な役割を果たすように思える。すでに併用実験は無機系の光誘起相転移や半導体の表面光電位効果 (SPV) の時間依存性の研究で行われている。例えば、GaAs(100)表面とGaAs-GaAsP 超格子の両方でレーザー誘起光電子内殻準位シフトがSPVによること、その緩和時間がマイクロ秒のスケールであることが見つかった。この種の実験のためにビームラインBL6A2の性能向上がなされ、ミクロン領域の空間分解能の固体表面光電子分光装置が繋がっている。Si表面の形成と性質、特にエッチング法から水素吸着相、についてのより深い理解も得られている。この種の測定には赤外反射・吸収分光が重要な役割を果たした。UVSORでは単結晶表面の研究によって金属表面上の単純な分子の化学吸着に関して新しい知見を与えている。例えば、 N_2O はPd(110)表面に寝て吸着するが、約120 Kですでに解離し、いろいろな N_2 脱離状態を与え、酸素が表面から出ていくことが示されている。ポリマーフィルムの電子構造と分子配向の研究は昔と同じ力の入れ方ではないにしても、これまでずっとUVSORで続いている。最近、角度分解光電子分光とNEXAFSを使ってポリ(9-ビニルカルバゾール)のヘテロ環状ペンダント基が無秩序に配向したときに予測される角度よりも大きな角度で表面に対して傾いていることが示された。

高度化計画と将来の強化策

今広く知られているようにアンジュレータは周期的な磁気構造を持っており、電子蓄積リングの直線部に挿入デバイスとして挿入される。そして、電子(あるいは陽電子)に対して、定まった軌道を横方向にうねらせる。前方進行方向に出る強い光ビームは、電子のうねりの最大振幅の各点から放出される放射光の準干渉的な重ね合わせによって一つの波長に強いピークを形成するようになる。UVSORはいわゆる第二世代のシンクロトロン放射光源であり、アンジュレータの原理は知られていたものの、実機テストが全く行われていなかった時代に計画され、建設された。最近10年間に作られた第3世代光源はアンジュレータやウィグラーのための多数の直線部を含んでいる。偏向磁石よりもむしろ直線部の挿入光源が蓄積リング放射光として最も重要な光源となっている。(ウィグラーではより強い磁場のために軌道からの周期的な振幅が大きくなり、放射光が準干渉的に重ね合わさるわけではない。)UVSORは2つのアンジュレータと波長シフトのための短い超伝導ウィグラーひとつを備えている。

蓄積リングのラティスの改善(“高度化”)は現在、計画段階にある。周長を変えずに4つの短直線部を作り出し、それは挿入光源にも用いることができる。古いラティスに使われている分離型の4極磁石と6極磁石の全部を4極・6極複合機能磁石で置き換えることで新しいラティスが作られる。偏向磁石は不変である。高度化のより魅力的な特性は低エミッタンス化(165 nm-rad に対し 27 nm-rad)であり、低エミッタンス化はビームラインに導入されている多様な分光器で高いスペクトル分解能と高い光フラックスを得る場合の重要な要素である。10 mmまで狭いギャップを許す特別仕様の真空封止アンジュレータの利用によって、3次と5次の高調波を使って500 eVまでの光エネルギーまで可能となる。新しい直線部のアンジュレータ用に1.5 mの短直線が利用できる。このアンジュレータは電子エネルギーが1~2 GeV 域の蓄積リングに置いた場合よりもフラックスや擬単色性において若干低くなる。しかし、この重要な軟X線領域では非常に魅力的な研究が現在、MAX II(Lund), ALS(Berkeley), ELETTRA(Trieste), BESSY II(Berlin)などの施設で行われており、UVSORも軟X線領域で競争力を持つことになる。

同時に私はアンジュレータの性能を10から100 eVの光エネルギーで発揮させることが非常に重要であるという意見を持つ。750 MeVクラスの電子エネルギーを持つ蓄積リングはアンジュレータの1次光としてこの光エネルギーの

領域を得るのに最適である。最近数年間、世界を見渡すとこのような施設の数が増加してきている。BESSY I は閉鎖された。Orsay の Super ACO は SOLEIL の建設が始まると閉鎖の運命が待っている。MAX I は MAX II の入射器として部分的に利用されるようになった。東大物性研リングは撤去された。さらに Brookhaven の UV リングの寿命もどのくらいあるか、はっきりしない。UVSOR は主に表面や固体物理の実験、基礎的な光イオン化研究（例えば、深い価電子領域において）、光化学のために真空紫外から 100 eV で非常に高輝度なアンジュレータ光を提供する世界的な主要施設となるという他施設にない機会（特に高度化が行われたら）を有している。

すでに研究プログラムは多くの成果を生み出しており、その一部の概要は上述したとおりである。分子研の使命に沿って、研究活動の推進力は表面を含む光化学、分子の光イオン化とポリマー科学にある。しかし、いろいろな研究領域がある。特に UVSOR に非常に優れた分光器群があり（高度化後は疑いもなくさらに改善される！）、やれば可能であるにも関わらず、あまり強化されていない表面および固体物理においてそうである。さらに、物性研リングがもはや運転しておらず、特に固体物理の分野の研究者が岡崎に来ることに大いに興味があるはずと予想できるので、このようなバランスの欠けた状態に一層驚かされた次第である。そのため、高度化の実現と並行して、高分解能なエネルギー・角度分解光電子分光、スピン分解光電子分光、高空間分解能光電子顕微鏡や光電子回折のような領域で新しい利用者を呼び込むか、あるいは分子研内部で新しい研究活動を生み出すことが必要のように思える。このことで UVSOR は真空紫外域に的を絞った研究の中で最も重要な研究分野を受け持つ学際的で国際的にも無比の定評ある施設になるであろう。