

物性研軌道放射物性研究施設

The Present Status of the Synchrotron Radiation Laboratory of
the Institute for Solid State Physics

石井武比古、宮原 義一、菅 滋正、柿崎 明人
Takehiko Ishii, Yoshikazu Miyahara, Shigemasa Suga and Akito Kakizaki

東京大学物性研究所
The Institute for Solid State Physics

1. SOR-RINGの現状

SOR-RINGは当初300 MeVで定常運転するように設計されたが現在は308 MeVで電子を入射し、入射後380 MeVまで加速して使用されている。図1は電子入射器としての電子シンクロトロンからSOR-RINGまで電子を運搬するビームトランスポート系とリング本体の配置を定性的に示したものである。電子シンクロトロンから取出された電子は途中二つの偏向電磁石で 47° と 68° の合計 115° ほど偏向されてSOR-RINGに到達する。その全長は約20mである。この間電子ビームは3組の四極電磁石で集束される。電子シンクロトロンの中で電子エネルギーが308 MeVになった瞬間に蹴り出し電磁石を作動させて電子ビームを 12.3 mrad ほど偏向させ「平衡軌道より50 mmほど外側にずらし、そこでパルス偏向電磁石で

さらに 12.5° ほど偏向させ、電子シンクロトロンより取出す。速い蹴り出し磁石の磁界の立上り時間は60ナノ秒、磁界の頂上平坦部の持続時間100ナノ秒ほどである。SOR-RINGに到達した電子はパルス偏向電磁石で 14° ほど偏向されてリング中に打込まれ、電子の平衡軌道の外側から進行してくる。そしてリングの打ち込み点と反対側にある速い蹴り出し電磁石で軌道を修正し、入射点に戻ったとき軌道が少し内側にズレるようにしてパルス偏向電磁石に当たらないようにする。蹴り出し電磁石に使われているパルス電源は従来スパークギャップによる放電を利用していたが、必ずしも動作が安定でなく故障も多いので、最近サイラトロンを用いる方式のものに交換された。パルス偏向電磁石の磁場は幅1 msの半波正弦波状のものである。

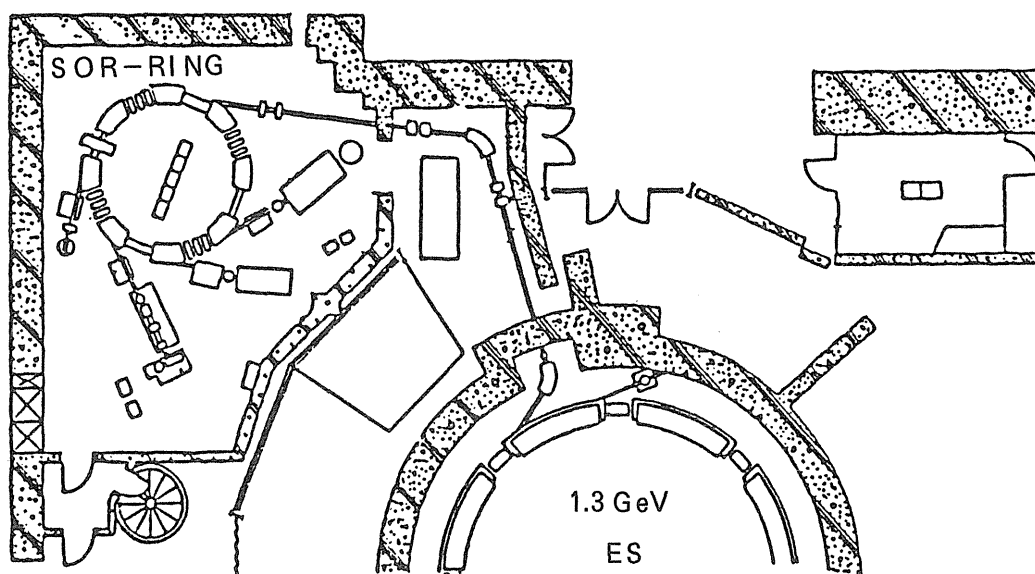


図1 1.3 GeV電子シンクロトロンとSOR-RINGの配置

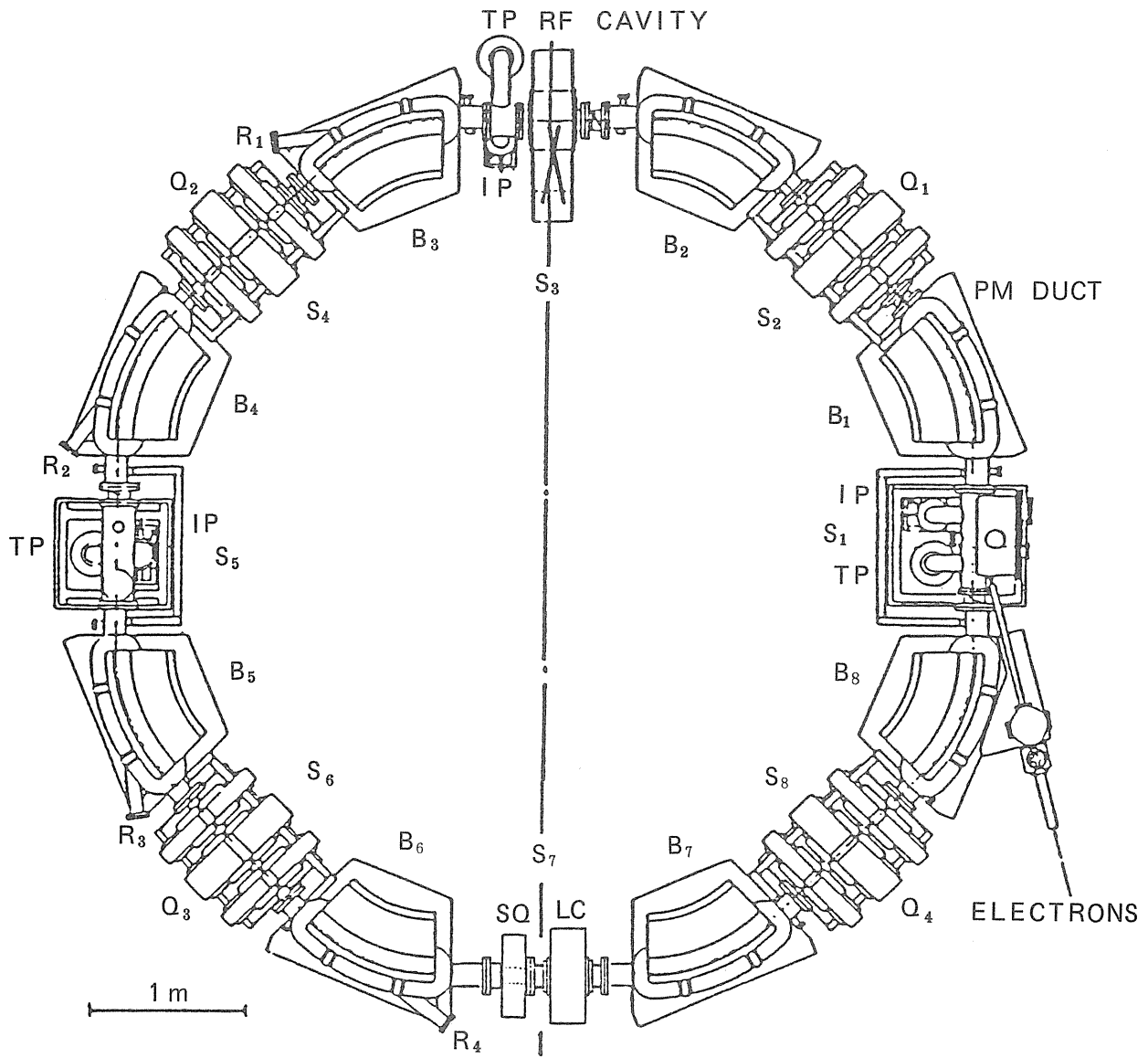


図2 SOR-RINGの主要部

図2はSOR-RINGの構造を示すものである。8個の偏向電磁石と4組の四極電磁石がある。四極電磁石の各組は2個の集束用電磁石（横収束）が1個の発散用電磁石（縦収束）をはさむ形に配置されている。直線部の長さは1.3 mである。直線部の一つに高周波加速空洞が置かれているが、他の部分には排気ポンプが置かれている。この排気ポンプの置かれている部分には、その他に入射部のパルス偏向電磁石、その対向部に速い蹴り出し電磁石、そして残りのもう一つの部分にスクエアー四極電磁石と高調波空洞が置かれている。直線部に置かれた排気ポンプの他に各偏向電磁石の部分にスパッタイオンポンプの排気素子を置き、偏

向電磁石の磁場を利用して排気するいわゆる分布排気の方法が採用されている。SOR-RINGの重要な諸元を表1にまとめた。図3にリングの単位格子当りの β 関数が与えてある。図中のB、 Q_F 、 Q_D はそれぞれ偏向電磁石、水平方向の集束電磁石、垂直方向の集束電磁石を表わす。

真空系の立上げに必要なドーナツの焼出しは、ドーナツに直接に電流を流して行われる。このためドーナツはカプトン膜で覆って絶縁してある。高周波加速空洞は、ステンレス製で内部に銅板が張りつけてあるほか、共鳴周波数の微調整のための可動フラッパーが取り付けられている。高周波が電源の方に反射してくるのを防ぐために、導波管の

表1 SOR-RINGの重要なパラメタ

蓄積電子エネルギー	380 MeV
蓄積最大電流	500 mA
電流寿命	120 min (200 mA)
偏向磁石曲率半径	1.10 m
偏向磁石磁場強度	111.5 KG
偏向磁石指数 (n)	0.45
全軌道長	17.4 m
直線部長	1.31 m
偏向部長	0.864 m
旋回振動数	17.26 MHz
高周波加速振動数	120.83 MHz
高周波電圧	15~20 KV
ベータトロン振動数	$\nu_x : 1.28$ $\nu_y : 1.22$
バンチ数	7
エミッタンス	$\epsilon_x : 3 \times 10^{-7} \pi \cdot \text{m} \cdot \text{rad}$ $\epsilon_y : 3 \times 10^{-8} \pi \cdot \text{m} \cdot \text{rad}$
排気速度	5600 l/s
平均圧力	$3 \times 10^{-10} \text{Torr}$
電子の全エネルギー損失	1.68 KeV / 回転
特性波長 (λ_c)	112 Å
特性放射エネルギー (ϵ_c)	111 eV

途中に反射波吸収回路が入れてある。電子は 308 MeV でリングに打ち込まれた後に 380 MeVまで加速して蓄積される。この加速は偏向電磁石の磁場強度を単に上昇させることによって行われる。磁場強度の上昇は3種の電磁石電源を同時に行うために計算機制御で行われる。加速中に電流が失われるのを少なくするためには、より高いエネルギーで入射する方がよい筈で、現在入射エネルギーを高くする努力がなされている。同時に蓄積電子のエネルギーを高くすることも検討されている。

時間に依存した物性計測を行うためには、単バンチモードでの運転が必要となる。SOR-RINGにおいては単バンチはRFノックアウト法によって作られている。通常の7バンチで入射してから、RFノックアウトによりビームを共鳴振動させ、バンチを1個ずつ消していくというやり方である。このための高周波電極と電源が常設されている。スクュー四極電磁石は水平方向と垂直方向の電子ビームの振動を結合させて、ビーム断面を横長から丸型に変え電子密度を下げるもので、これにより電子同志の衝突によるビームロスを少なくできる。これは特に単バンチ運転の場合に有効で、ビーム寿命が約4倍に伸びる。高調波空洞は電子ビーム

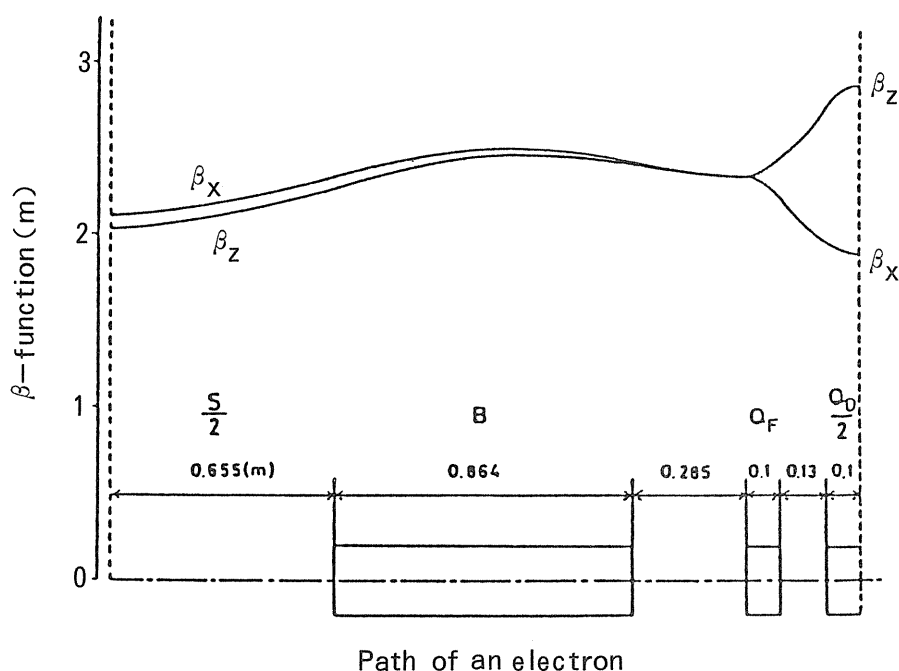


図3 SOR-RINGのβ関数

の縦方向不安定性を抑制するためのもので初期的な研究の段階ではある程度ビームの不安定性を抑えるのに成功した。電子ビームの断面は水平垂直両方向でビーム電流とともに増大し、ビーム中心の放射光の輝度は100 mA 以上で飽和し一定になる。水平方向の増大は主として上記の不安定性によるもので、垂直方向の増大は電子ビームに束縛されたイオンとの相互作用によるものである。ビーム断面の増大は好ましくないが、これをおさえるとビーム寿命が短くなる。

図4にSOR-RINGの放射スペクトルを示す。縦軸は輝度である。図中にはUV-SORとフォトンファクトリーのスペクトルも比較のため示した。

2. ビームライン

SOR-RINGには5本のビームラインがあり、それぞれBL 1, BL 2...と呼ばれている。SOR-RINGと分光器を含む実験計測系の間には、長さ約70cmの差圧排気系があって、SOR-RINGの低圧力(10^{-10} Torr)と分光器の高圧力(10^{-8} Torr)の間を隔壁なしで圧力差を維持できるよう

にしている。この差圧排気系と分光器の間には、ニューマチックバルブが置かれ、系の圧力がある一定値(5×10^{-9} Torr)を超えるとバルブが閉じてSOR-RINGの真空を保護している。

5つのビームラインのうち、BL 1は2つの分岐ラインを持ち、1つは紫外照射用のフリーポートとして用いられ、リソグラフィの実験等が行われている。他は、集光鏡1枚を介してリング室から2階実験室の瀬谷波岡型分光器にシンクロトン放射を導びき、4~30 eVの真空紫外光を使って、反射、吸収スペクトルの測定が行われている。BL 1にはこれらの実験のための専用計測システムが備えられており、液体窒素温度での測定も可能である。分光器の概略図は図5(a)に性能は表2に示されている通りである。(図5, 表2は共に東北大科研波岡先生の御厚意によるものに若干加筆したものである。)

BL 2は他のBL 3, 4, 5と共にSOR-RINGと同一フロアにあり、変形ローランド型斜入射分光器を備えた光電子分光実験専用ビームラインである。この分光器(図5(b))は一種の定偏角

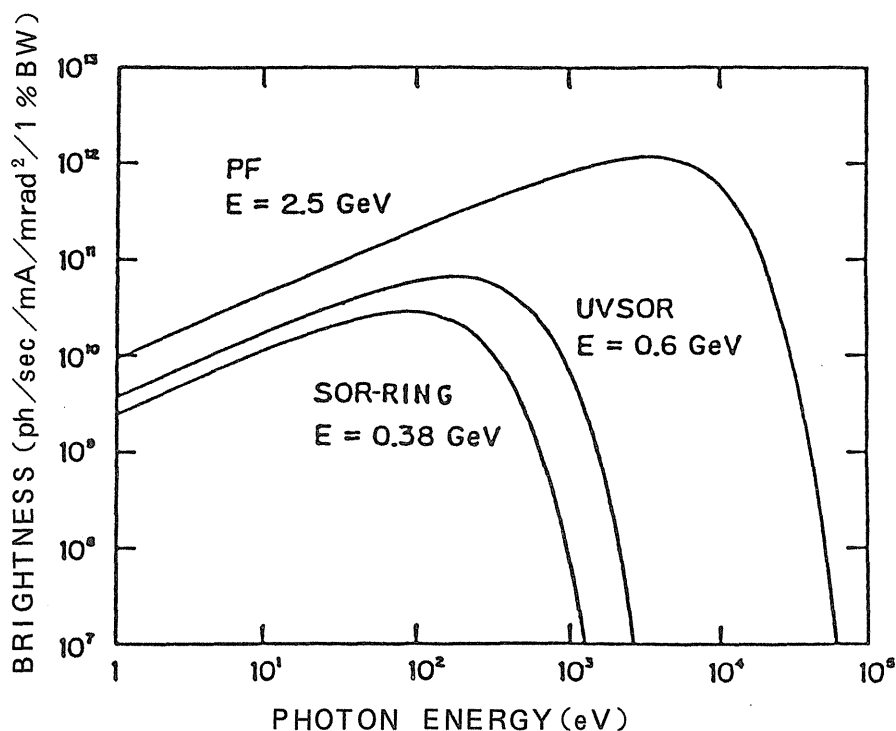


図4 SOR-RINGから放射されるシンクロトン放射のスペクトル。比較のために岡崎のUV-SORおよび筑波のPFリングからの放射スペクトルも示してある。

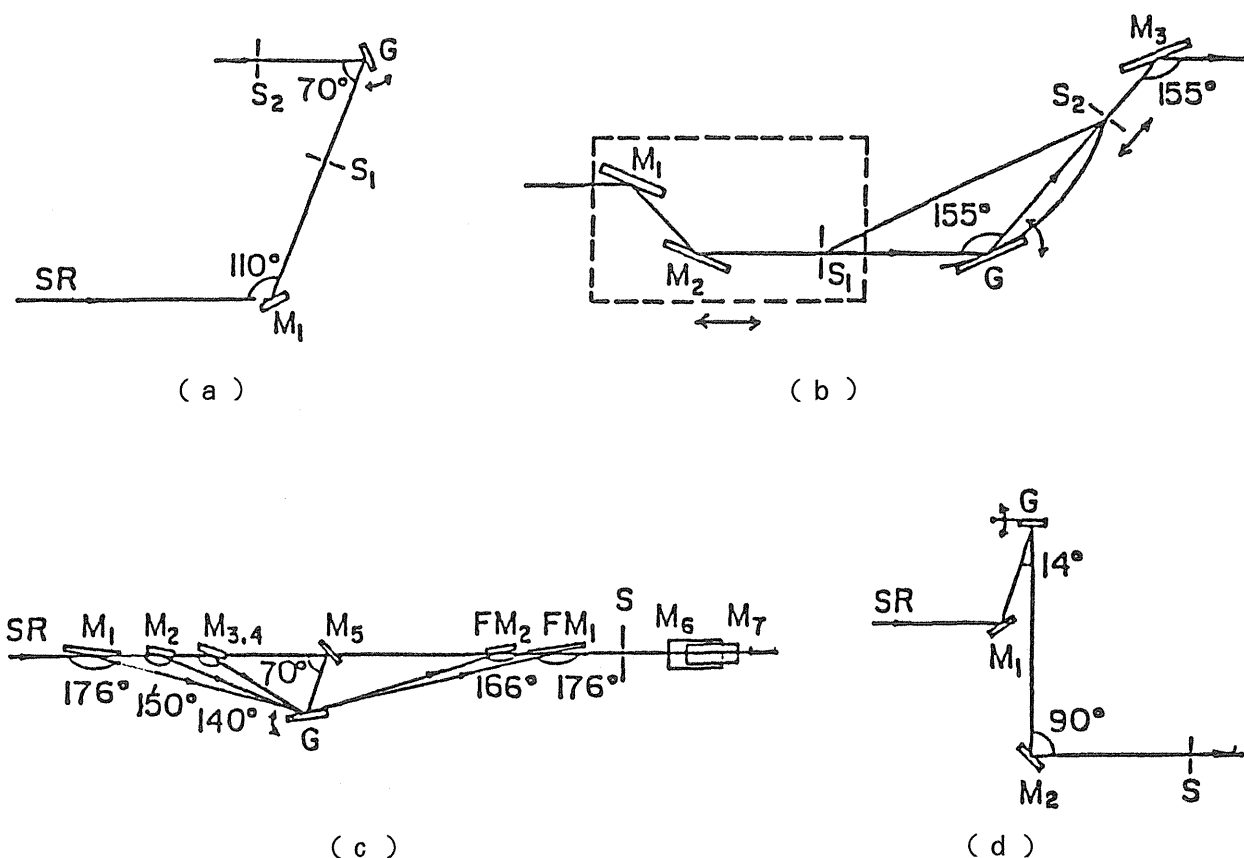


図 5

分光器で、入射スリット S_1 と出射スリット S_2 が等距離を保ち、回折格子の回転と同期してローランド円上を移動するように考案されたもので、2枚の前置鏡も入射スリットと同時に移動する。分光された光は集光用トロイダル鏡で分光器後方に点状に集光される。この分光器のエネルギー分解幅は 100eV で 30meV 程度である。BL 2 の分光器の後方には、分光器に接続して使用する光電子分光実験装置一式が付属している。光電子のエネルギー分析には市販の2段円筒鏡型の分析器が用いられ、部分的な角度分解型光電子分光マペクトルの測定も可能である。試料はマニピュレータによって回転と若干の平行移動ができ、さらに試料ホルダーごと試料準備室に移動できる。試料は、破断、やすりがけ、蒸着の3つの方法で準備することができる。また、単結晶表面を扱う際に必要な LEED 観察用の諸設備もこの装置には備えられており、オーグジュ電子分光実験も可能である。

測定中の圧力は分析室で $5 \times 10^{-11}\text{Torr}$ 、試料準備室で $1 \times 10^{-10}\text{Torr}$ 以下である。計測はコンピュータ制御によって行われ、分光器の透過特性、SOR-RING の蓄積電流値の変動などを考慮したデータ解析、CIS、CFS スペクトルの測定等のユーティリティプログラムも用意されている。

BL 3 は現在整備中で、変形ワーズワース型分光器 (図 5 (d)) を設置して $4 \sim 30\text{eV}$ 領域の真空紫外光を使った実験に供される予定である。

BL 4 には、BL 3 に設置されていた平面回折格子斜入射分光器 (図 5 (c)) とそれに付属している角度分解型光電子分光実験装置一式が移動中である。これに伴ない、分光器の分解能の向上と、実験装置の高性能化を目指した改良が行われている。

BL 5 は変形ワーズワース型分光器 (図 5 (d)) を備え、主に生物試料に対する照射実験が行われ

表 2

Beam line	Type of monochromator	Grating (coating)	Groove density (ℓ/mm)	Blaze	Fore-mirror/ focusing mirror/ deflector	Resolution (slit width)	Wavelength range (nm)	Acceptance angle (mrad) horiz. x vert.
BL-1	1m Seya-Namioka	B&L replica (Au)	1200	2°15'		$\lambda/\Delta\lambda = 2000$ (10 μm-10 μm)	30-300	3 x 1.1
			2400	4°16'		$\lambda/\Delta\lambda = 4000$ (10 μm-10 μm)	30-150	
BL-2	2m modified Rowland mounting 155° deviation angle	B&L replica (Au)	1200			$\lambda/\Delta\lambda \sim 850$ (50 μm-50 μm)	8-40	5.7 x 1.1
			2400			$\lambda/\Delta d \sim 1500$ (10 μm-10 μm)	8-20	
BL-3	2.2m modified Wadsworth	B&L replica (Al) (Au)	600 600	120 83.7	M ₂	$\Delta\lambda \sim 10.2$ nm (6 mm)	50-260	3 x 1.1
BL-4	Plane grating monochromator	Ion-etched holographic (original)	1200 2400		M ₁ ~ M ₅ / FM ₁ , FM ₂	(30 μm) $\Delta\lambda \sim 0.045$ nm (M ₁ /FM ₁) $\Delta\lambda \sim 0.08$ nm (M ₁ /FM ₂) $\Delta\lambda \sim 0.34$ nm (M ₂ /FM ₁) $\Delta\lambda \sim 0.3$ nm (M ₃ /FM ₂)	2.5-8 (M ₁ /FM ₁) 6-40 (M ₁ /FM ₂) 12-40 (M ₂ /FM ₁) 8-40 (M ₂ /FM ₂) 20-120 (M ₃ /FM ₁ , M ₃ /FM ₂)	2.5 x 1.1
BL-5	2.2m modified Wadsworth	B&L replica (Al) (Au)	600 600	120 83.7	M ₂	$\Delta\lambda \sim 10.2$ nm (6 mm)	50-260	3 x 1.1

ている。このビームラインは差圧排気系から分光器、実験計測システムに到るまで全てユーザーによって整備されたもので、数多くの生物関係の研究者に利用されている。

各ビームラインの分光器の性能等については表2にまとめた。ただし、BL3については予定値を、BL4については改良前の値を載せた。

3. 学術的成果

SOR-RINGを用いての研究は大まかに以下のカテゴリーに分類される。

- 1) 光電子分光法による固体の電子状態の研究
- 2) 光反応、吸収、発光による電子状態の研究
- 3) 生物への真空紫外光照射効果
- 4) リング中でのビームダイナミクスの研究

この他、高エネルギー放射光実験施設と協力してPFにビームラインと3基の実験ステーションを建設中である。またVUV逆光電子分光実験装置についても開発を進めている。

具体的に研究の概要を紹介したい。詳しくはISSP, Activity Report of Synchrotron Radiation Laboratory, 1987 (63年3月発行)を参照されたい。まず光電子分光法については次のような系について研究が進められた。CeCu₂Si₂, CeInCu₂, Ce₂Sb, Ce₂Zn₁₇, YbAl₃, Yb_xIn_{1-x}Cu₂, Ba₂YCu₃O_{7-δ}, K_{0.3}MoO₃, CdCr₂Se₄, CuInSe₂, CuInS₂, CuInTe₂, CuGaS₂, MgCl₂, MgBr₂, Cu-Si(111) 2×1 等々である。

これらに対して内殻励起共鳴光電子放出の手法により詳細な電子状態や終状態相互作用が議論された。Ceについては4d → 4f, Crについては3p → 3d, Mgでは2p内殻励起に伴う共鳴現象が観測された。Ce化合物についてはフェルミ面(E_F)近くで見られるCe 4f 光電子放出の二重構造を中心に研究が進められた。CeCu₂Si₂ではhν ~ 35 eVのスペクトルはE_F付近を除きバンド計算で得られるDOSで説明される。共鳴極大のhνと極小のhνの二つのスペクトルの差

分より得られるCe 4fの二重構造はGunnarsson, Schönhammerの用いたアンダーソンモデルで説明される。

Yb化合物ではCeの4f電子とYb 4f正孔の役割りが入れ替っている。典型的な価数揺動物質としてYbAl₃とYb_xIn_{1-x}Cu₂が取り上げられた。両者とも清浄表面第一層においてはYbは二価となっており、バルクのYb²⁺4fからの光電子放出より少し深い(束縛エネルギーE_Bの大きい)所に表面のYb²⁺4fからの光電子放出構造が観測される。従ってこの表面効果を差引いた解析が必要となる。YbAl₃ではE_F直下に鋭いバルクのYb²⁺4f構造が観測され、平均価数はYb^{2.78+}である。X線BISスペクトルではE_F直上とE_Fより上1~2 eVに二重構造が見られた。先のG-Sモデルによる解析が出来、E_F近くの構造はいわゆる近藤ピークと解釈できた。

室温以下10°Kまでの測定が出来る光電子分光用クライオスタットを作製した。アナライザ室のクライオスタット先端への試料室からのサンプル装填とアナライザ室でin situのfilingも可能である。Yb_{0.35}In_{0.65}Cu₂ではUPSとXPSの結果より室温より80°K迄の間に価数がYb^{2.63+}からYb^{2.38+}に転移している。これらの価数は真のバルク値より小さいだけでなく、バルクでの転移温度(~40°K)より遥かに高く、表面近くでは第一層の影響を差引いた後でもなおバルクとは電子状態が異なっている。このほか一次元物質としてK_{0.3}MoO₃のパイエルス転移も観測された。

高温超伝導体として注目されているBa₂YCu₃O_{7-δ}についてδ < 1.0の種々の試料について液体窒素クライオスタットを用いて測定を行なった。価電子帯スペクトルはδと共にかなり変化する。E_Fでの光電子放出強度は非常に弱く電子相関が大きいモット・ハバードモデルで考える必要がある。

半導体としてはカルコパイライトについて電子帯DOSについて研究されたほかCdCr₂Se₄スピネルについてはその強磁性と関連して共鳴光電子

放出の手法により Cr 3d の部分状態密度についてスピン状態も含めて詳しい研究が行なわれた。また絶縁体としては Mg ハライド蒸着薄膜について Mg 2p 内殻励起子の緩和に伴う共鳴過程が調べられた。

半導体-金属界面については Cu/Si (111) 2 × 1 について測定された。1 ML 程度で Cu-Si の化学結合に伴う準位がはっきりと観測され低温 (室温) 合金化反応については Au-Si の場合と同じモデルで取扱える事が分った。

次に光反射, 吸収, 発光については高温超伝導体 ($\text{La}_{1-x}\text{M}_x$)₂ CuO₄, YBa₂Cu₃O_{7-δ}, etc., 低次元物質として K モリブデンブロンズや層状有機結晶 ($\text{C}_n\text{H}_{2n+1}\text{NH}_3$)₂ MCl₄ 但し M : Cd, Mn etc. の反射スペクトルが 30 eV まで測定された。そのほか BN 単結晶, LPCVD で作った NiN 膜, ハイブリッドプラズマ CVD 法で作った SiC 膜の反射測定が行なわれた。変調分光法の例としては Gd_{3-x}Bi_xFe₅O₁₂ について低い飽和磁場を持つフェリ磁性体としての特徴を利用して 250 Oe の回転磁場により磁気変調分光測定が行なわれ²⁷, 29 eV 領域に Bi 5d → 6p に対応する顕著な構造が見出された。また低エネルギー域に Fe の 3d → 4p 構造も見られる。

磁気変調分光法は分子性結晶アントラセンや p-terphenyl 結晶の発光についても別の手法で行なわれた。特に励起子の fission (分裂) 過程 (一つの singlet 励起子が二つの triplet 励起子に) について詳しく調べられた。

真空紫外光照射効果についてはリソグラフィの研究も行なわれてはいるが, 生物への照射効果が当施設では主である。具体例を列举すると dry bacteriophage T1 の killing 効果, Oligonucleotides の degradation, ρBR 322 DNA の base release, DNA における thymine dimer formation などが研究された。また lipid bilayers of Sendai Virus の吸収など測定された。これと平行して測定手法の開発も行なわれており Photoacoustic Spectroscopy が有機固体

の吸収測定に利用できるようになった。他にも ESR 法によるスピントラップの研究, HPLC (high performance liquid chromatography) 法による dinucleoside - monophosphate の光生成物の研究, algal phototaxis の videomicroscopy 等々が挙げられる。

最後に電子ストーリーリングのビームダイナミクスについては in house staff による研究が行なわれている。クリアリング電極にパルス電圧をかけイオンをトラップし, 周回電子による γ 線強度とその decay time を電極からの軌道距離の関数として測定した。また電子ビームにトラップされたイオンの longitudinal motion についても解析的研究が進んでいる。

4. 運転形態

SOR-RING は入射電子源として東大原子核研究所の 1.3 GeV 電子シンクロトロンを使用している。電子シンクロトロンで 308 MeV まで加速された電子は, キッカー電磁石とパルス偏向電磁石を使って毎秒 1 回電子ビーム輸送系に取り出される。ビーム輸送系を通った電子は取り出し用電磁石と同期した入射用キッカー電磁石とパルス偏向電磁石によって SOR-RING に入射される。入射した電子がある蓄積電流値 (通常 200~300 mA) に達したら, 入射を中止し, SOR-RING のエネルギーを通常運転モードである 380 MeV まで上げてシンクロトロン放射をユーザーに提供している。入射に要する時間は 15~30 分で, これまでに達成した最大蓄積電流値は 504 mA である。しかし蓄積電流値が大きくなると共に, ビームサイズが大きくなり, ライフタイムも短くなるため, 通常は 200~300 mA の入射蓄積電流で運転している。ライフタイムは 200 mA 蓄積時で約 4 時間である。入射は電流値が約 100 mA にまで減少した後, 繰り返され, 1 日約 3 回の入射が行われている。

SOR-RING の運転は入射器の電子シンクロトロンの運転に大きく依存しており, 電子シンク

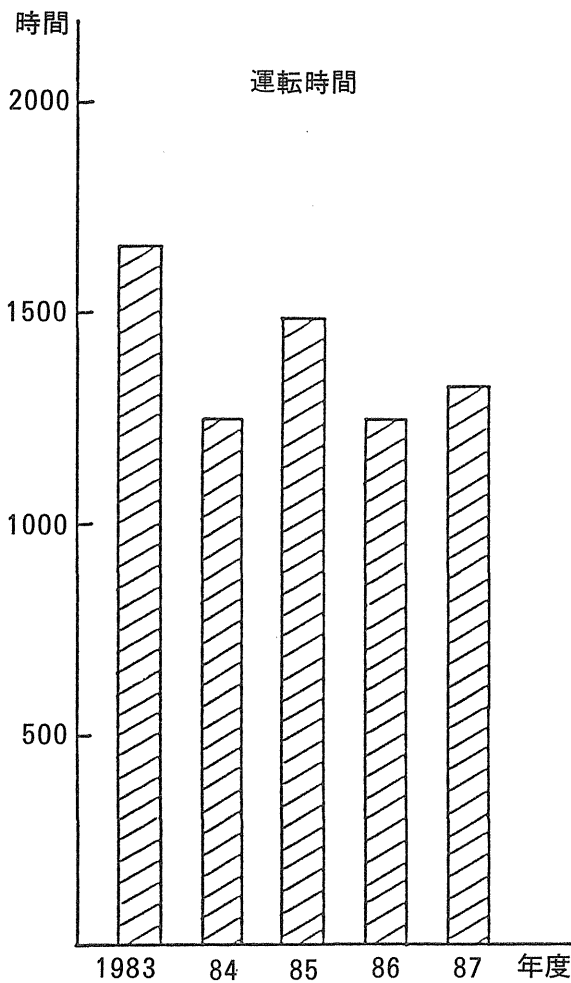


図6

ロトロンの運転時（火曜日午後から月曜日朝9時まで）のみ入射可能である。このためSOR-RINGのメンテナンスの時間等もあるため、ユーザーがシンクロトロン放射を利用できるのは、通常水曜日から土曜日までで、1日約8時間である。電子シンクロトロンが通常の運転モードでない場合でも、SOR-RINGへの入射は1日3回、1週4日可能で、ユーザーへのシンクロトロン放射の提供が確保されている。たとえばSOR-RING専用モードの場合には火曜日昼から金曜日夜までとなる。図6は、SOR-RINGの最近の年間運転時間を示したもので、年間約1300時間である。

