

解説

SPring-8 赤外物性ビームライン—BL43IR—の建設

木村 洋昭¹, 木村 真一^{2,3}, 岡村 英一⁴, 篠田 圭司⁵
森脇 太郎¹, 福井 一俊⁶, 桜井 誠⁴, 難波 孝夫²

¹高輝度光科学研究センター放射光研究所利用促進部門 I *, ²神戸大学大学院自然科学研究科,

³科学技術振興事業団さきがけ研究21, ⁴神戸大学理学部物理学科,

⁵大阪市立大学大学院理学研究科生物地球系, ⁶福井大学遠赤外領域開発センター

Infrared Materials Science Beamline BL43IR at SPring-8: Construction and Commissioning

Hiroaki KIMURA¹, Shin-ichi KIMURA^{2,3}, Hidekazu OKAMURA⁴, Keiji SHINODA⁵,
Taro MORIWAKI¹, Kazutoshi FUKUI⁶, Makoto SAKURAI⁵ and Takao NANBA²

¹SPring-8/JASRI, ²Graduate School of Science and Technology, Kobe University,

³PRESTO, Japan Science and Technology Corporation, ⁴Department of Physics, Kobe University,

⁵Department of Geosciences, Osaka City University,

⁶Research Center for Development of Far-Infrared Region, Fukui University

The infrared beamline, BL43IR, at SPring-8 has been constructed for advanced scientific research in the infrared region. The beamline contains a special optical system at the front end for a huge storage ring, a high resolution Fourier transform interferometer and four experimental stations. The outlines are reported.

1. はじめに

“放射光とは何か?”という説明書きにはたいてい“可視から X 線までの広い波長範囲にわたって連続的に…”と書いてあり、一般の方々には X 線実験の牙城のような SPring-8 にも赤外線利用の為のビームラインがある事は少し奇異な感じを受けられるようである。

放射光の非常に広大な波長範囲の中で、それぞれの波長領域の研究がどれくらい盛んに行われているかは、他の既存の光源と比較した時に、放射光がどのくらい優れた光源であるかを示しているとも言うことができる。そのような中で、そんなに暗くはない“ランプ”や波長可変のレーザーがある赤外線領域において、放射光が持つ優れた特質を列挙すると、

- (1) 広い波長にわたり連続スペクトルが得られる。
- (2) 光源が小さいので、微小領域に集光することができる。
- (3) 軸外し光を使うことで広い波長にわたり楕円偏光を得ることができる。
- (4) 遠赤外領域の強度が強い。
- (5) 放射光のパルス性を用いた時分割測定が可能。

があげられる。

これらの優位性を生かした実験というと、顕微分光測定、円二色性実験、遠赤外領域での分光測定、時分割分光実験等が考えられるが、世界的には顕微分光が主流である。

海外において、現在赤外用ビームラインが稼働している施設は 7 施設 (NSLS, ALS, SRC, super-ACO, LURE, SRS, MAX I) 程である。その中でも特に NSLS には 6 本もビームラインがあり、近年 NSLS のロゴマークに IR の文字が入った事に気づかれておられる読者も多いと思われる。又、建設中又は計画を持つ放射光施設は目白押しであり (CAMD, CLS, SLS, ANKA, BESSY II, DELTA, MAX III, DAFNE, SESAME, NSRC, PLS, SRRC…), 近いうちに放射光業界の中でもその一翼を担う大きな分野に発展すると期待される。

一方日本の放射光施設の中で赤外線利用の為のビームラインは UVSOR の BL6A1 (かつては BL6B も) で 1985 年から稼働している。(世界で始めて共同利用を始めた赤外ビームラインがこの BL6A1 である事はあまり知られていない。)

SPring-8 の赤外物性ビームライン BL43IR¹⁾は 98 年の 11

* 高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡三日月町光都 1-1-1
TEL: 0791-58-0832 FAX: 0791-58-0830 E-mail: kimura@spring8.or.jp

月に建設が決まり、99年夏から建設開始、2000年5月から共同利用実験を開始している。

2. 赤外線用光源としての SPring-8

SPring-8に、赤外線用のビームラインができると聞いた時に漠然としたイメージとして、“8 GeVの高エネルギーリングから出てくる放射光は角度発散が小さいから赤外領域でもやっぱりそれは有利であろう”というような印象を持たれた方も多いと思う。ここでSPring-8 BL43IRの赤外放射光光源としてのパラメータをTable 1に列挙し、得られるビームの特性について述べる。

2.1 角度発散

赤外放射光を考える場合、注意しなければならない事は、蓄積リングの臨界波長よりはるかに長い波長の領域を取り扱っているという事である。この様な領域では強度や角度発散は蓄積リングのエネルギーには依存せず、専ら偏光電磁石の曲率半径による事になる²⁾。つまり、仮にSPring-8で1 GeV運転を行ってもメリット・デメリットはない。しかし、SPring-8の“39.3 m”という世界最大の曲率半径は有効である。その結果、現在のところSPring-8から出てくる赤外線放射光は、放射光施設の中では世界で1番角度発散が小さな赤外線放射光となっている。これを有効に利用すると、世界で最も高い光子密度を使った分光実験をする事ができる。

2.2 強度

強度について考えてみると、“蓄積電流値”と“取り出しポートの大きさ”が重要なパラメータになる。入射時に通常100 mAであるSPring-8はどちらかというと“蓄積電流値”が少ない方である。取り出しポートの大きさは、ベンディングチェンバー部の構造に依存し、この点では大きなベンディングの曲率半径は不利となる。ちなみに、水平取込角36.5 mrad、蓄積電流100 mAのSPring-8のBL43IRは、水平取込角90 mrad、蓄積電流1 AのNSLSのU4-IRと比べると、光源の強度では約25分の1という事になる。

2.3 熱負荷

第1光学素子が受ける熱負荷の観点からすると、蓄積リングのエネルギーは低い方がもちろん有利である。SPring-8で水平取込角36.5 mradを考えると、その全パワーは5.7 kWにもなり、それをそのまま直入射ミラーで取り出す事はほとんど不可能である。熱成分が集中する軌道平面内成分をカットし、その熱を処理するアブソーバーが必要になる。又、この放射光取り出し部での放射線遮蔽の上でも同様の事が言える。

結局、発光点（電子ビームサイズ）が非常に小さく、かつ小さな角度発散の赤外放射光が得られるという事が

Table 1. Parameters of SPring-8 BL43IR as an infrared light source

| | |
|-----------------------------|-----------|
| Storage ring energy | 8 GeV |
| Stored current | 100 mA |
| Bending radius | 39.3 m |
| Horizontal acceptance angle | 36.5 mrad |
| Vertical acceptance angle | 12.6 mrad |

SPring-8での赤外放射光の特徴である事がわかる。つまり、赤外放射光を上手に集めて、単位面積当たりの強度を稼ぎ、微少領域での分光実験を行う事が、最もSPring-8の性能を生かした利用実験であると言える。

一方でEdge Radiation³⁾の利用も考えられるが、その角度広がり γ^{-1} になる事から、SPring-8のような高エネルギーリングでは熱負荷の観点でハンドリングが困難であると考え採用しなかった。

3. フロントエンド

3.1 ビームの取り出し

垂直方向に広い角度で放射される赤外放射光を、広い水平角度で取り出すために、ベンディングマグネット部のチェンバーは、ビームダクトの狭いチャンネル部を放射状に広げたものに交換された。これにより、水平取込角36.5 mrad、垂直取込角12.6 mradを実現している。この時に得られるPhoton FluxをFig. 1に太線で示す。高エネルギーから低エネルギーに向かって、単調減少していく直線が、50 meV (400 cm⁻¹)付近で折れ曲がって減少勾配が大きくなるのは、このエネルギー付近で垂直方向の取込角と赤外放射光の発散角が等しくなり、これより低エネルギーになると取りこぼしが出るからである。

前述の垂直・水平取込角を通常の光学素子で受けてしまうと、その全パワーは実に5.7 kWにもなる。このヒートロードを低減するために、第1光学素子であるM0ミラーの軌道平面に当たる部分を±1 mmスリット状に切り欠いた。ここでの±1 mmは垂直取込角に換算すると0.8 mradに相当する。このスリット部の影響を考慮したPhoton FluxをFig. 1に細線で示す。この図からわかるように、赤外領域での強度の減少は立体角の減少分程度で済んでいる。

一方、このスリットによりM0ミラー（無酸素銅製、金コーティング）が直接放射光から受けるパワーはわずか3 Wに減らすことができる。このM0ミラー部の平面概略図をFig. 2に示す。赤外放射光は菱形の筒のような格好をしたM0ミラーの表面で約90度方向に反射して取り出される。熱成分である軌道平面部の放射光はM0ミラーのスリット部をすりぬけて、M0ミラー内側のミラーアブソーバーと、下流のアブソーバーで処理される。

しかし、実際にはこれらアブソーバーからのコンプトンヒーティングにより、上流アブソーバーを開けた直後から

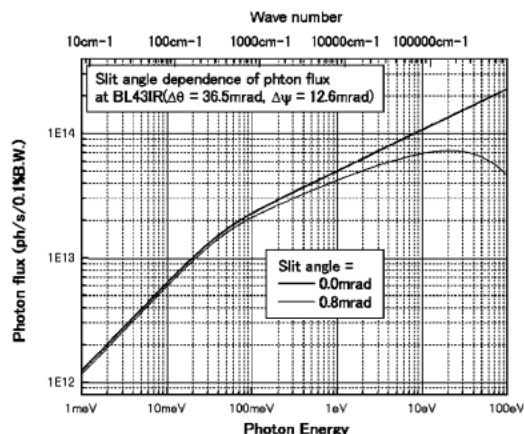


Figure 1. Photon flux of BL431R.

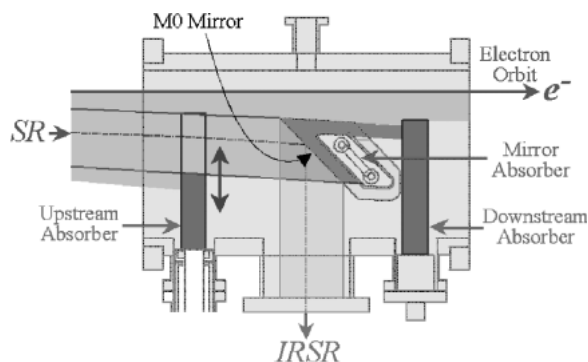


Figure 2. Schematic top view of M0 mirror.

ミラー温度は徐々に上昇していく。その除熱を行うために、M0ミラーの台座となっているフランジ表面を水冷し間接冷却を行っているが、100 mA 運転時のミラー部での温度は130°C程度になっている。

3.2 ビームの集光

水平取込角36.5 mrad は、ベンディングマグネット部の曲率が39.3 m の場合、実に長さ1.44 m の円弧になることを意味する。この長い円弧の光源から出てくる光を1点に集めることは、通常の球面や楕円、トロイダル形状では不可能である。ここで我々は Lopez-Delgado らが1976年に発表した論文⁴⁾に注目した。この論文は、蓄積リングの全ベンディング部から出てくる一周分の放射光を1点に集めるミラーの形状について述べており、これを“マジックミラー”と名付けている。このミラーの設計の指針は、蓄積リング上の1点を考え、そこから接線方向に出てくる光が、ミラーに反射して集光点にたどり着くまでの時間と、その1点から電子のままで軌道にある程度進んだ後に放射光となりミラーで反射して集光点にたどり着く時間を同じにするようなミラー形状にするというものである。この設計指針からわかるように、広い水平取込角で光をこ

のミラーで集めても集光点での光の時間構造は原理的には変わらない。

論文では、軌道平面内のミラー形状だけを議論しているが、我々は垂直方向の形状を円弧にすることで3次元に拡張した⁵⁾。これにより、このミラーは軌道上の各点から垂直方向の扇状に広がる放射光を集光することができる。

ところで軌道上の一点から出てくる放射光は、実際にはコーン状に放射され、垂直方向と同じ発散角で水平方向にも広がっている。これは、ミラー上のある1点に入射する光の水平方向の角度広がりも放射時の発散角と同様の広がりを持ってしまおうように一見思えてしまう。しかし実際は、円弧状の光源の持つ性質により、そのようにはならない。今、水平発散角が20 mrad (± 10 mrad) の放射光を考えてみると、ミラー上の一点からは円周角が20 mrad に相当する長さの円弧の光源が見える。この時ミラー上の一点に入射する光の角度広がり、ほぼミラーから見て接線(光源中心, 0 mrad)と弦(光源の上下流端, +10 mrad と -10 mrad を結ぶ弦)との角度の違いになる。曲率39.3 m 円弧の光源(SPring-8)で、光源中心から距離4.4 m の位置にあるミラー上の一点での水平角度広がり、わずか0.5 mrad 程度であり、それほど像の悪化をまねかない。

このマジックミラーの表面形状を表す解析的な式は大変複雑(式だけで半ページ程になるのでここでは割愛する)であるため、実際に使われた例はこれまでなかった。しかし、現在の発達したミラー製作技術により、この式を近似した多項式を元に、数値制御による切削・研磨する事で、十分な形状精度のミラーを製作する事が可能となった。

最適化して得られたパラメータによる、第1焦点でのレイトレースの結果と、10 μ m ピンホールとMCT 赤外検出器を焦点位置で2次元スキャンをして測定した実際のビームプロファイルの結果を Fig. 3 に示す。ほぼ設計通りのビームサイズが得られていることがわかる。

3.3 ビームの輸送

BL431R の干渉分光計より上流の光学系の立体配置概略図を Fig. 4 に示す。蓄積リング収納部天井側よりビームを取り出すことにより、漏洩放射線の問題がなくなり、人的安全上のインターロックや光学ハッチが必要なくなった。蓄積リングと真空を共有する超高真空部と下流の低圧部とを仕切る光学窓は収納部上部に配置してある。光学窓として遠赤外領域用ダイヤモンドと中・近赤外領域用BaF₂の2種類の窓が用意されており、これらを真空を破ることなしに交換できる機構を有している。

図中M0からM8の9枚の鏡の内、M1がマジックミラー、M4とM8が軸はずし放物面鏡で、残りは全て平面鏡である。マジックミラーにより第1集光点に集められた光は、軸はずし放物面鏡で平行化されて光源から約20 m 下流のFT-IRまで輸送される。

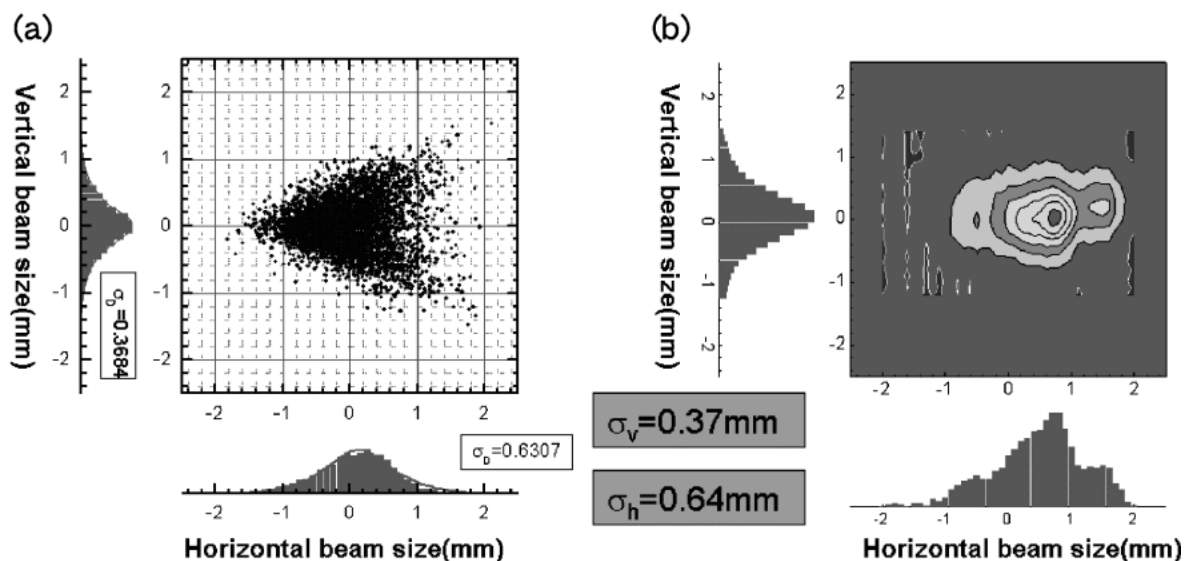


Figure 3. Beam size at 1st focal point. (a): Result of ray-trace ($h\nu \sim 0.5$ eV, $\sigma'_x = 2.5$ mrad) (b): Obtained beam size.

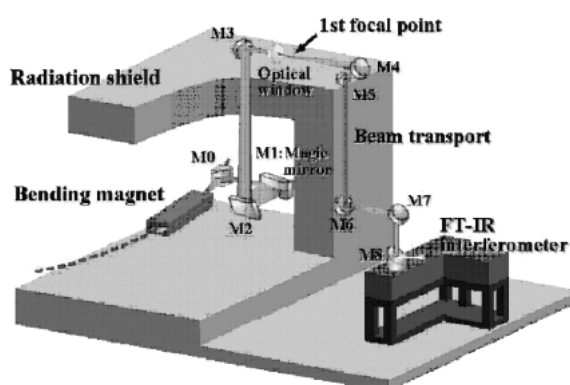


Figure 4. Schematic view of optics of BL43IR.

4. 分光装置

ビームラインのフーリエ変換赤外干渉分光計 (FT-IR) として、ブルッカー社の IFS120HR/X を採用した。この FT-IR の最高分解能は 0.0063 cm^{-1} で、 $100 \text{ cm}^{-1} \sim 20000 \text{ cm}^{-1}$ 以上の波数領域にわたって測定が可能のように複数のビームスプリッター・内部検出器を持っている。又、複数の内部光源も有しており、予備実験として放射光を使わずに測定を行うことも可能である。

この FT-IR は測定用試料室を有しており、ここで放射光と内部光源の強度比較を行った。中近赤外領域において、放射光は内部試料位置で $\phi 0.5 \text{ mm}$ 程度に絞られており、この強度はサイズ $\phi 0.8 \text{ mm}$ 程度の内部光源の強度に等しい。遠赤外領域では、放射光は $\phi 1.7 \text{ mm}$ 程度、これは $\phi 2.3 \text{ mm}$ 程度の内部光源の強度に等しい。もちろん、内部光源の強度はビームサイズを更に大きくすれば更に強くなる。つまり、強度の点から言うと、大きなビームでよい実験や大きなサンプルでの実験に関して、このビームラ

インで赤外放射光を使うメリットはないという事である。但し、赤外放射光の持つ他の特性、パルス性や円偏光性を使うメリットはある。

尚、ここで得られたビームサイズは、測定波長の数100倍以下であり、このような領域では、測定の仕方によって、結果がかなり違ってくる。この放射光ビームのサイズ測定は F ナンバーマッチングのとれた系を使い、測定位置においたピンホールの開口サイズを小さくしながら強度測定を行い、強度が減少しはじめるサイズで求めた。この測定では、回折による効果が出始めるサイズを測っており、これは小さいピンホールでスキャンしてプロファイルからサイズを測る方法とは結果がかなり異なる。後述の実験ステーション (顕微分光・吸収反射) でのビームサイズ測定は小さなピンホールのスキャンによって行ったが、その測定されたビームサイズのピンホールを実際に測定位置にセットすると、回折効果による像のボケのために強度は5分の1程度に減少してしまう。これは、サンプルサイズやサンプルホルダーの形状を考える上で考慮すべき点である。

フーリエ分光を行うという事は、原理的にビーム強度の周波数解析をしているようなものなので、その振動成分と、検出器の応答特性が同じ領域にあると、測定が困難になる。現在、M0 ミラーの冷却水に起因すると思われる 400 Hz 以下の振動成分が、ちょうどポロメータの 200 cm^{-1} 以下の領域と重なっている。現在、抜本的な対策を検討中である。

5. 実験ステーション

このビームラインには、赤外線放射光の特質を生かした微少領域での分光測定、偏光利用実験、遠赤外領域での分光測定、時分割分光実験に対応した4つの実験ステーシ

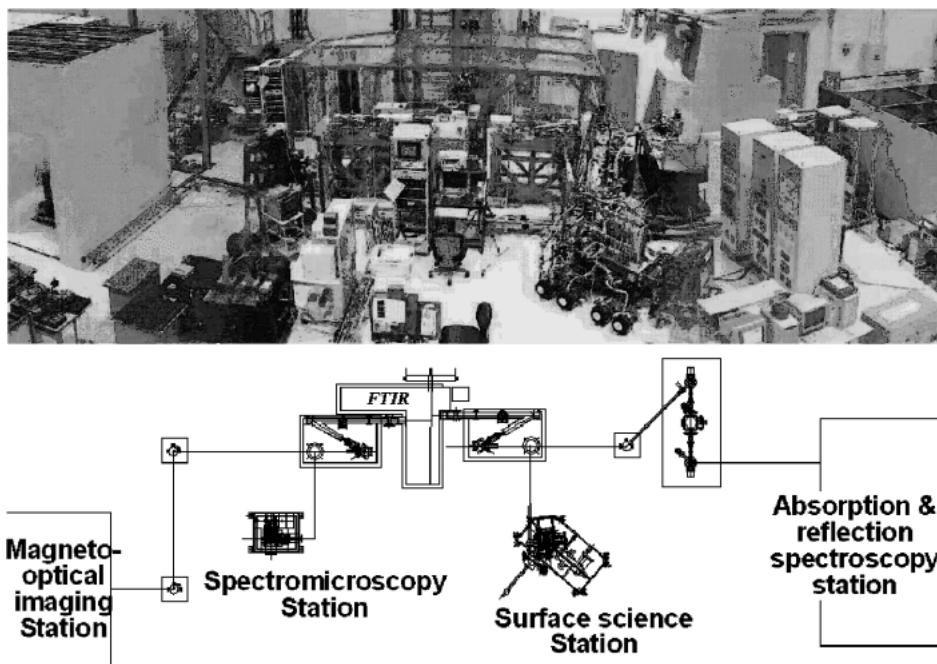


Figure 5. Panorama photograph and schematic view of the experimental stations of BL43IR.

ョン (Fig. 5) が建設されている。これらのステーションでは、同時に放射光実験をする事はできないが、数分で切り替えて使用することが可能である。

5.1 顕微分光ステーション

赤外放射光の特長を生かして、 200 cm^{-1} から 20000 cm^{-1} の広い波長範囲で、 $10\text{ }\mu\text{m}$ 程度の空間分解能の顕微分光を目的としている⁶⁾。利用分野は固体物理に留まらず、広い分野でニーズのある赤外分光分析や地球科学、医学生命科学への利用も視野に入れている。設置された分光計器製の赤外顕微鏡 (Fig. 6) は以下のような特長をもつ。

- (1) 広い波長範囲での反射・透過測定に対応している。
- (2) シュバルツシルド鏡 (倍率8倍, 開口数0.5) 間の作業空間が100 mm ある。
- (3) ダイヤモンドアンビルセル (DAC) を用いた高圧実験のために、その場でのルビー蛍光を使った測圧が可能である。

Fig. 7 は、顕微鏡ステージ位置に $2\text{ }\mu\text{m}\phi$ のピンホールを置き、 $2\text{ }\mu\text{m}$ ステップ幅で測定した、放射光の中赤外域の強度分布である。尚、この測定時にはスキャンするピンホールを除くと光源から検出器の間に、視野を制限する絞り・ピンホールは入っていない。半値全幅約 $10\text{ }\mu\text{m}$ に集光した赤外放射光の分布が得られている。同様の測定を内部光源で行ったときに比べると、約100倍のピーク強度が得られている。

集光部のビームの3次元的な形状を説明すると、天頂角が60度の2つの対向した円錐 (古楽器の鼓) のような形状をしており、その一番くびれた部分のサイズが $10\text{ }\mu\text{m}$

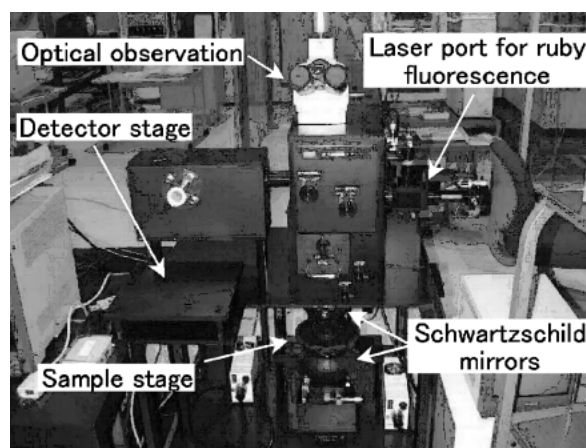


Figure 6. Photograph of the spectromicroscopy station.

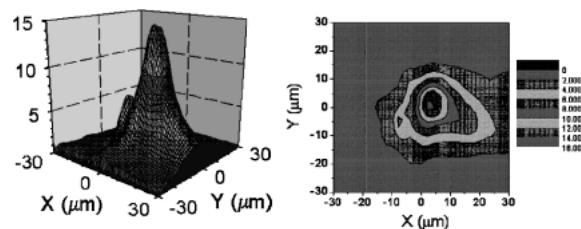


Figure 7. 3D and 2D intensity distribution of mid-IRSR at the sample stage of the IR microscope of BL43IR. The maps were measured by scanning $2\text{ }\mu\text{m}$ pinhole by $2\text{ }\mu\text{m}$ steps.

程度あるという事である。その為、厚みのある試料を測定する場合は注意を要する。

シュバルツシルド鏡間の広い作業空間を利用して、以下の装置を取り付けて測定できる。

- (1) 顕微分光用 X-Y マッピングステージ (各軸可動長 100 mm, 駆動最小ステップ幅 1 μm)
- (2) フロー式クライオスタット(オックスフォード社製, Microstat-He, 試料温度範囲 4.2–400 K)
- (3) 高温用 DAC (レバー式, $\sim 700^\circ\text{C}$, ~ 30 GPa)
- (4) 低温用 DAC (ガス圧式, 10–400 K, ~ 20 GPa)

スペクトル測定時には、顕微鏡内光路全体を液体窒素から直接気化した窒素ガスにより、長時間安定して窒素バージできる。簡易の偏光顕微鏡としても使用でき、結晶質の物質の確認に利用できる。クライオスタット、高温 DAC、低温 DAC は、PC で制御される駆動最小ステップ幅 1 μm のステージに固定され、マッピングが可能である。

Fig. 8 は、高温 DAC を用いた、含水鉱物のブルーサイト ($\text{Mg}(\text{OH})_2$) の OH 伸縮振動域での高温高圧赤外吸収スペクトルの測定例である。ブルーサイトは、含水マグネシウム珪酸塩の原型として、高圧下での挙動が、X 線中性子線を用いた回折実験、赤外・ラマンの振動分光学的実験で広く研究されている。3700 cm^{-1} に、常温常圧下の OH 伸縮振動による吸収ピークが観察される。圧力が 3 GPa を越える範囲で圧力誘起による吸収ピークが 3650 cm^{-1} に現れ、温度圧力条件により吸光度と波数位置を変化させる。この振る舞いから、圧力誘起により結晶中に新しく形成された OH 基の双極子による吸収ピークと考えられる。従って、ブルーサイトは高圧領域でプロトンが 2 つの位置を占める高圧相をもつと考えられる。この圧力誘起のピーク消長と吸収ピークの形状変化から、高圧相の安定領域の検討や、高温高圧下でのブルーサイト中のプロトンの挙動についての検討を行っている。

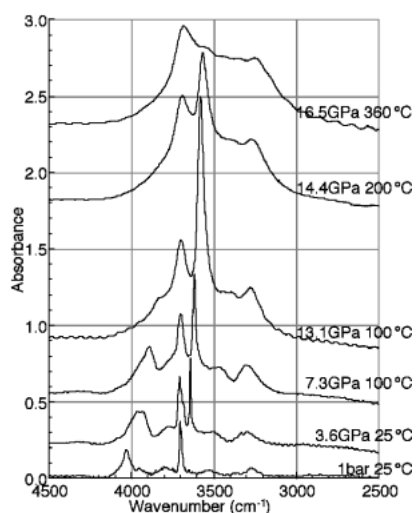


Figure 8. IR absorption spectra of brucite ($\text{Mg}(\text{OH})_2$) under high temperature and high pressure with IRSR and HTDAC.

5.2 磁気光学ステーション

高輝度性ばかりでなく偏光性も優れている赤外放射光は、分子研 UVSOR での赤外磁気円偏光二色性を使った研究⁷⁾など、有益な情報を提供している。この実験ステーションは、微小な固体試料や、不均一試料の微小な領域の電子状態を調べるために、顕微赤外磁気光学分光やイメージングを行う目的で建設された。

磁気光学を含む通常の分光は、試料位置での光の大きさが 1 mm かそれ以上であるため、その領域を平均した情報が得られる。しかしながら、特徴的な物性を示す新しく作り出された物質が、1 mm 以上の均一な試料であることは少ない。そのような微小な物質の電子状態を調べることは、新物質を開発する上でも重要である。また、磁気相転移に伴う電子状態の微妙な変化を観測できることが期待される。例えば、強磁性・反強磁性ドメイン中の電子状態の空間的な広がりや調べることは、波動関数や相互作用の空間的な大きさの情報が得られる。

以上のような考えから、(1)10 μm 程度の試料で現在の磁気光学と同じレベルの実験や、(2)10 μm 程度の空間分解能で電子状態のマッピングができる、ことを目標にこの磁気光学ステーションを建設した⁶⁾。世界的には、赤外放射光は顕微分光を行うためのものであるが、このステーションのように、高輝度性と円偏光性の放射光の持つ 2 つの特徴を使って、磁気光学と顕微分光を組み合わせたものは全くなく、SPring-8 独自のものであるといえる。

装置の概略を **Fig. 9** に、実際に完成した装置の写真を **Fig. 10** に示す。この装置は、最大磁場 14 T を発生できる超伝導マグネット、赤外顕微鏡、試料冷却用液体ヘリウムフロー型クライオスタットが組み合わされている。超伝導マグネットは、運用の軽減のために、液体ヘリウムフリーを採用している。赤外顕微鏡の本体であるシュバルツシルド対物鏡は、超伝導マグネットの最大磁場の位置に焦点がくるように、室温ボアの中に組み込まれている。また、試

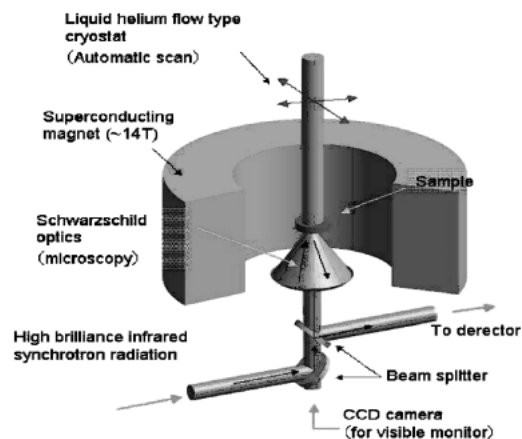


Figure 9. Schematic figure of the magneto-optical imaging apparatus.

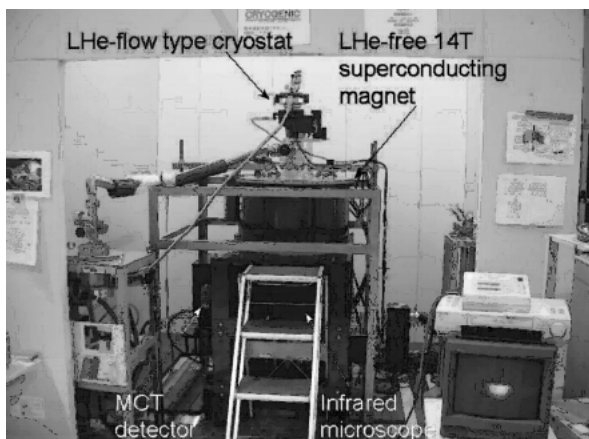


Figure 10. Photograph of the magneto-optical station at BL43IR of SPring-8.

Table 2. Parameters of the magneto-optical apparatus

| | |
|-------------------------------|---|
| Maximum magnetic field | 14 T |
| Minimum temperature of sample | 3.7 K |
| Special resolution | 15 μm (with pinhole) |
| | 10 μm (w/o pinhole) |
| Wave number range | 700~700 cm^{-1} (extended to 200 cm^{-1} in near future) |
| Polarization | Linear/Elliptic |

料位置は、マッピングを行うために自動ステージを使って遠隔操作や自動スキャンによるスペクトル測定ができるようになっている。この装置の現在の性能を **Table 2** に示す。

このステーションは、他のステーションより1年後発であるが、2001年度から通常の測定が可能になっている。既に、CeSbの磁気相転移に伴う電子状態の変化の測定では、空間分解能が15 μm であるにもかかわらず、 $\phi 2$ mm程度の試料で以前に行われた測定⁸⁾と同等の結果が得られている。また、最高磁場が14 Tであるために、以前の6 Tまでの実験では観測できなかった相の情報が得られている。

現在は、マッピング測定などを簡便に行うためのプログラムの開発や円偏光度などの性能チェックを行っている。今後は、有機伝導体などの微小試料、磁性体の磁気転移傍のドメインの空間的なイメージング、高圧セルを導入して、低温・高磁場・高圧の多重極限環境下の赤外分光を進めていく方針である。

5.3 表面科学実験ステーション

このステーションでは、表面に吸着した分子の振動分光を行うために、赤外反射吸収分光法 (IRAS) と、電子エ

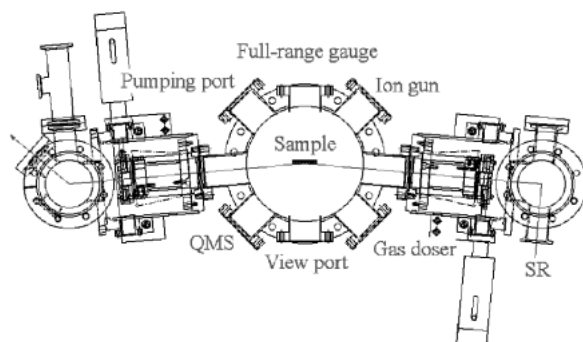
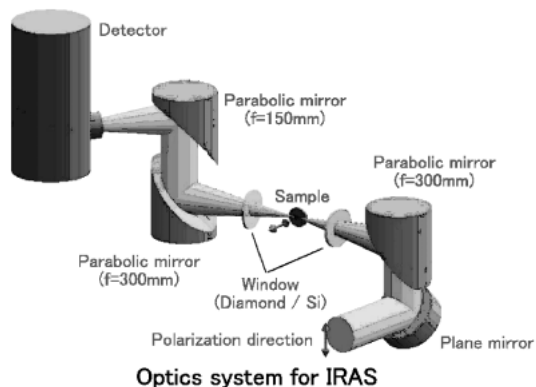


Figure 11. Schematic drawing and details of IRAS.

ネルギー損失分光法 (HREELS) を導入している⁹⁾。SPring-8の放射光とIRASを組み合わせるメリットは、エミッタンスの小さい遠赤外光を利用することにある。IRASでは、試料に対して非常に浅く5度前後の角度で光を入射する。そのため、光束の一部が試料側面に当たることによる光損失が起こりやすい。その点でエミッタンスの小さい光が有利である。またSPring-8の放射光は、実験室光源 (グローバーや水銀ランプ) に比べて、遠赤外領域での光強度が高いので、低被覆率で吸着している分子の振動スペクトルなど、感度の高さを要求される測定に有利である。

IRAS部分の概略図と装置図を **Fig. 11** に示す。放射光は軸外し放物面鏡を使い、試料上へ集光している。その際ビーム輸送系は低真空なので、超高真空チャンバーとの隔壁が必要である。ここでの光学窓は遠赤外光を透過する $\phi 10$ mmのダイヤモンド窓、または $\phi 13$ mmのシリコン窓を使用している。これらの窓は試料に対して、あらかじめ5度に傾けてある。

試料ホルダーは3種類用意している。一つはロードロック機構から試料を搬送できるタイプで、試料加熱機構はカーボンヒーターによる傍熱加熱 (数100 $^{\circ}\text{C}$) のもの。もう一つは金属単結晶試料を固定するタイプで、電子衝撃加熱 (約1000 $^{\circ}\text{C}$) のもの。残る一つは、半導体用通電加熱のものである (製作中)。試料冷却はいずれもヘリウムクライオスタットによる。可搬タイプは100 K程度、固定タ

イブで20 K 程度の実績がある。

一般に微量吸着分子や半導体上の吸着分子など厳しい条件下での IRAS 測定では、 10^{-4} 程度のスペクトル変化を検出しなければならず、今後 S/N の向上とともに以下に示すプロジェクトを適宜スタートさせていく計画である。

- 吸着過程、表面拡散などのポテンシャルの解釈
- 様々な吸着系における吸着構造と、それらの吸着率、表面温度による変化
- 表面反応の追跡 (有機反応, エッチング, 自己組織化など)
- 表面吸着した生体分子, 機能性分子などの特性

5.4 吸収反射分光ステーション

吸収反射分光ステーションでは、(1)微小試料の吸収反射分光 (高分解能実験, レーザー照射下の赤外分光を含む), (2)パルスレーザー励起, 赤外 SR 検出による時間分解赤外分光などを主要な目標としている¹⁰⁾。

上記(1)は、1 mm ϕ 程度まで集光されたビームを用い、波長範囲 (近・中赤外から遠赤外100 cm^{-1} まで)・分解能 (0.01 cm^{-1} 以下の超高分解能まで)・温度 (室温から 6 K までの任意温度)・真空 (超高真空対応)・レーザー照射等を組み合わせ可能なパラメータとして、主に比較的微小な固体物質の吸収もしくは反射分光を行おうとするものである。一方、パルスレーザー技術の進んだ現在、SR を用いて目標(2)の時間分解分光を行う利点は、SR が完全な白色光であることにつぎる。自由キャリアによるドルーデ吸収、あるいは分子吸収など、広い波数範囲にわたって分布する信号の時間変化を追うには、単色光源であるレーザー光に対して白色光源である放射光の特長が発揮できる。また、サブナノ秒領域の時間分解実験は、中赤外・遠赤外領域ではまだあまり行われていない。よって、研究対象はまだまだ数多く残されていると考えている。

Fig. 12に本ステーションの写真を示す。試料チャンパーは超高真空仕様であり、レーザー光の導入を容易にするための光学ベンチ上に設置され、多くのビューポートを備えている。試料の温度制御は試料チャンパーに挿入した閉サイクル He 冷凍機で行っている。また、ピコ秒パルスレーザー (Spectra Physics 社 Tsunami) が設置されており、波長範囲700–1000 nm およびその第2高調波が使用できる。吸収反射ステーションの現状を以下に述べる。

- 光強度, ノイズなど

Ge 蒸着 KBr ビームスプリッターの領域 (10000~500 cm^{-1}) では、十分な光強度が得られており、通常吸収反射分光は容易に行える。ピンホールスキャンによるビームサイズ測定により、2000 cm^{-1} の波数でビーム径600 μm 程度に集光できることを確認している。一方遠赤外領域 (<500 cm^{-1}) では、 $\phi 1.5$ mm 程度に集光されている。最近のビーム輸送系の改造により焦点位置での全強度が、当初に比べて、中赤外領域で2倍、遠赤外領域で約5倍

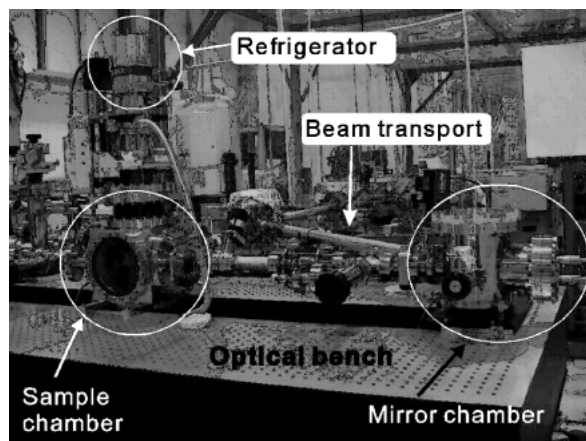


Figure 12. Photograph of the absorption-reflection spectroscopy station.

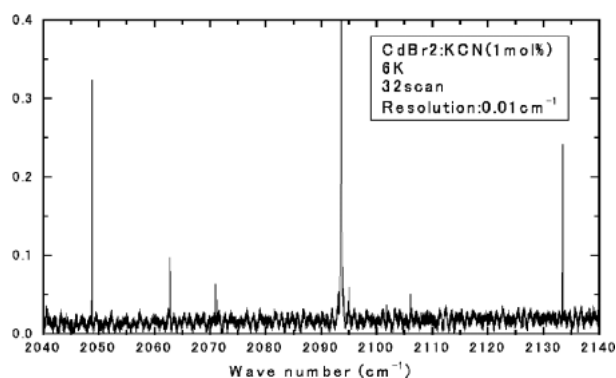


Figure 13. Example of a high-resolution measurement for $\text{CdBr}_2 : \text{KCN}$ (1 mol%) at 6 K.

に増加し (前述の値は改造後), S/N も向上した。また FT-IR とステーション間のミラー数も大幅に減ったため、さらに調整がしやすくなった。

- 高分解能測定

本ビームラインに設置されている FT-IR は、最高0.006 cm^{-1} の高分解能機能を備えている。測定例として、分解能0.01 cm^{-1} で測定した $\text{CdBr}_2 : \text{KCN}$ (1 mol%) の 6 K における CN-イオンの伸縮振動モードの吸収スペクトルを **Fig. 13**に示す。固体中にも関わらず半値幅0.05 cm^{-1} 程度の非常に鋭い吸収線が明瞭に観測されている。これはスキャン32回の加算平均であり、所要時間は約40分である。今後、上述のビーム輸送系改造とノイズ軽減により、時間短縮と S/N の向上を行う予定である。

- 時間分解実験

現在、時間分解実験はリングの運転モードが406か203バンチ運転の際に行っている。406バンチ運転では放射光パルスの繰り返しは84.7 MHz であり、SPring-8 のマスター RF 信号の6分周 (84.7 MHz) をトリガーとしてレーザーをパルス発信させて、レーザーと放射光を同期してい

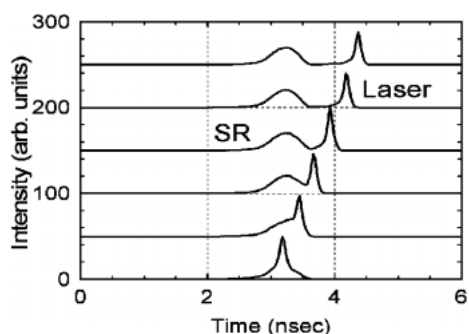


Figure 14. Temporal profiles of SR and laser pulses at different delay times.

る。Fig. 14にパルスレーザーの放射光に対する時間遅延を制御した例を示す。測定は光電子増倍管を用い時間相関光子計数法で行った。試料位置における放射光のパルス幅は約400 psecであり、サブナノ秒領域の時間分解分光が可能である。今後の研究対象としては、

- 半導体量子構造におけるレーザー誘起過渡自由キャリアの振る舞い。
- 低次元有機伝導体における励起子、ソリトン、ポラロンなどの緩和
- 光敏感生体物質（視物質、光合成物質、光活性タンパク質など）における分子振動の過渡的振る舞い

などが考えられ、これら物質のナノ秒領域における赤外スペクトルの時間変化を調べることになる。

このような実験では、レーザー照射後の赤外信号の変化率は一般的に 10^{-4} – 10^{-6} 程度と小さく、これをいかにS/N良く検出するかが重要である。改造前の本ステーションにおける検出限界は、約30分の積算時間で 10^{-4} 程度のオーダーであり、今後はこれをいかに改善するかが問題である。

6. おわりに

この世界で最も高輝度な赤外線が使えるビームラインが完成して約2年となる。これまでは、過去に大型放射光施設での赤外用ビームラインという例がないために、試行錯誤しながら立ち上げ調整をすすめてきた。長い時間がかかったが、やっと初期の立ち上げが終了しつつある。そろそろユーザー利用も本格的になりつつあるので、今後の成果に期待したい。

このビームラインの建設に当たりSPring-8の多くの方々からご助言とご助力を頂いた。加速器部門の正木満博氏、大石真也氏、大熊春夫氏にはベンディングチェーン部の改造、クロッチ部の改造及びM0ミラーに関して設計から設置・調整に至るまで全面的にご協力を頂いた。ビームライン部門の高橋直氏、青柳秀樹氏、佐野睦氏には

上流のフロントエンド部の設計と立ち上げに関して並々ならぬご協力を頂いた。松下智裕氏、石澤康秀氏には、全くSPring-8の標準と異なるこのビームラインのインターロックシステム構築を快く引き受けて頂いた。後藤俊治氏、大橋治彦氏にはビーム輸送部のコンポーネント、排気系について親身になって相談にのって頂いた。矢橋牧名氏には、時分割実験用のタイミングシステムの構築についてご指導頂いた。広野等子氏には、LabViewを駆使してFT-IRと他の実験装置を連動させる測定システムを作って頂いた。利用促進部門Iの大石泰生氏、山片正明氏には低温DAC、高温DACの設計と立ち上げにご尽力頂いた。池本夕佳氏には、ビームライン担当者の一人として、建設フェーズと利用フェーズの移り変わりのなかで、ビームライン運営に尽力して頂いている。理化学研究所の石川哲也主任研究員にはビームライン全体の設計から、発注、建設、調整に至る全般について、常に意味深い言葉と叱咤激励を頂き大変勇気づけられた。

又SPring-8の共同利用ビームラインの中で、このビームラインほどサブグループと建設サブグループの方々のご助力を頂いたビームラインはない。京都大学の高橋俊晴助手にはFT-IR上流の光学系に関して心血を注いで調整して頂いた。東北大学の近藤泰洋教授には、マジックミラーに関しての有益な示唆を頂き、又立ち上げ時の特に振動問題解決と遠赤領域の調整に関して中心的な役割を果たして頂いた。福井大学の中川英之教授には、吸収反射分光ステーションの基本設計を含めたビームラインの建設推進に助力を頂いた。最後に、多くの学生諸氏の献身的な協力なくしてはこのビームラインは完成しなかった。大変感謝し、今後の彼らの活躍に期待する。

参考文献

- 1) H. Kimura, et al.: Nucl. Instrum. Meth. A, to be published (2001).
- 2) 難波孝夫：日本物理学会誌 **40**, 787 (1985).
- 3) N. V. Smolyakov：放射光学会誌 **第11巻5号**, 18 (1998).
- 4) R. Lopez-Delgado and H. Szwarc: Opt. Commun. **19**, 286 (1976).
- 5) S. Kimura, et al.: Nucl. Instrum. Meth. A, to be published (2001).
- 6) S. Kimura, et al.: Nucl. Instrum. Meth. A, to be published (2001).
- 7) S. Kimura: Jpn. J. Appl. Phys. **38 Suppl. 38-1**, 392 (1999); 木村真一：放射光学会誌 **第13巻1号**, 62 (2000).
- 8) S. Kimura, H. Kitazawa, G. Kido and T. Suzuki: J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 647 (2000); S. Kimura, H. Kitazawa, G. Kido and T. Suzuki: Physica **B 281-282**, 449 (2000); S. Kimura, M. Okuno, H. Iwata, H. Kitazawa, G. Kido, F. Ishiyama and O. Sakai: submitted.
- 9) M. Sakurai, et al.: Nucl. Instrum. Meth. A, to be published (2001).
- 10) H. Okamura, et al.: Nucl. Instrum. Meth. A, to be published (2001).