

## ■ 動向

### Elettra 放射光施設の現状と利用体験

藤井 純 (TASC Laboratory, IOM-CNR, Trieste, Italy)

坂本一之 (千葉大学大学院融合科学研究科)

菅 滋正 (大阪大学産業科学研究所)

#### 1. ビームラインサイエンティストの視点より：光源とビームラインの現状

周長259.2 m の Elettra が1993年に稼働し始めて2013年で20年が経過しました。私 (藤井：JF) は2001年7月からイタリア CNR (National Research Council の略。以下同様) の一機関である IOM (Institute for Material Manufacturing, 旧 INFM) 下の TASC (Advanced Technology and nano-Science) 研究所に所属し、Elettra に所有する6つのビームライン (BL) のうちの1つ APE (Advanced Photoelectric Effect) BL 担当のビームラインサイエンティストとして常勤しています。赴任当時はヨーロッパで最も性能の良い第3世代真空紫外 (VUV), 軟エックス線 (SX) 放射光施設の一つでしたが、その後各国に次々と Elettra (2 GeV) の半分以下のエミッタンスの新しい施設が完成しました。また隣接して seed 型の VUV, SX 自由電子レーザー (FEL) 施設 Fermi が建設され2012年からは外部ユーザーにも開放されました。本誌の多くの読者の目も FEL 光源に向いているのではないかと思います。実際には Elettra への実験申請数は2000年代前半の約700件/年から減少することなく、現在800件前後で推移しています。リングの様子は20年来変わりませんが、少しずつユーザーフレンドリーになっています。挿入光源、分光器、エンドステーション等のアップグレードにより、今でも十分最先端の実験が可能です。Elettra がたどって来た道とこれからの方向を私見も含めて紹介したいと思います。

2007年以前の Elettra の弱点は加速器の不安定性でした。最初の構想では2008年から使用されているような100 MeV の linac と booster で構成する入射系が有力でしたが、実際には当初 2 GeV の linac が建設されました。しかし linac 電源の冷却性能不足で 1 GeV までしか加速できず、入射終了後にリングを 2 GeV まで ramp する際いったい何度ビームが落ちたことか。もちろん top-up 入射は無理でした。入射前にはリングビームをダウンさせる必要もありました。その頃は平均すると 1 日1.5回程度の確率でビームが落ちていました。これは年平均の数で、もちろん落ちない日もあるので、場合によっては 1 日に 3-4 回と落ちる日もあり、初めは私もさすがに呆れました。時間をかけて清浄表面を作った測定には不向きでした。さらに日によっては頻りに軌道のジャンプなどが起きていま

た。各ビームラインでは如何にその影響を受けにくい計測をするかに頭を悩ませ続けていました。現在では入射のために蓄積ビームをダウンさせる必要がなくなり或る程度の安定性が実現されています。そうは言っても今でも平均して 2 日に 1 回程度のビームダウンがあります。なおビームの復活にかかる時間は以前の平均1.5時間から 1 時間に短縮されました。しかし今でも雷によるサージ電流でビームが落ちるのは防げないので、夏の実験で運が悪いと毎日のようにビームが落ちて、雷雲が過ぎ去るまで 2, 3 時間待たされます。それでも2010年5月から完全 top-up 運転が開始され、リング電流の経時変化もほぼなくなり、またリングのみならず分光器への負荷も一定となり、分光した光の安定性は格段に増しました。それだけでなく2010年には全ての電磁石の再アラインメントが行われ、さらに、以前は 2 つしかなかったビーム位置モニターも2012年には計118個になり、リング内の電子軌道のずれも現在はサブミクロンに抑えられるようになっています。

分光された光のエネルギー  $h\nu$  のシフトを防ぐには分光器 (あるいは実験ホール) の温度管理が重要なのですが、残念ながら空調のバルブの自動開閉機構が数年来働いておらず、驚くことに時々人が屋根に上って一つ一つ開閉操作を行っています。このため温度が急激に変化したり、あるいは夜間など人が登れない時間帯は特に外気温の変化をもろに受けたりという状況が続いています。対策には巨額の投資が必要ですが、現状では困るというユーザーの声が意外と少なく長らく放っておかれています。このあたりが日本人の感覚には合っていないところでしょう。Elettra では実験終了時にユーザー満足度調査表への記入が義務付けられています。そこに日本のユーザー感覚での多くの意見が寄せられることが、Elettra の利便性をより向上させるのに大きく役立つのではないかと考えています。

次に私の担当の APE-BL の現状とアップグレード計画を紹介します。これは CNR-IOM 所属の VUV, SX を用いた固体表面研究用アンジュレータビームラインで、 $h\nu$  10-90 eV と 150-1500 eV 用の 2 つのアンジュレータと 2 つの分光器からなっています。アンジュレータは Apple II で低エネルギー側では高次高調波を抑えるために準周期構造を採用しています。4.8 m の直線部に挿入された 2 つの 2 m アンジュレータは 2 mrad 傾けた軌道上にあり、低  $h\nu$  側は ARPES 用、高  $h\nu$  側は XAS, XMCD, XPS 用

です。それぞれ定偏角不等間隔平面回折格子分光器で分光されますが典型的な分解能は低  $h\nu$  側が16000, 高  $h\nu$  側が7000です。BLは2つの試料準備チャンバーを有し、それぞれ2本, 3本の蒸着源が装着できるようになっていて試料作製と評価から様々な分光測定までを *in situ* で行えます。2003年から一般ユーザーに解放されています。ビームタイム内訳は外部ユーザーが75%, インハウス実験と保守が25%になっています。スタッフはビームラインサイエンティスト4名, プログラムの技官1名, ポスドクが現在3名です。アップグレードとしては試料準備の可能性を広げるために新たにPLD試料作製装置とMBE試料作製装置を準備しました。特にPLD作成した試料を *in situ* でARPES測定できる放射光施設は稀ですし, PLDは使用できる元素の幅が広いことや合金ターゲットも使えるメリットもあるので, まずはこれを2014年3月をめどに接続する予定です。ARPESアナライザーは2003年以来Scienta SES2002を使用していましたが, 取り込み角の小ささ(12度)に多くのユーザーからの不満の声が聞こえるため, R4000改良型アナライザーを購入しました。更に1年後の稼働を目指してスピン分解ARPES用にスピン検出器も購入しました。高  $h\nu$  用分光器の分解能, 強度にも不満があったため, 回折格子をHoriba Jobin Yvonに新しく注文しました。現在は溝深さの違う2つの回折格子を用いていますが, 新しいものは1つの回折格子の中で溝深さが連続的に変化するVGDタイプです。高  $h\nu$  側に設置されていたMott検出器はこのBLからは取り外しFermiかXFEL(Hamburg)での実験用に改造中です。

12個の偏向磁石部を持つElettraの挿入光源用の直線部は11箇所です。2.0 GeVと2.4 GeVの2つの運転モードがあります。2013年12月現在16本の挿入光源BLと8本の偏向磁石部BLが稼働しています。うち半数弱の11本が純粋なElettraのBLで, 残りは, CNR等のイタリアの国内BLが10本, 残りはドイツ, オーストリア, チェコの国際BLが各1本です。創成期から顕微分光が盛んで, ゴンプレートをういた走査型の軟エックス線光電子分光BL(ESCA Microscopy), ゴンプレートをを使ったイメージングと走査の双方可能な透過型エックス線顕微分光BL(TwinMic), Schwarzschild光学素子を使った真空紫外角度分解光電子分光BL(Spectro Microscopy), Elmitec社のPEEM/LEEMを装備したBL(Nanospectroscopy), そしてOxford-Omicron社のNanoESCAを装備したBL(NanoESCA)と計5つの顕微分光BLが稼働しています。創成期からのBLが高速光電子分光を得意とするSuperESCAです。各BLの配置や性能については<http://www.elettra.eu/lightsources/elettra/beamlines.html>を参照ください。

皆さんもご存知の通り, イタリアは数年前から国家経済がいつ破綻してもおかしくない状況が続く, 教育研究機関への財政緊縮は徹底していて, 大学生はトイレトペー

パーを持参するほどです。国からの研究費は無きに等しいものです。多くの外国人からイタリアではお金がないからBLのアップグレードは無理だろうと言われますが, そうでもありません。Elettraは「来年は1週間しか運転資金がない」という状況(2005年)からboosterを建設し, Fermiも建設しました。現在の設備を維持するお金はありませんが, ヨーロッパプロジェクトをあてれば, BLをアップグレードすることは可能です。ここでElettraの全てのBLの最近のアップグレードを紹介することは紙面上不可能ですが, 例えばAPE-BLと同じくIOM-CNR所属のBach-BLではフェムト秒レーザーとシンクロトロン光を使ったポンプ・プローブ法でサブナノ秒の時間分解XASを立ち上げています。また, XMCD用の6.5 T, 1.7 Kの超伝導磁石も2013年から稼働しています。比較的新しいBLは2006年から稼働の低エネルギー(4.6 eV-)角度分解光電子分光BL: BaDEI Ph, 2007年から稼働の赤外線BL: SISSI, 2009年に大幅に改良された前述のSpectro Microscopy-BL, 2013年から稼働のNanoESCA-BLなどです。X線回折BLも1本が2012年から稼働し, もう1本が2014年稼働予定です。

## 2. ユーザーの視点より I : APE ビームラインでの実験

次に立場の異なる外部ユーザーとして私(坂本:KS)は2007年8月より現在まで幸運にも上記に詳しく説明されているAPE-BLで年に1, 2回ビームタイムをいただけてきました。スピン軌道相互作用と空間反転対称性の破れに起因するラッシュバ効果やトポロジカル絶縁体, 有機薄膜の電子構造に関する研究を行っています。ここではこれまで私が使用した他の放射光施設と比較しながら紹介したいと思います。

APE-BLを利用するにあたり, 最初の関門となるのが申請書です。これまでビームタイムを申請したことがある日本のSPring-8, KEK-PFやHiSOR, スウェーデンのMAX-lab, フランスのSOLEIL, ドイツのBESSYと比べると, Elettraで要求される量はかなり多く, 英語で書かないといけないことと合わせると初めての申請は他の施設よりハードルが高いように思います。また, 申請書はダウンロードしたrtfフォーマットの書類に必要事項を記入するのですが, 記入してアップロードしてもエラーが出てしまい, 現地スタッフの手を借りないと申請できないという問題もありました(去年あたりからはpdfファイルで申請できるようになり, この問題は解決されました)。査読は丁寧で, 課題の科学的な面白さだけでなく, 実験内容と申請ビームタイムの関係まできっちりチェックされます。無駄に長いビームタイムの申請やビームタイム中に消化しきれない多くの課題を申請すると点数が悪くなるようです。査読者によるかもしれませんが, これまで私がもらったコメントは丁寧でかなり有益なものばかりでした。また

余談ですが、ビームライン担当者によって減らされそうになったビームタイムを、申請課題が科学的に非常に大事であるという理由で査読者が増やしてくれたこともありました。このような経験は Elettra でしか体験したことがありません。

さて、私が利用して来た APE-BL ですが、その特徴の1つにエンドステーションのユニークさがあげられます。高分解能角度分解光電子分光用の低  $h\nu$  ブランチの測定槽と、XPS などの測定が可能な高  $h\nu$  ブランチの測定槽が真空槽でつながっており、試料を大気にさらすことなく低  $h\nu$ ・高分解能での価電子帯と、1.6 keV までの高  $h\nu$  での内殻準位の測定が可能です。また、室温での測定しか出来ないものの STM もつながっており、作製した試料の周期性を LEED で確認するだけでなく、原子構造も確認できます。私が実際に行った研究としては、Tl や Bi を 1 ML 程度蒸着した Si(111) 表面上における特異なラッシュバ効果や、トポロジカル絶縁体のドーピング効果がまず上げられます。このうちスピン偏極電子バンドを発現するラッシュバ効果とトポロジカル絶縁体は低  $h\nu$  ブランチでの高分解能光電子分光測定で詳細な電子構造に関する知見を得て、特異なラッシュバ効果の発現機構やトポロジカル絶縁体への新規ドーピング法を解明・議論したのみでなく、円偏光での光の角運動量を用いてバンドのスピンに関する知見を得ることも成功しました。また、2つのブランチを同時に利用した研究としては、有機-無機界面での電荷の振る舞いについての研究があります。無機基板に有機分子を蒸着した時の仕事関数の変化は、基板が不活性であっても界面での無機から有機分子への、もしくは有機分子から無機基板への電荷移動を用いて説明されてきましたが、低  $h\nu$  で価電子帯を、高  $h\nu$  で内殻準位の詳細なシフトを観測することにより、このような系での仕事関数の変化が、分子内での電荷移動、つまり分子内の分極で説明できることを明らかにすることが初めて可能となりました。

APE-BL と同じく  $h\nu$  が 30 eV から 1.5 keV 程度での光電子分光測定が行えるビームラインは現在日本では KEK-PF の BL-13A/B をはじめ、海外では MAX-lab の I311 や SOLEIL の CASSIOPÉE など多数存在しますが、8 eV (公称値、実際は十数 eV 程度) の低  $h\nu$  を用いた高エネルギー・高波数分解能での光電子分光測定となると APE と CASSIOPÉE くらいになります。この2つの BL を比較すると、 $h\nu$  分解能、光スポットサイズ、アナライザー性能などの全ての面で現在は後発の CASSIOPÉE に分があります。ただ、CASSIOPÉE が高分解能光電子分光とスピン分解光電子分光のように光電子分光に特化しているのと異なり、APE では高  $h\nu$  領域で XMCD/LD による磁性体研究も行えるという大きな違いがあります。また低  $h\nu$  ブランチに注目すると、これまで狭い取り込み角での高分解能光電子分光しか出来ないという弱点は既に改良され今後高効率スピン分析器が導入されて短時間で高分解能のス

ピン分解光電子分光でスピンを直接測定できるようになればさらに魅力的な BL となることは間違いありません。改良後の BL に日本の皆様も申請されて見てはいかがでしょうか？

### 3. ユーザーの視点より II : NanoESCA ビームラインを利用して

さて Elettra の外国 BL の一つであるドイツ Jülich 研究所 NanoESCA-BL について私 (菅 : SS) から紹介します。2013年 8-9 月に 1.5ヶ月に渡り実験を行う機会があったので BL の現状と有用性ならびにこの分野の展望にも触れたいと思います。スピン偏極角度分解光電子分光 (SP-ARPES) は近年盛んに測定されているトポロジカル絶縁体の例に見られるように、固体電子状態の詳細を探るための有力な手法です。しかしシングルチャネルスピン検出は効率の低さからエネルギー、角度分解能双方を高めた測定はなかなか困難です。一方で角度分解光電子分光 (ARPES) 自身については二次元角度分解光電子分光 (2D-ARPES) が古くから行われて来ました。最近 PEEM (光電子顕微鏡) を入射レンズにしたタンデム接続の 2 台の静電半球型電子エネルギー分析器で無収差でエネルギー分析が出来、二次元検出器で実空間あるいは波数空間での二次元同時測定ができる装置が某社から NanoESCA の名称で市販され、エネルギー分解能 150-70 meV が実現されています。この装置を用いて NanoESCA-BL では興味ある 2D-ARPES データが続々と報告されていますが、ここにはあいく未だスピン検出器は取り付けられて無いので今回はドイツ Halle のマックスプランク微細構造物理学研究所 (MPI-Halle) の Kirschner グループで独自開発された W(001) 二次元スピン検出器を持ち込み  $h\nu$  をいくつか変えた 2D-SP-ARPES 実験を行いました。

まずスピン検出器を 2 台の半球型分析器の後方の出射電子軌道に挿入しない場合は、PEEM で選択された試料上の  $\mu\text{m}$  ミクロ空間領域からの光電子の  $k_x, k_y$  波数空間分布を二次元同時測定できます。高効率のため一定の  $h\nu$  に対しては数分間で全  $k_x, k_y$  波数空間の電子帯の分散が、また励起光を左右円偏光に切り替えることにより簡単に光電子強度の  $k_x, k_y$  波数空間での 2 色性が求まります。偏光励起では角度分解光電子測定をする限りほとんどの光電子がスピン偏極をすると期待されるので電子状態の混成や、電子相関効果などの議論をする際には完全 2D-SP-ARPES が必須です。スピン検出器は電子出射軌道に 45° の角度で挿入されこれで 90° 偏向された電子のスピンを  $k_x, k_y$  二次元同時測定します。スピン検出の低い効率は同時計測  $k_x, k_y$  点の数でカバーすることが可能であり、低効率の W(001) スピン検出器を用いた場合でさえシングルチャネル SP-ARPES に比べて数百倍程度高い効率が可能です。こうして  $h\nu$  を数点変えて、 $E_B$  数十点での全波数空間

(4 Å<sup>-1</sup>程度)でのスピン偏極を2-3日で測定し終わられます。第1ブリルアン域(BZ)だけでなく第2BZ, 第3BZまでの測定も可能です。

私はMPI-Halleで遥かに性能の高いmomentum microscope (M.M.)で15 meVと0.01 Å<sup>-1</sup>の分解能での2D-SP-ARPESをIr-Au二次元スピン検出器で行っています。これはW検出器の百倍のスピン検出効率を持つので極めて短時間で完全2D-SP-ARPES測定が可能です。Irの表面クリーニングは2,3日おきでよく、Wでの2時間おきのクリーニングより遥かに楽です。試料はマクロに見て全体にflatでないとPEEM引き出し電場20-10 kVで電子軌道が乱れるものの、試料サイズの1/10程度の凹凸は問題ないようです。へきかい面が10 μmもあればPEEMで選んだ測定が出来るので対象となる試料は膨大です。このような世界最高性能の装置を放射光BLに設置し強力に国際共同研究を推進することが重要であると考えています。

NanoESCA-BLではリング運転時間の1/2を使えるので年間を通すとインハウス利用1500時間、共同利用約1000時間です。1つのビームタイム期間は平均5日間です。利用料はもちろん無料です。ヨーロッパ内からの応募には旅費が支給されますが日本からの応募の場合は旅費は自前で負担する必要があります。欧州外からの応募は歓迎との姿勢です。このステーションの一般利用は年間8-10件程度、また純粋なインハウス利用は12-15件程度、残りはインハウスに割り当てられた時間の中で共同研究として行われているとの事です。今回の我々の利用は後者の形で1.5ヶ月行われたものでありスタッフの強力なsupportがありました。なおこのBLのHPは<http://www.elettra.trieste.it/elettra-beamlines/nanoesca.html>に、また応募に関する詳細は<http://www.elettra.trieste.it/userarea/user-area.html>にあります。ミクロ・ナノ領域で200 meVでの分解能で2D-ARPESを行うような場合は、このBLは驚異的な性能を発揮するので、日本からも躊躇せず多くのビームタイム申請をされると良いと思います。3人程度で行けば数日間の24時間実験に何の支障もありません。

#### 4. これから Elettra を利用される皆様へ

一般にはElettraの課題申請は1年に2度で3月と9月が締め切りです。全ての申請書は外部評価委員会によって審査されます。詳しくは<http://www.elettra.eu/userarea/apbt.html>を参照ください。年間のユーザービームタイムは平均200日強です。VUV, SXのBLでは、試料準備に時間がかかることを見越して、1つの課題に対して6日前後のビームタイムが与えられます。採択確率はAPE-BLの例では、外部からの実験申請が採択される課題数は半年で10前後です。2014年前期の採択では申請数が21(イタリア10, 外国11)で10の申請が採択されました。挿入光源や偏向磁石部を2つのBLで共有している場合は、採択数が6-7程度に落ちるので、採択確率は少なくなります

が、概ね30%-50%くらいで、ヨーロッパの他の施設より若干通り易いと思われます。

試料の化学エッチング、単結晶試料表面研磨やラウエ像撮影等は、ユーザーサポート実験室に作業を依頼することができます。BL担当者を通して予約をいれてください。<http://www.elettra.eu/labs/support-lab.html>。工作工場は実験器具の修理や改造などの緊急作業の要望に応じてくれますが、自分で工作機械を操作することは禁止されています。

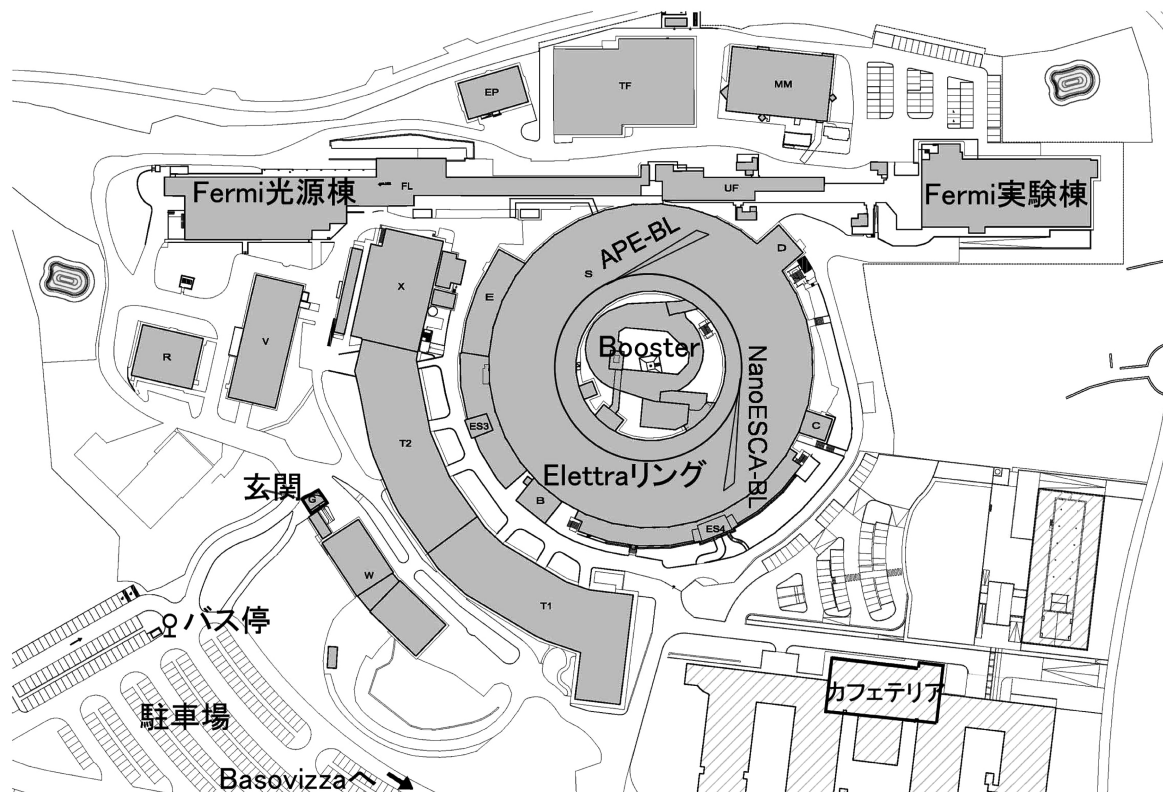
なお実験中、車の無いゲストはElettraと提携している近くのBasovizza村のCenter Hotelへの宿泊が望ましいようです。Elettraまで徒歩で日中は森を横切って20分、夜間は歩道のある自動車道路で25分程度で行き来できます。朝食・Internet・台所付きを申し込んでも50-60 Euroであり、欧州基準で言うと比較的安いです(Basovizza村には他にさらに安いDa Pepiというホテルがありますが、こちらのホテルはインターネットがなく、支払いも現金のみとなっています)。Triesteからも日中頻りにバスはあるものの深夜は運行していません。食事に関しては、平日の昼間は施設の美味なカフェテリアがオープンしています。ゲストはカフェテリア横にあるバーで食券を購入するシステムとなっていますが、バーにメニューがないため一度カフェテリアの食事をチェックする手間と、Elettra職員よりわずかに高い料金を支払う必要があります。土日祝日の昼と夜は、上記Basovizza村に数軒あるレストランで食事するのでなければ、ピザをテイクアウトしてビームライン横で食事するか、施設内の自動販売機にあるサンドイッチなどを食べて飢えを凌ぐこととなります。

ElettraのほかにもSXまでの放射光利用ではスイスSLS, 英国Diamond, 仏Soleilなどの放射光施設も実験ステーションの整備が進み、実験backup体制もソフトウェアを含めて充実していますので、日本の若い世代の研究者が国内放射光利用にとどまることなくこれ等の世界中の放射光施設を臨機応変に使用しそれらの体験をどんどんわが国にフィードバックすることで放射光研究のactivityを加速できるよう期待して筆を置きたいと思います(2013年12月)。

**補足1:** 執筆者のうちKSとSSは利用者の立場で国内放射光と外国放射光施設を相補的に利用。JFは長年外国放射光施設のビームラインサイエンティストの立場にあり、これから世界を目指す若手研究者にその体験を少しだけ披露。院生時にはKEKのPF-BL19AにおけるMott検出器を用いたスピン分解光電子分光装置の立ち上げに参加。その後放射光から少し離れ、磁性体表面をMott検出器やSTMを利用して研究。第3世代放射光を用いた高分解能電子分光への憧れから、当時最先端のVUV-SX施設Elettraの研究者に履歴書を送付。ちょうどSTM併用の磁性研究ビームラインを計画していたG. Rossi (Modena

大学教授，後 Milano 国立大学教授）に転送され，ポストクとして採用。些細なことでも大騒ぎするイタリアにあって，緊急時でも（外見上）冷静に対処できる日本人の姿勢はイタリア人からは歓迎。INFM のテニールトラック

のポストを経て，ビームラインサイエンティストとして CNR のパーマネントの職。いろいろ有利な雇用条件にもかかわらず，これまで Elettra でポストクポストについての日本人が 2 人しか居ないのは，もったいない。



補足 2 : Elettra, 自由電子レーザー Fermi の建物やビームライン配置とバス停留所, 施設玄関等の配置略図