

# 光源加速器の存在を意識できる放射光ユーザーの育成に向けた取り組み

北島昌史

東京工業大学 理学院 〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1-W4-5

穂坂綱一

東京工業大学 理学院 〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1-W4-5

現所属：量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所 〒370-1292 群馬県高崎市綿貫町1233

河内宣之

東京工業大学 理学院 〒152-8551 東京都目黒区大岡山 2-12-1-W4-5

足立純一

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

## 要旨

東京工業大学理学院化学系では、高エネルギー加速器研究機構・放射光科学実験施設のビームライン BL-20A を利用して、大学院生向けの実習「放射光科学実習」を2011年度より毎年度、実施している。この実習には、これまで化学系の多くの分野の学生が参加し、その半数は、はじめて放射光利用実験を経験する学生である。本稿では、この実習のねらいや様子を紹介する。

## 1. はじめに

加速器からの光「放射光」の利用は、1960年代の真空紫外分光による原子・分子の研究<sup>1)</sup>に始まり、今やテラヘルツから硬 X 線に渡る広大なエネルギー領域における、極めて広い分野の多彩な研究に欠かせない「光」となっている。特に、化学分野においては、様々な新奇物質開発や生体タンパク質解明のための結晶構造解析、人工光合成をはじめとする種々の反応や物質の表面やバルクの電子構造解析などの必要不可欠なツールとして活用されている。そして、これらの研究を支える多くの大学院生も「放射光施設」での実験に携わり、次代の研究を担うべく研究経験を重ねている。このようなことから、東京工業大学理学院化学系（東工大化学系）では、2011年度より大学院生向けの実習「放射光科学実習」を高エネルギー加速器研究機構・放射光科学実験施設（KEK-PF）において実施している。ここでは、この実習のねらいと実習の様子などを紹介したい。

## 2. 東工大化学系の放射光科学実習の特徴

東工大化学系では、多くの研究室が KEK-PF や SPring-8 などの放射光施設で放射光利用実験を行っており、その利用の仕方も多様である。そのため、比較的多くの学生が多様な手法で放射光施設での放射光利用実験に携わっ

ている。また、放射光を研究で用いていない研究室の学生も、放射光施設での実験に興味を持っている傾向が見取れる。このことから、著者らのグループでは、2009年頃から化学系の大学院生を対象とした放射光施設での実習の検討を始めた。

放射光施設での実習を行うに当たっては、ツールとしての放射光利用の経験だけでなく、「+α」として、本実習ならではのプログラムを取り入れたい。このときに我々が着目したのが、加速器としての放射光の利用である。近年の放射光の安定性には目を見張るものがあり、学生に限らず、我々ユーザーは、ともすれば光源加速器の存在を忘れてがちである。ユーザーが光源加速器の存在を意識しなくて済む状況は、放射光施設の絶え間ない努力によるものであり、ユーザーに多大なメリットを提供している。一方で、次世代の放射光技術の発展にはユーザーの側でも光源加速器そのものを意識できる人材が重要となるのは間違いなく、このような意識づけのきっかけとなる実習を行えば、有望な人材育成に貢献できると考えられる。そこで、次世代光源がユーザーの視野に入りつつあった当時、加速器科学と放射光科学の距離を狭める様な、『放射光を使いこなせる人材を養成するためには、蛇口をひねれば出てくる水を使うような実習ではなく、ユーザーには見えない光源加速器（PF 蓄積リング）の存在を意識できる実習が望まれる。』をコンセプトに、新しいタイプの実習を立ち上げることにしたのである。

### 3. 光源加速器の存在を意識させる実習

学生に「光源加速器の存在を意識させる」ことを目指した実習は色々考えられるであろうが、本実習では放射光パルスとの同期を取る実験を行うことにより、光源加速器の存在を意識させることにした。KEK-PFにおいては、光源加速器である蓄積リングは高周波（RF）加速を用いており、蓄積リング中の電子は2 ns 間隔のバンチとなっている。すなわち、KEK-PF からの放射光は2 ns ごとのパルスとなっている（放射光パルスの時間幅は100 ps 以下）。原子・分子にVUV 領域の放射光を照射すると放射光のエネルギーに対応した励起状態を生成するので、放射光パルスと同期して励起状態からの蛍光を時間分解測定すると原子・分子の励起状態の寿命を測定することが出来る。放射光パルスの到達時刻は、光源加速器から供給されるパルス放射光と同期したピックアップ信号を用いる。放射光パルスのタイミングとRF のピックアップ信号の相関を理解するためには、放射光発生の原理と共に光源加速器（蓄積リング）のRF 加速の動作原理について簡単な知識が必要である。化学系の学生のごほとんどは加速器について学ぶ機会はないので、本実習では、放射光の発生原理や加速器の動作原理についての講義を、実際に常時PF リングの運転に関わっている高エネルギー加速器研究機構の高井良太氏にお願いしている。化学系の学生にとっては、比較的、馴染みのある時間分解測定であるが、光源加速器から供給されるRF のピックアップ信号を用いて測定を行うことで、光源加速器を意識した実習が可能となる。

実習を行うビームラインであるが、これは、KEK-PF のBL20A を利用している。実は、東工大化学系の放射光科学実習をKEK-PF で行うにあたっては、2009年4月に東京工業大学理工学研究科化学専攻（当時）と放射光科学研究施設との間で交わされた、放射光科学の教育研究推進についての合意書及びそれに付帯する覚書が発端となっている。この取り交わしに基づき、KEK-PF のビームラインBL20A を東工大化学系が参画する大学等運営ステーションとし、著者らがBL20A の運営に参画することで本ステーションでの教育活動の機会が得られたのである。

KEK-PF のビームラインBL20A は、偏向電磁石を光源とし3 m 直入射分光器を備えるビームラインで、5~40 eV の真空紫外（VUV）領域の放射光を供給できる、KEK-PF でも最も長波長領域をカバーするビームラインである<sup>2)</sup>。エンドステーションはフリーポートとなっており、ユーザーは各々の実験装置を持ち込んでビームラインに繋ぎ込み実験を行う。また、本ステーションは気体標的実験を行うための排気ダクト等も備えられており、実験の自由度も高い。

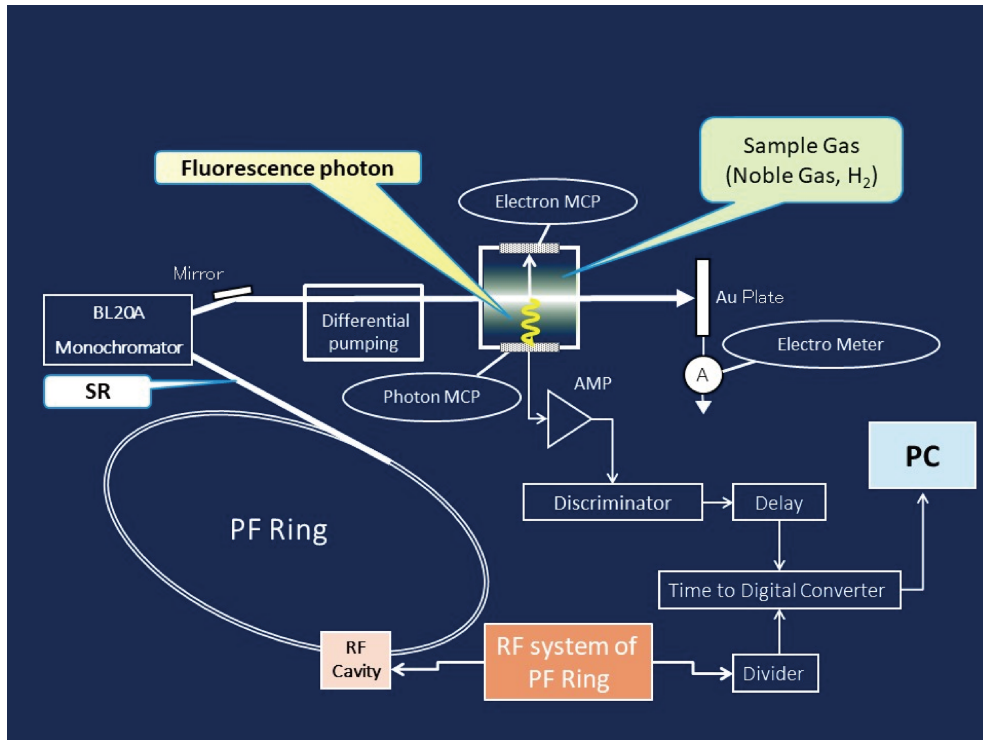
### 4. 実習の実際

ここで、実習の全体像を紹介する。本実習は東工大化学系の化学コースおよびエネルギーコースの修士課程の科目として開講しており、主な参加学生は大学院一年生である。KEK に来所しての実習は1泊2日で行うが、実習に参加する学生は放射線業務従事者登録が必要であるので、このための教育訓練を東工大において受講することになる。放射線業務従事者登録のための教育訓練は、年に数回しか機会が無いので、本実習の履修希望者はKEK に来所しての実習の数ヶ月前には準備を始めることになる。これらのタイミングの兼ね合いで、実際の実習は、毎年、秋以降に開講している。

KEK 来所前の放射線業務従事者登録は、研究室の実験で放射光施設を使わない学生には一つのハードルであり、他の授業との兼ね合いで、放射線業務従事者登録のための教育訓練の講義および実習の受講や特殊検診の受診が難しいケースもある。本学の放射線安全センターにも柔軟な対応をお願いし、協力して頂いている。

KEK に来所しての実習で、一回で受け入れることのできる学生数は、安全面から5名程度が上限である。来所しての実習では、まず安全ビデオによる安全教育を済ませた後、放射光科学全般にわたる基礎知識を習得すべく、放射光科学概論の講義を行う。そのあと、実習参加者は、いよいよPF 実験ホールに入り、ビームラインBL20A にて、予めビームラインに設置された実験装置についての説明を受けた後、放射光パルスと同期した時間分解測定に進んで行く。

BL20A での実習で用いる実験装置の模式図をFig. 1 に示した。実習に用いる実験装置は、ガスセルとこれに固定したMgF<sub>2</sub> 窓付のマイクロチャンネルプレート（MCP）で構成される蛍光光子検出器および光量モニターのための金プレートを封入した真空チェンバーであり、実習のために確保したビームタイムに合わせて、予めビームラインに設置する。単色化した放射光をガスセル中の気体に照射し、生成した励起原子からの蛍光を蛍光光子検出器で検出する。時間分解測定は、蛍光光子検出器からの信号をスタート、光源加速器からのRF 信号（500 MHz）を1/312 分周器に通した信号をストップとする遅延同時計数法により行う。PF の蓄積リングは312個のバケットで構成されており、分周回路からの信号は蓄積リング中の電子バンチがリングを1周回る度に出力される。スタート信号とストップ信号の時間差を時間デジタル変換器（TDC）によりその頻度分布として記録し、時間分解スペクトルを得る。これは、時間分解測定により、励起原子が蛍光を放出する時刻と、蓄積リング中の特定の電子バンチが放出する放射光パルスの放出時刻との時間差の頻度分布を得ていることになる。実際には励起原子を生成した放射光パルスとは別のパルスとの時間差を見ていることになるが、蓄積リ



**Fig. 1** (Color online) Overview of the experimental system for time spectra measurements. Coincidence counts of the fluorescence photon signal detected by the microchannel plate (MCP) are measured as a function of the time differences between the fluorescence photon signal and the RF pickup signal from the accelerator facility.

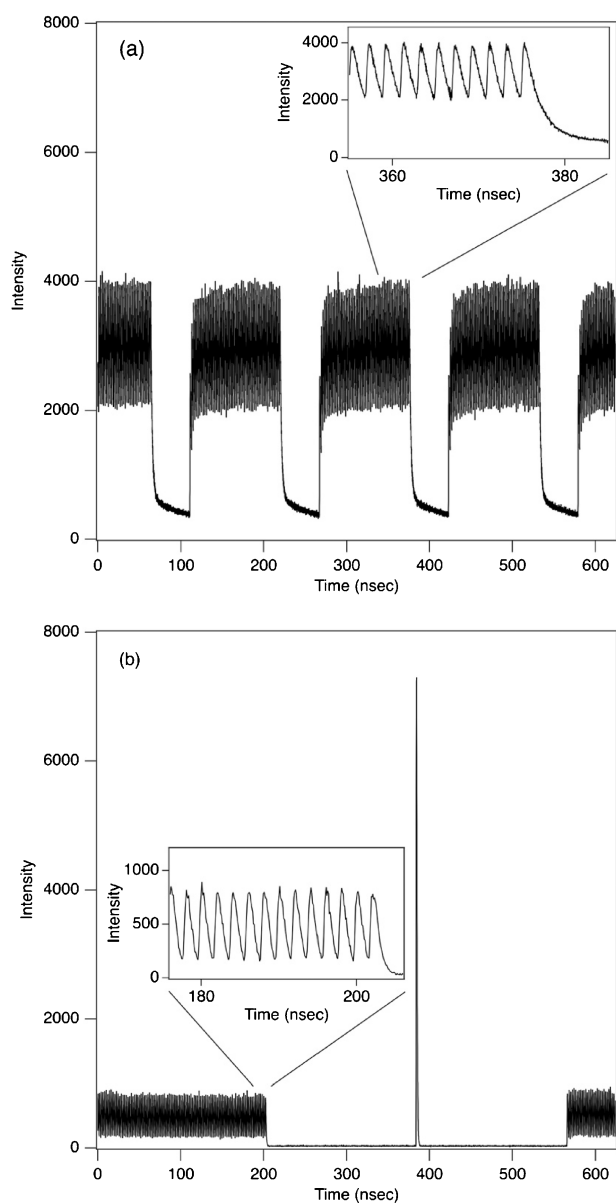
ング中の電子バンチの周期性を考えることで、励起原子が生成してから蛍光を放出するまでの時間を得ることが出来るのである。

標的原子・分子を励起状態とするエネルギーの放射光を、ガスセル中の標的气体試料に照射し、時間分解スペクトルを測定すること、さらに、得られた時間分解スペクトルを解析することで、励起原子の寿命を求めるまでが実習の基本的な内容である。蛍光寿命を測定する標的としては He や Xe などの貴ガスや水素分子を用いる。多くの原子・分子の励起・イオン化のエネルギーは VUV 領域にあり、さらに、ほとんどの原子・分子の光励起や光イオン化に対応する光学的振動子強度分布もこの領域で最大となる<sup>3)</sup>。このため、VUV 領域の放射光を、多くの励起状態間のエネルギー間隔よりも狭い高分解能光を供給できる BL20A では、種々の原子・分子の励起状態を選択的に生成することが出来るため、実習の自由度も広い。なお、最近では、実習における測定の基本的な手順は決まっているものの、測定の進め方や測定条件などは実習参加者がディスカッションしながら進める形をとり、まさに研究さながらに、実習を進めている。

実際に実習で得られた時間分解スペクトルを **Fig. 2** に示す。**Fig. 2(a)** は、標的を水素分子とし、PF リングが Multi-Bunch (MB) モードで運転されていた時の結果であり、**Fig. 2(b)** は、He 標的を PF リングの Hybrid (HB) モード

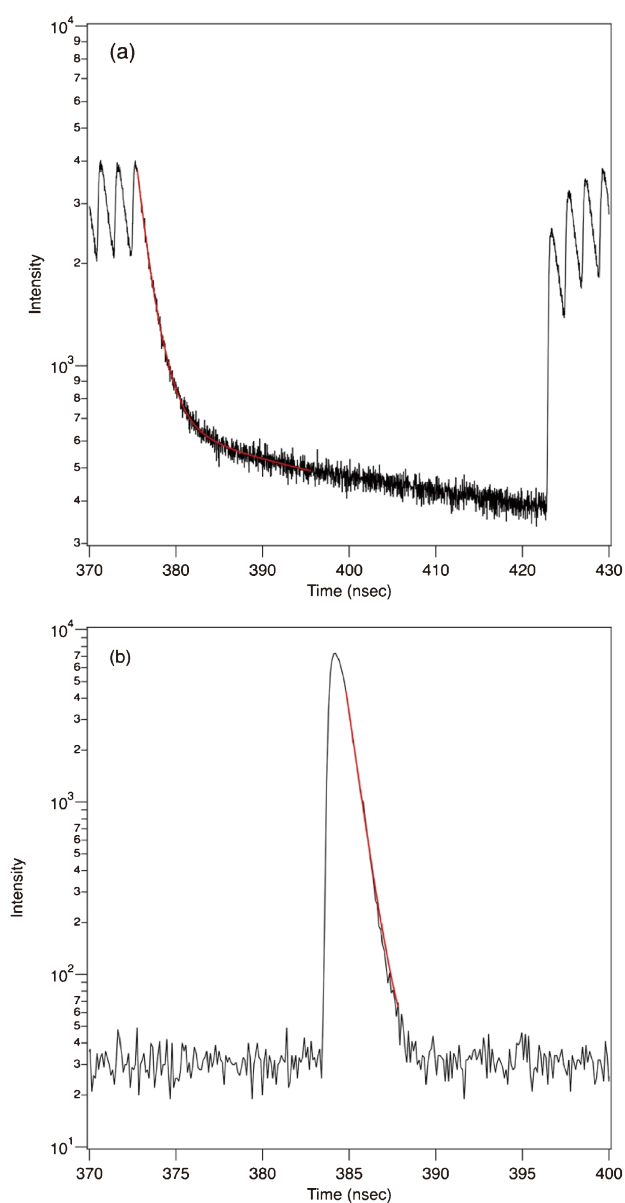
運転時に測定したものである。**Fig. 2** を見れば、放射光の時間構造 (フィルパターン) を目の当たりにすることができ、さらに電子の入っていないバケットの存在も明らかである。また、HB モードの特徴も一目瞭然である。実習時に PF リングの運転モードがどちらであるかは実習期間によるため、学生によって MB モードでの実習となったり HB モードでの実習になったりするが、いずれの場合でも、放射光の時間構造を強く意識させられることには変わりはない。

ここで示した様な時間分解スペクトルが測定できれば、実習の第一日目は終了となる。二日目はデータ解析で、得られた時間分解スペクトルに理論式をフィットして、測定した励起原子の寿命を求める。MB モードで得られるデータは、**Fig. 2(a)** に示す様に指数関数減衰するピークがいくつも重なったものとなるが、蓄積リング中にいくつか設けられているダークギャップを用いることで、解析に必要なピーク波形を得ることが出来る。例えば、**Fig. 3(a)** に示す様に、ダークギャップ近傍では H(2p) 原子の減衰による速い成分と、他の過程に由来する遅い成分の 2 つの指数関数減衰が観測され<sup>4)</sup>、比較的簡単にフィッティングを行うことができる。一方、実習期間に PF リングが HB モードで運転されている場合には、HB モード中の Single-Bunch (SB) に由来するピークが綺麗に現れるため、このピークの解析を行えばよい。実習に参加する学生は、広い



**Fig. 2** Typical time spectra obtained in the present labo. course. Fig. 2(a) shows the time spectrum of Lyman- $\alpha$  fluorescence photon from the photodissociation of  $H_2$  taken with the multi-bunch (MB) operation of the PF-ring. As can be seen in the blow-up of the spectrum shown in the inset, present time spectrum represents the time structure of the synchrotron radiation from the PF-ring very clearly. Fig. 2(b) shows the time spectrum for He with the Hybrid (HB) operation of PF-ring. The time spectrum shows an intense peak of fluorescence from the He  $2^1P$  state produced by the photoexcitation with the SR pulse of single-bunch component at around 380 nsec. Peak train of fluorescence from the He  $2^1P$  state due to MB components, filled for about the half of PF-ring, also show up.

分野から集まってくるため、この様なデータ解析に慣れていない学生もいれば、ほとんど初めての学生もいる。しかし、参加者同士でディスカッションしながら解析を進めて行くと、次第にそれぞれが納得する結果を得ることができ



**Fig. 3** (Color online) Examples of the analysis of the decay curve of the H ( $2p$ ) atom (a), and He ( $2^1P$ ) (b). The red curve shows the results of the fittings. In case of the analysis of the spectra obtained under the MB mode (Fig. 3a), dark-gap of the PF-ring gives the chance of precise fitting.

る様になる。

貴ガス原子の励起状態の寿命測定は、学生には分かりやすい過程であるが、励起原子からの蛍光を周囲の基底状態原子が吸収して励起原子を生成する Radiation trapping 効果などの影響で、正確な寿命を得ることが難しい<sup>5)</sup>。一方で、水素分子の光解離過程、中でも  $H(2p)$  原子を解離生成する過程を対象とすると、水素原子の Lyman- $\alpha$  蛍光が観測され、1.6 ns である  $H(2p)$  原子の寿命を比較的正しく得ることが出来る。

実習の二日目はデータ解析と並行して、加速器施設の見学も行なっている。この施設見学は人気が高く、かつ印象



に残るメニューとなっている。PFの運転室の見学と共に、ストリークカメラによる蓄積リング内の電子バンチの測定の見学も行う。この見学は、放射光実習に参加しないと体験できないものである。また、これまでに、Compact ERLや低速陽電子施設など、KEK内のPF以外の加速器の見学をさせて頂く機会もあった。化学系の学生にとっては極めて稀な体験であり、毎回大きなインパクトを受けている様である。

加速器の見学とともに、PF内のいくつかのビームラインの見学もさせて頂いている。特に、最新の結晶構造解析ビームラインや、近年飛躍的にロボット化が進んだタンパクの構造解析ビームラインなどは、化学系の学生には興味を引かれるところであり、見学の際には対応して頂いているビームライン担当者に多くの質問をしている様子が目につく。これらの見学では、例年、放射光科学研究施設の兵藤一行先生と各ビームラインの担当者に丁寧に対応して頂いており、大変感謝している。

二日目の夕方に解散して、一泊二日の実習は終りである。

## 5. 実習参加者の感想

上で述べた実習を一年あたり、少ない年で2回、多い年では6回行った。例えば、2017年度は、29名の学生が履修登録し、6回に分けて実習を行った。これは化学系の修士課程一年生の半数に近い学生数であり、学生の関心の高さが伺われる。また、系の広報パンフレットの在学生の声の中で、印象に残った科目として本実習を紹介してくれた学生もある。

実習に参加した学生には、1ヶ月を目処にレポートを提出することになっており、実習での解析結果をまとめた

り、新規な放射光の利用法についてアイデアを出して貰ったりしている。また、実習についてのコメントも書いてもらい、次年度以降の参考にもしている。

参加学生の半数は、初めて放射光施設で実験を体験するのであるが、彼らの第一の感想は、放射光施設、そしてビームラインなどの装置の大きさやそのダイナミックさへの驚きである。装置が置いてある部屋がいくつもある建物を想像していたが、体育館の様な場所にいくつも装置があって壮観だったとの感想も出ている。我々は慣れてしまっているが、確かに大きな実験装置である。彼らの普段の実験とは装置も規模も全く違うもので行う実習に、最初は戸惑いながらも楽しみながら初めての放射光実験の体験を仲間と共に進めている様子が分かり、実際に放射光施設に来所することは、重要なのだと、改めて気づかされている。

また、加速器施設の見学は、研究室の研究で放射光施設の利用経験がある学生も含めて、どの学生にもインパクトを与えており、普段見ることの出来ないPFのコントロールルームやストリークカメラによる電子バンチの測定についての感想が多くのレポートに記されている。

放射光ビームライン見学についても、最先端の実験の説明を聞けることへのポジティブな感想が多い。先に述べた様に、構造生物学系ビームラインでの試料交換ロボットやリモート測定の見学は多くの学生に強い印象を与えており、特に有機化学系の学生はタンパクの結晶化に苦勞しているだけに、これらのビームラインについての感想が多くレポートに書かれている。

## 6. 放射光科学実習を実施するにあたって

Fig. 4に年度別の参加学生数を示す。これまでに137名

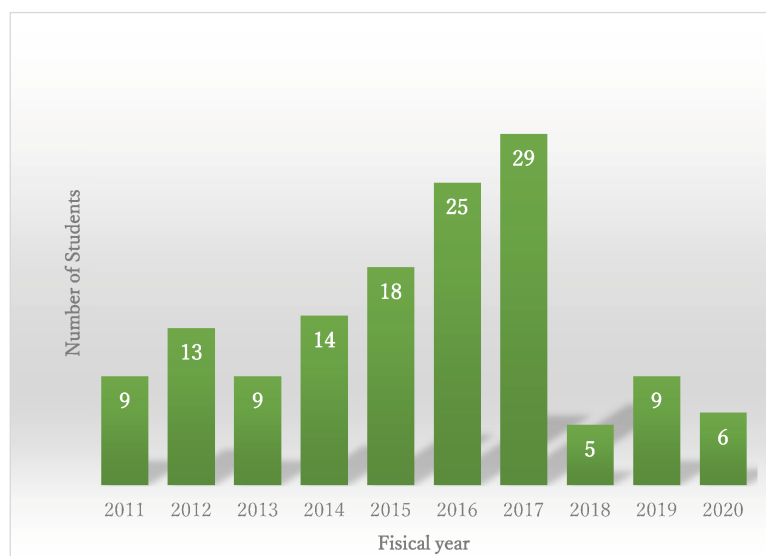


Fig. 4 (Color online) The number of students attended “Houshyakou-kagaku-jisshuu” the Laboratory Training of Synchrotron Radiation Science. Up to 137 students have attended the course.

の学生が参加した。学生から見ると、この実習に参加するには、東京工業大学において放射線作業従事者として登録されるために、教育訓練や特殊検診の受診など、他の授業と比べて高いハードルがある。にもかかわらず、2011年度から2017年度にかけて実習参加者は大幅に増加しており、この実習に対する学生の強い興味が見て取れる。しかし、2018年度に参加者が大幅に減少してしまった。これは、東工大が学事暦をクォーター制に変更したことと、この年にPFの秋期の運転時間が大きく短縮され、学生が参加可能な実習日程がほとんど無かったことが要因として考えられる。参加学生の放射線作業従事者登録に要する教育訓練や特殊検診のスケジュールがタイトであること、11月末に期末試験期間があることのために、PFの運転時間が1~2週間程度短くなることで、現実的に実習可能な期間が僅か数日程度と極めて限定されてしまうのである。2019年度は、PFの運転時間が回復したため、実習可能期間に若干の余裕が出来、参加者も2018年度の倍程度と増加傾向となったものの、2020年度はコロナ禍により少数の学生で実習を行わざるを得なかった。2020年度は一方で、これまでKEKに来所して受講していた講義をオンラインで試行したりすることで、実習のスケジュールに余裕を持たせる方向性を探ることが出来たのは収穫であった。

ここ数年間の参加学生数の減少は種々の原因があるが、実習のスケジュールが極めて限定されてしまったことが大きい。特に、参加学生の大半は初めて放射光施設で実験するため、大学院に入学してから実習を行う前までに放射線作業従事者登録に要する新規の教育訓練や特殊検診を受ける必要があるが、最近の学生は授業日程が厳しいために、放射線作業従事者登録のためのスケジュールを合わせることに難しい学生も少なからず居る様である。また、実習のためのビームタイム確保と希望学生の日程調整も例年、苦勞しているところである。(これらのことは、実習に限らず、放射光施設で新規のユーザー獲得のハードルの高さにも通じているのでは無いかと思われる。)

## 7. 終わりに

2011年度に東工大化学系で始めた、高エネルギー加速器研究機構・放射光科学研究施設(KEK-PF)に来所して行う、大学院生向けの実習「放射光科学実習」は、これまで10年に渡って継続することが出来た。本実習は、光源加速器の存在を意識できる放射光ユーザーの育成を目標としながら、研究室で放射光を利用している学生から、全く初めて放射光に触れる学生まで、化学系の広い分野の学生が参加し、大変好評を得てきた。レポートの感想からは、実際に放射光施設に来所し、大きな施設で放射光実験を体感することの重要性を改めて気づかされる。本実習に参加した学生は、放射光施設での実験を身近に感じる様になり、未来の放射光科学を担う若手として活躍してもらおうと幸いである。

### 謝辞

本実習を遂行するにあたり、加速器研究施設の高井良太先生に多大なご支援を頂き、加速器科学概論の講義だけでなく、PFのコントロールルームやストリークカメラの視学をさせてもらっている。また、学生に人気の高い施設見学に当たり、放射光科学研究施設の兵藤一行先生に労を取って頂き、さらに、多くの方々に説明をお願いしている。ここに記して、深く感謝申し上げたい。

また、本事業は、KEK大学等連携支援事業に採択され、財政的支援を受けてきた。感謝申し上げたい。

### 参考文献

- 1) R. P. Madden and K. Codling: Phys. Rev. Lett. **10**, 516 (1963).
- 2) K. Ito, Y. Morioka, M. Ukai, N. Kouchi, Y. Hatano and T. Hayaishi: Rev. Sci. Instrum. **66**, 2119 (1995).
- 3) 例えば 市村禎二郎, 籾野嘉彦, 井口洋夫 編: 日本分光学会 測定法シリーズ 24, シンクロトロン放射光—化学への基礎的応用—(学会出版センター, 1991).
- 4) N. Terazawa, M. Ukai, N. Kouchi, K. Kameta, Y. Hatano and K. Tanaka: J. Chem. Phys. **99**, 1637 (1993).
- 5) 例えば E. Matthias, R. A. Rosenberg, B. D. Poliakoff, M. G. White, S.-T. Lee and D. A. Shirley: Chem. Phys. Lett. **52**, 239 (1977).

## 著者紹介

**北島昌史**

東京工業大学 理学院 准教授

E-mail: mkitajim@chem.titech.ac.jp

専門：原子分子科学

## 【略歴】

1996年 東京工業大学大学院理工学研究科博士課程修了，博士（理学）。理化学研究所基礎科学特別研究員，上智大学理工学部助手を経て2005年1月より現職。

**河内宣之**

東京工業大学 理学院 名誉教授

E-mail: nkouchi@chem.titech.ac.jp

## 【略歴】

1981年 東京工業大学理工学研究科化学専攻 博士課程修了，理学博士。2019年3月末まで東京工業大学理学院化学系教授。

**穂坂綱一**

東京工業大学 理学院 助教（2021年4月より 高崎量子応用研究所 主幹研究員）

E-mail: hosaka.koichi@qst.go.jp

専門：原子分子物理，量子エレクトロニクス

## 【略歴】

2005年 東京大学大学院理学系研究科博士後期課程修了，博士（理学）。分子科学研究所博士研究員，日本原子力研究開発機構博士研究員を経て，2010年より東京工業大学理学院助教。

**足立純一**

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光実験施設 研究機関講師

E-mail: jun-ichi.adachi@kek.jp

専門：原子分子科学，真空紫外・軟X線分光

## 【略歴】

1994年 総合研究大学院大学放射光科学専攻博士課程中退。岡崎国立共同研究機構分子科学研究所技術課を経て，1999年より高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所。

## “Housyakou-kagaku-jisshuu”, the Laboratory Training of Synchrotron Radiation Science at KEK-PF BL20A for graduate course students of Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology

**Masashi KITAJIMA** Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Meguro-ku Tokyo 152-8551, Japan**Kouichi HOSAKA** Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Meguro-ku Tokyo 152-8551, Japan  
Present Address : Takasaki Advanced Radiation Research Institute, QST, 1233 Watanukimachi, Takasaki-shi, Gunma 370-1292 Japan**Noriyuki KOUCHI** Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Meguro-ku Tokyo 152-8551, Japan**Jun-ichi ADACHI** Photon Factory, Institute of Materials Structure Science, KEK, 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan**Abstract** “Housyakou-kagaku-jisshuu”, a laboratory course for training of synchrotron radiation science at KEK-PF BL20A for graduate course students of Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology is presented. The course has been organized since 2011 and opened every year. Students of wide area of subjects in chemistry including beginners of using the synchrotron radiation facility have been attended to the course.