

## 入射器の現状

加速器第五研究系研究主幹 惠郷博文  
(2024年4月14日付け)

### 運転状況

入射器は2023年12月28日に2023年度第2期の運転を終了し、2024年1月14日まで冬期メンテナンスを行なった。1月15日に第3期入射器立ち上げを行い、運転再開される SuperKEKB メインリングを含めた4リング同時トップアップ入射に必要な50 Hz 運転に切り替えた。50 Hz 運転でのサイクロン レンジング (クライストロン電源内大電流スイッチの調整)、高周波パルス圧縮器の運転周波数・パルス幅調整を行なって大電力高周波出力の最適化をした後、1月28日までビーム加速とエミッタンスの調整を行なった。1月29日より SuperKEKB へ、PF リングは2月5日よりビーム入射を開始した。3月5日からは PF リングの運転がハイブリッドモードに変更され、入射条件を切り替えた。PF-AR は2月13日より5 GeV にてビーム入射を開始、2月28日より6.5 GeV 入射に切り替えて運転を行った。3月18日に PF-AR、3月25日に PF リングへのビーム入射運転を終了、SuperKEKB はビーム入射を継続して、2024年度第1期運転に移行している。PF リングは4月22日、PF-AR は5月9日よりビーム入射を再開する。インターロックダウンによる運転停止頻度はリングへの入射を始めた2月初旬、約300回/週あったが、その後、加速管運転電圧の調整やコンディショニング効果で高周波系の反射異常が改善され、現在では60回/週程度まで減少している。

### ビーム研究の進展

#### ・電子ビーム

PF リングへ入射している電子ビームの軌道と電荷量を図に示す。電子ビームは熱電子銃で生成され、入射器内で2.5 GeV まで加速される。入射器出口電荷量は安定的に0.4 nC を供給する。PF リングのビームトランスポート (PF-BT) で電荷量変動が生じる場合、ビーム加速位相やエネルギーノブの調整を実施するが、PF-BT ラインの機器状態によって電荷量が減少している場合もある。ビーム安定化において光源リング側と協調を進めるため、昨年より、加速器第六研究系の下崎氏を中心として、PF リング、PF-AR、入射器の運転関係者で情報共有を定期的に行なっている。これにより光源リングへのビーム入射に関する問題点を深いレベルで共有できるようになった。今後は、入射効率改善および安定化に向けた種々の共同ビームスタディを進める予定である。

SuperKEKB 電子リング用 RF 電子銃のカソード材質として  $\text{Ir}_7\text{Ce}_2$  を使用している。このカソードは長寿命で量子効率が高く、レーザー片側ラインで4 nC 以上の電荷量を発生することができる。冬期メンテナンスにおいて、レーザースポット径を口径8 mm にする光学素子 (DOE: アルゴンガス封入) を導入した。これにより、レーザースポットがカソード全域をカバーするため、カソード出力電子の空間電荷効果を抑えることができ、今後のビームスタディ

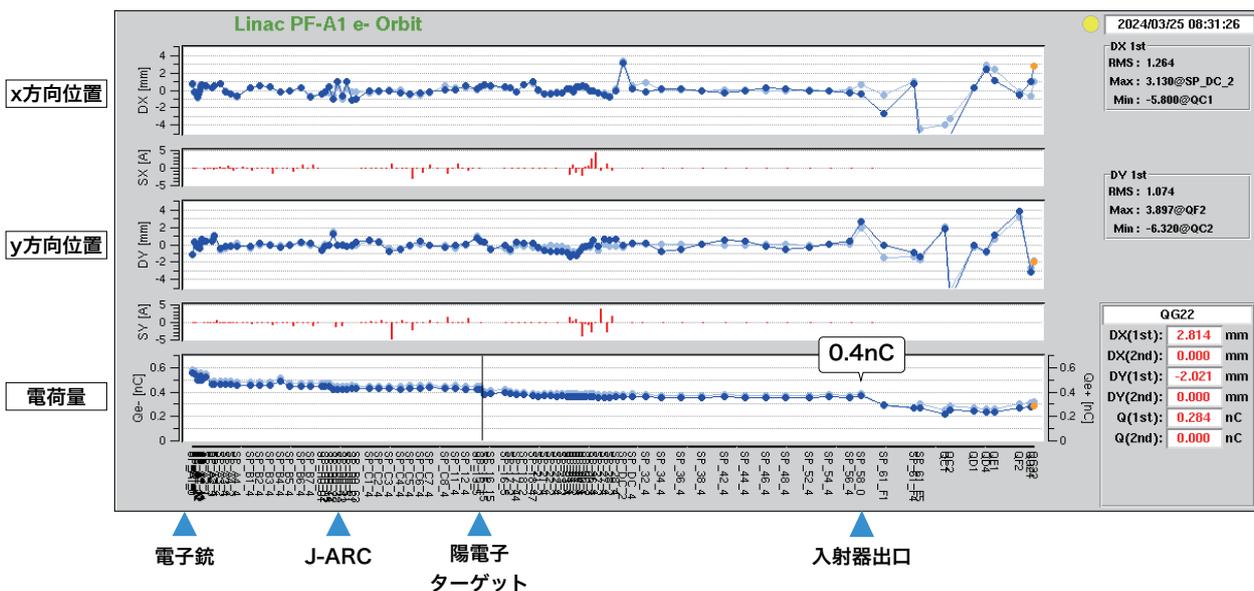


図 PF リング入射電子ビームの入射器内軌道と電荷量

を経て大電荷出力時のエミッタンス向上を目指す。試験では1stレーザー、2ndレーザー、それぞれ片打ちで、6 nC、3.5 nCの出力を確認した。1st側レーザー導入窓の劣化は小さく、照射方向を変えても出力電荷量の変化はなかった。しかしながら、2nd側の窓は劣化しているため、生成量は1st側に比べて少なく、照射方向によっても出力電荷量が増える。ただし、現状必要な出力電荷量は2 nCであるため、電荷量に関して運転の問題はない。一方、レーザーは斜め方向からカソード全面に照射されるため、電子放出時間差が生じてバンチ長が若干伸びる。電子銃下流に設置したシケインでのスリットにてビームテールを一部取り除いて、ビーム形状を整形した状態でビーム加速を行なっている。

前期後半よりRF電子銃内で放電が発生するようになり、3-4時間に1回程度の頻度で運転が数分中断している。ビーム運転継続によるコンディショニング効果により、停止頻度は減少傾向にあるが、抜本的対策としては、電子銃加速空洞の内部構造を改善したものに交換する必要がある。この放電の原因となっているチョーク構造を取り除いた電子銃空洞を製作中で今夏のメンテナンス期間に入れ替えを行なう。

入射器立ち上げ当初、入射器からSuperKEKB-HERへのビームトランスポート部(BT)での電子ビームのエミッタンスは60  $\mu\text{m}$ 程度で、垂直方向にテールを引いたビーム形状をしていた。BTに設置されている放射光モニタ(SRM)のビームスポットを確認しながら、ステアリング電磁石やビーム加速位相の調整を進めることによって30  $\mu\text{m}$ 程度まで改善されている。しかしながら、BTの途中よりエミッタンスが大きく悪化しており、リングへの入射効率に影響を及ぼしている。2024年度第1期運転の停止前に行なう入射器単独運転スタディにて、この原因を調査する。

2バンチ運転において第1バンチ、第2バンチの短期的な電荷量変動に差はないが、第1バンチにおいて長期的な電荷量変動を生じさせていた。2023年第2期に行なったパルススタッキング試験運転で第1バンチの電荷量をポッケルセルのタイミングで調整していたが、そのジッターが今期の運転に影響しており、そのタイミングの再調整にて電荷変動量を減少させることができた。現在、バンチ電荷量はレーザー出力を調整するフィードバックにて2 nCに維持させている。

エミッタンス改善のため、3-5セクターにかけてビーム軌道フィードバックを適用している。SRM測定結果からビーム軌道にオフセットを設けて加速管ウェイク場の影響を低減させ、エミッタンス悪化を抑えるものである。原理的には2箇所SRM信号があれば(現在は1箇所)、安定に非破壊でフィードバック制御ができる。今後、SRMの増設を検討していく。

#### ・陽電子ビーム

陽電子生成とビーム転送に係る高周波加速位相、

100台以上のステアリング電磁石、四極電磁石に対して機械学習を用いた自動調整を行なっている。前回報告したように、2バンチ同時に5 nCを超えるビーム生成に成功している。入射器で生成された陽電子ビームは、第2セクターから分離されてダンピングリングに入射され、ダンピングリング内での放射減衰によりエミッタンスは水平76  $\mu\text{m}$ 、垂直0.3  $\mu\text{m}$ 程度まで向上する。しかしながら、ダンピングリングから出射され、入射器に戻された陽電子は第3セクター以降からSuperKEKB-LERリングへのビームトランスポート部にかけて、エミッタンスが水平150  $\mu\text{m}$ 、垂直30  $\mu\text{m}$ 程度まで大きく悪化する。

エミッタンス増大の原因究明スタディを行なった結果、BT第三アークにある偏向電磁石の多極成分がエミッタンス悪化を引き起こしていることがわかった。この電磁石の磁場測定値を入れたシミュレーションの結果、エミッタンス悪化の状態を再現した。今後、この偏向電磁石の多極成分対策が必要である。水平方向エミッタンスはダンピングリングから入射器までのビームトランスポート(RTL)を経て入射器出口まで加速させる過程でも悪化しており、この原因の調査も今後行なっていく。

光源リングの運転状況

図1に2023年度第3期(2月5日9:00～3月25日9:00まで)のPFリングの蓄積電流値およびビーム寿命の推移を示す。2月7日20:46頃、Linacにあるパルスベンドの設定が出来なくなるトラブルが発生した。入射器の制御ネットワーク異常が引き金になった可能性が高い。2月15日3:56入射用キッカー電源(K4)がOilFlowインターロックで停止した。リセットして復旧できたため4:23に入射を再開した。原因不明である。その後も再発はしていないが注視している。施設部エネルギーセンター管理のリン

グ圧空の補給頻度が上がっているため、経路のどこかで漏れている可能性が高い。PF運転停止後にリング内およびLinacメンテ時に調査したが原因となる場所が発見できていないため、今後も調査を続ける。3月18日9:17頃、火災報知器が発報したが非火災であることが確認できた。

図2に、PF-ARにおける2月13日9:00～3月18日9:00までの蓄積電流値の推移を示す。2月24日の深夜3:05、6極マグネット電源の通信不良によりビームダンプ。最終的にはインターフェースのリセットで復旧した。その後電磁石の初期化をおこなって入射したが、その直後にビ

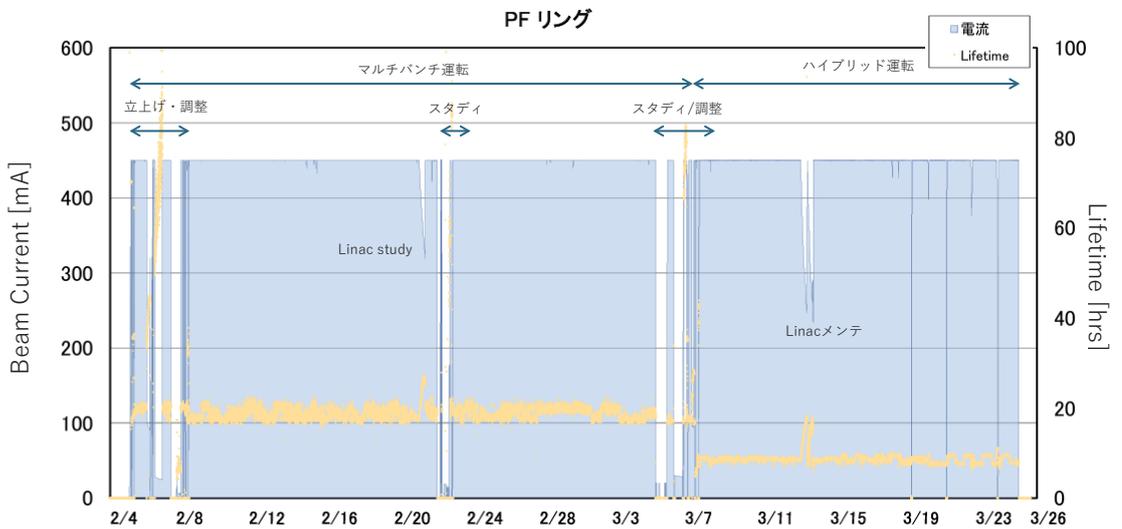


図1 PFリング2月5日9:00～3月25日9:00までの蓄積電流値の推移(グラフ横軸は2月4日～3月26日としている)。

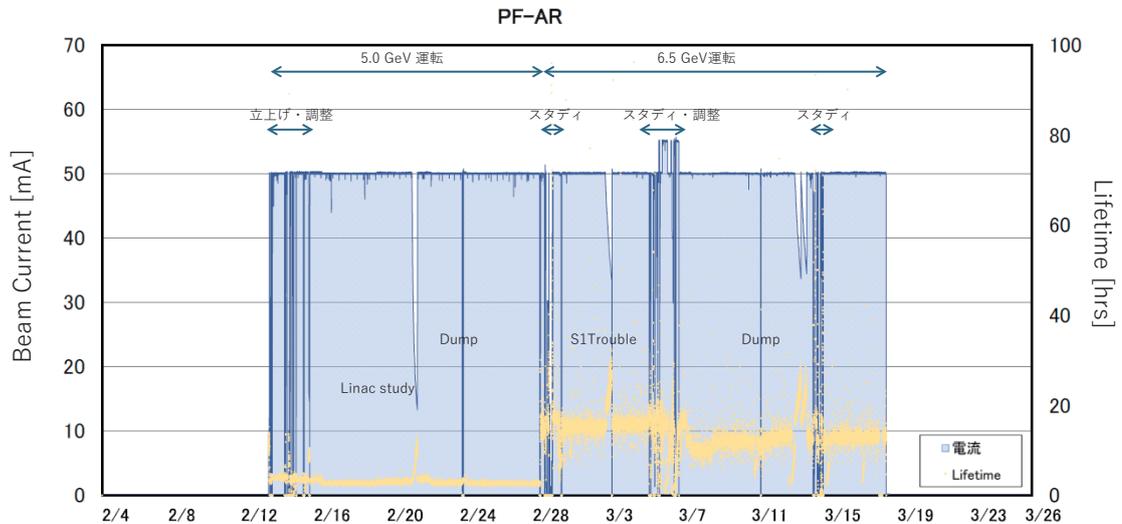


図2 PF-AR 2月13日9:00～3月18日9:00までの蓄積電流値の推移(グラフ横軸はPFリングのプロットに合わせて2月4日～3月26日としている)。

ームライン側の Channel Ready インターロックのためビームダンプした。ビームライン NW14 を一時閉鎖扱いとして再入射をおこない、ユーザーランに復帰した。3月2日および3月11日の2回にわたって、セプタム電磁石の冷却水量インターロックのため入射を停止した。リング内に入域して流量調整をおこなって復帰している。

### 2023 年度の運転まとめ

表 1 に 2021 年度から 2023 年度まで 3 年間の PF リングの運転統計を示す。図 3 は過去 15 年間のグラフである (2009 年～2020 年度の統計数値は昨年度の PF News に記載している)。近年では PF 3,600 時間、PF-AR 2,400 時間のユーザー運転時間を目標としてきたが、2023 年度は前年度から延期していた線形加速器の加速管更新作業時間を確保するため、夏期停止期間を例年より長くとりこととなった。そのため例年より短い PF 約 3,100 時間、PF-AR 約 2,100 時間程度という実績になっている。

表 1 2021~2023 年度までの 3 年間の PF リングの運転統計

年度	リング 運転時間 (h)	リング 調整・ スタディ 時間 (h)	ユーザ 運転 時間 (h)	故障 時間 (h)	平均故障 間隔 (MTBF) (h)
2021 (R03)	4,368.0	624.0	3,720.8	23.2	220.2
2022 (R04)	4,128.0	512.0	3,590.2	25.8	144.6
2023 (R05)	3,648.0	536.8	3,096.0	15.2	172.0

故障時間は前年度よりさらに少ない約 15.2 時間、故障率は約 0.5%、平均故障間隔 (MTBF) は約 172.0 時間で、いずれも良好な値を維持できている。故障の内訳を調べてみると 2023 年度は入射システム関連が約 35.9%、制御モニター系が 33.2% となりこの 2 つが大部分を占めている。これは第 1 期にキッカー電源故障が起きたことが主要因であり、モニター関係も同様に老朽化が進んでいることが要因であった。RF 関連による故障率は 4.2% と前年度と同様に非常に低く、RF システムはほとんどトラブルなく安定に稼働したことが分かった。今後も各グループとも老朽化対策を推進していく。このとき、単なる故障品の交換ではなく、性能・機能向上をともなった更新を心がけていく。

表 2 に PF-AR の過去 3 年間の運転統計数値を、図 4 に過去 15 年間の運転統計をグラフにしたものを示す。2023 年度のユーザー運転時間は 2,154 時間となり、PF リングと同様の理由で例年に比べると少ない状況であった。故障

表 2 2021~2023 年度までの 3 年間の PF-AR の運転統計

年度	リング 運転時間 (h)	リング 調整・ スタディ 時間 (h)	ユーザ 運転 時間 (h)	故障 時間 (h)	平均故障 間隔 (MTBF) (h)
2021 (R03)	2,976.0	560.0	2,404.7	11.3	241.6
2022 (R04)	3,000.0	560.0	2,418.3	21.7	143.5
2023 (R05)	2,760.0	576.0	2,154.0	30.3	136.5

PF リング運転統計

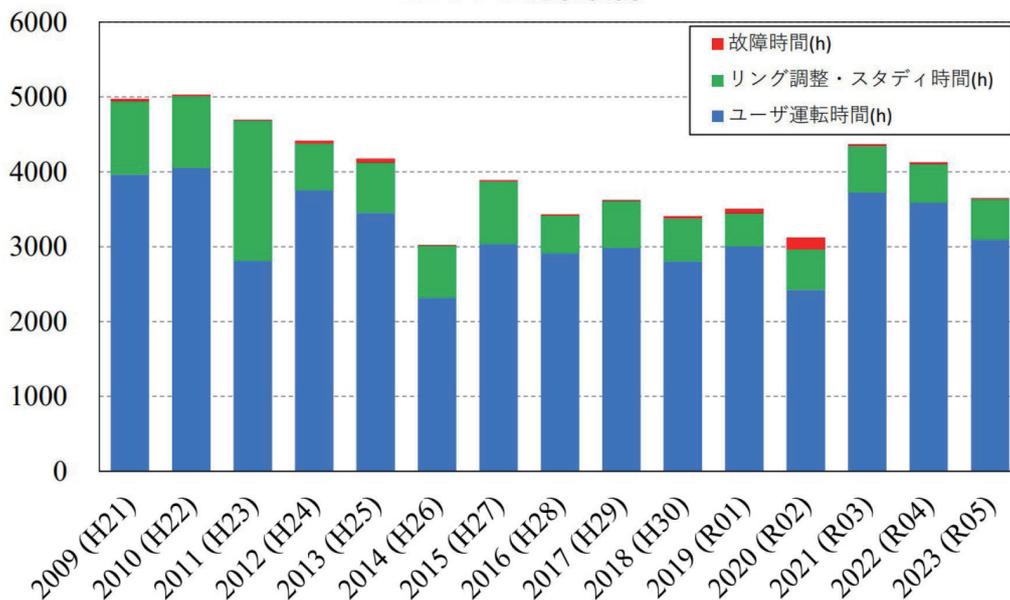


図 3 PF リング過去 15 年間分の運転統計

## PF-AR運転統計

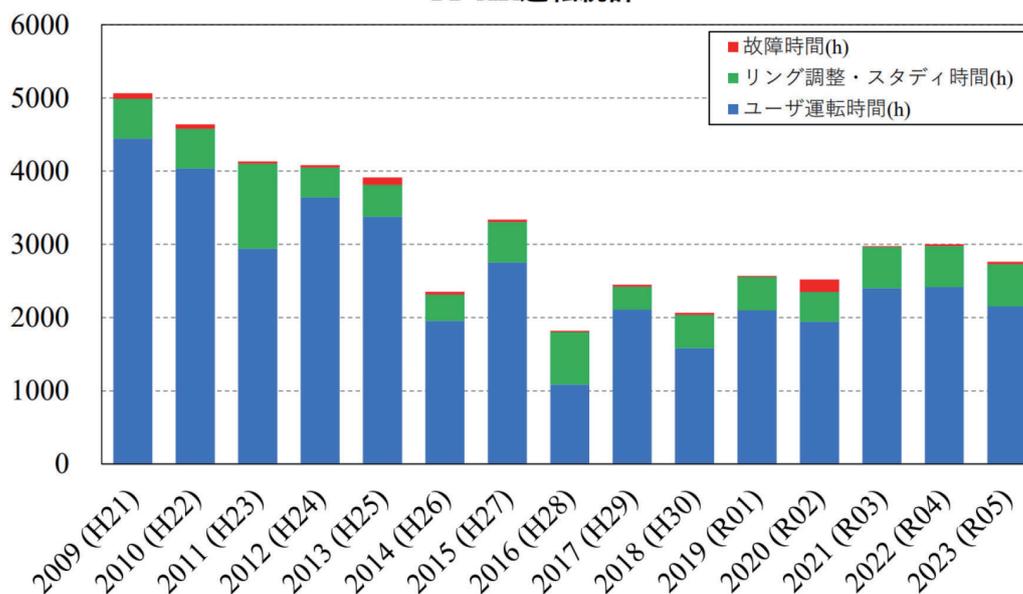


図4 PF-AR 過去 15 年間分の運転統計

時間は約 30.3 時間、故障率も 1.4% で昨年度にくらべると少し悪化している。これは蓄積電流増加に向けた入射調整に時間がかかったほか、セプタム電磁石の冷却水トラブルやビームライン関係のトラブル、バンチ純化システムのトラブルも発生したことに起因している。MTBF は約 136 時間で故障回数は例年度と同じ程度であった。故障の内訳は約 62.5% がビーム入射関連であった。

### 加速器第 6 研究系内の人の動きについて

2024 年 3 月 31 日をもって坂中章悟さんが定年退職となりました。坂中さんは RF グループの一員として各種の研究開発から現場での作業に至るまで幅広く活躍されてこられました。また、グループリーダーとして長年にわたって後進の指導にもあたり、KEK の RF 関係者を数多く育成されてこられました。これまでの貢献に深く感謝するとともに今後も特別教授として引き続き御指導・ご鞭撻いただきます。

新人採用については、2023 年 11 月に篠原智史さんが助教として採用されました。光源第 6 グループに所属してパルス電源開発や多極キッカー電磁石開発などで活躍いただくほか、これまでと同様に多くのビーム実験に参加・尽力いただく予定です。2023 年 12 月 1 日付けで博士研究員として BIAN Baoyuan さんが中国・合肥から光源系に着任されました。真空グループに所属して関連する研究開発をおこなうほか、次期光源のインピーダンス評価などの研究も進めていただく予定です。

昇任については、2023 年 11 月 1 日付けで宮内洋司さんが教授に昇任されました。これまで同様に既存光源の安全系をはじめとする保守・維持・管理はもちろん、ビームチャ

ネルグループのグループリーダーとしての活躍を期待します。あわせて次期光源の安全系（機器安全および放射線安全等）に関連する幅広い分野で中心的な役割を担っていただきます。技術職員については、4 月から濁川和幸さんが技術調整役となり、KEK の技術職員全体を主導する重責を担うことになりました。長橋進也さんには加速器六系の技術副主幹を務めていただきます。塩澤真未さんは技術員から准技師に昇任されました。これまで同様に関連する装置の保守・管理・維持、ならびに技術開発を担当していただきます。

最後に、坂中さんの退職にともなって今年度から RF グループリーダーは山本尚人さんに努めていただきます。運転に直結する維持管理はもちろん、次期光源の研究開発にもこれまで同様に尽力いただく予定です。

## 放射光実験施設の現状

放射光実験施設長 五十嵐教之  
(2024年5月17日付け)

これまでの放射光実験施設の現状で何度か報告していますが、開発研究多機能ビームライン (BL-11) および広波長軟X線ビームライン (BL-12A) の建設状況について報告します。

### 開発研究多機能ビームライン BL-11 の建設 (プロジェクト責任者：若林大佑)

加速器やビームラインの高度化、次期光源計画を見据えた長期的な基盤技術の開発を行うため、PF リングの BL-11 サイトにて開発研究多機能 (R&D) ビームラインの建設を進めています。2023 年度はビームラインの設計、コンポーネントの発注、建設に向けた環境整備、及び基幹部の建設作業を進めてきましたが、2024 年春からいよいよビームライン部の建設作業がスタートしました。2023 年度第 3 期の運転終了直後から測量を開始し、メインハッチやテストチェンバー等のメイン部の機器の設置・調整や配管・配線を進め、続いてインターロック回路敷設、ベキニング作業、放射線遮蔽作業を行いました。2024 年度第 1 期の運転開始までに各種検査を完了し、運転開始時のスタンバイ時間に光導入試験を実施、メインハッチ部までの焼出し作業が順調に進められています。運転停止期間が短い中、建設チームはもちろん、その他のスタッフや業務委託メンバーが一丸となって協力することで、ほぼ予定通りに進めることができている。R&D ビームラインでは、完成すればビーム条件の異なる 5 つの実験スペースを確保できる予定ですが、今回の建設作業で、メインハッチ内の Be 窓なし非集光白色ビームを利用できる R&D 実験スペースが完成しました。2024 年度第 1 期の運転では、この R&D 実験スペースで、低炭素ミラーチャンバ R&D や第一ミラー光電子遮蔽 R&D を進める計画で、その後、近接ビームの分離・白色モニタ R&D 等を実施する予定です。夏以降は、主に運転停止期間を利用して、硬 X 線と軟 X 線 (および白色) の 2 つのブランチの建設を進める計画です。2025 年度には完成させ、基幹部、光学系、光学素子、実験手法、実験装置など、様々な R&D を実施できるようになる予定です (建設スケジュールは各種の要因で変更になる可能性があります)。特に、硬 X 線ブランチの実験ハッチ内では、硬 X 線と軟 X 線の 2 つの光軸を同一試料位置に導き、次期光源計画の特長の一つでもある 2 ビーム同時利用の R&D を進める予定となっています。ビームラインの R&D 利用制度の検討も並行して進めており、ユーザーの皆様にも R&D に参加していただけるようになる予定ですので、ぜひ積極的な R&D 利用提案をお待ちしています。



図 1 (上) BL-11 メインハッチとインターロック制御ラック  
(下) BL-11 メインハッチ内に設置された R&D テストチェンバー

### 広波長域軟 X 線ビームライン BL-12A の建設 (プロジェクト責任者：大東琢治)

旧 BL-11A, 11B, 11D の機能を持つビームラインとして、BL-12A で広波長域軟 X 線ビームラインの建設を進めています。上流のミラーで低エネルギー用パス (S パス) と高エネルギー用パス (T パス) の 2 つの光路を切り替えることにより、同一試料位置で 50 ~ 5000 eV という広いエネルギー領域をカバーできるのが特徴で、次期光源計画で提案されている Energy Switchable 光源の利用 R&D を実施する予定となっています。S パスは不等間隔平面回折格子分光器、T パスは二結晶分光器をそれぞれ備え、S パスは 50 ~ 2000 eV、T パスは 1700 ~ 5000 eV の利用が可能です。S パスの建設作業は完了しており、2024 年度第 1 期の運転からビーム調整作業が開始されています。T パスについ

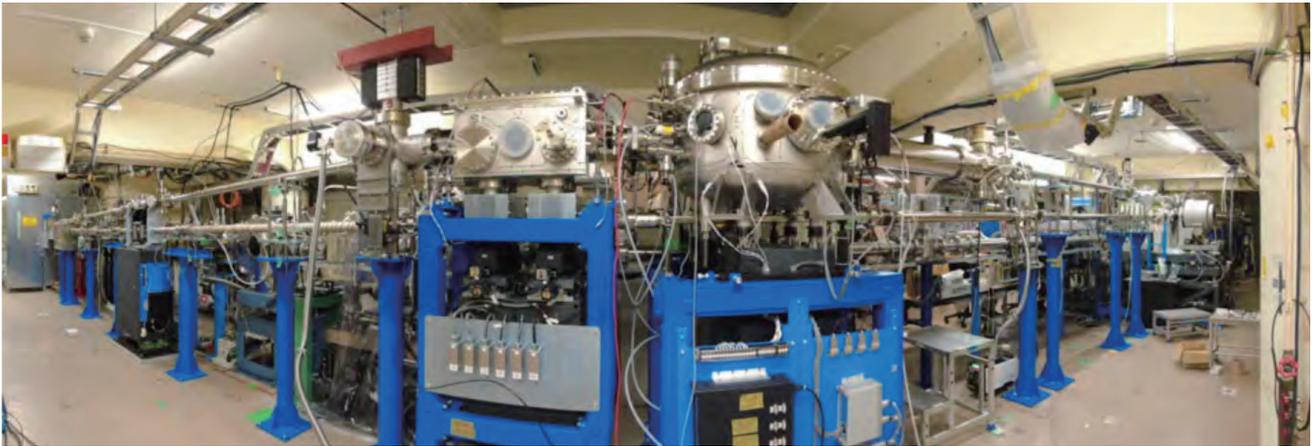


図2 広波長域軟X線ビームライン BL-12A

ては、Vol.41, No.4 で報告している通り、幾つかのコンポーネントに問題が見つかっており、2024 年夏の停止期間中に解決するべく作業を進めています。2024 年秋からは S パス、T パス両方を使った利用実験が可能になる予定ですので、こちらも広波長域軟X線の特徴を活かした利用提案をぜひお願いいたします。

#### 運転・共同利用関係

施設だよりも書きましたが、2024 年度は機構の支援を受けて年間の運転時間（PF3600 時間、PF-AR2400 時間）を確保できるようになりました。しかし、KEK 内の変電設備工事のため第3期の運転開始が遅れる可能性があることから、PF の第1期運転開始を昨年同様4月下旬から運転開始としました。PF は4月22日に、PF-AR は5月9日から運転を開始しています。PF-AR は6月21日まで、PF は7月8日まで運転を継続します。PF のハイブリッドモードは6月11日から開始で、運転終了まで継続となります。PF-AR は夏の熱負荷も考え、6.5 GeV で運転を開始して、6月5日以降を5 GeV で運転します。第2期の運転はこれから検討となりますが、10月上旬の運転開始を目指す予定です。

PF-PAC の全体会議が、3月29日に Web 会議方式で開催され、課題の進捗状況評価や重要課題の発掘等について審議されました。詳細については、本誌記事をご参照ください。この PF-PAC 全体会議は、3年任期の委員会の最終回でした。委員の皆様、本当にありがとうございました。次回の PF-PAC 全体会議は7月に開催を予定しており、課題審査がメインとなりますが、新たに3年任期の委員会となります。委員をお引き受けいただいた皆様、これから3年、どうぞよろしくをお願いいたします。PF-PAC 全体会議につきましても、今後できるだけ対面方式での開催を検討したいと思っています。皆さま大変お忙しいとは思いますが、ご協力のほど何卒よろしくお願い申し上げます。

#### 人事異動

最後に、放射光実験施設に関する人事異動を報告します。4月1日付で、平野馨一さんが准教授から教授に、宇佐美徳子さんが講師から特別教授に、内田佳伯さんが専門技師から前任技師に、松岡亜衣さんが准技師から技師に、片岡竜馬さんが技術員から准技師に昇任されました。皆様のより一層の活躍を期待しています。同日付で、大下宏美さんが物構研 CIQuS の博士研究員から運営部門の特別助教に着任しました。運営部門では安全を担当することになり、これまでの研究活動とは異なる業務にはなりますが、持ち前の明るさとまじめさで積極的に安全業務に取り組み始めています。また、同日付で、小菅隆さんが技術調整役を退任されました（後任は加速器第六研究系の濁川和幸前任技師）。技術職員をとりまとめる大変な役職でしたが、本当にお疲れ様でした。今後は PF 専任となるので、業務だけでなく後進の指導により一層力を注いでいただくことを期待しています。さらに同日付で、技師の金子直勝さんが中性子科学研究系所属から放射光実験施設所属に異動となりました。中性子での豊富な経験を活かして、業務や後進の指導に尽力していただくことを期待しています。最後に、3月31日付で、清水伸隆さんが理化学研究所放射光科学研究センターに異動されました。2011年に JASRI から PF に異動してきてから小角散乱ビームラインを中心に活発に活動し、2019年からは新生放射光実験施設の測定装置部門長を務めていました。PF での経験を活かして新天地でのさらなる活躍をお祈りするとともに、今後も各所でご協力をお願いできればと思っています。

## はじめに

今年度は3年に一度、KEK全体の体制が更新される年にあたります。放射光科学第一研究系は私が、第二研究系は千田俊哉さんが、引き続き研究主幹を務めます。また、構造生物学研究センター、量子ビーム連携研究センターについても引き続き、千田さんと私がそれぞれセンター長を務めます。改めて3年間よろしく願いいたします。さて、放射光科学第一，第二研究系は放射光をはじめとする量子ビームを駆使して、先端的な物質・生命研究を行うことを主なミッションとしています。2023年度第3号のPFニュースでは、表面科学研究部門のメンバーが中心となって実施しているマルチプローブ利用研究を紹介しましたので、今回は固体物理学研究部門におけるマルチプローブ利用研究をいくつか紹介します。

## 多彩なスピン構造の間のトポロジカル数スイッチングの観測

磁気スキルミオンは電子のスピンが渦巻き型に配列しているためにトポロジーによって保護されて粒子としての性質を有しています。その大きさは数～数百ナノメートルと非常に小さく、いわゆる磁壁と比べると非常に小さな閾値電流によって駆動できることから、これまでの磁気メモリに比べて超高密度・超低消費電力の新世代磁気記憶・演算デバイスへの応用が期待されています。東大の吉持氏らは、

正方格子構造を有し空間反転対称な希土類合金  $\text{GdRu}_2\text{Ge}_2$  に着目して研究を行い、積層方向に外部磁場をかけていくと多段階に磁気構造が相転移することを見出しました(図1)。その中でもII, IVと呼ばれる2種類の磁気相はホール抵抗率に増大が生じることから大変興味深く、磁気スキルミオン格子の形成によるトポロジカルホール効果が生じていると考えられます。そこで、J-PARC MLFのHRC(BL12)において短波長中性子散乱実験を、フォトンファクトリーのBL-3Aにおいて共鳴X線散乱実験を、協奏的に実施することによって、マイクロナスピン配列を直接的に観測しました。その結果、II及びIVの磁気相においては、直径2.7ナノメートルのスキルミオンが格子を組んだ状態で安定化していることが明らかになりました。また、本物質では外部磁場に応じて多段階の磁気構造相転移が生じており、特にII, III, IVの磁気相では、「楕円形スキルミオン」や「メロン-アンチメロン分子」、「円形スキルミオン」といった多彩なトポロジカルスピン構造が実現することが明らかになりました。この成果は極小サイズのスキルミオンに関する新たな物質設計指針を与えるとともに、外部磁場による多値メモリ動作といった新しいデバイス応用の可能性を示しています[H. Yoshimochi *et al.*, *Nat. Phys.* (2024), プレスリリース: <https://www.kek.jp/wp-content/uploads/2024/04/pr20240401.pdf>].

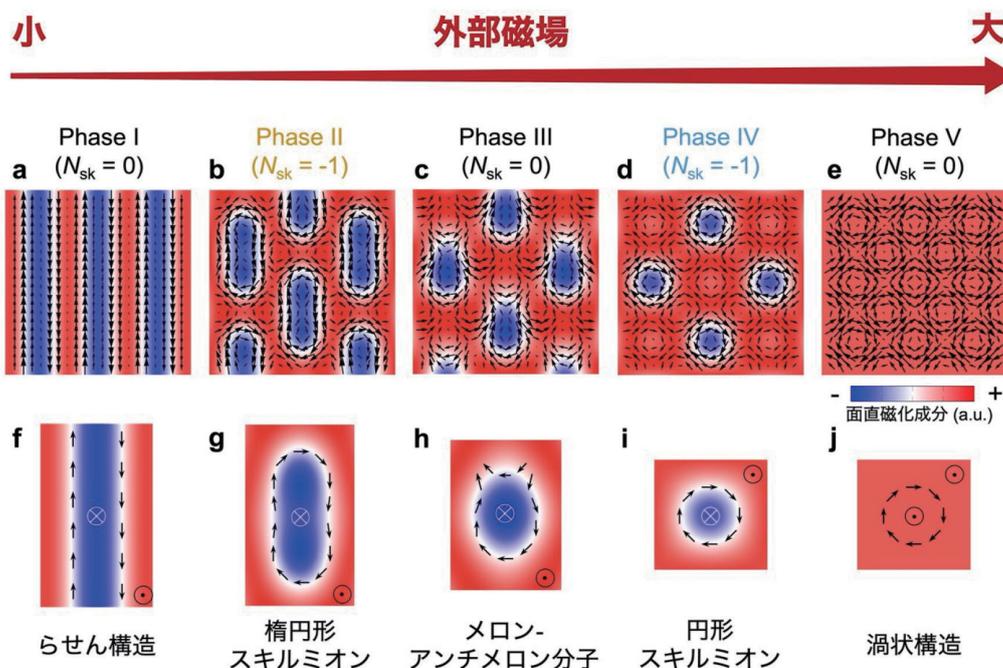


図1 希土類合金  $\text{GdRu}_2\text{Ge}_2$  における各磁気相における磁気構造 (a-e) および、それぞれのスピン構造についての概念図 (f-j)。 $N_{sk}$  はスキルミオンを特徴付けるトポロジカル数であり、スキルミオンおよびアンチスキルミオンは整数値、メロンとアンチメロン半整数値になる。

## 広い波長領域での共鳴 X 線散乱研究

マルチプローブ利用という点、放射光と中性子のような異なる量子ビームを使った研究がよく取り上げられますが、同じ放射光でも波長によって、あるいは測定手法によって、異なる側面からの情報が得られます。ここでは広い意味でのマルチプローブ利用研究として、PF の複数ビームラインにおいて、実験装置も変えつつ測定した例を紹介いたします。この研究では共鳴 X 線散乱 (RXS) を用いました。RXS は、回折・散乱の空間相関の観測と X 線吸収分光や X 線磁気円二色性 (XMCD) といった電子・磁気状態の観測を組み合わせた手法で、吸収端を選択することで、元素・軌道選択的にこれら電子・磁気状態の秩序構造の決定ができます。したがって、観測したい元素・軌道が決まると、その吸収端エネルギーでの実験が必要となり、広い波長領域での実験が必須になります。

以下に、金属絶縁体転移 ( $T_M \sim 63$  K) を示す  $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  の RXS 研究の例を示します。絶縁化の起源を明らかにするために、構成する元素ごとの吸収端エネルギーで測定した 100 反射強度のエネルギー依存性を図 2 に示します。硬 X 線の  $\text{Pr } L_3$  端は BL-3A で、軟 X 線の  $\text{Pr } M_{4,5}$  端は BL-16A で、軟 X 線でも比較的エネルギーの高い P K 端、 $\text{Ru } L_3$  端は BL-11B で測定した結果です。非共鳴信号強度で規格化

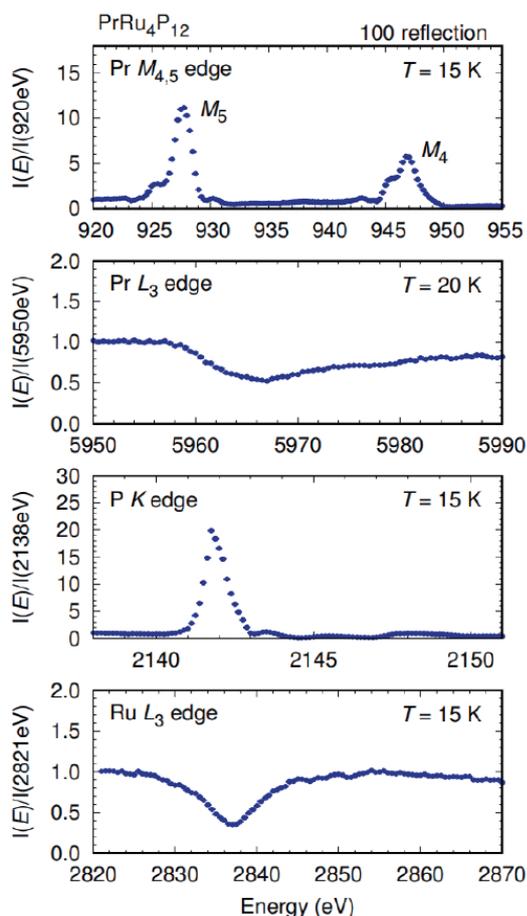


図 2  $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  に対して元素ごとの吸収端エネルギーで測定した 100 反射強度のエネルギー依存性。

した散乱強度は、 $\text{Pr } M_{4,5}$  端、P K 端で 10 を超え、絶縁化の背後に Pr の 4f と P の 3p の変調構造の出現があることが一目瞭然です。

この系の研究が始まった頃には軟 X 線用の回折計はなかったため、強い共鳴信号が得られない  $\text{Pr } L_3$  端の測定のみで、相転移の起源をめぐる議論が行われていたことは感慨深いものがあります。なお、この広い波長領域を利用した RXS 研究は、放射光 **34, 55** (2021) に紹介されていますので、興味があればご覧ください。

このような広い波長領域を利用した研究は、PF の次期計画である PF-HLS (PF Hybrid Light Source) の SR シングルビーム実験に相当します。ここで紹介した実験は、BL-11B での測定後、回折計に試料が入ったまま BL-16A に移動して実験した結果です。次期光源を見据えて今からできる実験の可能性は数多くあり、ユーザーの方々と協力して実験をすることで、当初予想もしなかった成果が得られると信じています。

## 有機強誘電体の構造とダイナミクス

誘電性は磁性・導電性と並ぶ重要な物性のひとつであることから、基礎科学的な観点のもとより、不揮発メモリやセンサー、アクチュエーターなど広範な用途をもち、応用的な側面でも興味を持たれています。現在、電子、光学、機械デバイスなど、強誘電体の応用は、セラミックスをはじめとする無機材料が中心です。特に PZT (チタン酸ジルコン酸鉛) やチタン酸鉛などは、有害な鉛を高い濃度で含みながらも、その特性の高さゆえに幅広く用いられています。一方、軽元素のみからなる有機強誘電体は、有害元素を含まず、軽量かつフレキシブルという従来の材料にない特徴をもち、新たな誘電体材料としての利用や、純有機デバイスの開発の上で注目されています。また、非鉛系誘電体の開発でしばしば用いられる希少元素を含まない有機材料は環境調和・省資源といった SDGs の観点からも開発が急務となっています。

分子性有機物と強誘電体の関わりは 1920 年代のロッシュェル塩 (酒石酸カリウムナトリウム) に端を発しますが、チタン酸バリウムの発見以降、無機材料による強誘電体の開発が盛んに行われ、その後有機材料による誘電体の発見例は少数にとどまっていました。我々は、水素結合系超分子集合体や、電荷移動錯体などを用いた新たな誘電体設計指針に基づき、有機強誘電体の開発を行ってきました。これら新規の強誘電体では、分子そのものは極性を持たないものの、集合化によってはじめて誘電性を示すものも多く、その結晶構造は分極の起源を解明する上で必須といえます。なかでも水素結合系強誘電体とよばれる物質群では、X 線 (放射光) による精密構造解析に加え、水素の原子核であるプロトンの位置を正確に決めることができる中性子構造解析を相補的に利用することでその全体像を捉え、より正確な構造情報を得ることが可能です [R. Kumai *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* 129, 12920 (2007)].

一方、極性をもつ分子あるいは置換基が回転することに

よって分極反転を示す強誘電体も数多く知られています。置換基や分子自身もつ大きな極性を利用することで、従来広く用いられていた高分子材料による強誘電体よりも大きな分極を示すものも近年報告されています [S. Horiuchi, R. Kumai, S. Ishibashi, *J. Mater. Chem. C* **9**, 13739 (2021)]。これらのなかで、TAPA(tris(4-acetylphenyl)amine) という物質は、キュリー温度 (408 K) 以下ではアセチル基が秩序化しているため、結晶全体に極性を持ち、電場によって置換基が回転することで分極の向きが反転して強誘電性を示すと考えられます。キュリー温度と同時に構造相転移が起こり、置換基が無秩序化して極性を示さない構造となっていることが放射光を用いた結晶構造解析からわかっています。最近、ミュオンを用いたこの物質の観察を行いました。水素の軽い同位体とみなせるミュオニウムがアセチル基近傍に一時的に安定に位置できることを利用して、ミュオンスピン回転 ( $\mu$ SR) シグナルの温度変化から、転移温度以下の 350 K 近傍から置換基が大きな揺らぎを示すことが明らかになりました [J.G. Nakamura, R. Kumai, R. Kadono *et al.*, submitted]。放射光とミュオンを相補的に利用することで、静的な構造と動的な性質の解明に迫ることができ、他の系への適用も今後検討しています。

## 人事異動

放射光科学第一、第二研究系に関連する人事異動を報告します。4/1 に、構造生物学研究部門の研究機関講師の山田悠介さんが東北大学に准教授として、研究員の長瀬里沙さんが農林水産省に、KEK 日本学術振興会特別研究員の藤田雅也さんが長岡技術大学に助教として、それぞれ異動されました。また、材料科学研究部門の特任助教の深谷亮さんが東京大学に特任助教として異動されました。所内での動きとしては、量子ビーム連携研究センターの博士研究員の大下宏美さんが放射光実験施設運営部門の特別助教として、FAN Dongxiao さんが材料科学研究部門の研究員として、それぞれ採用されました。材料科学研究部門の特任教授の山本樹さんは、研究員として引き続き研究を継続されます。新規採用としては、量子ビーム連携研究センターの博士研究員として三木宏美さんが、材料科学研究部門の KEK 日本学術振興会特別研究員として吉田一貴さんが、それぞれ 4/1 に着任されました。なお、三木さんは 5/1 に中性子科学研究系の特別助教として採用されます。

### はじめに

低速陽電子実験施設 (Slow Positron Facility, SPF) では、専用リニアックで加速された電子ビーム (~50 MeV, ~530 W) で生成した高強度低速陽電子ビームを共同利用実験に供給している。物質最表面および表面直下の原子配列の解明、陽電子やポジトロニウム (Ps), Ps 負イオンといったエキゾチック粒子の基礎物理実験や、それらの粒子と物質との相互作用の解明を目的に、全反射高速陽電子回折 (TRHEPD, トレプト), 低速陽電子回折 (LEPD, レプト), 汎用ステーションにおける実験 (現在は Ps のレーザー冷却実験を実施中), Ps 飛行時間 (Ps-TOF) 測定などの共同利用実験を実施している。TRHEPD は電子による反射高速電子回折 (RHEED) の陽電子版, LEPD は低速電子回折 (LEED) の陽電子版である。施設の名称にもなっている「低速陽電子」は、負の仕事関数を使う特殊な方法でエネルギーを単色化した陽電子の名称で、その後に加速した場合もこの名称で呼ばれる。TRHEPD のビームも同様であるが、この場合だけは RHEED と名称を揃えて「高速」陽電子回折と呼ばれる。さらに「全」反射と呼ばれるのは、電子にはない全反射が陽電子には起きるためである。

専用リニアックの管理・運転は、加速器研究施設第5研究系によってなされ、低速陽電子生成部から下流側の管理・運転は物構研 SPF と PF によってなされている。共同利用は放射光共同利用実験の一環として行っており、2023年度の共同利用実施課題数は17課題、有効課題のユーザー数は54名、ユーザー実験の配分時間は3,368時間であった。

### ビームラインの状況

実験装置の高度化が進んだことから、ビーム強度やビーム位置の微妙な変化に対する実験への影響が徐々に顕在化してきた。特に精緻な光学系を用いている LEPD 実験において、ビーム強度のランダムな変動が観測されたことから調査を進めたところ、原因として低速陽電子生成ターゲット部の電位の変動とパルスストレッチャー用の出口ゲート電極の電位変動が疑われた。ターゲット部の高電圧フローティング電源 (特注) における陽電子モデレータへの出力電圧の時定数を計算した所、330秒と非常に長く、チャージアップ時の正常電位への回復が遅れていることが推測されたため、電源内部の抵抗の交換によって時定数を3.3秒にした。また、陽電子コンバータ部に対しても、ターゲット部そばに既設の30 nF程度のキャパシタに並列に120 MΩのシャント抵抗を追加することで、220秒だった時定数を4.2秒にした。パルスストレッチャーのゲート電極に対しては、47 MΩのシャント抵抗をつけた。これによりビーム強度のランダムな変動が抑えられたと共に、異なる実験ステーションへのビーム供給パラメータの切り替え後

すぐにビームが安定するようになった。以前は安定するまでに数時間要していた。

また、SPFの短パルスモード (繰り返し50 pps, 幅10 ns) における低速陽電子ビーム強度に10 Hzと25 Hzの1~2%程度の強度変動 (強度の2値化) があることが、ポジトロニウムのレーザー冷却実験のデータ解析から判明した。SPFのある入射器棟内の他の加速器モジュール由来の電源ノイズによるものと思われる。SPFの専用加速器のタイミングを入射器棟メインリニアックに対して相対的に8.0 ms遅らせると共に、クライストロンの加速電圧を上げることでこのビーム強度の2値化の問題が解決された。この問題に関する調査と対策にあたっては、SPFユーザーおよび入射器のRFグループの方々の多大なご協力をいただいた。

2022年6月18日にSPFで漏電があり、これによって同じ入射器棟内のメインリニアックのマグネット用電源が落ちてSuperKEKB, PF, PF-ARへの連続入射が中断した可能性が高いという指摘があった。このことをきっかけに、漏電を起こさないよう注意をより徹底すると共に、仮に漏電があった場合にも上流側の電気系統に影響を与えないようSPFで対策を進めることになった。PFでは既に漏電遮断器の効果的活用によって、漏電事象 (上流側の漏電警報機の発報) が1/30程度に激減したとのことで、その詳細をPFの電気安全担当者からご指導いただき、SPFにも同様の対策の導入を進めた。まず、最も漏電の可能性の高いベキング用に漏電遮断器を導入し、ベキング時には必ずこれらの漏電遮断器を利用することを周知徹底し、運用を開始した。また、各実験盤の下流側の全ての電源ラインに30 mA以下の漏電遮断器を入れることを基本とすることにした。漏電遮断器を入れる位置は、停止すると他への影響の大きな真空機器関連は各機器の直前とし、真空インターロックは他と独立とする方針とした。それ以外は次の(1)~(3)のいずれかの対策を行った。(1) 子実験盤の各端子台の過電流遮断器を過電流漏電遮断器に変更, (2) 電源タップを漏電遮断器付きのものに変更, (3) 電源プラグへの簡易漏電遮断器の導入。2023年度夏の停止期間の停電時にこれら全ての対策を終えた。

SPF-A3 (TRHEPDステーション) では、回折パターンを観測に使用しているMCPの劣化が確認され、新品に交換した。2020年の低速陽電子生成部の改良に伴うビーム強度の向上により、TRHEPDの回折ビームでMCPの劣化が急速に進み得ることは予想されていた。現状の低速陽電子ビームの時間平均強度は典型的な電子ビームによる実験と比較して6桁程度弱く、その強度増大は喫緊の課題である。ところが、20 ms毎に1 μsのパルス幅のビームで供給されるため、パルス中では時間平均強度に対して20,000

倍もの瞬間強度になっており、現状の TRHEPD の回折ビームでも MCP の許容検出レートを超えると考えられていた。すぐに可能な当座の対策として、TRHEPD に限ってはビーム強度を意図的に弱めて共同利用を行っていたが、予想より早く MCP の劣化が進んだ。これに対する本質的な対策のために、LEPD 用に開発し稼働中のパルスストレッチャーを TRHEPD でも使用できるよう、開発をあらかじめ進めてきた。パルスストレッチャーで使用している Penning-Malmberg トラップの電極は、真空配管内の長さ約 6 m のトラップ電極およびその両端のゲート電極と接地電極から構成されており、現在は 5.0 keV の 1  $\mu$ s のパルスビームを 5.2 keV の準 DC ビームに変換して LEPD 実験に供給している。TRHEPD に必要な 15 keV の準 DC ビームを供給できるようにするためには、15 kV を超える電圧の印加のための特殊パルス電源の開発と、各電極の放電対策を進める必要がある。このための特殊電源を開発し、放電対策の評価用試験電極を作成し、電圧印加試験を行った。特殊電源については、入口ゲート電極用のパルス電源回路へのコンデンサの追加と、電極に接続した場合のインピーダンス整合をとりかつ電極で放電が起こった時の電源保護のための抵抗を追加すれば必要とする性能が達成できることが確認できた。試験結果は概ね良好であり、予算の目途さえ立てば、TRHEPD に必要な 15 keV の準 DC ビームを供給できる Penning-Malmberg トラップ電極への交換を行うことで、従来の 10 倍の強度での実験を開始できると見込んでいる。また、ビーム強度を上げるかわりに、TRHEPD ビームのコヒーレンス長をより長くしていくことも可能となり、近年ニーズが高まっている超長周期表面構造を持つ試料への TRHEPD 実験の対応への期待にも応えることができるようになることを期待している。

また、陽電子回折実験でより高強度ビームでの実験を可能にするため、磁場によって輸送した低速陽電子ビームを非磁場領域にビームを引出してから透過型減速材（透過型リモデレータ）に高効率にビームを収束するシステムの改良の開発を進めている。この開発研究で得られた知見は、ポジトロニウムのレーザー冷却実験におけるポジトロニウム生成材料への低速陽電子ビーム入射にも応用されている。

2023 年度は、ビームラインの加速器フェンス上流側におけるステアリングコイルで地絡（配線の接地電位への接触）が続発した。これらは全て同タイプのもので、かつて KEKB の陽電子用リングに導入されたものと同タイプのソレノイドコイルの内部に設置された、ビーム輸送用真空配管の上下方向および左右方向に磁場を発生させるステアリングコイルである。低速陽電子は磁場の向きにガイドされていくが、ステアリングコイルは、地磁気によるビーム軌道偏向の補正あるいはビーム軌道の調整に用いている。地絡部の接触抵抗の変動によりビーム位置が安定せず、低速陽電子回折のような精緻な光学系を用いた実験に著しい影響が出た。問題のステアリングコイルは、熱による膨張と収縮によって固定治具のエッジで被覆がはがれてきて同時

期に次々地絡しはじめたのではないかと推測しているが、ソレノイド内部をファイバースコープで観測したものの、どこで地絡をしているかは判別がつかなかった。これらのステアリングコイルの交換にはビームラインの解体が必要となるためそれは行わずに、ソレノイドコイル外側から新たにステアリングコイルを 6 セット設置した。

2024 年 2 月 11 日未明に、ビーム強度の著しい低下の報告がユーザーからあった。調査した所、最上流から 2 番目のビーム輸送用ソレノイドコイルへの配線で地絡が見つかった。問題のコイルのみをバイパスしビーム調整を試みた所、1/10 程度の強度であればビームが輸送できることがわかった。問題のコイルはコンクリートシールド内部にあって、これ以上の調査と対策はシールドを大規模に開けて中に入ってから作業が必要だが、それも加速器停止から 1 ヶ月程度線量が下がるのを待つ必要があることから、このまま予定されていたユーザー運転終了日の 3 月 25 日まで 1/10 のビーム強度で運転を継続した。3 月末にシールドを大規模に開けて 4 月に調査したところ、コイルへの配線が地絡の原因となっている可能性が最も高かったため、シールド内の近隣のコイルも含めた 4 つのコイルへの配線を新しいものと交換した。ソレノイドコイルへの配線のトラブルは初めての事例だが、運転中は現場近辺の線量が高くなることから、配線の劣化が原因として考えられる。現場ではガラス被覆熱電対線の劣化が少なかったため、新しいコイル用配線として、ポリイミドテープ巻きガラス編組電線を導入した。配線交換後は問題が無く、現在は以前の正常なビーム強度を回復している。

## 各ステーションの状況

現在、SPF では 4 つの実験ステーションが稼働している。地下テストホールの SPF-A3、SPF-A4 と、地上階クライストロンギャラリー実験室の SPF-B1、SPF-B2 である。

SPF-A3 の全反射高速陽電子回折 (TRHEPD) ステーションでは、表面構造解析の共同利用実験が行なわれている。2023 年度は、準フリースタANDING 単層グラフェン (quasi-freestanding monolayer graphene, QFMLG) と呼ばれる H 終端 SiC 基板上のグラフェンの構造解析が行なわれた。原子スケールで平坦なグラフェンシートを高品質・大面積に工業的規模で作製するためのさまざまなアプローチの中でも、QFMLG はハイパワーまたは高周波エレクトロニクスにとって特に有望視されている。6H-SiC(0001) 上に成長した QFMLG の構造を、TRHEPD を用いて調べた結果、グラフェンと基板間の層間距離 ( $d_{\text{QFMLG}}=4.18\pm 0.06$  Å) は、垂直入射 X 線定在波 (NIXSW) 法や高分解能 X 線反射率 (XRR) 法による従来研究による値 ( $d_{\text{QFMLG}}=4.22\pm 0.06$  Å) と比較するとわずかに小さい値となり、第一原理計算の結果 ( $d_{\text{QFMLG}}=4.16$ ) とよりよく一致した。

また、TRHEPD により、Co(001) 基板とその上のグラフェンの間に貴金属原子を挿入 (インターカレーション) したときの積層構造の変化が調べられた。下地基板を利用し

てグラフェンの物性を制御する試みは、グラフェン材料開拓研究における新たな自由度をもたらすものである。Co上グラフェンと基板との層間距離 (2.04 Å) は、Ag, Au原子挿入により、3.24 Å (Ag), 3.32 Å (Au) へと広がり、デバイ温度は 430 K (Co) から 320 K (Ag), 368 K (Au) に変化した。これは、インターカレーションの結果、ファンデルワールス相互作用を介して準フリースタンディングのグラフェンに変化したことを示している。銀の場合は、700°Cまでさらに熱処理することで、銀の脱インターカレーションによってグラフェンの高さやデバイ温度が元の状態に戻ることが確認された。即ち、下地基板と強く相互作用しているCo上グラフェンを、貴金属原子の挿入によりフリースタンディングな状態との間でリバーシブルに作り換えられることが示された。

SPF-A4の低速陽電子回折 (LEPD) ステーションでは、ビーム強度の増大と、基本的な実験環境の整備が進んだことで、2桁強い回折強度が得られるようになり、Cu(001)表面で高品位な回折パターン1枚を1分で取得できるようになった。得られたLEPDのデータの解析を行っているが、LEEDよりもさらに表面敏感であることが明らかになりつつある。

SPF-B1の汎用ステーションでは、Psレーザー冷却実験を行っている。SPF低速陽電子ビームの大強度かつ短パルスである特性が、Psレーザー冷却に必要なパルスレーザーの時間特性と合致しており、レーザー光と同期した実験が可能となっている。短パルスモードの低速陽電子ビームを、レーザー冷却用に作成したシリカエアロゲルと呼ばれるシリカナノ微粒子が3次元ネットワーク構造を形成した物質に入射してPsを生成している。シリカエアロゲル表面から陽電子ビーム上流側の真空中に放出されたPsに、トリプレットの1S-2P遷移に相当する243 nmの紫外レーザー光を照射し、Psレーザー冷却やPs温度測定を行っている。2023年に世界に先駆けてポジトロニウムのレーザー冷却に成功したことを関連国際会議で発表し、現在論文を投稿中である。

SPF-B2のポジトロニウム飛行時間法 (Ps-TOF) ステーションでは、試料表面からのPs放出のエネルギー分布を通じての表面およびPs生成媒質の研究のための共同利用実験が行われている。現在、試料を冷却しながらのPs-TOF測定が行なわれている。

## その他

2次元物質の構造決定に用いられる複数の先端量子ビーム計測技術向けの汎用データ解析ソフトウェア“2DMAT (ツーディマツト)”において、並列モンテカルロ型ベイズ推定などの解析手法を駆使して、TRHEPDやX線回折などの複雑なデータ構造の中に潜む「真の解」 (= 正しい原子配列) を効率的に高信頼に見つけ出すことが可能となっている。また、決定した表面構造の情報を用いて第1原理計算 (QUANTUM EXPRESSO) による電子状態の計算などをシームレスにできるようになっている。最近、LEED/

LEPDの構造解析への拡張が進みPCやスーパーコンピュータによるこれらの計算も開始された。さらに、LEED/LEPDによる深さ方向の感度解析や、この複数の手法を組み合わせた解析などの試みも開始されている。

## 人事異動

SPF施設長を兼務されていた小杉信博 前物構研所長が2024年3月末で退職されました。2024年4月からは両宮健太 物構研副所長にSPF施設長を兼務いただいております。