

極端紫外光実験施設

繁 政 英 治（助教授）

A-1) 専門領域：軟X線分子分光、光化学反応動力学

A-2) 研究課題：

- a) 内殻励起分子の光解離ダイナミクスの研究
- b) 内殻電離しきい値近傍における多電子効果の研究
- c) 分子の二価イオン状態の分光的研究
- d) 正・負イオン二次元同時計測装置の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 内殻励起分子の解離ダイナミクスの詳細を解明するためには、まず吸収スペクトルの正しい理解が不可欠である。90 ~ 900 eVのエネルギー範囲で、分解能5000以上を達成し、内殻励起領域での振動分光を実現する事を目指して、不等刻線平面回折格子を用いた斜入射分光器をBL4Bに建設した。この分光器を用いて、 SO_2 及び NO_2 分子の窒素、酸素の1s励起領域、更に Cl_2 及びHCl分子の塩素2p励起領域において、高分解能対称性分離スペクトルを観測した。高度な量子化学計算を援用することにより、屈曲三原子分子のスペクトルの正確な帰属を行い、スピン・軌道相互作用による分裂が複雑であるために、これまで解釈が殆どなされていたかった塩素の2p励起領域のスペクトル構造の電子状態を明らかにした。
- b) 内殻励起しきい値近傍における多電子効果、特に多重励起状態の電子構造と崩壊過程を調べることを目的として、二原子分子の内殻励起領域におけるEUV発光（又は高励起中性解離種）の生成効率スペクトルの観測を試みた。どの分子についても、XPSで決定された内殻電離しきいエネルギー位置において信号強度の増大が観測された。この構造の起源を探るため、EUV発光分光器の開発に着手し現在立ち上げ作業を進めている。
- c) 光のエネルギーが、原子・分子のイオン化エネルギーに正確に一致すると、運動エネルギーが殆どゼロの光電子を放出する。これをしきい電子と呼び、そのような電子を積極的に捕集する分光法をしきい電子分光法と言う。直接二重イオン化が起こる光エネルギー領域において、しきい電子を二つ同時に計測すれば、二価イオン状態を正確に規定することが出来る。内殻電離に後続するオーグメント過程の終状態は、価電子に二正孔を持つ二価イオン状態であり、通常、直接二重イオン化で生じる電子状態と同じであると考えられる。しかし、内殻電子の局在性を反映した特異な価電子二正孔状態が存在すれば、その電子状態特有の解離ダイナミクスを示す可能性がある。分子の二価イオン状態と解離ダイナミクスを研究するための新しい同時計測装置の開発を開始した。
- d) 放射光による内殻励起分子の研究では、従来、電子及び正イオンが主たる観測対象であった。しかし、近年の放射光源の高輝度化に伴い、軟X線発光や負イオンなどマイナープロダクトを絡めた同時計測実験により、内殻励起しきい値近傍で顕著な多電子効果を多面的に捕らえる試みがなされるようになってきた。我々は、内殻電子の連続状態中に埋もれた多電子励起状態の崩壊過程を探索するため、正・負イオンの二次元同時計測装置の開発に着手している。

B-1) 学術論文

K. TAKAHASHI, T. NAKAYAMA, Y. MATSUMI, S. SOLOMON, T. GEJO, E. SHIGEMASA and T. J. WALLINGTON, "Atmospheric Lifetime of SF₅CF₃," *Geophys. Res. Lett.* **29**, 1–4 (2002).

T. GEJO, Y. TAKATA, T. HATSUI, M. NAGASONO, H. OJI, N. KOSUGI and E. SHIGEMASA, "Angle-Resolved Photoion Spectroscopy of NO₂ and SO₂," *Chem. Phys.* **289**, 15–29 (2003).

Y. HIKOSAKA, T. AOTO, R. I. HALL and K. ITO, "Fragment Emission Anisotropy on Dissociative Photoionization of O₂ Investigated by Angle-Resolved Two-Dimensional Photoion Yield Measurement," *J. Phys. B* **36**, 1423–1432 (2003).

Y. HIKOSAKA, T. AOTO, R. I. HALL, K. ITO, R. HIRAYAMA, N. YAMAMOTO and E. MIYOSHI, "Inner-Valence States of O₂⁺ and Dissociation Dynamics Studied by Threshold Photoelectron Spectroscopy and a Configuration Interaction Calculation," *J. Chem. Phys.* **119**, 7693–7700 (2003).

Y. HIKOSAKA, P. LABLANQUIE, M. AHMAD, R. I. HALL, J. G. LAMBOURNE, F. PENENT and J. H. D. ELAND, "Competition between Autoionization and Dissociation in the [O₂⁺(B²Σ_g⁻)]*nl* and [O₂⁺(c⁴Σ_u⁻)]*nl* Rydberg States Investigated by Photon Induced Dissociation to Neutral Fragments," *J. Phys. B* **36**, 4311–4326 (2003).

Y. HIKOSAKA and J. H. D. ELAND, "Photoionization into the Dissociation Continuum of H₂⁺(X²Σ_g⁺) Studied by Velocity Imaging Photoionization Coincidence Spectroscopy," *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **133**, 77–86 (2003).

Y. HIKOSAKA, P. LABLANQUIE, M. AHMAD, F. PENENT, J. H. D. ELAND and R. I. HALL, "The Formation of Fluorescent and Metastable Fragments by Photoexcitation of Some Diatomic Molecules in the Vacuum Ultraviolet Region," *J. Phys. B* **37**, 283–293 (2003).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員

第14回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム組織委員 (1999-2001).

学会誌編集委員

Synchrotron Radiation News, Correspondent (2001.10-).

C) 研究活動の課題と展望

原子分子の分光学的手法により得られるスペクトルは、一般にはある側面からの観測であって、そこにある物理全体を理解するためには、幾つかのスペクトルを組み合わせることが望ましい。このような観点から、内殻励起分子のダイナミクスの研究に同時計測の手法を積極的に導入してきたが、JVSOR施設のビームライン分光器の性能や実験装置の制約から、これまでは電子やイオンの単純な検出に限らざるを得なかった。2003年度末から利用可能となるBL3Uの分光器は、これまで利用してきたBL4Bに比べて桁違いに高性能であり、世界最高水準の高分解能かつ高強度の軟X線の利用が可能となる。これにより、光源性能による実験条件の制約は大幅に緩和されるはずなので、従来実現が困難であったしきい電子や発光、更には負イオンを絡めた新しい同時計測実験を、内殻励起状態の寿命幅を大幅に下回る高分解能下で実施したい。また、内殻電子のイオン化に後続するオージェ崩壊の終状態である二価イオン状態の分光と反応動力学についても引き続き研究を行う。2価イオンの解離についての従来の議論は、単純に内殻電子の局在性とサイト選択性の相関に終始することが多かった。しかし実際には、関与する二価イオンの電子状態とそのポテンシャルエネルギー曲面の形状において個々の解離ダイナミクスは決定される。価電子の直接二重イオン化状態の解離と内殻電離後のイオン性解離を詳細に比較・検討すれば、二価

イオン状態の生成過程の違いが解離ダイナミクスに及ぼす影響を直接調べることが出来る。これにより、初めて内殻イオン化後のイオン性解離の本質的理解が得られるものと考えている。2003年度後半から関連する装置の開発を開始し、2004年度前半から順次テスト実験を開始する予定である。

加 藤 政 博（助教授）

A-1) 専門領域：加速器科学、放射光科学、ビーム物理学

A-2) 研究課題：

- a) シンクロトロン放射光源の研究
- b) 自由電子レーザーの研究
- c) 相対論的電子ビームを用いた光発生法の研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) かねてより提案していたUVSORの高度化計画は2002年度に予算化された。高度化に必要な加速器装置類の製作は予定通り2003年3月末までに完了し、4月より加速器の改造を開始した。改造作業は順調に進み予定通り3ヶ月で完了した。7月より試運転を開始、7月14日にビーム蓄積に成功した。高度化されたUVSOR(UVSOR-II)は以前の2倍に相当する計6台までのアンジュレータが設置可能となり、同時に、ビームのエミッタンス(空間広がりと角度広がり)の積も以前の約1/6となった。これにより最新の第3世代光源と競争可能な高輝度放射光を多くのビームラインに供給できるようになった。
- b) 従来のUVSORでは偏向電磁石からのシンクロトロン放射の利用が中心であったが、UVSOR-IIでは高輝度のアンジュレータが光源の主力となる。光源リングの高度化の一環として、老朽化したアンジュレータ1台と超伝導ウィングラ1台を撤去し2台の真空封止型アンジュレータを導入した。これらは旧来のアンジュレータでは困難であった100 eVを超えるエネルギー領域の高輝度放射光を生成することが可能である。アンジュレータの制御系も新たに構築し、これまでUVSORでは実現されていなかった、利用側からの放射光エネルギーの随時変更が可能となる。現在、立ち上げ調整の最終段階に入っている。
- c) 2000年以降、自由電子レーザーの実用化を目指して高出力化、高安定化に取り組んできたが、その結果、平均出力は1 Wを超え、2時間を越える連続発振も可能となった。自由電子レーザー光とシンクロトロン放射光を組み合わせた原子・分子の二重励起実験にも成功した。光源リングが高度化され電子ビームが高品位化されたことで、より短波長域での発振が狙えるようになった。12月には可視域であるがUVSOR-IIとなって初めてのレーザー発振に成功した。
- d) レーザーと電子ビームを相互作用させることで電子パンチの一部に1ピコ秒程度あるいはそれ以下のディップ構造を作り出すことができる。このようなディップ構造は遠赤外領域においてコヒーレント放射する可能性がある。このような手法でUVSORにおいて生成可能なコヒーレント遠赤外放射の強度、波長スペクトルの計算を進めてきた。現在予備的な実験を行うための準備を進めている。

B-1) 学術論文

M. HOSAKA, M. KATOH, A. MOCHIHASHI, J. YAMAZAKI, K. HAYASHI, Y. TAKASHIMA and H. HAMA, "Q-Switching Operation of UVSOR-FEL," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **507**, 289–293 (2003).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員

加速器科学研究発表会世話人 (2001-).

加速器学会設立準備委員会委員 (2003-).

学会誌編集委員

放射光学会誌編集委員 (2000-2002).

その他の委員

日中拠点大学交流事業(加速器科学分野)国内運営委員会委員 (2000-).

佐賀県シンクロtron光応用研究施設・光源装置設計評価委員 (2001-).

むつ小川原地域における放射光施設整備に係る基本設計等調査評価会(加速器)委員 (2001-).

B-8) 他大学での講義、客員

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所, 客員助教授, 2000年4月- .

C) 研究活動の課題と展望

UVSOR加速器群は予定通りのスケジュールで高度化改造され、2003年7月から高度化された光源リングUVSOR-IIの運転を開始し、9月より利用実験も再開した。既にマシンスタディの段階では目標とした運転条件でのビーム入射・蓄積が問題なく行えることを確認しており、現在、ビーム性能の測定を進めているところである。当面の課題は、電子ビームの高輝度化によって引き起こされるTouschek効果(ビーム内の電子同士の散乱により電子が失われる現象)の抑制である。これに対処するために、2005年春に高周波加速系の更新を行う予定であり、現在設計を進めている。更新によりビーム寿命は現在の数倍に改善される見込みである。

自由電子レーザーに関しては、実用化に向けた技術開発を続けてきたが、光源リングの高度化により、従来以上に短波長領域での発振の可能性が出てきた。今後は紫外から真空紫外領域へと段階的に発振域を移し、短波長域での高出力化、高安定化を目指して研究開発を続けていく。またこの波長域での利用実験も推進していく。具体的には円偏光レーザー光の生体物質への照射実験、放射光との同期性を利用した原子分子の二重励起実験を予定している。

遠赤外領域でのコヒーレント放射の生成は、加速器本体に大幅な改造を加えることなく実現できることから、基礎実験を2004年初頭に実施する予定である。

木 村 真 一 (助教授)

A-1) 専門領域：固体物性、放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 有機伝導体の電子状態の磁気光学的研究
- b) 角度分解光電子分光による強相関電子系の電子状態の研究
- c) 多重極限環境下赤外分光による強相関伝導系の電子状態の研究
- d) 放射光を使った新しい分光法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 有機伝導体の電子状態の磁気光学的研究: 擬二次元有機超伝導体 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Brは、BEDT-TTFの水素基を部分的に重水素に置換したり冷却速度を変えたり磁場を加えることで、基底状態を超伝導から反強磁性絶縁体に連続的に変化させることができる。この基底状態を決めている電子状態を調べるため、赤外域の顕微分光と磁気光学顕微分光を行っている。今年度は、基底状態における超伝導と反強磁性絶縁体との相分離を空間分解した赤外磁気光学で調べ、超伝導ドメインの大きさが数10 μm であることがわかった。
- b) 角度分解光電子分光による強相関電子系の電子状態の研究: 強相関電子系と呼ばれる物質群は、その系におけるフェルミ準位近傍の伝導電子間の異方的相互作用を介して、超伝導・磁性に代表される様々な異常物性(機能)を示す系として知られている。この系における機能の起源を明らかにするために、角度分解光電子分光を用いたフェルミ面の直接決定を行い、共鳴光電子分光や光学スペクトルと併せて総合的な研究を行っている。たとえば、典型的少数キャリア系であり、非常に複雑な磁気相転移を示すCeSbにおける角度分解光電子分光を行い、常 - 反強磁性相転移に伴って、バンド構造及びフェルミ面が大きく変化する様子を直接観測する事に成功した。観測された変化は、これまで予測されていたモデルでは説明されず、CeSbの磁気相転移を理解する上で、Sb 5p-Ce 5d電子間の混成相互作用が重要な役割をはたしている事が明らかになった。また、新規機能性物質として注目されている低次元有機導体系についても、研究範囲を拡大する事で、機能と電子状態の関わりについて総合的な理解を得る事ができると期待される。
- c) 多重極限環境下赤外分光による強相関伝導系の電子状態の研究: 希土類化合物等の強相関伝導系と呼ばれている物質は、フェルミ準位近傍にキャリアと局在モーメントの相互作用により生じた電子状態が物性を支配している。この物性の起源である電子状態(フェルミオロジー)を明らかにすることを目的として、低温・強磁場・高圧を同時に実現した多重極限環境下の赤外分光研究を開始した。たとえば、CeSbでは、高圧下での磁気・温度相図に対応する電子状態の情報が得られている。
- d) 放射光を使った新しい分光法の開発: UVSORでは、高分解能共鳴角度分解光電子分光とテラヘルツ顕微鏡、Spring-8では、赤外磁気光学イメージング分光を開発中である。高分解能共鳴角度分解光電子分光は、装置が立ち上がり研究がスタートした。このビームラインでは、新規物質の電子状態を調べるために、分子線エピタキシー装置と光電子分光装置を組み合わせて、強相関系薄膜を作成した状態のまま電子状態を調べる装置を現在開発中である。ただし、光電子分析器の性能が高い一方で分光器の分解能が1世代前であり、早急な更新が必要になっている。そこで、新規直入射分光器のデザインを固めつつある。一方、テラヘルツ顕微鏡は、ビームラインの更新が進行中であり、2004年

度当初に新規ビームラインが立ち上がる。このビームラインでは、ストレージリングからの赤外放射光としては世界最高強度になる予定である。この光を使って、テラヘルツ顕微分光を発展させる。

B-1) 学術論文

K. G. NATH, Y. UFUKTEPE, S. KIMURA, Y. HARUYAMA, T. KINOSHITA, T. MATSUMURA, T. SUZUKI, H. OGASAWARA and A. KOTANI, “Photoemission Study of Mixed-Valent Tm-Monochalcogenides: Evidence of Electron-Correlation Effect in Different Tm-Core Levels,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **72**, 1792–1799 (2003).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

S. KIMURA, T. NISHI, T. TAKAHASHI, T. HIRONO, Y. IKEMOTO, T. MORIWAKI and H. KIMURA, “Infrared Spectroscopy under Extreme Conditions,” *Physica B* **329-333**, 162–1626 (2003).

S. KIMURA, H. IWATA, K. KANAI, S. SHIN, G. SCHMERBER, J. P. KAPPLER and J. C. PARLEBAS, “Collapse of Kondo Lattice in $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Pd}_3$ ($x = 0, 0.03$),” *Acta Physica Polonica B* **34**, 975–978 (2003).

J. SICHELSCHEIDT, V. VOEVODIN, S. PASCHEN, W. CARRILLO-CABRERA, YU. GRIN, F. STEGLICH and S. KIMURA, “Optical Reflectivity of the Clathrate Compound $\text{Ba}_6\text{Ge}_{25}$,” *Acta Physica Polonica B* **34**, 613–616 (2003).

T. ITO, P. A. RAYJADA, N. KANAKURA, Y. TAKATA, T. YOKOYA, A. CHAINANI, S. SHIN, M. NOHARA and H. TAKAGI, “Soft X-Ray Energy-Dependent Angle-Resolved Photoemission Study of CeIrIn_5 ,” *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, S2149–S2152 (2003).

B-4) 招待講演

S. KIMURA, “Optical conductivity of the non-Fermi-liquid compound YbRh_2Si_2 and recent topics,” Festkörperphysikalisches Kolloquium, Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe, Dresden (Germany), July 2003.

S. KIMURA, “Infrared Magnetic Circular Dichroism on Strongly Correlated Electron Systems,” The 28th International Conference on Infrared and Millimeter Waves, Otsu (Japan), September 2003.

T. ITO, “Electronic structure of low-dimensional organic conductors studied by photoemission spectroscopy,” The 2nd Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications (ASOMEA II), Shonan Village Center, Kanagawa (Japan), October 2003.

木村真一, 「UVSOR高度化の現状と固体物性研究」, 物性研短期研究会「高輝度放射光による物質科学」, 東大物性研究所, 2003年11月.

木村真一, 「有機超伝導体の赤外磁気光学イメージングと相分離」, 理研シンポジウム「モレキュラー・アンサンブル2003」, 理化学研究所, 2003年12月.

B-6) 受賞、表彰

木村真一, 日本放射光学会・第5回若手奨励賞 (2001).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

日本放射光学会渉外幹事 (2003-2004).

学会の組織委員等

日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム・組織委員 (2000, 2002, 2003).

日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム・プログラム委員 (1999-2003).

文部科学省、学術振興会等の役員等

(財)高輝度光科学研究センター SPring-8 研究課題審査専門委員.

(財)高輝度光科学研究センター SPring-8 ナノテク課題審査委員.

B-8) 他大学での講義、客員

神戸大学理学部, 「電磁力学」, 2003 年 4 月 - 9 月.

東京大学物性研究所, 嘱託研究員, 1995 年 4 月 - .

(財)高輝度光科学研究センター, 外来研究員, 1999 年 4 月 - .

東京大学物性研究所, 嘱託研究員, 2003 年 4 月 - (伊藤助手)

(財)理化学研究所播磨研究所, 非常勤連携研究員, 2003 年 4 月 - (伊藤助手)

C) 研究活動の課題と展望

UVSOR を使った 2 つの新しい装置(光電子分光とテラヘルツ顕微鏡)を立ち上げ中であり、まずはその両方とも完成させることが第 1 の課題である。その後、研究課題である強相関伝導系(有機伝導体を含む)のフェルミオロジーの研究を展開する方針である。光電子分光と赤外・テラヘルツ分光は、電子個別の励起であるところは同じであるが、選択則や励起後の終状態が違っており、それぞれ相補的な関係にある。これらを 1 つの試料で観測することで、これまで以上の新しい知見や解釈が得られるものと考えられる。