

6-5 光分子科学研究領域

光分子科学第二研究部門

大 森 賢 治（教授）（2003 年 9 月 1 日着任）

素川 靖司（助教）

DE LÉSÉLEUC, Sylvain（助教）

富田 隆文（特任助教（分子科学研究所特別研究員））

BHARTI, Vineet（特任研究員）

國見 昌哉（特任研究員）

CHEW, Yeelai（大学院生）

TIRUMALASETTY PANDURANGA, Mahesh（大学院生）

VILLELA ESCALANTE, Rene Alejandro（大学院生）

川本 美奈子（事務支援員）

A-1) 専門領域：量子物理学，原子分子光物理学，量子情報科学，物理化学

A-2) 研究課題：

- a) アト秒精度のコヒーレント制御法の開発
- b) 量子論の検証実験
- c) コヒーレント分子メモリーの開発
- d) 分子ベースの量子情報科学
- e) 強レーザー場非線形過程の制御
- f) バルク固体の極限コヒーレント制御
- g) 超高速量子シミュレータの開発
- h) 超高速量子コンピュータの開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) コヒーレント制御は、物質の波動関数の位相を操作する技術である。その応用は、量子コンピューティングや結合選択的な化学反応制御といった新たなテクノロジーの開発に密接に結び付いている。コヒーレント制御を実現するための有望な戦略の一つとして、物質の波動関数に波としての光の位相を転写する方法が考えられる。例えば、二原子分子に核の振動周期よりも短い光パルスを照射すると、「振動波束」と呼ばれる局在波が結合軸上を行ったり来たりするような状態を造り出す事ができる。波束の発生に際して、数フェムト秒からアト秒のサイクルで振動する光電場の位相は波束を構成する各々の振動固有状態の量子位相として分子内に保存されるので、光学サイクルを凌駕する精度で光の位相を操作すれば波束の量子位相を操作することができる。我々はこの考えに基づき、独自に開発したアト秒位相変調器（APM）を用いて、二つのフェムト秒レーザーパルス間の相対位相をアト秒精度で操作するとともに、このパルス対によって分子内に発生した二つの波束の相対位相を同様の精度で操作する事に成功した。さらに、これらの高度に制御された波束干渉の様子を、ピコメートルレベルの空間分解能とフェムト秒レベルの時間分解能で観測する事に成功した。

- b) APMを用いて、分子内の2個の波束の量子干渉を自在に制御する事に成功した。また、この高精度量子干渉をデコヒーレンス検出器として用いる事によって、熱的な分子集団や固体中の電子的なデコヒーレンスを実験的に検証した。さらに、固体パラ水素中の非局在化した量子状態（vibron）の干渉を観測し制御する事に成功した。
- c) 光子場の振幅情報を分子の振動固有状態の量子振幅として転写する量子メモリの開発を行なった。ここでは、フェムト秒光パルス対によって分子内に生成した2個の波束間の量子位相差をアト秒精度で操作し、これらの干渉の結果生成した第3の波束を構成する各振動固有状態のポピュレーションを観測することによって、光子場の振幅情報が高精度で分子内に転写されていることを証明することができた。また、フェムト秒光パルス対の時間間隔をアト秒精度で変化させることによって波束内の固有状態のポピュレーションの比率を操作できることを実証した。さらに、固体パラ水素中の振動量子状態（vibron）の位相情報の2次元分布を操作し可視化することによって、固体2次元位相メモリの可能性を実証することに成功した。
- d) 分子メモリーを量子コンピュータに発展させるためには、c)で行ったポピュレーション測定だけでなく、位相の測定を行う必要がある。そこで我々は、c)の第3の波束の時間発展を別のフェムト秒パルスを用いて実時間観測した。これによって、ポピュレーション情報と位相情報の両方を分子に書き込んで保存し、読み出すことが可能であることを実証した。振動固有状態の組を量子ビットとして用いる量子コンピュータの可能性が示された。さらに、分子波束を用いた量子フーリエ変換を開発した。
- e) 分子の振動波束を構成する振動固有状態の振幅と位相を強レーザー場で制御することに成功した。
- f) バルク固体中の原子の超高速2次元運動をフェムト秒単位で制御し画像化する新しい光技術を開発した。
- g) ほぼ絶対零度（~50 ナノケルビン）まで冷やした極低温のルビジウム原子をミクロンレベルで整列させた人工原子結晶にアト秒精度のコヒーレント制御法を適用することによって、3万個の粒子の量子多体問題を近似無しに1ナノ秒（ 10^{-9} ）以内でシミュレートできる世界唯一・最速の「超高速量子シミュレータ」を開発することに成功した。それぞれ異なる研究分野で発展してきた「超高速化学」と「極低温物理」の手法を融合させた世界初の試みであり、材料科学・固体物理・溶液化学など広範囲の領域に波及効果を及ぼす新しい方法論として期待されている。
- h) 上記の人工原子結晶とアト秒精度のコヒーレント制御法を組み合わせた世界唯一・最速の「超高速量子コンピュータ」の開発を進めている。

B-1) 学術論文

素川靖司, 富田隆文, Sylvain de LÉSELEUC, 安藤太郎, 武井宣幸, 大森賢治, 「アト秒精度の極低温・超高速量子シミュレータ」, *固体物理*, **56**, 243–256 (2021). (招待論文・表紙)

Y. OHTSUKI, T. NAMBA, H. KATSUKI and K. OHMORI, “Optimal Control for Suppressing Wave Packet Spreading with Strong Non-Resonant Laser Pulses,” *Phys. Rev. A* **104**, 033107 (12 pages) (2021).

H. KATSUKI, Y. OHTSUKI, T. AJIKI, H. GOTO and K. OHMORI, “Engineering Quantum Wave-Packet Dispersion with a Strong Non-Resonant Femtosecond Laser Pulse,” *Phys. Rev. Res.* **3**, 043021 (9 pages) (2021).

Y. CHEW, T. TOMITA, T. P. MAHESH, S. SUGAWA, S. de LÉSELEUC and K. OHMORI, “Ultrafast Energy Exchange between Two Single Rydberg Atoms on the Nanosecond Timescale,” *arXiv:2111.12314* (2021).

V. BHARTI, S. SUGAWA, M. MIZOGUCHI, M. KUNIMI, Y. ZHANG, S. de LÉSELEUC, T. TOMITA, T. FRANZ, M. WEIDEMÜLLER and K. OHMORI, “Ultrafast Many-Body Dynamics in an Ultracold Rydberg-Excited Atomic Mott Insulator,” *arXiv:2201.09590* (2021).

A. R. PERRY, S. SUGAWA, F. SALCES-CARCOBA, Y. YUE and I. B. SPIELMAN, “Multiple-Camera Defocus Imaging of Ultracold Atomic Gases,” *Opt. Express* **29**, 17029–17041 (2021).

S. SUGAWA, F. SALCES-CARCOBA, Y. YUE, A. PUTRA and I. B. SPIELMAN, “Wilson Loop and Wilczek-Zee Phase from a Non-Abelian Gauge Field,” *npj Quantum Inf.* **7**, 144 (9 pages) (2021).

M. KUNIMI and I. DANSHITA, “Nonergodic Dynamics of the One-Dimensional Bose-Hubbard Model with a Trapping Potential,” *Phys. Rev. A* **104**, 043322 (9 pages) (2021).

M. KUNIMI, K. NAGAO, S. GOTO and I. DANSHITA, “Performance Evaluation of the Discrete Truncated Wigner Approximation for Quench Dynamics of Quantum Spin Systems with Long-Range Interactions,” *Phys. Rev. Res.* **3**, 013060 (15 pages) (2021).

B-4) 招待講演

大森賢治, 「アト秒精度の超高速・極低温量子シミュレータ・量子コンピュータ」, (一社)日本光学会 光エレクトロニクス産学連携専門委員会 第328回研究会「光の日」公開シンポジウム, オンライン開催, 2022年3月.

大森賢治, 紫綬褒章受章記念講演(文部科学省主催)「アト秒精度の極限コヒーレント制御——量子制御から量子情報処理へ——」, 光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)第4回シンポジウム, 文部科学省, オンライン開催, 2022年2月.

大森賢治, 「アト秒精度の超高速量子シミュレータ開発と量子コンピュータへの応用」, ソニーグループ(株)社内セミナー, ソニーグループ(株), オンライン開催, 2022年1月.

K. OHMORI, “Ultrafast and ultracold quantum simulator/computer with attosecond precision,” Quantum Simulations and Computations with Cold Atoms-2022 (QSCCA 2021), TCG CREST/IISER PUNE, India (Online), January 2022.

K. OHMORI, “Japan’s quantum-technology testbeds,” The International Symposium on Quantum Science, US DOE Office of Science (SC) Workshop on the International Quantum Computing Testbeds, Quantum Computing Testbeds Stakeholder Workshop, US DOE Office of Science (SC), USA (Online), December 2021. (Invited Talk/Panel Discussion)

K. OHMORI, “Ultrafast and ultracold quantum simulator/computer with attosecond precision,” The International Symposium on Quantum Science, Technology and Innovation (QUANTUM INNOVATION 2021), RIKEN, Japan (Online), December 2021.

K. OHMORI, “Ultrafast and ultracold quantum simulator with attosecond precision,” 5th International Workshop on Rydberg Atoms and Molecules, Wuhan University, China (Online), October 2021.

K. OHMORI, “Ultrafast and ultracold quantum simulator with attosecond precision,” IAS Center for Quantum Technologies Inaugural Workshop, The Hongkong University of Science and Technology (HKUST), China (Online), August 2021.

K. OHMORI, “Ultrafast and ultracold quantum simulator/computer with attosecond precision,” U.S.-Japan Quantum Cooperation Workshop, 米国・Hudson Institute／日本・内閣府, Online, July 2021. (Invited Talk/Panel Discussion)

K. OHMORI, “Ultrafast and ultracold quantum simulator with attosecond precision,” DAMOP 2021 (52nd Annual Meeting of the American Physical Society’s Division of Atomic, Molecular and Optical Physics), Online, June 2021.

大森賢治 (コメンテータ), 第13回理研・未来戦略フォーラム「生命科学の未来」, 理研, オンライン開催, 2021年5月.

素川靖司, 「光格子を用いたアト秒精度の極低温・超高速多体量子シミュレータの開発」, 第1回Q-LEAP次世代レーザー領域シンポジウム, オンライン開催, 2021年8月.

S. de LÉSÉLEUC, “Ultrafast energy exchange between two single Rydberg atoms on the nanosecond timescale,” GiRyd 2022 workshop, Mainz (Germany), March 2022.

B-5) 特許出願

特許取得第 6875680 号, 「量子シミュレーターおよび量子シミュレーション方法」, 酒井寛人 (浜松ホトニクス), 大森賢治 (自然科学研究機構), 安藤太郎 (浜松ホトニクス), 武井宣幸 (自然科学研究機構), 豊田晴義, 大竹良幸, 兵土知子, 瀧口優 (浜松ホトニクス) (登録日 2021 年 4 月 27 日).

B-6) 受賞, 表彰

大森賢治, 令和 3 年秋紫綬褒章 (量子物理学研究功績) (2021).

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

原子・分子・光科学 (AMO) 討論会プログラム委員 (2003–).

European Commission, HORIZON 2020, EU Future and Emerging Technologies, Scientific and Industrial Advisory Board (SIAB) (2017–).

European Science Foundation (ESF), ESF College of Expert Reviewers (2018–).

iSAP HAMAMATSU (International Symposium on Advanced Photonics) 組織委員 (2016–).

ゴードン研究会議 (Gordon Research Conference: GRC) “Quantum Control of Light and Matter,” 2021 議長 (Covid-19 パンデミックのため 2023 年に延期), 2019 副議長 (2017–).

ゴードン会議 (Gordon Research Conference: GRC) 評議会メンバー (2019–).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

文部科学省 科学技術・学術審議会 専門委員 (2015–).

文部科学省 科学技術・学術審議会 量子科学技術委員会 主査代理 (2015–).

科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 (CREST) 研究領域「量子状態の高度な制御に基づく革新的量子技術基盤の創出」(研究総括: 荒川泰彦) 中間評価委員 (2020–2021).

学会誌編集委員

Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, IOP, UK, Editorial Board (2018–2021), Executive Editorial Board (2021–) and Section Editor for Quantum Technologies (2019–).

その他

米国エネルギー省 (DOE) および EU からの招待を受け, DOE が主催する量子コンピューティングに関する米欧政府間会議 (Quantum Computing Testbeds Stakeholder Workshop, 2021 年 12 月 17 日) に主要メンバーかつ唯一の米欧以外からの講演者・パネリストとして出席し, 日本政府代表として大森自身の量子コンピュータ開発と日本の量子技術開発の現状に関する招待講演を行うとともに, 今後の日米欧協力と量子コンピュータ開発の今後の展望に関する議論を先導することによって, 日米欧の政府および科学技術コミュニティに対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献.

内閣府からの依頼で、内閣府とHudson研究所(米国の政府系シンクタンク)が主催する量子技術に関する日米政府間会議(2021年7月1日)で招待講演およびパネルディスカッションを行うことで日米政府に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

文部科学省からの依頼で、文部科学省と欧州共同体(EC)が主催する量子技術に関する日欧政府間会議(2021年7月6日, 2021年9月13日; 文科省・内閣府・経産省・総務省・JSTが出席)に主要メンバーかつ唯一の研究者(他は政府官僚が主体)として出席し、日欧協力政策に関する議論を先導することによって、日欧政府に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

文部科学省 科学技術学術審議会 量子科学技術委員会の主査代理 専門委員(2015-)として、量子テクノロジー開発および分子研UVSORを含む量子ビーム(放射光施設・大型レーザー施設)利用推進に関する政策検討に大きく貢献。

世界最高レベルの学術会議である米国ゴードン研究会議(Gordon Research Conference: GRC)の評議会メンバー(2019-)としてGRCの運営に貢献することによって、科学技術分野全般における分子研の国際的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

量子科学技術分野における世界最高レベルの学術会議であるゴードン研究会議(Gordon Research Conference: GRC)“Quantum Control of Light and Matter”の2021年会議 議長(Covid-19 パンデミックのため2023年に延期)、および2019年会議 副議長として2017年から2023年の長期に渡り、GRCの運営に貢献することによって、量子科学技術分野における分子研の国際的なプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

日本を代表するベンダー企業に向けた社内セミナーで、分子研・大森グループ・量子シミュレータ/量子コンピュータラボの研究開発状況をレクチャーし、日本の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

ソニーグループ(株)社内セミナー(2022年1月25日)で、分子研・大森グループ・量子シミュレータ/量子コンピュータラボの研究開発状況をレクチャーし、日本の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

米国を代表する量子テクノロジー企業と研究交流を進めることによって米国の産業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

日本を代表する商社からの要望で、量子テクノロジーに関するレクチャーを行うことによって、日本の投資業界における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

ごく最近(2022年3月-)、民間金融機関から、戦略的提携関係にある米国ベンチャーキャピタルの活用に関して、分子研 戦略室の産学連携担当を通じて、分子研・大森グループ・量子シミュレータ/量子コンピュータラボへの引き合いがあり、協議を進めている。これによって、日米における分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

文部科学省 科学技術学術政策局 研究開発基盤課 量子研究推進室からの要請で、大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況をレクチャー(2021年8月24日)することによって日本政府に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

文部科学省 文部科学戦略官(兼)科学技術・学術政策局 研究開発戦略課 戦略研究推進室のメンバーに対して、大森グループの超高速量子シミュレータ・量子コンピュータラボの研究開発状況に関するレクチャーおよびラボツアー(2021年11月26日)を行うことによって、日本政府に対する分子研のプレゼンス向上と研究力アピールに大きく貢献。

B-8) 大学での講義、客員

総合研究大学院大学物理科学研究科, 集中講義「量子動力学」, 2021年2月3日, 5日, 8日, 10日.

Heidelberg University, 客員教授(フンボルト賞受賞者), 2012年-.(2020年度後期および2021年度はcovid-19パンデミックに起因する渡航規制のため, Heidelberg大学物理学科の教員および大学院生とオンライン(Zoom)で議論・指導を進めた)

B-10) 競争的資金

文部科学省「光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)」量子情報処理・大規模基礎基盤研究, 「アト秒ナノメートル領域の時空間光制御に基づく冷却原子量子シミュレータの開発と量子計算への応用」, 大森賢治(2018年-2028年), 内閣府官民研究開発投資拡大プログラム(PRSIM), 「超高速・高機能な冷却原子型量子シミュレータ・コンピュータの高度化」, 大森賢治(2021年-2028年).

科研費特別推進研究, 「アト秒精度の超高速コヒーレント制御を用いた量子多体ダイナミクスの探求」, 大森賢治(2016年-2021年).

科研費基盤研究(B), 「強相関リユードベリ原子を用いた非平衡量子開放系の量子シミュレーション」, 素川靖司(2021年-2025年).

科研費研究活動スタート支援, 「Rydberg atoms at sub-micron distance with overlapping electronic clouds」, Sylvain de LÉSÉLEUC(2019年-2022年).

科研費研究活動スタート支援, 「冷却原子の個別観測と事後選択的統計処理に基づく開放量子多体系の研究」, 富田隆文(2019年-2022年).

B-11) 産学連携

浜松ホトニクス(株), 「超高速量子シミュレータの開発」, 大森賢治(2016年-). (上記B-10) 競争的資金に記載した「科研費・特別推進研究」の共同研究機関, 「Q-LEAP」および「PRISM」の協力研究機関として参画)

C) 研究活動の課題と展望

今後我々の研究グループでは, APMを高感度のデコヒーレンス検出器として量子論の基礎的な検証に用いると共に, より自由度の高い量子位相操作技術への発展を試みる。そしてそれらを希薄な原子分子集団や凝縮相に適用することによって, 「アト秒量子エンジニアリング」と呼ばれる新しい領域の開拓を目指している。当面は以下の5テーマの実現に向けて研究を進めている。

- ① デコヒーレンスの検証と抑制: デコヒーレンスは, 物質の波としての性質が失われて行く過程である。量子論における観測問題と関連し得る基礎的に重要なテーマであるとともに, テクノロジーの観点からは, 反応制御や量子情報処理のエラーを引き起こす主要な要因である。その本質に迫り, 制御法を探索する。
- ② 量子散逸系でのコヒーレント制御の実現: ①で得られる知見をもとにデコヒーレンスの激しい凝縮系でのコヒーレント制御法を探索する。
- ③ 原子・分子ペースの量子情報科学の開拓: アト秒精度の超高速コヒーレント制御技術によって, 原子・分子内の電子・振動固有状態を用いるユニタリ変換とそれに基づく量子情報処理の確立を目指す。さらに, 単一原子・分子の操作・読み出し技術の開発を進める。
- ④ 超高速量子シミュレータの開発: ほぼ絶対零度(~ 50 ナノケルビン)まで冷やした極低温のルビジウム原子をミクロン

レベルで整列させた人工原子結晶とアト秒精度の超高速コヒーレント制御技術を組み合わせた世界唯一・最速の「超高速量子シミュレータ」のさらなる高機能化を目指す。

- ⑤ 超高速量子コンピュータの開発：極低温のルビジウム原子をミクロンレベルで整列させた人工原子結晶とアト秒精度の超高速コヒーレント制御技術を組み合わせた世界唯一・最速の「超高速量子コンピュータ」の開発を進める。

これらの研究の途上で量子論を深く理解するための何らかのヒントが得られるかもしれない。その理解はテクノロジーの発展を促すだろう。我々が考えている「アト秒量子エンジニアリング」とは、量子論の検証とそのテクノロジー応用の両方を含む概念である。

光分子科学第三研究部門

解 良 聡（教授）（2014 年 4 月 1 日着任）

福谷 圭祐（助教）

金沢 真伍（特別共同利用研究員）

宮田 健史（特別共同利用研究員）

萩原 久代（事務支援員）

A-1) 専門領域：表面物理学，有機薄膜物性

A-2) 研究課題：

- a) シンクロトロン放射光・レーザー光励起による弱相互作用系の電子状態計測
- b) 配向分子薄膜の光電子放出強度の理論解析と分子軌道撮影法の開発
- c) 有機半導体薄膜の電荷輸送機構の研究
- d) 有機半導体薄膜の界面電子単位接合機構の研究
- e) 機能性分子薄膜の振動状態と電子励起計測
- f) 自己組織化と分子認識機能の分光研究
- g) 分子薄膜の作製と評価：成長ダイナミクス，構造と分子配向
- h) 低次元電子相関物質の物性機構解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 機能性分子薄膜の弱相互作用による電子状態変化を計測する技術開発を進めている。弱相互作用を定量的に評価するため，蒸気圧の低い大型分子対応の気相光電子分光実験装置を開発し，分子集合による電子状態の違いに関する議論を進めている。2014 年度より新たに超短パルスレーザー光を励起源とする二光子光電子分光装置を構築し，ホール緩和や励起子拡散など，電荷ダイナミクス関連の研究を開始した。UVSOR では BL7U における低エネルギー励起光を用いた角度分解光電子分光（ARPES）による界面電子状態評価を推進しつつ，BL6U における光電子運動量顕微鏡（PMM）の開発と分子系への最適化を模索している。
- b) 高配向分子薄膜からの光電子放出強度の角度依存性について，多重散乱理論による強度解析を行い，有機分子薄膜構造の定量的解析を行うための方法論を検討してきた。その後，高配向試料では広波数空間二次元分解測定が分子軌道の可視化に対応することが指摘され，新たな量子計測ツールになりうると期待されている。前述の放射光を利用した PMM 装置による高効率計測が強力である。特に単層膜界面の分子配向に依存した電子波のポテンシャル散乱と干渉問題を定量化し，局在電子系における一電子近似の限界を吟味しつつ，弱相互作用系の物理現象を議論するための新たな方法論の構築を目指している。
- c) 有機半導体のバンド分散関係：良質な配向有機結晶膜を作製し，価電子エネルギーバンド分散を測定する技術確立した。分子間相互作用の大きさ，ホール有効質量，バンド伝導移動度を評価した。有機単結晶ヘテロ界面や温度依存測定による準粒子評価などより詳細な物性議論へ向けた発展的計測を進めている。有機無機混合ペロブスカイト系にこの技術を応用し，バンド分散関係の測定に成功した。

有機半導体の電荷振動結合：配向有機超薄膜の作製により、大型の分子薄膜系における光電子スペクトルの高エネルギー分解測定を実現する方法論を開拓して、分子薄膜における伝導ホールと分子振動の結合状態を初めて実測し、ホッピング移動度（そのポーラロン効果を含む）を分光学的に得る方法を開拓した。これらの物理量を実測することで、準粒子描像に基づいた輸送機構の解明を目指している。

- d) 本質的には絶縁物である有機分子が n 型／p 型半導体として機能する起源を明らかにすべく研究を進めている。極めて高効率に光電子を捕捉し評価可能な高感度紫外光電子分光装置を開発し、バンドギャップに生じる 10ppm レベルの状態密度検出に成功した。価電子帯トップバンドの状態密度分布がガウス型から指数関数型に変化し、基板フェルミ準位まで到達している様子を捉えた。また低エネルギー逆光電子分光装置の導入により、伝導帯構造を合わせて評価することが可能となり、ドナー・アクセプター半導体分子間の弱い vdW 結合から、分子と金属原子の局所的な強い化学結合によるギャップ準位形成までを統括検討し、エネルギー準位接合機構の解明を目指している。
- e) 低速電子エネルギー損失分光により、機能性分子薄膜の振動状態と電子励起状態を測定し、弱相互作用による振動構造への影響を調べている。国際共同による二次元検出器を利用したフォノン分散実験を開始した。
- f) 表面場で織り成すパイ共役分子系の超格子構造や、分子薄膜の自己組織化機構の解明を目指している。また超分子系の固相膜を作製し、自己組織化や原子・分子捕獲などによる電子状態への影響を測定することで、分子認識機能について分光学的に研究している。プローブ顕微鏡実験を共同研究で推進し、局所構造と電子状態の相関研究を開始した。
- g) 有機分子薄膜や低次元物質の電子状態を議論する上で、試料調整方法の確立が鍵である。光電子放射顕微鏡 (PEEM)、走査プローブ顕微鏡 (STM)、高分解能低速電子線回折 (SPALED)，準安定励起原子電子分光 (MAES)、X 線定在波法 (XSW)、軟 X 線吸収分光 (NEXAFS) 等を用い、基板界面における単分子膜成長から結晶膜成長までの多様な集合状態について構造（分子配向）と成長を観察している。
- h) 電子が物質中の様々な準粒子と相互作用することにより発現する特異物性はその複雑性・多様性から根本起源が未解明であるものが多い。二次元 ARPES や PMM 法などの電子と準粒子の直接観測を可能とする分光法を用いて、主に励起子絶縁体や電荷密度波物質の電子物性の解明・制御を目指した研究プロジェクトの立ち上げを行なっている。

B-1) 学術論文

J. YANG, H. SATO, H. ORIO, X. LIU, M. FAHLMAN, N. UENO, H. YOSHIDA, T. YAMADA and S. KERA, “Accessing the Conduction Band Dispersion in $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ Single Crystals,” *J. Phys. Chem. Lett.* **12**(15), 3773–3778 (2021). DOI: 10.1021/acs.jpclett.1c00530

S. MAKITA, H. MATSUDA, Y. OKANO, T. YANO, E. NAKAMURA, Y. HASEGAWA, S. KERA, S. SUGA and F. MATSUI, “Contrast Inversion of Photoelectron Spectro-Microscopy Image,” *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **19**, 42–47 (2021). DOI: 10.1380/ejssnt.2021.42

S. PARK, H. WANG, T. SCHULTZ, D. SHIN, R. OVSYANNIKOV, M. ZACHARIAS, D. MAKSIMOV, M. MEISSNER, Y. HASEGAWA, T. YAMAGUCHI, S. KERA, A. ALJARIB, A. HAN, L.-J. LI, V. C. TUNG, P. AMSALEM, M. ROSSI and N. KOCH, “Temperature-Dependent Ground State Charge Transfer in van der Waals Heterostructures,” *Adv. Mater.* **33**(29), 2008677 (9 pages) (2021). DOI: 10.1002/adma.202008677

M. NOZAKI, M. HANIUDA, K. NIKI, T. FUJIKAWA and S. KERA, “Many-Body Photoemission Theory for Organic Molecular Crystals,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **249**, 147071 (9 pages) (2021). DOI: 10.1016/j.elspec.2021.147071

R. NEMOTO, P. KRUEGER, T. HOSOKAI, M. HORIE, S. KERA and T. YAMADA, “Room-Temperature Deposition of Cobalt Monolayer on (7×4) Crown-Ether Ring Molecular Array: Ultra-High Vacuum Scanning Tunneling Microscopy Study,” *Vac. Surf. Sci.* **63(9)**, 465–469 (2020). DOI: 10.1380/vss.63.465 (in Japanese)

F. MATSUI, S. MAKITA, H. MATSUDA, E. NAKAMURA, Y. OKANO, T. YANO, S. KERA and S. SUGA, “Valence Band Dispersion Embedded in Resonant Auger Electrons,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **90(12)**, 124710 (9 pages) (2021). DOI: 10.7566/JPSJ.90.124710

J.-P. YANG, M.-F. YANG, G.-B. TANG and S. KERA, “Density of Gap States in CH₃NH₃PbI₃ Single Crystals Probed with Ultrahigh-Sensitivity Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy,” *J. Phys. Condens. Matter* **33(47)**, 475001 (5 pages) (2021). DOI: 10.1088/1361-648X/ac22da

J. HAGENLOCHER, N. SCHEFFCZYK, K. BROCH, G. DUVA, N. RUßEGGER, L. EGENBERGER, R. BANERJEE, S. KERA, F. SCHREIBER and A. HINDERHOFER, “On the Origin of Gap States in Molecular Semiconductors—A Combined UPS, AFM, and X-Ray Diffraction Study,” *J. Phys. Chem. C* **125(32)**, 17929–17938 (2021). DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c03096

J. HAGENLOCHER, K. BROCH, M. ZWADLO, D. LEPPLE, J. RAWLE, F. CARLA, S. KERA, F. SCHREIBER and A. HINDERHOFER, “Thickness-Dependent Energy-Level Alignment at the Organic–Organic Interface Induced by Templated Gap States,” *Adv. Mater. Interfaces* **9(3)**, 2101382 (7 pages) (2021). DOI: 10.1002/admi.202101382

Y. NAKAYAMA, K. SUDO, N. OHASHI, S. KERA and Y. WATANABE, “Interface Electronic Structure and Valence Band Dispersion of Bis(1,2,5-thiadiazolo)-*p*-quinobis(1,3-dithiole) on Polycrystalline Au Electrodes,” *Electron. Struct.* **3(2)**, 24006 (2021). DOI: 10.1088/2516-1075/ac0124

K. FUKUTANI, R. STANIA, C. IL KWON, J. S. KIM, K. J. KONG, J. KIM and H. W. YEOM, “Detecting Photoelectrons from Spontaneously Formed Excitons,” *Nat. Phys.* **17(9)**, 1024–1030 (2021). DOI: 10.1038/s41567-021-01289-x

B-3) 総説, 著書

F. MATSUI, S. MAKITA, Y. OKANO, H. MATSUDA and S. KERA, “Photoelectron Momentum Microscope: Development at UVSOR Synchrotron Facility,” *Vac. Surf. Sci.*, **64(6)**, 262–268 (2021). DOI: 10.1380/vss.64.262 (in Japanese)

S. KERA, “Development of Photoelectron Momentum Microscope to Molecular Science,” *Vac. Surf. Sci.*, **64(6)**, 254–261 (2021). DOI: 10.1380/vss.64.254 (in Japanese)

B-4) 招待講演

K. FUKUTANI and S. KERA, “Anisotropic charge localization upon strong phonon and vibronic couplings,” 734th WE-Heraeus-Seminar, Photoemission Tomography: Applications and Future Developments, Germany (online/hybrid), October 2021.

S. KERA and F. MATSUI, “Present status of UVSOR photoelectron momentum microscope: A case study for molecular film,” 2022 Taiwan-AVS symposium: Exploring the emergent properties of advanced materials with synchrotron-based techniques, Taiwan (online), January 2022.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

VUVX (International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-Ray Physics) 真空紫外光物理およびX線物理国際会議
国際諮問委員 (2014–).

SRI (International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation) シンクロトロン放射装置技術国際会議国際
諮問委員 (2018–).

AOF (Asia Oceania Forum for Synchrotron Radiation Research) アジア・オセアニア放射光研究評議会庶務委員
(2021–).

日本放射光学会評議員 (2020–).

学会の組織委員等

第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム 組織委員会委員 (2021).

The 10th Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications (ASOMEA-X), International
Committee (Tokyo, Japan 2021).

文部科学省、学術振興会、大学共同利用機関等の委員等

東京大学物性研究所軌道放射物性研究施設運営委員会委員 (2018–).

SPRing-8 ユーザー協同体 (SPRUC) 機関代表者 (2019–).

KEK 加速器・共通基盤研究施設運営会議委員 (2021–).

KEK 物質構造科学研究所運営会議委員 (2021–).

学会誌編集委員

Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, Editorial Board (2015–).

B-8) 大学での講義、客員

東北大学大学院理学研究科, 委嘱教授, 「強相関電子物理学特論」, 2020年–.

千葉大学大学院融合科学研究科, 連携客員教授, 2014年9月–.

千葉大学大学院融合科学研究科, 「ナノ創造物性工学特論II」, 2014年9月–.

蘇州大学, 客員教授, 2014年4月–.

B-10) 競争的資金

科研費国際共同研究加速基金 (国際共同研究強化(B)), 「光電子波数顕微鏡法で切り拓くナノスピン・オービトロニクス」, 解良 聡 (2019年–).

NINS-DAAD 国際研究者交流事業, Advanced Spectroscopy of Epitaxial Organic Films Grown on Modern 2D Material, 解良 聡 (2021年–).

科研費研究活動スタート支援, 「励起子絶縁体における自発的励起子生成メカニズムの解明」, 福谷圭祐 (2021年–).

C) 研究活動の課題と展望

機能性分子に代表される弱相互作用物質系の高配向試料作製法と精密電子状態計測で蓄積したノウハウを集結し、分子集合体における「電子の真の姿を見出すこと」でその機能・物性の根源を理解することを主眼とし、様々な放射

光利用先端分光法や独自に開発した分光装置群を駆使して多角的に研究を進めている。2021年度より助教が着任し、低次元物性と精密計測に関する研究力を強化した。一方、UVSOR 施設長として国内コミュニティの基盤強化を推進するための利用支援に注力している。2020年2月に放射光利用実験の新規軸として、PMM 装置を導入した。松井教授らと共に装置開発を進めている。欧米からの遅れを取り戻すべく基本設計に独自性を含めた発展的な計画としており、2022年度冒頭にスピン検出機能追加による装置更新作業を予定しており、多彩な計測機能をもつ複合システムの完成を目指す。ドイツの装置開発拠点であるユーリッヒ研究所との学術協定および国際共同研究加速基金(B)によって、装置開発とその利用展開についての国際共同研究を推進する。グループの寄与としては分子固体系のオールジャパン体制(実験班、理論班)を構築し、戦略的に上記装置を利用した新奇実験を牽引する。国内外で類似の新型装置の導入が計画されているため、短期間にUVSOR 施設の地位を確立し、優位性を確実なものにする必要がある。長期計画として次世代研究施設UVSOR-IV 計画の具体化作業を開始した。国内外施設およびコミュニティの情報収集に邁進している。

長 坂 将 成 (助教) (2007 年 4 月 1 日着任)

萩原 久代 (事務支援員)

石川 裕子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：物理化学，軟X線分光学

A-2) 研究課題：

- a) 軟X線吸収分光法による溶液の局所構造解析
- b) 溶液の軟X線吸収分光法の低エネルギー領域への開拓
- c) 軟X線吸収分光法の生命科学への展開
- d) 超高速軟X線吸収分光法による金属錯体溶液の光励起過程の解明

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 1 keV 以下の軟X線領域には炭素，窒素，酸素の K 吸収端や遷移金属の L 吸収端が存在するため，軟X線吸収分光 (XAS) 法は溶液の局所構造を元素選択的に調べることができる有用な手法である。我々は液体層の精密厚さ制御法 (20 ~ 2000 nm) を独自に開発することで，溶液の XAS 測定を実現した。更に，XAS スペクトルのエネルギーシフトの高精度測定と量子化学に基づく内殻励起計算から，異なる元素ごとに溶液中の分子間相互作用を調べる手法を確立した。最近では，異なる濃度のエタノール水溶液の C-K 吸収端 XAS 測定から，中間の濃度領域でエタノール分子が疎水性相互作用によりクラスター形成することを見出した。
- b) 200 eV 以下の低エネルギー領域には，Li, B の K 吸収端や Si, P, S, Cl の L 吸収端が存在するため，化学研究において重要である。しかしながら，低エネルギー領域では，目的の一次回折光の透過率が極端に小さくて，一次回折光の強度変化が高次回折光の寄与に埋もれてしまうため，XAS 測定は不可能であった。軟X線透過率の計算から，液体セルを満たすアルゴンの光路長を 2.6 mm にすれば，XAS 測定が行えることが分かった。そこで，アルゴン光路長を 2.6 mm にする超薄型液体セルを開発した。
- c) XAS の生命科学への展開を目指して，光化学系 II (PSII) タンパク質の酸素発生中心 Mn_4CaO_5 クラスターの XAS 測定を行った。液体層を構成する Si_3N_4 膜に PSII タンパク質包含脂質二重膜を調製することで，PSII が光活性を維持した状態で Si_3N_4 膜への担持に成功した。これにより，PSII の Mn_4CaO_5 クラスターの O-K 吸収端 XAS スペクトルを得ることができた。今後は，PSII タンパク質の担持量を増やすことで，Mn-L, Ca-L 吸収端 XAS 測定の実現を目指しているところである。
- d) 金属錯体溶液の光励起過程を調べるために，70 ps の時間分解能の超高速 XAS 法を開発を行った。軟X線 XAS 法は，鉄錯体における中心金属 (Fe-L) と配位子 (C, N-K) の両方の電子状態を調べることができる特長があり，我々もヘミン水溶液において，Fe-L, N-K 吸収端 XAS 測定に成功している。現在，鉄フェナントロリン水溶液の超高速 XAS 測定を行っていて，N-K 吸収端から配位子の構造変化を示唆するスペクトル変化を得た。今後は，レーザーと軟X線のポンプ・プローブ測定を異なる遅延時間で行うことで，金属錯体溶液の光励起過程における中心金属 (Fe-L) と配位子 (N-K) の電子状態の時間変化を得ることを目指している。

B-1) 学術論文

S. TSURU, B. SHARMA, M. NAGASAKA and C. HÄTTIG, “Solvent Effects in the Ultraviolet and X-Ray Absorption Spectra of Pyridazine in Aqueous Solution,” *J. Phys. Chem. A* **125**(33), 7198–7206 (2021). DOI: 10.1021/acs.jpca.1c05183

D. AKAZAWA, T. SASAKI, M. NAGASAKA and M. SHIGA, “X-Ray Absorption Spectra of Aqueous Cellobiose: Experiment and Theory,” *J. Chem. Phys.* **156**, 044202 (7 pages) (2022). DOI: 10.1063/5.0078963

B-3) 総説, 著書

M. NAGASAKA and N. KOSUGI, “Soft X-Ray Absorption Spectroscopy for Observing Element-Specific Intermolecular Interaction in Solution Chemistry,” *Chem. Lett.* **50**(5), 956–964 (2021). DOI: 10.1246/cl.200938

B-4) 招待講演

長坂将成, 「軟X線吸収分光法による溶液反応のオペランド観測」, 日本学術振興会 69委員会第2分科会(新素材関連技術)第74回研究会「機能材料開発を支えるその場(In-situ)・動作環境下(Operando)計測技術の最近の進展」, オンライン開催, 2021年7月.

長坂将成, 「SX吸収散乱の現状と展開」, UVSOR 第4回次期施設建設検討会, オンライン開催, 2021年11月.

M. NAGASAKA, “Soft X-ray absorption spectroscopy of liquids for understanding chemical processes in solution,” The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2021 (Pacifichem 2021) “Frontiers of Higher Energy UV Spectroscopy,” Honolulu (U. S. A.) (online), December 2021.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「超高速軟X線吸収分光法による光化学系IIタンパク質の光合成反応の機構解明」, 長坂将成(2019年–2021年).

公益財団法人ソルト・サイエンス研究財団一般公募研究助成, 「軟X線吸収分光法による塩水溶液の水和構造の濃度依存性の解明」, 長坂将成(2021年).

科研費挑戦的研究(萌芽), 「生体膜へのイオン配位状態の分子レベルでの理解: 水中X線吸収分光」(代表: 手老龍吾), 長坂将成(研究分担者)(2020年–2021年).

自然科学研究機構分野融合型共同研究事業, 「マイクロ波による化学反応加速機構の解明」(代表: 高谷 光), 長坂将成(研究分担者)(2020年–2021年).

科研費基盤研究(B), 「励起キャリア移動の指向性制御による高効率光触媒表面の構築」(代表: 吉田真明), 長坂将成(研究分担者)(2021年–2023年).

光源加速器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

加 藤 政 博（特任教授）（2019 年 4 月 1 日着任）
（クロスアポイントメント；広島大学放射光科学センター）

藤本 将輝（助教）（クロスアポイントメント；名古屋大学シンクロトロン光研究センター）
稲垣 いつ子（事務支援員）
石原 麻由美（事務支援員）
加茂 恭子（事務支援員）

A-1) 専門領域：ビーム物理学，加速器科学，放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) シンクロトロン光源の研究
- b) 自由電子レーザーの研究
- c) 相対論的電子ビームからの電磁放射の研究
- d) 量子ビームの発生と応用に関する研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) シンクロトロン光源 UVSOR の性能向上に向けた開発研究を継続している。電子ビーム光学系の最適化による電子ビーム輝度の大幅な向上，電子ビーム強度を一定に保つトップアップ入射の導入などに成功し，低エネルギー放射光源としては世界最高水準の光源性能を実現した。高輝度放射光発生のために真空封止アンジュレータ 3 台，可変偏光型アンジュレータ 3 台を設計・建設し，稼働させた。UVSOR の将来計画に関する設計研究に着手し，既存加速器の更なる高度化の可能性，新しい光源加速器の検討を進めている。
- b) 自由電子レーザーや関連技術に関する研究を継続している。蓄積リング自由電子レーザーとして世界最高の出力を記録した。また，共振器型自由電子レーザーに関する基礎研究を進め，レーザー発振のダイナミクスやフィードバック制御に関する先駆的な成果を上げた。外部レーザーを用いて電子パルス上に微細な密度構造を形成することでコヒーレント放射光を極紫外領域やテラヘルツ領域において生成する研究を継続している。この手法により一様磁場中から準単色テラヘルツ放射光を発生することに世界に先駆けて成功した。電子パルス上に形成された密度構造の時間発展に関するビームダイナミクス研究により先駆的な成果を上げた。
- c) 高エネルギー電子ビームによる光渦の生成に成功し，その原理の解明に世界に先駆けて成功した。自然界での光渦の生成の可能性について，研究を進めると共に，深紫外・真空紫外領域での物質系と光渦の相互作用に関する基礎研究を進めている。
- d) 外部レーザーと高エネルギー電子線を用いた逆コンプトン散乱によるエネルギー可変，偏光可変の極短ガンマ線パルス発生に関する研究を継続している。パルス幅数ピコ秒以下の超短ガンマ線パルスの生成，エネルギー可変性の実証に成功した。光陰極を用いた電子源の開発を進めた。また，これら偏極量子ビームの応用研究の開拓を進めている。
- e) アンジュレータ放射光波束の時間構造に着目した研究に原子分子物理学研究者と共同で取り組み，2 連のアンジュレータからの自然放射を用いた孤立原子の量子状態制御に世界で初めて成功した。放射光の時間構造や干渉性の実験的検証を進め，全く新しい放射光利用法の開拓を進めている。

B-1) 学術論文

Y. HIKOSAKA, T. KANEYASU, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH, “Reply to ‘Comment on “Coherent Control in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation”’,” *Nat. Commun.* **12(1)**, 3782 (3 pages) (2021). DOI: 10.1038/s41467-021-24029-4

K. ALI, H. ZEN, H. OHGAKI, T. KII, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, H. TOYOKAWA, M. FUJIMOTO, Y. TAIRA and M. KATOH, “Three-Dimensional Nondestructive Isotope-Selective Tomographic Imaging of ^{208}Pb Distribution via Nuclear Resonance Fluorescence,” *Appl. Sci. (Switzerland)* **11(8)**, 3415 (14 pages) (2021). DOI: 10.3390/app11083415

E. SALEHI and M. KATOH, “Spatial Structure and Angular Momentum of Electro-Magnetic Wave Radiated from a Relativistic Electron Moving on a Spiral Orbit,” *J. Adv. Simulat. Sci. Eng.* **8(1)**, 87–97 (2021). DOI: 10.15748/jasse.8.870

K. ALI*, H. ZEN, H. OHGAKI, T. KII, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, M. KATOH, Y. TAIRA, M. FUJIMOTO and H. TOYOKAWA, “Fusion Visualization Technique to Improve a Three-Dimensional Isotope-Selective CT Image Based on Nuclear Resonance Fluorescence with a Gamma-CT Image,” *Appl. Sci. (Switzerland)* **11(24)**, 11866 (17 pages) (2021). DOI: 10.3390/app112411866

B-4) 招待講演

M. KATOH, “Structured high energy photons radiated from relativistic electrons,” 3rd International Conference on Nuclear Photonics, Online, June 2021.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

日本加速器学会評議員 (2008–2009, 2014–2017, 2020–).

日本放射光学会評議員 (2006–2009, 2010–2012, 2013–2015, 2016–2018, 2019–2021).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

高エネルギー加速器研究機構教育研究評議会評議員 (2021–).

高エネルギー加速器研究機構加速器研究施設運営委員 (2018–).

その他

あいちシンクロトロン光センター運営委員 (2013–).

B-8) 大学での講義, 客員

名古屋大学シンクロトロン光研究センター, 客員教授, 2018年4月–.

高エネルギー加速器研究機構加速器研究施設, 客員教授, 2018年4月–.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(A), 「放射光の位相構造制御法の開発」, 加藤政博 (2020年–2022年).

C) 研究活動の課題と展望

UVSOR は 2000 年以降の継続的な高度化により、低エネルギーのシンクロtron光源としては世界的にも最高レベルの性能に到達したが、国内外では新しい光源の建設稼働が相次ぎ、更なる競争力の向上が求められている。現在の加速器の更なる高度化の可能性を探るとともに、回折限界を目指す全く新しい加速器の建設についても検討を進める。

高エネルギー自由電子を用いた光発生として、自由電子レーザーやレーザーコンプトン散乱ガンマ線、コヒーレントシンクロtron放射の発生法の開発や高度化、それらの利用法の開拓に取り組んできた。最近では光子の時空間構造やその干渉性の実験的検証やその利用法の開拓に挑戦している。放射光による光渦の生成、さらに放射光光渦同士 of 合成によるベクトルビーム発生など、UVSOR の研究環境を活用して世界に先駆けた研究ができた。また、二連アンジュレータから放射される光子の時空間構造を利用した量子状態制御について先駆的な成果が出ている。相対論的自由電子からの電磁放射の時空間構造の制御とその応用というこれまで全く着目されていなかった領域を切り拓きつつあり、今後はさらに基礎研究を進めるとともに幅広く応用展開の可能性を探っていきたい。

電子ビーム制御研究部門（極端紫外光研究施設）

平 義 隆（准教授）（2020 年 4 月 1 日着任）

杉田 健人（助教）

SALEHI, Elham（特任研究員）

神山 和輝（特別共同利用研究員）

山本 涼平（特別共同利用研究員）

田部 圭梧（特別共同利用研究員）

後藤 啓太（特別共同利用研究員）

稲垣 いつ子（事務支援員）

石原 麻由美（事務支援員）

加茂 恭子（事務支援員）

A-1) 専門領域：ガンマ線計測，陽電子計測，光渦計測

A-2) 研究課題：

- a) 超短パルスガンマ線の発生と利用研究
- b) 短波長光渦の発生と計測技術開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 世界の放射光施設でも UVSOR の独自技術である超短パルスガンマ線を用いた陽電子消滅分光によるバルク材料のナノメートル欠陥分析に関する研究である。超短パルスガンマ線は、フェムト秒レーザーと 750MeV 電子ビームの 90 度衝突逆トムソン散乱によって発生し、そのパルス幅はサブピコ秒からピコ秒オーダーである。この超短パルス性とバックグラウンドの低さを活かしたガンマ線の利用研究として、陽電子消滅分光法による材料中の欠陥分析をユーザーに提供している。陽電子は、対生成と呼ばれる現象によって材料内部でガンマ線から発生し、材料中の欠陥に捕獲される。欠陥の大きさによって陽電子の寿命が変化するために、陽電子寿命を測定することで材料中の欠陥を非破壊で分析することができる。さらに、ガンマ線は物質に対する透過率が高いために厚さ数 cm のバルク材料の欠陥分析を行うことが可能である。2021 年度は、新しいレーザー導入チャンバーを電子蓄積リングに導入し、ガンマ線の強度が 40 倍になったことを確認した。陽電子の寿命測定に加えて、寿命運動量相関測定法の開発も開始しており、分析技術の拡充を目指す。また、パルスではない連続ガンマ線を用いたユーザー利用も行っており、ユーザー執筆の論文が発表された。陽電子消滅分光法とガンマ線の施設利用及び協力研究と有償利用（民間企業）の全申請件数は、2020 年度が 8 件、2021 年度 15 件と順調に伸びており、今後の成果発表が期待される。
- b) 本研究課題では、らせん波面を形成するエネルギー sub-MeV 以上のガンマ線渦を世界に先駆けて開発し、素粒子や原子核、物性研究への応用開拓を行うことを最終目標としている。このガンマ線は、位相構造がらせんであるために軌道角運動量（Orbital angular momentum: OAM）を運ぶということに大きな特徴がある。ガンマ線渦の発生には、平らが初めて見出した電子ビームと高強度円偏光レーザーの非線形逆トムソン散乱法を用いる。2019 年度から関西光科学研究所において高強度レーザーと 150MeV マイクロトロン電子加速器を用いた実験を行っており、光渦の特徴である空間分布が円環になることを測定することを目標としている。また、UVSOR においても非線形逆トムソン

散乱実験を行うため、パルスエネルギー 50 mJ のレーザー装置の立ち上げを現在行っている。一方で、UVSOR の円偏光アンジュレータを用いて発生できる紫外光領域の光渦の計測技術開発も行っている。アンジュレータから発生する光渦に関しては世界の他の施設でも行われており、円偏光モードでの計測だけが行われていた。平らの計算により、楕円偏光モードでも位相構造をもつ光渦が発生することが新たに分かり、UVSOR で実証実験を行った。光渦を2重スリットに通したときの干渉縞をサンプリングモアレ法によって位相解析することで光渦の位相構造を測定し、計算との比較を行った。この結果に関して論文が *New Journal of Physics* に掲載された。

B-1) 学術論文

K. ALI, H. ZEN, H. OHGAKI, T. KII, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, H. TOYOKAWA, M. FUJIMOTO, Y. TAIRA and M. KATOH, “Three-Dimensional Nondestructive Isotope-Selective Tomographic Imaging of ^{208}Pb Distribution via Nuclear Resonance Fluorescence,” *Appl. Sci. (Switzerland)* **11(8)**, 3415 (14 pages) (2021). DOI: 10.3390/app11083415

K. ALI, H. OHGAKI, H. ZEN, T. KII, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, H. TOYOKAWA, Y. TAIRA, V. IANCU, G. TURTURICA, C. A. UR, M. FUJIMOTO and M. KATOH, “Selective Isotope CT Imaging Based on Nuclear Resonance Fluorescence Transmission Method,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **67(8)**, 1976–1984 (2020). DOI: 10.1109/TNS.2020.3004565

E. SALEHI and M. KATOH, “Spatial Structure and Angular Momentum of Electro-Magnetic Wave Radiated from a Relativistic Electron Moving on a Spiral Orbit,” *J. Adv. Simulat. Sci. Eng.* **8(1)**, 87–97 (2021). DOI: 10.15748/jasse.8.870

K. ALI, H. ZEN, H. OHGAKI, T. KII, T. HAYAKAWA, T. SHIZUMA, M. KATOH, Y. TAIRA, M. FUJIMOTO and H. TOYOKAWA, “Fusion Visualization Technique to Improve a Three-Dimensional Isotope-Selective CT Image Based on Nuclear Resonance Fluorescence with a Gamma-CT Image,” *Appl. Sci. (Switzerland)* **11(24)**, 11866 (17 pages) (2021). DOI: 10.3390/app112411866

B-4) 招待講演

平 義隆, 「高エネルギー電子ビームを用いた新規ガンマ線源開発と利用研究」, 電気学会調査専門委員会「放射線技術を利用した微量分析およびイメージング技術」, オンライン開催, 2021 年 12 月.

B-6) 受賞, 表彰

平 義隆, 第 64 回放射線化学討論会優秀賞 (一般) (2021).

山本涼平, 2021 年度ビーム物理研究会若手の会若手発表賞 (2021).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

ビーム物理研究会 若手の会 幹事 (2020–).

学会の組織委員等

日本加速器学会第 18 回年会組織委員 (2020–2021).

日本加速器学会第 18 回年会プログラム委員 (2021).

日本加速器学会第 19 回年会組織委員 (2021–2022).

日本加速器学会第 19 回年会プログラム委員 (2022).

学会誌編集委員

日本放射光学会誌「放射光」編集委員 (2019–2021).

B-8) 大学での講義, 客員

理化学研究所, 客員研究員, 2018年9月–.

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B) (一般), 「超短パルスガンマ線を用いた陽電子寿命運動量相関測定法の開発と利用研究の推進」,
平 義隆 (2021年–2024年).

科研費基盤研究(A), 「放射光の位相構造制御法の開発」 (代表: 加藤政博), 平 義隆 (研究分担者) (2020年–2023年).

C) 研究活動の課題と展望

陽電子消滅分光法に関しては, 陽電子寿命測定法と寿命運動量相関測定法に加えて, 同時計数ドップラー拡がり法
やスピン偏極陽電子の発生と計測技術開発を行い, 分析技術の拡充を図る。計算上はパルス幅数ピコ秒のガンマ線
が発生していると考えられるが, 超短パルスガンマ線のパルス幅計測手法の開発も行う。光渦に関しては, ガンマ
線の波面計測の技術を開発し, らせん波面を形成するガンマ線渦が発生していることを実験的に実証する。

大 東 琢 治 (助教) (2011 年 8 月 1 日～2022 年 1 月 31 日)*)
(准教授) (2022 年 2 月 1 日着任)
(クロスアポイントメント；KEK 物質構造科学研究所)

稲垣 いつ子 (事務支援員)
石原 麻由美 (事務支援員)
加茂 恭子 (事務支援員)

A-1) 専門領域：X線光学

A-2) 研究課題：

- a) 走査型透過軟X線顕微鏡ビームラインの発展
- b) 走査型透過軟X線顕微鏡を用いた応用手法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 高次光フィルター機能を備えた高効率の集光光学素子 (Fresnel zone plate, FZP) の開発により, リチウム K 吸収端 (~55 eV) の高分解能吸収分光を可能とした。この際にビームラインの高次光強度を定量的に測定する手法の開発を行い, 含有高次光強度を測定したところ, 0.1%以下まで除去されていることがわかった。これに伴って, FZP の回折限界である空間分解能 72 nm を達成した。
- b) 昨年度まで開発を行ってきた大気非曝露試料搬送システムを用いて, 100% 充電状態のリチウムイオン電池の, 大気曝露下での劣化条件のプロセスの解明を行った。

B-1) 学術論文

H. SUGA, K. SUZUKI, T. USUI, A. YAMAGUCHI, O. SEKIZAWA, K. NITTA, Y. TAKEICHI, T. OHIGASHI and Y. TAKAHASHI, “A New Constraint on the Physicochemical Condition of Mars Surface during the Amazonian Epoch Based on Chemical Speciation for Secondary Minerals in Martian Nakhilites,” *Minerals* **11**(5), 514 (25 pages) (2021). DOI: 10.3390/min11050514

G. GERMER, T. OHIGASHI, H. YUZAWA, N. KOSUGI, R. FLESCHE, F. RANCAN, A. VOGT and E. RÜHL, “Improved Skin Permeability after Topical Treatment with Serine Protease: Probing the Penetration of Rapamycin by Scanning Transmission X-Ray Microscopy,” *ACS Omega* **6**(18), 12213–12222 (2021). DOI: 10.1021/acsomega.1c01058

N. SHIRAI, Y. KAROUJI, K. KUMAGAI, M. UESUGI, K. HIRAHARA, M. ITO, N. TOMIOKA, K. UESUGI, A. YAMAGUCHI, N. IMAE, T. OHIGASHI, T. YADA and M. ABE, “The Effects of Possible Contamination by Sample Holders on Samples to Be Returned by Hayabusa2,” *Meteorit. Planet. Sci.* **55**(79), 1665–1680 (2020). DOI: 10.1111/maps.13480

T. HARANO, Y. TAKEICHI, T. OHIGASHI, D. SHINDO, E. NEMOTO, D. WAKABAYASHI, S. YAMASHITA, R. MURAO and M. KIMURA, “Azimuthal-Rotation Sample Holder for Molecular Orientation Analysis,” *J. Synchrotron Radiat.* **27**, 1167–1171 (2020). DOI: 10.1107/S160057752000990X

- J.-J. V. VÉLEZ, Y.-Y. CHIN, M.-H. TSAI, O. J. BURTON, R. WANG, S. HOFMANN, W.-H. HSU, T. OHIGASHI, W.-F. PONG and C.-H. CHUANG, “Evidence of Synergistic Electrocatalysis at a Cobalt Oxide–Graphene Interface through Nanochemical Mapping of Scanning Transmission X-Ray Microscopy,” *Chin. J. Phys.* **76**, 135–144 (2022). DOI: 10.1016/j.cjph.2021.09.018
- Y.-A. CHEN, H.-W. SHIU, Y.-J. HSU, L. E. MUNDT, W.-T. HUNG, T. OHIGASHI, M.-H. LI and P. CHEN, “Effect of the Large-Size A-Site Cation on the Crystal Growth and Phase Distribution of 2D/3D Mixed Perovskite Films via a Low-Pressure Vapor-Assisted Solution Process,” *J. Phys. Chem. C* **125**(48), 26601–26612 (2021). DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c07795
- J. S. D. RODRIGUEZ, T. OHIGASHI, C.-C. LEE, M.-H. TSAI, C.-C. YANG, C.-H. WANG, C. CHEN, W.-F. PONG, H.-C. CHIU and C.-H. CHUANG, “Modulating Chemical Composition and Work Function of Suspended Reduced Graphene Oxide Membranes through Electrochemical Reduction,” *Carbon* **185**, 410–418 (2021). DOI: 10.1016/j.carbon.2021.09.015
- S. MITSUNOBU, Y. OHASHI, H. MAKITA, Y. SUZUKI, T. NOZAKI, T. OHIGASHI, T. INA and Y. TAKAKI, “One-Year In Situ Incubation of Pyrite at the Deep Seafloor and Its Microbiological and Biogeochemical Characterizations,” *Appl. Environ. Microbiol.* **87**(23), e0097721 (2021). DOI: 10.1128/AEM.00977-21
- H.-T. WANG, J.-W. CHIOU, K.-H. CHEN, A. R. SHELKE, C.-L. DONG, C.-H. LAI, P.-H. YEH, C.-H. DU, C.-Y. LAI, K. ASOKAN, S.-H. HSIEH, H.-W. SHIU, C.-W. PAO, H.-M. TSAI, J.-S. YANG, J.-J. WU, T. OHIGASHI and W.-F. PONG, “Role of Interfacial Defects in Photoelectrochemical Properties of BiVO₄Coated on ZnO Nanodendrites: X-Ray Spectroscopic and Microscopic Investigation,” *ACS Appl. Mater. Interfaces* **13**(35), 41524–41536 (2021). DOI: 10.1021/acsami.1c08522
- M. ITO, Y. TAKANO, Y. KEBUKAWA, T. OHIGASHI, M. MATSUOKA, K. KIRYU, M. UESUGI, T. NAKAMURA, H. YUZAWA, K. YAMADA, H. NARAOKA, T. YADA, M. ABE, M. HAYAKAWA, T. SAIKI, S. TACHIBANA and HAYABUSA2 PROJECT TEAM, “Assessing the Debris Generated by the Small Carry-On Impactor Operated from the Hayabusa2 Mission,” *Geochem. J.* **5**(4), 223–239 (2021). DOI: 10.2343/geochemj.2.0632
- M. YOSHIDA, M. MIYAHARA, H. SUGA, A. YAMAGUCHI, N. TOMIOKA, T. SAKAI, H. OHFUJI, F. MAEDA, I. OHIRA, E. OHTANI, S. KAMADA, T. OHIGASHI, Y. INAGAKI, Y. KODAMA and N. HIRAO, “Elucidation of Impact Event Recorded in the Lherzolithic Shergottite NWA 7397,” *Meteorit. Planet. Sci.* **56**(9), 1729–1743 (2021). DOI: 10.1111/maps.13735
- Y. KEBUKAWA, M. E. ZOLENSKY, C. A. GOODRICH, M. ITO, N. O. OGAWA, Y. TAKANO, N. OHKOUCHI, K. KIRYU, M. IGISU, T. SHIBUYA, M. A. MARCUS, T. OHIGASHI, J. MARTINEZ, Y. KODAMA, M. H. SHADDAD and P. JENNISKENS, “Organic Matter in Carbonaceous Chondrite Lithologies of Almahata Sitta: Incorporation of Previously Unsourced Carbonaceous Chondrite Lithologies into Ureilitic Regolith,” *Meteorit. Planet. Sci.* **56**(7), 1311–1327 (2021). DOI: 10.1111/maps.13713

B-4) 招待講演

大東琢治, 「はやぶさ2帰還試料の顕微有機物分析とアウトリーチ活動」, ビーム物理若手の会, online, 2021年5月.

大東琢治, 「走査型透過X線顕微鏡による分光イメージングの最前線」, SRセミナー, 立命館大学SRセンター, 草津, 2021年7月.

大東琢治,「はやぶさ2帰還試料の顕微有機物分析」, ILC 技術セミナー & 岩手大学加速器科学連続セミナー, online, 2021年8月.

大東琢治,「走査型透過X線顕微鏡による有機物分光イメージングの現状」, 高分子学会, online, 2021年9月.

大東琢治,「走査型透過X線顕微鏡による顕微分析の先端研究——はやぶさ2, ドラッグデリバリー, アポトーシス——」, 日本分析化学会, online, 2021年9月.

大東琢治,「走査型透過軟X線顕微鏡による高分解能化学状態解析」, 格子欠陥フォーラム, online, 2021年9月.

大東琢治,「宇宙の中のミクロ, ミクロの中の宇宙 はやぶさ2帰還試料のナノ有機物分析」, 分子科学研究所一般公開, online, 2021年10月.

大東琢治,「UVSOR におけるはやぶさ2帰還試料の有機物分析」, OPJ2021, online, 2021年10月.

大東琢治,「走査型透過X線顕微鏡による分光イメージングの最前線」, あいちSR講演会, あいちシンクロトロン光センター, 瀬戸, 2021年12月.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

SpectroNanoscapy Workshop, Organizing Committee (2014-).

X線結像光学研究会幹事 (2015-).

第35回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム座長 (2022).

応用物理学会シンポジウム「軟X線イメージングの描く未来」座長 (2021).

学会誌編集委員

Synchrotron Radiation News, Editor (2017-2021).

その他

とよた科学体験館「X線で見るととても小さな物質の宇宙～ドラッグデリバリーからはやぶさ2まで～」講演 (2021).

中日文化センター「はやぶさ2で帰還した石の有機物分析」講演 (2022).

B-8) 大学での講義, 客員

立命館大学 SR センター, 特別研究員, 2011年8月-.

B-11) 産学連携

共同研究, (株)住友ゴム工業,「走査型透過X線顕微鏡を用いたポリマー中の薬品・添加剤の分散及び化学状態解析」, 大東琢治 (2017年-2021年).

C) 研究活動の課題と展望

ナノバブルは直径 180 nm 程度の泡であり, 気圧より高いとされる内部圧力や, 表面電荷を有しているなど, 独特の物性を持つ。すでに半導体の洗浄などの応用利用がされてはいるものの, サイズが小さい上に, 内部が気体の泡であることによる測定の難しさから, それらの物性やメカニズムは未解明の部分が多い。そこで軟X線領域において, エネルギーに対する変化は吸収より屈折の方が大きいことに着目し, STXM を用いてX線微分位相差顕微光学系の構築を行う。これにより得られる情報は, 試料の2次元微分位相分布である。これをエネルギーを走引して測定を

行うことにより、スペクトロスコーピーに応用したDiffraction Anomalous Fine Structure (DAFS)測定を行う。DAFSはKramers-Kronigの関係より吸収スペクトルへと変換されるので、化学的解釈が可能である。特に軟X線領域においては、適切な測定手法がこれまでなかったことから、報告例は著者の知識の限りでは未だ存在しない。今後の主題として、X線位相微分相差顕微光学系の構築に伴う位相分布測定手法の確立を行う。またこの手法を応用して、ナノバブルの物性解明を行なっていく予定である。

＊) 2022年2月1日高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所准教授

光物性測定器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

松 井 文 彦（主任研究員）（2018 年 4 月 1 日～2021 年 11 月 15 日）
（教授）（2021 年 11 月 16 日昇任）

松田 博之（特任研究員）
稲垣 いつ子（事務支援員）
石原 麻由美（事務支援員）
加茂 恭子（事務支援員）

A-1) 専門領域：表面物性物理学，電子分光計測技術，放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 電子分光装置・多次元スピン分析器の新規開発を突破口とした UVSOR の高度化
- b) 運動量分解光電子分光に関する新規現象を基盤とした測定手法確立
- c) 新奇表面電子物性・化学特性の応用展開

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) ① UVSOR オリジナルの Momentum Microscope (MM) 拠点構築を主務とする。MM は空間・波数空間・エネルギーの幅広い範囲での高分解能測定を可能にするユニークな分析器である。電子物性研究に有力な VUV/EUV 領域での高強度・可偏光などといった UVSOR の光源特性を活かした測定機能を実装する MM の導入を実現し，論文・プレスリリースを通じて成果発信を続けている。② 並行して全天球エネルギー・スピン分析器を考案し特許出願した。上記の MM は $3 \text{ \AA}^{-1}$ までの波数空間の一括測定ができるため価電子帯研究で有効な運動エネルギー 36 eV 以下の領域では全天球をカバーすることができるが，原子配列を研究するのに有効な運動エネルギー 500 eV 以上の領域ではせいぜい 15° の領域でしかない。新規分析器は 2 keV でも全天球の放出光電子を取り込むことができ，後段のスピン偏向器でスピンの3次元ベクトル解析ができるようになる。①は high-end 型価電子帯光電子分光装置，②は内殻光電子ホログラフィー測定装置である。両者を融合させ，スピン3次元ベクトル解析を実・逆空間で自在にマッピングできる唯一無二の装置を構築する。
- b) 物性評価に適した光波長帯の連続的なエネルギー可変性が UVSOR の最大の特徴である。BL6U は軟 X 線領域 ($45\text{--}700 \text{ eV}$) をカバーする直線偏光ビームラインである。③ 分子科学で重要となる CNO 吸収端の光を用い，元素選択的な共鳴励起によって価電子帯の原子軌道構成を解明できる共鳴光電子分光の実験を成功させた。特に，吸収端にてグラファイトの π バンドが選択的に励起される様子を波数空間上で可視化したが，共鳴 Auger 電子スペクトルに価電子帯分散があらわれる現象の発見は重要である。グラフェンから π 共役系分子への展開に歩を進め，お家芸としての共鳴光電子回折法を確立しつつある。④ 光エネルギー可変性を活かした k_z 分散測定による全 Brillouin 域価電子帯分散マッピングや偏光特性を活かした原子軌道波動関数解析技術は BL6U での共同研究推進の基盤であるが，さらに精緻な測定を行い，表面特有の電子状態や現象の情報を引き出す研究展開を進めている。
- c) 光電子回折・分光を用いて典型的な高温超伝導体 Bi2212 や代表的騒擾物質 TiSe_2 の相転移前後の電子状態をとらえた。劈開試料表面の局所部分の精密分析の成功は今後の共同研究を呼び込む重要な成果である。共同研究先から Ir 単結晶薄膜の電子状態評価の依頼を受け，バンド分散の測定に成功した。この薄膜は新しいスピン2次元フィルターとして有望な材料であり，上記で述べたスピン3次元ベクトル解析への応用展開につながるものである。

B-1) 学術論文

F. MATSUI and H. MATSUDA, “Projection-Type Electron Spectroscopy Collimator Analyzer for Charged Particles and X-Ray Detections,” *Rev. Sci. Instrum.* **92(7)**, 73301 (7 pages) (2021). DOI: 10.1063/5.0051114

O. ENDO, F. MATSUI, W.-J. CHUN, M. NAKAMURA, K. AMEMIYA and H. OZAKI, “Nanographene Growth from Benzene on Pt(111),” *Surf. Sci.* **711**, 121874 (2021). DOI: 10.1016/j.susc.2021.121874

K. SAKAMOTO, H. ISHIKAWA, T. WAKE, C. ISHIMOTO, J. FUJII, H. BENTMANN, M. OHTAKA, K. KURODA, N. INOUE, T. HATTORI, T. MIYAMACHI, F. KOMORI, I. YAMAMOTO, C. FAN, P. KRÜGER, H. OTA, F. MATSUI, F. REINERT, J. AVILA and M. C. ASENSIO, “Spatial Control of Charge Doping in n-Type Topological Insulators,” *Nano Lett.* **21(10)**, 4415–4422 (2021). DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c01100

S. MAKITA, H. MATSUDA, Y. OKANO, T. YANO, E. NAKAMURA, Y. HASEGAWA, S. KERA, S. SUGA and F. MATSUI, “Contrast Inversion of Photoelectron Spectro-Microscopy Imag,” *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **19**, 42–47 (2021). DOI: 10.1380/EJSSNT.2021.42

F. MATSUI, S. MAKITA, H. MATSUDA, E. NAKAMURA, Y. OKANO, T. YANO, S. KERA and S. SUGA, “Valence Band Dispersion Embedded in Resonant Auger Electrons,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **90(12)**, 124710 (9 pages) (2021). DOI: s10.7566/JPSJ.90.124710

B-3) 総説, 著書

F. MATSUI, S. MAKITA, Y. OKANO, H. MATSUDA and S. KERA, “Photoelectron Momentum Microscope: Development at UVSOR Synchrotron Facility,” *Vac. Surf. Sci.*, **64(6)**, 262–268 (2021). DOI: 10.1380/vss.64.262 (in Japanese)

松井文彦 (編集者・分担著者), 「図説表面分析ハンドブック」, 朝倉書店 (2021). ISBN: 978-4-254-20170-3

B-4) 招待講演

松井文彦, 「顕微光電子分光の技術的な展開と課題～放射光と光電子運動量顕微鏡～」, R026先端計測技術の将来設計委員会第4回研究会, オンライン開催, 2021年4月.

F. MATSUI, “Soft X-ray Photoelectron Momentum Microscopy: Resonating valence band element-selectively,” FHI-IMS Joint Seminar, online, June 2021.

F. MATSUI, “Introduction to the contrarian usage of two-dimensional photoelectron spectroscopy,” HiSOR セミナー, 広島大学, オンライン開催, 2021年6月.

F. MATSUI, “Toward comprehensive analysis of electronic and spin structure by UVSOR Photoelectron Momentum Microscope,” Advanced Light Source Users meeting 2021, online, August 2021.

松井文彦, 「光電子運動量顕微鏡の拠点構築と展開」, 日本物理学会 2021 秋季大会, オンライン開催, 2021年9月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

表面真空学会理事 (2021.5–).

日本放射光学会庶務幹事 (2021.9–).

学会の組織委員等

表面構造に関する国際学会 ICSOS 国際アドバイザー委員 (2017–).

14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2021), Scientific Program Committee (2020–2021).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会 R026 先端計測技術の将来設計委員会運営委員 (2019–).

学会誌編集委員

日本表面真空学会出版委員 (2013–).

その他

出前授業「超伝導って何? 最先端研究施設から出前実験」岡崎市立甲山中学校 (2021).

出前授業「超伝導って何? 最先端研究施設から出前実験」岡崎市立福岡中学校 (2022).

B-10) 競争的資金

科研費国際共同研究加速基金 (国際共同研究強化(B)), 「光電子波数顕微鏡法で切り拓くナノスピン・オービトロニクス」(代表: 解良 聡), 松井文彦 (研究分担者) (2019 年–2022 年).

科研費挑戦的研究(開拓), 「ドーパントの価数ごとの立体原子配列を観測する小型測定装置の研究」(代表: 松下智裕), 松井文彦 (研究分担者) (2021 年–2025 年).

C) 研究活動の課題と展望

UVSOR 型 Momentum Microscope (MM) 利用研究を推進する。顕微角度分解光電子分光, 共鳴光電子分光, 3D 波数空間分解光電子分光法を協力研究に供するとともに自身の表面物性科学研究を進める。軟X線ビームラインと VUV ビームライン両方を同時に MM に導く two-beam MM 実験ステーションをデザインした。2020 年度は片方 (BL6U) での運用が始まった。2021 年度以降 2 本目のビームラインに接続, 2022 年度以降の MM の将来の拡張として 2 次元スピン検出器を用いたスピン分解光電子分光によるスピン物性研究の展開を計画しているが, その基礎研究として磁性薄膜・キラル分子膜の電子状態・原子構造研究を進める。

MM 開発の先駆者がいる Forschungszentrum Jülich (FZJ) の電子物性部門 (PGI-6) と学術協定を結び, 表面電子物性の共同研究を進めてきたおかげで, UVSOR でも MM が順調に立ち上がった。時間分解型の MM 開発を進めるドイツ・DESY の M. Hoesch らとも共同研究を密にし, こちらからスピン研究に関して相手から時間分解測定法に関して経験技術交流を進める。本装置を活かした実験を積極的に進めるユーザーコミュニティ構築のための第 1 回 (2019)・第 2 回 (2020.10) 国際ワークショップに続き, 東アジア圏での MM 開発グループの萌芽のネットワークづくりに取り掛かり, また FHI・HiSOR・ALS 各機関との合同セミナーで招待講演を行った。UVSOR の国内外からのビジビリティを高めるとともに, 他のビームラインにも先端拠点を目指す機運と風土の定着を活動指針として進めている。

田 中 清 尚（准教授）（2014 年 4 月 1 日着任）

松永 和也（特別共同利用研究員）

山本 凌（特別共同利用研究員）

杉本 卓史（特別共同利用研究員）

保科 拓海（特別共同利用研究員）

稲垣 いつ子（事務支援員）

石原 麻由美（事務支援員）

加茂 恭子（事務支援員）

A-1) 専門領域：物性物理学，放射光科学

A-2) 研究課題：

- a) 高温超伝導体の電子状態の解明
- b) 新規スピン分解角度分解光電子分光装置の開発
- c) 角度分解光電子分光における低温技術の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) UVSOR BL7U, BL5U において，銅酸化物高温超伝導体 Bi2212 の角度分解光電子分光測定を行った。超伝導転移温度の上下でのスペクトルを比較することで，超伝導によるスペクトラルウェイト変化の運動量空間依存性とホール濃度依存を導出することに成功した。これまで長い間有効とされてきたフェルミアーキ描像を否定する結果が得られており，高温超伝導が超伝導ギャップよりも超流動密度に強く影響を受けていることを示唆している。
- b) UVSOR BL5U は高分解能角ビームラインとしてユーザー利用を開始している。同時に高効率スピン分解角度分解光電子分光測定の開発も進めている。2020 年度はコロナ渦による UVSOR のビームタイムのキャンセルを利用してスピン分解 ARPES の開発が大きく進み，Au(111) 表面バンドのラッシュバ分裂をスピン分解してイメージスペクトルを取得することに成功した。運動量空間分解能や検出効率なども既存システムを大きく上回ることも確認できた。ただし，測定時には頻繁にスピントーゲットの磁化操作をする必要があり，このままではユーザー利用を開始することは困難であることが判明した。そこで，2021 年度はスピンの向きをあらゆる方向に変更できるスピンマニピュレータを導入し，スピントーゲットの磁化操作を不要とすることに成功したが，スピンマニピュレータのパラメータ整備が必要となっている。2022 年度にパラメータの整備を完了してユーザー利用開始を目指す予定である。
- c) 角度分解光電子分光実験の高エネルギー分解能測定には，試料をどれだけ冷却できるかが重要となる。BL5U, 7U 用に開発した冷却可能な 5 軸 6 軸マニピュレータは，これまで放射光施設の光電子分光装置としては世界でもトップクラスの低温を実現している。最近，新たにソフトウェアによる熱伝導解析を導入した。新たな改良案に基づいて，現在さらなる低温化を目指して開発を進めている。

B-1) 学術論文

T. FUKASAWA, S. KUSAKA, K. SUMIDA, M. HASHIZUME, S. ICHINOKURA, Y. TAKEDA, S. IDETA, K. TANAKA, R. SHIMIZU, T. HITOSUGI and T. HIRAHARA, “Absence of Ferromagnetism in MnBi₂Te₄/Bi₂Te₃ down to 6 K,” *Phys. Rev. B* **103**(20), 205405 (6 pages) (2021). DOI: 10.1103/PhysRevB.103.205405

- J. OKABAYASHI, S. LI, S. SAKAI, Y. KOBAYASHI, T. MITSUI, K. TANAKA, Y. MIURA and S. MITANI**, “Perpendicular Magnetic Anisotropy at the Fe/Au(111) Interface Studied by Mössbauer, X-Ray Absorption, and Photoemission Spectroscopies,” *Phys. Rev. B* **103**(10), 104435 (8 pages) (2021). DOI: 10.1103/PhysRevB.103.104435
- T. HIRAHARA, M. M. OTROKOV, T. T. SASAKI, K. SUMIDA, Y. TOMOHIRO, S. KUSAKA, Y. OKUYAMA, S. ICHINOKURA, M. KOBAYASHI, Y. TAKEDA, K. AMEMIYA, T. SHIRASAWA, S. IDETA, K. MIYAMOTO, K. TANAKA, S. KURODA, T. OKUDA, K. HONO, S. V. EREMEEV and E. V. CHULKOV**, “Fabrication of a Novel Magnetic Topological Heterostructure and Temperature Evolution of Its Massive Dirac Cone,” *Nat. Commun.* **11**(1), 4821 (8 pages) (2020). DOI: 10.1038/s41467-020-18645-9
- I. SUZUKI, Z. LIN, S. KAWANISHI, K. TANAKA, Y. NOSE, T. OMATA and S. TANAKA**, “Direct Evaluation of Hole Effective Mass of SnS–SnSe Solid Solutions with ARPES Measurement,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **24**(2), 634–638 (2022). DOI: 10.1039/D1CP04553A
- K. HAGIWARA, M. ISHIKADO, M. HORIO, K. KOSHIISHI, S. NAKATA, S. IDETA, K. TANAKA, K. HORIBA, K. ONO, H. KUMIGASHIRA, T. YOSHIDA, S. ISHIDA, H. EISAKI, S. SHAMOTO and A. FUJIMORI**, “Superconducting Gap and Pseudogap in the Surface States of the Iron-Based Superconductor PrFeAsO_{1-y} Studied by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy,” *Phys. Rev. Res.* **3**(4), 43151 (5 pages) (2021). DOI: 10.1103/PhysRevResearch.3.043151
- D. TAKANE, Y. KUBOTA, K. NAKAYAMA, T. KAWAKAMI, K. YAMAUCHI, S. SOUMA, T. KATO, K. SUGAWARA, S. IDETA, K. TANAKA, M. KITAMURA, K. HORIBA, H. KUMIGASHIRA, T. OGUCHI, T. TAKAHASHI, K. SEGAWA and T. SATO**, “Dirac Semimetal Phase and Switching of Band Inversion in XMg_2Bi_2 ($X = \text{Ba}$ and Sr),” *Sci. Rep.* **11**(1), 21937 (9 pages) (2021). DOI: 10.1038/s41598-021-01333-z
- S. NAKATA, M. HORIO, K. KOSHIISHI, K. HAGIWARA, C. LIN, M. SUZUKI, S. IDETA, K. TANAKA, D. SONG, Y. YOSHIDA, H. EISAKI and A. FUJIMORI**, “Nematicity in a Cuprate Superconductor Revealed by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy under Uniaxial Strain,” *npj Quantum Mater.* **6**(1), 86 (6 pages) (2021). DOI: 10.1038/s41535-021-00390-x
- S. IDETA, S. JOHNSTON, T. YOSHIDA, K. TANAKA, M. MORI, H. ANZAI, A. INO, M. ARITA, H. NAMATAME, M. TANIGUCHI, S. ISHIDA, K. TAKASHIMA, K. M. KOJIMA, T. P. DEVEREAUX, S. UCHIDA and A. FUJIMORI**, “Hybridization of Bogoliubov Quasiparticles between Adjacent CuO_2 Layers in the Triple-Layer Cuprate $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ Studied by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy,” *Phys. Rev. Lett.* **127**(21), 217004 (6 pages) (2021). DOI: 10.1103/PhysRevLett.127.217004
- T. YAMAMOTO, D. HIRAGA, I. ARASHI, K. TAKASUGI, T. NAITO, M. URUICHI, F. TESHIMA, K. TANAKA, M. NOMURA and R. KATO**, “Coexistence of Interchanged and Normal Orbital Levels in a Molecular Conductor Consisting of a Metal-Dithiolene Complex,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**(11), 114704 (10 pages) (2021). DOI: 10.7566/JPSJ.90.114704
- F. MATSUI, S. MAKITA, H. MATSUDA, T. UEBA, T. HORIGOME, H. YAMANE, K. TANAKA, S. KERA and N. KOSUGI**, “Bulk and Surface Band Dispersion Mapping of the Au(111) Surface by Acceptance-Cone Tunable PES System,” *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* **18**, 18–23 (2020). DOI: 10.1380/EJSSNT.2020.18

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

WIRMS2021組織委員 (2020, 2021).

C) 研究活動の課題と展望

2020年度はコロナ渦による UVSOR のビームタイムのキャンセルが多かったが、この時間を利用してスピン分解 ARPES の開発が大きく進み、目標としていたイメージでのスピン分解スペクトルの取得に成功した。また運動量空間分解能や検出効率なども既存システムを大きく上回ることも確認できた。ただし、測定時には頻繁にスピントーゲットの磁化操作をする必要があり、このままではユーザー利用を開始することは困難であることが判明した。そこで、2021年度はスピンの向きをあらゆる方向に変更できるスピンマニピュレータを導入し、スピントーゲットの磁化操作を不要とすることに成功したが、スピンマニピュレータのパラメータ整備が必要となっている。2022年度にパラメータの整備を完了してユーザー利用開始を目指す予定である。新助教が10月に着任予定なので新しい体制で研究を推進する。

光化学測定器開発研究部門（極端紫外光研究施設）

岩 山 洋 士（助教）（2010 年 4 月 1 日着任）

稲垣 いつ子（事務支援員）

石原 麻由美（事務支援員）

加茂 恭子（事務支援員）

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) 軟X線共鳴散乱法によるソフトマターのメゾスコピック構造解析
- b) X線自由電子レーザーを用いた溶液光学反応のフェムト秒実時間観測手法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) ソフトマターは分子が凝集し集団となることで特徴的な粘弾性や複屈折などの機能を有する材料であり，分子1個の性質を調べただけではその機能・物性解明には不十分である。特にソフトマターはメゾスコピック領域である数 nm ～ 100 nm 程度の空間スケールで分子配向に構造を持っており，その構造を明らかにすることが液晶相物質の誘電率などの物性を理解する上で重要である。このようなメゾスコピック領域の構造測定としX線小角散乱が考えられるが，非共鳴におけるX線散乱は電子密度の変調に敏感であるが，分子配向の変化に対しては感度が弱い。一方共鳴散乱は内殻電子の遷移先の非占有軌道と入射光偏光ベクトルとの角度に強く依存し，分子配向に敏感な散乱である。また，元素選択性を有し，特定の官能基などの構造解析が可能である。そのため，共鳴散乱は，メゾスコピック領域の分子配向構造を調べる上で極めて有用であるが，液晶分子などのソフトマターは主に軽元素の炭素，酸素，窒素原子で構成されており，そのK殻吸収端は光エネルギー 1 keV 以下の軟X線領域であるため，軟X線を用いる必要がある。本グループでは 2020 年度より軟X線共鳴散乱法を実現すべく，散乱観測のための装置開発を行っている。装置の立ち上げでは，液晶分野を専門とする共同研究者らと共にキラルスメクチック液晶を用いて，従来のX線小角散乱法では観測できなかった，強誘電体，反強誘電体およびその副次相による数 nm から 10 nm の周期構造に由来する回折像の観測に成功し，本軟X線共鳴散乱法が液晶におけるメゾスコピック領域の構造を明らかにするうえで有用な測定方法であることを示した。また，さらなる装置開発により，測定範囲を数 nm から 10 nm 程度であったものを，最大 100 nm 程度まで測定可能にし，屈曲型液晶分子がおおよそ 60 nm の周期でらせん構造を有するナノヘリカルフィラメント構造であることを確認した。
- b) X線自由電子レーザー SACLA BL1 を利用した液体試料用のポンプ・プローブ法によるフェムト秒時間分解・透過型軟X線吸収分光器の開発を提案し，2020 年度 SACLA 基盤開発プログラムに採択され研究を進めている。化学反応の多くは溶液内で起こり，また光合成をはじめとした光化学反応また生命現象は細胞液内でおこることを考えると，固相・気相に加え液相を研究対象に加えることは重要である。特に，軟X線領域は生命において重要な炭素，窒素，酸素元素のK殻吸収端を含む。本年度は，溶液試料を用いた透過型軟X線吸収分光を実現すべく，20 から 2000 nm の範囲で液体試料厚を調整可能な液体セルを開発し，SACLA BL1 にて水および酢酸溶液の軟X線吸収スペクトルを計測した。また，高強度のポンプ光では，メンブレンが破損するため，メンブレンを用いないマイクロ流路を用いた

液厚 20 ~ 1000 nm の超薄膜フラットジェット法の開発を行った。現在、超薄膜フラットジェットの厚みを評価するための、干渉計を準備しており、2022 年度より稼働する予定である。今後、液体セル法またはフラットジェット法と同期光学レーザーと組み合わせることで、ポンプ・プローブ法によるフェムト秒時間分解軟X線吸収スペクトルを実現し、溶液の光化学反応を明らかにする。

B-1) 学術論文

T. KANEYASU, Y. HIKOSAKA, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH, “Electron Wave Packet Interference in Atomic Inner-Shell Excitation,” *Phys. Rev. Lett.* **126(11)**, 113202 (6 pages) (2021). DOI: 10.1103/PhysRevLett.126.113202

J. KESKINEN, K. JANKALA, S. M. HUTTULA, T. KANEYASU, Y. HIKOSAKA, E. SHIGEMASA, H. IWAYAMA, K. SOEJIMA, K. ITO, L. ANDRIC, M. A. KHALAL, J. PALAUDOUX, F. PENENT and P. LABLANQUIE, “Auger Decay of the 3d Hole in the Isoelectronic Series of Br, Kr⁺, and Rb²⁺,” *Phys. Rev. A* **103(3)**, 032828 (8 pages) (2021). DOI: 10.1103/PhysRevA.103.032828

Y. HIKOSAKA, T. KANEYASU, M. FUJIMOTO, H. IWAYAMA and M. KATOH, “Reply to ‘Comment on “Coherent Control in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation”’,” *Nat. Commun.* **12(1)**, 3782 (3 pages) (2021). DOI: 10.1038/s41467-021-24029-4

F. ALLUM, N. ANDERS, M. BROUARD, P. BUCKSBAUM, M. BURT, B. DOWNES-WARD, S. GRUNDMANN, J. HARRIES, Y. ISHIMURA, H. IWAYAMA, L. KAISER, E. KUKK, J. LEE, X. LIU, R. S. MINNS, K. NAGAYA, A. NIOZU, J. NISKANEN, J. O’NEAL, S. OWADA, J. PICKERING, D. ROLLES, A. RUDENKO, S. SAITO, K. UEDA, C. VALLANCE, N. WERBY, J. WOODHOUSE, D. YOU, F. ZIAEE, T. DRIVER and R. FORBES, “Multi-Channel Photodissociation and XUV-Induced Charge Transfer Dynamics in Strong-Field-Ionized Methyl Iodide Studied with Time-Resolved Recoil-Frame Covariance Imaging,” *Faraday Discuss.* **228**, 571–596 (2021). DOI: 10.1039/d0fd00115e

B-7) 学会および社会的活動

学会誌編集委員

原子衝突学会学会誌編集員 (2020–).