

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) 内殻光励起分子の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
- b) しきい電子 - イオン同時計測装置の開発(下僚助手)
- c) 自由電子レーザーを利用した分光実験

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、振動分光が可能な高性能分光器が必要不可欠である。90～600 eVのエネルギー範囲で、分解能5000以上を達成する事を目指して、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、SO₂及びNO₂分子の窒素、酸素の1s励起領域、更にCl₂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) 内殻光電離によって放出される光電子の運動エネルギーが、脱励起過程で放出されるオージェ電子のそれに比べて十分に大きく、それらがエネルギー的に完全に区別して検出可能な場合、内殻光電離過程とオージェ電子放出過程を独立事象として取り扱う、いわゆる二段階モデルが良い近似となる。しかし、光のエネルギーを下げて光電子がオージェ電子と同等の運動エネルギーを持つような状況を実現すると、両者を区別することが出来なくなる上に、PCI効果と呼ばれる放出二電子間の相互作用が無視できなくなり、二段階モデルは適用できなくなる。内殻電離しきい値近傍における多電子効果の角度分布への影響を調べることを目的として、高速二次元検出器を用いた高効率エネルギー分析器の開発を行った。これを用いて、オージェ電子の角度分布が分子軸の配向に依存し、それらが光エネルギーにも依存する事を明らかにした。更に、真空紫外から軟X線領域(10～2000 eV)における原子分子の光吸収過程において非常に高い精度で成立すると考えられてきた電気双極子近似が、分子の内殻光電離については、原子の場合よりもずっと低エネルギー(約400 eV)で破綻していることを示した。
- 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。しきい電子分光法は、内殻励起分子の二電子放出過程の検出にも非常に敏感であり、電子相関が重要な役割を演じる内殻電離しきい値近傍は、しきい電子分光法による研究対象として格好のターゲットである。我々は昨年度から対称性分離分光法としきい電子分光法を組み合わせた新しい分光法、対称性分離しきい電子分光法の確立を目指し、装置の開発を行ってきた。窒素分子の内殻励起領域に於いてテスト実験を行い、対称性分離しきい電子スペクトルが観測可能であることを確認した。更なる高分解能化には、偏向電磁石部を光源とするBL4Bでは光強度が不足しているため、JVSORの高度化に合わせて新設されるアンジュレータービームラインBL3Uを利用した実験が待たれる。これ

により、内殻電離しきい値近傍に潜む電子相関に起因するスペクトル構造の詳細の解明が可能になると期待される。

(下條助手)

- d) 自由電子レーザー(FEL)を実際の分光実験に利用する事を目指して、UVSORマシングループと共同研究を進めている。放射光とFELを組み合わせた二色実験を世界に先駆けて行う事を最優先し、Xe原子の $5p^5(^2P_{3/2})4f$ 共鳴自動イオン化状態の観測にターゲットを絞り、FELを用いた気相実験としては世界で初めてこの共鳴状態の観測に成功した。更に短波長側に存在する $5p^5(^2P_{3/2})nf$ 系列の観測を目指して、実験装置の整備を行っている。

B-1) 学術論文

R. GUILLEMIN, O. HEMMERS, D. W. LINDLE, E. SHIGEMASA, K. L. GUEN, D. CEOLIN, C. MIRON, N. LECLERCQ, P. MORIN, M. SIMON and P. W. LANGHOFF, "Nondipolar Electron Angular Distributions from Fixed-in-Space Molecules," *Phys. Rev. Lett.* **89**, 033002-1 (2002).

E. SHIGEMASA, T. GEJO, M. NAGASONO, T. HATSUI and N. KOSUGI, "Double and Triple Excitations near the K-Shell Ionization Threshold of N₂ Revealed by Symmetry-Resolved Spectroscopy," *Phys. Rev. A* **66**, 022508-1 (2002).

T. IBUKI, K. OKADA, S. TANIMOTO, K. SAITO and T. GEJO, "Fragmentation Competing with Energy Relaxation in Core-Excited CF₃CN," *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **123**, 323 (2002).

T. GEJO, J. A. HARRISON and J. R. HUBER, "Depletion Spectrum of Ozone in a Molecular Beam. Evidence for Interference Effect in the Hartley Band," *Chem. Phys. Lett.* **350**, 558 (2001).

B-4) 招待講演

T. GEJO, "User experiments on the UVSOR FEL," France-Japanese workshop on Free Electron Laser, Tokyo (Japan), November 2002.

B-6) 学会および社会的活動

学会の組織委員

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

日本放射光学会誌編集委員(1999-2001)(下條助手)

Synchrotron Radiation News, correspondent (2002-).

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、UVSOR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。2003年度には、関連する装

置の開発を開始する予定である。内殻励起に起因する解離のダイナミクスを多角的、立体的に捉えることを目指し、二次元検出器を導入した電子とイオンの多重ベクトル相関測定法も引き続き開発中であるが、このような装置の開発・立ち上げにはかなりの時間が必要なので、国内外の放射光施設での共同研究も暫くは継続して行く方針である。

加藤 政 博 (助教授)

A-1) 専門領域：加速器科学

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の研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) UVSOR光源リングの高度化計画は2002年度に予算化された。過去2年間に行ってきた設計検討作業、試作機性能評価などの成果をもとに、高度化に必要な加速器装置類の製作を進めている。リングの高度化改造は2003年春に開始される予定である。ラティスの全面的な改良によりビームエミッタンスを現在の値の約1/6まで小さくでき、一方で挿入光源設置可能な直線部の数を倍増できる。
- b) 高度化後のUVSORにおいて主力の光源となることが期待される真空封止型アンジュレータ1号機を、リング高度化改造に先行して2002年春に導入した。UVSORのような比較的低エネルギーのリングに真空封止型のアンジュレータを導入するのは世界的にも初めての試みであったが、ビーム不安定も観測されず、また、ビーム寿命への影響も予想の範囲内であり、十分実用的であることが実証できた。UVSOR観測系、極端紫外光科学研究系の協力により、アンジュレータ光のスペクトル観測も行われ、設計通りの光源性能を有していることがわかった。
- c) 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。この自由電子レーザー光をアンジュレータ放射光ビームラインに輸送し、これら2つの種類の光を組み合わせたXeの二重励起実験を継続して行っている。
- d) レーザーと電子ビームを相互作用させることで電子バンチの一部に1ピコ秒程度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。この手法を用いて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いる。

B-1) 学術論文

M. HOSAKA, S. KODA, M. KATOH, J. YAMAZAKI, K. HAYASHI, Y. TAKASHIMA, T. GEJO and H. HAMA, "From the Operation of an SRFEL to a Users Facility," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A* **483**, 146–151 (2002).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

M. KATOH, "Researches and Developments for Upgrading UVSOR," *Proceedings of the 25th ICFA Advanced Beam Dynamics Workshop: "Shanghai Symposium on Intermediate-Energy Light Sources,"* 150–154 (2001).

M. HOSAKA, M. KATOH, A. MOCHIHASHI, J. YAMAZAKI, K. HAYASHI and T. KINOSHITA, "Operation of 3rd Harmonic RF Cavity at UVSOR Storage Ring," *Proceedings of the 25th ICFA Advanced Beam Dynamics Workshop: "Shanghai Symposium on Intermediate-Energy Light Sources,"* 171–173 (2001).

A. MOCHIHASHI, M. KATOH, K. HAYASHI, M. HOSAKA, Y. TAKASHIMA, J. YAMAZAKI, K. HAGA, T. HONDA and Y. HORI, "UVSOR Upgrade Project," *Proceedings of the 8th European Particle Accelerator Conference* 697–699 (2002).
A. MOCHIHASHI, K. HAYASHI, M. HOSAKA, M. KATOH, T. KINOSHITA, J. YAMAZAKI and Y. TAKASHIMA, "Observation of Vertical Instability in UVSOR Electron Storage Ring," *Proceedings of the 8th European Particle Accelerator Conference* 1939–1941 (2002).

B-6) 学会および社会的活動

学会等の組織委員

加速器科学研究発表会世話人 (2001-).

学会誌編集委員

放射光学会誌編集委員 (2000-).

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-).

佐賀県シンクロトン光応用研究施設・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-7) 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光源リングに適切な規模の改造を施し、飛躍的にその性能を向上する、UVSOR高度化計画を提唱し、ビーム収束系、真空系など、必要な加速器要素の設計開発を行ってきた。さいわい本計画は2002年度に予算化され、現在必要な機器類の製作が順調に進んでいる。2003年度には高度化された光源リングのコミッショニングが開始される。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。レーザーとの相互作用を利用した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、基礎実験の早期実現に向けて検討を続けていく。

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) 光学・光電子分光による強相関伝導系のフェルミオロジの研究
- b) 有機伝導体の電子状態の磁気光学的研究
- c) 放射光とレーザーの組み合わせによる光誘起現象の研究
- 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) 光学・光電子分光による強相関伝導系のフェルミオロジの研究: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。物性の起源である電子状態(フェルミオロジ)を明らかにすることを目的として、赤外から真空紫外領域にわたる広いエネルギー範囲での光学スペクトルと共鳴光電子分光を用いて、総合的な知見を得ている。たとえば、低密度キャリア系で低温・磁場中で異常な磁気転移を示すCeSbやCeBiは、磁気転移に伴って電子状態が大きく変わることが発見され、混成効果を厳密に取り入れた計算との比較によって、磁気転移のオーダーパラメータを導き出すことができた。また、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、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開発している。
- b) 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)₂Cu[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。現在のところ、重水素置換効果と冷却速度は電子状態に対して同じ効果を与えることがわかった。磁場効果に関してもSPring-8に設置した赤外磁気光学イメージング装置で調べている。
- c) 放射光とレーザーの組み合わせによる光誘起現象の研究:遷移金属錯体等において観測される光誘起相転移現象は、光照射により協力的にマクロな領域に秩序が形成される現象として光物性物理学の観点からも、光記録デバイスなどへの応用的観点からも興味深い。放射光とレーザーの組み合わせた光電子分光測定と軟X線吸収測定により、鉄ピコリルアミン錯体ならびにTTTA結晶の熱的及び光誘起相転移における電子状態の変化について明らかにした。
- 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、最近装置が導入され、円偏光アンジュレータを光源としたビームライン(BL5U)に取り付けて研究がスタートする。この装置は、UVSOR高度化後の主要な装置の1つになる。テラヘルツ顕微鏡は、実験室に現有の赤外顕微鏡をUVSORに持ち込み、テストを行った。その結果、 200 cm^{-1} 以上で通常光源より2桁程度強いことがわかり、じゅうぶん分光研究に使えることがわかった。今後は、ビームラインに専属の顕微鏡を開発する方針である。赤外磁気光学イメージング分光は、これまで3年間の立ち上げ・テスト期間を経てやっと一般的に使えるようになった。この装置を使うことで、有機超伝導体の磁場中の相分離状態の空間分布などの情報が得られている。

B-1) 学術論文

T. KINOSHITA, H. P. N. J. GUNASEKARA, Y. TAKATA, S. KIMURA, M. OKUNO, Y. HARUYAMA, N. KOSUGI, K. G. NATH, H. WADA, A. MITSUDA, M. SHIGA, T. OKUDA, A. HARASAWA, H. OGASAWARA and A. KOTANI, “Spectroscopy Studies of Temperature-Induced Valence Transition Material $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ around Eu $3d-4f$, Eu $4d-4f$ and Ni $2p-3d$ Excitation Regions,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 148–155 (2002).

S. KIMURA, M. OKUNO, H. IWATA, H. KITAZAWA, G. KIDO, F. ISHIYAMA and O. SAKAI, “Optical and Magneto-Optical Studies on Electronic Structure of CeSb in the Magnetically Ordered States,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2200–2207 (2002).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

S. KIMURA, T. NISHI, M. OKUNO, H. IWATA, H. AOKI and A. OCHIAI, “Charge Ordering Effect of Electronic Structure of $\text{Yb}_4(\text{As}_{1-x}\text{Sb}_x)_3$,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **71** Suppl. 300–302 (2002).

S. KIMURA, M. OKUNO, H. IWATA, T. SAITOH, T. OKUDA, A. HARASAWA, T. KINOSHITA, A. MITSUDA, H. WADA and M. SHIGA, “Temperature-Induced Valence Transition of $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.25}\text{Ge}_{0.75})_2$ Studied by Eu $4d-4f$ Resonant Photoemission and Optical Conductivity,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **71** Suppl. 255–257 (2002).

H. OKAMURA, M. MATSUNAMI, S. KIMURA, T. NANBA, F. IGA and T. TAKABATAKE, “Optical conductivity of diluted Kondo semiconductors $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **71** Suppl. 303–305 (2002).

T. NANBA, S. KIMURA, H. OKAMURA, M. SAKURAI, M. MATSUNAMI, H. KIMURA, T. MORIWAKI, Y. IKEMOTO, T. HIRONO, T. TAKAHASHI, K. SHINODA, K. FUKUI, M. TERAGAMI and Y. KONDO, “Spring-8 as IR-light source,” *Proc. 26th International Conference on Infrared and Millimeter Waves* (2002).

S. O. HONG, B. H. MIN, H. J. LEE, S. KIMURA, M. H. JUNG, T. TAKABATAKE and Y. S. KWON, “Influence of electronic structure of $\text{CeSbNi}_{0.15}$ on its optical conductivity,” *Physica B* **312-313**, 251–252 (2002).

H. OKAMURA, M. MATSUNAMI, S. KIMURA, T. NANBA, F. IGA and T. TAKABATAKE, “Optical gap in the diluted Kondo semiconductors $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$: lattice and single-site effects,” *Physica B* **312-313**, 157–158 (2002).

H. OKAMURA, T. KORETSUNE, M. MATSUNAMI, S. KIMURA, T. NANBA, H. IMAI, Y. SHIMAKAWA and Y. KUBO, “Magneto-optical study of the colossal magnetoresistance pyrochlore $\text{Ti}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$,” *Physica B* **312-313**, 714–715 (2002).

S. KIMURA, M. OKUNO, H. IWATA, H. KITAZAWA and G. KIDO, “Low-Energy Electronic Structure of $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Sb}$ ($x = 0, 0.1$) in the Magnetically Ordered States,” *Physica B* **312-313**, 228–229 (2002).

S. KIMURA, M. OKUNO, H. IWATA, T. NISHI, H. AOKI and A. OCHIAI, “Low-Energy Optical Conductivity of Yb_4As_3 ,” *Physica B* **312-313**, 356–358 (2002).

K. TAKAHASHI, M. KAMADA, Y. DOI, K. FUKUI, T. TAYAGAKI, and K. TANAKA, “Photo-induced phase transition of spin-crossover complex studied with the combination SR and laser,” *Surf. Rev. Lett.* **9**, 319–323 (2002).

B-4) 招待講演

S. KIMURA, “Infrared magneto-optical study on SCES,” Festkörperphysikalisches Kolloquium, Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe, Dresden (Germany), October 2002.

B-5) 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-6) 学会および社会的活動

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).

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-).

UVSOR利用者懇談会世話人・事務局 (2000.4-2002.3).

第9回UVSORワークショップ・ビームライン高度化(第2回)「固体の低エネルギー光電子分光とナノサイエンスの可能性を探る」主催者 (2002).

分子研研究会「赤外放射光の現状と将来計画」主催者 (2002).

学会誌編集委員

日本放射光学会誌編集委員 (2002.1-)(高橋助手)

B-7) 他大学での講義、客員

科学技術振興事業団さきがけ研究21「状態と変革」研究者, 1999年10月-2002年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-.

C) 研究活動の課題と展望

本年4月に着任して以来, 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。

* 2002年4月1日着任