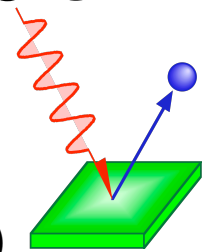


高エネルギー固体電子分光の最先端 —シンクロトロン放射光とレーザーによる バルク敏感光電子分光—

関山 明

(D410, sekiyama@mp.es.osaka-u.ac.jp)



1. 相対論的電子が放つ「シンクロトロン放射光」
2. 光量子仮説の元「光電効果」による光電子分光
3. 21世紀に入ってから光電子分光の劇的な進展
高輝度放射光によるバルク敏感光電子分光
レーザー励起による超高分解能光電子分光

大阪大学基礎工学部

先端科学技術セミナー October 23, 2013



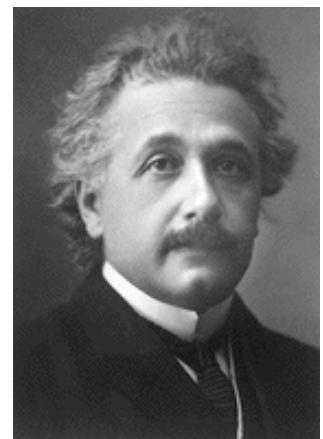
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

1

アインシュタインの3大成果

- ・ (特殊)相対性理論
光速度不変、空間と時間の非独立性
- ・ 光量子仮説 (1921年ノーベル賞)
光の「粒子性」
- ・ ブラウン運動の理論
分子の熱運動：分子の「実在」



この3つの成果は全て1905年に発表→「物理学奇跡の年」

100年後の2005年はこれを記念した
「世界物理年」「国際物理年」
(World Year of Physics, 国連による決議)



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

2

光（電磁波）の種類

波長の違いで名称が変わる

X線、γ線の元々の区別は波長ではなく、

発光機構の違いによる

X線：原子中の電子から出る光

γ線：原子核の崩壊によって発光する光

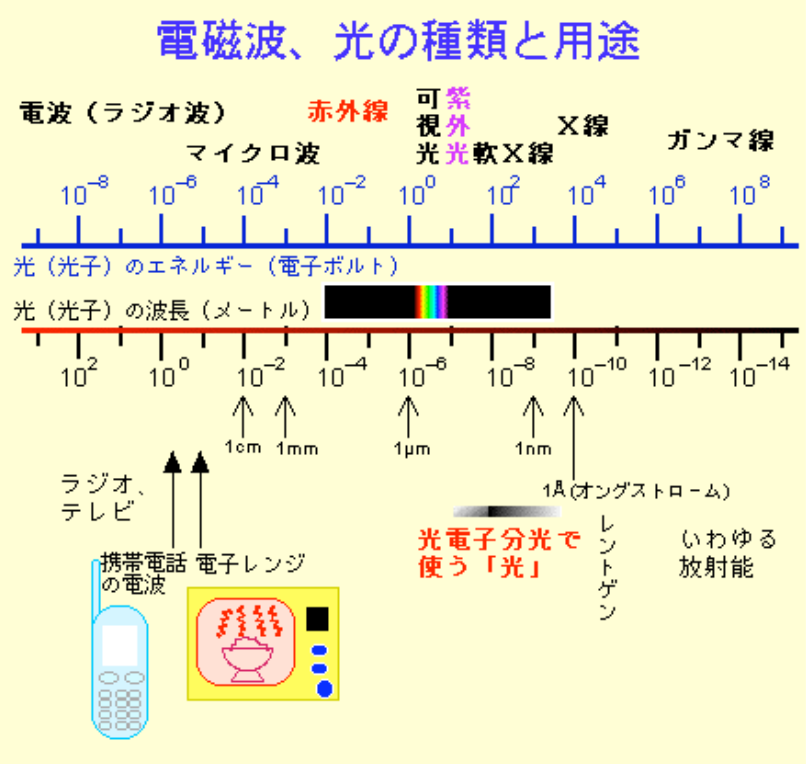
光子エネルギー×波長は

$$h\nu \cdot \frac{c}{\nu} = hc \text{ と定数になる}$$

→実用公式

$$h\nu [\text{eV}] \cdot \lambda [\text{\AA}] = 12398 (\sim 12000) [\text{eV} \cdot \text{\AA}]$$

$$h\nu [\text{eV}] \cdot \lambda [\text{nm}] \simeq 1200 [\text{eV} \cdot \text{nm}]$$



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

3

そもそも光（電磁波）とは：平面波による記述

真空（電荷も電流もない）空間のマクスウェルの方程式（S I 単位系）

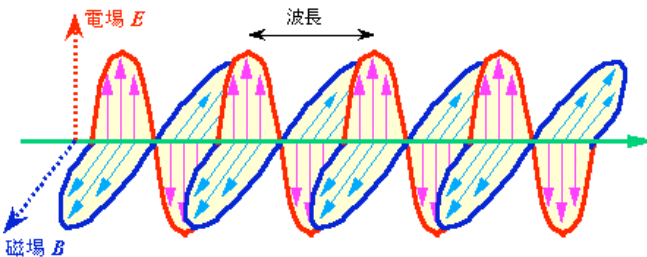
$$\left[\begin{array}{l} \nabla \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) = 0 \\ \nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{B}(\vec{r}, t)}{\partial t} \\ \nabla \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \\ \nabla \times \vec{B}(\vec{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t} \end{array} \right]$$

電場 $\vec{E}(\vec{r}, t) = 0$, 磁場 $\vec{B}(\vec{r}, t) = 0$ 以外の自明でない以下の解が存在！

$$\nabla \times (\nabla \times \vec{E}) = \nabla(\nabla \cdot \vec{E}) - \Delta \vec{E} \text{ より}$$

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0$$

(c: 真空中の光速 $3.0 \times 10^8 \text{m/s}$)



$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \cos(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t + \varphi_0)$$

$$= \text{Re}[\vec{E}_0 \exp(i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t))] \quad (|\vec{E}_0| = |\vec{E}_0|, \vec{k} = (k_x, k_y, k_z))$$

$$\omega^2 = c^2(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) = c^2 |\vec{k}|^2$$

$$\Rightarrow \omega = c |\vec{k}|$$

ある時刻 t において $\vec{E}(\vec{r}, t)$ 等しい $\rightarrow k_x x + k_y y + k_z z = \text{const}$

Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

4

特殊相対性理論と古典電磁気学

特殊相対性理論

空間と時間の非独立性
 「動いている人の時間の進み方が遅くなり、長さが短くなる」
 (ローレンツ収縮)

相互無矛盾！

古典電磁気学

電磁気の基本法則を記すマクスウェル方程式は「ローレンツ変換」で不変

歴史的にはマクスウェル方程式が先に発見(1865)

特殊相対性理論でも修正されず、というよりも

今からみるとこの電磁気学の法則が特殊相対論を内包？

マクスウェル方程式が「動く座標系」でも成り立つ為の「ローレンツ変換」はすでに発見されていた。

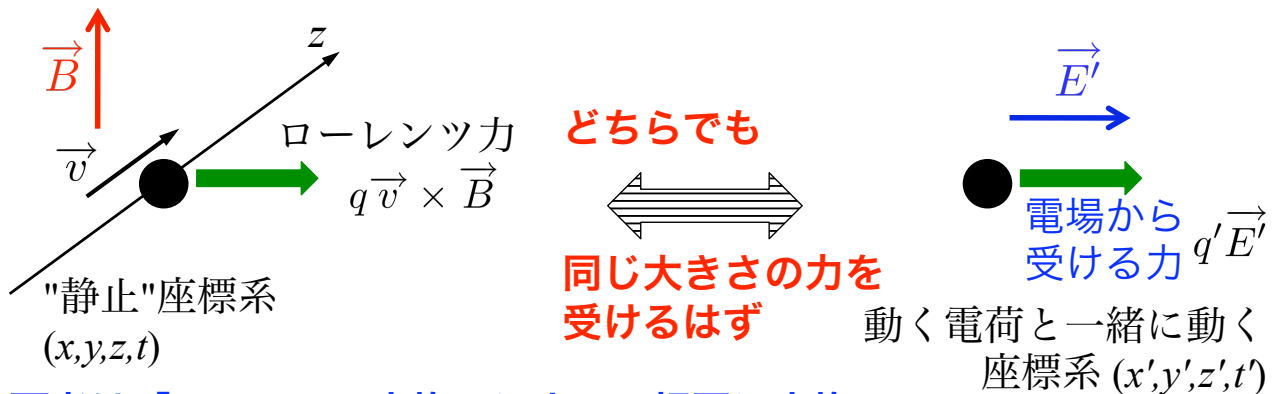
よって「アインシュタイン収縮」ではなくローレンツ収縮



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

動く電荷と一緒に動いて観測すると？



両者は「ローレンツ変換」によって相互に変換

$$\begin{cases} x' = x \\ y' = y \\ z' = \gamma(z - vt) \\ t' = \gamma(t - \frac{v}{c^2}z) \end{cases} \quad \begin{cases} \frac{\partial}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x'} \\ \frac{\partial}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial y'} \\ \frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z'} \frac{\partial}{\partial z'} + \frac{\partial t'}{\partial z} \frac{\partial}{\partial t'} = \gamma \frac{\partial}{\partial z'} - \gamma \frac{v}{c^2} \frac{\partial}{\partial t'} \\ \frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial t'}{\partial t} \frac{\partial}{\partial t'} + \frac{\partial z'}{\partial t} \frac{\partial}{\partial z'} = \gamma \frac{\partial}{\partial t'} - \gamma v \frac{\partial}{\partial z'} \end{cases}$$

$$\begin{cases} E'_{y'} = \gamma v B_x \simeq v B_x \text{ (for } v \ll c) \\ q' = q \\ \gamma = (1 - \frac{v^2}{c^2})^{-1/2} \end{cases}$$



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

相対論的運動量とエネルギー

相対論的運動量

$$\vec{p} = \frac{m}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} \vec{v} = \gamma m \vec{v}, \quad \gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} = \left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right)^{-1/2}$$

相対論的運動方程式 $\vec{F} = \frac{d\vec{p}}{dt} = \frac{d}{dt}(\gamma m \vec{v}) = \gamma m \frac{d\vec{v}}{dt} + \frac{\gamma^3 m v}{c^2} \frac{dv}{dt} \vec{v}$

エネルギーの変化 : $dE = \vec{F} \cdot d\vec{r}$ なので

$$dE = mv \left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right)^{-3/2} dv = mc \left[\frac{d}{dv} \left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right)^{-1/2} \right] dv$$

これを積分して $E(v) - E(0) = \frac{mc^2}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} - mc^2 = \gamma mc^2 - mc^2$

もうちょっと頑張ると $E(v) = \sqrt{(mc^2)^2 + (cp)^2} = \gamma mc^2$

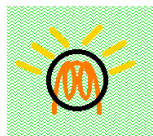


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

どうすれば光が出るか？ 光を出す方法

1. 物体を熱くして、温度を上げる(熱輻射)



例：太陽光、電球、バーベキューの炭

この現象の正確な記述には
実は量子力学が必要

2. 物質中の電子のエネルギーを突然変える(蛍光等)

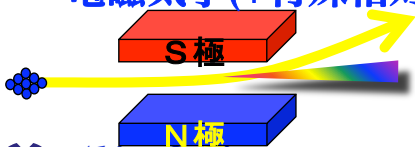
例：蛍光灯、LED、レーザー、X線管

この現象の理解も量子力学が必要

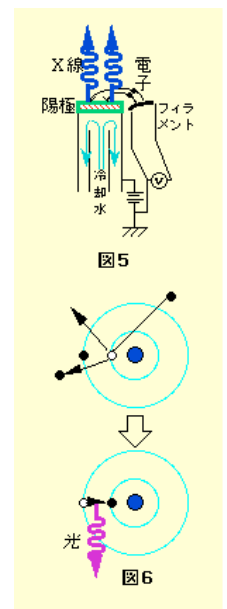
3. 運動する電子を曲げる、加減速する(輻射)

例：アンテナによる電波送信 (電波も光の仲間)

この現象の理解には量子力学は必須ではなく、古典電磁気学(+特殊相対論)で正確に記述できる



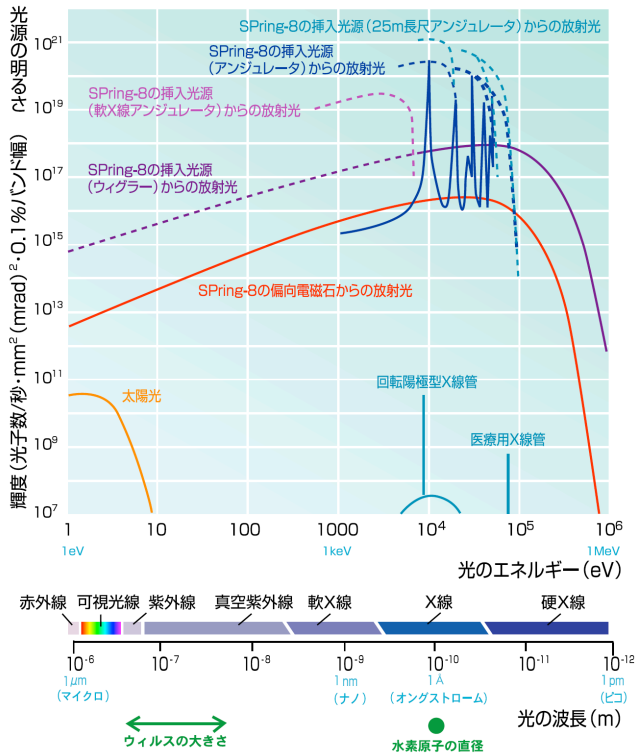
この一つの例が、相対論的電子の
放つ「シンクロトロン放射光」



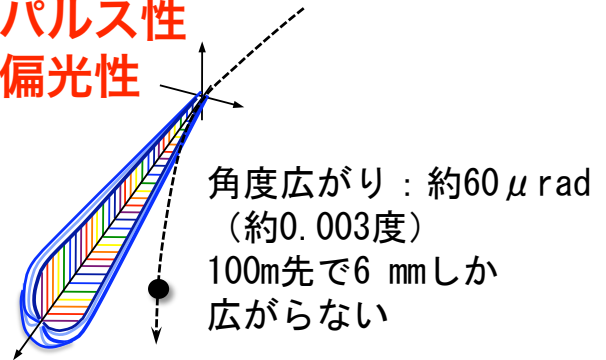
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

シンクロトロン放射光の特徴



- 赤外～ γ 線まで幅広い波長
- 高輝度
- 高い指向性→集光も容易
- パルス性
- 偏光性



<http://www.spring8.or.jp> より



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

SPring-8紹介ビデオ in YouTube

シンクロトロン放射光施設の最小構成

1. 電子加速器

2. パルス電磁石

3. 電子軌道

4. 四極電磁石

5. RF加速空洞

6. 偏向電磁石 (BM)

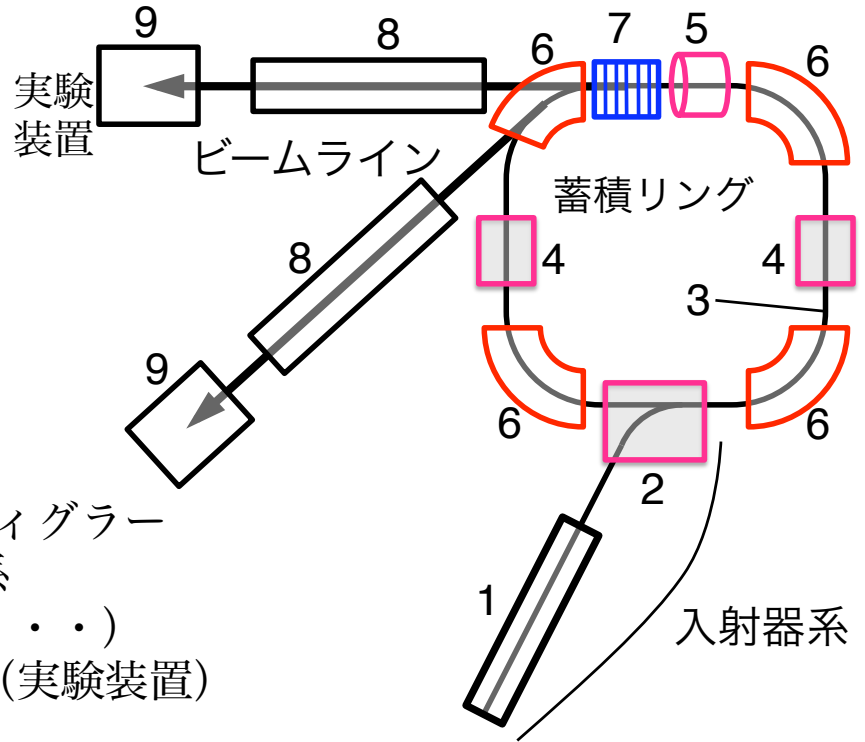
7. 挿入光源 (ID)

アンジュレータorウィグラー

8. ビームライン光学系

(分光器、集光鏡・・・)

9. 実験ステーション (実験装置)



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

SPring-8の構成

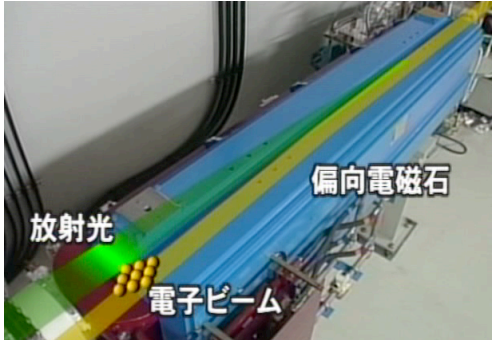
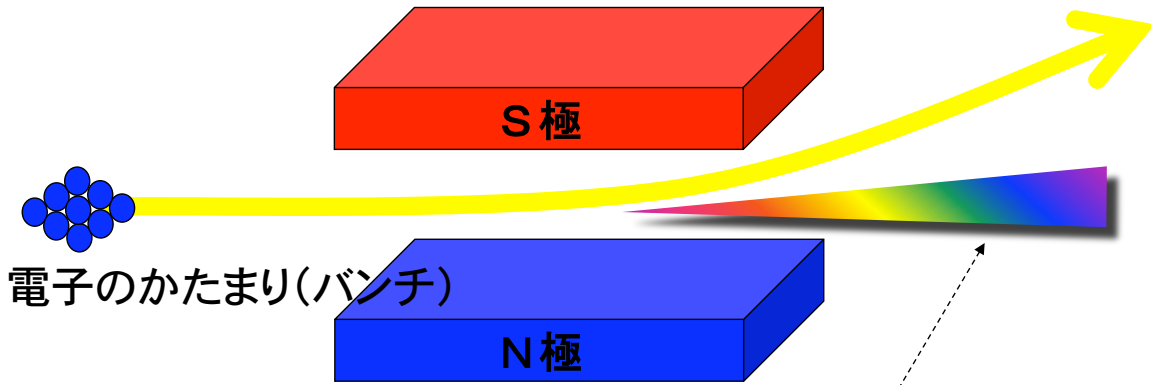
1997年稼働



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

偏向電磁石からのシンクロトロン放射



光の速さに近い速さで運動する電子の進行方向が磁石による磁場で曲げられるとき、その接線方向に「シンクロトロン放射光」が発生する

正確な記述は古典電磁気学に出てくる「リエナール・ウィーヘルトポテンシャル」を計算



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

13

シンクロトロン放射の物理 1 : 遅延ポテンシャル

真空中における(電荷および電流があるときの)マクスウェルの方程式

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t)/\epsilon_0 \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) + \frac{\partial \vec{B}(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0 \quad \vec{\nabla} \times \vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{j}(\vec{r}, t) + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t}$$

上記方程式を2種類のポテンシャル ϕ, \vec{A} で表すと・・・

$$\vec{\nabla}^2 \phi(\vec{r}, t) - \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \phi(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = -\rho(\vec{r}, t)/\epsilon_0 \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{A}(\vec{r}, t) + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \phi(\vec{r}, t)}{\partial t} = 0$$

(Lorentz gauge)

$$\vec{\nabla}^2 \vec{A}(\vec{r}, t) - \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{A}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = -\mu_0 \vec{j}(\vec{r}, t) \quad \vec{E}(\vec{r}, t) = -\vec{\nabla} \phi(\vec{r}, t) - \frac{\partial \vec{A}(\vec{r}, t)}{\partial t}$$

これら方程式の解として

$$\phi(\vec{r}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\rho(\vec{r}', t - |\vec{r} - \vec{r}'|/c)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r}'$$

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int \frac{\vec{j}(\vec{r}', t - |\vec{r} - \vec{r}'|/c)}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r}'$$

$$\epsilon_0 \mu_0 = 1/c^2$$

遅延ポテンシャル



Akira Sekiyama 光の速さが有限($c = 3.0 \times 10^8$ m/s)なことがここに現れている

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

14

シンクロトロン放射の物理 2 : L-Wポテンシャル

運動する点電荷 q を表すと

$$\rho(\vec{r}', t_R) = q\delta(\vec{r}' - \vec{r}_0(t_R)), \quad \vec{j}(\vec{r}', t_R) = q\vec{v}(t_R)\delta(\vec{r}' - \vec{r}_0(t_R)),$$

但し $t_R = t - |\vec{r} - \vec{r}'|/c \equiv t - |\vec{R}(t_R)|/c$ は t より前の電子が光を放つ
ときの時刻

これらを遅延ポテンシャルに代入して

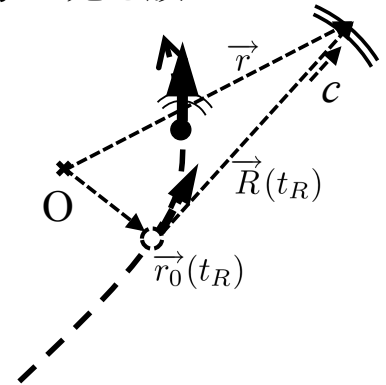
$$\phi(\vec{r}, t) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\delta(t_R - t + |\vec{r} - \vec{r}_0(t_R)|/c)}{|\vec{r} - \vec{r}_0(t_R)|} dt_R$$

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{\mu_0 q}{4\pi} \int \frac{\vec{v}(t_R)\delta(t_R - t + |\vec{r} - \vec{r}_0(t_R)|/c)}{|\vec{r} - \vec{r}_0(t_R)|} dt_R$$

これを計算すると以下のような、点電荷の作る
Lienard-Wiechertポテンシャルが得られる

$$\phi(\vec{r}, t) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{R(t_R)\{1 - \vec{R}(t_R) \cdot \vec{v}(t_R)/(R(t_R)c)\}} = \frac{q}{4\pi\epsilon_0 R} \cdot \frac{1}{b}$$

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{\mu_0 q}{4\pi} \cdot \frac{\vec{v}(t_R)}{R(t_R)\{1 - \vec{R}(t_R) \cdot \vec{v}(t_R)/(R(t_R)c)\}} = \frac{\mu_0 q \vec{v}}{4\pi R} \cdot \frac{1}{b}$$



 Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

15

シンクロトロン放射の物理 3 : 輻射

前頁のポテンシャルから定義
に従って電場・磁場を計算

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = -\vec{\nabla}\phi(\vec{r}, t) - \frac{\partial \vec{A}(\vec{r}, t)}{\partial t}$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{\nabla} \times \vec{A}(\vec{r}, t)$$

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{(1 - v^2/c^2)}{R^2 b^3} \left(\frac{\vec{R}}{R} - \frac{\vec{v}}{c} \right) + \frac{1}{R b^3 c} \cdot \frac{\vec{R}}{R} \times \left\{ \left(\frac{\vec{R}}{R} - \frac{\vec{v}}{c} \right) \times \frac{\vec{a}}{c} \right\} \right]$$

$$= \vec{E}_v + \vec{E}_a$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \frac{q}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{(1 - v^2/c^2)}{R^2 b^3 c^2} (\vec{v} \times \frac{\vec{R}}{R}) + \frac{1}{R b^3 c^2} \left\{ \frac{\vec{R}}{R} \times \left[\frac{\vec{R}}{R} \times \left\{ \left(\frac{\vec{R}}{R} - \frac{\vec{v}}{c} \right) \times \frac{\vec{a}}{c} \right\} \right] \right\} \right]$$

$$= \vec{B}_v + \vec{B}_a = \frac{1}{c} \cdot \frac{\vec{R}}{R} \times \vec{E}(\vec{r}, t) \quad b = 1 - \frac{\vec{R} \cdot \vec{v}}{Rc} \equiv 1 - \frac{v}{c} \cos\theta$$

第一項：クーロン場 $\propto 1/\text{距離}^2$

第二項：輻射場 $\propto 1/\text{距離}$ 電荷は加減速で初めて電磁波を放射

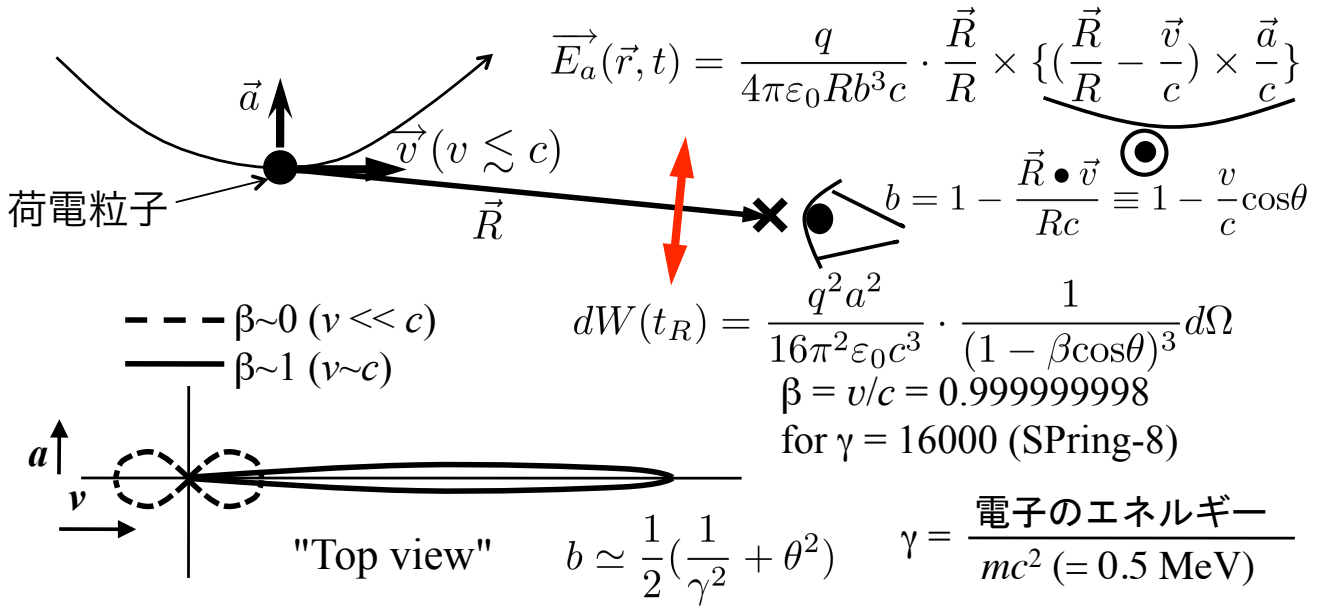
実はここまで「相対論効果」なるものも近似も一切使わず
つまりは「携帯電話の電波」も「シンクロトロン放射」も
厳密には同じ表式 相対論効果は自然に内包

 Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

16

シンクロトロン放射の偏光性・指向性と短波長性



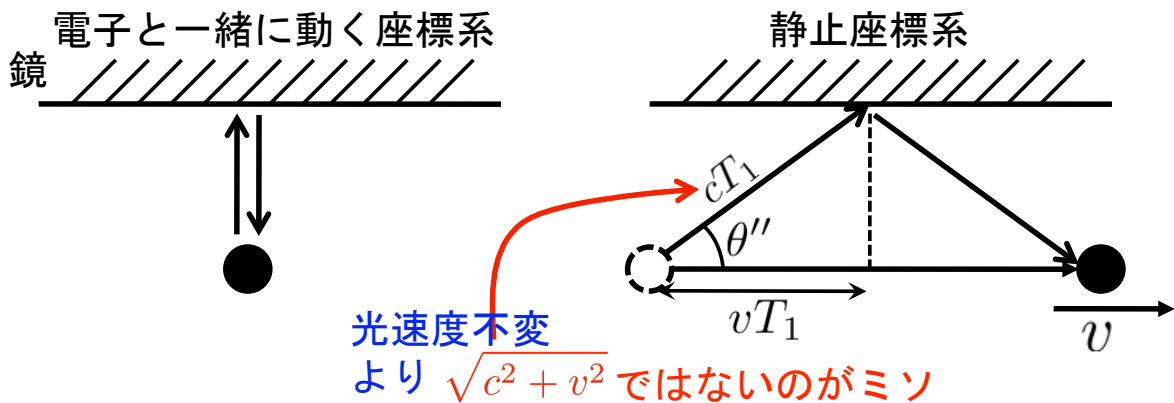
偏光性：荷電粒子の速度によらない

指向性：光速度不変の原理から導出 → 正に相対論効果

短波長（電波、可視光よりも短い波長）の光成分多い：

一種のドップラー効果として理解可能

相対論効果をもたらすシンクロトロン放射の指向性



「真横」に出た光



前方角度(rad) $\theta'' = \cos^{-1} \frac{v}{c}$
 の方向に出た光

$$\gamma = \left[1 - \left(\frac{v}{c} \right)^2 \right]^{-1/2} \Leftrightarrow \frac{v}{c} = \left(1 - \frac{1}{\gamma^2} \right)^{1/2} \text{ より } \theta \simeq \frac{1}{\gamma}$$

$$\gamma = 16000 \text{ (SPring-8)} \rightarrow \theta = 60 \mu\text{rad} = 0.003^\circ$$

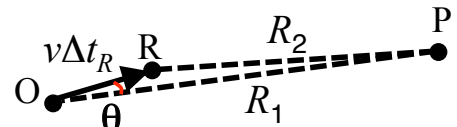
2つの座標系で時間の経過は変わってくる(左の方がゆっくり)

運動する荷電粒子が放射する光パルスの収縮

$t_R = 0$ において光が点Oから点Pに向けて放射、光が点Pに到達する時刻： $t_1 = \frac{R_1}{c}$

電子は点Oから点Rに移動しつつ光を点Pに向けて放射： $t_R = \Delta t_R$ において点Rから放射された光が点Pに到達する時刻： $t_2 = \Delta t_R + \frac{R_2}{c}$

一種のドップラー効果



相対論効果ともいえる

$$R_2 = \{(v\Delta t_R)^2 + R_1^2 - 2R_1v\Delta t_R \cos\theta\}^{1/2} \simeq R_1 \left(1 - \frac{2v\Delta t_R \cos\theta}{R_1}\right)^{1/2} \quad (v\Delta t_R \ll R_1)$$

$$\simeq R_1 - v\Delta t_R \cos\theta$$

$$\Delta\tau = t_2 - t_1 = \Delta t_R + \frac{R_2}{c} - \frac{R_1}{c} \simeq \Delta t_R + \frac{R_1 - v\Delta t_R \cos\theta}{c} - \frac{R_1}{c} = b\Delta t_R$$

$$\beta = v/c \sim 1 \text{ かつ } \theta \sim 0 \text{ のとき, } \gamma = (1 - \beta^2)^{-1/2} \Rightarrow \beta = (1 - \gamma^{-2})^{1/2} \simeq 1 - \frac{1}{2\gamma^2}$$

$$b = 1 - \frac{v}{c} \cos\theta \simeq 1 - \left(1 - \frac{1}{2\gamma^2}\right) \left(1 - \frac{1}{2}\theta^2\right) \simeq \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right) \quad b \sim 4 \times 10^{-9} \text{ (SP8)} \\ 4 \times 10^{-8} \text{ (PF)}$$

パルス時間幅 $\Delta t_R \rightarrow b\Delta t_R \simeq \frac{\Delta t_R}{2\gamma^2}$ に収縮、波長も同様 $\lambda \rightarrow b\lambda \simeq \frac{\lambda}{2\gamma^2}$



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

19

偏向電磁石からのシンクロトロン放射の白色性

$\theta = 0$ として収縮されたパルス幅 ΔT を計算

「1個の電子」からの放射 $\Delta T = b \frac{2\rho}{\gamma v} = \frac{\rho}{\gamma^3 v} \simeq \frac{\rho}{\gamma^3 c}$

不確定性原理もしくはフーリエ変換から $\hbar\Delta\omega = \hbar \frac{2\pi}{\Delta T} = \frac{hc\gamma^3}{\rho}$

$\left(\frac{\rho}{\gamma^3 c}\right)^{-1} = \frac{c\gamma^3}{\rho}$

より正確な計算からピーク光子エネルギーは $\hbar\omega_c = \frac{3\hbar c}{2\rho} \gamma^3 = \frac{3}{4\pi} \cdot \frac{hc}{\rho} \gamma^3$

$\frac{hc\gamma^3}{\rho} \sim 130 \text{ keV (SP8)}$
 $\sim 18 \text{ keV (PF)}$

時間 \rightarrow 振動数

フーリエ変換

実際に観測されるのは、電子が集まった電子バンチからの放射光であり、個々の電子からランダムに放射された光の総和ランダムに放射されているのでレーザのような干渉性はない



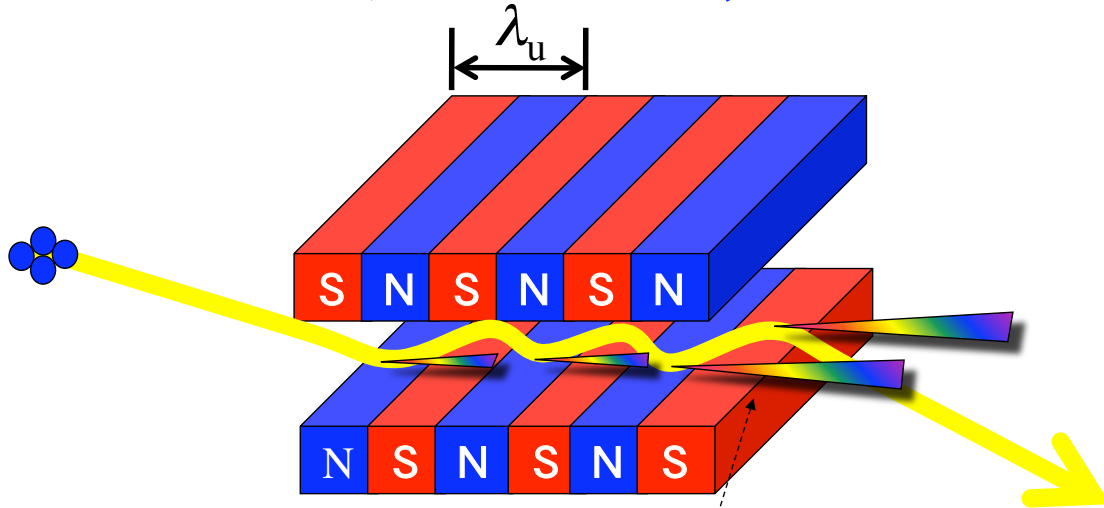
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

20

挿入光源からのシンクロトロン放射

アンジュレータ



電子を周期的に蛇行させ、発生した放射光を干渉させる

極めて明るい特定波長(周期長 λ_u に比例, γ^2 に反比例)の光が得られる

SPring-8: $\lambda_u = 3.2 \text{ cm}$, $\gamma = 16000 \rightarrow \lambda_u/(2\gamma^2) \sim 0.6 \text{ \AA} = 0.06 \text{ nm}$

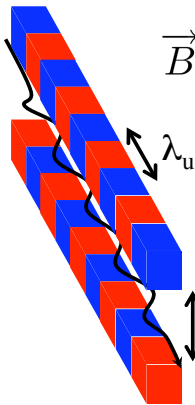


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

21

アンジュレータ放射における運動方程式の解



電子の相対論的運動方程式

$$\vec{B} = -\vec{e}_y B_0 \sin \frac{2\pi z}{\lambda_u}$$

$$\frac{d}{dt_R}(\gamma m \vec{v}) = -e \vec{v} \times \vec{B}$$

$$K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi mc}, \quad \omega_0 = 2\pi \frac{v}{\lambda_u} \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) \simeq \frac{2\pi v}{\lambda_u} \quad \text{として } v \simeq c \text{ のとき}$$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{K\lambda_u}{2\pi\gamma} \sin\omega_0 t_R \\ 0 \\ \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) v t_R - \frac{K^2\lambda_u}{16\pi\gamma^2} \sin 2\omega_0 t_R \end{pmatrix}$$

$$a_z \sim \frac{K}{2\gamma} a_x \ll a_x \quad \begin{pmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{Kv}{\gamma} \cos\omega_0 t_R \\ 0 \\ \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) v - \left(\frac{K^2}{4\gamma^2} \cos 2\omega_0 t_R\right) v \end{pmatrix}$$

$$\begin{pmatrix} a_x \\ a_y \\ a_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{K}{\gamma} v \omega_0 \sin\omega_0 t_R \\ 0 \\ \frac{K^2}{2\gamma^2} v \omega_0 \sin 2\omega_0 t_R \end{pmatrix} \simeq \begin{pmatrix} -\omega_0^2 x \\ 0 \\ -(2\omega_0)^2 \left(z - \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) v t_R\right) \end{pmatrix}$$



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

22

アンジュレータ中の電子軌道と放射電場

$$K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi mc}, \quad \omega_0 = 2\pi \frac{v}{\lambda_u} \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) \simeq \frac{2\pi v}{\lambda_u}$$

K : 無次元量で磁場の強さに比例する量。通常は $0 < K < \sim 20$ 。

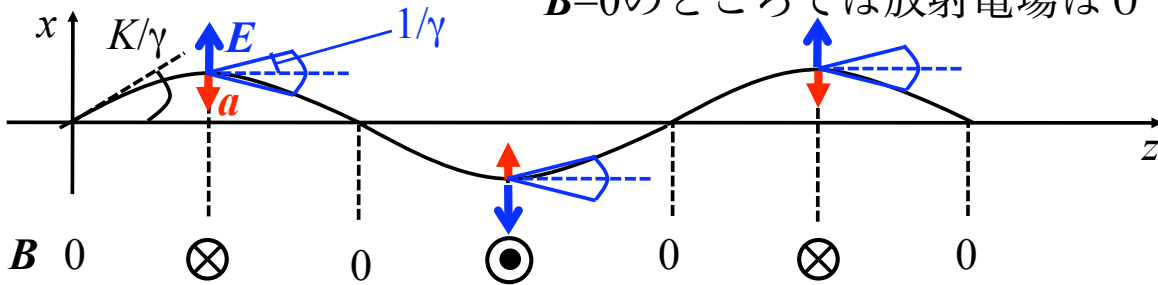
Since $\omega_0 = 2\pi \frac{v}{\lambda_u} \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right)$ and $t_R \simeq \frac{z}{\left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right)v}$,

$$x = \frac{K\lambda_u}{2\pi\gamma} \sin\omega_0 t_R = \frac{K\lambda_u}{2\pi\gamma} \sin\left\{2\pi \frac{v}{\lambda_u} \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) \frac{z}{\left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right)v}\right\} = \frac{K\lambda_u}{2\pi\gamma} \sin 2\pi \frac{z}{\lambda_u}$$

$$\frac{dx}{dz} = \frac{K}{\gamma} \cos 2\pi \frac{z}{\lambda_u}$$

$$a_z \ll a_x \simeq -\omega_0^2 x$$

$B=0$ のところでは放射電場は0



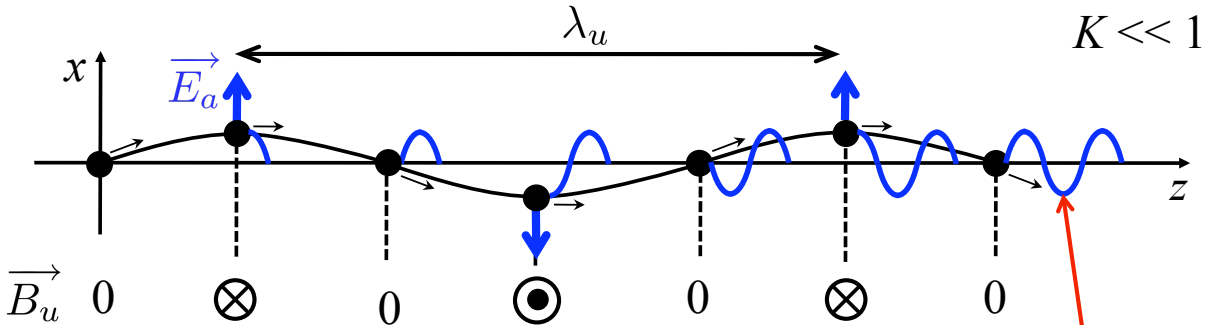
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

23

アンジュレータ放射における「単色性」

「1個の電子」からのアンジュレータ放射



$$\lambda_1 = \lambda_u \left(\frac{c}{\bar{v}_z} - 1 \right)$$

$$\bar{v}_z = \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) v \quad \text{電子のz軸方向の平均速度}$$

$$1/\bar{v}_z = \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right)^{-1} /v \simeq \left(1 - \frac{K^2}{4\gamma^2}\right)^{-1} \left(1 - \frac{1}{2\gamma^2}\right)^{-1} /c \simeq \left(1 + \frac{K^2}{4\gamma^2}\right) \left(1 + \frac{1}{2\gamma^2}\right) /c$$

よって $\lambda_1 \simeq \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2}\right)$

ギャップを変える = K 値を変えることでピークの波長 / 光子エネルギーを変更



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

24

シンクロトロン放射光利用の道のり

元々「シンクロトロン」とは、高エネルギー素粒子物理実験用に建設された円形の加速器

彼らからみれば放射光は実験の障害となる「邪魔者」

しかしそのうちに「この光を使って実験したら面白い成果が多く出るのではないか」と思った科学の他分野の研究者が使うようになる。波長の短いX線領域の人工光源として現在までこれに勝るものはないことを考えれば当然の成り行きか？

それでも最初は、本来の素粒子実験の合間に「寄生」的に利用（1960年代）：「**放射光第1世代**」

実験技術の進展に伴い放射光実験専用の「シンクロトロン放射光源」の建設が望まれ、実際に建設されていく：
「**放射光第2世代**」



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

25

シンクロトロン放射光施設

- 1975 東大物性研SOR-RING (**世界最初の専用施設, ~1997年**)
- 1980 英国Daresbury Laboratory
- 1981 米国Brookhaven NSLS
- 1982 ドイツBESSY-I→現在この装置は中東に移設
- 1982 つくば高工研Photon Factory
- 1984 分子科学研究所(岡崎) UVSOR
- 1985 スウェーデンMAX-Lab

徐々に「挿入光源」と呼ばれるより「明るい光」を出すビームラインを多く作れるような蓄積リングへ：「**放射光第3世代**」

- 1993 米国Advanced Light Source (ALS)
- 1994 仏国(EU) ESRF
- 1996 米国Advanced Photon Source (APS)
- 1997 SPring-8 (兵庫県西播磨地区)**

これ以降も世界各地で様々な放射光施設が建設・稼働



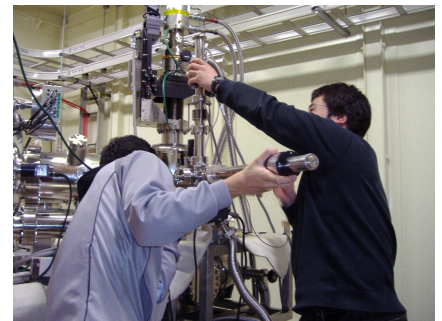
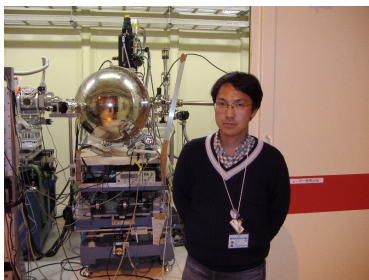
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

26



SPring-8内部の風景



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

27

シンクロトロン放射光でどんな実験を？

実は生物系の研究者の需要が大きい
(タンパク質結晶構造解析)

X線回折による構造解析は物理でもよく使われる
特に微小領域に光を集められる放射光は高圧下での
実験などにも向き

X線吸収分光による固体電子状態の研究
XAFSによる(吸収分光を使った)局所的な原子構造研究
(これは非晶質等規則性のない系に有効)

X線イメージング

光電子分光による電子状態の研究



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

28

光電効果

H. Hertz experiment, 1887

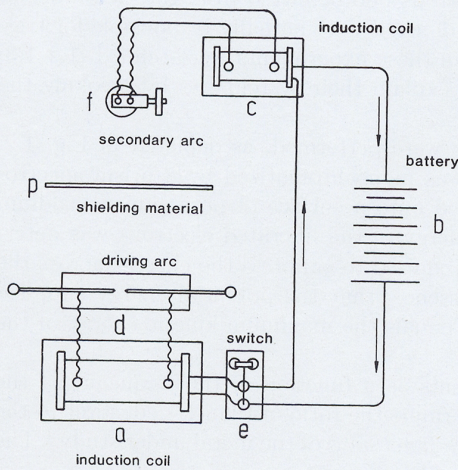
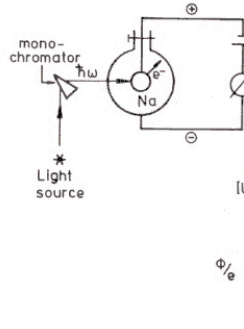


Fig. 1.1. Experimental arrangement used by Hertz photoelectric effect. An arc *d* emits light that can be directed to arc *f*. The coils *c* and *e* produce the voltages for the arcs. The coils are connected to the battery *b*. *p* indicates shielding material between arcs *d* and *f*.

アーク d が光ると、アーク f が誘導される

アーク d の紫外光で f の電極から飛び出す電子が f のアーク放電を引き起こしている



紫外光線を金属に当てると、電子が飛び出す

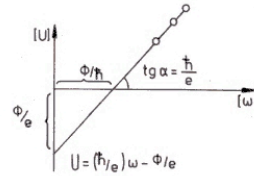


Fig. 1.2. Schematic drawing of an early "photoemission" experiment. Light is sent through a prism monochromator and impinges on a film of an alkali metal (Na, K). The energy of the photoemitted electrons is measured by applying a retarding voltage. A plot of the retarding voltage *U* needed to make the current disappear as a function of the frequency ω of the light is a straight line.



Akira Sekiyama

S. Huefner, Photoelectron Spectroscopy (2003)より

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

アインシュタインによる光電効果の説明

光

光は波長に反比例したエネルギー hc/λ を持つ粒子(光子)の集まりと考える

光電子

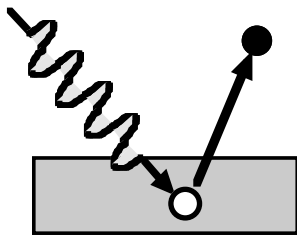
エネルギー: E_K

固体物質

波長の長い光をいくら「強く」当てても電子は飛び出してこない
ある程度波長の短い光なら、「弱くても」、電子が飛び出す

(固体)光電子分光 Photoemission Spectroscopy

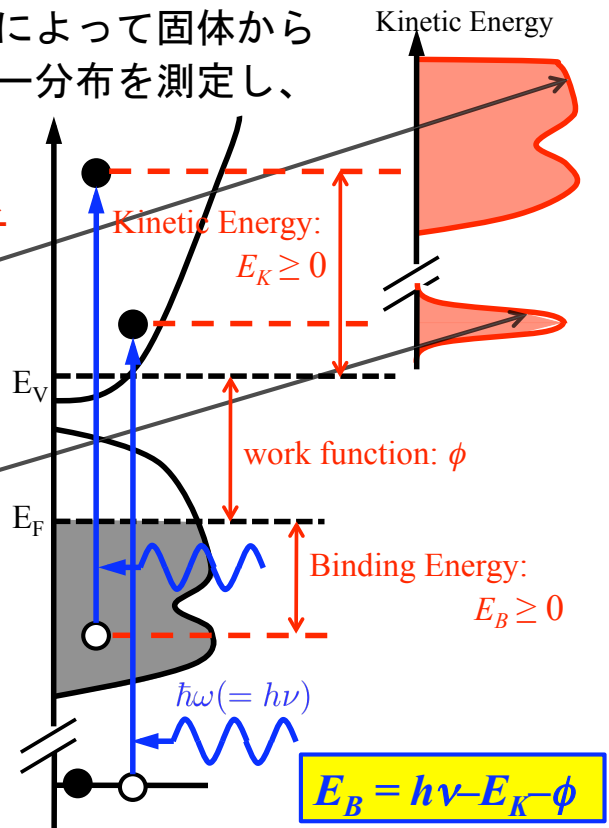
単色化した光を照射し、外部光電効果によって固体から真空中に放出された光電子のエネルギー分布を測定し、電子状態を調べる実験手法
(気体にも適用可能)



1887 Firstly found by Hertz
1905 Explained by Einstein by introducing the concept of the "light quantum" (photon)

価電子帯光電子スペクトル
複数の原子軌道で構成

内殻光電子スペクトル
およその結合エネルギーは既知



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

31

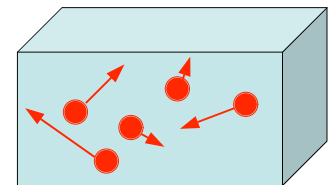
固体結晶の電子状態研究の重要性

固体結晶の性質の多くは中の電子で決まる

- ・電気伝導(電気を流しやすいか、超伝導性)
- ・磁性(磁石になるか)

電子は固体中を常に動き回る

「いつ、どこに電子がいる」かを知ってもあまり意味がない



「どんな速度(運動量)とエネルギーをもって電子が動いているか(バンド分散・フェルミ面)」が物性に重要な役割

どうやってそれを実際に知るか？

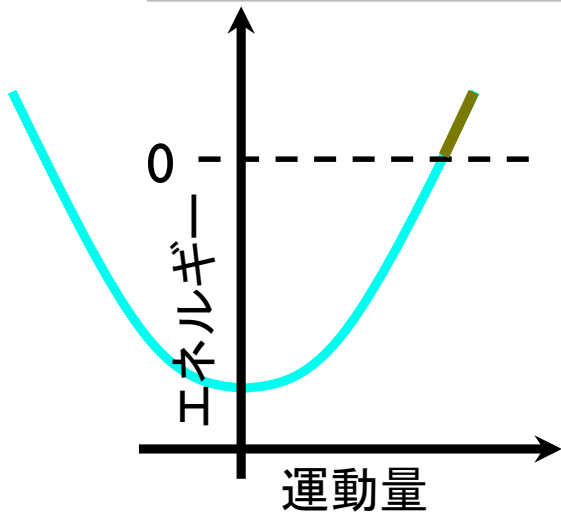


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

32

金属結晶中の電子の運動量分布



電子のエネルギーと運動量の関係
 = 電子構造
 物質の電子構造解明はその物質が示
 す性質や現象
 (例: 超伝導、金属絶縁体転移、磁性
 転移等)
 の起源を知る為の糸口

エネルギーと運動量の情報を保ったまま
 固体から電子を取り出して調べてみればよい
 そんな事が可能か? → **アインシュタインの光電効果**
光を使って取り出す!

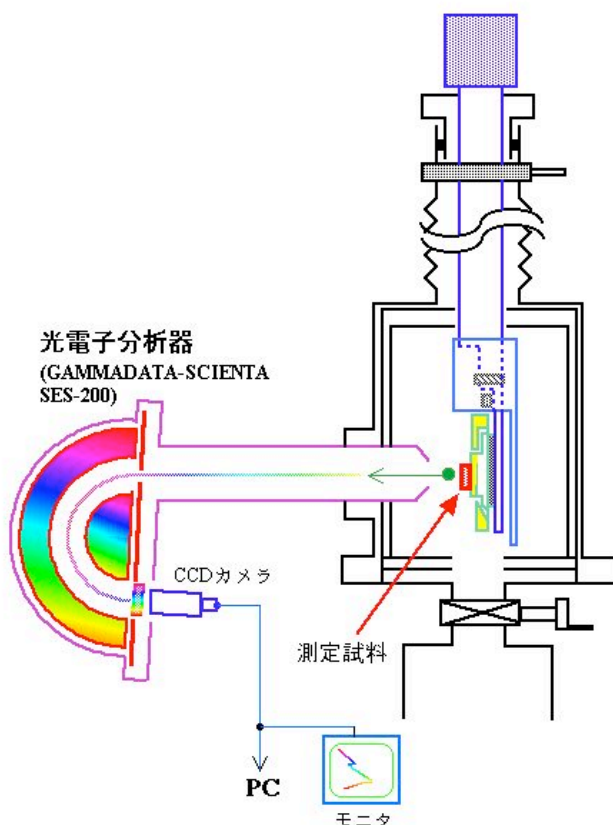


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

33

光電効果を利用した光電子分光



光電子分光測定

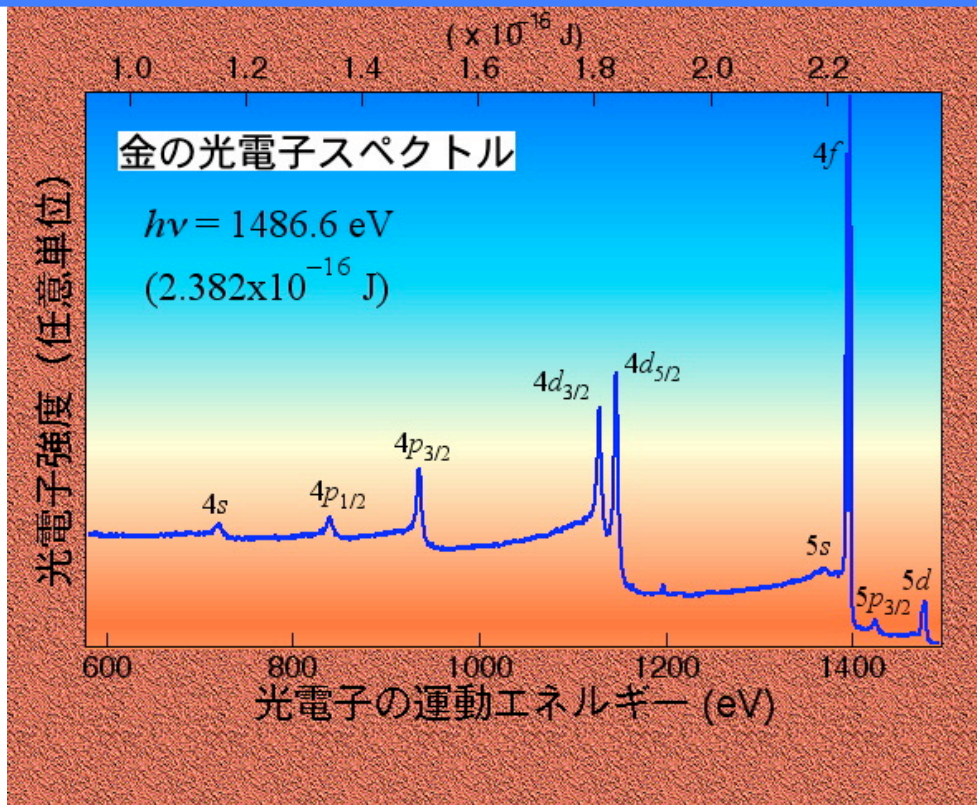
$$E_0 + h\nu = E_K$$

光エネルギーは一定

分析器を通り抜ける
 電子のエネルギーも
 一定にする
 分析器に入るまでの
 電圧を変えて入って
 くる電子のエネルギー
 を少しずつ変えながら
 飛んでくる電子の数を
 数える

1981 光電子分析器の開発でK. M. Siegbahnノーベル賞受賞 34

光電子スペクトル

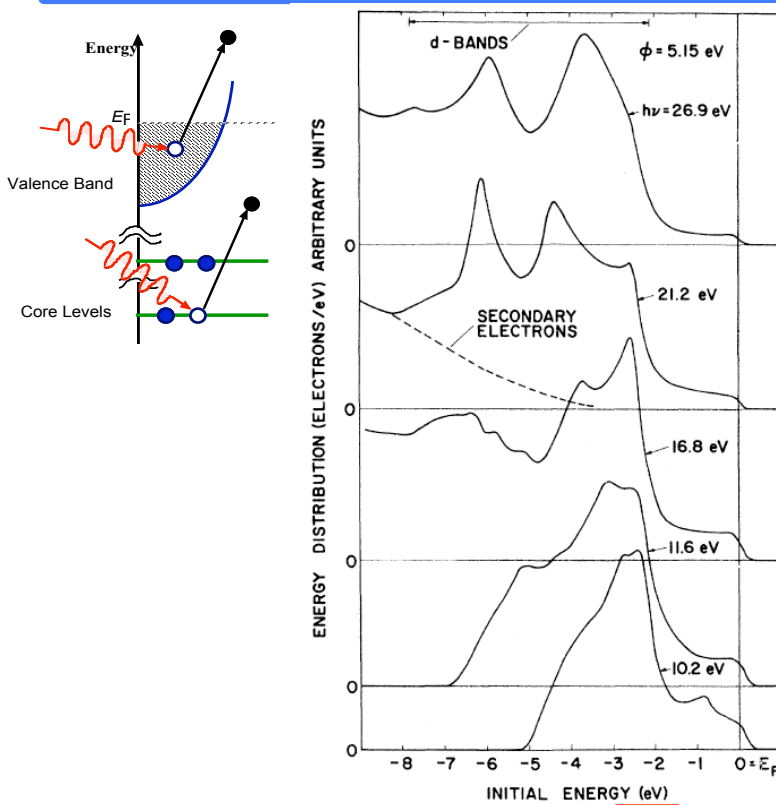


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

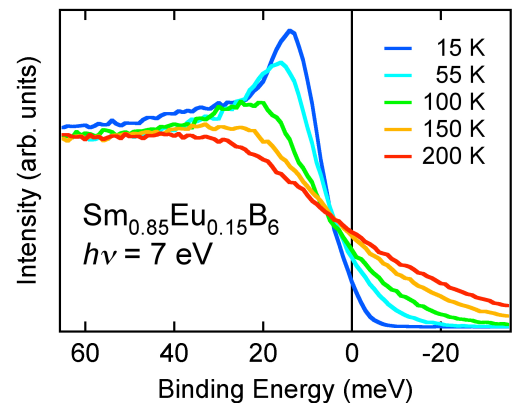
35

価電子帯光電子スペクトル



D. E. Eastman and J. K. Cashion, Phys. Rev. Lett. **24**, 310 (1970).

我々のグループが測定したスペクトル(2008)

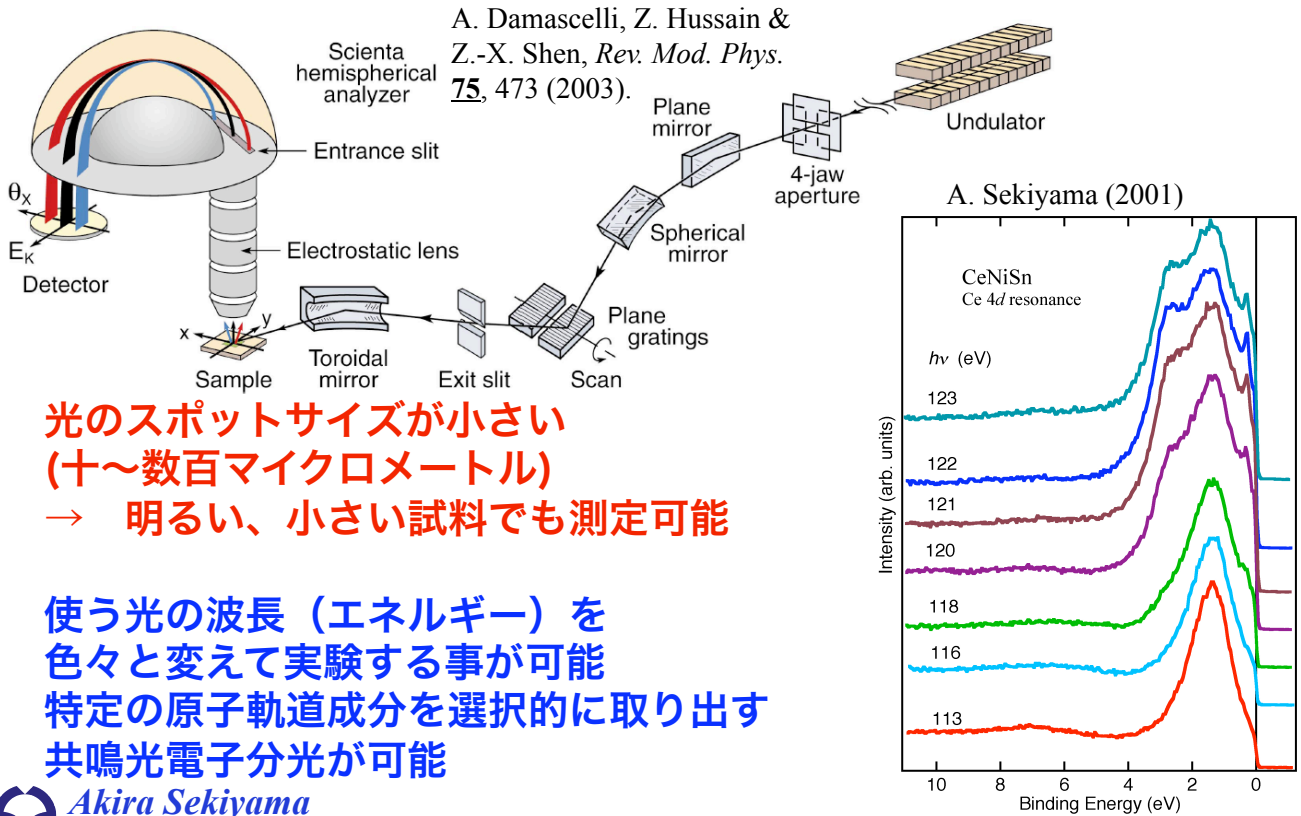


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

36

シンクロトロン放射光を使った光電子分光



光のスポットサイズが小さい
(十～数百マイクロメートル)
→ 明るい、小さい試料でも測定可能

使う光の波長（エネルギー）を
色々変えて実験する事が可能
特定の原子軌道成分を選択的に取り出す
共鳴光電子分光が可能

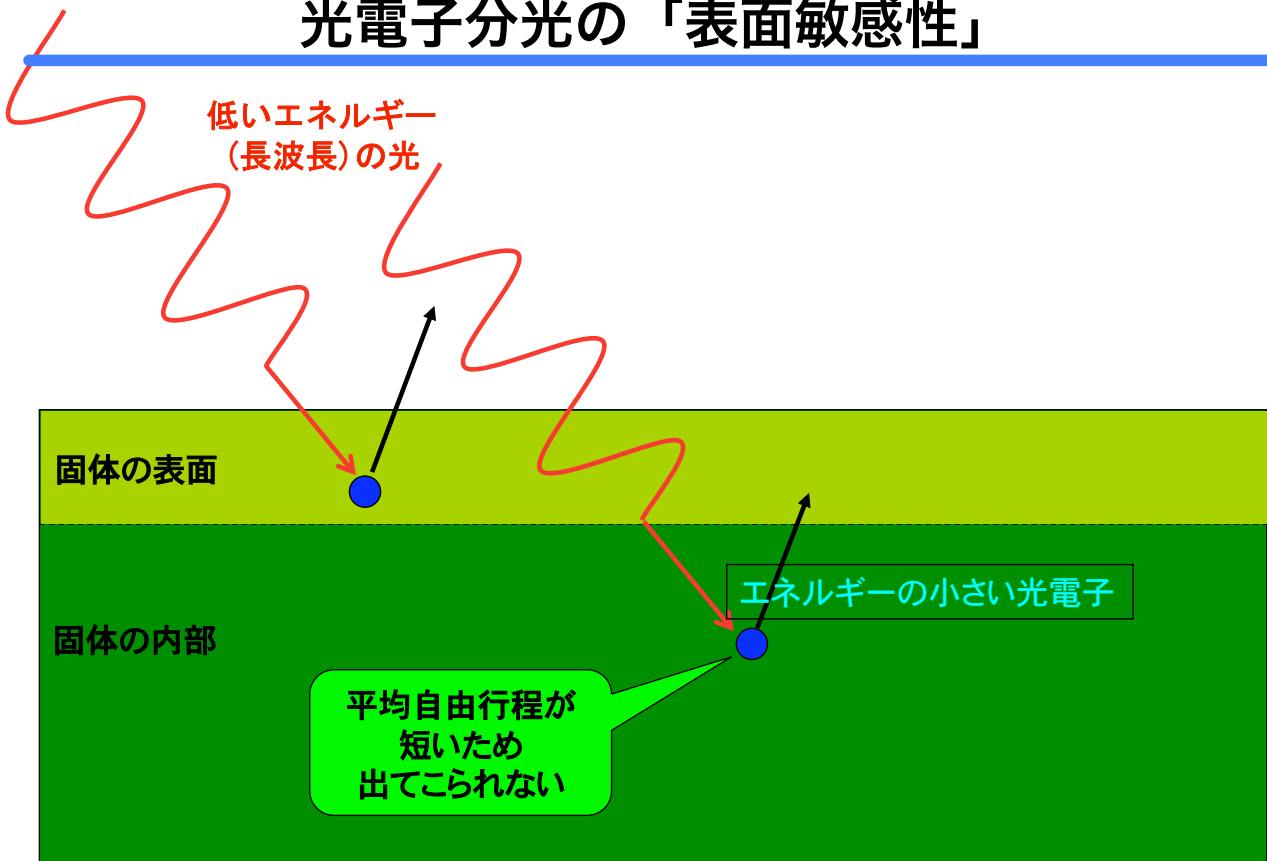


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

37

光電子分光の「表面敏感性」

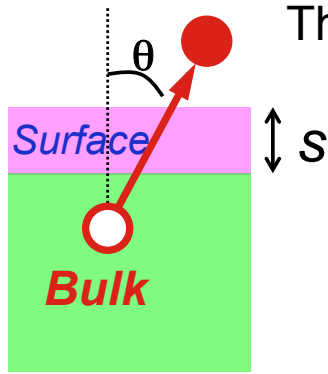


Akira Sekiyama

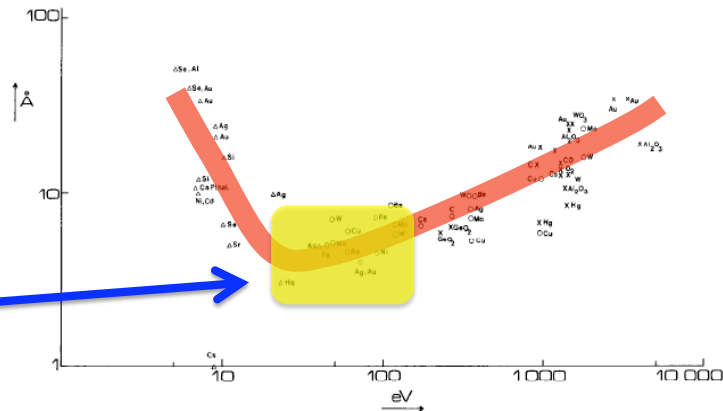
Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

38

光電子分光の「表面敏感性」



The Bulk contribution: $\exp(-s/\lambda\cos\theta)$
 λ : Mean Free Path



20世紀の高分解能
光電子分光

主に表面1-2層から
の光電子を観測

C. R. Brundle, J. Vac. Sci. Technol. **11**, 212 (1974).

表面の研究には好都合、但し

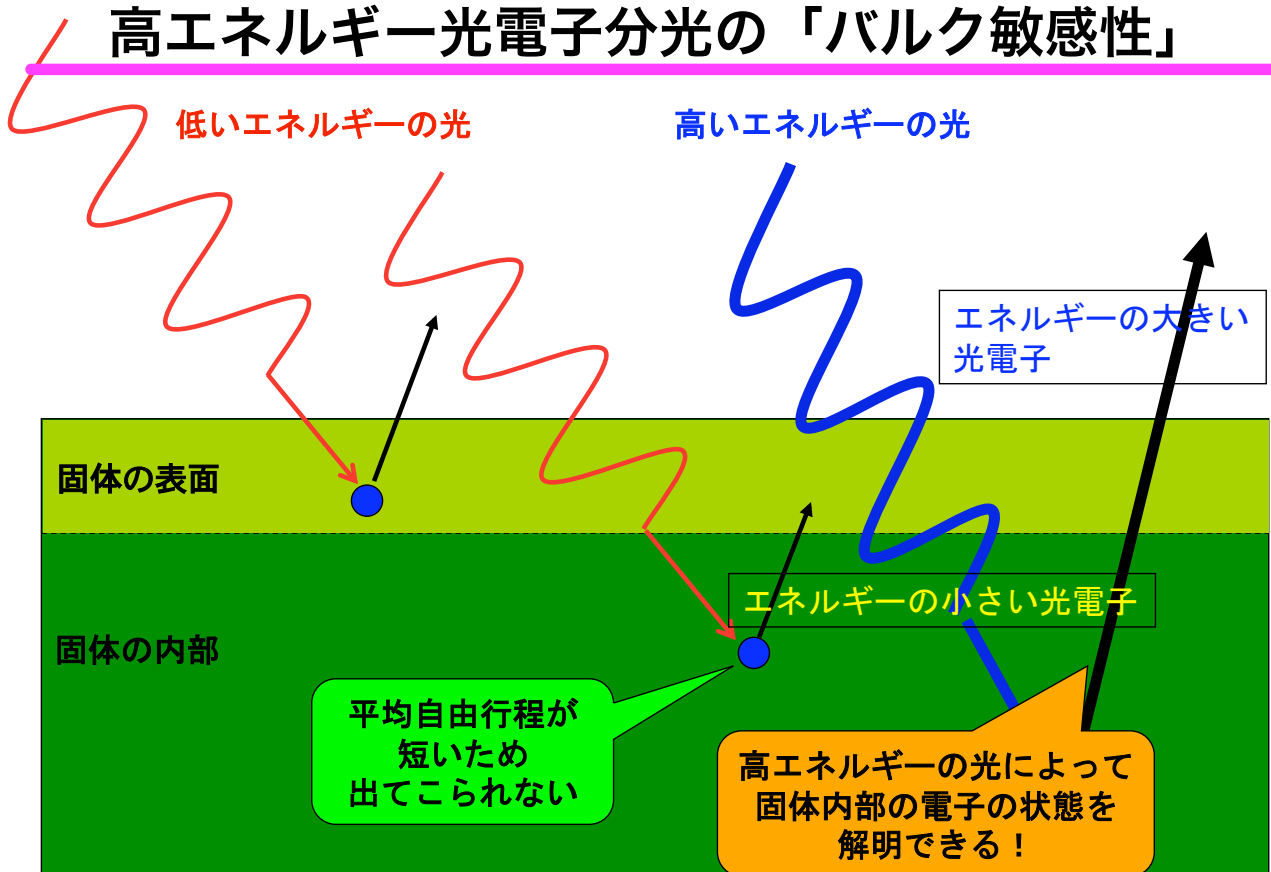
バルク電子状態を議論するにはどうなのか、という
疑問はどうしても片隅に残っていた。



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

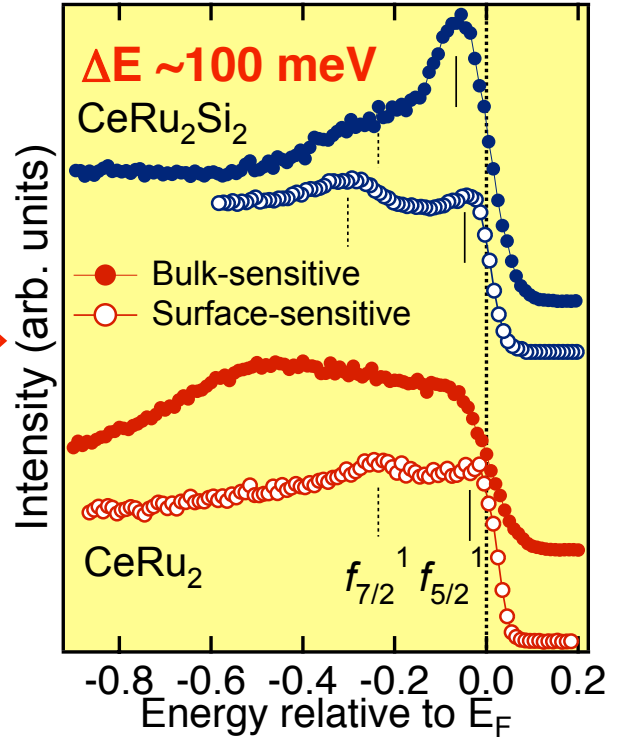
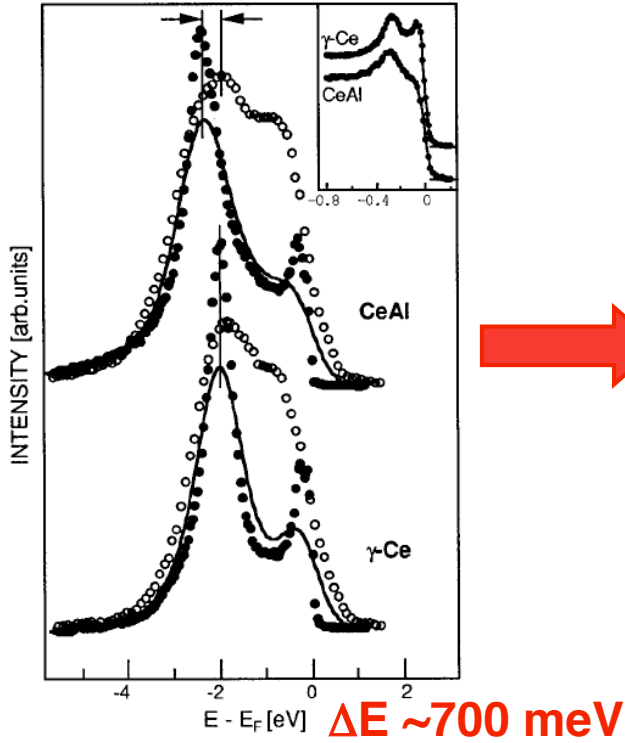
高エネルギー光電子分光の「バルク敏感性」



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

放射光光電子分光のブレークスルー in 2000!



L. Duò *et al.*, PRB **54**, R17363 (1996).



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate

大阪大学

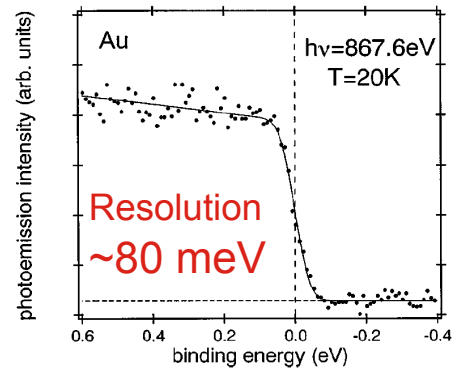
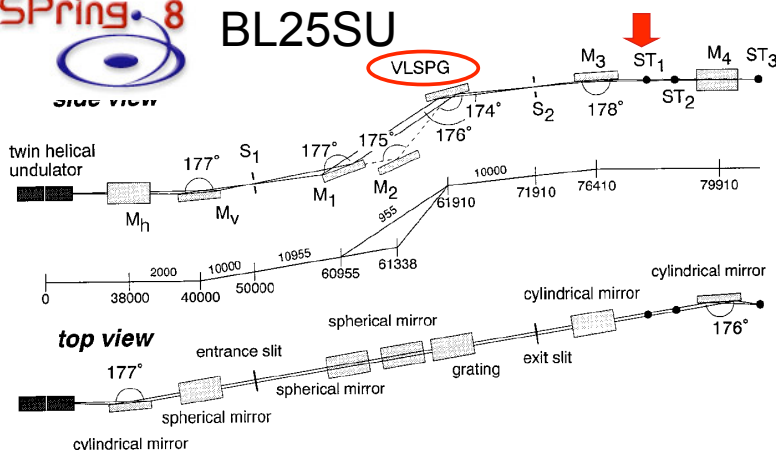
AS *et al.*, Nature
403, 396 (2000).

41

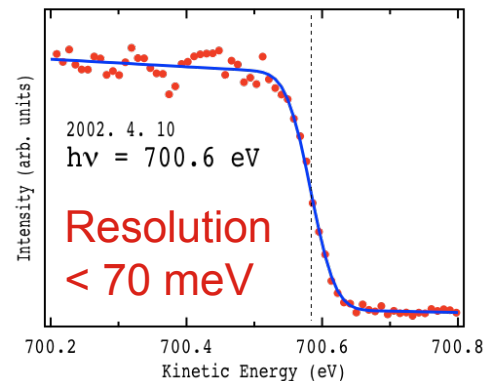
High-resolution SX beamline SPring-8 BL25SU



BL25SU



Y. Saitoh *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **71**, 3254 (2000).



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

大阪大学

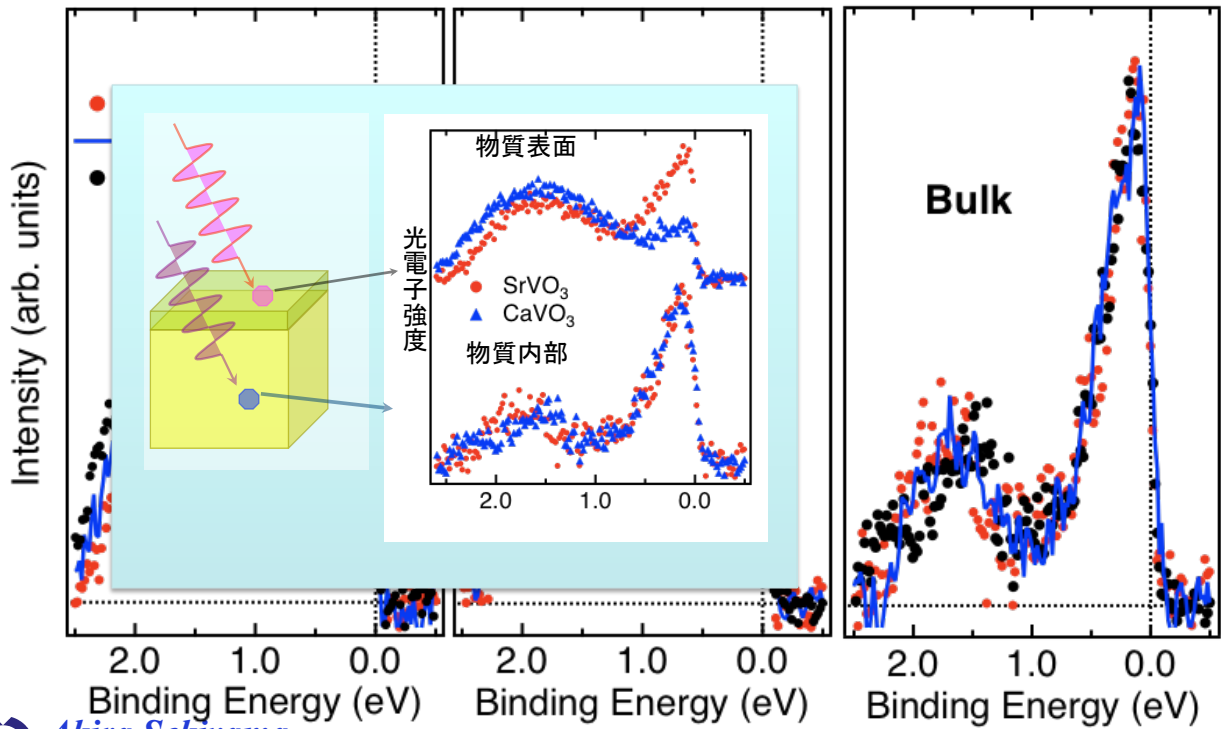
42

強相関Sr_{1-x}Ca_xVO₃電子構造のバルクと表面の違い

AS et al., PRL 93, 156402 (2004).

Surface-sensitive

Bulk-sensitive

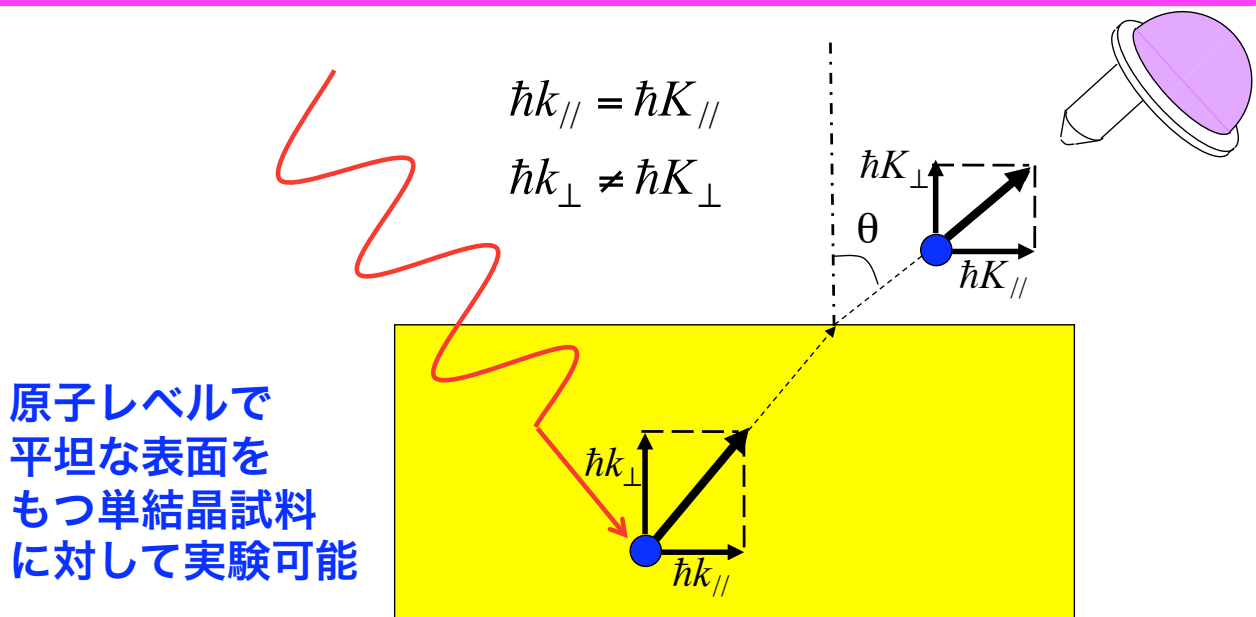


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

43

角度分解光電子分光



原子レベルで
平坦な表面を
もつ単結晶試料
に対して実験可能

$$k_{||} (\text{\AA}^{-1}) = K_{||} = 0.51 \sqrt{E_K (\text{eV})} \sin \theta : \text{厳密に正確}$$

$$k_{\perp} (\text{\AA}^{-1}) = 0.51 \sqrt{E_K (\text{eV}) \cos^2 \theta + V_0} : \text{高エネルギーで妥当}$$



Akira Sekiyama

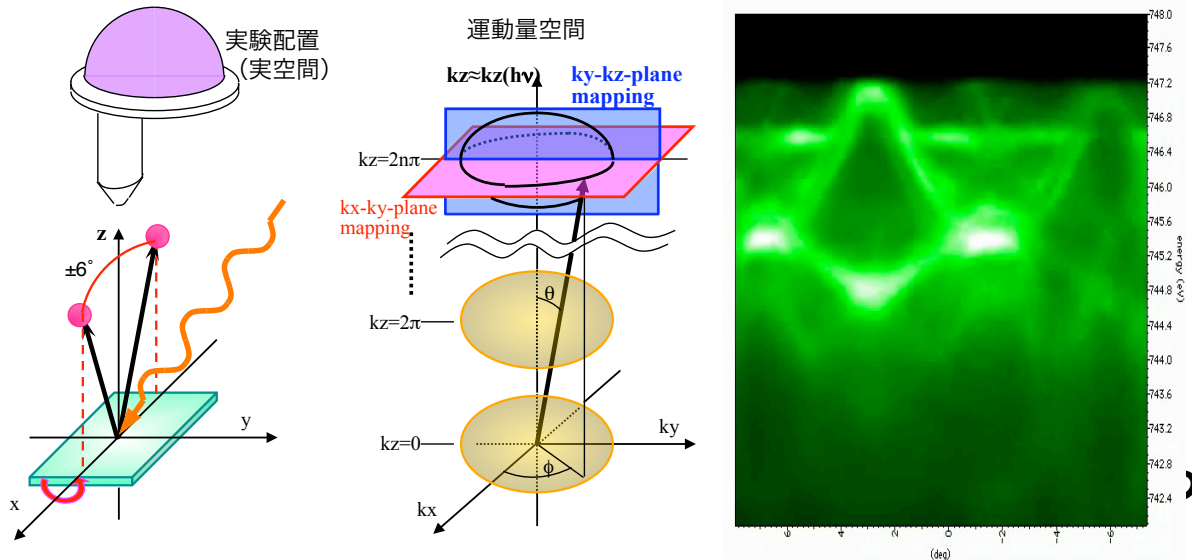
Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

44

軟X線ARPESによる3次元フェルミオロジー

$h\nu$ 一定測定: k_x - k_y 平面フェルミ面マッピング

$h\nu$ 制御(変化)測定: k_y - k_z 平面フェルミ面マッピング



時間を気にしなければ「本当の3Dマッピング」も原理的に可能

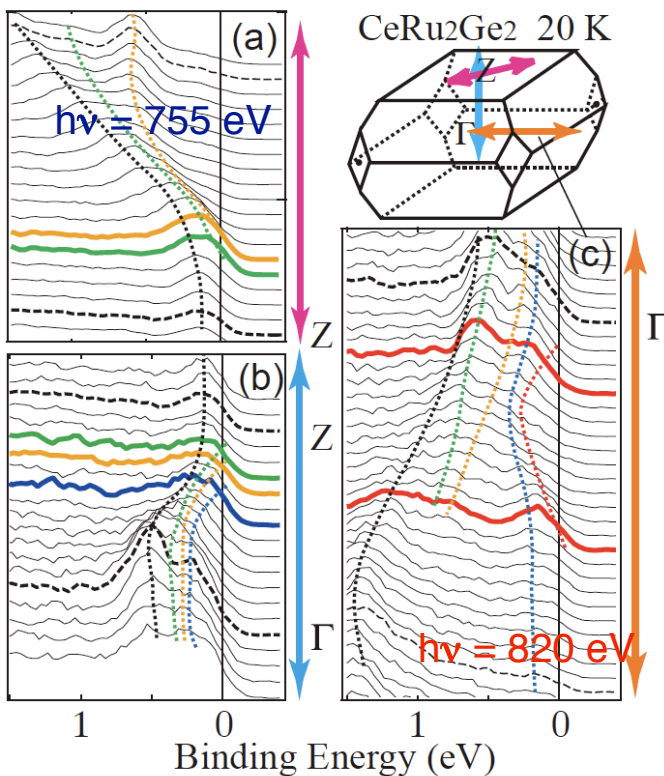


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

45

CeRu₂Ge₂(常磁性相)の3次元軟X線ARPES



E_F 近傍におけるバンド分散の3次元的な観測に成功

↓
原理的には波数空間の任意の点における電子構造を2つの角度と励起エネルギーをパラメータとして観測可能

M. Yano, AS *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 036405 (2007).

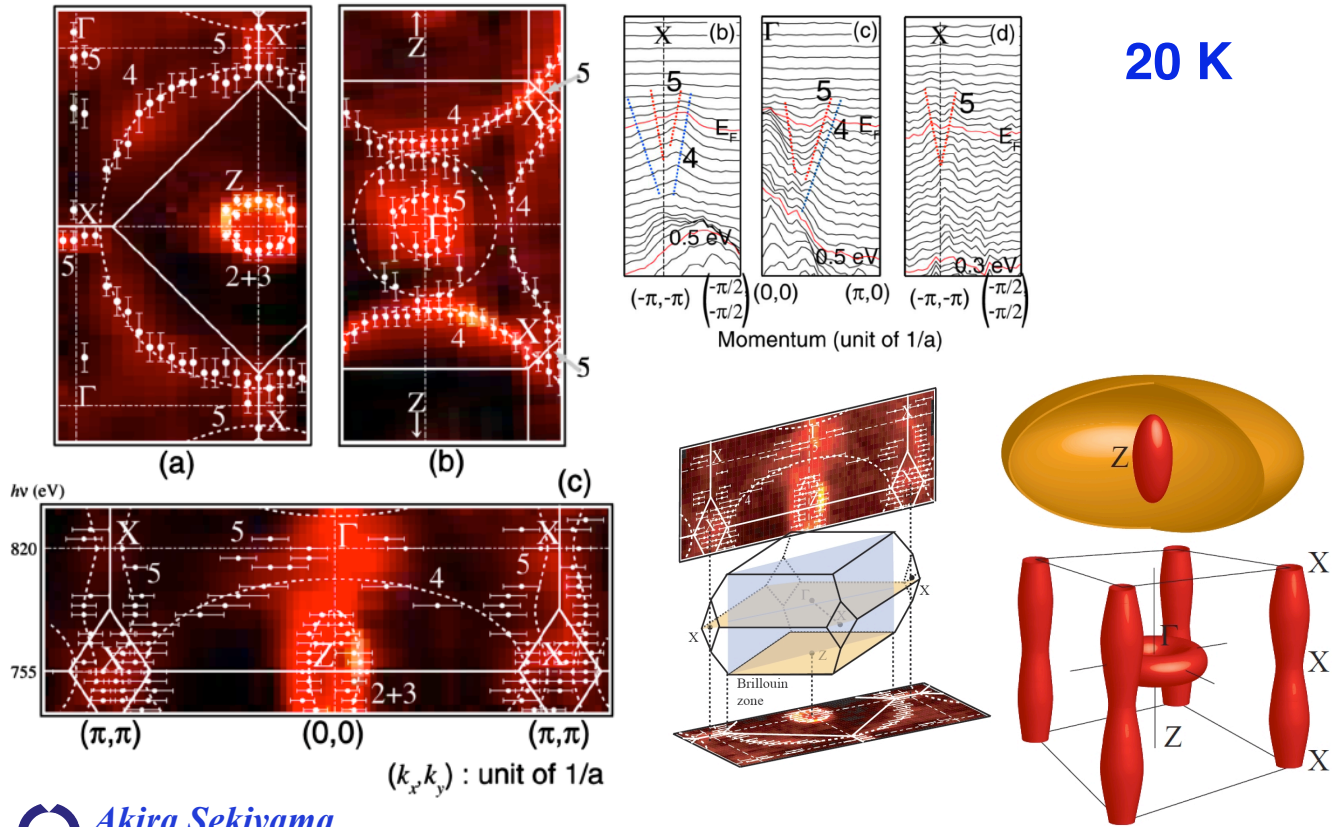


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

46

CeRu₂Ge₂(常磁性相)の3次元フェルミ面



Akira Sekiyama
 大阪大学

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

3次元フェルミ面探索手法開発のインパクト

電子の動き
3次元描写
阪大の菅教授ら

「金属の「超伝導」解明に光

立体的に視覚化されたセリウムなど3元素の化合物内部の電子集団—大阪大学・菅さんらの提供

金属の「超伝導」解明に光。電気の流れることや磁性の変化など、固体の性質は、中を動いている電子の状態が決まる。とて、電気を流す役目を担う電子は、エネルギーを持った電子の動きは重要だ。しかし、固体内部の電子の状態は、高純度の大きな結晶を絶対零度付近に冷却して、磁場をかけるなどして測定されてきた。

菅さんは2006年、兵庫県の播磨科学公園都市にある大型放射光施設「SPring-8」で、3次元的に電子集団の動きの方向やエネルギーを3次元的に図示する手法を開発した。今回、内部の電子の状態を調べ、立体的に示すことができた。

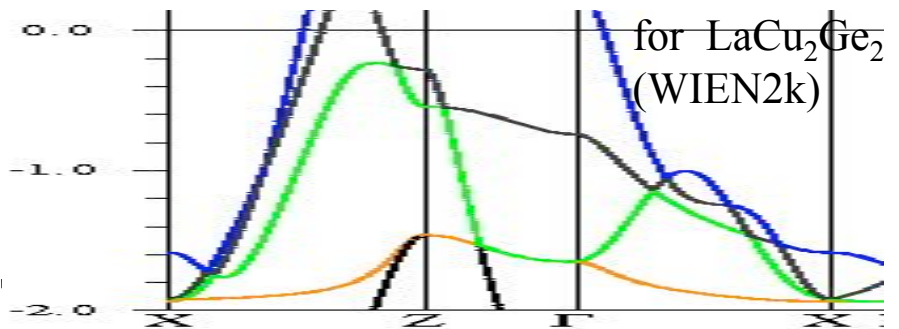
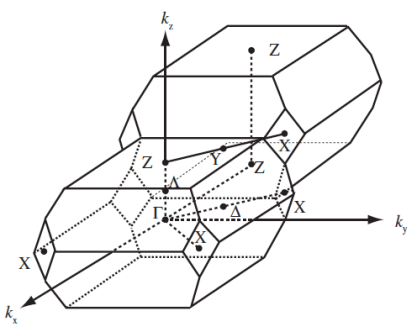
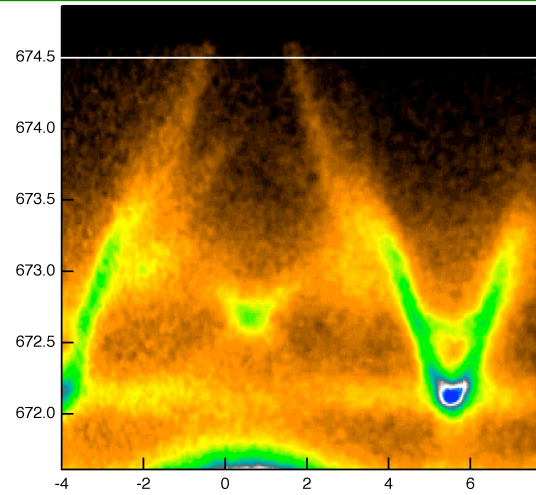
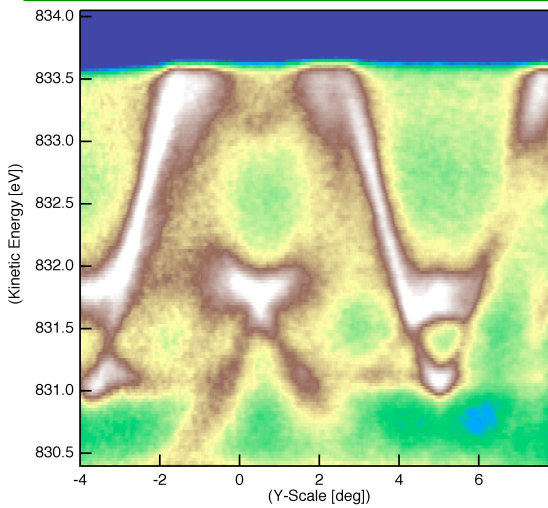
「千々をもちに電子集団の動きの方向やエネルギーを3次元的に図示する手法を開発した。今回、内部の電子の状態を調べ、立体的に示すことができた。」と菅さんは話す。菅さんは「3次元的に電子の状態を調べ、立体的に示すことができた。」と菅さんは話す。菅さんは「3次元的に電子の状態を調べ、立体的に示すことができた。」と菅さんは話す。

H19(2007)年2月2日夕刊
4面科学欄

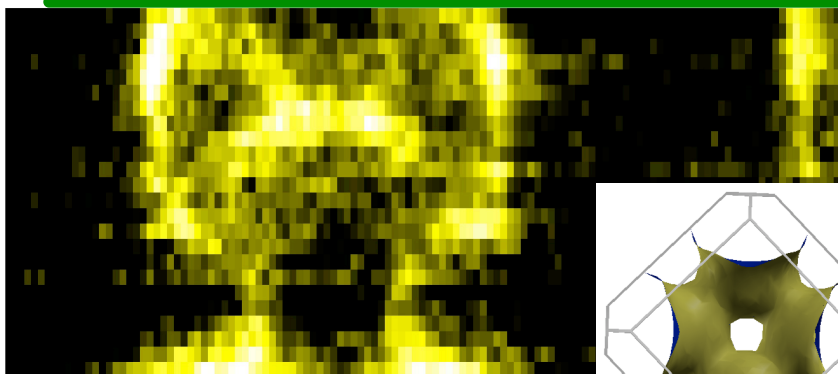
Akira Sekiyama
 大阪大学

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

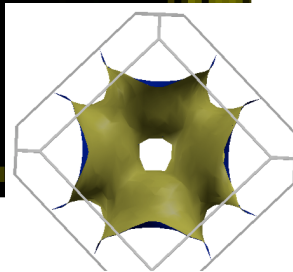
3D ARPES for LaCu_2Ge_2 at 20 K



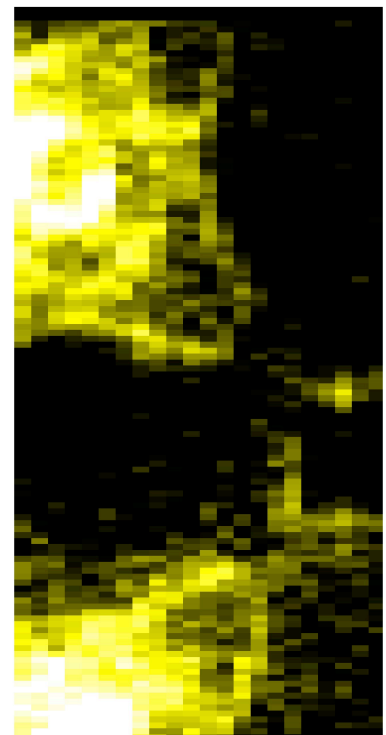
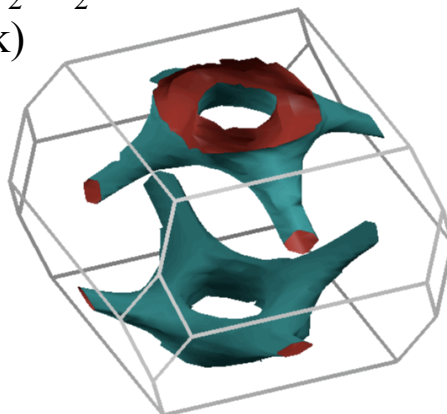
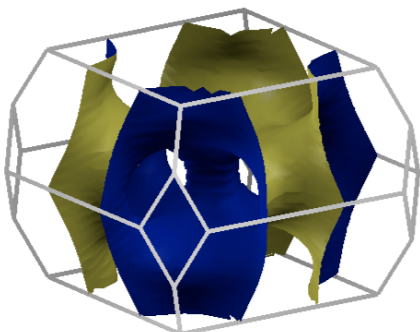
3D FS for LaCu_2Ge_2 at 20 K



$h\nu = 675 \text{ eV}$

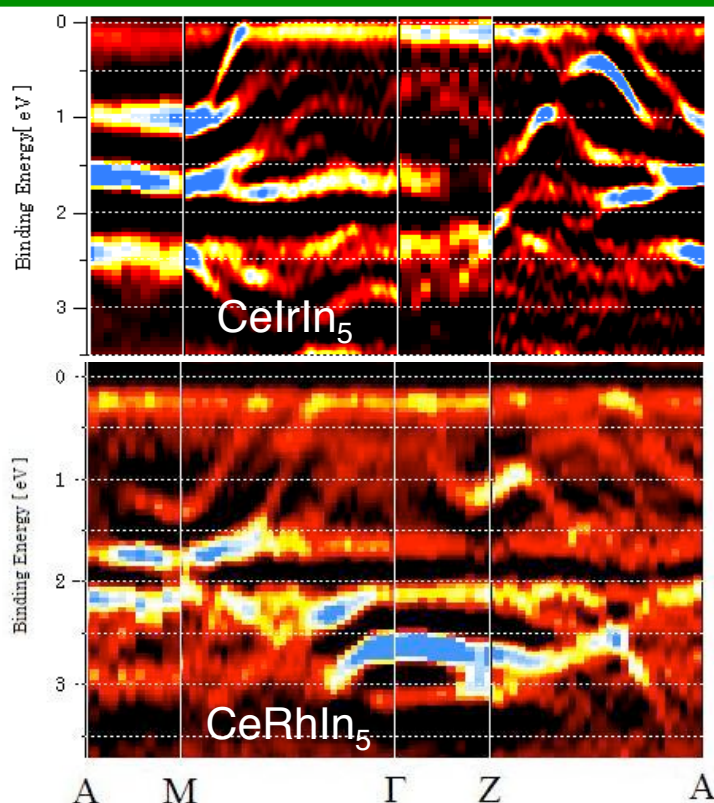


for LaCu_2Ge_2
(WIEN2k)



量子臨界物質の電子構造

2012年修士修了の
大学院生が大活躍



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

51

もっと「バルク敏感」な硬X線光電子分光

390~770 nm : 可視光

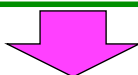
300 nm以下 : 多くの物質で光電効果が起こる

10~80 nm : 20世紀の高精度光電子分光 (表面敏感)

1~2 nm : 軟X線による「バルク敏感」
高精度光電子分光(2000~)



「もっと短い波長の光を使ったら
さらにバルク敏感な光電子分光が可能では？」



さらに短い波長(0.15~0.2 nm)による
硬X線光電子分光(HAXPES)

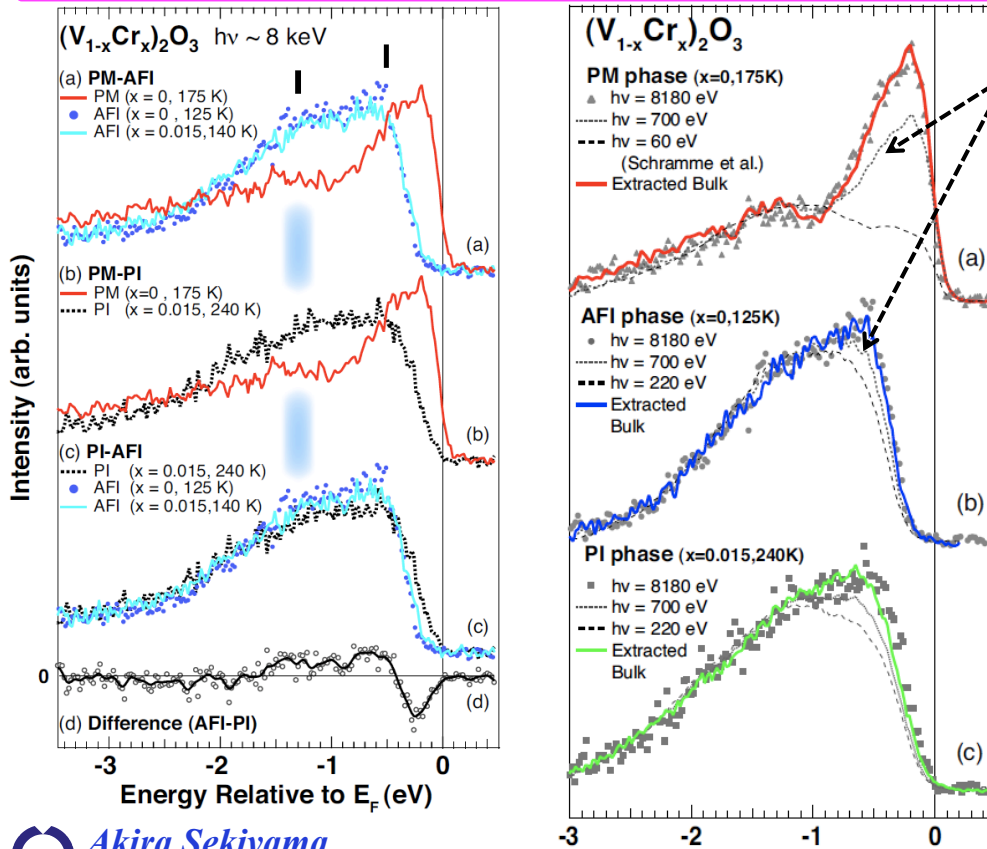


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

52

HAXPESによる V_2O_3 モット転移機構の解明



$h\nu = 700$ eVでもまだ不十分

単なる電子相関に加えて基底の縮退度が転移の重要な鍵 (Orbital-selective Mott transition)

H. Fujiwara, AS *et al.*, PRB **84**, 075117 (2011).



Akira Sekiyama

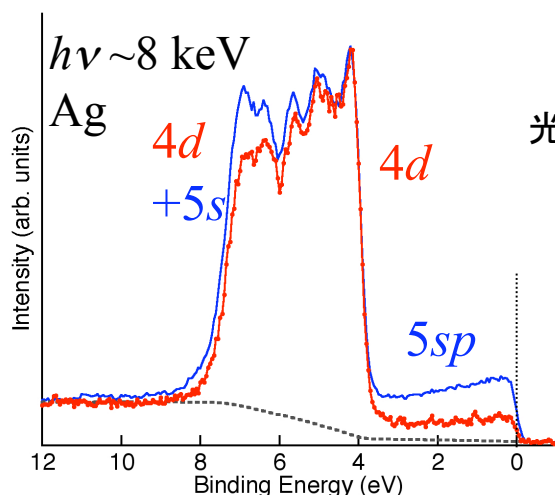
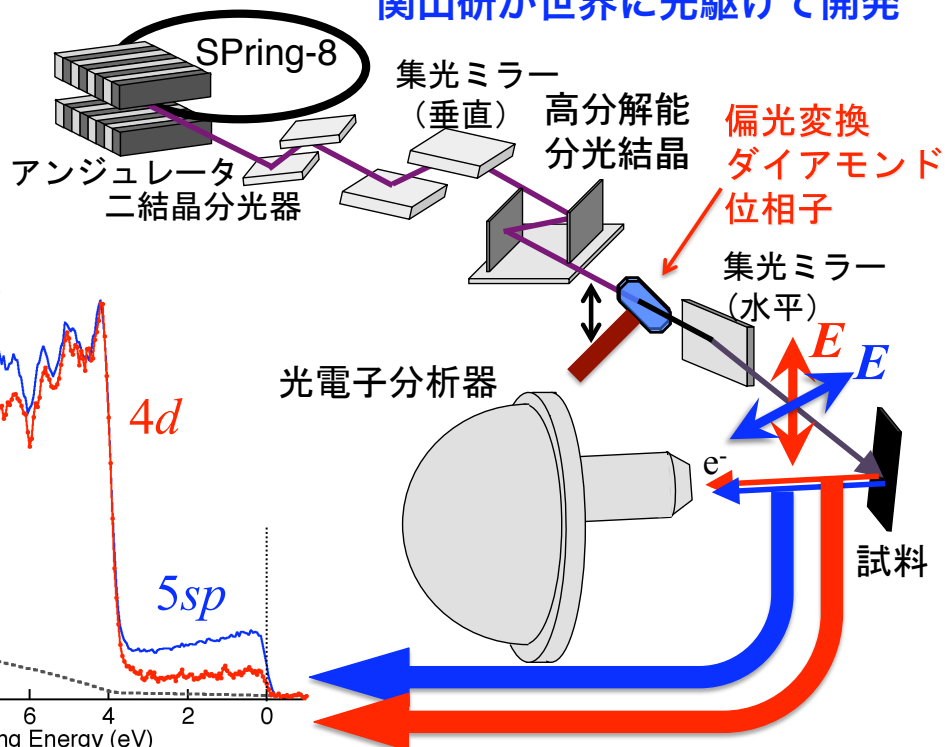
Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

53

偏光制御硬X線光電子分光による原子軌道解析



関山研が世界に先駆けて開発



Akira Sekiyama

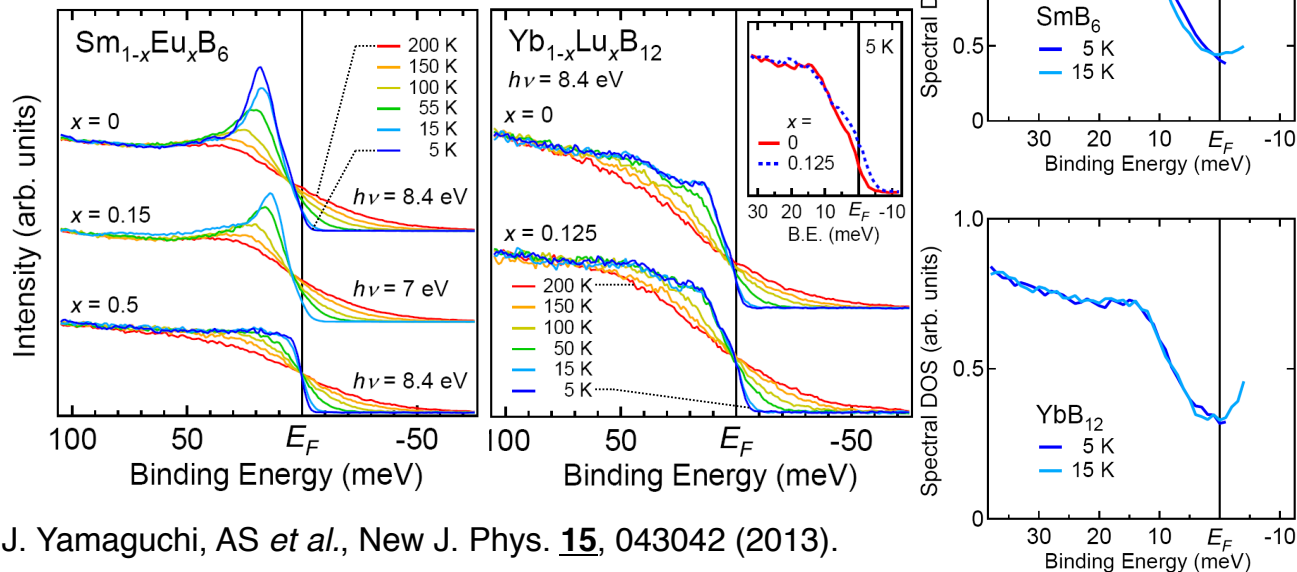
Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

54

Extremely low-energy PES for $\text{Sm}_{1-x}\text{Eu}_x\text{B}_6$ & $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$

分解能 < 10 meV
幅広く温度変化を測定することで、
混成ギャップの起源にせまる

近藤半導体 SmB_6 と YbB_{12} で異なる微小ギャップ形成機構



J. Yamaguchi, AS *et al.*, New J. Phys. **15**, 043042 (2013).

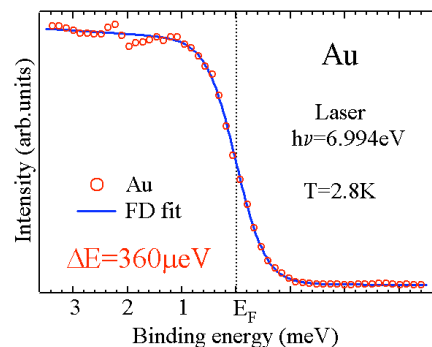
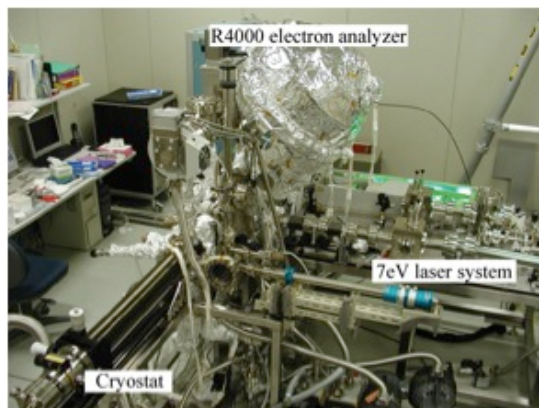
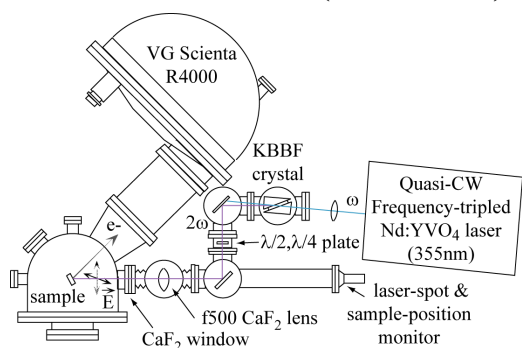


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

レーザー超高分解能光電子分光装置

Q-CWレーザー(6.994eV)を用いた光電子分光装置 (2003年)



新型電子分析器 (高分解能・高効率)
→後にR4000として市販

世界最高の分解能・低温性能を達成

木須他、固体物理 **40** (2005) 353.

Kiss *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 057001 (2005).

Kiss *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 023106 (2008).



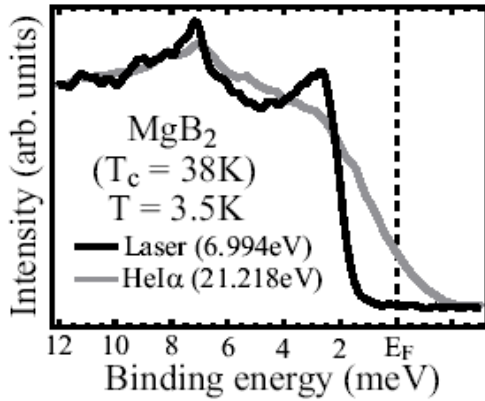
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

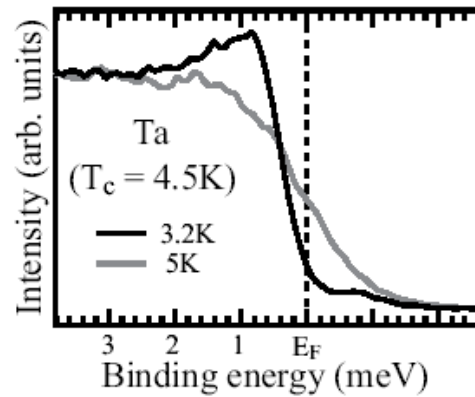
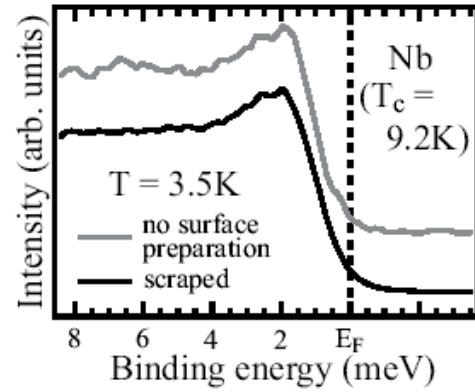
レーザー超高分解能光電子分光装置

Kiss *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 023106 (2008).

低温超伝導体における
角度積分光電子分光



明らかな2ギャップ構造
バルク敏感性
微細電子構造

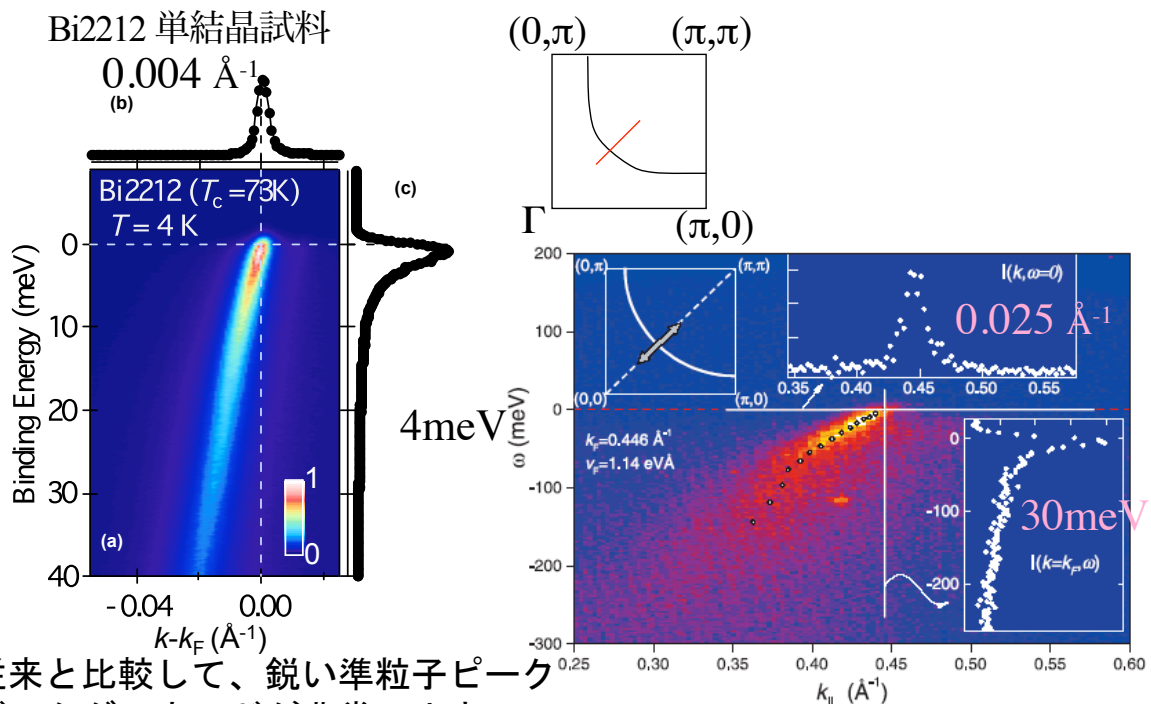


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

59

レーザー超高分解能光電子分光装置



従来と比較して、鋭い準粒子ピーク
バックグラウンドが非常に小さい
輸送測定の結果と良い一致

T. Valla *et al.*, Science **285**, 2110 (1999)

Ishizaka *et al.*, Phys. Rev. B **77**, 064522 (2008).

Kiss *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 023106 (2008).

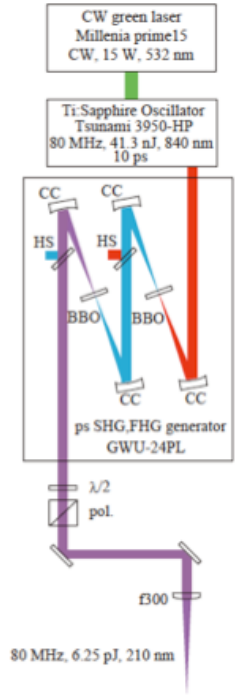
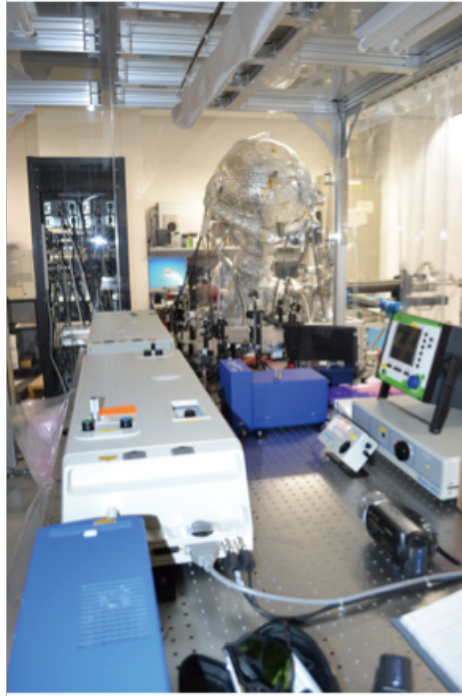
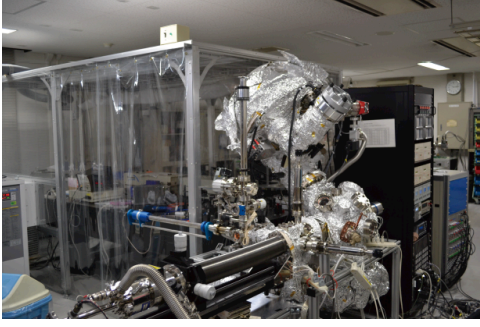


Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

60

阪大関山研紫外レーザー光電子分光装置



- CW green laser (Millenia prime 15)
- **10-ps** Ti-Sapphire Oscillator (Tsunami 3950)
- Two BBO: Second and Forth harmonics generator (GWU-24)
High-repetition (80 MHz)
high-resolution UV Laser (210 nm : **5.905 eV**)
 $\Delta E = 270 \mu\text{eV}$



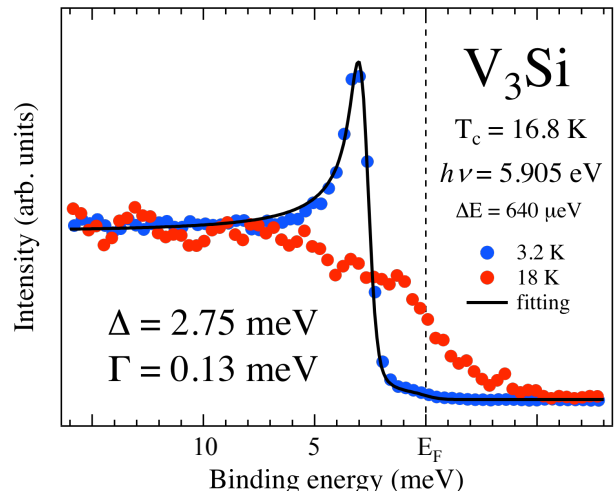
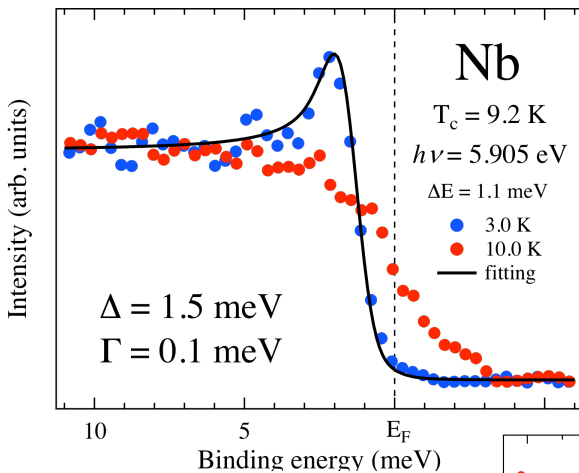
Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

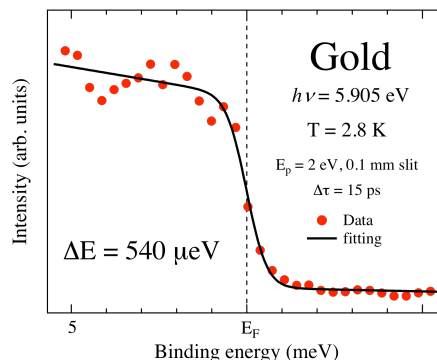
61

世界最高水準のレーザー光電子分光が関山研で可能

数meVの超伝導ギャップ直接観測



試料温度: 3 – 300 K
(Flow-type He cryostat)



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University

62

20世紀の光電子分光の「常識」と21世紀の現状

光電子分光で用いる励起光のエネルギーは $10 \text{ eV} \leq \hbar \omega \leq 1500 \text{ eV}$ の範囲である。このエネルギー範囲の光に対する物質の吸収係数 α は $10^5 \sim 10^6 \text{ cm}^{-1}$ 程度であるから、光は物質に $100 \sim 1000 \text{ \AA}$ くらい侵入する。従って、電子励起の大部分は表面近傍よりもむしろバルク内で起こっている。し

匂坂、放射光
3, 69 (1990).

関山は当時
大学3年生、
光電子分光の
“こ”の字も知らず

この記述は決して著者の思い込みではなく、
当時～2000年の光電子分光分野での「常識」といえた

しかし今の光電子分光のフロンティアは
間違いなく $\hbar\nu < 10 \text{ eV}$ と $\hbar\nu > 6 \text{ keV}$

SPring-8の建設・実験とレーザー使用が「常識」を覆し、
当時は予想もできなかった発展！



Akira Sekiyama

Division of Materials Physics, Graduate School of Engineering Science, Osaka University