

# 「UVSOR-III 赤外・テラヘルツビームライン」 Infrared and Terahertz Beamlines at UVSOR-III

木村 真一<sup>1</sup>, 手島 史綱<sup>2</sup>

<sup>1</sup>大阪大学大学院生命機能研究科

<sup>2</sup>自然科学研究機構分子科学研究所極端紫外光研究施設

Shin-ichi KIMURA<sup>1</sup>, Fumitsuna TESHIMA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Frontier Biosciences, Osaka University

<sup>2</sup>UVSOR Synchrotron, Institute for Molecular Science, National Institutes of Natural Sciences

**要旨:** 自然科学研究機構分子科学研究所のシンクロトロン光施設 UVSOR-III の赤外・テラヘルツ (THz) 領域の高輝度シンクロトロン光を利用できるビームライン BL6B と BL1B を紹介する。BL6B には 3 つのエンドステーションがあり、高輝度性を活かした回折限界空間分解能での赤外顕微分光イメージング、THz 顕微分光、および、広い波数範囲をカバーする反射・透過分光が可能である。一方で BL1B は、当初はコヒーレントシンクロトロン光の基礎研究と利用を目的として建設されたが、現在では、サブ THz から数 THz (5~200 cm<sup>-1</sup>) の分光を高い精度で行うことができる。本総説では、これらのビームラインの特徴と実験例を紹介する。

**Abstract :** Two high-brilliant infrared (IR) and terahertz (THz) beamlines, BL6B and BL1B, respectively, at a small synchrotron facility, UVSOR-III, The Institute for Molecular Science, National Institutes of Natural Sciences, are introduced. At BL6B, IR micro-spectroscopic imaging, THz micro-spectroscopy with diffraction-limited high-spatial resolution, and IR wide-range spectroscopy are available. Meanwhile, BL1B has been constructed for the fundamental research of coherent synchrotron radiation and its applications, but now it is used for the spectroscopy with high-accuracy in the sub-THz to several THz regions. Here, we show characteristics of these beamlines and obtained results.

**Key Words:** infrared synchrotron, infrared micro-spectroscopy, terahertz, terahertz micro-spectroscopy, UVSOR-III

## 1. はじめに

赤外およびテラヘルツ (terahertz: THz) ・遠赤外の分光は、格子・分子振動や電子励起、超伝導のクーパー対生成によるギャップなどの物質の素励起が直接観測できるエネルギー領域であり、物性物理学や分析化学・生命科学などの広い分野で欠かせない実験手法である。また、数 10 μm 程度の空間領域の分光やマッピングも顕微赤外分光法として知られており、標準的な実験手法として確立している。しかしながら、市販の顕微赤外分光装置で使われている黒体光

源 (熱光源) は輝度が高くないために、十分な強度で顕微分光を行う際には、空間分解能を光の限界 (回折限界) まで高くすることは難しいのが現状である。

顕微赤外分光は、エネルギーが 50 meV より高い (波長が 25 μm より短い) 中赤外と近赤外が主であり、50 meV より低い (25 μm より長い) THz 領域ではほとんど用いられていない。その理由は、顕微赤外分光法でターゲットとしている軽い分子の振動モードの多くが中・近赤外に存在するためである。また、中・近赤外分光で標

準的に用いられている熱光源（黒体輻射光源）は、THz 領域では強度が低いために、顕微分光には使うことが難しい状況にある。しかしながら、THz 領域は、電磁波のエネルギーが室温のエネルギーと同程度であるため、物性の起源である超伝導ギャップや、重い電子系の起源である伝導電子 ( $c$  電子) と局在  $f$  電子との混成 ( $c$ - $f$  混成) によって生じたギャップなどの電子構造、さらに、タンパク質などの生体物質の機能性の元になる熱ゆらぎや大きな分子全体の振動モードなどが観察できるため、極めて有益な情報が得られる。すなわち、微小領域での電子構造や格子・分子振動、熱ゆらぎなどを明確に観察することは、それらを理解する上で重要な役割を果たすことが期待できる。

以上のような市販の顕微赤外分光装置の困難を克服するために、分子科学研究所のシンクロトン光施設 UVSOR では、1980 年代に、世界に先駆けて遠赤外利用のビームラインが建設され、共同利用に供された<sup>1)</sup>。このビームラインと、同時期に建設された米国ブルックヘブン NSLS の赤外ビームラインの成功<sup>2)</sup>が引き金になって、赤外シンクロトン光を利用するビームラインが世界各地に建設され、現在に至っている<sup>3)</sup>。

その後、UVSOR は 2 度のアップグレードを行い、光源の性能の指標である電子ビームのエミッタンス (電子ビームの水平方向の大きさと発散角をかけ合わせたもの) が 1 桁程度小さくなり、高輝度化された。それに合わせて、光源加速器の名前が UVSOR-II から UVSOR-III へと変化し<sup>4)</sup>、またビームラインも一新された。この 2 度の高輝度化・エミッタンスの低下により、光源の回折限界が中赤外から紫外領域にまで拡張された。このことから、初期に使われていた遠赤外ビームラインも、回折限界を迫るように可視領域までカバーするように更新された。現在の UVSOR-III には、赤外を中心として THz から可視領域までカバーし、赤外顕微イメージングも可能なビームライン (BL6B)<sup>6)</sup>と、THz~Sub THz 分光を主に行う



Fig. 1 Overview of the experimental hall and storage ring of UVSOR-II. (This photo was taken in 2013.)

ビームライン (BL1B)<sup>7)</sup>の 2 本がある。これらのビームラインでは、それぞれの特徴を活かした分光研究が行われている。

そこで、本総説では、UVSOR-III の概要やビームラインの利用の方法について最初に述べ、その後、2 本の赤外・THz ビームラインとそのエンドステーションについて紹介するとともに、現在可能な実験手法と、これまでに得られている典型的な実験結果について紹介する。

## 2. UVSOR-III シンクロトン

UVSOR-III シンクロトロンは、大学共同利用機関法人・自然科学研究機構・分子科学研究所・極端紫外光研究施設 (愛知県岡崎市) にあるシンクロトン光源である。光を発生する電子蓄積リング (ストレージリング) の加速エネルギーは 0.75 GeV であり、国内最大の大型放射光施設 SPring-8 の加速エネルギーに比べて 1 桁小さい。また、加速器の周長は約 53 m であるため、全体を見渡すことができる (Fig. 1)。このように、低エネルギーでコンパクトであるため、SPring-8 が硬 X 線を中心とした利用が行われているのに対して、UVSOR-III では真空紫外光や軟 X 線の利用が主である。

UVSOR-III は、1 GeV 以下の加速エネルギーを持つ小型光源の中では、世界で最もエミッタンスが低い 16 nm rad で運転しており、さらに光源の強度をほぼ一定に保つ (光源の電流値は 300 mA) ように、トップアップ入射を行っている。

UVSOR-III は大学共同利用機関法人に属しているため、施設利用として各種ビームラインが利用できる。利用課題の申請は 12 月と

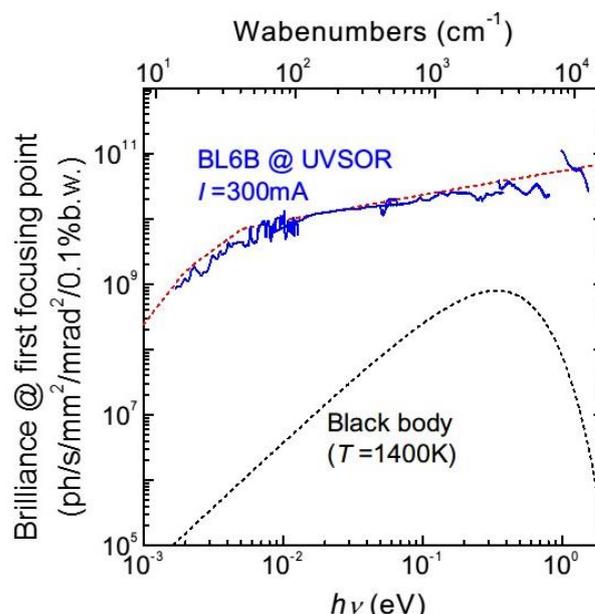


Fig. 2 Brilliance spectrum of BL6B of UVSOR-III compared with a thermal source. Solid lines are experimentally obtained spectra and dashed lines are theoretical ones.

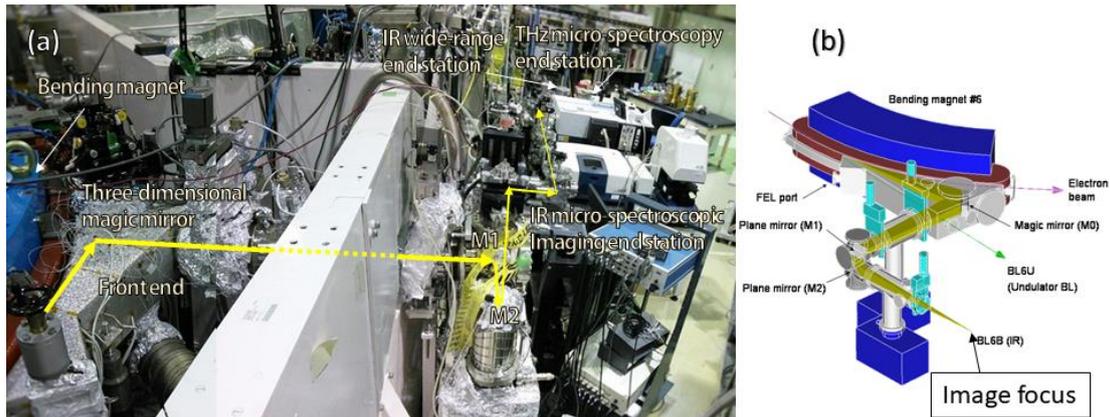


Fig. 3 (a) Overview of the infrared beamline BL6B. (b) Schematic figure of the front end part of BL6B. The infrared synchrotron radiation (IRSR) emitted at the bending magnet #6 corrected by a three-dimensional magic mirror and focused to an image focal point outside of radiation shielding wall. The obtained IRSR is conducted to experimental end stations.

6月の年2回であり、採択になった場合には、それぞれ、通年（4月~3月）または前期（4月~9月）および後期（10月~3月）にマシンタイムが配分される。また、マシンタイムに空きがあった場合には、随時に申請することもできる。大学等の学術機関からの申請で成果を論文等で公表する場合は、利用料が免除されるばかりでなく、旅費が配分され、かつ液体ヘリウム等の消耗品も無料で利用できる（2018年4月現在）。また、マシンタイムに空きがある場合は、有料で成果非公開の実験も可能である<sup>8)</sup>。

ユーザータイムは年間約40週であり、1週単位でマシンタイムが配分される。1週間のマシンタイムは、火・水曜の9:00~21:00、木曜の9:00~金曜21:00の合計60時間である。月曜は17:00以降に実験ホールに入室可能であり、その時間に実験の準備が可能である。

また、敷地内にユーザーのための宿舎が用意されている。

UVSOR-IIIには、赤外ビームライン（BL6B）とTHzビームライン（BL1B）の2本の低エネルギーシンクロトロン光が利用できるビームラインがある。このどちらも高い輝度特性を持っているが、例えば、BL6Bで評価された赤外・THzシンクロトロン光の輝度スペクトルを、熱光源（フーリエ赤外干渉分光計（Fourier-transform infrared spectrometer: FTIR）に内蔵されているグローバー灯を想定）の計算値とともにFig.2に示す。この図からわかるように、赤外・THzシンクロトロン光は熱光源に比べて2~3桁程度高輝度である。特に、数10 meV（数100 cm<sup>-1</sup>、数THz）以下のTHz領域ではその差が顕著である。赤外・THzシンクロトロン光の最大の特徴はこの高輝度性であり、広帯域であることと合わせて、顕微分光が最も適

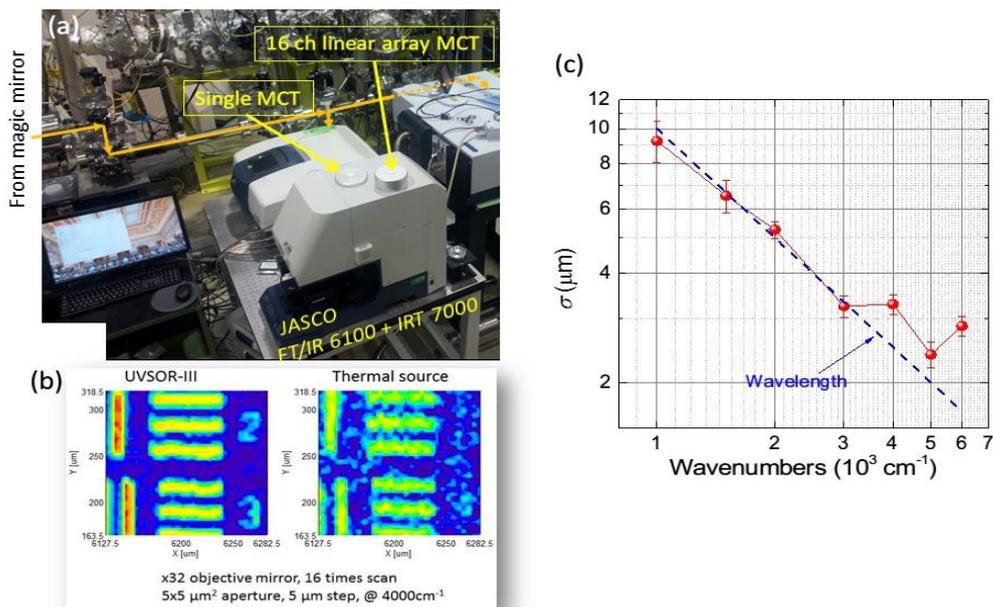


Fig. 4 (a) Photo of the infrared micro-spectroscopic imaging end station. (b) Infrared image of the USAF test pattern using infrared synchrotron radiation from UVSOR-III compared with a thermal source at the wavenumber of 4000 cm<sup>-1</sup>. (c) Spatial resolution ( $\sigma$ ) evaluated from the test pattern image in (b) at several wavenumbers. The dashed line corresponds to the wavelength. The obtained spatial resolution below the wavenumber of 3000 cm<sup>-1</sup> is consistent with the wavelength suggesting the diffraction limited resolution.

切な実験であると考えられる。

UVSOR-III には、これらの赤外・THz ビームラインの他に、赤外・THz 分光と相補的な実験である真空紫外分光や光電子分光を行うビームラインも備えられている<sup>9)</sup>。

### 3. 赤外ビームライン:BL6B<sup>9)</sup>

Fig. 3a に BL6B 全景を示す。BL6B の赤外光は偏向電磁石からのシンクロトロン光であり、その光を 300×100 mm<sup>2</sup> の大きさの 3 次元マジックミラー<sup>10)</sup> と呼ばれる非球面・非対称の鏡を使って約 215 (水平方向) × 90 (垂直方向) mrad<sup>2</sup> の立体角で取り出している (Fig. 3b)。取り出された光は、放射線遮蔽シールドを通じてユーザーが実験するスペース (実験ホール) 内に、直径が約 1.2 mm の円形に集光される。この集光点をあらためて光源点とみなし (Image focus), 下流の光学系が組まれている。これらの光学系はすべて真空チャンバー内に設置されている。

BL6B には、2 台の FTIR が備え付けられている。1 台は日本分光社製 FT/IR-6100 であり、赤外顕微鏡 IRT-7000 と組み合わせて赤外顕微イメージング測定が可能 (赤外顕微分光イメージングエンドステーション) である<sup>11)</sup>。もう 1 台は独国 Bruker 社製 Vertex70v であり、広帯域 (40~20000 cm<sup>-1</sup>, 5 meV~2.5 eV) の分光 (広帯域分光エンドステーション) および THz 顕微分光 (THz 顕微分光エンドステーション) に用いられている<sup>12)</sup>。検出器は、THz~遠赤外領域 (40~600cm<sup>-1</sup>, 5~74 meV) 用のシリコンボロメータ (米国 Infrared Laboratories 社製), 中赤外~近赤外領域 (450~12000 cm<sup>-1</sup>, 56 meV~1.5 eV) では MCT (HgCdTe) 検出器 (米国 Infrared Associates 社製), 近赤外~可視領域 (10000~24000 cm<sup>-1</sup>, 1.2~3 eV) では Si フォトダイ

オード (米国エドモンドオプティクス社製) が準備されている。以下に、それぞれの実験装置 (エンドステーション) を紹介する。

#### 3.1 赤外顕微分光イメージングエンドステーション<sup>11)</sup>

Fig. 4a に BL6B に設置した顕微赤外分光イメージング装置 (日本分光社製 FT/IR 6100+IRT 7000) の写真を示す。この装置は、標準でセラミック光源 (熱光源) とハロゲンランプが備えられており、また検出器には、単素子と 16 素子が一列に並んだ MCT が切り替えられるようになっている。この装置に、赤外シンクロトロン光を導入できるポートを取り付け、この高輝度赤外線光源とした赤外顕微分光イメージングを可能にした。測定可能な波数範囲は、600~12000 cm<sup>-1</sup> である。

シンクロトロン光の高い輝度の空間分解能への影響を示す 1 つの例として、USAF テストパターン<sup>13)</sup>のシンクロトロン光と熱光源での比較を Fig. 4b に示す。一見してわかるように、UVSOR-III (シンクロトロン光) を光源とした場合には極めて高いコントラストが得られている。実際に、各波数でのテストパターンのイメージを取り、そのコントラストから空間分解能を見積もったグラフを Fig. 4c に

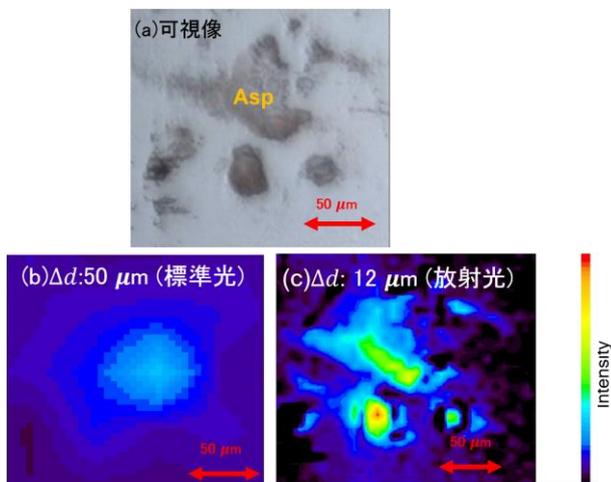


Fig. 5 Infrared transmission image of a tiny amount of aspartic acid on KBr substrate using the absorption peak at 1250 cm<sup>-1</sup>. (a) Visible image. (b) IR image using a thermal source. (c) IR image using infrared synchrotron radiation at BL6B.  $\Delta d$  values in (b) and (c) indicate evaluated spatial resolutions using these light sources.

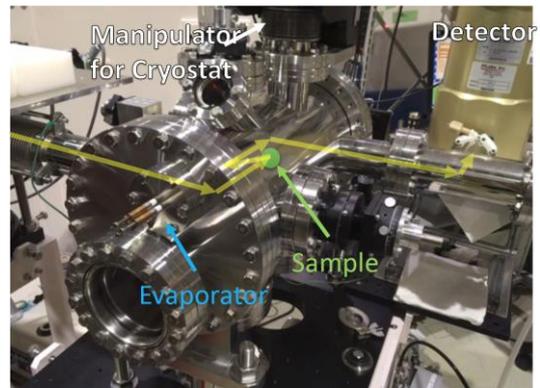


Fig. 6 Sample chamber of the wide-range spectroscopy end station of BL6B. Top: Photo. Bottom: Schematic top view. All of focusing mirrors and samples are set in the high vacuum sample chamber. To reduce the surface dependence of samples, gold films are evaporated *in situ* by an evaporator equipped in the chamber. Similar sample chamber is used in the Sub-THz wide-range spectroscopy end station at BL1B.

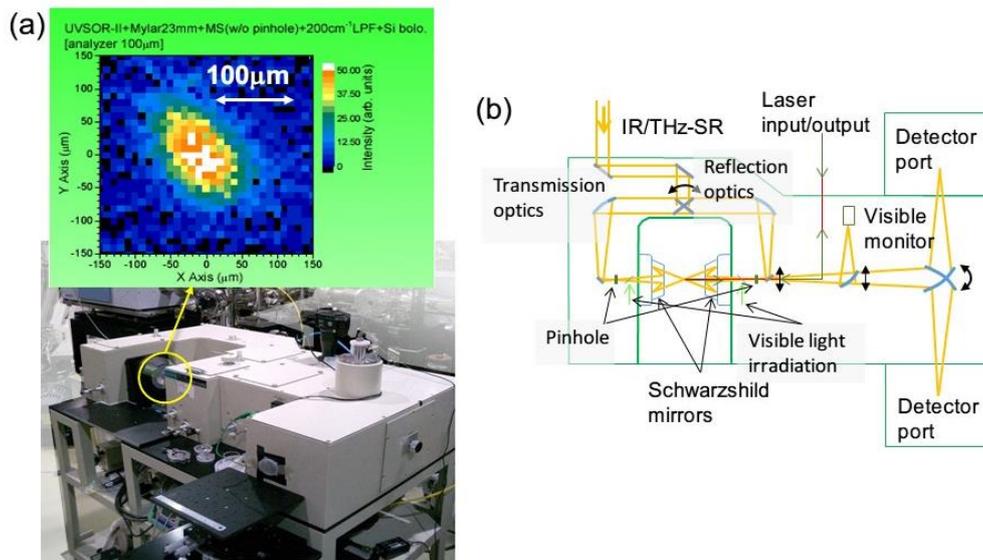


Fig. 7 (a) Photo of THz micro-spectroscopy end station and the spatial image of light at  $100\text{ cm}^{-1}$  at the sample position in the microscope. (b) Schematic top view of the THz microscope.

示す。ここで用いのは倍率 32 倍、 $NA \sim 0.5$  のシュワルツシルド鏡であり、回折限界の式 ( $\delta = \frac{0.61\lambda}{NA}$ ,  $\delta$  は空間分解能) から、波長と回折限界がほぼ等しい。この図には、比較のために、各波数に対応する波長もあわせて示している。図から、 $3000\text{ cm}^{-1}$  以下では、波長程度の空間分解能になっていることがわかる。一方で  $3000\text{ cm}^{-1}$  以上では、空間分解能が約  $3\text{ }\mu\text{m}$  で一定であるが、これは、入射光の領域を狭めるためのアパーチャーの大きさを示している。分光測定における空間分解能は、光の大きさを制限するアパーチャーの大きさと観測できる強度とのバランスで決まるが、赤外顕微分光で熱光源を使った場合には、一般には全領域で数  $10\text{ }\mu\text{m}$  程度になる。このことから判断すると、シンクロトロン光は、その高い輝度の特性によって、無理なく光を絞ることが可能なため、簡便に高空間分解能が得られる。

一般的な実験の手順としては、FTIR 内部の熱光源と 16 素子 MCT との組み合わせで大まかな赤外イメージングを測定し、その後、高い空間分解能が必要な領域に対して、赤外シンクロトロン光と単素子 MCT の組み合わせの測定を行う<sup>13)</sup>。

赤外シンクロトロン光を用いた高空間分解能の透過分光イメージングの測定例として、アミノ酸の 1 種であるアスパラギン酸 (Asp) の微量薄膜を臭化カリウム (KBr) 上に作成したものの結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5a が可視光による像であり、試料の有無はわかるが、どのような成分があるかは判断できない。しかしながら、Fig. 5c では Asp の  $1250\text{ cm}^{-1}$  にある 1 つの吸収ピーク (C-O の伸縮振動と OH の面内振動のカップリング、 $\text{CH}_2$  のねじれ振動により形成) の強度から、その存在と密度 (光学密度) が明確にわかる。一方で Fig. 5b

で示された熱光源を使った場合は、ピークを分離できないばかりか、強度分布も不明瞭になる。この結果から、シンクロトロン光を用いた高空間分解能が有効であることが示される。

この他、このエンドステーションでは、微小試料の極低温での反射測定、微細流路中の液体の吸収測定などが進行中である。また、全反射測定法 (Attenuated Total Reflection: ATR) を行うためのダイヤモンドプリズムも備えており、さらに高い空間分解能が得られ、かつ、平坦でない物質の反射分光も可能になっている。

### 3.2 広帯域分光エンドステーション

このエンドステーションでは、Bruker Vertex70v と反射・透過測定用試料槽 (Fig. 6) を組み合わせたものを標準で備えている。Vertex70v は、トップアップ入射時の光源の変動によるスペクトルの変調を除去する機能を有している。このエンドステーションの特徴は、THz から可視領域の広い範囲での透過率を確保するため、光学窓として化学気相成長 (chemical vapor deposition: CVD) によって作成されたダイヤモンドで、窓による干渉効果を抑えるために厚さをくさび状にしたもの (透過領域は直径  $12\text{ mm}$ 、中心厚  $0.3\text{ mm}$ ) が設置されていることである。この光学窓を、超高真空のストレージリングと低真空の FTIR 間、および、FTIR と高真空の試料槽間に設置し、各領域の真空を分離している。また、すべての集光鏡を試料が取り付けられるクライオスタットと同じ真空容器内に設置し、試料と集光鏡の間には、通常取り付けられている光学窓が取り除かれている。そのため、光学窓からの反射光や干渉縞などの効果を排除することができる。また、この試料槽では、反射率スペクトルおよび透過率スペクトルを、真空を破ることなく測定できる。さ

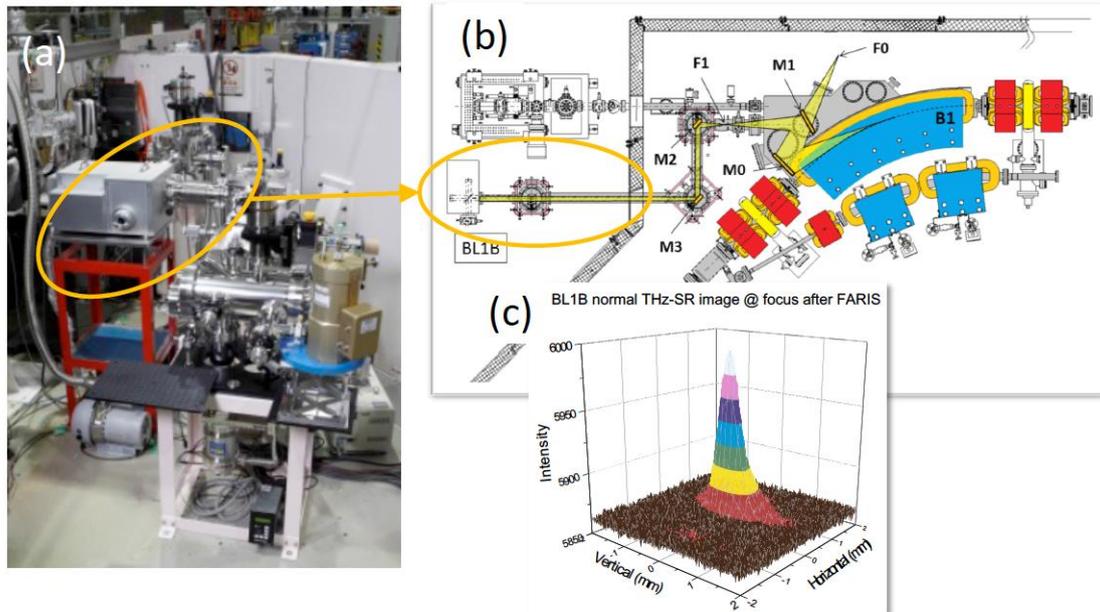


Fig. 8 THz beamline BL1B; photo (a) and a schematic top view (b). (c) Beam image at the sample position of the sample chamber taken by a THz camera (NEC IR/V-T0831).

らに、反射スペクトルを測定する際には、試料と参照試料をできるだけ同じ条件（試料形状、表面粗さ、位置など）で測定することが必要である。しかしながら、参照試料として通常用いられるガラス基板上に真空蒸着した金薄膜は、測定試料と必ずしも同じ表面状態や形状ではないといった外部要因のため、絶対値を決めるのが難しい。そこで、試料に金をその場で真空蒸着したものを参照試料とすることで外部要因を取り去ることができ、理想的なスペクトルを得ることができる<sup>14)</sup>。ここで導入されている試料槽は、試料周りの広い空間を高真空にしているため、取り付けられた蒸着源 (Evaporator) によって直接試料上に金を蒸着できるため、常に同じ条件での測定が可能である。

### 3.3 THz 顕微分光エンドステーション<sup>12)</sup>

赤外より波長が長い THz 領域の分光は、その光のエネルギーが室温 (300 K ~ 25 meV) と同レベルであり、物性を決定づけている素励起を直接観測することができるため、極めて有効な手法である。しかしながら、一般に使われている熱光源は、輝度が低く (Fig. 2 参照)、微小試料や表面吸着系、高圧セル中の試料など、光を集光する実験には不向きである。そこで、このビームラインには、シンクロトロン光の高輝度性を生かした顕微分光装置 (分光計器社製) が取り付けられている (Fig. 7)。

THz 領域では、顕微分光といっても、回折限界の制限によって、その空間分解能は波長程度になる。つまり、10 meV の光 (周波数 ~ 3 THz, 波長 ~ 120 μm) では約 100 μm が限界である。実際に、シンクロトロン光を導入し、波数 100 cm<sup>-1</sup> における THz 顕微鏡の試

料位置でのビームサイズを測定したものを Fig. 7a に示す。この図から、焦点位置での光の大きさは、対応する波長の 100 μm 程度になっており、回折限界に達していることがわかる。なお、同様の測定を熱光源でも行ったが、焦点のサイズを確認できるまでに至らなかった。このことは、シンクロトロン光の THz 領域での高い輝度および強度を表している。

しかしながら、THz 顕微鏡の空間分解能ではナノメートルスケールの量子現象などは到底観察できない。それでも、これまでのテラヘルツ分光では不可能だったサブミリメートルサイズの物理現象、例えばダイヤモンド加圧装置 (Diamond anvil cell: DAC) などの高圧セル内で実現できる超高圧下の相転移に伴う光学スペクトルの変化などは、十分に観測できる<sup>15-17)</sup>。それ以外にも、微小サイズの試料の分光にも有効である。

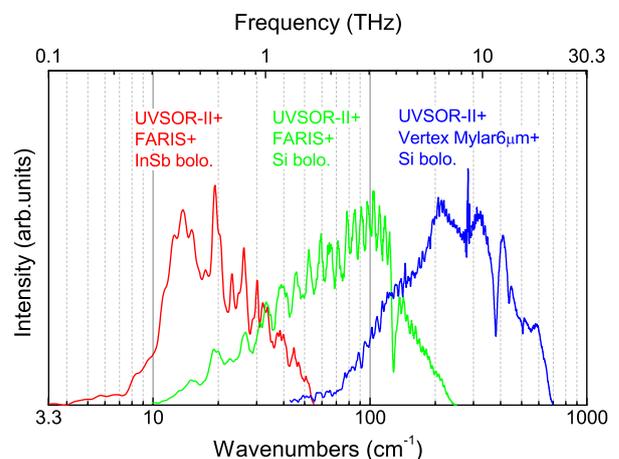


Fig. 9 Spectral distributions of the THz region (FARIS + Si bolo.) and the Sub-THz region (FARIS + InSb bolo.) at BL1B with THz region (Vertex Mylar6μm + Si bolo.) at BL6B as a reference.

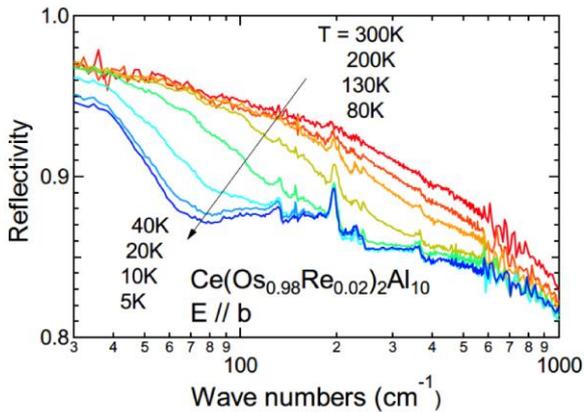


Fig. 10 Temperature-dependent polarized reflectivity spectra of a Kondo insulator  $\text{Ce}(\text{Os}_{0.98}\text{Re}_{0.02})_2\text{Al}_{10}$  with the sample size of about 1.5 mm in diameter. The spectra below  $100\text{ cm}^{-1}$  were taken at the Sub-THz end station of BL1B with an automatic measurement system.

このような目的のために、我々は THz 顕微分光装置 (Fig. 7) を設計・製作し、ビームラインに設置した。この顕微分光の主な目的は、固体試料の低温・高圧下での THz 分光であるため、試料冷却のためのクライオスタットを用いる必要がある。冷却による試料位置の変化を最小限にするために、クライオスタットが収縮する方向を重力の働く方向になるようにクライオスタットを垂直に立てることが可能である。この場合には、試料が水平方向に向くため、テラヘルツ顕微分光装置ではシュワルツシルド鏡を水平方向に設置してある。また、市販の赤外顕微鏡のシュワルツシルド鏡の直径が約 50 mm であるのに対し、ここで導入したシュワルツシルド鏡は、THz 光の回折による強度の減少を極力減らすために、約 140 mm のものを採用している。シュワルツシルド鏡間の動作距離 (Working distance) は 110 mm であり、DAC を取り付けられたクライオスタットも十分設置できる。

このような実験の他、極低温での微小試料の偏光 THz 反射分光や、試料は大きい、空間分布依存性があるものの場所依存性の測定などが行われている。

#### 4. THz ビームライン: BL1B<sup>7)</sup>

BL1B は THz 専用ビームラインであり、Sub-THz 領域で大強度が得られるコヒーレントシンクロトロン光 (CSR) の観測と利用のために建設されたものである。しかしながら、コヒーレントでない通常 (インコヒーレント) のシンクロトロン光を使った THz ~ Sub-THz 分光も可能であり、ユーザーが使うことのできる通常のマシンタイムでは、このインコヒーレント光を利用した分光研究を行っている。光源は BL6B と同じように偏向電磁石からのシンクロトロン光であり、BL6B より大きな取り込み角である  $288$  (水平方向) ×

$80$  (垂直方向)  $\text{mrad}^2$  を 3 次元マジックミラーで実現している (Fig. 8)。

このビームラインは THz 専用として建設されたため、ストレージリングと下流の光学系を仕切る z カット水晶 (z-cut quartz) 光学窓を用いている。そのため、スペクトルの範囲が  $220\text{ cm}^{-1}$  以下 (窓材の振動モードが  $130\text{ cm}^{-1}$  付近に観測されるため、主に  $100\text{ cm}^{-1}$  以下を利用) に限られる。このことによって、THz 領域ばかりでなく Sub-THz 領域にも特化した分光が行われている。

分光計は、マーチン・パプレット型の FTIR である日本分光社製 FARIS-1 が設置されている。この FTIR は、ビームスプリッターとしてフリースタンディングのワイヤグリッドを採用しているため、低波数領域でも高い干渉性があり、かつ、(偏光素子を入れなくとも) 直線偏光特性があることに特徴がある。直線偏光方向は、出射側に取り付けられているワイヤグリッドを回転させることで変更することができる。検出器は、シリコンボロメータ (米国 Infrared Laboratories 社製) と InSb ホットエレクトロンボロメータ (英国 QMC 社製) が用意されており、それぞれ  $20\text{--}200\text{ cm}^{-1}$  ( $2.5\text{--}25\text{ meV}$ )、 $5\text{--}50\text{ cm}^{-1}$  ( $0.6\text{--}6\text{ meV}$ ) をカバーしている (Fig. 9)。

#### 4.1 Sub-THz 広帯域エンドステーション

BL6B と同じ仕様の反射・吸収測定用の試料槽 (Fig. 5) が設置されている。試料位置での光の直径は約 1 mm であり (Fig. 8c)、THz 領域の光源として古くから用いられている高圧水銀灯光源 (直径は数 mm) などに比べて遥かに高輝度である (Fig. 2 参照)。よって、mm サイズの試料の分光に適している。しかしながら、この領域は光の回折効果が大きく、光源 (電子ビーム) の僅かな変動によって干渉が生じるため、光源が安定している時間内の測定が必須である。また、トップアップ入射の際のビーム変動はスペクトルに大きな変動を与えるため、トップアップ入射中の検出器からの信号は FTIR が自動で除去する機能が追加されている。さらに、金属的な試料の反射測定では、THz~Sub-THz 領域は反射率がほぼ 100% であるため、反射率の絶対値を高い精度で決める必要がある。この場合には、トップアップ入射の間 (約 1 分間) の僅かな強度の減衰もスペクトルへ影響を与えるため、検出器の信号を蓄積電流値で規格化する装置も設置されている<sup>18)</sup>。

試料は液体ヘリウムフロー型クライオスタット (英国 Oxford 社製 OptistatCFV) に取り付けることで、 $4\text{--}450\text{ K}$  の間の温度で任意に設定し測定できる。また、温度を変えながらスペクトルを自動で測定するプログラムも開発・設置されており、煩雑な操作なしにスペクトルの温度依存性の測定が可能である<sup>14)</sup>。

この方法を使って、実際に測定された例を Fig. 10 に示す。この

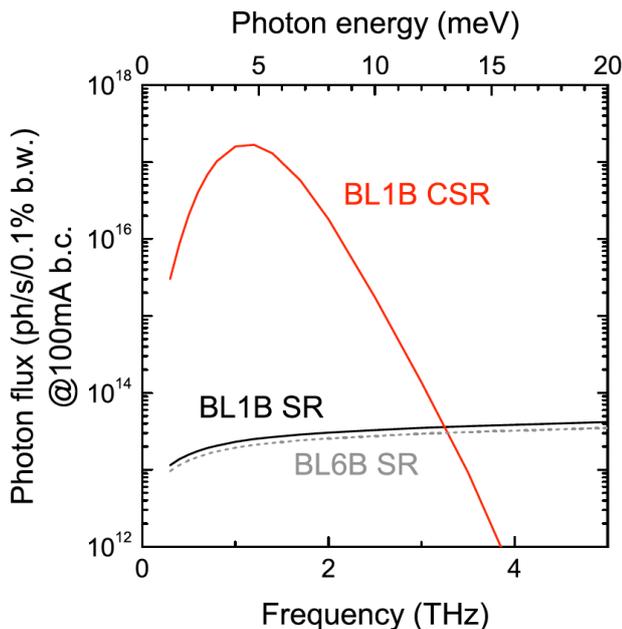


Fig. 11 Calculated spectrum of coherent synchrotron radiation expected at BL1B compared with spectra of incoherent synchrotron radiation at BL1B and BL6B in the THz region.

図は、高温では金属状態、低温では微小なエネルギーギャップを持つ近藤半導体と呼ばれる物質 ( $\text{Ce}(\text{Os}_{0.98}\text{Re}_{0.02})_2\text{Al}_{10}$ ) の THz 反射スペクトルの温度依存性であり、100  $\text{cm}^{-1}$  以下の領域は、このエンドステーションで自動測定プログラムを用いてされたものである<sup>19)</sup>。この試料の大きさは直径が約 1.5 mm であり、通常分光測定では、精度の高い実験が困難であるが、このエンドステーションを用いることで、ほぼ自動で、かつ、高精度で測定できる。

#### 4.2 Sub-THz コヒーレントシンクロトロン光の利用

このビームラインは、その設立の経緯から、CSR の利用が期待されている<sup>20)</sup>。CSR とは、加速された電子バンチの微細構造が観測する波長より短くなった場合に、微細構造中の電子があたかも一つの大きな電荷の塊になり、電子蓄積リングなどの偏向電磁石で電子が進行方向に垂直に力を受けることで、同位相で電磁波を放射する現象である。その場合、光の強度は電子数の 2 乗に比例する (通常のシンクロトロン光の強度は電子数に比例) ことになるため、極めて大きな強度が期待できる。UVSOR-III では、2000 年代に CSR 発生に関する数多くの研究が行われてきた<sup>21)</sup>。BL1B で予想される CSR の強度は Fig. 11 で示されており、3 THz ( $\sim 12 \text{ meV}$ ,  $\sim 100 \text{ cm}^{-1}$ ) 以下の領域で強度の増大が期待される<sup>7)</sup>。特に、1 THz ( $\sim 4 \text{ meV}$ ,  $\sim 33 \text{ cm}^{-1}$ ) では、通常のシンクロトロン光より約 4 桁高い強度が予想されているため、更に高精度の分光が可能になるものと期待できる。また、この強度は、分光で用いる光としての利用だけではなく、格子振動や電子を励起するためのポンプ光としても利用できる可能性がある<sup>20)</sup>。そのため、高強度で安定な CSR の発生など、将来的

な発展が期待される。

#### 5. まとめ

本解説では、自然科学研究機構分子科学研究所 UVSOR-III の設置してある 2 つの赤外・THz ビームラインの概要について紹介した。これらのビームラインは、広く外部ユーザーに公開されており、かつ、学術研究機関は無料で利用できる。ここで紹介した実験方法や測定例だけではなく、シンクロトロン光の特色を活かしたチャレンジングな研究も可能であるため、利用を検討される場合は、本著者にコンタクトしていただきたい。

#### 6. 謝辞

本編をまとめるにあたり、写真を提供していただいた山崎潤一郎氏に感謝いたします。また、測定データの一部は、日比滋元氏、高尾一氏によって測定されたものであり、ご協力に感謝いたします。

#### 参考文献

- 1) T. Nanba, Y. Urashima, M. Ikezawa, M. Watanabe, E. Nakamura, K. Fukui and H. Inokuchi: *Int. J. Infrared Millimeter Waves* **7** (1986) 759.
- 2) W. D. Duncan and G. P. Williams: *Appl. optics* **22** (1983) (18) 2914.
- 3) Ex.) G. Birarda, P. Di Pietro, A. Perucchi, S. Lupi and L. Vaccari: *Synchrotron Radiation News* **30** (2017) 3.
- 4) M. Katoh, M. Hosaka, A. Mochihashi, J. Yamazami, K. Hayashi, Y. Hori, T. Honda, K. Haga, Y. Takashima, T. Koseki, S. Koda, H. Kitamura, T. Hara and T. Tanaka: *AIP Conf. Proc.* **705** (2004) 49.
- 5) M. Adachi, H. Zen, T. Konomi, J. Yamazaki, K. Hayashi and M. Katoh: *J. Phys.: Conf. Ser.* **425** (2013) 042013.
- 6) S. Kimura, E. Nakamura, T. Nishi, Y. Sakurai, K. Hayashi, J. Yamazaki and M. Katoh: *Infrared Phys. Tech.* **49** (2006) 147.
- 7) S. Kimura, E. Nakamura, K. Imura, M. Hosaka, T. Takahashi and M. Katoh: *J. Phys.: Conf. Ser.* **359** (2012) 012009.
- 8) UVSOR の web-site ([www.uvsor.ims.ac.jp](http://www.uvsor.ims.ac.jp))参照。
- 9) UVSOR Activity Report ([www.uvsor.ims.ac.jp/eng/activity](http://www.uvsor.ims.ac.jp/eng/activity))参照。
- 10) S. Kimura, H. Kimura, T. Takahashi, K. Fukui, Y. Kondo, Y. Yoshimatsu, T. Moriwaki, T. Nanba and T. Ishikawa: *Nucl. Instrum. Meth. A* **467-468** (2001) 437.
- 11) 木村真一: 放射光顕微赤外分光法, 西岡利勝編著「高分子赤外・ラマン分光法」(講談社サイエンティフィク, 2015), p. 76.
- 12) S. Kimura, T. Mizuno and T. Iizuka: *AIP Conf. Proc.* **1214** (2010) 71.
- 13) Ex) S. Kamei, J. Hibi, Y. Ohtsubo, H. Watanabe and S. Kimura: *Appl. Spectrosc.* (in press).
- 14) 木村真一: *JASCO Report* **50** (2008) 6.
- 15) T. Mizuno, T. Iizuka, S. Kimura, K. Matsubayashi, K. Imura, H.S. Suzuki and N.K. Sato: *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 113704.
- 16) T. Iizuka, T. Mizuno, B. H. Min, Y. S. Kwon and S. Kimura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** (2012) 043703.
- 17) S. Kimura and H. Okamura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** (2013) 021004.
- 18) S. Kimura: *UVSOR Activity Report* 2015 (2016) p. 34.
- 19) S. Kimura, H. Takao, J. Kawabata, Y. Yamada and T. Takabatake: *J. Phys. Soc. Jpn.* **85** (2016) 123705.
- 20) S. Kimura, E. Nakamura, M. Hosaka, T. Takahashi and M. Katoh: *AIP*

Conf. Proc. **1234** (2010) 63.

- 21) S. Bielawski, C. Evain, T. Hara, M. Hosaka, M. Katoh, S. Kimura, A. Mochihashi, M. Shimada, C. Szwaj, T. Takahashi and Y. Takashima: Nat. Phys. **4** (2008) 390.

(論文受付 2018 年 4 月 3 日, 論文受理 2018 年 4 月 17 日)

## ■ 著者紹介 ■

氏名 木村 真一

所属 大阪大学大学院生命機能研究科

(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 1-3)

1988 年, 東北大学理学部卒業. 1991 年, 東北大学大学院理学研究科博士課程修了 (理学博士). 日本学術振興会特別研究員(PD), 神戸大助手, 分子研助手, 神戸大助教授, 分子研助教授/准教授を経て現職. 現在, 強相関電子系・トポロジカル物質・生体材料の分光研究に従事.

所属学会: 日本物理学会, 日本放射光学会

E-mail: kimura@lbs.osaka-u.ac.jp



氏名 手島 史綱

所属 自然科学研究機構分子科学研究所

(〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中 38)

1993 年, 愛知工業大学工学部卒業. 1988 年, 岡崎国立共同研究機構分子科学研究所計算機センターを経て, 現職. 現在, BL1B、BL6B を主に担当している.

E-mail: tetsu@ims.ac.jp

