

「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」  
平成 20 年度採択研究代表者

辛 埴

東京大学物性研究所・教授

「高繰り返しコヒーレント軟 X 線光源の開発と光電子科学への新しい応用」

## § 1. 研究実施の概要

本CRESTプロジェクトの目的は、新しい高繰り返しコヒーレント軟X線光源の開発することと、それを用いて光電子科学への新しい応用を行うことである。

光電子測定グループは、

- (1) 超高分解能光電子を用いて新規鉄超伝導体の超伝導ギャップを観測した。
- (2) 60eV のレーザーを開発し、TaS<sub>2</sub> の時間分解光電子分光に成功した。CDWに関連している格子振動による振動構造を観測することができた。
- (3) 6eV のレーザーを開発し、高温超伝導体 Bi2212 の時間分解光電子分光に成功した。バンド分散のキルクの時間変化を観測することができた。
- (4) レーザー光電子顕微分光を行うために、CW レーザーを用い、高分解能光電子の予備的な実験を行った。チタンサファイアレーザーを用いて、時間分解光電子の開発を行った。

一方、光源開発グループは、

- (1) 高エネルギー分解光電子分光用ピコ秒レーザー発振器の開発を行った。
- (2) ハイパワーYb ファイバー増幅器の開発を行い30W 以上の出力を得た。
- (3) エンハンスメント共振器の動作確認をおこない、共振器制御が可能となった。

## § 2. 研究実施体制

(1) 「辛」グループ

- ① 研究分担グループ長: 辛 埴 (東京大学物性研究所、教授)
- ② 研究項目

(1) 究極のエネルギー分解能を持つ光電子分光によるフェルミ面付近の電子状態の研究

- (2) 究極の精度を持つ時間分解光電子による緩和現象、化学反応の研究
- (3) レーザー光電子顕微分光によるナノ構造の研究

(2) 「小林」グループ

- ① 研究分担グループ長: 小林 洋平 (東京大学物性研究所、准教授)
- ② 研究項目
- (1) 高エネルギー分解光電子分光用ピコ秒レーザー発振器の開発
- (2) ハイパワーYb ファイバー増幅器の開発
- (3) エンハンスメント共振器の動作確認

### § 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する。)

本CRESTプロジェクトの目的は、新しい高繰り返しコヒーレント軟X線光源の開発することと、それを用いて光電子科学への新しい応用を行うことである。H21 年度は、引き続き、光源系、光電子測定系とも独自の基礎技術の開発を行った。光電子測定グループは既存光源を利用し、鉄の新規超伝導体、銅酸化物高温超伝導体を中心に成果を上げている。

光電子測定グループは、以下の研究を行った。

(1) 高エネルギー分解光電子分光の開発と超伝導研究

ヘリウム4クライオスタットを用いて最低温度 1.5K を目指して、真空中における試料冷却技術を開発する。H21 年度は熱シールドの工夫を行った。光電子分光器においては分解能を律速しているスリットの改造をスウェーデンの光電子分光器会社と共同研究で行っている。

鉄系の新規超伝導体のフェルミ面を明瞭に観測し、そのメカニズムを解明する研究を行った。図 1 は 高温超伝導体の母物質  $BaFe_2As_2$  のフェルミ面の温度変化と偏光依存性である<sup>4)</sup>。その結果、フェルミ面を構成している波動関数について重要な知見を得ることができた。超伝導のメカニズムについて既存の理論による解析を行った。

(2) 6eV レーザーの開発と時間分解光電子分光

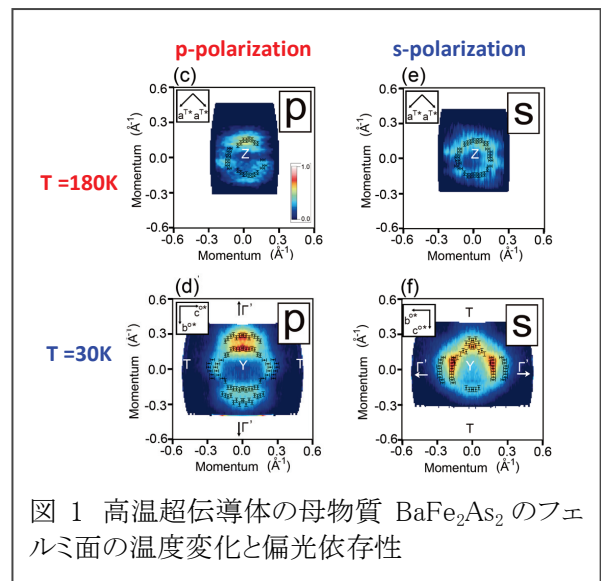


図 1 高温超伝導体の母物質  $BaFe_2As_2$  のフェルミ面の温度変化と偏光依存性

今年度は、図2のように、6eVの励起光を用いて、高精度、高分解能の時間分解光電子を行うために装置の改造を行った。その結果、昨年度、Bi2212 高温超伝導体において、光誘起現象を観測することに成功したが、今年度はより精密な測定を行い、超伝導ギャップ及び擬ギャップの緩和現象の運動量依存性を測定することに成功した。また、バンド分散のキックの緩和時間を測定することによって電子格子相互作用がその主な原因であることが判明した。

### (3) 60eV レーザーの開発と時間分解光電子分光

60eVの時間分解光電子分光装置を昨年度、開発したが、60eVの高調波強度が非常に弱いという欠点があった。そこで、今年度は、ランプ励起の光源部分をレーザーダイオード励起にし、大幅なパワーアップを行った。また、高調波発生用のガスセルを作り直し、強度を大幅アップさせた。また、本CRESTで購入した光電子アナライザーを設置した、この光電子アナライザーは取り込み角を2倍にすることによって、効率を上げると同時に、これまでできなかった角度分解光電子分光を可能にしたものである。現在、チタンサファイアレーザーの調整を行っており、最終的な調整は2010年の春になる予定である。

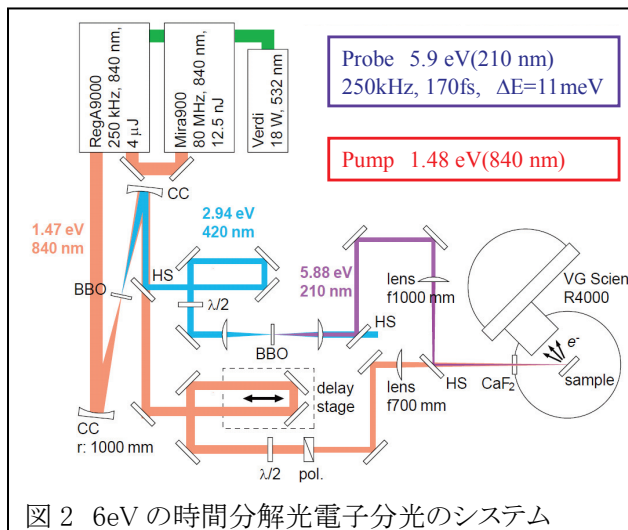
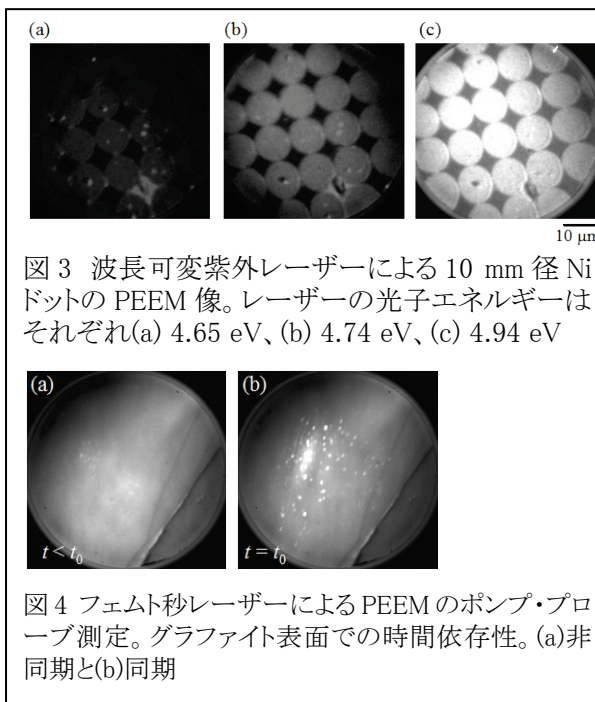


図2 6eVの時間分解光電子分光のシステム

この光電子アナライザーは取り込み角を2倍にすることによって、効率を上げると同時に、これまでできなかった角度分解光電子分光を可能にしたものである。現在、チタンサファイアレーザーの調整を行っており、最終的な調整は2010年の春になる予定である。

### (4) レーザーを用いた顕微光電子分光の開発

磁気記録デバイスは近年、磁性体の微小化とともに磁性の制御手法についても模索されており、例えばスピン注入磁化反転や光誘起磁化のような高速かつ正確に制御できる新たな手法が盛んに研究されてきている。そこで、本研究ではこのような現象を直接観察する手法を開発することを目的に、レーザーが持つ短パルス性・偏光可変性・波長可変性を用いて微小磁性体の磁区構造観察・フェムト秒時間分解観察を目的に研究を行った。仕事関数より僅かに大きな光子エネルギーの円偏光を照射することで物質のスピン状態を調べられる。本研究では物質の仕事関数に波長を合わせるため光パラメトリック増幅器を用いた波長可変紫外光を光源に使用した。図3に本



システムを用いて測定した、異なる波長の光源によるNiのテストパターンのPEEM像を示す。図のように励起光の光子エネルギーが大きくなるにつれてNiドット部の電子収量が増加していることが分かる。現在、この実験系を用いて磁性体の磁気イメージングを高精度に行う技術を構築している。また同時に時間分解測定の開発も行っており、フェムト秒レーザーを用いたPEEMによるポンプ・プローブ測定を試みている。図4にグラファイト表面におけるポンプ光(1.5 eV)時間依存性の実空間イメージを示す。ポンプ光とプローブ光の非同期/同期時においてポンプ光照射部分にて励起状態の有無が観測できた。今後、磁気イメージング技術と組み合わせて磁性体の光応答過程の時間分解測定を試みる。

一方、光源開発グループは、以下の研究を行った。

### (1) 高エネルギー分解光電子分光用ピコ秒レーザー発振器の開発

高エネルギー分解光電子分光用のレーザー光源には、①光子エネルギーが高い、②エネルギー幅が狭い、③繰り返し周波数が高い、という3つの要求がある。これらを満たすためにはパルス幅10ピコ秒程度で真空紫外領域のレーザーシステムが必要となる。真空紫外で直接これらを満たすレーザーは存在しないため、赤外のレーザー

を波長変換するをとらざるを得ない。H21年度はNd:YVO4を用いたピコ秒モード同期レーザーを開発した。波長1064nm、パルス幅10ピコ秒、エネルギー幅0.17meV、繰り返し100MHzのレーザー発振器が完成した。

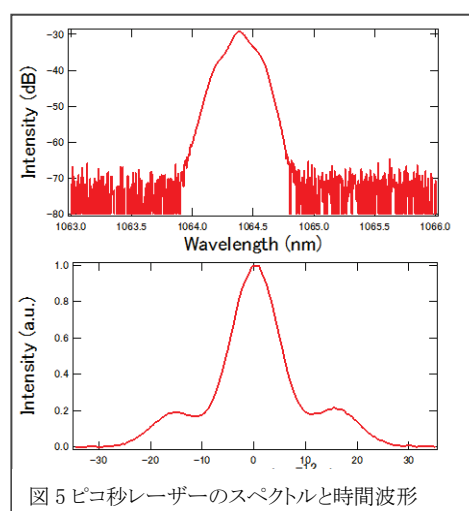


図5 ピコ秒レーザーのスペクトルと時間波形

### (2) ハイパワーYbファイバー増幅器の開発

上記レーザー発振器からの出力は100mW程度であるため、直接波長変換にて短波長光を発生させることはできない。そこでハイパワーの増幅器が必要となる。

H21年度は30Wの増幅器

を目標として開発を始めた。高繰り返しで高平均出力の増幅器にはYbファイバーを用いるのが良い。これはハイパワーのレーザーダイオードで直接励起できるためである。現在までに40Wの出力を達成した。

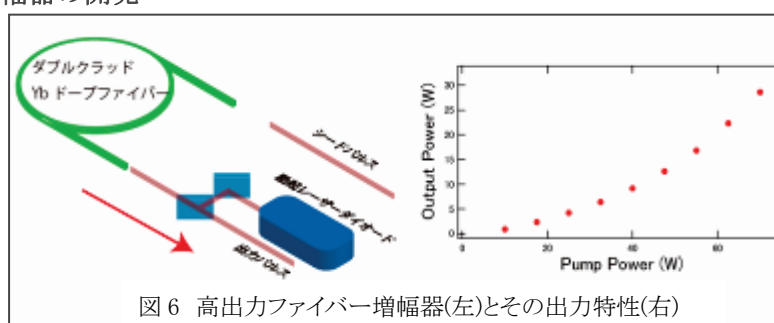


図6 高出力ファイバー増幅器(左)とその出力特性(右)

### (3) エンハンスメント共振器の動作確認

赤外光のガスによる波長変換で真空紫外を発生させるにはさらなる高出力化が必要となる。kWクラスの出力を達成するには現在の増幅技術では難しい。そこで、エンハンスメント共振器と呼

ばれる「空」の共振器を用いる手段を取る。これはパルス列を共振器にコヒーレントに放り込んでいくことにより、内部パワーを上げていく方法である。本方式を用いると高強度励起レーザーを用いることなく共振器内パワーをkW にまで持っていくことが可能となる。H21 年度はエンハンスメント共振器を開発し、その動作確認を行った。フィードバックに必要な電子回路系を整備し、共振器をロックすることができた。その結果内部パワーで 400Wを達成した。

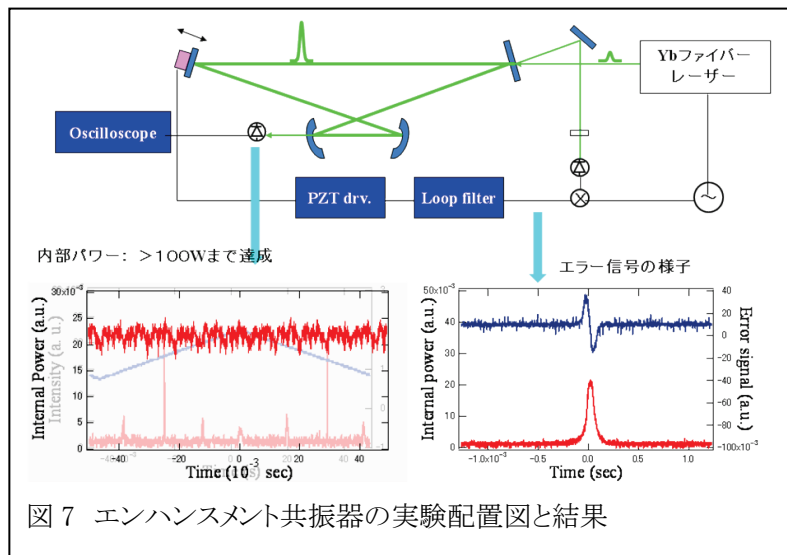


図 7 エンハンスメント共振器の実験配置図と結果

## § 4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

#### ● 論文詳細情報

1. M.Okawa, K.Ishizaka, H.Uchiyama, H.Tadatomo, T.Masui, S.Tajima, X.Y.Wang, C.T.Chen, S.Watanabe, A.Chainani, T.Saitoh, S.Shin  
Superconducting electronic state in optimally doped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  observed with laser-excited angle-resolved photoemission spectroscopy  
Phys Rev. B., 79, (2009) 144528(1-9). DOI: 10.1103/PhysRevB.79.144528
2. M.Matsunami, R.Eguchi, T.Kiss, K.Horiba, A.Chainani, M.Taguchi, K.Yamamoto, T.Togashi, S.Watanabe, X.Y.Wang, C.T.Chen, Y.Senba, H.Ohashi, H.Sugawara, H.Sato, H.Harima, S.Shin, Anomalous duality of  $4f$  electrons in filled skutterudite  $\text{CeOs}_4\text{Os}_{12}$   
Phys.Rev.Lett., 102 (2009) 036403(1-4). DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.036403
3. T. Shimojima, K. Ishizaka, Y. Ishida, N. Katayama, K. Ohgushi, T. Kiss, M. Okawa, T. Togashi, X. -Y. Wang, C. -T. Chen, S. Watanabe, R. Kadota, T. Oguchi, A. Chainani, S. Shin, “Orbital-dependent modifications of electronic structure across magneto-structural transition in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, Phys.Rev.Lett., 104, (2010) 057002 (1-4).  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.057002
4. K.Ishizaka, R.Eguchi, S.Tsuda, A.Chainani, T.Yokoya, T.Kiss, T.Shimojima, T.Togashi, S.Watanabe, C.T.Chen, Y.Takano, M.Nagao, I.Sakaguchi, T.Takenouchi, H.Kawarada, S.Shin  
Reply to: PRL 100, 166402 (2008)  
Phys Rev. Lett., 102, (2009) 199702. DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.199702
5. R.Yoshida, T.Wakita, H.Okazaki, Y.Mizuguchi, S.Tsuda, Y.Takano, H.Takeya, K.Hirata, T.Muro, M.Okawa, K.Ishizaka, S.Shin, H.Harima, M.Hirai, Y.Muraoka, T.Yokoya  
Electronic structure of superconducting FeSe studied by high-resolution photoemission spectroscopy  
Journal of the Physical society of Japan., 78, No.3, (2009) 034708(1-4). DOI: 10.1143/JPSJ.78.034708
6. Y.Okada, T.Takeuchi, M.Ohkawa, A.Shimoyamada, K.Ishizaka, T.Kiss, S.Shin, H.Ikuta  
Momentum dependence of the energy gap in the superconducting state of optimally doped  $\text{Bi}_2(\text{Sr}, R)_2\text{CuO}_y$  ( $R=\text{La}$  and  $\text{Eu}$ )  
Journal of Phys: Conference Series, 150 (2009) 052197. DOI: 10.1088/1742-6596/150/5/052197
7. Birgitta Bernhardt, Akira Ozawa, Patrick Jacquet, Marion Jacquy, Yohei Kobayashi, Thomas Udem, Ronald Holzwarth, Guy Guelachvili, Theodor W. Hänsch, Nathalie Picqué  
“Cavity-enhanced dual-comb spectroscopy ”

