「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

H22 年度 実績報告

#### 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線光源を開発することと、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。

辛グループでは、7eV 準 CW レーザーを用いて、超高分解能光電子の分解能は設計通りの 70µeV を達成することができた。温度も設計通りの 1.5K を達成することができた。今後は使いや すいように装置の改善が必要であるが、超高分解能光電子分光の性能に関しては、当初の目的 は達したと考えている。本装置を用いて新規鉄超伝導体の超伝導ギャップを観測し新たな発見を 行った。また、時間分解光電子分光に関しては、グラファイトの測定に成功した。Ultrafast boosting と言う新しい効果が存在することを発見した。更に、近藤半導体 YbB12の時間分解光電 子分光に成功し、ギャップが開くことにより、寿命が延びることを発見した。

小林グループでは、高エネルギー分解光電子分光および高時間分解光電子分光用それぞれ のレーザー開発を行った。前者についてはエネルギー幅が狭い真空紫外光が必要である。本来 CRESTで計画にはなかった KBBFという真空紫外まで波長変換ができる非線形結晶を使う幸運 に恵まれ、H22 年度は急きょこの結晶を用いた 8eV 狭線幅レーザーの開発に取り組んだ。これま で 8eV 光は非線形結晶を用いた波長変換で発生させた例はなかった。また、KBBF 結晶の透過 率曲線も定かではなく、どこまで短波長が発生できるかはわかっていなかった。我々はレーザーを 全て手作りしているためその波長やパワー、スペクトル幅を操作することにより、153nm(8eV)のコ ヒーレント光を発生させることに成功した。後者についてはフェムト秒パルス列を外部共振器に高 効率に閉じ込めることにより内部パワーで 2kW を達成し、7 次高調波発生でサブマイクロ W を得 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

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

- 高エネルギー分解光電子分光用レーザーの開発
- 高時間分解光電子分光用レーザーの開発

# §3. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(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。H22 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。

# 辛グループは、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真空中における 試料冷却技術を開発し、最低温度 1.5K を達成した。 分解能においては光電子分光器スリットの改造を行い、 70µeV を達成することができた。金のフェルミ端を測定 し(図 1)、実際に、所定の極低温と高分解能が得られ ていることが明らかにした。これにより、本 CREST で、 当初目標としていた性能を達成することができた。

次に、同装置を用いて、鉄系の新規超伝導体の超 伝導ギャップを明瞭に観測し、そのメカニズムを解明す



る研究を行った。図2は高温超伝導体(Bao.6Ko.4)Fe2As2のフェルミ面と高分解能光電子分光スペクトルである。その結果、超伝導のメカニズムについて既存の理論によるスピンの揺らぎではなく、 軌道の揺らぎが重要であることを明らかにした<sup>8)</sup>。

#### (2)時間分解光電子分光による近藤半導体と電荷移動波物質の研究

今年度は、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 の改造を行い、高温で金属、低温で半導体と なる近藤半導体 YbB12 の光誘起現象を観測 することに成功した。その結果、低温になり、バ ンドギャップが成長するにつけ、緩和時間が著 しく延びていくことが判明した。これは、通常言 われているような擬ギャップではなく、真性のバ ンドギャップであることが判明した。一方、60eV



の時間分解光電子分光装置を開発し、電荷移動物質 TaS2 の光誘起現象を観測した。その結果、 図 3 のように、内殻4fレベルのシフトの振動が観測され、アンプリチュードンの振動が励起されて いることが判明した。<sup>7)</sup>

# 小林グループは、以下の研究を行った。

# (1) 高エネルギー分解光電子分光用コヒーレント真空紫外光源

実施計画では希ガス等の共鳴 を使った波長変換によってピコ 秒レーザーの波長変換で 8eV の狭帯域コヒーレント光を発生さ せる計画であった。これは全く未 知の方法で物理から研究するよ うなものであったため、達成可能 性は不明であった。そこに真空 紫外まで位相整合が取れる



KBBF という非線形光学結晶を借りる話が持ち上がり、中国のチェン先生、理科大の渡部先生との協力のもと 8eV を KBBF で発生させる実験がスタートした。まずは Nd: YVO4(波長 1064nm) を発振器としてレーザーシステムを組み上げ、152nm を KBBF にて発生させる試みを行ったが VUV は観測できなかった。これは KBBF の吸収端のせいであろうと推測し、発振器を Yb ファイ バーレーザーに置き換えることにより 1074nm とすることにより、最終的に 153.4nm の VUV 光の 発生に成功した。実験配置を図4に示す。

繰り返し周波数は33MHz で発振器のエネルギー幅は0.1meV(30GHz) である。そのシードを数

段のファイバー増幅器により 10W 程度 まで増幅し、2段の LBO 結晶により3倍 波を発生させる。これを 1 段目の KBBF に通すことにより6 倍波を得た。 パワーはおよそ1mW である。これと基 本波との和周波を2 段目の KBBF で 取ることにより、波長 153.4nmの7倍波 を得た(図5)。これについては論文投 稿中である。得られたパワーは 1nW と まだまだ弱く、今後これの高強度化に 取り組む。



## (2)高時間分解光電子分光用コヒーレント真空紫外光源

エンハンスメント共振器の動作確認および400W内部パワーをH21年度に達成していたが、H22

年度はこれのハイパワー化および高次高調波発生に取り組んだ。高強度化についてはファイバー アンプにて60W 程度の増幅を達成し、パルス圧縮後で 44W を得た。定常的に 15W のパワーを

真空槽内のエンハンスメン ト共振器にロックすることに より内部パワーで2kWを達 成した(図6)。

また、共振器内部に Xe ガ スを入れ、ブリュスター窓を 配置することにより高次高 調波の発生・取り出しを行 った。その結果、7 次高調 波(8.4eV)にてサブマイク ロWのパワーを発生させる



ことに成功した(応用物理学会招待講演)。しかしながら高次高調波のパワー変動があり、共振器 ロックの直後からパワーが徐々に落ちるのが観測され、安定的な VUV 光発生の課題が残った。 来年度は熱問題や高強度光による光学素子の劣化などを解決し、定常的にマイクロ W の高次高 調波発生に取り組む。

# §4. 成果発表等

## (4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

- M.Taguchi, A.Chainani, M.Matsunami, R.Eguchi, Y.Takata, M.Yabashi, K.Tamasaku, Y. Nishino, T.Ishikawa, S.Tsuda, S.Watanabe, C.T.Chen, Y.Senba, H.Ohashi, K.Fujiwara, Y.Nakamura, H.Takagi, S.Shin, "Anomalous state sandwiched between fermi liquid and charge ordered mott-insulating phases of Ti<sub>4</sub>O<sub>7</sub>", Phys Rev. Lett., **104**, 106401-106404 (2010). (DOI:10.1103/PhysRevLett.104.106401)
- P.A.Bhobe, A.Chainani, M.Taguchi, T.Takeuchi, R.Eguchi, M.Matsunami, K.Ishizaka, Y.Takata, M.Oura, Y.Senba, H.Ohashi, Y.Nishino, M.Yabashi, K.Tamasaku, T.Ishikawa, K.Takenaka, H.Takagi, S.Shin, "Evidence for a correlated insulator to antiferromagnetic metal transition in CrN", Phys Rev. Lett., 104, 236404-236407 (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.236404)
- 3. Naoya Kuse, Nomura Yutaka, Akira Ozawa, Makoto Kuwata-Gonokami, Shuntaro

Watanabe, and Yohei Kobayashi, "Self-compensation of third-order dispersion for ultrashort pulse generation demonstrated in an Yb fiber oscillator", Opt. Lett. 35, 3868-3870 (2010). (DOI: 10.1364/OL.35.003868)

- 4. Xiangyu Zhou, Dai Yoshitomi, Yohei Kobayashi, and Kenji Torizuka, "1 W average-power 100 MHz repetition-rate 259 nm femtosecond deep ultraviolet pulse generation from ytterbium fiber amplifier", Opt. Lett. 35, 1713-1715 (2010). (DOI: 10.1364/OL.35.001713)
- S. Adachi, N. Ishii, Y. Kobayashi, Y. Nomura, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe, "Carrier-envelope phase control of few-cycle parametric chirped-pulse amplifier", Jpn. J. Appl. Phys. 49, 032703 (2010). (DOI: 10.1143/JJAP.49.032703)
- S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe "1.2-mJ, sub-4-fs source at 1 kHz from an ionizing gas", Opt. Lett. 35, 980-982 (2010). (DOI: 10.1364/OL.35.000980)
- K. Ishizaka, T. Kiss, T. Yamamoto, Y. Ishida, T. Saitoh, M. Matsunami, R. Eguchi, T. Ohtsuki, A. Kosuge, T. Kanai, M. Nohara, H. Takagi, S. Watanabe, and S. Shin, "Femtosecond core-level photoemision spectroscopy on 1T-TaS<sub>2</sub> using a 60 eV laser source", Phy. Rev. B83, 081104-081107(2011). (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.081104).
- T. Shimojima, F. Sakaguchi, K. Ishizaka, Y. Ishida, T. Kiss, M. Okawa, T. Togashi, C. -T. Chen, S. Watanabe, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, K. Ohgushi, S. Kasahara, T. Terashima, T. Shibauchi, Y. Matsuda, A. Chainani, S. Shin "Orbital-Independent Superconducting Gaps in Iron-Pnictides", Science (2011), in press

# (4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 0件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 0件)