

「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

H23 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. 研究実施体制

(1)「辛」グループ

① 研究代表者: 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に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 主たる共同研究者: 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

§ 2. 研究実施内容

(文中の引用番号等は(3-1)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。H23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。H23年度はそれぞれ、業績を出しながら、小林研で作成されたレーザーが実際に辛研で使用され始めた。

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、70 μ eV を達成することができた。金のフェルミ端を測定し、実際に、所定の極

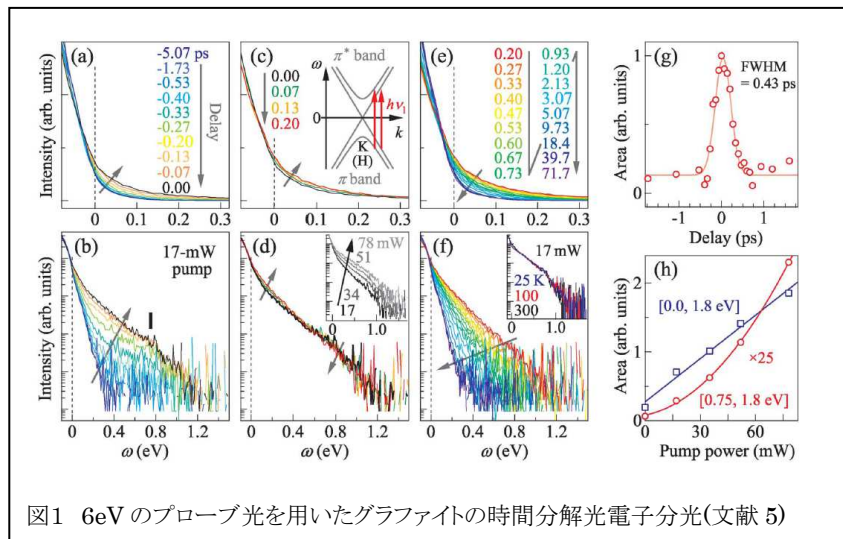


図1 6eV のプローブ光を用いたグラファイトの時間分解光電子分光(文献 5)

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。3.5K の低温の T_c を持つ KFe_2As_2 において、大きな超伝導ギャップ異方性とノードを初めて発見し、超伝導対称性が s_{\pm} であることを明らかにした。この他にも巨大ラッシュ場分裂を起こす新規物質において、高分解能光電子分光によりスピン分裂をしたディラックコンバンドがあるという新しい発見があった(文献4)

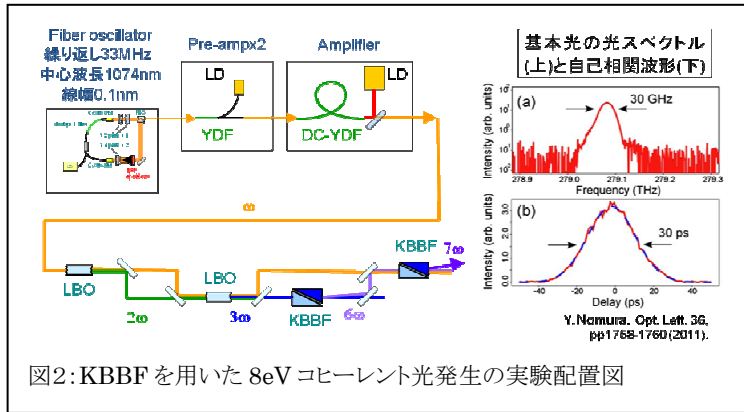
(2) 時間分解光電子分光による近藤半導体と電荷移動波物質の研究

BBO結晶を用いた 6eVプローブ光を用いて、高精度、高分解能の時間分解光電子を行うために装置の作成を行った。グラファイトやグラフェンの時間分解光電子分光を行い、励起電子の緩和過程を観測し、光学フォノンが緩和過程に重要な役割を果たしていることを明らかにした(文献 5)。一方、60eV の時間分解光電子分光装置のレーザーはこれまで、ランプ励起の物を使用していたが、LD に交換し、パワーアップと同時に出力の安定化させ、数日間の連続運転を可能にさせた。トポロジカルインスレーターの Bi_2Se_3 について光誘起現象を観測した。その結果、グラファイトと同じように長い緩和時間を持ちバンド全体が変化していることが判明した。

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

昨年度は中国のチェン先生、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。発振器、多段のアンプ、4段の波長変換を全て自作することにより最終的に 153.4nm の VUV 光の発生に成功した。しかしながら得られたパワーは 1nW とまだまだ弱く、

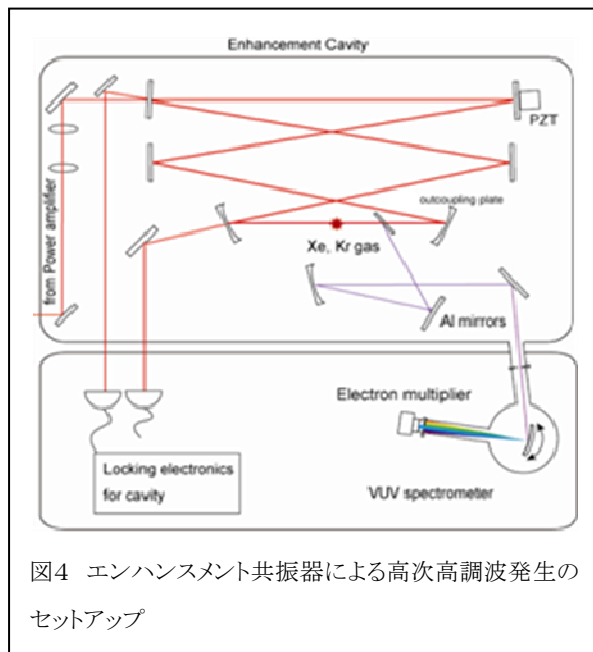


高強度化が課題となった。今年度は震災の影響でリセットされたレーザーシステムを最初から改良することにより安定性および高出力化の両面を改善した。レーザーのより洗練された調整や真空槽内でのアライメント装置の改善などによりパワーは飛躍的に改善し、80nm 程度の出力となった。このパワーになると蛍光板での発光を確認でき、アライメントも可能となる(図3)。また、安定性についても20分で5%程度の揺らぎとなっている。3段のアンプおよび4段の波長変換という複雑なシステムとしては高安定なシステムになった。今後はさらなる高出力化と長時間安定性の改善を目指す。



(2) 高時間分解光電子分光用コヒーレント真空紫外光源

H22 年度は定常的に 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、高次高調波の発生を確認している。H23 年度は安定的にマイクロワットレベルの高次高調波を取り出し、これを応用に用いるための研究を進めた。出力が安定しないのは共振器から高調波を取り出すためのアウトプットカップラが熱で変形するためであることが分かった。熱に強く赤外光の透過率もよい材質を見つけ出し、これを用いることにより高調波を安定に出力することができるよ



うになった。極端紫外の分光器を用いて高次高調波スペクトルを測定したところ、19次高調波(波長 54nm)までの発生を確認した。

80MHz 繰り返しのフェムト秒 XUV 光源は時間分解光電子分光以外にも精密分光への応用が考えられる。高次高調波は基本波レーザーのコヒーレンスを受け継いでいると考えられるため、XUV コムとして機能するからである。コムの本のみを取り出して分光することができれば XUV のcwレーザーを手に入れるのと同等の分光ができるはずである。現在この応用に向かいビームハンドリングなどの研究を進めている。

辛グループと小林グループとの連携の進展状況について

本年度は、小林グループの(1)レーザーは、辛研の学生と小林研との共同研究として進めており、飛躍的なパワーの増強を達成した。このパワーは光電子分光に実用可能レベルに達しつつある。よって小林研で開発したレーザー装置を辛研に移設する作業を開始する。H24 年度の当初から数か月で立ち上がる予定である。辛研究室にて 8eV レーザーを使いつつ長時間安定性の改良を進める。一方、小林グループ(2)のレーザーは予定通り、8.4eV の出力を得ることができるようになったが、極めて難しい技術を要するため辛研へは移設せず、小林研にて光電子分光応用を含む新規光源の応用実験を進める。

§3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

国内

1. 小林洋平、“Yb 系モード同期レーザーによる高繰り返し光周波数コム”、レーザー研究39巻 P831(2011)

国際

1. Y.Muraoka, K.Saeki, R.Eguchi, T.Wakita, M.Hirai, T.Yokoya, S.Shin “Spectroscopic evidence of the formation of (V,Ti)O₂ solid solution in VO₂ thinner films grown on TiO₂(001) substrates” J. Applied Physics., **109**, 043702-1-6 2011(DOI:10.1063/1.3549835)
2. T.Shimajima, 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., **332**, 564-567 2011(DOI:10.1126/science.1202150)
3. Y.Ishida, H.Kanto, A.Kikkawa, Y.Taguchi, Y.Ito, Y.Ota, K.Okazaki, W.Malaeb, M.Mulazzi, M.Okawa, S.Watanabe, C.T.Chen, M.Kim, C.Bell, Y.Kozuka, H.Y.Hwang, Y.Tokura, S.Shin” Common origin of the circular-dichroism pattern in angle-resolved photoemission spectroscopy of SrTiO₃ and Cu_xBi₂Se₃ “Phys Rev. Lett., **107**, 077601-1-4 2011(DOI:10.1103/PhysRevLett.107.077601)
4. K.Ishizaka, M.S.Bahramy, H.Murakawa, M.Sakano, T.Shimajima, T.Sonobe, K.Koizumi, S.Shin, H.Miyahara, A.Kimura, K.Miyamoto, T.Okuda, H.Namatame, M.Taniguchi, R.Arita, N.Nagaosa, K.Kobayashi, Y.Murakami, R.Kumai, Y.Kaneko, Y.Onose, T.Tokura” Giant rashba-type spin splitting in bulk BiTeI” Nature Materials., **10**, 521-526 2011(DOI:10.1038/NMAT3051)
5. Y.Ishida, T.Togashi, K.Yamamoto, M.Tanaka, T.Taniuchi, T.Kiss, M.Nakajima, T.Suemoto, S.Shin “Non-thermal hot electrons ultrafastly generating hot optical phonons in graphite” Scientific Reports., **1:64**, 1-5 2011(DOI:10.1038/srep00064)

6. 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, S.Shin
“Femtosecond core-level photoemission spectroscopy on 1T-TaS₂ using a 60-eV laser source” *Phys Rev. B.*, **83**,081104-1-4 2011(DOI:10.1103/PhysRevB.83.081104)

7. T.Tokushima, Y.Horikawa, H.Arai, Y.Harada, O.Takahashi, L.G.M.Pettersson, A.Nilsson, S.Shin “Polarization dependent resonant x-ray emission spectroscopy of D₂O and H₂O water: Assignment of the local molecular orbital symmetry” *The Journal of Chemical Physics.*, **136**, 044517-1-7 2012(DOI:10.1063/1.3678443)

8. Y.Harada, M.Kobayashi, H.Niwa, Y.Senba, H.Ohashi, T.Tokushima, Y.Horikawa, S.Shin“Ultrahigh resolution soft x-ray emission spectrometer at BL07LSU in SPring-8”*Rev. Sci. instrum.*, **83**, 013116-1-6 2012 (DOI : 10.1063/3680559)

9. Y. Nomura, Y. Ito, A. Ozawa, X.-Y. Wang, C.-T. Chen, S. Shin, S. Watanabe, and Y. Kobayashi," Coherent quasi-cw 153 nm light source at 33 MHz repetition rate," *Opt. Lett.* 36, pp1758-1760 (2011). DOI:10.1364/OL.36.001758

10. Lora Nugent-Glandorf, Todd A. Johnson, Yohei Kobayashi, Scott A. Diddams, "The Impact of Dispersion on Amplitude and Frequency Noise in a Yb-fiber Laser Comb," *Opt. Lett.* 36, pp1578-1580 (2011). DOI:10.1364/OL.36.001578

11. Chun Zhou, Takashi Seki, Takashi Sukegawa, Teruto Kanai, Jiro Itatani, Yohei Kobayashi, and Shuntaro Watanabe, "Large-Scale, High-Efficiency Transmission Grating for Terawatt-Class Ti:Sapphire Lasers at 1 kHz ," *Applied Physics Express* 4, 072701 (3pages) (2011). DOI: 10.1143/APEX.4.072701

12. Birgitta Bernhardt, Akira Ozawa, Andreas Vernaleken, Ioachim Pupeza, Jan Kaster, Yohei Kobayashi, Ronald Holzwarth, Ernst Fill, Ferenc Krausz, Theodor W. Hansch, and Thomas Udem," Vacuum ultraviolet frequency combs generated by a femtosecond enhancement cavity in the visible ," *Opt. Lett.* 37, pp503-505 (2012). DOI:10.1364/OL.37.000503