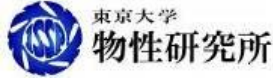


極限レーザーと先端放射光技術の融合による 軟X線物性科学の創成



物性研・LASORセンター 辛 埴

量子ビーム技術の革新が、光科学のプラットフォーム化をもたらす

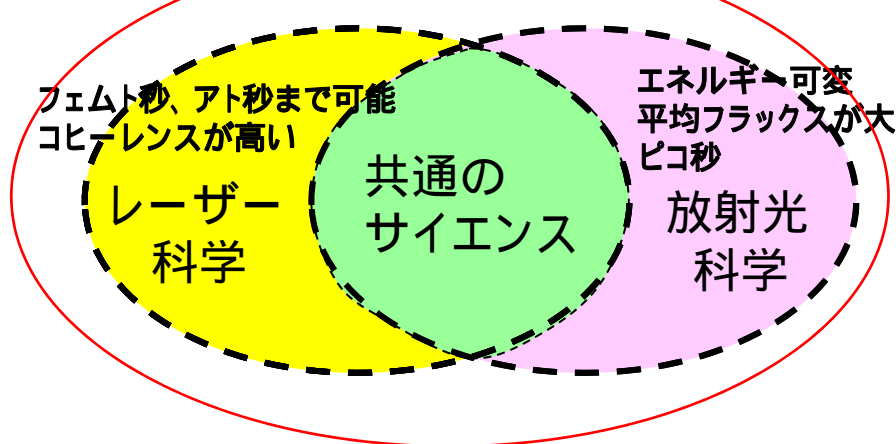
- 物性応用を目指した高調波レーザーの開発
- 次世代放射光につながる、放射光利用技術の高度化



多様な光源技術を包含した
軟X線物性科学の創成

光源・利用技術

施設間の垣根を取り払い、
各光源の特徴も活かした
新しい軟X線光科学を創設

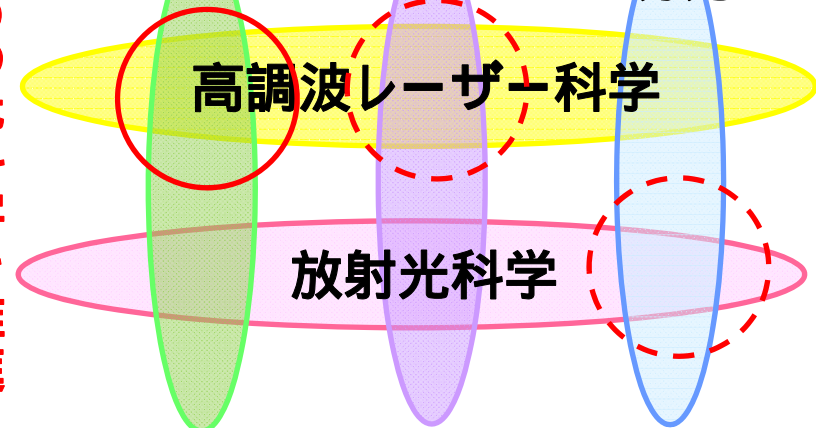


サイエンスのプラットフォーム化

交差する3つの分光

超高速分光 超高分解能分光 顕微分光

2つの光科学を推進



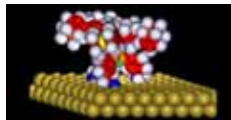
研究の背景; 極紫外・軟X線光源の著しい発展

これまでより格段に優れた**超高速**、**超高分解能**を持つ極紫外・軟X線レーザーや放射光を用いることにより、これまで不可能だった実験が可能。放射光とレーザー両コミュニティの夢が実現。

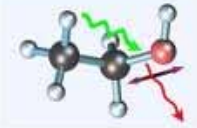
エレクトロニクス



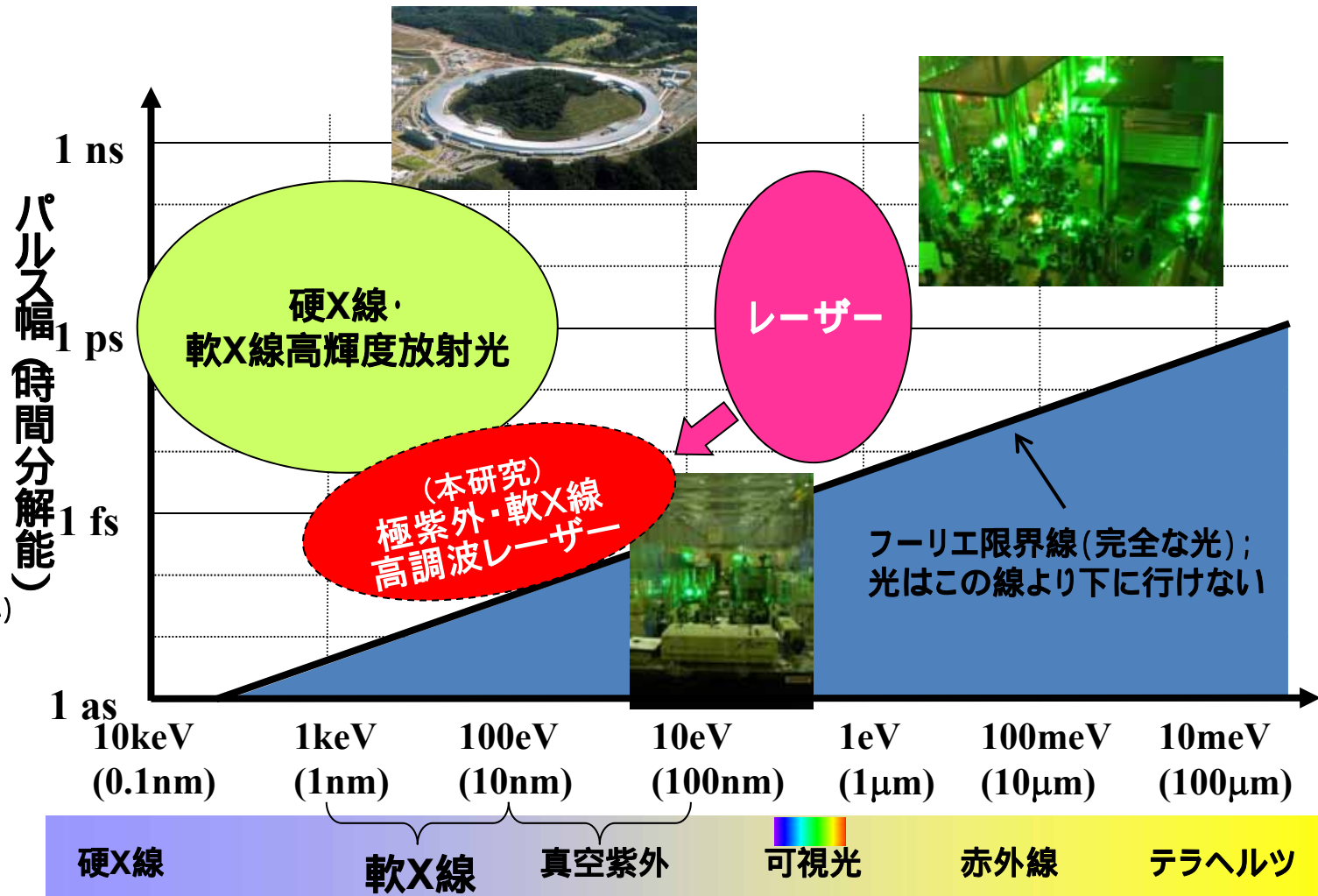
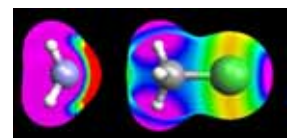
分子機械



分子の振動



電子の移動(化学反応)



硬X線

軟X線

真空紫外

可視光

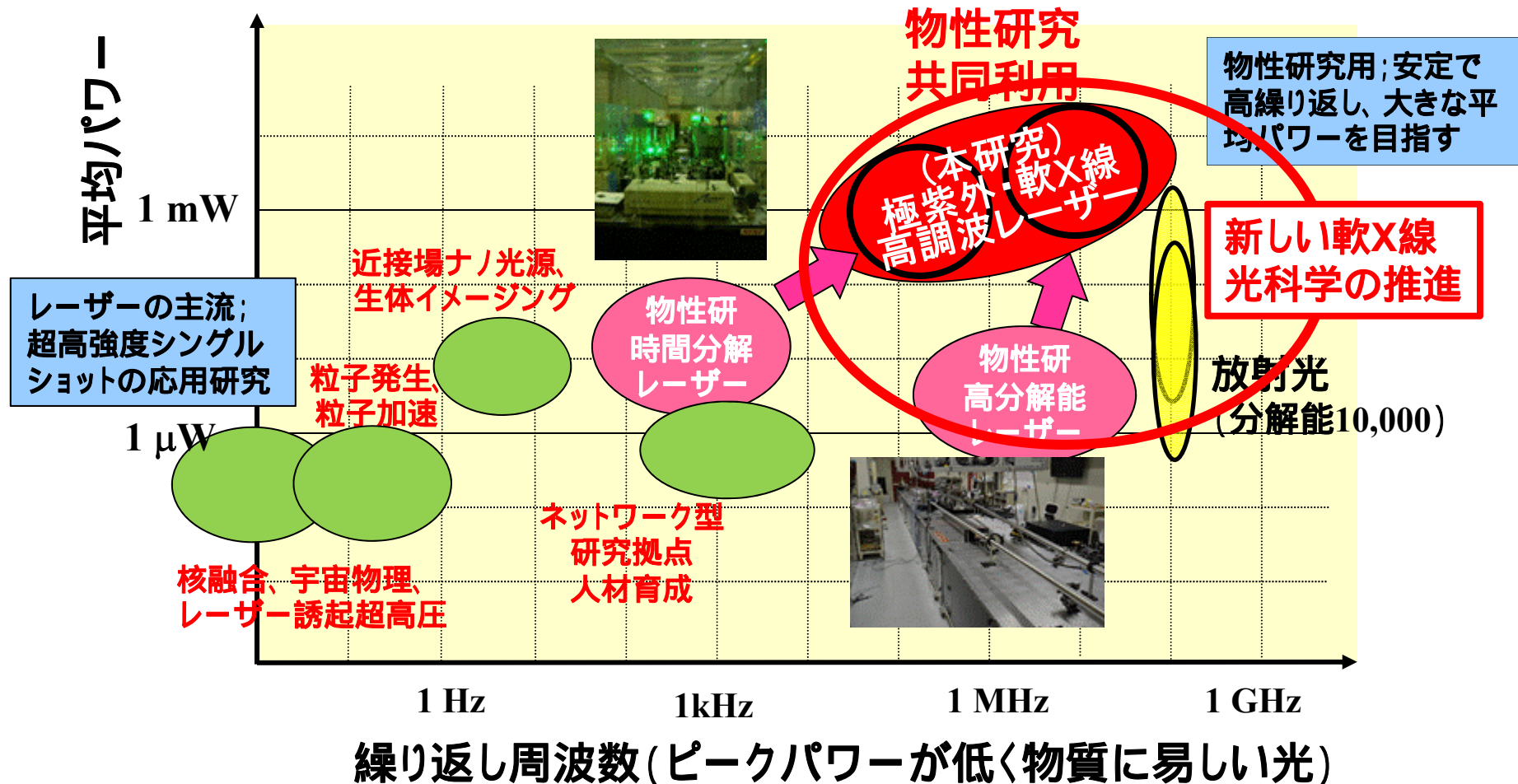
赤外線

テラヘルツ

物性研究にとって必要な光とは

物性研究には、安定・高繰り返し・大きな平均パワーが必要

- 放射光は500MHzで、超安定、大きな平均パワーで、物性研究向き
- 高調波レーザーにおいては、これまでそのような光源は無かった
他に類を見ない物性研究用レーザー光源を開発する必要性

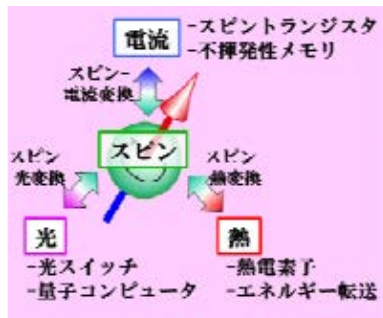


軟X線プラットフォームが貢献する物質科学

太陽電池の効率化



スピントロニクス



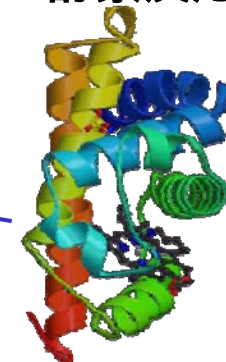
軟X線

- ほとんどの元素をカバー
- 硬X線に比べ、高い電子状態のクロスセクション

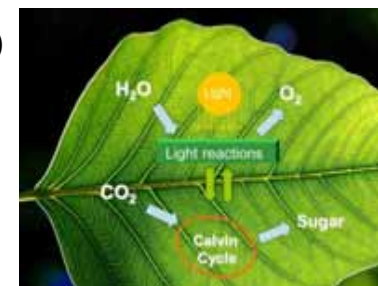
高温超伝導体



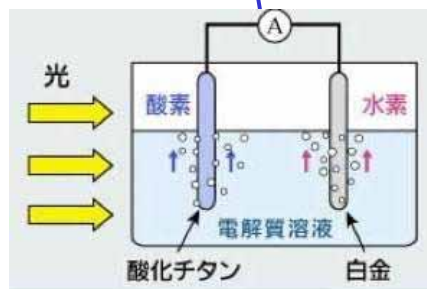
タンパク質の酵素反応



人工光合成



CO₂、N₂の分解、解離



水の光分解

研究体制と若手の人材育成

若手の育成

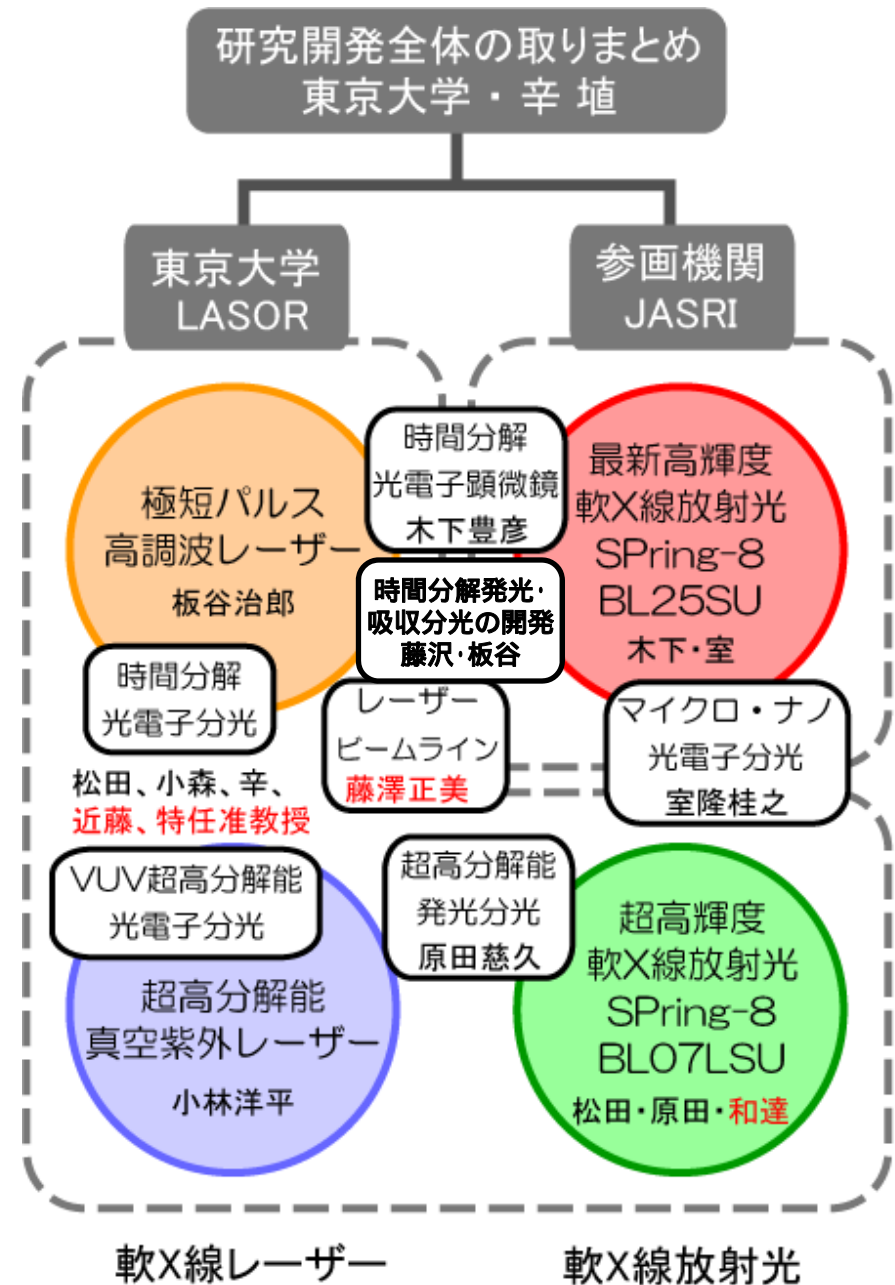
放射光も、軟X線高調波レーザーも横断的に研究を行う**特任研究室**を創設することにより、新しいタイプの人材育成を行う



岡崎特任准教授 (H26年7月より)

その他のアクティビティ

- 8月と1月に全体打ち合わせ
- 毎月、チームごとの打ち合わせ(昼食会)、勉強会、セミナー
- 本事業のWebの立ち上げ



物性研E棟におけるレーザー光電子分光、吸収分光の設備

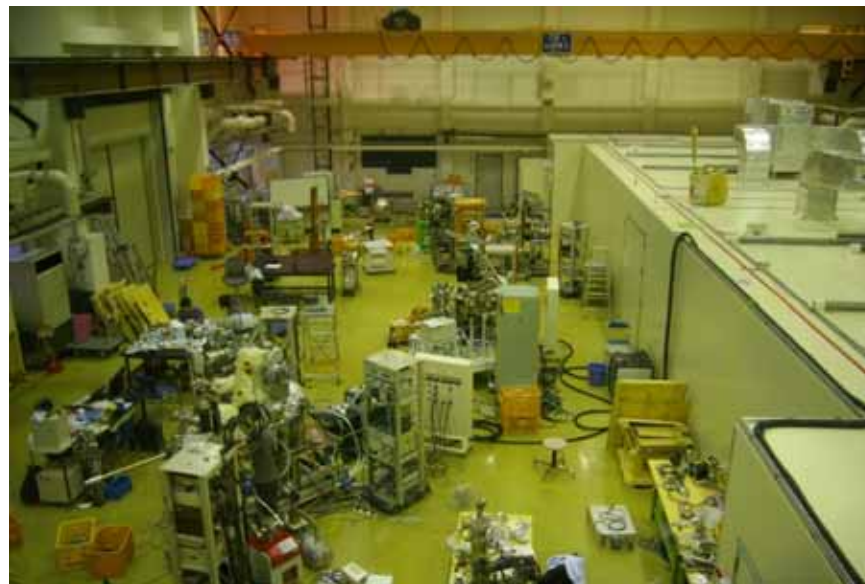


物性研究所E棟(900m²)
高輝度放射光光源のための準備棟
軟X線レーザー用に更地にしてクリーンルーム化

物性研E棟におけるレーザー光電子分光、吸収分光の設備



施工前(2012年)



2014年 現在



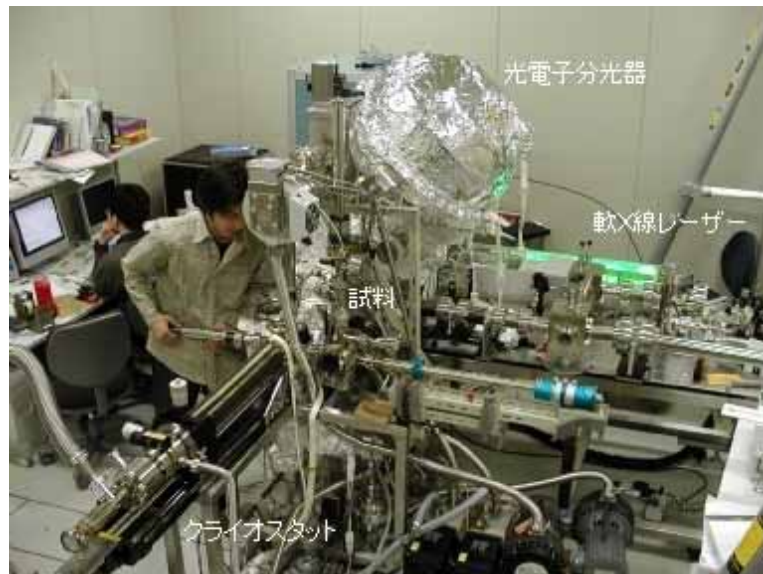
施工後(2013年)

レーザー光電子分光の開発(超高分解能に特徴)

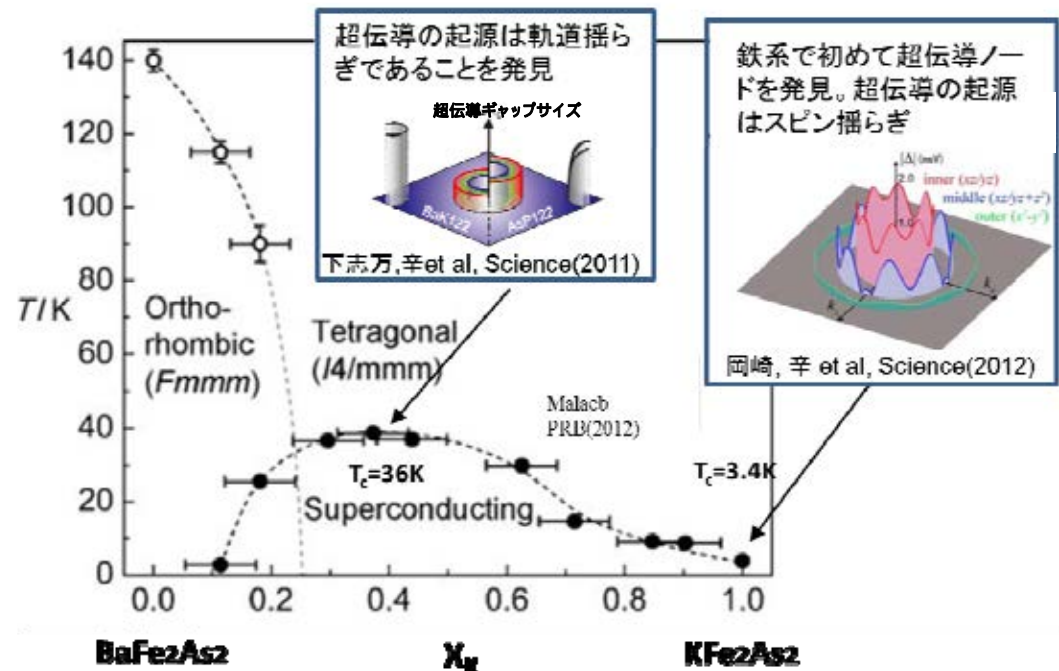
元素選択制を利用した放射光光電子と相補的な役割

超高エネルギー分解能光電子分光の開発
レーザーを用いて分解能70 μeV を達成
(放射光では分解能1 meV程度を目標)

放射光に取って代わる
テーブルトップ光源の誕生



超伝導機構の解明に大きく寄与;
鉄系超伝導体; 東工大の細野グループにより発見された高温超伝導体



高繰り返し真空紫外光源の開発; より高繰り返しへ

100 MHz, 6 eV, 200 fs (5meV) system

- Power: 1×10^{14} [photons/s] (0.1 mW)
- Flux: 1×10^{14} [photons/s/0.1%bw]
- Brilliance: 1×10^{16} [photons/s/0.1%bw/mm²mrاد²]
- Peak Brilliance: 5×10^{20} [photons/s/0.1%bw/mm²mrاد²]

時間分解高SN光電子分光

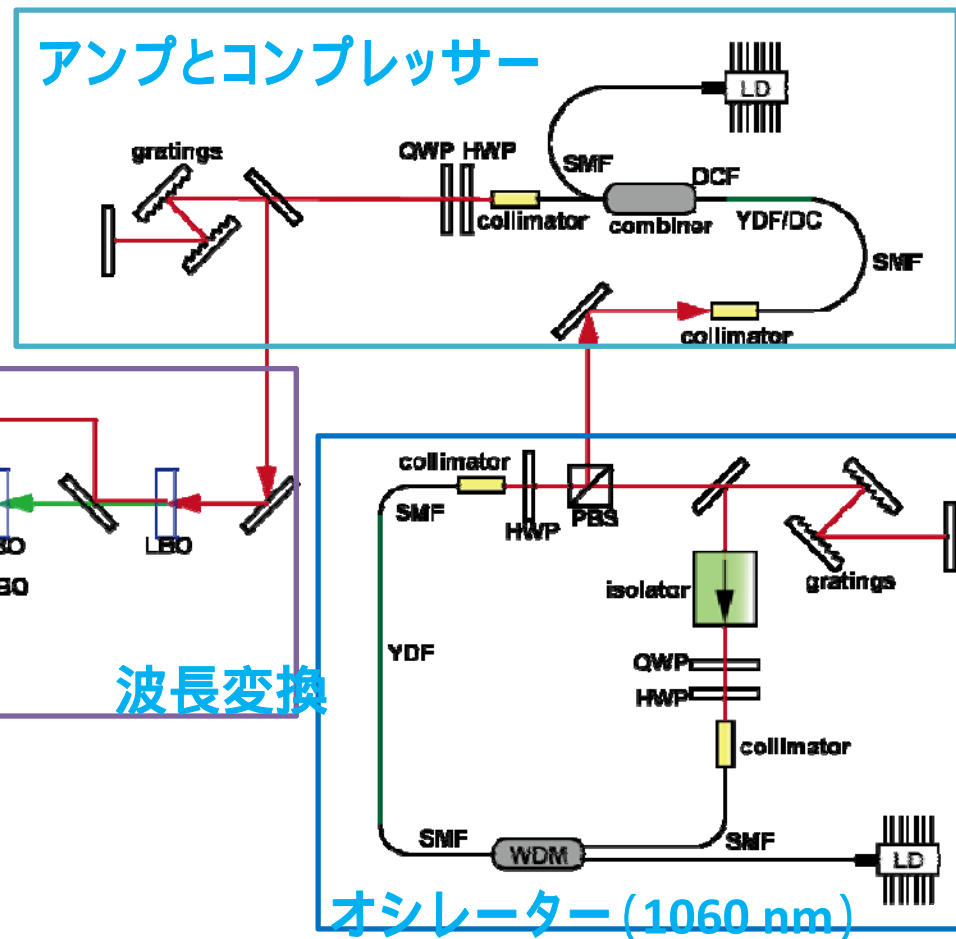
高エネルギー分解へ

100 MHz, 6 eV, 1 ps (1meV) system

高繰り返しへ

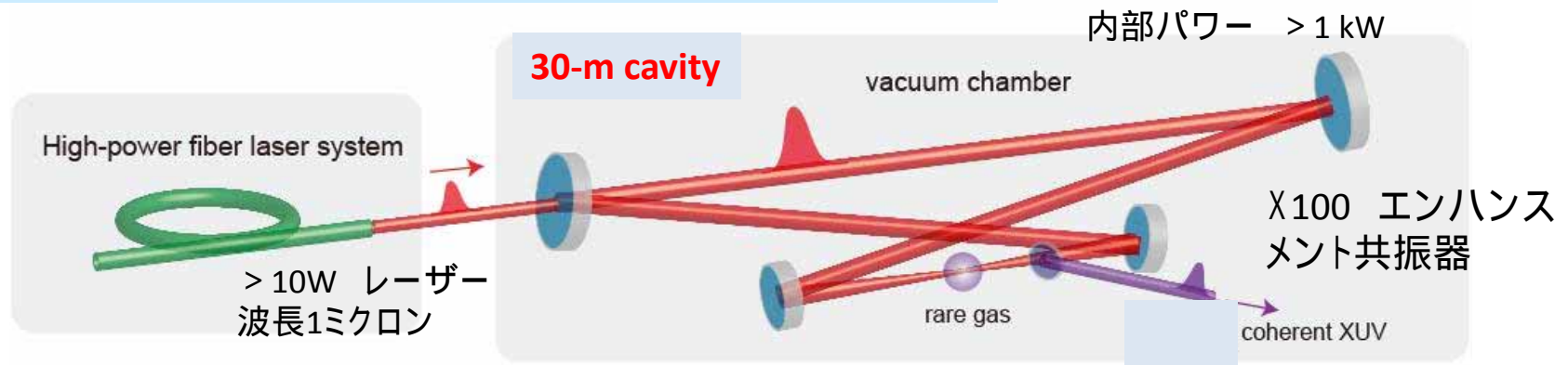
1000 MHz, 6 eV, 200 fs (5meV) system

Yb-fiber laser + wavelength conversions



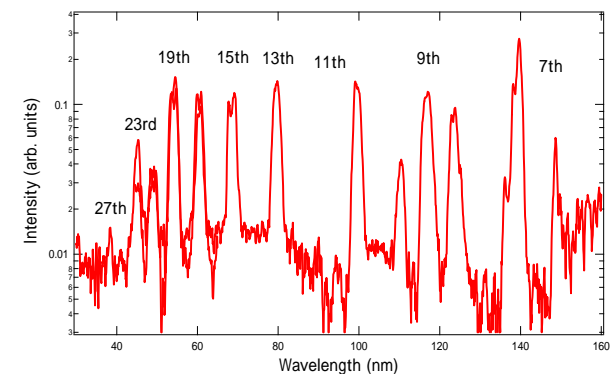
高繰り返し真空紫外光源の開発; より高いエネルギーへ

- 光子エネルギー : 8 eV - 30 eV (波長150nm - 40 nm)
- 繰り返し : 10 MHz
- 平均パワー : 50 μ W **→ mWレベルへ**
- パルス幅 : \sim 100 fs
- エネルギー幅 : $\Delta E \sim 10$ meV



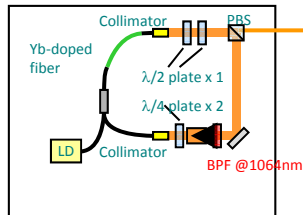
高調波発生
 (Krプラズマ)

高調波スペクトル(30eVまで)

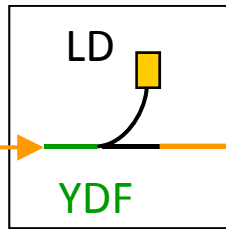


8 eV、11 eV、・・・のファイバーレーザー高調波の開発

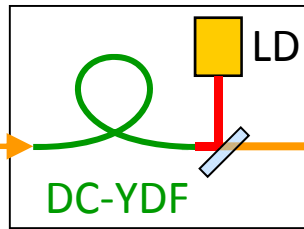
ファイバーレーザー
オシレーター
繰り返し33MHz
中心波長1082nm
線幅0.1nm



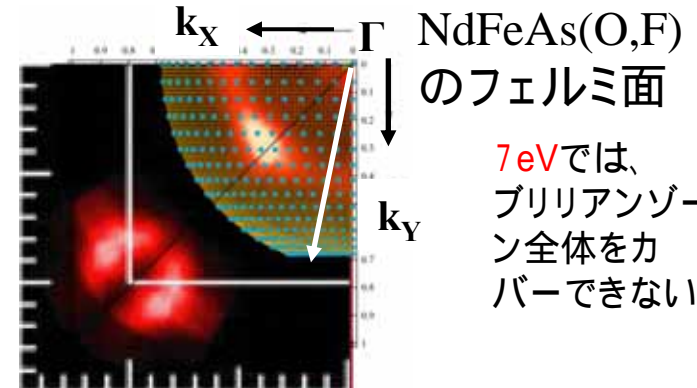
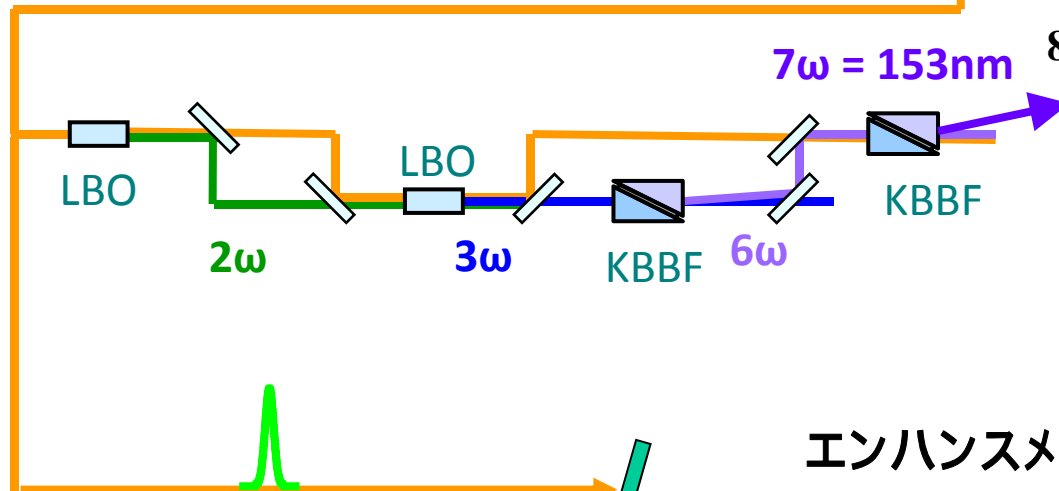
プリアンプx2



アンプ

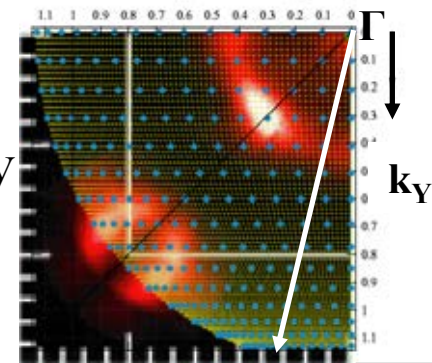


ω



NdFeAs(O,F)
のフェルミ面

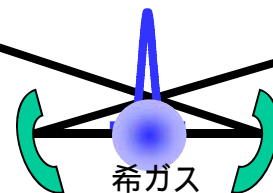
7eVでは、
ブリリアンゾーン全体をカバーできない



8、11eVなら、
ブリリアンゾーン全体をカバーできる

$$K_{\parallel} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_k} \sin \theta$$

エンハンスメント共振器



XUV

11eV

試料

時間分解光電子分光

エネルギーの高い軟X線での**フェムト秒レーザー**と**ピコ秒放射光**の活用

水素発生太陽光反応



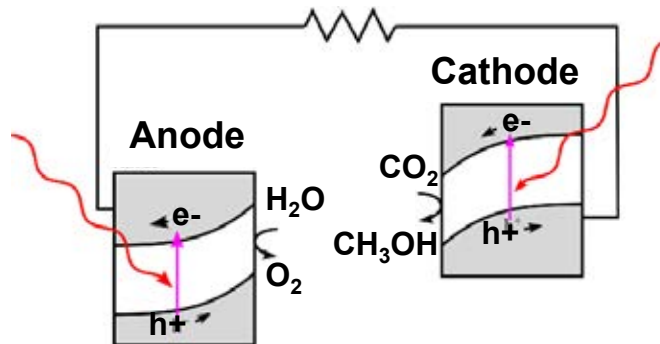
太陽光発電



人工光合成



ピコ秒、フェムト秒、アト秒の
(界面の現象、固体中の現象、原子中の現象)
光触媒反応の機構解明



化学反応(基本は電子と正孔の解離の制御)の直接観測が観測可能に!



より効率の良い太陽電池の作成や水素発生装置、人工光合成材料の開発



SPring-8
ピコ秒時間分解光電子

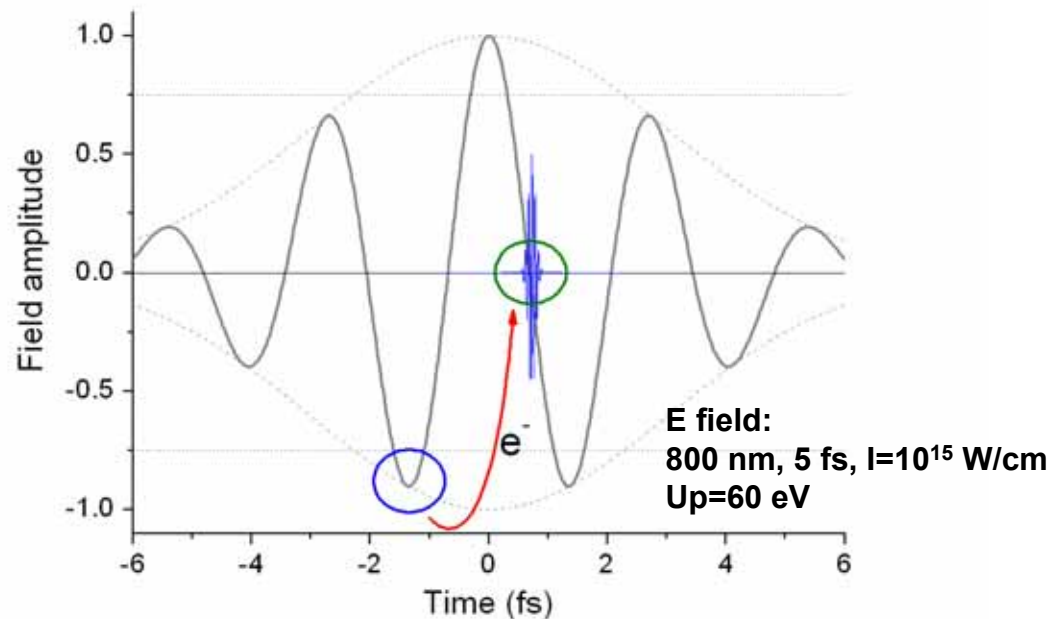
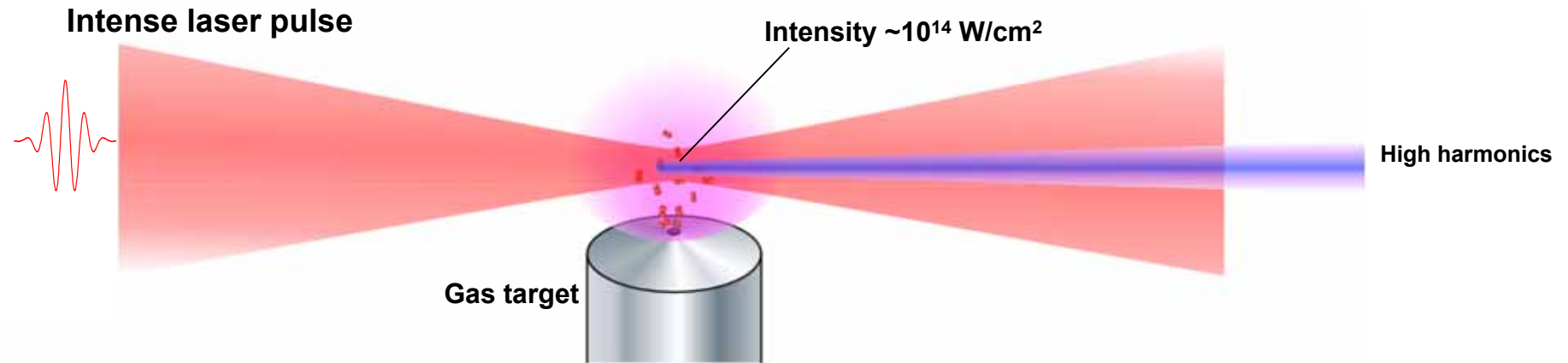


真空紫外・軟X線レーザー
フェムト秒、アト秒時間分解光電子分光

**電子と光が作る
低炭素社会**

グリーンテクノロジーを推進

高次高調波によるコヒーレント軟X線発生



最大光子エネルギー (最短波長)

$$\hbar\omega_{\max} = I_p + 3.17U_p$$

$$U_p \propto I\lambda^2$$

The three step model
P. B. Corkum, PRL 71, 1994 (1993).

I_p ; イオン化ポテンシャル
 U_p ; ポンデロモータYPポテンシャル

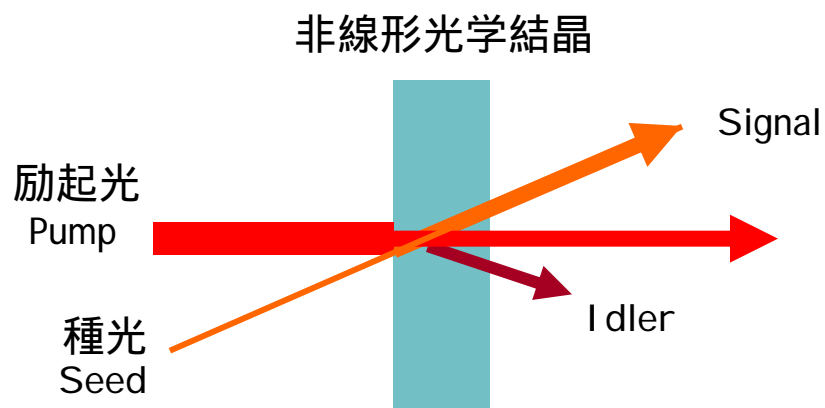
OPCPA法による高強度超短パルス光の発生

長波長で時間的にも空間的にも完全に制御された光を作り、それをタネに高調波を作り、時間的空間的にコヒーレントな軟X線、アト秒光、を作成する

$$\text{OPA} + \text{CPA} = \text{OPCPA}$$

光パラメトリック増幅法

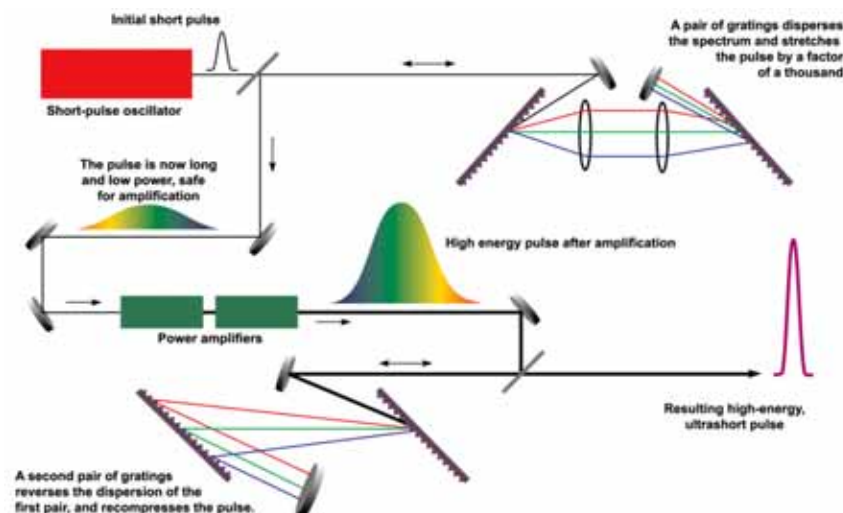
[Optical Parametric Amplification \(OPA\)](#)



反転分布を伴わない増幅。材料を選ぶことにより、光増幅の特性を自在に制御出来る。

チャープパルス増幅法

[Chirped Pulse Amplification \(CPA\)](#)



瞬間的な光強度による媒質の損傷を防ぐために、被増幅光を時間的に伸ばす。

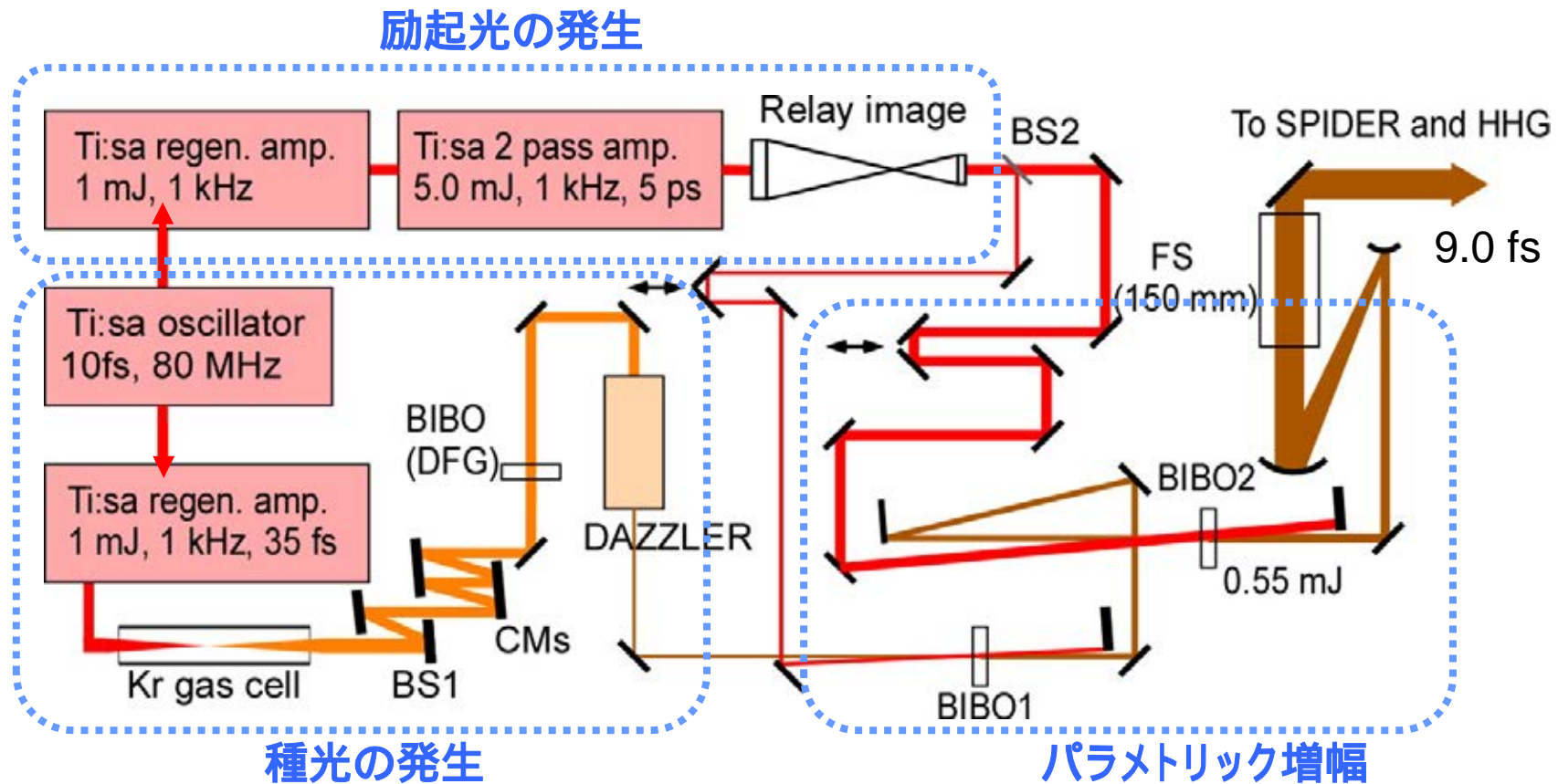
近赤外レーザー(チタンサファイアレーザー)と赤外光源(パラメトリック増幅)との比較

	従来手法	我々のアプローチ
	Ti:sapphire CPA	IR OPCPA
中心波長	800 nm	1600 nm
利得帯域	Ti:sapphire 100 nm typ. (~0.1 octave)	BIBO OPA >1000 nm (~ 1 octave)
Up at 10^{15} W/cm ² Saturation intensity of He	60 eV	240 eV
最大光子エネルギー 3.17Up + Ip	210 eV 極紫外	780 eV 軟X線

応用分野

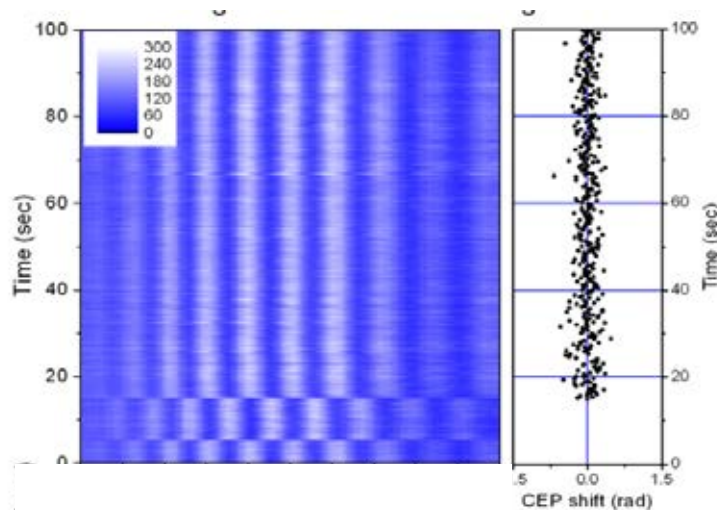
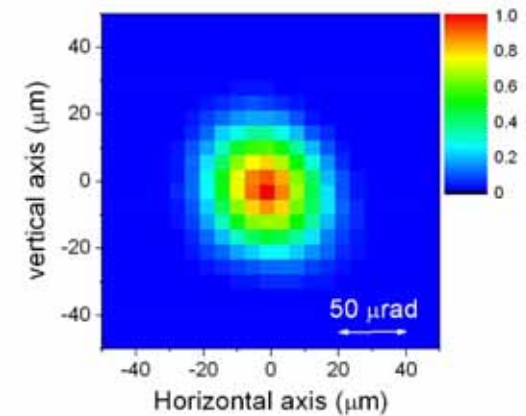
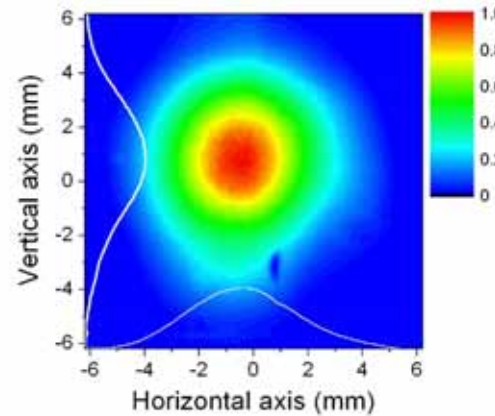
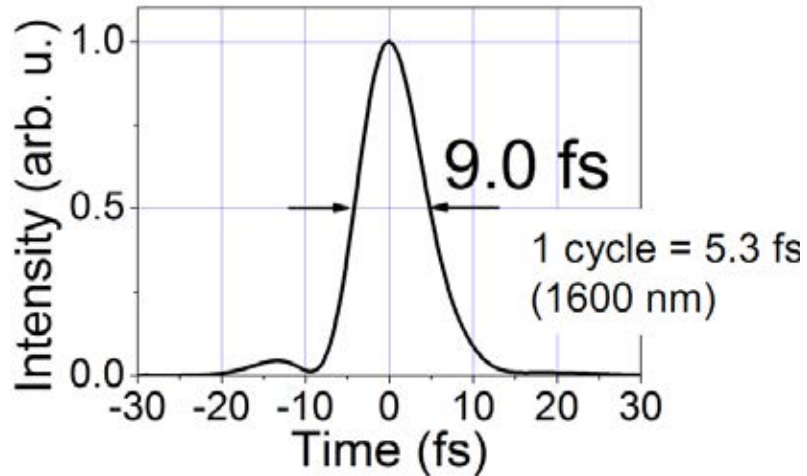
- 軟X線(sub-keV領域)でのアト秒軟X線パルス発生
- 軟X線領域の吸収分光(軽元素のK吸収端、遷移金属のL吸収端)
- アト秒電子波束の発生と光制御
- 光電子散乱(アト秒・オンGSTロームスケールの動的分子イメージング)

プロトタイプ光源の構成 (物性研D棟)



- 信頼性の高いチタンサファイアレーザーを励起源とする。
- BIBO結晶を用いることにより、赤外域での超広帯域増幅を実現。
- パルス波形(電場包絡線)だけでなく、キャリアエンベロープ位相も制御。

プロトタイプ光源の出力 (物性研D棟)



- Pulse energy: **550 μJ**
- Shot-to-shot stability: **0.85 % (rms)**
- CEP stability: **160 mrad (rms)**
- Beam quality: **回折限界**

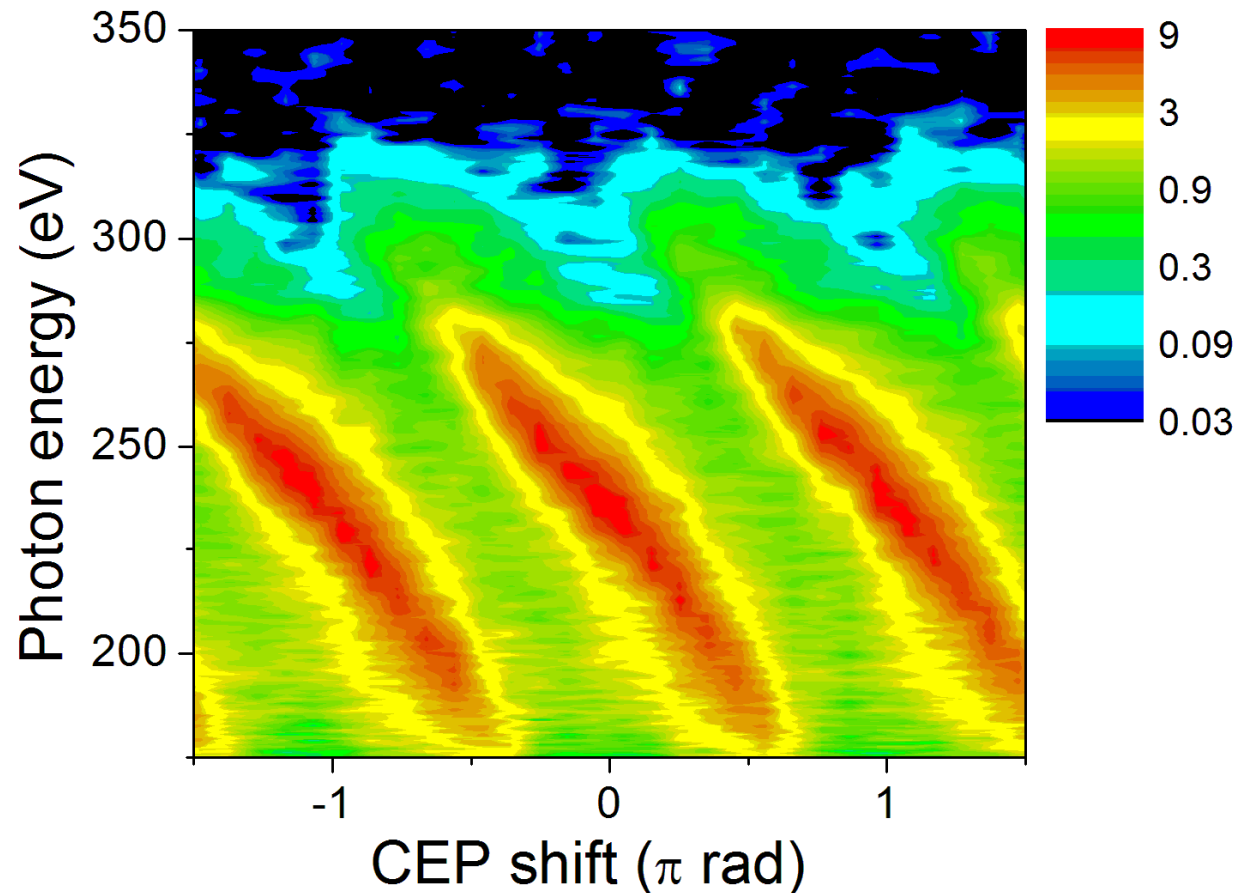
赤外サブ2サイクルの高強度極短パルスの発生に成功。
電場波形の振幅と位相を完全に制御。
ビーム品質、安定性が極めて良好。

N. Ishii et al., Opt. Lett. 37, 4182 (2012)

プロトタイプ光源によるコヒーレント軟X線発生

Experiment

Ne, 0.6 atm, 1.4 mm



光子エネルギー 330 eV (波長3.8nm)までの軟X線発生を確認。
炭素K吸収端付近でアト秒軟X線パルスが発生(シミュレーションとの比較による)。

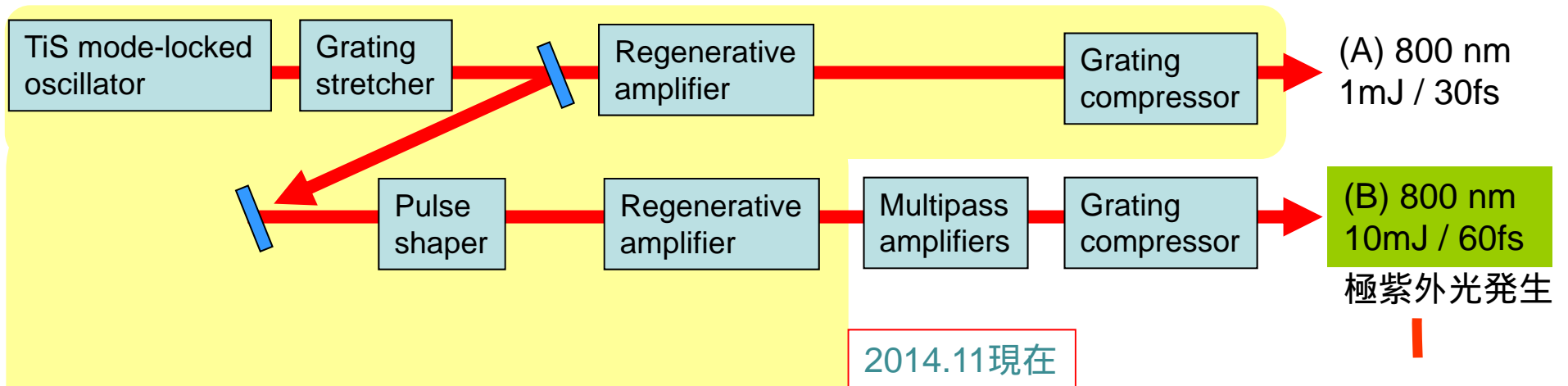
本プログラムで開発する光源のコンセプト

- プロトタイプ機の冗長性を減らし、シンプルかつコンパクトにして、安定性と信頼性をさらに向上させる。
- プロトタイプ機以降の新技术を導入し、高出力化を図る。
国内の優れた光技術による競争力の確保
透過型回折格子(キヤノンと共同開発)
赤外分散補償ミラー(東海光学と共同開発)
- 固体の超高速分光を想定した構成とする。
波長変換によって得られる多様な出力光(テラヘルツ～軟X線まで)
全ての「光」が、フェムト秒～アト秒の精度でタイミング同期する。

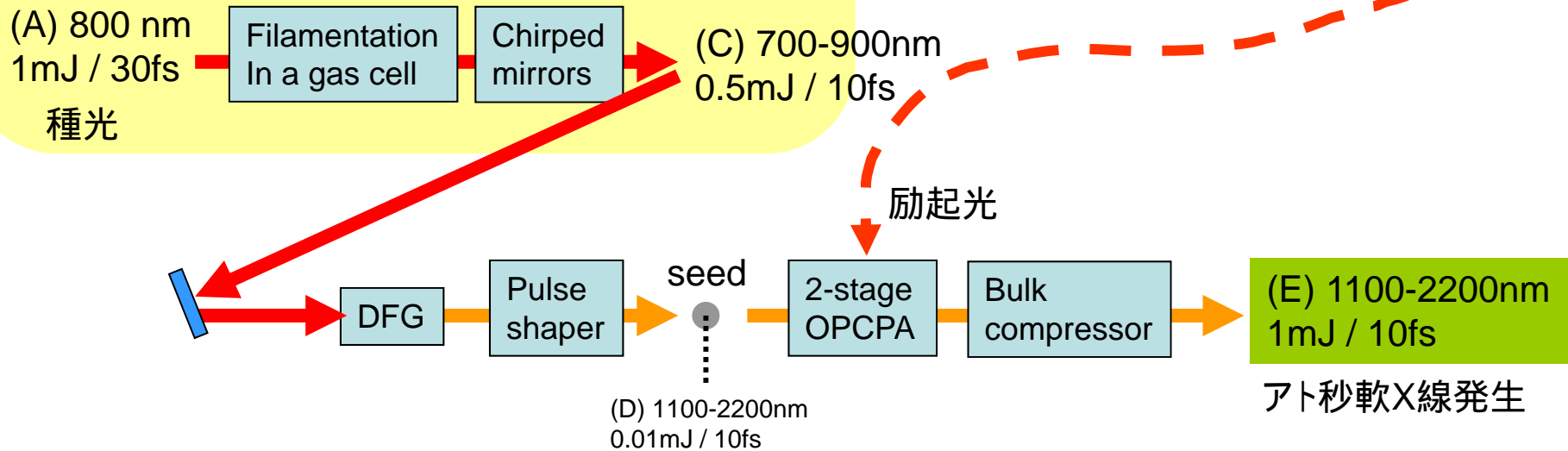
	波長	パルス幅
チタンサファイアレーザー基本波	800 nm	50 fs
チタンサファイアレーザー白色光	600-900 nm	10 fs
チタンサファイアレーザー二倍波	400 nm	50 fs
赤外OPCPA	1200-2100 nm	10 fs
高次高調波	EUV 20-200 eV	0.1-10 fs
	SX 200-300 eV	0.1-10 fs

本プログラムで開発する光源 (概要と現状)

高強度超短パルス チタンサファイアレーザー

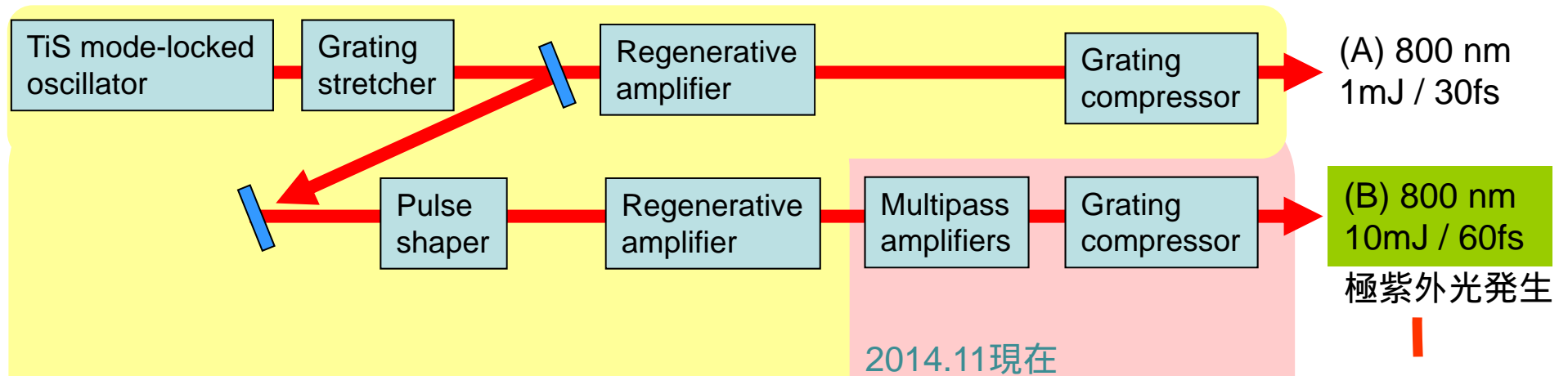


高強度極短パルス OPCPAレーザー

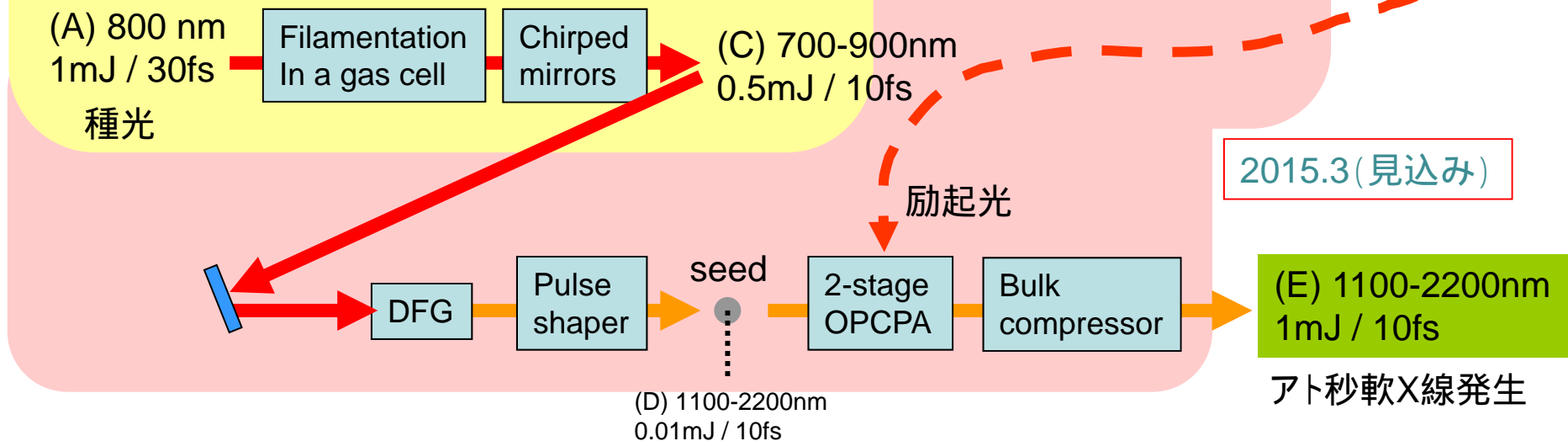


本プログラムで開発する光源(概要と現状)

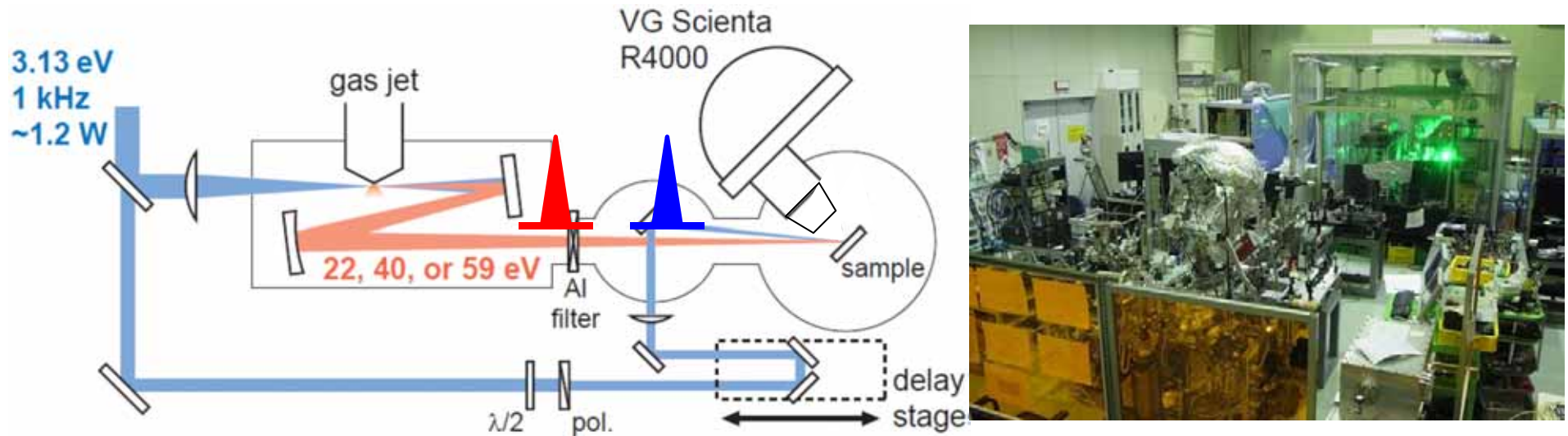
高強度超短パルス チタンサファイアレーザー



高強度極短パルス OPCPAレーザー

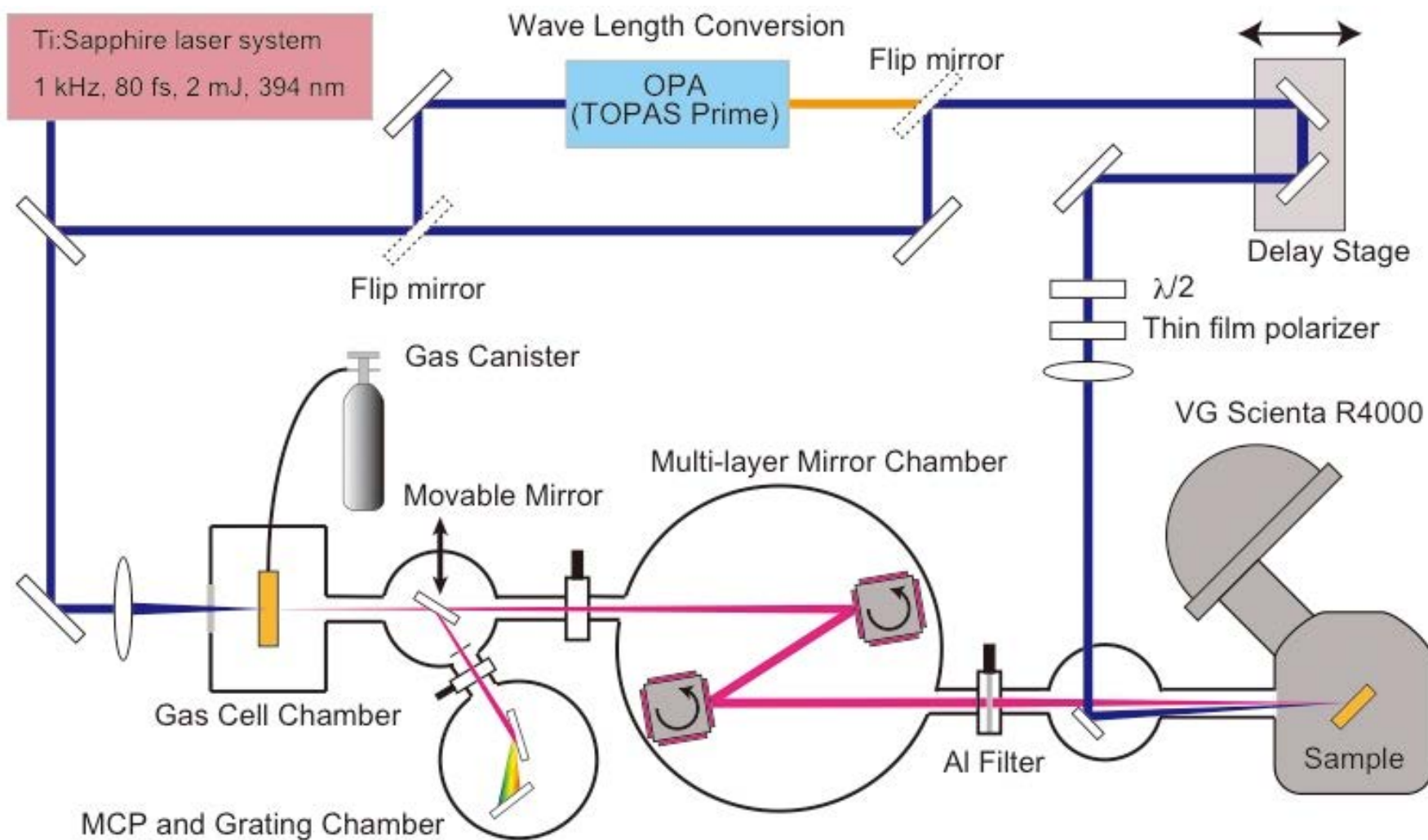


軟X線レーザーを用いたポンプ・プローブ型光電子分光 (本プログラム以前)

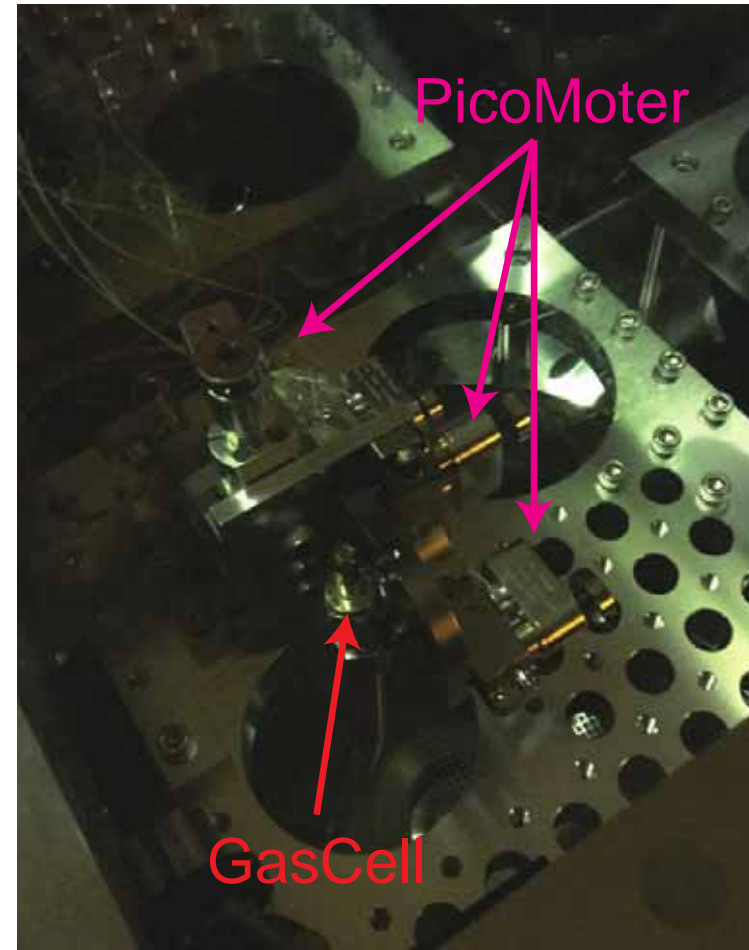
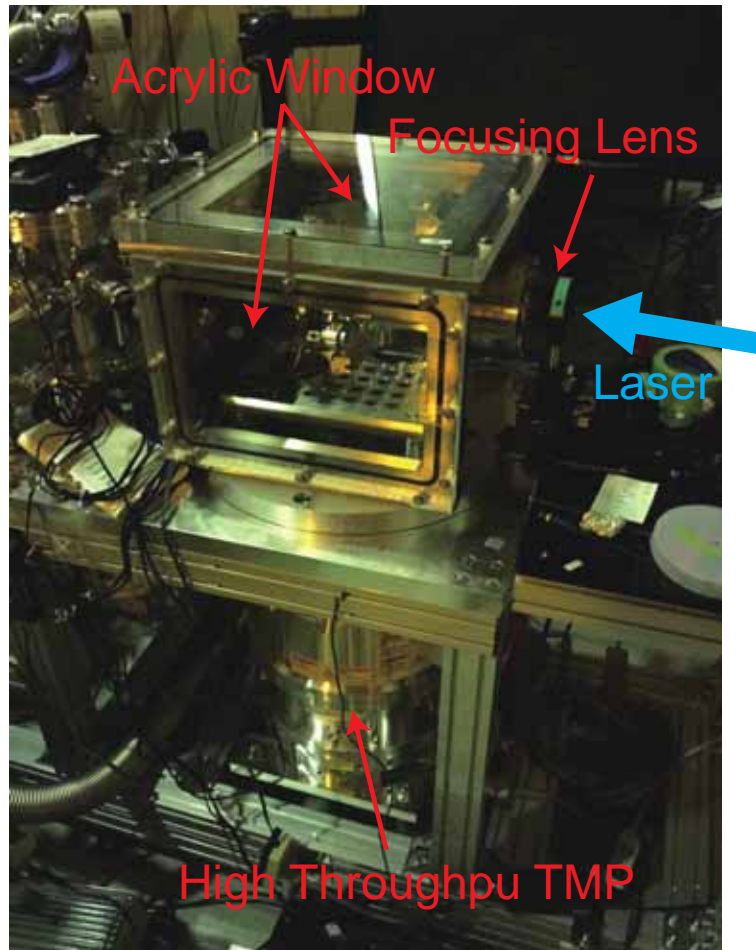


- 内殻時間分解PES(最低でも60eVが必要、できれば120eV)
→ **元素選択的**な電子状態のダイナミクス
- フェムト秒領域の軟X線時間分解ARPES
→ **Brillouin zone全域**の電子状態ダイナミクス
- 大強度軟X線領域での**新しい多光子光電子現象**の探索

高調波レーザー時間分解ビームラインと 時間分解光電子分光装置(本プログラム)

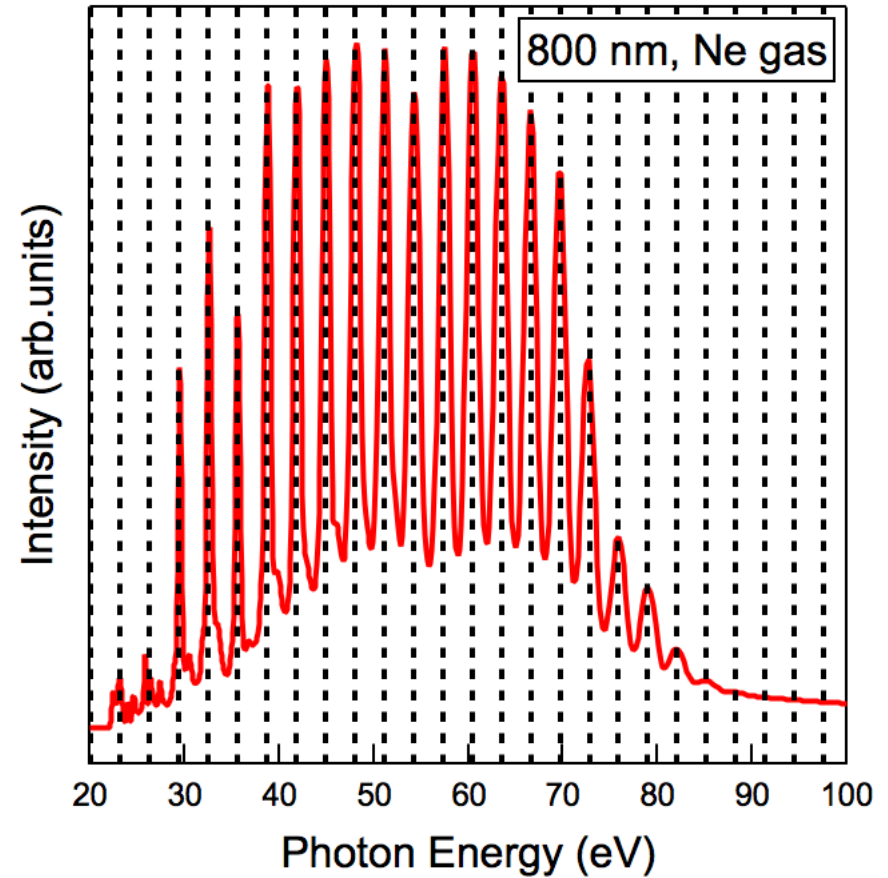
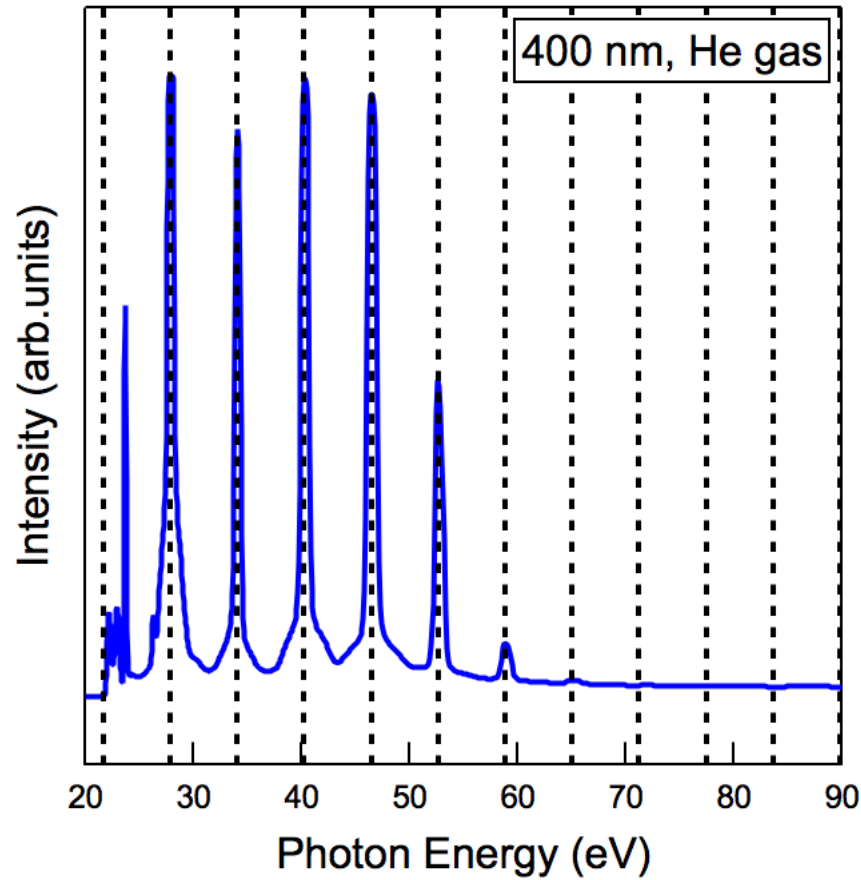


ガスセルと高調波技術の開発



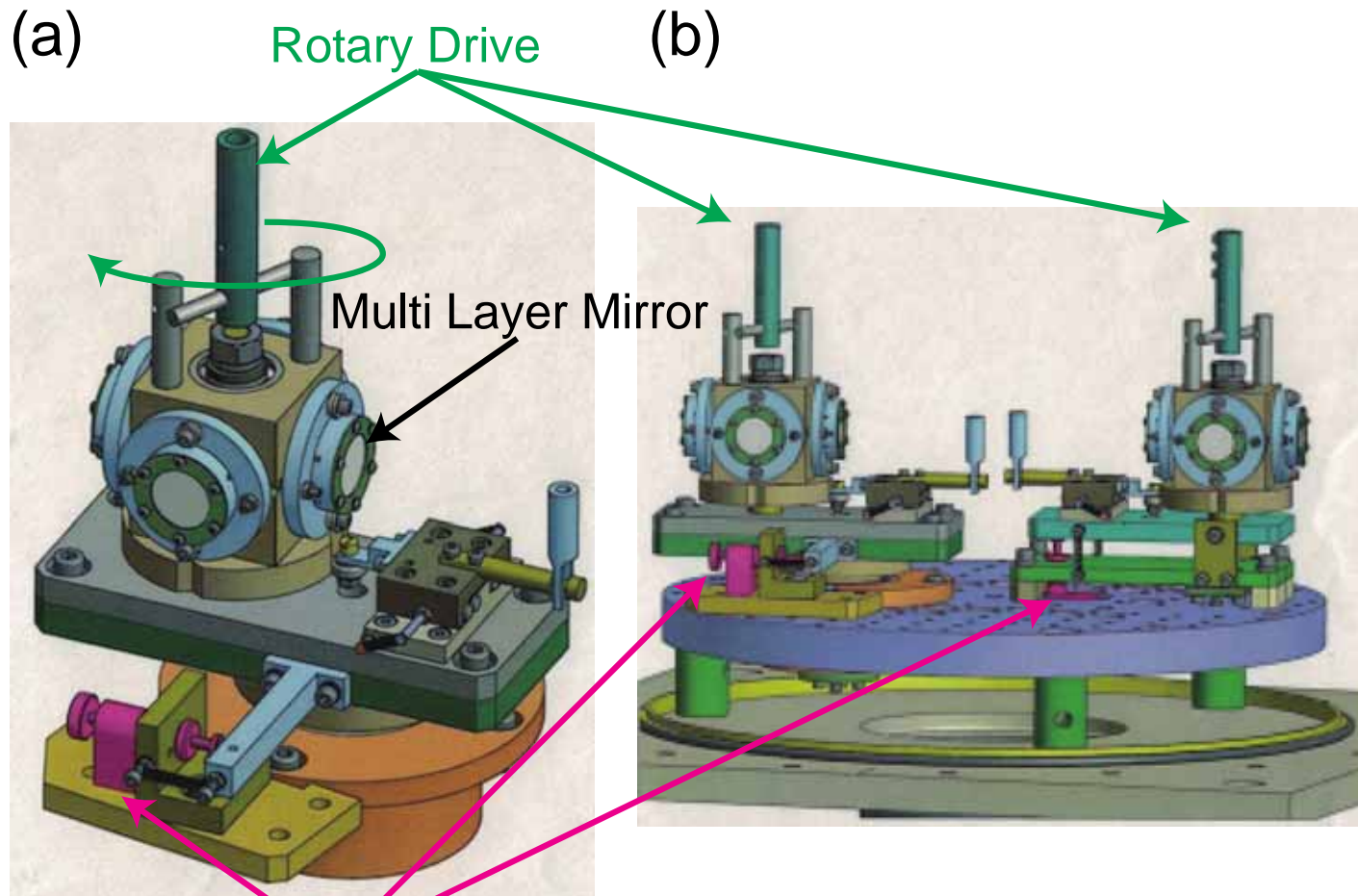
- Acrylic window improve
- High throughput TMP (Osaka Shinkuu 2200 L/s)
- Change to static gas cell

高調波スペクトル



- Cut-Off Energy: 65 eV (@ 400 nm) and 85 eV (@ 800 nm)
- Multi Layer Mirror: 28 and 40 eV (@ 400 nm) and 70 and 82 eV (800 nm)
- Al Filter and Zr Filter (for 82 eV)

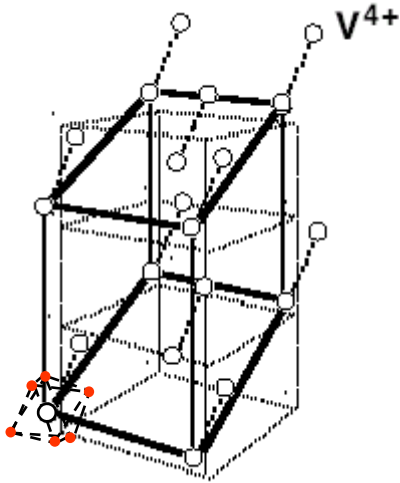
高調波の分光機構；多層膜鏡切り替え機構



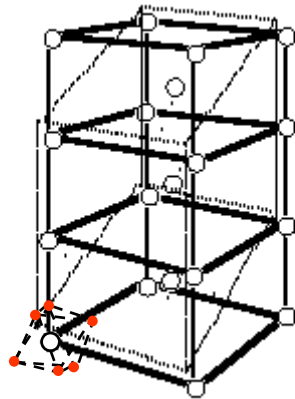
- 4 set of multi layer mirror
- Optical path alignment by Picomotor
- Change of multi layer mirror without vacuum breaking

Insulator-Metal Transition (MIT) in VO₂

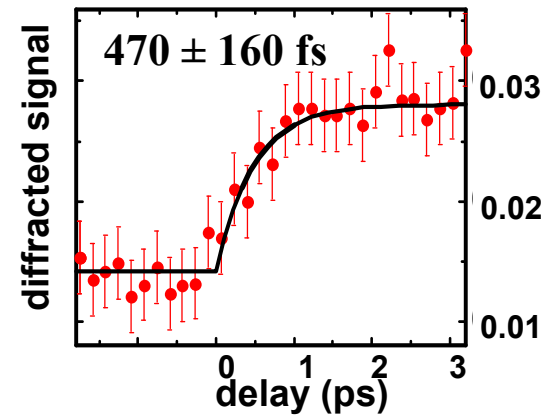
T < 340 K
Monoclinic



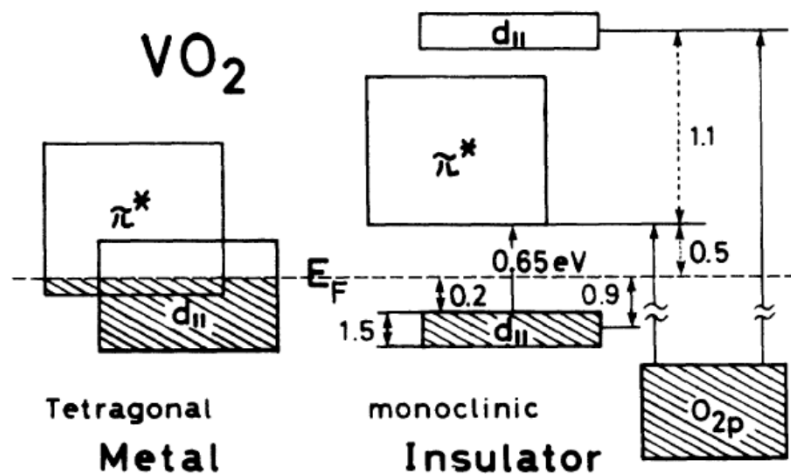
T > 340 K
Rutile



Femtosecond X-ray Diffraction

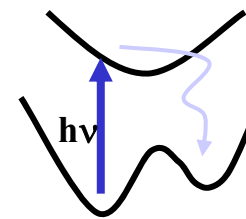


Cavalleri et al. *PRL* 87, 237 (2001)



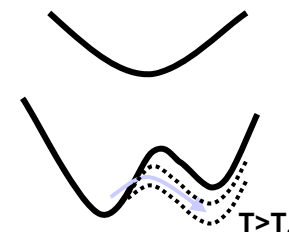
Shin et al. *PRB* 41, 4993 (1990)

photo-induced



Monoclinic Rutile?

thermal activation



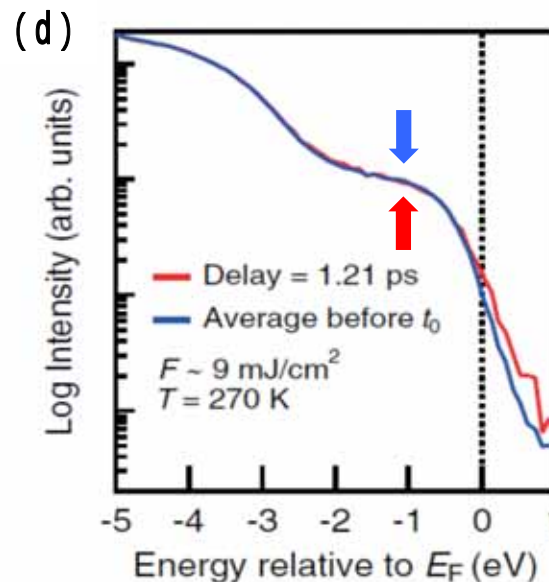
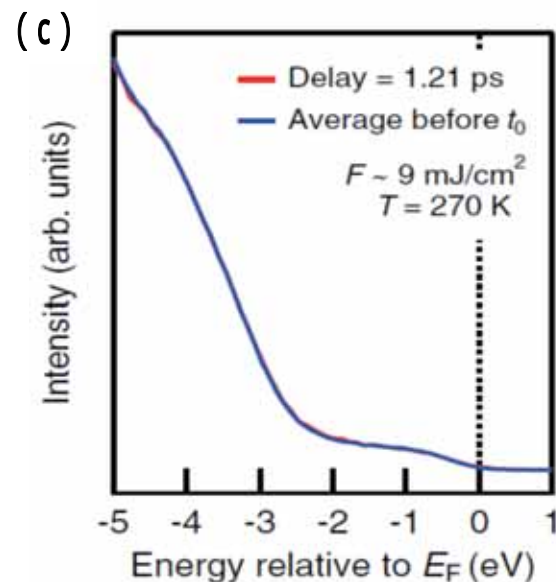
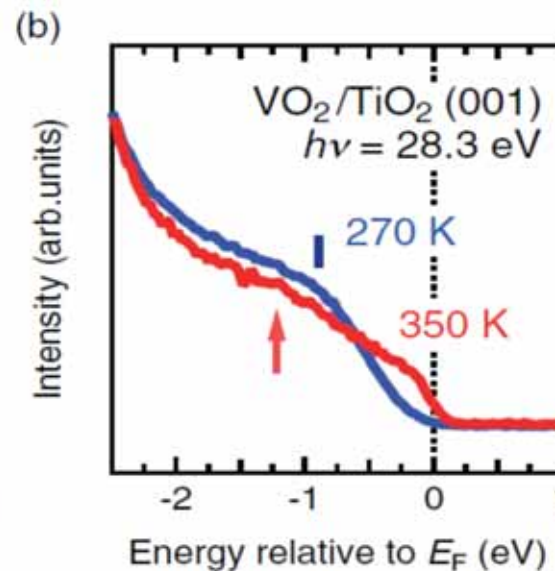
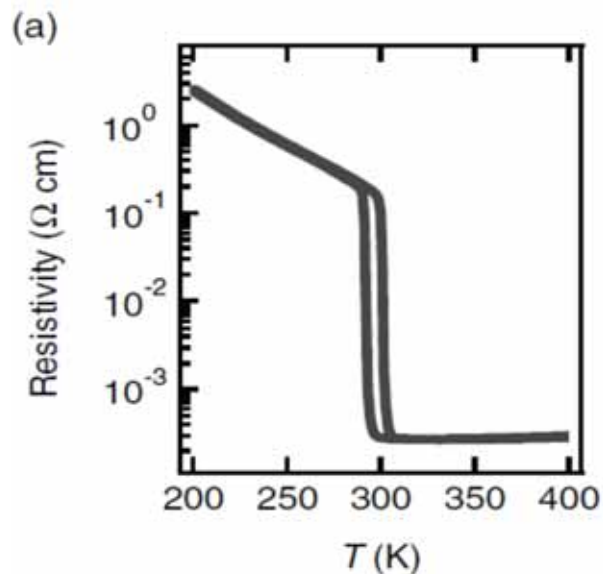
Monoclinic Rutile

Temperature Dependence of PES Spectra

Yoshida et al., PRB(2014)

High resolution PES

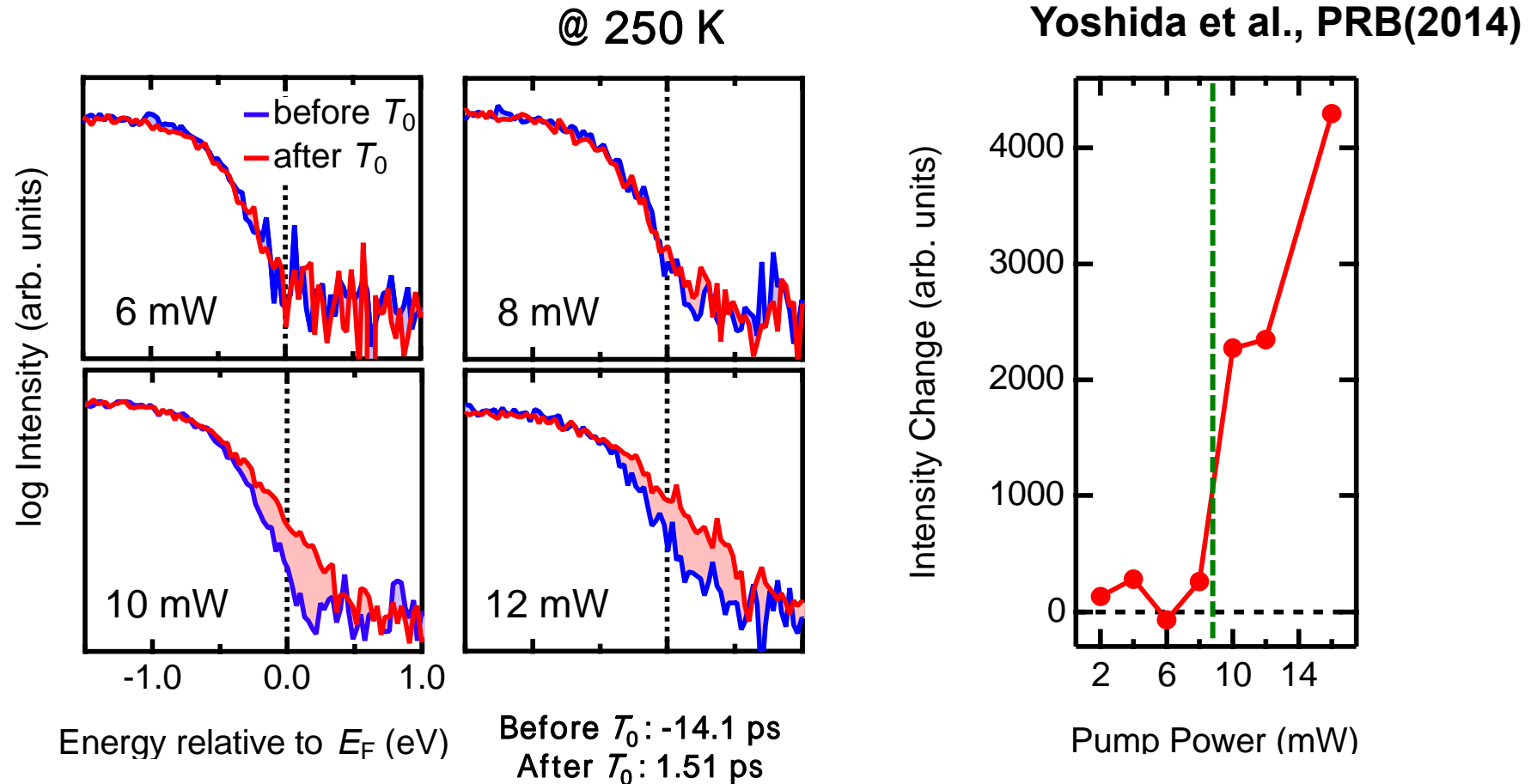
- Temperature dependence
- Clear Fermi-edge
 - 1eV peak shifts to 1.3 eV peak in high Temperature phase



Time-resolved PES

- Low temperature spectrum is changed by the pump light, but is different from high temperature phase

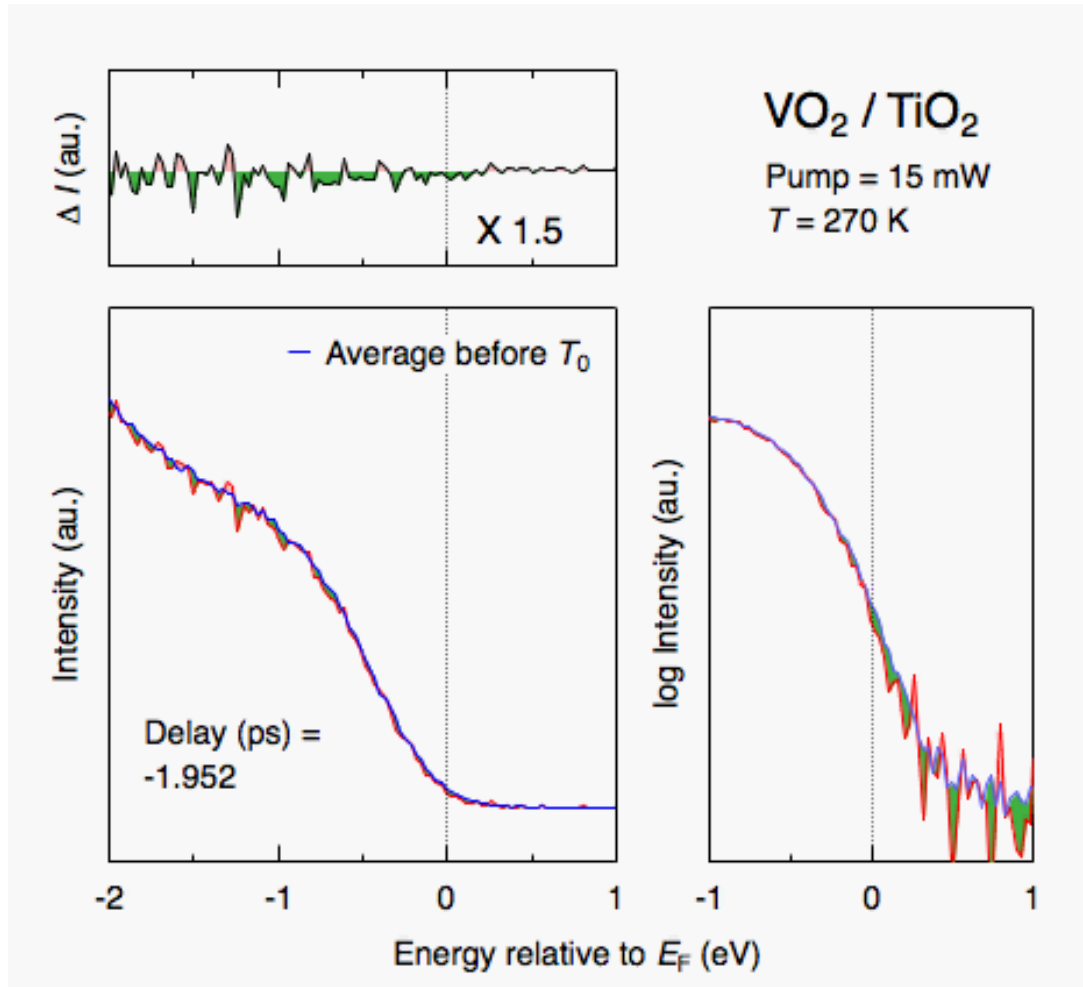
Pump-Power Dependence



Threshold (~ 9 mW) Behavior
Photo-induced phase transition

Transient Changes of PES Spectra

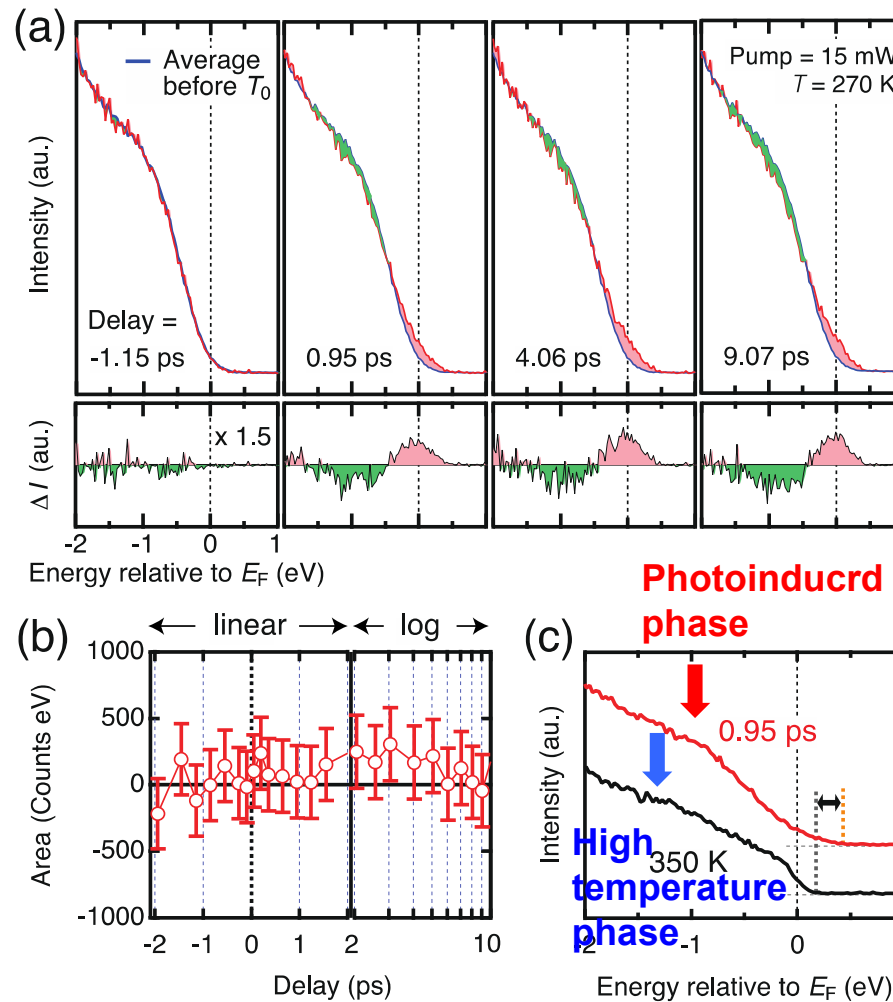
Yoshida et al., PRB(2014)



- Intensity appears at E_F
- Suppression around -1 eV
- Band structure does not change much except Fermi level. Photoinduced phase is different from high temperature phase

Transient Changes of PES Spectra

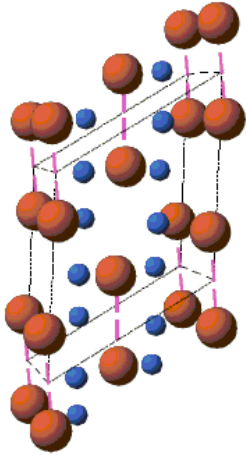
Yoshida et al., PRB(2014)



- Intensity appears at E_F
- Suppression around -1 eV
- Band structure does not change much except Fermi level. Photoinduced phase is different from high temperature phase

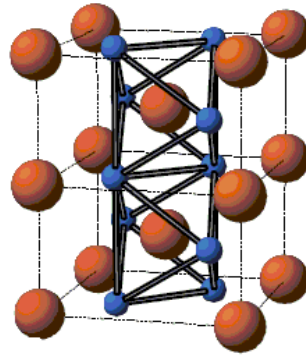
Temporal Evolution of E_F Weight

monoclinic / insulator



thermal

rutile / metal



optical

Temperature induced Phase transition

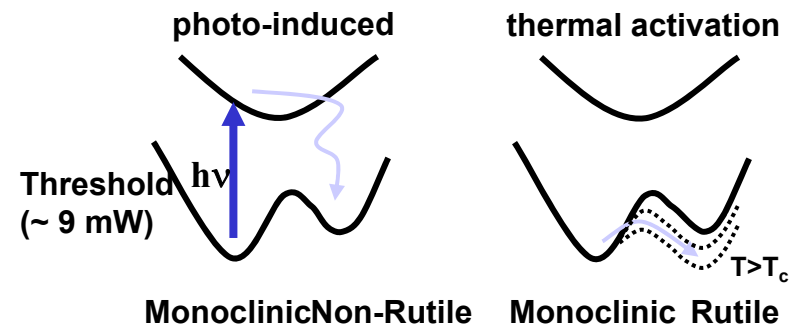
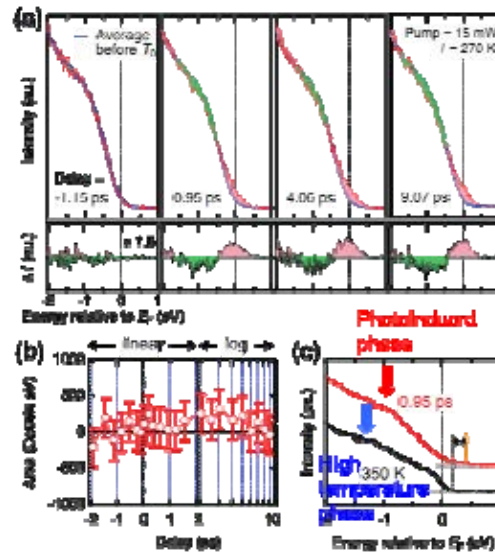
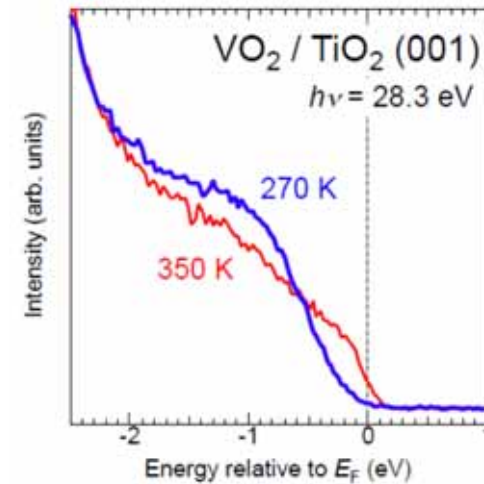
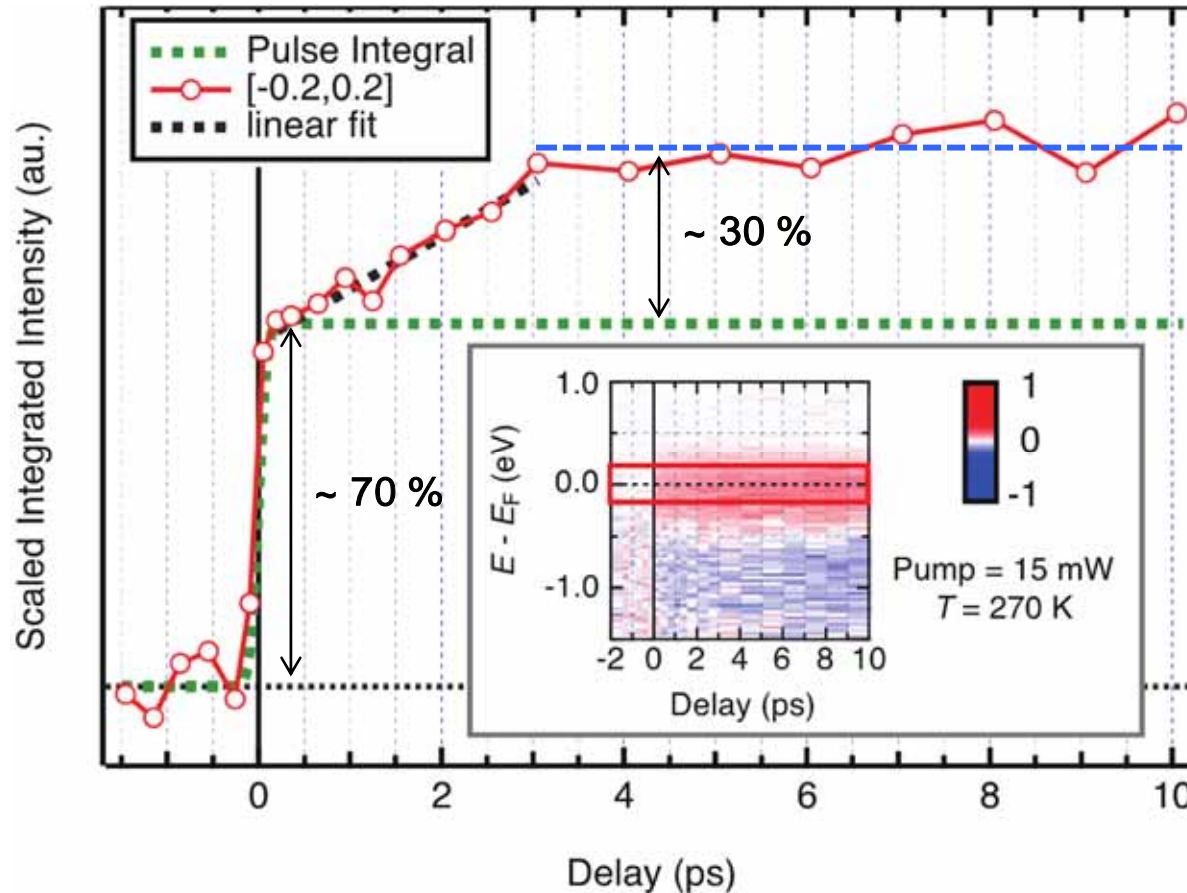


Photo-induced phase transition

Temporal Evolution of E_F Weight

Yoshida et al., PRB(2014)

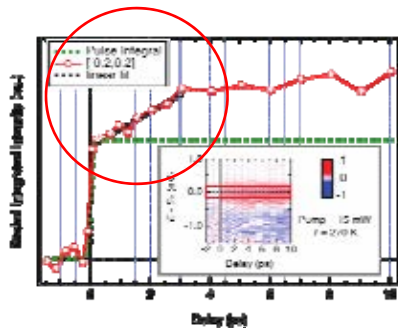


- fast jump (time resolution-limited)
 - 0 ~ 3 ps: **linear increase**
 - Very long relaxation time
- **Not typical of conventional Mott insulator transition**

Three distinct timescale

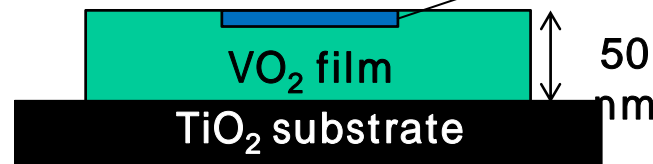
Linear Increase of Intensity

Growth of Metallic Domain Facilitated by Phonon



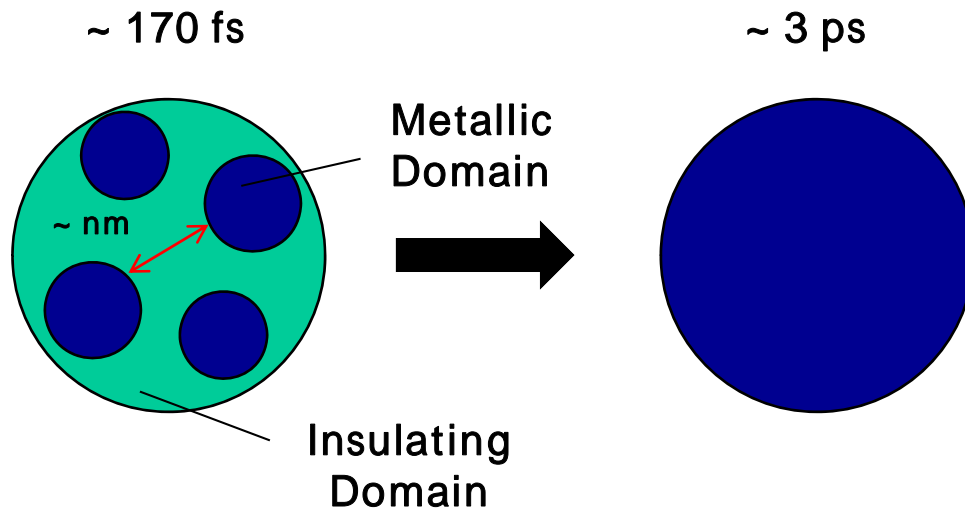
Timescale of 3 ps
 ~ Suggestive of **in-plane dynamics**

Probing depth
 ~ 1 nm @ 28.3 eV

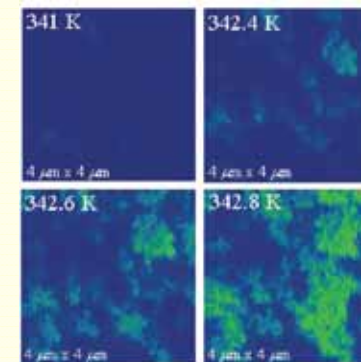


speed of sound in VO₂
 6.9 nm / ps

D.-W. Oh *et al.*, Appl. Phys. Lett. 96, 151906 (2010).



Domain Growth (Thermal MIT)



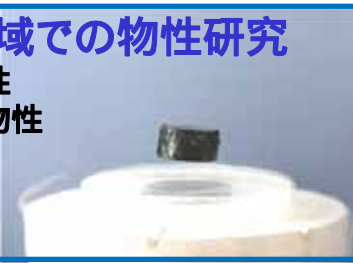
M. M. Qazilbash *et al.*,
 Science 318, 1750 (2007). 34

軟X線レーザーの開発による物性研究

LASORセンターにおける物性研究を目指した極紫外・軟X線光科学の推進

極紫外・軟X線領域での物性研究

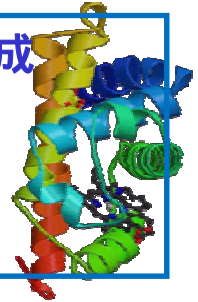
- 超伝導体の電子物性
- 強相関物質の電子物性
- 半導体の電子物性
- ……



様々な物性研究の発展

新しい電子物性研究の創成

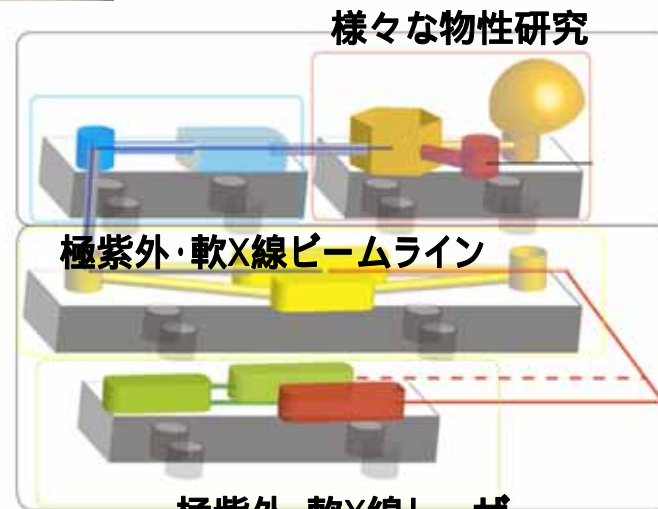
- 遷移金属の表面触媒反応
- 生体物質内の酵素反応
- 水の窓を利用した生体物質のイメージング
- ……



国際コミュニティ



- 国際的な軟X線レーザーコミュニティに貢献
- 物性研は、物性研究分野に貢献



極紫外・軟X線レーザー

全国共同利用

- 表面研究
- 触媒研究
- ナノ研究
- 磁性研究
- 超伝導研究
- 新物質開発
- 理論



レーザー技術の開発

- 大強度
- 超高分解能
- フェムト秒、アト秒
- コヒーレンス
- 使い易さ
- ……

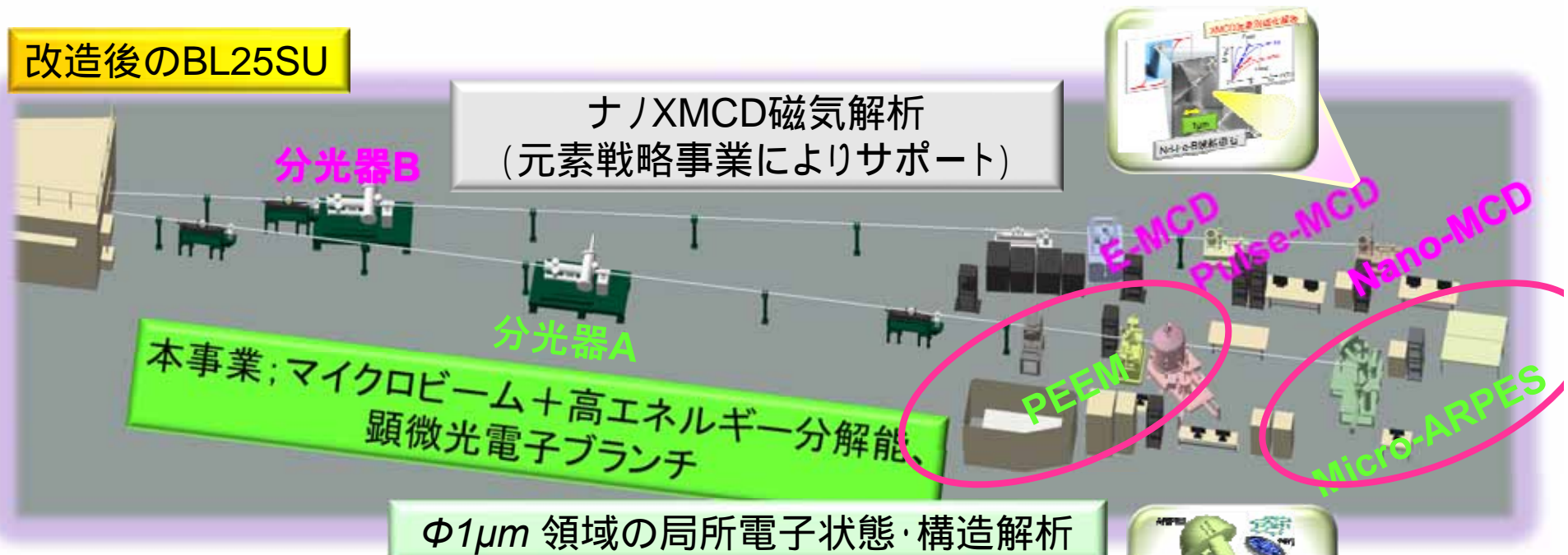
物性研究用の極紫外・軟X線光源とビームラインの開発

ビームライン技術の開発

- 高調波のハンドリング
- 超高輝度
- 超高分解能
- 大強度
- マイクロビーム
- ……

SPring-8 BL25SU 軟X線放射光を用いた顕微光電子分光

BL25SU; 日本で最も新しいデザインの軟X線ビームライン

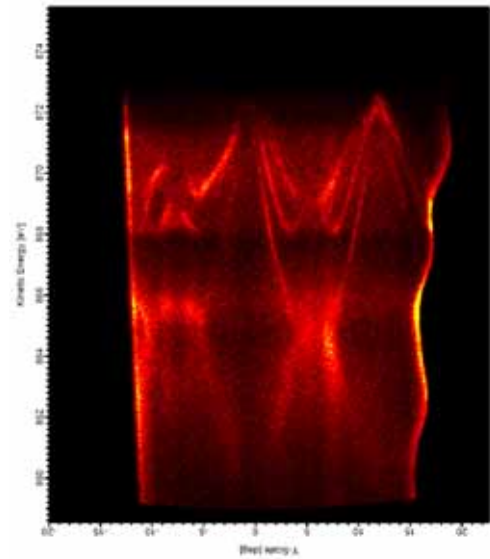
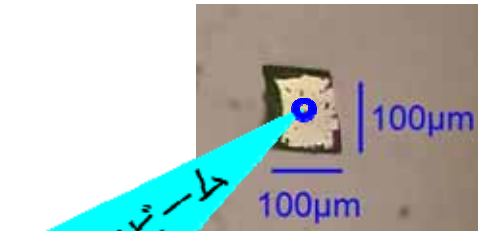
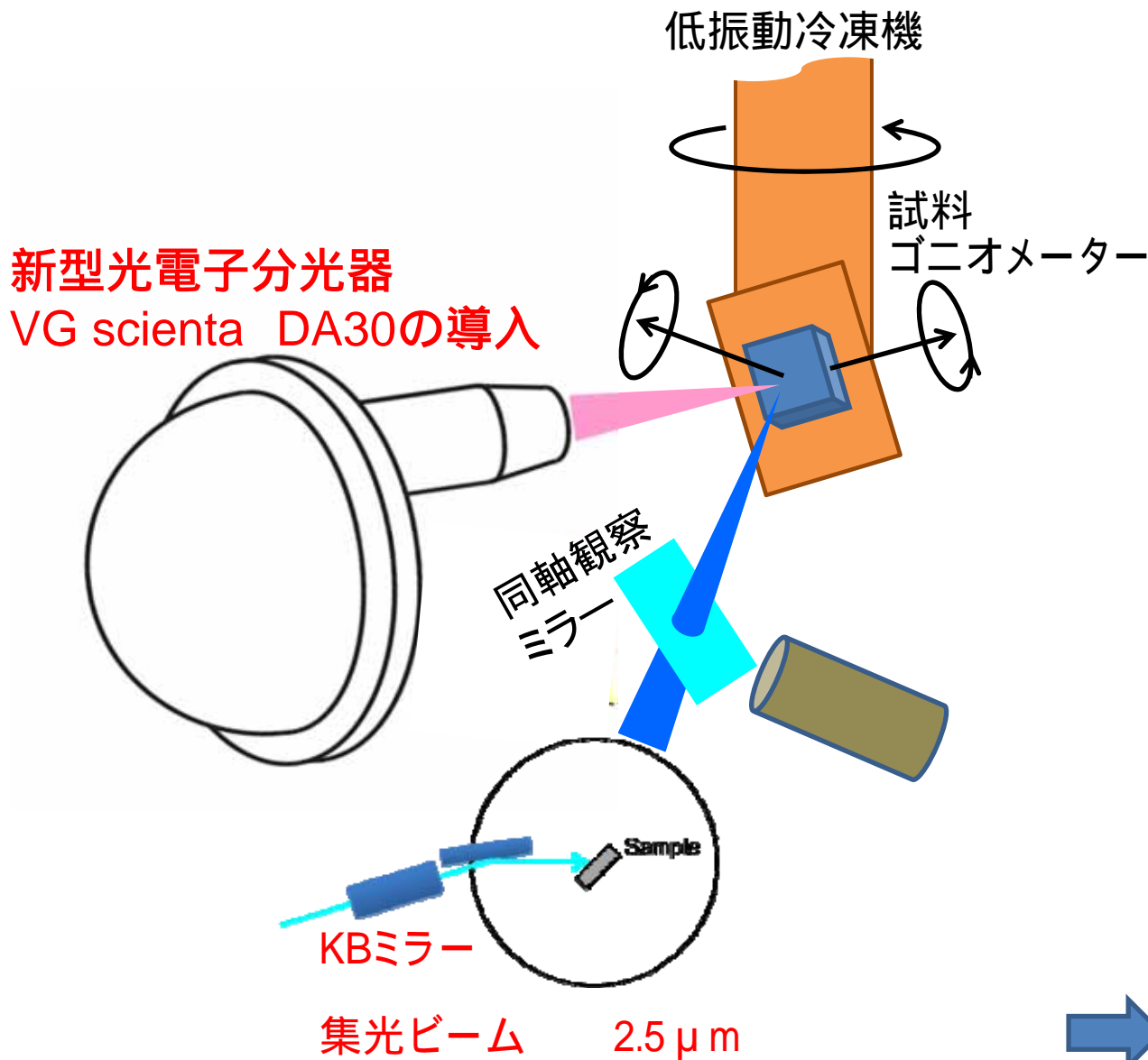


<スケジュール>

- 2013.12 利用停止
- 2014. 1 ~ 2014.3 改造
- 2014. 4 ~ 5 コミッショニング
- 2014. 11 ~ 利用開始

ビームラインのスクラップアンドビルド計画進行中

SPring-8 BL25SU 軟X線放射光を用いた顕微光電子分光



Siのバンド分散
(先週、first dataに成功！)
清浄表面の制約を解消



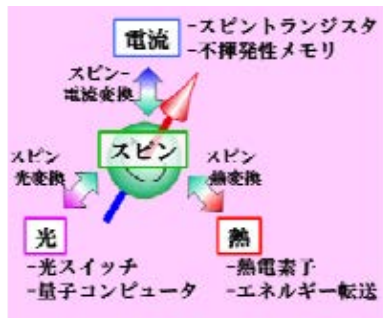
実用的な材料開発に寄与

ご清聴ありがとうございました

太陽電池の効率化



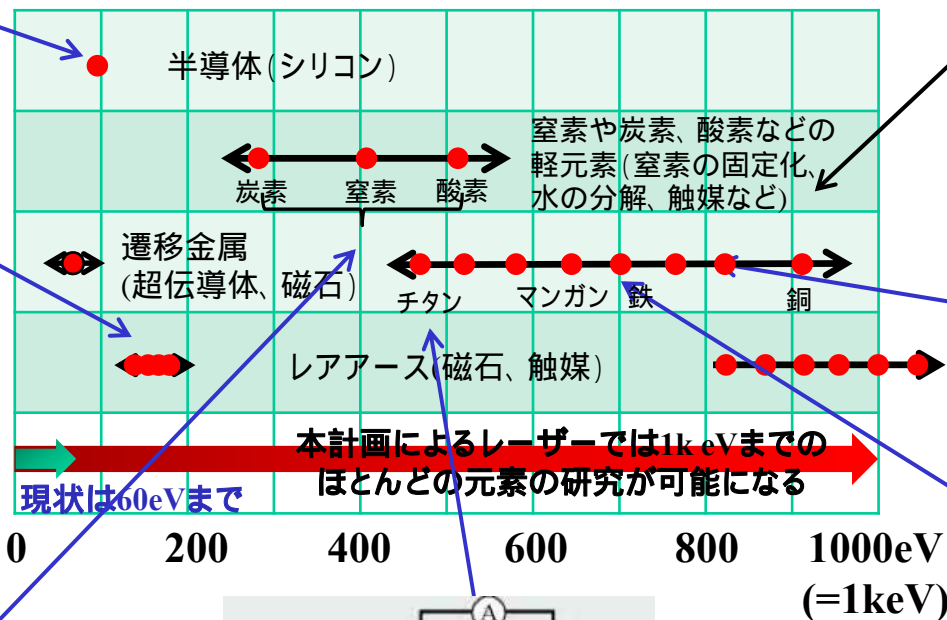
スピントロニクス



CO₂、N₂の分解、解離



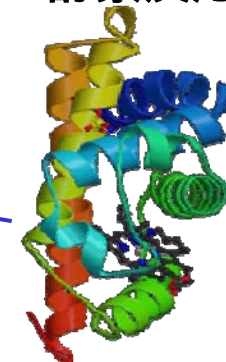
軟X線プラットフォームが 貢献する物質科学



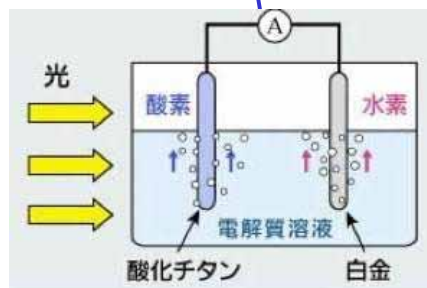
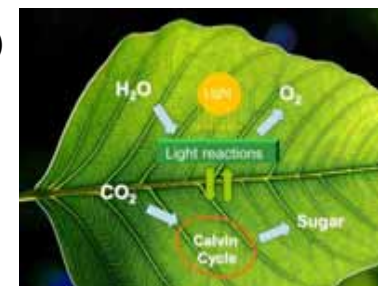
高温超伝導体



タンパク質の
酵素反応



人工光合成



水の光分解