

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 8 月 27 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560659

研究課題名（和文） 多元極限下における微小領域分光の高度化と強相関電子物性の解明

研究課題名（英文） Upgrading of Microspectroscopic Technique under Extreme Conditions and Understanding of Strongly Correlated Electron Systems

研究代表者

入澤 明典（IRIZAWA AKINORI）

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：90362756

研究成果の概要（和文）：固体強相関電子物性で重要となるフェルミ準位近傍の低エネルギー領域における多元極限下での分光学的物性解明の手法を研究し、開拓した。赤外-テラヘルツ領域のシンクロトロン放射(SR)光や、自由電子レーザー(FEL)光を用いた光学実験手法を確立し、放射光の高輝度性を利用した波長 100 ミクロン程度の光による微小試料の低温・高圧・強磁場下といった特殊環境下での顕微分光法を開拓した。FEL 光の偏光制御により赤外-テラヘルツ領域での物質のカイラリティや磁気円二色性に関する実験を可能とした。赤外-テラヘルツ領域でのパルススキャン高速分光イメージングを実現した。

研究成果の概要（英文）：The spectroscopy under extreme conditions has been studied and established at the energy from Fermi level to 10 meV above which is important energy region for understanding electronic states of strongly correlated electron systems. Optical studies in an infrared-terahertz region using a synchrotron radiation (SR) or a free electron laser (FEL) that have an advantage of brightness at around the wavelength of 100 μm have been investigated for evolving spectro-microscopy for small samples under low temperature, high pressure, and strong magnetic field. The success of polarization control of FEL enabled experiments in an infrared-terahertz region about vibrational circular dichroism (VCD) in optically active compounds or magnetically circular dichroism (MCD) in magnetic compounds. High speed spectroscopic imaging experiments were realized as a pulse-by-pulse raster scan method.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：固体物理

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：光物性、多元極限、赤外、テラヘルツ、顕微分光、自由電子レーザー

1. 研究開始当初の背景

(1) 研究対象物質としての高温超伝導、金属絶縁体転移、重い電子状態などに代表される強相関電子物質は、電気伝導を担う電子間の

磁氣的、電氣的相関が強いことが特徴であり、固体の電子物性分野では常にもっとも注目される研究テーマの一つであった。

(2) 固体電子物理では、この様に新物質探索によるブレイクスルーとともに低温、高圧、強磁場などの物性コントロールによる新奇物性の探索が行われており、本研究課題で用いる赤外-THz 光による光学応答は電子物性探索、解明に非常に有効な手段であった。光電子分光のようにフェルミ準位近傍の電子状態を直接見ることができ、かつ、電気抵抗、NMR、X線回折のように低温、高圧、強磁場などの極限状態が複合的に絡んだ多元極限条件下での実験が可能である数少ない分光手法の一つであった。また、THz 光は一般に 30 μm から 3mm の波長を持ち、光波(遠赤外)と電波(ミリ波)の境界に位置するため両方の特性を持つことで注目され続けている。

(3) 多元極限下分光実験で必要不可欠な高輝度光源の代表として放射光があげられる。放射光施設の歴史として、第1世代は素粒子実験用の電子シンクロトロン加速器でのエネルギー損失として観測された放射光を利用したものであり、第2世代でベンディングマグネットを用いた放射光施設が専用設計され、第3世代でアンジュレータによる高輝度放射光が実現された。FELは第4世代の新しい光源であり、電子ビームと電子ビームがアンジュレータを通過した際の放射光との共鳴的相互作用により高輝度、高効率、波長可変なレーザー光を放射させるものである。

2. 研究の目的

(1) 低温、高圧、強磁場などの多元極限下における赤外顕微鏡を用いた微小領域分光の高度化と、それを用いて金属絶縁体転移や超伝導転移などを示す強相関電子化合物の電子物性を解明することを目的とした。具体的には Diamond Anvil Cell (DAC) による低温高圧測定および超伝導マグネットによる低温強磁場測定を遠赤外-テラヘルツ領域で確立することを目指した。

(2) 遠赤外-テラヘルツ領域での高輝度光源として、ストレージリングタイプの放射光施設 SPring-8、UVSOR に加え、大阪大学産業科学研究所附属量子ビーム科学研究施設の Lバンドライナックを用いた自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) による光反射測定の低エネルギー領域の拡張を試み、これを軸とした、強相関電子物質の物性コントロールと電子状態の直接観測、解明を目的とした。

3. 研究の方法

(1) THz 領域の実験は、大阪大学産業科学研究所附属量子ビーム科学研究施設の THz-FEL を中心に行い、UVSOR BL6B、分子科学研究所実験室装置を相補的に用いて行った。

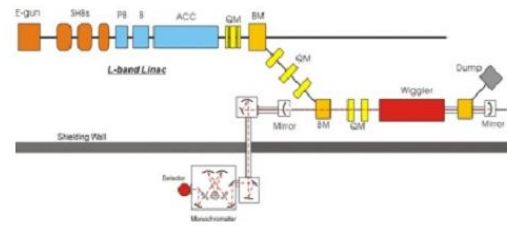


図1 阪大テラヘルツ自由電子レーザーの概略図

(2) THz 領域以外の実験は、低温高圧赤外分光は主に UVSOR BL6B, 7B を、低温強磁場赤外分光は分子科学研究所実験室の顕微分光装置を用いて行った。

(3) 研究は従来の遠赤外-テラヘルツ領域での顕微分光実験の限界であった $\sim 10\text{meV}$ におよぶ光源の利用方法の開拓と、このエネルギー領域で顕著な変化を示す強相関電子物質を中心とした研究対象の探索と評価を並行して行った。THz 領域以外の実験は、低温高圧赤外分光は主に UVSOR BL6B, 7B を、低温強磁場赤外分光は分子科学研究所実験室の顕微分光装置を用いて行った。

4. 研究成果

(1) THz 領域の実験は、本研究課題の始めた 2010 年度途中から大阪大学産業科学研究所の所属となったことにともない、まず基本となる分光測定環境を整えることが最重要課題であった。図2に示すとおり自由電子レーザー (FEL) はパルス光源であり、本質的なレーザー発振の不安定性にともない、得られる光源特性として強度、波長特性に時間構造が生じる。このため、レーザー発振の安定化については研究分担者の加藤龍好氏を中心としたグループで高度化に取り組むと同時に、分光学に必要な不可欠な時間安定性を得るべく、光学系、測定手段を新たに開発することとなった。まず、根本的に皆無にすることは不可能な時間に伴う強度の変化は図3に示すような光学配置によって常に強度モニターを行うことによって試料測定に用いる光源を規格化する手法を用いた。これには 5Hz で繰り返されるマクロパルス光に対して常に同時計測、演算するための検出系及び計測プログラムの構築が必要であった。これらにより時間変化する強度に対して常に基準となる強度比を導出することが可能となった。

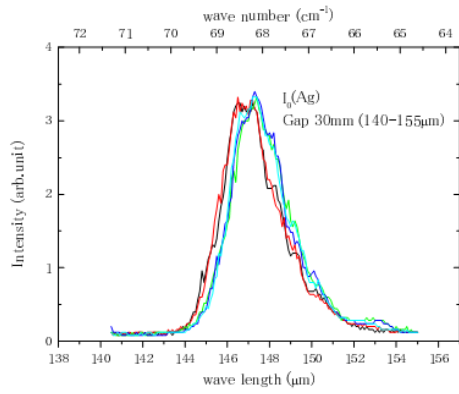


図2 波長分布の時間変化

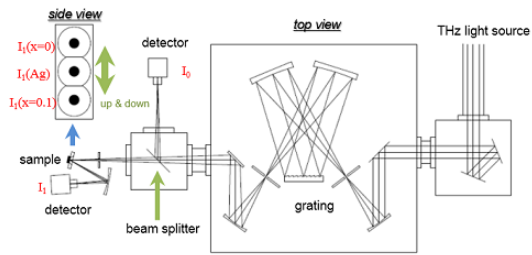


図3 参照光による強度モニター

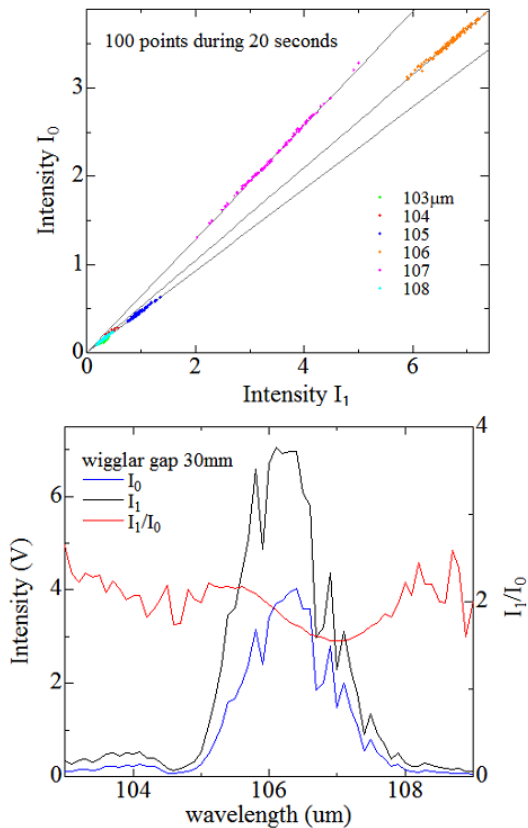


図4 FEL 強度変化に対する強度比の安定性

と波長特性の強度比に対する影響

これと並行して、分光測定する際に必要となる波長分散のコントロール系は、FEL 共振器

部に設置されているウイグラーのギャップのコントロール及び必要に応じてさらに波長分解するための分光回折格子のコントロールが伴うため、計測系と連動した機器コントロールとデータ取得を GPIB 及びイーサネットワークを用いて構築した。これらの結果、図4に示すようにパルスごとの強度が顕著に変動した場合でも参照光で規格化した強度比は安定しており、波長掃引を行った際にも規格化によるスペクトルの測定が可能であるという結果が得られた。

これらの基本的な分光測定環境構築と共に遠赤外-テラヘルツ領域での強相関電子化合物特有の異方性や磁気励起に関する情報が得られることを目的とし、FEL の高い偏光特性を利用して直線偏光-円偏光のコントロールを試みた。原理として直交する直線偏光の位相を調整した上での合成により行い、図5

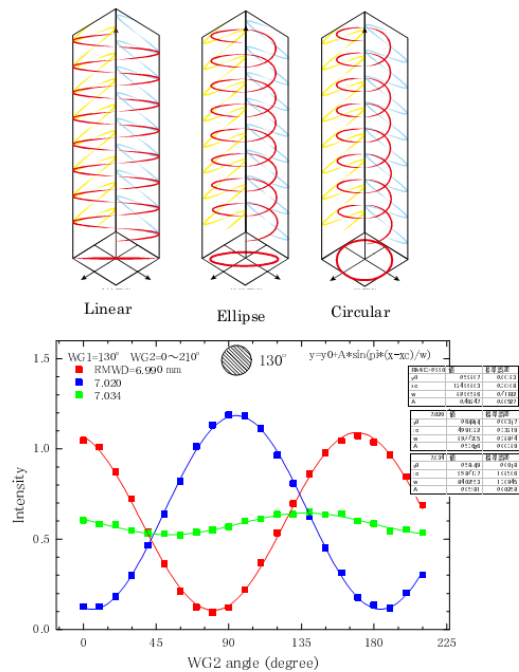


図5 直線偏光・円偏光の制御原理及び実験結果

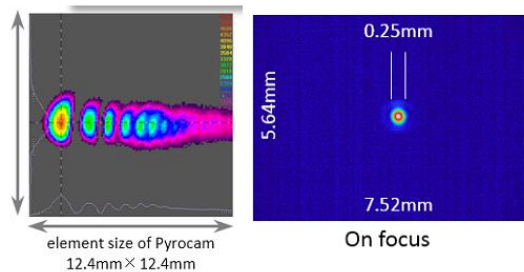


図6 ビームライン光学系改良前(左)と改良後(右)の実験ステーションフォーカス位置でのビームプロファイル

に示すように結果として特定波長での制御に成功した。これは無機固体のみならず有機物質や光学活性な高分子化合物にも利用用途が考えられ、高輝度性の向上と共にプローブ光のみならずポンプ光としての可能性も出てきた。今後の研究発展への足がかりとしたい。また、レーザー光特有の高い干渉性により、計測光学系は高度な調整が必要であったため、FEL ビームライン全体の光学系のアップグレードにも着手し、その結果エンドステーションにおける光源の空間分布は大きく改善され、図6で示すとおり、高圧下での測定に必要となる顕微分光にも十分対応できるビームプロファイルを得ることに成功した。これに付随した実験としては図7に示すとおりFEL特有の単波長性と高輝度性を利用したイメージングにも成功しており、従来のラスタースキャン法ではあるが、1ピクセル1パルスでのデータ取得が可能となり、従来のテラヘルツイメージングを大幅に高速化できるという結果になった。これらの結果は査読論文の形で発表する予定である。

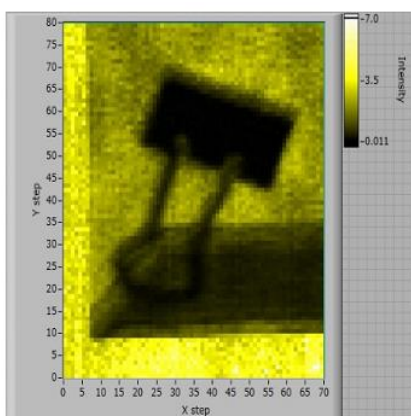


図7 封筒の中のクリップの透過イメージ(波長80 μm)

(2) 強相関電子化合物における多元極限下での遠赤外-テラヘルツ領域分光測定としては物質探索と相補データ取得のため分子科学研究所の放射光施設 UVSOR と実験室の顕微分光装置を用いて行った。低温強磁場下での研究成果としては、新規合成されたカルシウムフェライト型化合物 NaCr_2O_4 の巨大磁気抵抗効果が上げられる。本物質は定比化合物であり、従来の固溶系で見られる巨大磁気抵抗とは全く異なる機構が予想され、温度、磁場のパラメータを変化させた際の電子状態の直接観測が必要である。また、本物質は高圧合成によって少量得られ、単結晶育成が困難であることから顕微分光の測定対象でもある。図8に結果の一部を示すが、温度低下と共に磁気転移温度を境に明確なギャップ構

造の出現が見て取れ、磁場下でのギャップ構造の特異な変化が観測された。これらの結果は査読付き論文に発表予定である。

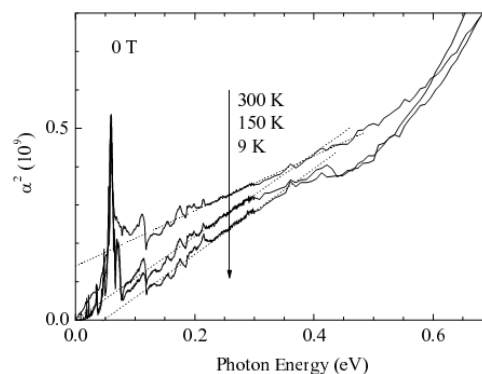


図8 温度変化に伴う NaCr_2O_4 の吸収係数の変化

(3) 以上、遠赤外-テラヘルツ領域への多元環境下での光学測定の発展が十分実現可能な段階にまで到達できた。3年の期間中、テラヘルツFELの分光実験への利用に関して大きな発展があった。個々の強相関物質に対しての具体的な実験は十分に行うことが出来なかった点が今後の課題であるが、無機固体のみならず、有機、生体物質に対しての研究展開も可能となり、広い意味での遠赤外-テラヘルツ領域の物性実験に貢献できたと確信する。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計5件)

- ① "Feed-forward control of the amplitude and the phase of a high-power RF pulse based on the overdrive technique", Keigo Kawase, Yutaka Morio, Yukiyoshi Kon, Masaki Fujimoto, Sho Hirata, Jie Shen, Ryukou Kato, Akinori Irizawa, Goro Isoyama, and Shigeru Kashiwagi, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A 679, 44 (2012). DOI: 10.1016/j.nima.2012.03.004 査読有
- ② "Direct observation of a pressure-induced metal-insulator transition in LiV_2O_4 by optical studies", A. Irizawa, S. Suga, G.

Isoyama, K. Shimai, K. Sato, K. Iizuka, T. Nanba, A. Higashiya, S. Niitaka, and H. Takagi, Phys. Rev. B 84 (2011) 235116.

- DOI:10.1103/PhysRevB.84.235116 査読有
- ③ "Optical study of charge instability in $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ in comparison with $\text{CeOs}_2\text{Al}_{10}$ and $\text{CeFe}_2\text{Al}_{10}$ ", S. Kimura, T. Iizuka, H. Miyazaki, T. Hajiri, M. Matsunami, T. Mori, A. Irizawa, Y. Muro, J. Kajino, and T. Takabatake, Phys. Rev. B 84 (2011) 165125. DOI:10.1103/PhysRevB.84.165125 査読有
- ④ "Electronic-Structure-Driven Magnetic Ordering in a Kondo Semiconductor $\text{CeOs}_2\text{Al}_{10}$ " Shin-ichi Kimura, Takuya Iizuka, Hidetoshi Miyazaki, Akinori Irizawa, Yuji Muro, and Toshiro Takabatake, Phys. Rev. Lett. 106 (2011) 056404. DOI:10.1103/PhysRevLett.106.056404 査読有
- ⑤ "Optical study on strongly correlated electron system LiV_2O_4 ", A. Irizawa, K. Shimai, T. Nanba, S. Niitaka, and H. Takagi, Proc. Int. Conf. Magnetism (ICM09), Journal of Phys.: Conf. Ser. 200 (2010) 012068-1-4. 査読有

[学会発表] (計 13 件)

- ① Terahertz Spectroscopy and Imaging by means of ISIR THz-FEL at Osaka University, A. Irizawa, R. Kato, K. Kawase, M. Fujimoto, F. Kamitsukasa, H. Ohsumi, M. Yaguchi, S. Suemine, S. Suga, G. Isoyama, The 16th SANKEN International Symposium 2013 / The 11th SANKEN Nanotechnology Symposium 2013, Osaka University, Ibaraki, Osaka, Japan, Jan. 22-23, 2013.
- ② A high-power semiconductor switch for the L-band linac, *F. Kamitsukasa, A. Tokuchi, S. Suemine, K. Furukawa, K. Kubo, R. Kato, K. Kawase, A. Irizawa, M. Fujimoto, H. Ohsumi, M. Yaguchi, G. Isoyama, The 16th SANKEN International Symposium 2013 / The 11th SANKEN

Nanotechnology Symposium 2013, Osaka University, Ibaraki, Osaka, Japan, Jan. 22-23, 2013.

- ③ Spectral Behavior of High Power Terahertz FEL, R. Kato, H. Ohsumi, A. Irizawa, K. Kawase, M. Fujimoto, F. Kamitsukasa, M. Yaguchi, S. Suemine, G. Isoyama, The 16th SANKEN International Symposium 2013 / The 11th SANKEN Nanotechnology Symposium 2013, Osaka University, Ibaraki, Osaka, Japan, Jan. 22-23, 2013.
- ④ Novel Method for Evaluation of the FEL Gain, *Masaki Fujimoto, Ryukou Kato, Keigo Kawase, Akinori Irizawa, Fumiyoshi Kamitsukasa, Hiroki Ohsumi, Masaki Yaguchi, Goro Isoyama, The 16th SANKEN International Symposium 2013 / The 11th SANKEN Nanotechnology Symposium 2013, Osaka University, Ibaraki, Osaka, Japan, Jan. 22-23, 2013.
- ⑤ Development of 27 MHz Micropulse Operation in the L-band Linac at ISIR, Osaka University, *K. Kawase, R. Kato, A. Irizawa, M. Fujimoto, F. Kamitsukasa, H. Ohsumi, M. Yaguchi, S. Suemine, G. Isoyama, The 16th SANKEN International Symposium 2013 / The 11th SANKEN Nanotechnology Symposium 2013, Osaka University, Ibaraki, Osaka, Japan, Jan. 22-23, 2013.
- ⑥ Terahertz Free Electron Laser at Osaka University, Akinori Irizawa, Keigo Kawase, Ryukou Kato, Masaki Fujimoto, Fumiyoshi Kamitsukasa, Hiroki Ohsumi, Masaki Yaguchi, Shigemasa Suga, Goro Isoyama, International Symposium on

Frontiers in THz Technology (FTT2012),
Nara, Japan, November 26-30, 2012.

- ⑦ “カルシウムフェライト型化合物 NaCr_2O_4 の光学応答II” 日本物理学会 (2012. 9. 21 横浜国立大学) 入澤明典, 菅滋正, 磯山悟朗, 飯塚拓也, 木村真一, 櫻井裕也, 室町英治
- ⑧ “カルシウムフェライト型化合物 NaCr_2O_4 の光学応答” 日本物理学会 (2012. 3. 27 関西学院大学) 入澤明典, 磯山悟朗, 飯塚拓也, 木村真一, 櫻井裕也, 室町英治
- ⑨ “高強度FELテラヘルツ光を用いた利用実験” 日本放射光学学会 (2012. 1. 9 鳥栖文化会館) 入澤明典, 加藤龍好, 川瀬啓悟, 藤本將輝, 沈傑, 平田祥, 上司文善, 大角寛樹, 菅滋正, 磯山悟朗
- ⑩ “高強度FELテラヘルツ光を用いた利用実験の可能性” 日本物理学会 (2011. 9. 21 富山大学) 入澤明典, 加藤龍好, 川瀬啓悟, 東谷篤志, 沈傑, 平田祥, 藤本將輝, 大角寛樹, 上司文善, 菅滋正, 磯山悟朗
- ⑪ “赤外分光法による一次元系物質 $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ の電子状態の研究II”, 日本物理学会 (2010. 9. 24 大阪府立大学) 入澤明典, 磯部雅朗
- ⑫ “ $\text{Sr}_2\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x\text{O}_4$ における光学測定から見たスピン・軌道相互作用”, 日本物理学会 (2010. 9. 23 大阪府立大学) 入澤明典, 磯部雅朗, 飯塚拓也, 木村真一
- ⑬ Akinori Irizawa, M. Isobe, R. Kato, G. Isoyama, “Electronic States of One-dimensional $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ Probed by IR-THz Spectroscopy” International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2010), Rome, Italy, September 5-10, 2010

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称: 撮像システム及び撮像方法
発明者: 磯山悟朗、加藤龍好、入澤明典、川瀬啓悟、小田直樹、須藤孝行、大久保修一
権利者: 日本電気、日本アビオニクス、大阪大学
種類: 特許
番号: 特願 2013-030165
出願年月日: 平成 25 年 2 月 19 日
国内外の別: 国内

[その他]
ホームページ等
<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/as/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

入澤 明典 (IRIZAWA AKINORI)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号: 90362756

(2) 研究分担者

加藤 龍好 (KATO RYUKO)
大阪大学・産業科学研究所・准教授
研究者番号: 20273708

(3) 連携研究者

東谷 篤志 (HIGASHIYA ATSUSHI)
摂南大学・理工学部基礎理工学機構・講師
研究者番号: 70415272