

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 1 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26800166

研究課題名(和文) 高効率高分解能光電子分光のための超高繰り返し深紫外光源の開発

研究課題名(英文) Development of ultrahigh repetition rate, ultraviolet light source for efficient high-resolution photoelectron spectroscopy

研究代表者

大間知 潤子(Omachi, Junko)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・特任助教

研究者番号：70724053

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、半球型光電子分析器を用いた高分解能レーザー角度分解光電子分光の測定時間を桁違いに短縮する深紫外光源の開発である。これを達成するため、繰り返し周波数74 MHz、パルス幅10 psのモード同期チタンサファイア発振器の出力光の第四次高調波(波長209 nm)をファブリーペロー(FP)共振器に入射し、繰り返し周波数を15倍の1.1 GHzまで上げることに成功した。本光源を用いて金の多結晶の光電子分光測定を行い、分解能を維持しながら測定時間を二桁短縮できた。更に、ピコ秒モード同期レーザーの縦モード安定化の動的制御により、高フィネスFP共振器を用いた深紫外パルス列の強度安定化を実現した。

研究成果の概要(英文)：Our aim is to develop the ultraviolet light source for a highly-effective, high-resolution, angle-resolved photoelectron spectroscopy (ARPES) with a spherical electron analyzer. A high-spectral-resolution measurement in a short acquisition time without the space charge effect requires the ultraviolet pulses with low pulse energy and high repetition rate. We made an active-controlled short cavity after the fourth harmonic of the light from a 10 ps, 74 MHz, Ti: sapphire mode-locked laser. We achieved the 15 times multiplication of the repetition rate (1.1 GHz) and a decrease by 2 orders of magnitude in the pulse energy as well, resulting in a decrease by 2 orders of magnitude in the acquisition time on an ARPES measurement without degrading the resolution compared to that with the original 74 MHz pulses. Additionally, we developed an active-controlled system onto the laser to stabilize a longitudinal-mode fluctuation, which is required when we use a high-finesse cavity.

研究分野：光物性、光源開発

キーワード：ファブリーペロー共振器 高繰り返し化 ピコ秒チタンサファイアモード同期レーザー 光電子分光

1. 研究開始当初の背景

角度分解光電子分光とは、ある物質に仕事関数より大きなエネルギーを持った光を照射したときに放出される光電子の運動エネルギーと放出角度を測定することで、その物質の電子状態を運動量エネルギー空間で捉える手法である。特に 1 meV 未満の高エネルギー分解能の光電子分光測定により、高温超伝導体の機構解明、金属のショックレー表面準位の微細なスピン分裂の観測のように、物質のフェルミ面近傍の電子状態を詳細に調べることで新たな物性が明らかになってきている。高エネルギー分解測定において半球型光電子分析器のエネルギー分解能は現在は 70 μeV と究極的であるため、光源の線幅も十分に狭い必要がある。1 meV 未満の線幅を持つ高輝度深紫外光源はレーザー以外にはなく、実際に繰り返し周波数が 80 MHz 程度でパルス幅 10 ps のモード同期レーザーの高調波が用いられている。研究代表者はレーザーを日常的に扱う立場から、光電子分光を専門に行う石坂香子准教授（東京大学）が率いる研究室と協力して短時間で高分解測定が可能な光源を開発してきた。これまでにパルス幅 10 ps、出力 1 W のモード同期チタンサファイアレーザーからの光を受動共振器に蓄積し非線形光学効果を増加することで高効率四倍波発生を行い、安定な深紫外光源(光エネルギー 5.9 eV、線幅 0.3 meV、繰り返し周波数 73 MHz、出力 20 mW)の開発に成功している。

しかし、エネルギー分解能を低下させるのは光源や装置だけではない。測定時間を短縮するために照射光強度を上げると、試料から放出された多数の光電子同士のクーロン反発によりエネルギー分解能が低下する(空間電荷効果)。従って、高エネルギー分解測定には微弱な光励起が必須であり長時間測定が避けられない。このため系統的かつ高エネルギー分解を要する測定、例えば化学的に不安定な超伝導体の機構解明のためのフェルミ面近傍の電子状態の温度依存性の測定やフェルミ面近傍の微細な電子状態が重要な超伝導体・トポロジカル絶縁体・熱電材料などの物質探索はこれまで非常に困難だった。

この実験的制約を解決するには、パルスエネルギーを保った状態でその繰り返し周波数を桁違いに上げればよい。本研究ではそれを実現する新しい手法として、ファブリーペロー共振器を用いた光源の高繰り返し化を提案する。以下にその方法を述べる。

繰り返し周波数(f_{rep})のモード同期レーザーからの四倍波の光を、縦モード間隔が光の繰り返し周波数の m 倍(ただし m は整数)となるように能動制御されたファブリーペロー共振器に入れる。共振器からの透過光は、周波数領域で見ると入射光の縦モードを m 本ごとに取り出したものとなり、時間

領域で見るとパルス間隔は $1/m$ 、パルス強度は $1/m^2$ となる。これにより望んだ通り、パルスエネルギーを押さえつつ光電子イベント数を桁違いに高めることが出来る。尚、このファブリーペロー共振器を用いて繰り返し周波数を遜倍にする方法は、モード同期ファイバーレーザーを使った天体分光の分解能向上や地球型惑星探査に用いられている[C.H. Li et al., Nature 452, 610 (2008), T. Wilken et al., Nature 485, 611 (2012)]。本研究は、この手法をピコ秒モード同期固体レーザーの四倍波である紫外領域に拡張する。

2. 研究の目的

本研究は高エネルギー分解能の角度分解光電子分光における測定時間を劇的に短縮する深紫外光源の開発を目的とする。狭線幅なパルスレーザーの高調波光と高分解能光電子分析器を用いる従来の手法では、分解能低下の要因となる空間電荷効果を抑えるためにパルスエネルギーを極力下げる必要があり、長時間測定は避けられない。経時変化する物質の評価や物質の組成を系統的に変えた試料評価は非常に困難である。この問題を打開するため、ファブリーペロー共振器を用いることで、パルス光源の繰り返しを劇的に高める手法を提案する。この新光源により、分解能を維持しつつ光電子検出率を桁違いに上げ、測定時間を短縮できる。従来測定が困難だった物質の研究や新物質の効率的探索を可能にし、光電子分光分野のブレークスルー技術を提供する。

3. 研究の方法

本研究はファブリーペロー共振器を用いて光源の高繰り返し化を行い、高分解能角度分解光電子分光の測定時間を劇的に短縮させる。ここで具体的に、測定時間短縮のために最適な繰り返し周波数を見積もる。先に述べたように、空間電荷効果を回避するにはMCP検出器での光電子イベント数の換算でパルス当たり 10^2 カウントに抑える必要があった。また、光電子カウントレートの上限はMCP検出器のダメージ閾値により制限され 0.01 GHz である。従って光源の繰り返し周波数の最適値は 1 GHz 程度であり、これは現在の光源の繰り返し周波数 (74 MHz) を 15 倍すれば実現できる。研究代表者は予備実験として、高安定・簡易光源のモード同期エルビウムファイバーレーザーの二倍波(既製品、波長 780 nm、繰り返し周波数 50 MHz)を用いて、繰り返し周波数を 10 倍にするファブリーペロー共振器を作製し、繰り返し周波数が 1 GHz になることを確認した。

本研究ではパルス幅 10 ps のモード同期チタンサファイアレーザーの四倍波の高繰り返し化を実現し、高エネルギー分解測定において課題となっている測定時間の問題を解決

する。本研究で完成させる光源は光電子分光分野に広く実用化されることを目標としており、非専門家でも簡単に扱える光源を実現したいと考えている。次の三項目について研究を実施した。

(1) ファブリーペロー共振器による高繰り返し化

基本光源は、繰り返し周波数 80 MHz の 10 ps チタンサファイアモード同期レーザーである。共振器を用いて安定に繰り返し周波数を通倍にするには、共振器の縦モードとレーザーの四倍波の縦モードを完全に合わせる必要がある。レーザーの縦モードの揺らぎの原因は二つあり、繰り返し周波数とオフセット周波数である。前者は容易に制御でき、また安定であることを確認している。一方、後者はレーザーの特性や環境に大きく依存し、制御も難しい。またレーザーの四倍波を取っているため、オフセット周波数の揺らぎは四倍強調される。そのため共振器の線幅が狭すぎると縦モードの揺らぎに対して透過光強度が過敏に変化し、能動制御が難しくなる。従って縦モードの揺らぎに対して鈍感になるような共振器ミラーの必要十分な反射率を決定し、以下のように共振器を作製した。

共振器の設計：共振器からの透過関数は共振器長と共振器ミラーの反射率によって決定される。共振器長は縦モード間隔がモード同期チタンサファイアレーザーの四倍波の繰り返し周波数の 15 倍(=74 MHz x 15 =1.1 GHz)になるように 134.8 mm に設定する。共振器長は片方のミラーに取付けるピエゾ素子で能動制御する(制御方法は後に述べる)。共振器ミラーの反射率は共振器の線幅を決定する。74 MHz 離れた隣の縦モードを排除し不要なビートを抑制するのに必要十分な反射率を選択する必要がある。共振器の縦モード間隔を光の繰り返し周波数に合致させた一般の共振器と比べて、本提案の 15 倍の高繰り返し化共振器では入射光の縦モードを 15 本ごとに取り出すため、入射光の縦モードの微小な揺らぎは共振器結合効率により大きく影響する。また、レーザーの四倍波を用いるため、レーザーのオフセット周波数の揺らぎは四倍に増幅される。ここではレーザーの基本波のオフセット周波数の揺らぎを現有の単一縦モード半導体レーザーとの比較により予め評価して必要十分な反射率の設計を行った。

ビームの横モードの制御：共振器の結合には横モードのマッチングも重要である。レーザーの二倍波・四倍波の非線形光学発生過程で生じたウォークオフ効果を最小化し、四倍波の光の横モードが共振器の横モードと合

うようにレンズを用いてモード整合した。

共振器長の制御：共振器長の制御を簡便に行うため、以下のようにエラー信号を生成した。共振器の片方のミラーにピエゾ素子を取付けた。ある変調周波数で共振器の透過関数(横軸を共振器長にとる)の線幅よりも十分微小な変位を共振器に与える。このときの透過信号を共振器に与えた変調の局所共振器と乗算し位相検波すると、透過信号の微分成分すなわちエラー信号が得られる。変調周波数を共振器ロックのフィードバック帯域(最大 10 kHz)よりも十分高く設定することで、共振器長の変調とフィードバックを一つのピエゾ素子で実現する。本研究では以上のエラー信号の生成のための回路を自作した。

(2).高繰り返し化光源の原理実証

(1) で完成させた高繰り返し化光源を用いて、その有効性を確認するために、半球型光電子検出器を用いて、高繰り返し化光源(1.1 GHz)と高繰り返し化していない光源(74 MHz)の両方で金の多結晶を光電子分光測定する。両光源において MCP 上の単位時間当りの光電子カウント数を変えたときの光電子スペクトルの変化を比較する。これにより高繰り返し化光源を用いると、分解能を維持しつつ測定時間が一桁以上短縮できることを実証した。

(3).紫外パルス列強度安定化のためのモード同期レーザーの縦モード安定化

ファブリーペロー (FP) 共振器出力の強度変調を最大限に抑えるためには、高フィネス共振器により不要なサイドバンドの除去が必要である。一方で、高フィネス共振器のモードに四倍波の縦モードを合致させるためには、ピコ秒モード同期レーザーの縦モード揺らぎを FP 共振器線幅の四分の一以下、ここでは数 100 kHz 以下に抑える必要がある。モード同期レーザーの出力光の縦モード揺らぎは、線幅サブ 100kHz の単一縦モード光源(外部共振器付き半導体レーザー)とレーザーの縦モード一本を比較することにより評価できる。この周波数差がある一定値に収まるように、レーザーの繰り返し周波数の動的制御を行った。ここで、レーザーの縦モード揺らぎの主要な原因はオフセット周波数であるものの、本研究で用いた 10 ピコ秒パルス出力のスペクトルは、全縦モードが高々 1000 本であるため、繰り返し周波数の(すなわちレーザーの共振器長の)制御というシンプルな制御により、縦モード揺らぎの能動制御を実現することができた。縦モード揺らぎを共振器長の変調に帰還するシステム構築において、周波数応答が異なる二種類の圧電素子をレーザー内部のミラーに装着した。ここで、圧電素子がミラーマウントの機械的共振を引き起こさないように、数値シミュレーションを用いて構造体の設計も行った。

4. 研究成果

本研究の目的は、半球型光電子分析器を用いた高分解能レーザー角度分解光電子分光の測定時間を桁違いに短縮する深紫外光源の開発であった。本研究は、繰り返し周波数 74 MHz のピコ秒モード同期レーザーを基本光源とする四倍波発生の後段にフアブリーペロー (FP) 共振器を追加するだけで光源の繰り返し周波数を 15 倍の 1.1 GHz まで上げることに成功した。本光源を用いて、金の多結晶の光電子分光測定を行い、分解能を維持しながら測定時間が二桁短縮されることにより原理を検証した。さらに、ピコ秒モード同期レーザーの縦モード安定化の動的制御システムを構築することにより、高フィネス FP 共振器を用いて不要なサイドバンドを除去し、深紫外パルス列の強度安定化を実現した。本研究で実施した高繰り返し化は、既存の光源と装置の性能を最大限に引き出し、分解能を維持しながら測定時間が劇的に短くなるので、測定可能な物質系の幅が広がり複雑な物理現象の解明や新規物質の探索に貢献できると考えている。現在、論文を執筆中である。

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)

[学会発表] (計 4 件)

- (1). 大間知潤子: 紫外光源開発と紫外分光: 固体から分子まで、4 大学ナノ・マイクロファブ리케이션コンソーシアム・シンポジウム「ナノ・マイクロ研究拠点における産学連携と科学技術人材育成」、慶應大学 K2 キャンパス (神奈川県 川崎市)、2017/3/13 (口頭)
- (2). J. Omachi: Ultraviolet light source for high-resolution photoelectron spectroscopy, CIAiS International Symposium, Fukutake Hall, University of Tokyo (Bunkyo-ku, Tokyo), Feb. 27, 2017 (oral)
- (3). J. Omachi, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami: GHz repetition rate, 210 nm light source for ultrahigh-resolution photoelectron spectroscopy, The 1st International Symposium on Advanced Photonics, Hotel Kokonoe (Hamamatsu, Shizuoka), Japan, Apr. 13, 2016 (poster)
- (4). 大間知潤子, 吉岡孝高, 五神真: 10 ps チタンサファイア発振器の縦モード制御による超高繰り返し深紫外パルス列の強度安定化、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学札幌キャン

パス (北海道 札幌市)、2014/9/20 (口頭)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大間知 潤子 (OMACHI, Junko)
東京大学・大学院理学系研究科・特任助教
研究者番号: 70724053

(2) 研究協力者

吉岡 孝高 (YOSHIOKA, Kosuke)
東京大学・大学院工学系研究科・准教授
研究者番号: 70451804

五神 真 (KUWATA-GONOKAMI, Makoto)
東京大学・総長
研究者番号: 70161809

石坂 香子 (ISHIZAKA, Kyoko)
東京大学・大学院工学系研究科・准教授
研究者番号: 20376651

下志万 貴博 (SHIMOJIMA, Takahiro)
理化学研究所・強相関物理部門・研究員
研究者番号: 70581578