

極短波長レーザーと物質との相互作用研究

米田研究室 山口祐太

1. はじめに

レーザーはその発展にともない、我々に多くの技術革新をもたらしてきた。

それは、高エネルギー密度の物理学、においても例外ではない。超短パルスレーザーの発明以降それらの研究はさらに加速した。サブピコ秒からフェムト秒の領域超短パルスで、テラワットからペタワットのオーダーのピークパワーを持つレーザーが実用可能になっている。そのような高強度のレーザーを用いれば、非線形光学効果の発現やプラズマを生成することも容易である。本稿で扱う高次高調波発生は非線形光学やプラズマの物理を包含しており、超短パルスの恩恵を最大限に利用したものであると言える。

近年、紫外線からX線にかけての研究が盛んに行われている。X線自由電子レーザー(XFEL)や高次高調波発生が代表的である。また、それらの短波長領域でのレーザー光源の技術の進展にともない、真空紫外領域からX線領域で高強度のレーザー光源が利用可能となってきた。それにより真空紫外からX線領域にかけての非線形光学が現実的に可能なものとなりつつある。非線形光学は、可視、赤外光においてはこれまで、広く応用されていた。それが高強度の真空紫外光(VUV)の出現で、VUVからX線領域までの波長領域で利用できるようになってきている。すでに、いくつかの実験的な検証が行われている。例として挙げるとすると、理研の緑川氏のグループでは、Heの多光子吸収を利用したX線のアト秒パルスの計測などが行われている[1]。

日本でのVUVFELの実験もはじまり、多くの研究が今後出てくることが期待されている。

VUV領域では、これまで、主に気体をターゲットにした研究が行われてきた。

それに対し、本研究では、固体をターゲットにして研究を行った。

金属の自由電子密度によって決まる遮断周波数より短い波長では、光は金属を透過するため、金属にも誘電体的な性質が現れてくる。Fig.1.1はAlの吸収断面積を示したもので、82nmより短い波長では、吸収率が急激に落ち、光が透過しやすくなることがわかる。多くの金属は、VUV領域では、このような誘電体的な性質をもつ

ようになる。

誘電体的な振る舞いをする。これはつまり、物質内部で起こるのは、自由電子の遷移ではなく、バンド間遷移ということである。そのため、VUV領域では金属においてもバンド遷移による吸収端が存在する。そのような物質に高強度のVUVを照射することで、屈折率変化や透過率の変化を引き起こし、過飽和吸収体や、能動的な光学機能素子として利用できるのではないかと。というのが本研究の元となる考えである。

VUV光を発生する方法として、プラズマの発光を用いる方法、シンクロトロン放射を用いる方法、そして本研究で取り扱う高次高調波発生を用いる方法などが存在するが、本研究では高次高調波発生を用いている[2]。高次高調波は、フェムト秒レーザーの非線形波長変換を利用して発生するためプラズマX線レーザーやシンクロトロン放射光に比べて、原理的に元のレーザーのパルスよりも高調波のパルス幅を短く出るといった利点がある。

これまでの高次高調波発生研究の多くは、以下に短波長を出せるかに注目されてきたものが多い。しかし、高強度を利用した非線形光学研究を行うためには、単一次数波あたりの強度が強いことが求められる。そのためには超短パルスレーザーはよい、パルスエネルギーが必要となる。そのために、位相整合条件をうまく利用したHHG発生が低次であたっても必要になってくる。

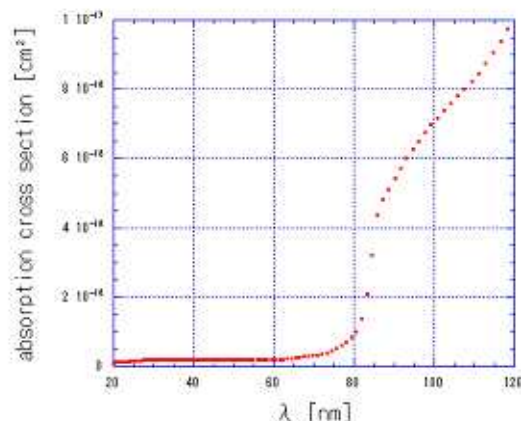


Fig.1.1 Alの吸収断面積

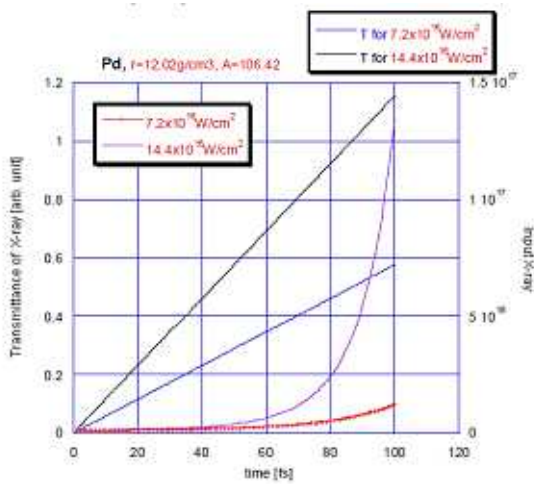


Fig.1.2 VUV領域での固体の可飽和吸収体

具体的な例としては、VUV領域での固体による可飽和吸収体を作ることが考えられる。Fig.1.2はXFELを用いた場合の計算結果である。光子エネルギーは3keVでターゲットにはPdを用いた。レーザーの強度を $7.2 \times 10^{14} \text{ w/cm}^2$ と $14.4 \times 10^{14} \text{ w/cm}^2$ で実験を行って、透過率の変化を調べた。2つを比較すると、 $14.4 \times 10^{14} \text{ w/cm}^2$ の方が透過率が大きく変化していることがわかる。10fsのオーダーで変化しており、このことより可飽和吸収体として利用可能である。

続いて、ターゲットとする材料について述べる。可飽和吸収体としての利用を考えた場合、使用できるのは、VUV領域でエッジのシャープな吸収端が存在するもの。候補として考えられるのは、Ca、K、Pb、Snなどである。ここでは、VUVFELと波長がマッチしたSnのNの吸収端を用いることとした。

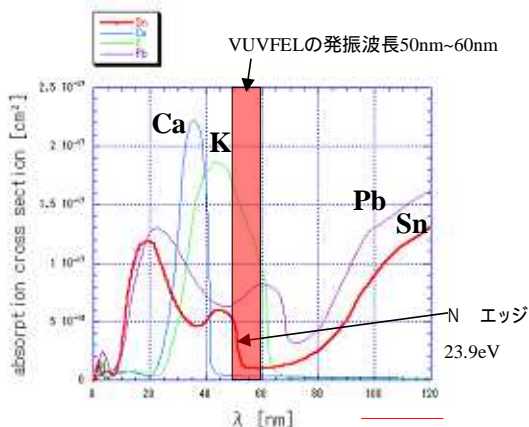


Fig.1.3 ターゲットとなる材料 (データ参照元[3])

VUV領域で飽和吸収を起こすのに必要なエネルギーは、固体密度、エネルギーバンドギャップ、低温状態での吸収長から見積もることができる。

例えばSnのN殻電子の内殻励起過程を考える。Snの密度は $6.1 \times 10^4 \text{ mol/m}^3$ で、Snの波長50nmにおける、吸収長は $0.02 \mu\text{m}$ であり[2]24mJ/cm²で実現できることがわかる。VUVでの集光系にもよるが、 $10 \mu\text{m}$ 程度の集光では20nJ程度でも達成できることがわかる。

以上の条件を達成可能な光源として、VUVフェムト秒自由電子レーザー[4]

フェムト秒レーザーによる高次高調波発生[2]が考えられる。最近10uJ、40fsの50~60nmのレーザーが日本で発振に成功している[3]。しかし、応用を考えるとより小型で実験室レベルでの実験が必要と考えられる。はこれまで、より短波長のX線までの高エネルギー光子発生が中心に研究が行われてきた。これにはI²則[2]があり、長波長の光が用いられてきた。しかし、金属の最も外側の内殻励起エネルギーはVUV領域にあり、この波長領域ではこれまでとは違った励起光での最適性も考えられる。特にTi:Sapphireレーザー800nmの場合には15次の高調波が必要なものが、その3倍波をエキシマレーザー増幅器で増幅した光の場合には5次の高調波で達成できるため、他の次数へのエネルギー損失を考えれば高い変換効率が期待できる。そのため本研究では励起光源としてKrFエキシマレーザーを励起光源とした高次高調波発生システムを構築し、VUV領域の非線形光学を達成することを目的とした。

特に、これまでのKrFレーザーを用いた高調波発生では行われていなかった、長距離集光と位相整合を用いて単色に近いレーザーを得ることを行う。

本研究では位相整合とlong propagationによる高調波の更なる高強度化を目指した。

これまで、Ti:Sapphireレーザーによる高調波発生などでは理研の緑川氏の研究に見られるように、位相整合の研究は多く行われてきた。しかし、KrFレーザーによる高調波の研究では位相整合や長焦点のlong propagationの実験は行われてこなかったのが現状である。

以下に波動方程式と位相不整合について簡単に説明する。

まず、高次高調波の波動方程式を計算してみよう。q次の高調波について波動方程式は次のようになる。

$$\nabla^2 E_q + k_q^2 E_q = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

ここで E_q は q 次の高調波の電場の振幅、 P は分極、である。

z 方向に伝搬する波を考え、波動方程式を解き、slowly varying envelope approximation (SVEA) を適用する。さらに原子による吸収を考慮すると、

$$\frac{dA_q}{dz} = iND_q \exp[i\Delta kz] \exp\left[-\frac{\alpha}{2}z\right]$$

この式を元に距離 L 伝搬したときの強度 I_p をもとめると、

$$I_p = N^2/D_q^2$$

$$\times \frac{1 + \exp(-\alpha aL) 2 + \cos(\Delta kL) \exp\left[-\frac{\alpha}{2}L\right]}{\left(\frac{\alpha}{2}\right)^2 + \Delta k^2}$$

この式をプロットしたものが図である。

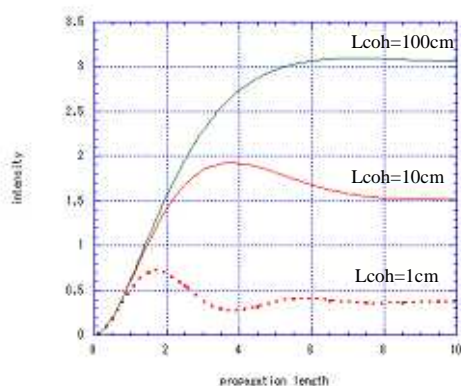


Fig.1.4 位相整合

伝播距離が長いほど高調波の強度は大きくなる。また、位相不整合 Δk が小さいほど高調波の強度が大きくなっている。これは、 Δk を小さくする、これがいわゆる位相整合である。

Fig.1.3.3 位相整合 横軸は媒質の長さ、縦軸は強度をあらわしている

phase mismatch の内わけは下の式のようになっている。

$$\Delta k = q \frac{u_{11}\lambda_0}{4\pi a^2} + N_e r_e (q\lambda_0 - \lambda_q) - \frac{2\pi N_a}{\lambda_q} [\delta(\lambda_0) - \delta(\lambda_q)] - n_2 I$$

$q \frac{u_{11}\lambda_0}{4\pi a^2}$ は Gouy phase shift と呼ばれるガウシ

アンビームの伝播によって生じる位相差である。 u_{11} はベッセル関数の零点、 a は wave guid の半径である。よってこれは、レーザーの波長と集光スポットの大きさのみで計算可能である。

$N_e r_e (q\lambda_0 - \lambda_q)$ はプラズマによる位相差、 N_e は自由電子密度である。つまりこれはイオン化の進展ともない大きくなる。この項を用いて位相整合させるのである。

$n_2 I$ は非線形屈折率による位相差である。これについては参考文献がある。厳密な値は測定されていないので計算による概算を行うしかない。

$\frac{2\pi N_a}{\lambda_q} [\delta(\lambda_0) - \delta(\lambda_q)]$ は線形の屈折率分散によ

る位相差、 δ はそれぞれの波長における屈折率である。位相整合が可能か否かはこの項の大きさで決まる。ここには本研究を行うにあたってクリアしておかなければならない条件がある。従来 800nm の領域で位相整合の実験は行われてきた。本研究ではそれに対し、248nm の紫外の波長で実験を行う。この波長の違いにより生まれる屈折率の差が位相整合可能な範囲よりも大きい場合、位相整合は不可能となるわけである。そこで、Cauchy の公式[5]を用いて屈折率分散曲線を求めてみた。図を参照されたい。これを見ると、屈折率分散は短波長領域では大きくなる。ここで位相整合する高調波の波長の屈折率と基本波の波長の屈折率との差を考えると、基本波の波長が 800nm でも 248nm でも屈折率はさほど変わらないということがわかる。このことから、位相整合は 800nm と同様に可能であると推論できる。

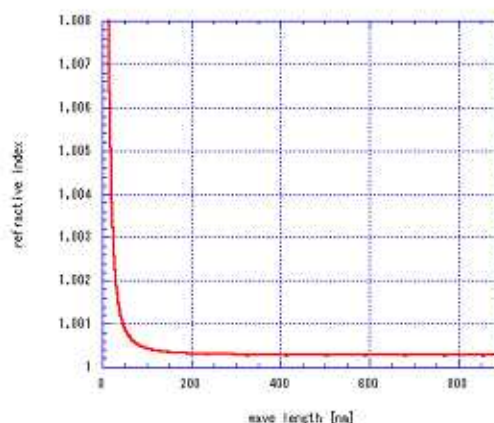


Fig.1.5 Cauchy の式による屈折率分散

2. 実験装置

実験装置の概要を Fig.1 に示す。真空チャンバー中のガスキャピラリーにガスを流し、そこにポンプ光源を集光、高次高調波を発生させる。集光レンズは $f=3.6\text{m}$ でこれは、集光強度と位相整合の条件から決定している。また、要求ガス圧は、数百 Torr なので、2 段の差動排気システムを用いて圧力差を保てるようにした。作動ガスは、これまでのガスパフによる研究で高い変換効率が得られている Ar を用いてある。

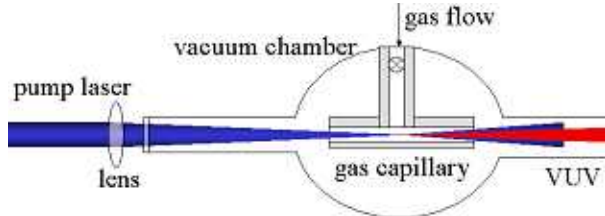


Fig.2.1 実験装置概要

2.1 レーザーシステム

予想される一つの次数に対する変換効率は $10^{-3} \sim 10^{-5}$ 程度であるので[2]励起光源のレーザーのエネルギーは $0.2\text{mJ} \sim 20\text{mJ}$ 程度のエネルギーが必要となる。

Fig.2 にシステムの概略図を示すが、ここでは、モードロック Ti:Sapphire レーザー ($\lambda=745\text{nm}$, $\tau=100\text{fs}$, 82MHz) から切り出された 1 パルスをチャープパルス増幅させ、増幅された基本波を LBO、BBO 結晶を用いて第 3 高調波を発生させる。得られた紫外光を KrF エキシマレーザー増幅器を用いて 2 段増幅を行う。

増幅段間は、像点転送のための真空空間フィルターを使用し、また、Amplified Spontaneous Emission の影響を低減させるために、可飽和吸収体を挿入している。これは、エキシマレーザーの強力な自然放光により特に 3 倍波結晶のダメージや、VUV 分光器の回折格子やフィルターの破損を避けるためである。

過飽和吸収体の材料には、アクリジン ($\text{C}_{13}\text{H}_9\text{N}$) を用いた [6]。アクリジンの saturation energy は $E_s = 1.2\text{mJ}/\text{cm}^2$ である。また、飽和する前と後の吸収断面積は、 $\sigma_0 = 6.8 \times 10^{-16}\text{cm}^2$ 、 $\sigma_e = 1.1 \times 10^{-16}\text{cm}^2$ である。

アクリジン 161.1mg をメタノール 4 に溶かし、それを色素還流ポンプを用いて循環させることで過飽和吸収体とする。過飽和吸収体の厚さは、 0.5mm とした。

これにより、自然放光が 3 倍波結晶まで到達することの回避と、自然放光自身が 2 pass で増幅されることによる高エネルギーパルスの発生

の抑制と、それによる装置の破損を回避することが出来た。

最終的なレーザーのスペックは波長 248.5nm 、パルス幅は 250fs 、繰り返し周波数 25Hz 、パルスあたりのエネルギーは最大で 17mJ であった。

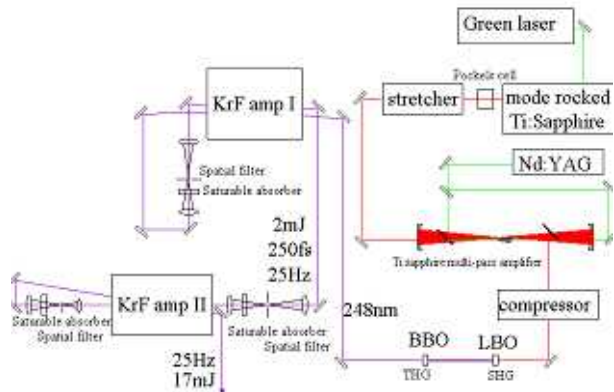


Fig.2.1.1 レーザー装置の構成

2.2 集光性能評価

位相整合のためには、媒質がプラズマ化しない強度を、波長分散による dephasing 距離保つ必要がある。レイリー長 l は焦点距離 L 、ビーム径 a 、波長 λ により、大まかには $l = (L/a)^2 \lambda$ になるので、 5cm 程度のレイリー長を実現するためには $L/a \sim 300$ 程度の集光系を準備する必要がある。ここではビーム径 1cm 、集光距離 $f=3.6\text{m}$ のレンズを使うこととした。

レーザーの集光性能を評価するために、ガラス基板による蛍光像を観測した (Fig.2.2.1)。最小集光径 $140\mu\text{m}$ で回折限界の 2 倍程度であったが、 4cm の距離にわたり、この集光強度を保てることがわかった。エネルギーから見積もられる集光強度は $4.4 \times 10^{14}\text{w}/\text{cm}^2$ であり、十分実験に使用可能である条件であることがわかった。

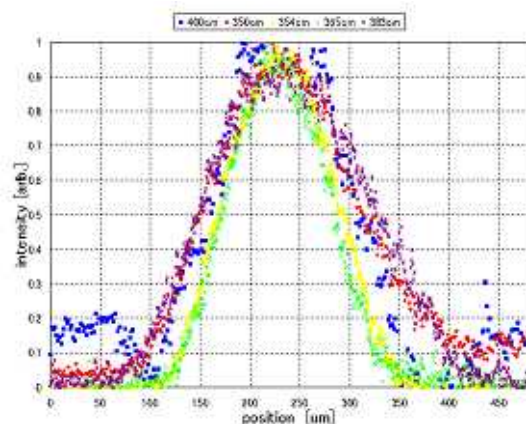


Fig.2.2.1 スポットサイズ

2.3 フィルタの作成

基本波の強度が強く、測定に用いた回折格子や測定器が破損してしまう可能性や測定時にノイズが大きくなってしまいう可能性がある。それを避けるため基本波の光を遮断する必要がある。フィルタの要求としては、248nmの光を透過せずVUVをよく通すものである。そのような材料としてはまず、Alが考えられる。Alの透過率を示す。5次(50nm)よりも高次の高調波であれば、Alは透過する。また、Alの薄膜は市販されているものがあるため利用がしやすいというメリットもある。

しかし、3次高調波(83nm)での使用も検討した場合には、Alは83nmでの透過率がほぼ0となっており、使用できない。Al以外にフィルタの材料として考えられるのがMgである。AlとMgの透過率を示す。

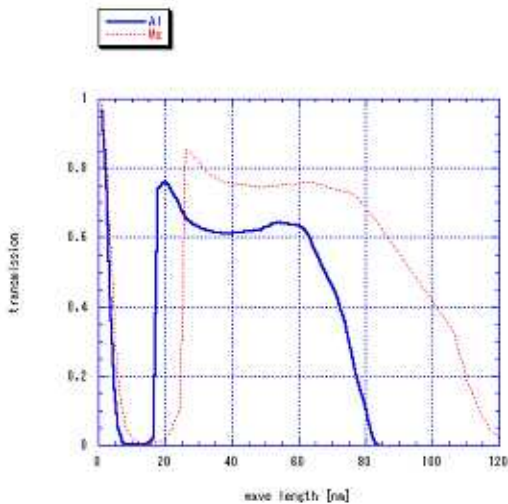


Fig.2.3.1 フィルタの透過率

MgとAlの違いは3次高調波(83nm)を透過できるか否かである。Mgの場合には83nmでも50%程度の透過率を得られるのに対し、Alでは70nm付近から急劇に透過率が減少しており、83nmでは透過率がほとんど0で使用できない。以上のような理由で、当初Mgのフィルタの製作を行った。本研究で使用するためには、基盤がない状態で薄膜のみで安定に存在できる1μm以下の薄い膜が必要である。今回行ったプロセスを説明する。

まず、ガラス基盤に塩を蒸着する

次にその蒸着された塩の上にMgを蒸着する

その次にMgに土台を接着剤でくっつける

その後、水に浸し塩を溶解させることで、基盤を剥がしゆっくりと自ら引き上げる。以上の行程を経てフリースタンドのMgの薄膜を作成を試みた。

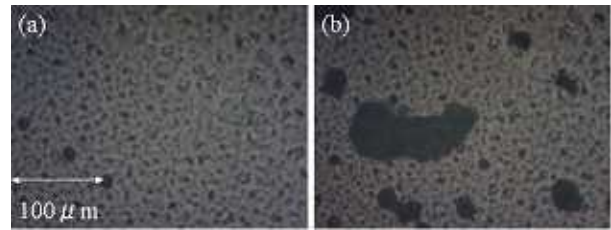


Fig.2.3.2 Mg蒸着直後の時間変化(抵抗加熱70A)(a)蒸着直後(2分経過)(b)60分後

Fig.2.3.2(a)は蒸着されたMgの表面を顕微鏡で見たものである。蒸着直後の段階で、すでに表面に無数の穴が開いているのがわかる。また、時間がたつごとに欠陥が大きくなり侵食されていくのがわかる。数時間でポロポロになり使い物にならなくなる。

比較のために、Mgのみを蒸着してみたところ図のようになり、図のような欠陥はみられなかった。また、塩のみを蒸着してみたところ図のようになり、大気中に暴露したとたんに水滴がついてしまった。おそらく塩が大気中の水分によって潮解しているものと考えられる。

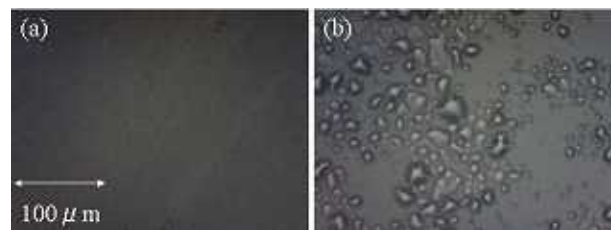


Fig.2.3.3 (a)Mgのみを蒸着したもの、(b)塩のみを蒸着したもの

以上のことから、膜の脆さは塩が原因であると考えられた。おそらく蒸着された塩が結晶化し、先の尖った形になり表面に大きな凹凸ができ、それによりMg膜表面に欠陥が生じたものと考えられる。さらに追い討ちをかけるように塩が潮解することで、水分により膜が侵食されていったのではないだろうか。

そう仮定したところで、対策を考えた。

まず第一に塩の蒸着量を減らすというのが考えられる。これにより塩による表面の凹凸を少なく出来るのではないか。第二にMgの蒸着するときの温度を上げるというのが考えられる。より強く強固な結合をさせれば、水による侵食に耐えられるのではないか。そのようにして、蒸着を再度行ってみたところFig4.1.7のようになった。蒸着直後の表面は傷のないものが出来た。



Fig.2.3.4 改善後の Mg 蒸着表面

現在は、目的どおりの Mg の自己支持膜の完成まではいたっていない。しかし、Mg の膜の作成については塩の膜の厚さと、蒸着時の温度が重要であることがわかった。今後、このことを生かして Mg の膜の作成を行いたい。

2.4 Ar ガスのプラズマ化

キャピラリーにガスを流してレーザーのビームの変化をキャピラリーの後方 1.5m の位置で観察してみたところ、噴出圧がおよそ 30000Pa から、ビームの形に変化が見られた (Fig.4)。この図を見て分かるようにビームの中央に強度の低い部分と強い部分の山と谷が現れた。さらに圧力が大きくなるにつれビーム径の増大が確認された。この変化した理由としては (1) プラズマ化が起こり、屈折率変化にともないビームが屈曲、(2) 非線形光学効果により自己収束、が考えられる。Fig.2.4.2 にイメージ図を示す。目視による観測ではプラズマ発光が見られるわけではなく、後者であれば、位相整合による高効率化が見込めることがわかった。

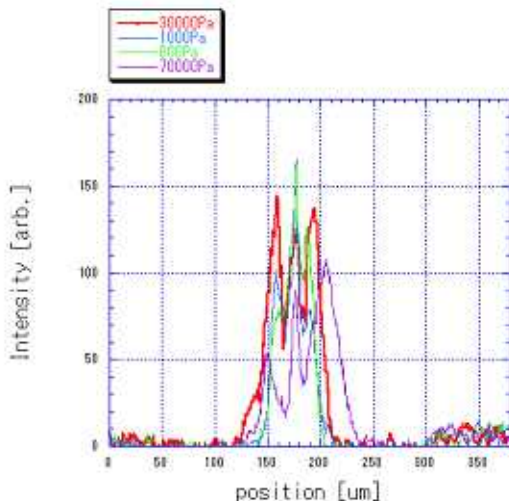


Fig.2.4.1 ビームプロファイルの変化

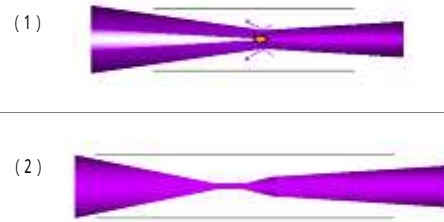


Fig.2.4.2 イメージ図

3. 結論

本研究では、VUV 領域で非線形光学を行うことを目標とし、そのための実験装置の構築を行った。

高次高調波発生のためのレーザー装置の設計および構築を行い、以下の結果が得られた。

- ・レーザーの強度は 1 パルスあたり 17mJ のエネルギーまで増幅できた。
 - ・集光光学系はビームスポットが 140 μm まで集光でき、レイリー長は位相整合を行う上で十分長いものであった。
 - ・集光強度は $4.4 \times 10^{14} \text{w/cm}^2$ まで到達し、高次高調波発生を行う上で十分強いものが得られた。
- 以上のことから、当初の目的を達成可能なレーザーシステムを構築できたと考えられる。

また、ガス圧の変化によってビームが変化することも確認でき、位相整合による高効率化が見込める。

参考文献

- [1] Yasuo Nabekawa, Hirokazu Hasegawa, Eiji J. Takahashi, and Katsumi Midorikawa PhysRevLett94, 043001 (2005)
- [2] Carsten Winterfeldt, Christian Spielmann, and Gustav RevModPhys.80.117(2008)
- [3] Center For X-ray Optics (<http://www.cxro.msd.lbl.gov/>)
- [4] Tsumoru Shintake, Tetsuya Ishikawa et al, Nature Photonics, 555-559(2008)
- [5] Max Born, Emil Wolf, "Principles of Optics" (1974)
- [6] H. Nishioka, H. Kuranishi, K Ueda, and H. Takuma, optics letters vol.14 no.13 (1989)