

狭帯域軟X線フェムト秒レーザーの開発

京都大学 大学院理学研究科化学専攻
准教授 足立 俊輔
(平成 26 年度一般研究開発助成 AF-2014221)

キーワード：フィラメンテーション、高次高調波、自己圧縮

1. 研究の目的と背景

高強度超短パルスレーザーを用いた高次高調波発生 (HHG) により、真空紫外～軟 X 線領域の非常に広い波長域におけるフェムト秒レーザー光が得られるようになった [1]。空間分解能の面から、このような短波長光源はレーザー加工に非常に魅力的である。しかしながら図 1 に示したように、近赤外(主に 800nm、チタンサファイアレーザーの発振波長)の高強度フェムト秒パルスをドライブレレーザーとして用いる従来の HHG では、隣接する高調波次数との間隔が狭い(inseparable)上に、それぞれの次数のスペクトル広がりも大きい(too broad)ため、ほぼ連続スペクトルになっており、スペクトル密度が低い。この広帯域性・低スペクトル密度が加工応用への障害となっており、狭帯域で特定の次数(=波長)の高調波を高効率に発生させるレーザー技術が望まれてきた。

これまでの研究により我々は、深紫外(270nm)の超短パルスレーザーをドライブレレーザーとして用いることで、狭帯域・単一次数の真空紫外(90nm)高調波を高効率に発生させられることを実証した [2]。このアプローチを発展させる、すなわち紫外ドライブレレーザーをタイトフォーカス条件 (10^{16} W/cm²程度)でターゲットガスに照射することで、軟 X 線領域(13nm)の狭帯域 HHG を達成することが本研究の最終的な目的である。しかしながら、そこに至るまでに乗り越えるべき技術的なハードルが存在する。タイトフォー

カス条件においては、生成した自由電子によって引き起こされるドライブレレーザーパルスの自己位相変調による不安定化が避けられない。そこでまず本研究では、フィラメンテーションと呼ばれる現象を利用し、深紫外ドライブレレーザーの短パルス化を行った。ドライブレレーザーを短パルス化することにより、自己位相変調によるパルスの劣化が抑えられ、加工応用により適した高安定 HHG が得られると考えられる。

フィラメンテーションはよく知られた超高速現象の一つであり、ビームが集光された状態でレイリー長よりもずっと長い距離伝搬できる [3]。高い非線形性が実現できることからスペクトルブロードニングや波長変換等、様々な応用がある。中でも自己圧縮性(パルスが入射前より短くなる)は他の超高速現象にはない特徴であり、近赤外領域での自己圧縮過程はこれまでよく研究されてきた [4]が、紫外域で自己圧縮が確認された報告はこれまで存在しなかった。

2. 実験方法

実験セットアップを、図 2 に示した。高強度深紫外パルス(パルス幅 40fs、パルスエネルギー 0.8mJ、中心波長 275nm、繰り返し周波数 1kHz)を、長焦点($f=2000$ mm)の凹面鏡を用いてフィラメンテーションセルに緩やかに集光する(図 2(a))。フィラメンテーションセルには、クリプトン(Kr)が圧力 150–270Torr で封入されている。フィラメントの形成は目視でも確認でき、おおよそ 0.5m ないし 1.0m 程度の長さであった。

フィラメンテーションセル内で自己圧縮したパルスは、二段階の差動排気機構(図 2(a)の Aperture)により、ウインドウレスで後段の

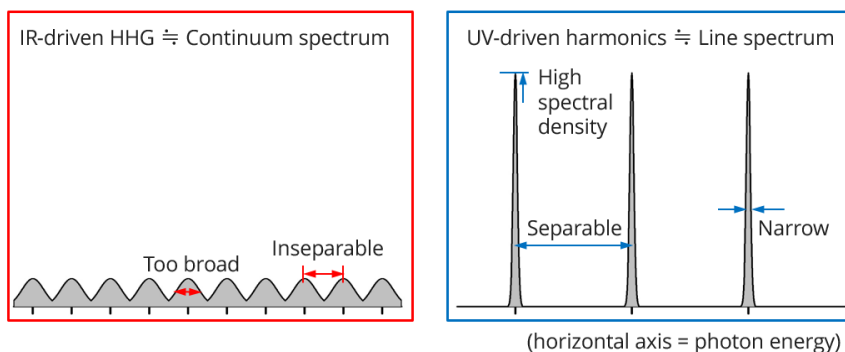


図 1. 高調波スペクトルのドライブレレーザーによる違い

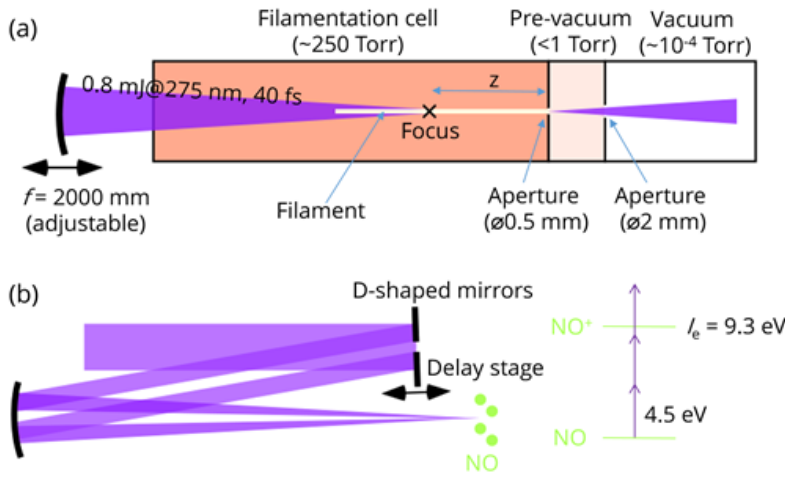


図 2. 実験セットアップ。(a)フィラメンテーションセル。(b)一酸化窒素(NO)の多光子イオン化過程を利用したパルス幅評価系。

パルス幅評価系(図 2(b))に送られる。一段階目の差動排気後の圧力は 1Torr 以下であり、フィラメント形成に必要な圧力を大幅に下回る。そのため、フィラメントは一つの aperture の位置で強制的に「終端」させられることになる。先に述べた長焦点凹面鏡の位置調整と組み合わせることで、フィラメント長 z を任意の長さに設定することが可能である。近赤外領域での実験でも示されている通り [5]、いったん自己圧縮されたパルスが更にフィラメント中を伝搬すると、そのパルス幅はすぐさま伸びてしまうため、このようにフィラメント長を最適化する機構が必要である。

パルス幅の評価は、多光子イオン化過程を利用した三次の自己相関測定 [6]により行った(図 2(b))。2 枚の半円形の反射鏡(D-shaped mirrors)を用いてビームを空間的に二分割する。二本のビームの光路差は、自動ステージ(シグマテック社製 FS-1020PX)により 10nm の精度で掃引される。その後、二本のビームは凹面鏡により一点に集光され、その集光点に一酸化窒素(NO)の分子線試料を導入する。多光子(主に三光子)イオン化過程により発生した光電子を磁気ボトルにより捕集し、飛行時間型光電子分光装置により検出する。NO の第一

イオン化エネルギーは $I_e=9.3\text{eV}$ であり、真空紫外パルス(光子エネルギー $h\nu=4.5\text{eV}$)の三光子イオン化過程により発生する光電子のエネルギーは 4eV 程度であることが、図 2(b)に示したエネルギーダイアグラムから予想される。

3. 実験結果

3・1 フィラメンテーションスペクトル

フィラメンテーションセル(封入圧力 250Torr)から発生したレーザーパルスのスペクトルを、フィラメント長 z を変化させながら測定した結果を図 3 に示す。フィラ

メント長が長くなる(input→10cm→21cm→33cm)のに応じて、スペクトル幅が増大する結果となっている。スペクトル形状をより詳しく見ていくと、input→10cm ではスペクトル広がりほぼ対称であるのに対して、それ以降(10cm→21cm→33cm)ではスペクトル広がり非対称であり、かつレッドシフトしているのが分かる。非対称なスペクトル広がり、近赤外領域での自己圧縮過程の際にしばしば観測される [7]のものであり、自由電子プラズマによる位相変調に起因する。すなわち図 3 の結果は、フィラメンテーションセル中で深紫外パルスが自己圧縮していることを示唆していると言える。ただし先述のように、実際にパルス幅を評価してフィラメント長を最適化する必要がある。

パルス幅評価の結果を示す前に、フィラメンテーションのスペクトルのガス圧依存性について述べる(図 4)。この測定では、フィラメント長は $z=33\text{cm}$ に固定されている。

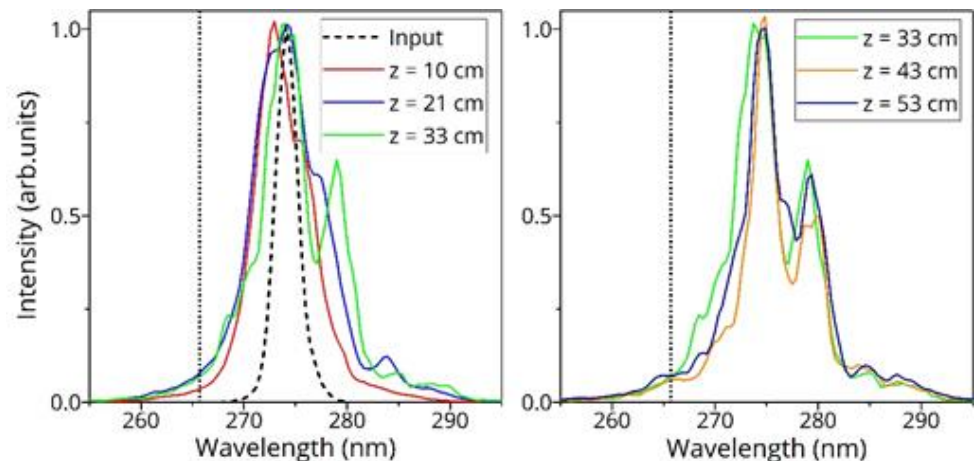


図 3. フィラメンテーションスペクトルのフィラメント長依存性。

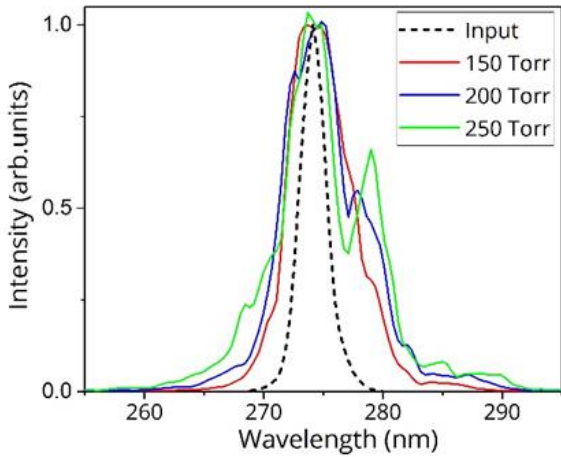


図 4. フィラメンテーションスペクトルのガス圧依存性。

ガス圧依存性(図 4 の input→150Torr→200Torr→250Torr)が、フィラメント長依存性(図 3 の input→10cm→21cm→33cm)と非常によく似た振る舞いを示すのが分かる。フィラメンテーション現象のガス圧依存性については先行研究があり、(本研究を含め)比較的低い封入圧力では、ガス圧を上げることでフィラメントの形成位置がより手前になる [8]。言い換えると、ガス圧の変化を通してフィラメント長が制御できるということである。

3・2 パルスの時間幅とエネルギー

パルス幅評価系に影響を及ぼすことなく連続的にフィラメント長を変化させることは実験的には困難であるため、以下では図 4 の測定と同様に、フィラメント長を $z=33\text{cm}$ に固定し、Kr の圧力を変化させて測定を行った。空間的に分割された二つのパルスの遅延時間を掃引しながら、光電子信号のスペクトルを測定した結果を図 5(a)–(d)に示す。これらは、いわゆる FROG トレースに相当するものである。残念ながら本測定では、NO の基底状態及びイオン化状態のフランクコンドン重なり ($\sim 0.5\text{eV}$) によりスペクトル分解能が決まっておらず、この (a)–(d) のトレースから FROG のリトリーバルアルゴリズムを用いて測定対象となるパルスのスペクトル位相に関する情報を得ることはできない。そこで、 $3.5\text{--}4.6\text{eV}$ の光電子信号強度を積分し

た上で遅延時間の関数として表示する(図 5(e)–(h)、三次の強度自己相関波形)。波形を順に見ていくと、まず Kr の圧力が最小 (215Torr、図 5(e)) のとき、ダブルピーク型パルス(時間領域で二つのピークを持つ)に特有の自己相関波形を示している。近赤外領域でも、自己圧縮の前段階として、同様のダブルピーク型パルスが観測されている [9]。ここから Kr の圧力を上昇させていくと、ダブルピークの片方の強度が徐々に低下し (230Torr、図 5(f))、最適圧力ではほぼ消失する (245Torr、図 5(g))。これは、多光子イオン化による吸収損失 and/or もしくはプラズマデフォーカス効果によるものである。その一方で、ダブルピークのもう片方は自己圧縮され、自己相関の時間幅が最小となる。また、最適値を超えて Kr の圧力を増加させると自己相関の時間幅がむしろ伸びてしまう (270Torr、図

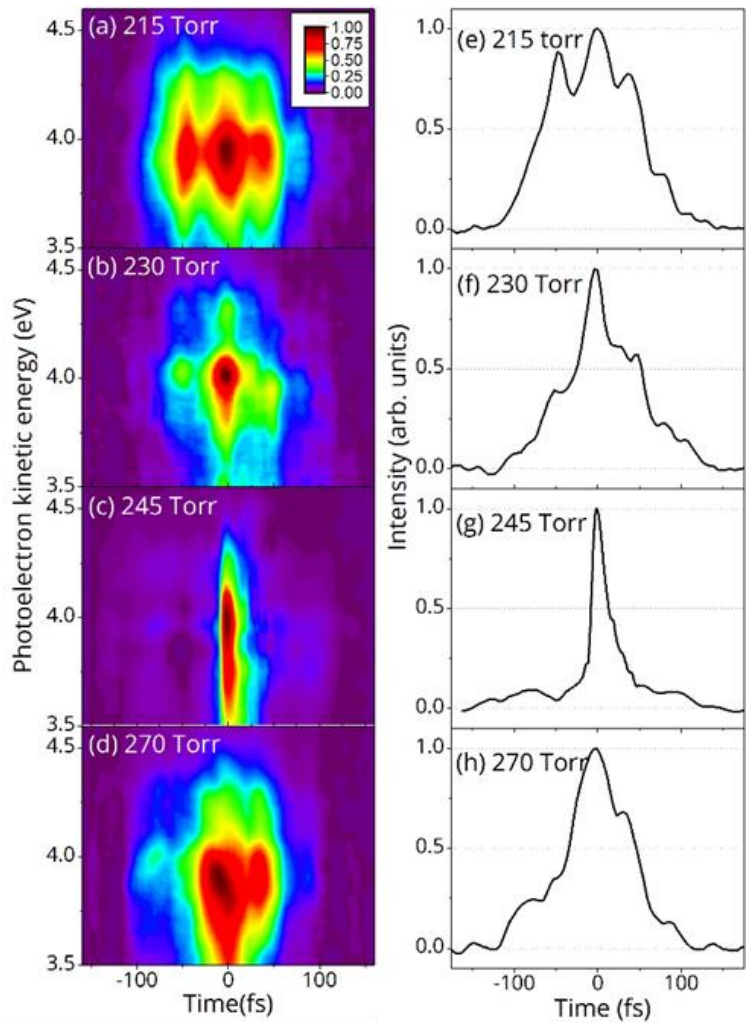


図 5. (a)–(d)測定された FROG トレース。(e)–(h)三次の強度自己相関波形。共に、フィラメント長を $z=33\text{cm}$ に固定した上で、ガス圧を変化させて測定を行った。

5(h) のが分かる。自己圧縮パルスの時間幅は、測定で得られた自己相関幅をデコンボリューション因子で除することで得られる。このデコンボリューション因子は相関測定の次数やパルスのスペクトル形状に依存するが、sech型もしくはガウス型のスペクトルを仮定すると、自己圧縮パルスの最短パルス幅は14ないし15fsとなる。この値は、スペクトルから計算されるフーリエ限界パルス幅 10fs に迫る値となっている。また、フィラメンテーションセルから得られたパルスのエネルギーは 0.28mJ であり、セルのスルーputは 35%(=0.28/0.80)である。

4. まとめと展望

本稿では、紫外域フィラメンテーションにおける自己圧縮現象を世界で初めて観測した結果について報告した [10]。15fs というパルス幅は、サブ mJ 級の深紫外パルスの中では世界最短である。近赤外や可視域では、非線形光学過程（自己位相変調等）を利用して先にスペクトルを広げ、その後にチャープ鏡やプリズム対といった分散補償用の光学素子を用いて時間的に再圧縮するというアプローチが広く採られてきた。しかしながら損傷閾値の問題があり、このアプローチは紫外域の高強度パルスでは成立しづらい。すなわち、再圧縮を必要としない自己圧縮技術は、紫外域で特に重要なアプローチである。

今後の予定として、本研究で開発した 15fs、サブ mJ 深紫外パルスをドライブレーザーとして用い、軟 X 線領域の狭帯域 HHG を実現したい。狭帯域軟 X 線フェムト秒レーザーは全く新しい光源であり、短波長性によるナノレベルの空間分解能、フェムト秒パルスによる熱影響フリーの高品位加工等の優れた特徴を兼ね備えていると同時に、軟 X 線領域では(石英やフッ化物ガラス等の透明材料も含め)あらゆる材料への吸収強度が大きいことから、レーザーの照射パルス数により深さ方向もナノレベルで制御できる。この 3次元ナノ加工というブレークスルーにより、これまでにないフォトニックデバイスが実現できれば、現在の情報化社会を支える光エレクトロニクス産業に大きく寄与する。また、狭帯域軟 X 線フェムト秒レーザーには、コヒーレント散乱イメージングや時間分解分光測定等、他にも数多くの応用研究が想定され、サイエンス、テクノロジー両面で社会に対して大きなインパクトを与える研究である。

謝 辞

本研究は、天田財団の研究助成を受けて行ったものです。ここに心より感謝の意を表します。

参考文献

1. P. B. Corkum and F. Krausz, *Nat. Phys.* **3**, 381 (2007).
2. S. Adachi, T. Horio, and T. Suzuki, *Opt. Lett.* **37**, 2118 (2012).
3. A. Couairon and A. Mysyrowicz, *Phys. Rep.* **441**, 47 (2007).
4. A. Couairon, J. Biegert, C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, U. Keller, and A. Mysyrowicz, *J. Mod. Opt.* **53**, 75 (2006).
5. M. Kretschmar, C. Brée, T. Nagy, A. Demircan, H. G. Kurz, U. Morgner, and M. Kovačev, *Opt. Express* **22**, 22905 (2014).
6. S. Zaitso, Y. Miyoshi, F. Kira, S. Yamaguchi, T. Uchimura, and T. Imasaka, *Opt. Lett.* **32**, 1716 (2007).
7. S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbe, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and H. Schroeder, *Can. J. Phys.* **83**, 863 (2005).
8. A. Couairon, M. Franco, G. Méchain, T. Olivier, B. Prade, and A. Mysyrowicz, *Opt. Commun.* **259**, 265 (2006).
9. C. Brée, A. Demircan, S. Skupin, L. Bergé, and G. Steinmeyer, *Laser Phys.* **20**, 1107 (2010).
10. S. Adachi and T. Suzuki, *Opt. Lett.* **42**, 1883 (2017).