

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 26 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24246022

研究課題名(和文) 高出力真空紫外・極端紫外高調波光源の開発とレーザー光電子分光の確立

研究課題名(英文) Development of high power vacuum and extreme ultraviolet light source and its application to photoelectron spectroscopy

研究代表者

渡部 俊太郎 (WATANABE, SHUNTARO)

東京理科大学・総合研究機構・教授

研究者番号：50143540

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,700,000円

研究成果の概要(和文)：CaF₂とKBBFの界面を拡散接合法で接着し、プリズムカップルKBBF素子の開発を行い、これを用いた7eV光源では超高分解能光電子分光による超伝導体の研究、8eV光源では角度分解光電子分光による2次元ブリルアンゾーンの電子状態の測定に供した。高効率大口径透過型グレーティングを開発し、グレーティングの湾曲による回折波面のひずみの解析を行った。このグレーティングを用いて、フェムト多波長レーザーを開発し、1kHzの繰り返しで基本波(800nm)において0.5 TW、2倍波において0.1 TWの出力を得た。またこのレーザーに二重広帯域波長変換法を適用し、4倍波で90 μJ(45 fs)の出力を得た。

研究成果の概要(英文)：Prism-coupled KBBF devices were developed by the tight optical contact of the boundary between CaF₂ and KBBF with diffusion bonding. The light sources at 7 eV and 8 eV with these devices were supplied respectively to ultra high-resolution photoelectron spectroscopy of superconductive materials and to angle-resolved photoelectron spectroscopy measuring electronic states at 2-dimensional Brillouin zone. High-efficiency, large scale transmission gratings were developed and the wavefront distortion of the diffracted beam due to the bending of the grating were analyzed. A femtosecond multi-color laser was developed by using these gratings for harmonic generation, resulting in the output powers of 0.5 TW at the fundamental (800nm) and 0.1 TW at the second harmonic respectively at a repetition rate of 1 kHz. By applying dual broad band frequency doubling to this system, the output energy of 90 μJ (45 fs) was obtained at the fourth harmonic (220nm).

研究分野：量子エレクトロニクス、非線形光学

キーワード：高次高調波レーザー 超短パルス 高出力レーザー KBBF 波長変換 光電子分光 軟X線分光 チタンサファイア

1. 研究開始当初の背景

真空紫外 (VUV)・極端紫外 (EUV) 域でのレーザー光源として、(1) 高次高調波、(2) プラズマ励起レーザー、(3) 加速器による自由電子レーザーがある。いずれも特徴があるが、高次高調波は高い周波数領域のコヒーレンスのため、超短パルスやその対極の狭帯域等を自由に制御できるうえに、小型で高繰り返し化が可能である。しかしながら欠点は出力が低いことと、データ蓄積のための長期安定性の欠如であった。これまで高次高調波の研究は主にその発生機構の物理やアト秒パルス発生媒体としてなされてきた。しかし最近高調波の特徴を生かした画期的な研究が生まれ始めた。

VUV 域では KBBF という画期的な非線型結晶が中国科学アカデミーの Chen 教授によって発明された。当初厚みが 1mm 以下で、z 軸 (厚み方向) に対し位相整合角でカットできないため、VUV 域への波長変換ができなかった。2003 年、研究代表者は Chen 教授との共同研究により、プリズムで両側から KBBF を挟み、界面を光学接着する技術を日本で開発し、VUV への展開を可能にした。物性研の辛研究室との共同研究により Nd:YVO₄ レーザーの 6 倍波 (177 nm: 7 eV、繰り返し 80 MHz) を用いて当初 350 μeV、その後 100 μeV の分解能が得られ、数々の新規超伝導体の電子状態の研究に使われた。

EUV 域では気体による高調波を使うことになる。この領域でも新しい芽が出つつある。代表者の提供した 60 eV 光源を用いて物性研辛研究室ではポンプ・プローブ法により、TaS₂ の光誘起相転移の時間分解分光を行った。ドイツの自由電子レーザー (FLASH) を用いた TaS₂ の研究ではジッターのため高調波で得られるデータの精度に遠く及ばない。この分野では内殻励起可能な媒質を増やすため短波長化とデータ取得時間の短縮のため高出力化が求められる。

2. 研究の目的

真空紫外・極端紫外域の強力なレーザー光源は光電子分光を通して、固体相においては超高分解能光電子分光、時間分解光電子分光、気体相においては非線型光学、分子制御などの分野にとって魅力的である。高調波光源は他の光源と比べ多くの面で優れているが、出力が十分でない欠点がある。この研究ではこの波長域で高繰り返し、高出力光源を開発し、光電子を観測することにより、高分解能分光、時間分解分光や非線型分光への展開を計ることを目的とする。これまでにない高出力真空紫外・極端紫外高調波光源を用いてレーザー光電子分光の確立を目指す。

3. 研究の方法

拡散接着法により、プリズムカップル KBBF 素子の高性能化を計り、8eV の準 CW 光源を開発する。1 kHz、TW 級チタンサフ

アイレーザーに広帯域波長変換法を適用し、2 倍波 (3.1 eV) と 4 倍波 (6.2 eV) を発生する。6.2 eV では KBBF 素子を用いて、新しく考案した 2 重広帯域波長変換法により、20 fs 以下のパルス幅で 1W 級出力を得る。ピコ秒モード同期チタンサファイアレーザーの 5 倍波によりサブ mW 級 8 eV 光源を開発し角度分解光電子分光に供する。2 倍波及び 4 倍波を励起源として、100 eV 以下の極端紫外域で高出力級高調波を発生する。この光源を用いて、50 eV 以上の未踏領域で、非線型分光を展開する。また長期安定性を持つポンプ・プローブ電子分光法を確立し、気体相、固体相のダイナミックスの研究を行う。

4. 研究成果

(1) プリズムカップル KBBF 素子の開発
KBBF 結晶は z 軸方向に厚みが数 mm しかなく、z-cut ができない。そのため 2 個の直角プリズムで KBBF 結晶をはさみ、界面を光学接着する。素子の性能は界面によって決まるため、まず研磨精度を上げた。次に KBBF とプリズム表面に予めフッ化物を蒸着し、高温で接合する拡散接合 (diffusion bonding) を行った。

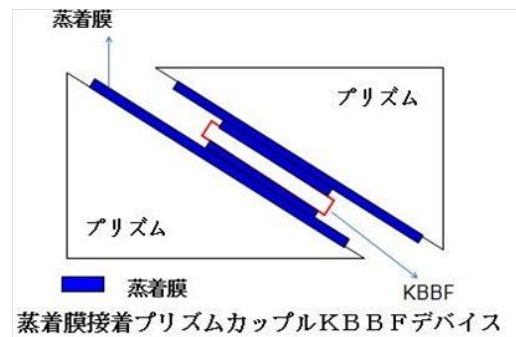


図 1

この方法で界面の損傷閾値が 2 倍に上がり、変換効率も向上した。

プリズム頂角 (ほぼ位相整合角) としては 7eV 用で 6.9 度、8eV 用で 4.8 度の 2 種類を使った。7eV 光源は物性研ですでに 3 セットが稼働中であり、超高分解能光電子分光を用いて新規超伝導体の研究が行われている。

角度分解光電子分光を用いて 2 次元ブリルアンゾーン全体の電子状態を測定するためには、7eV では不十分である。そこで 8eV (153nm) 光源を開発した。KBBF の吸収端ぎりぎりであったが 1 μW の平均出力が得られ、実際鉄系超伝度体の 2 次元ブリルアンゾーンの電子状態の測定が可能となった。

(2) 高効率大口径透過型グレーティングの開発

透過型グレーティングは金コートした反射形グレーティングに比べ寿命が長く、多層膜反射形グレーティングと比べ使用スペクトル幅が広い。しかしながら、大型化が難しかった。この研究では従来の電子ビーム加工

法に対し光リソグラフィ法を用いて大口徑化を可能とした。10×10 mm の基本セルを 6×18 個、相互の位置合せ精度 nm で並べる製法で、半導体製造用の露光装置を使って行った。図 2 は金属枠に固定したグレーティングの写真である。図 3 に回折効率の波長依存性を示す。

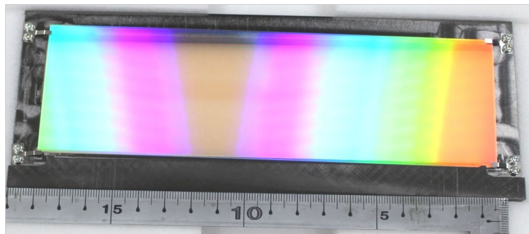


図 2

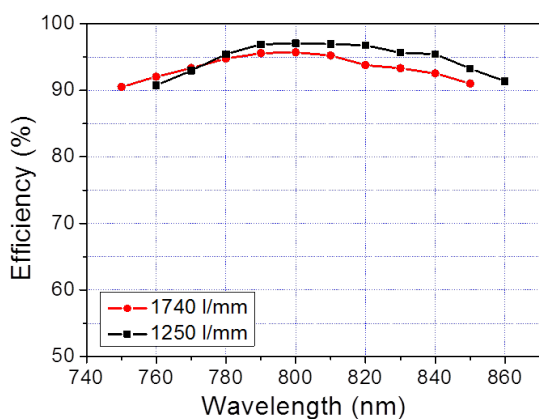


図 3

入射角は各々リトロー角である。制作したグレーティングは 1740 本/mm と 1250 本/mm の 2 種類であったが、非常に広い波長域で 90%以上の効率が得られ、最高 97%に達した。

グレーティングをフェムト秒レーザーシステムに使う場合、自己位相変調を避けるため、厚さを薄くしなければならない。ここで使用した基板は 1mm 厚の合成石英であった。

この場合湾曲が問題となる。まず 3 点サポートにより、保持による曲がりを抑えた。また溝の反対面の反射防止膜の曲がりには多層膜の媒質を選ぶことにより防いだ。わずかに残る曲がりにはリトロー角で入射する時、回折波面に影響を与えないことを証明した。またスペクトル幅が広く中心波長のリトロー角からはずれる成分に対してもパルス圧縮器の配置により波面歪みやパルス幅の広がりが起きないことを証明した。このような解析は透過形グレーティングでは例がなく、高い評価を受けた。

(3) 二重広帯域波長変換法を用いたフェムト秒紫外パルスの発生

一般に超短パルス为非線形結晶で波長変換すると帯域が狭まり、パルス幅は増大する。波長毎に位相整合角が決まり、中心波長に合

わせると、両端が変換されないからである。そこでグレーティングで波長毎に角度分散を与えると、すべての波長で位相整合を満たすことができる。これを広帯域波長変換法という。更に短い 4 倍波で同様なことを行くと 2 段の変換法を重ねることになるが、その場合グレーティングが 4 個必要であり、出力は大幅に減少する。そこで途中のグレーティング 2 個を省き、同様なことを行う二重広帯域波長変換法を新しく考案した。この方法を図 4 に示す。

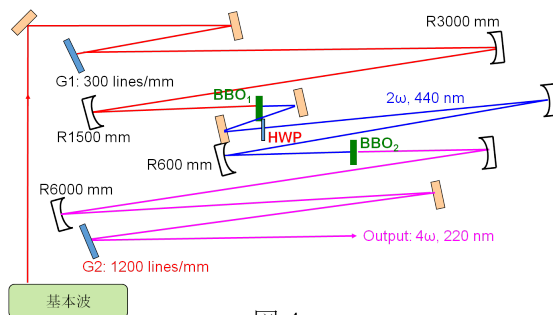


図 4

最初の論文では 2 番目の結晶として KBBF を用いて 200 nm のフェムト秒紫外光を得、その後 BBO を用いてより高出力 (90 μJ) の 220 nm の紫外パルスを得た。

パルス幅は CaF₂ の 2 光子吸収によって生成した自己束縛励起子の発光による単一ショット自己相関法を用いた。図 5 上が中央で衝突したパルスのイメージ、下がそれを数値化したものである。発光は紫外域のため、紫外用の CCD を用いた。

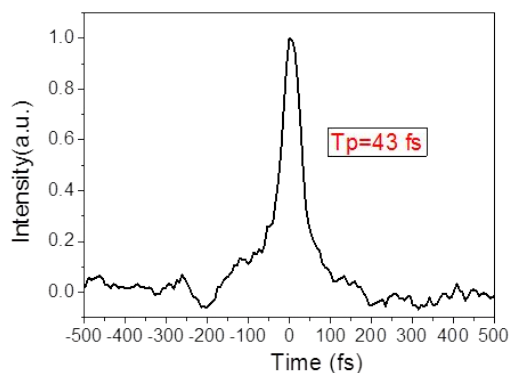
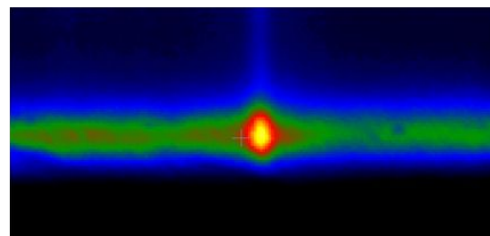


図 5

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 17 件)

- 1) M. Tsuboi, T. Nakazato(途中省略 4 名) S. Watanabe, "Development of

- high-power, 6 kHz, single-mode Ti:sapphire laser at 904 nm for generating 193 nm light”, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, Vol. 54, 2015, pp. 042702-1-7, DOI: 10.7567/JJAP.54.042702
- 2) T. Nakazato, M. Tsuboi (途中省略 5 名) S. Watanabe, ”Development of high coherence 200mW 193nm solid state laser at 6 kHz”, Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering, 査読有, Vol. 9342, 2015, pp. 93420P-1-13, DOI: 10.1117/12.2078601
 - 3) C. Zhou, T. Seki (途中省略 7 名) S. Watanabe, ”Wavefront Analysis of High-Efficiency, Large-Scale, Thin Transmission Gratings”, Proceedings of the 19th International Conference (Ultrafast Phenomena XIX), 査読有, Springer Proceedings in Physics, Vol. 132, 2015, pp. 779 – 782, DOI: 10.1007/978-3-319-13242-6_191
 - 4) C. Zhou, T. Kanai and S. Watanabe, ”Generation of ultrashort 90 μJ deep-ultraviolet pulses by dual broadband frequency doubling with 8-BaB2O4 crystals at 1 kHz”, Applied Physics Express, 査読有, Vol. 8, 2014, pp. 012701-1-4, DOI: 10.7567/APEX.8.012701
 - 5) C. Zhou, T. Seki (途中省略 7 名) S. Watanabe, ”Wavefront analysis of high-efficiency, large-scale, thin transmission gratings”, Optics Express, 査読有, Vol. 22, 2014, pp. 5995-6008, DOI: 10.1364/OE.22.005995
 - 6) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe and J. Itatani, ”Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses”, Nature Communications, 査読有, Vol. 5, pp. 3331-1-6, DOI: 10.1038/ncomms4331
 - 7) K. Okazaki, Y. Ito (途中省略 10 名 5 番目) S. Shin, ”Superconductivity in an electron band just above the Fermi level: possible route to BCS-BEC superconductivity”, Scientific Reports, 査読有, Vol. 4, 2014, pp. 1-6, DOI: 10.1038/srep04109
 - 8) Y. Ota, K. Okazaki (途中省略 12 名 4 番目) S. Shin, ”Evidence for excluding the possibility of d-wave superconducting-gap symmetry in Ba-doped KFe2As2”, Physical Review B, 査読有, Vol. 89, 2014, pp. 081103-1-5, DOI: 10.1103/PhysRevB.89.081103
 - 9) Y. Zhang, R. Hoshi (途中省略 10 名) S. Watanabe, ”Generation of quasi-cw deep ultraviolet light below 200 nm by an external cavity with a Brewster-input KBBF prism coupling device”, Optics Communications, 査読有, Vol. 295, 2013, pp. 176-179, DOI: 10.1016/j.optcom.2012.12.056
 - 10) Y. Kobayashi, N. Hirayama, A. Ozawa, T. Sukegawa, T. Seki, Y. Kuramoto, and S. Watanabe, ”10-MHz, Yb-fiber chirped-pulse amplifier system with large-scale transmission gratings”, Optics Express, 査読有, Vol. 21, 2013, pp. 12865-12873, DOI: 10.1364/OE.21.012865
 - 11) K. Okazaki, Y. Ito (途中省略 10 名 5 番目) S. Shin, ”Evidence for a cos(4 phi) Modulation of the Superconducting Energy Gap of Optimally Doped FeTe0.6Se0.4 Single Crystals Using Laser Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy”, Physical Review Letters, 査読有, Vol. 109, 2012, pp. 237011-1-5, DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.237011
 - 12) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, ”Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 1.6 μm from a BiB3O6 optical parametric chirped-pulse amplifier”, Optics Letters, 査読有, Vol. 37, 2012, pp. 4182-4184, DOI: 10.1364/OL.37.004182
 - 13) W. Malaeb, T. Shimojima (途中省略 17 名 16 番目) S. Shin, ”Abrupt change in the energy gap of superconducting Ba1-xKxFe2As2 single crystals with hole doping”, Physical Review B, 査読有, Vol. 86, 2012, pp. 165117-1-7, DOI: 10.1103/PhysRevB.86.165117
 - 14) K. Okazaki, Y. Ota (以下省略 21 名 6 番目) S. Shin, ”Octet-Line Node Structure of Superconducting Order Parameter in KFe2As2”, Science, 査読有, Vol. 337, 2012, pp. 1314-1317, DOI: 10.1126/science.1222793
 - 15) T. Kiss, A. Chainani (以下省略 9 名 6 番目) S. Shin, ”Quasiparticles and Fermi liquid behaviour in an organic metal”, Nature Communications, 査読有, Vol. 3, 2012, pp. 1089-1-6, DOI: 10.1038/ncomms2079
 - 16) 野村雄高、チェン チュアンティアン、渡部俊太郎、小林洋平、「コヒーレントな狭帯域準連続真空紫外光源の開発」、化学工業、査読有、63 巻、2012、36-41、[URL:http://www.kako-sha.co.jp/2012co](http://www.kako-sha.co.jp/2012co)

ntentskagaku.htm

- 17) C. Zhou, T. Kanai, X. Wang, Y. Zhu, C. Chen, and S. Watanabe, "Generation of ultrashort 25-fs pulses at 200 nm by dual broadband frequency doubling with a thin KBe₂BO₃F₂ crystal", Optics Express, 査読有, Vol. 20, 2012, pp. 13684-13691, DOI: 10.1364/OE.20.013684

〔学会発表〕(計 35 件)

- 1) T. Nakazato, M. Tsuboi, T. Onose, Y. Tanaka, N. Sarukura, S. Ito, K. Kakizaki, and S. Watanabe, "Development of high coherence 200mW 193nm solid state laser at 6 kHz", SPIE Photonics West, 2015年2月9日, サンフランシスコ(アメリカ)
- 2) 中里智治、坪井瑞輝、小野瀬貴士、田中佑一、猿倉信彦、伊藤紳二、柿崎弘司、渡部俊太郎、「CLBO 結晶を利用した 193nm 光発生の高効率化」, レーザー学会学術講演会、2015年1月11日、東海大学(東京都港区)
- 3) 坪井瑞輝、中里智治、小野瀬貴士、田中佑一、猿倉信彦、伊藤紳二、柿崎弘司、渡部俊太郎、「193nm 光発生のための高出力狭帯域高繰り返し 904nm Ti:sapphire レーザーの開発」, レーザー学会学術講演会、2015年1月11日、東海大学(東京都港区)
- 4) 中里智治、坪井瑞樹、小野瀬貴士、田中佑一、猿倉信彦、伊藤紳二、柿崎弘司、渡部俊太郎、「高コヒーレンス 193nm 固体レーザーの開発」, 応用物理学会、2014年9月19日、北海道大学(北海道札幌市)
- 5) Chun Zhou, (途中省略8名), Shuntaro Watanabe, "Wavefront Analysis of High-Efficiency, Large-Scale, Thin Transmission Gratings" 応用物理学会、2014年9月19日、北海道大学(北海道札幌市)
- 6) T. Nakazato, M. Tsuboi, T. Onose, Y. Tanaka, N. Sarukura, S. Ito, K. Kakizaki, and S. Watanabe, "Development of High Coherence 193nm Solid State Laser", The 8th International Conference on Photonics and Applications, 2014年8月12日~16日、ダナン(ベトナム)
- 7) Chun Zhou, (途中省略8名), Shuntaro Watanabe, "Wavefront Analysis of High-Efficiency, Large-Scale, Thin Transmission Gratings", The 19th International Conference on Ultrafast Phenomena(UP2014), 2014年7月8日、沖縄コンベンションセンター(沖縄県宜野湾市)
- 8) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani,

"Generation of Isolated Soft X-Ray Pulses Around the Carbon K-Edge Using CEP-Stabilized Few-Cycle IR Pulses", The 19th International Conference on Ultrafast Phenomena(UP2014), 2014年7月7日、沖縄コンベンションセンター(沖縄県宜野湾市)

- 9) 山口大智、金井輝人、兵頭政春、X.Y.Wang、Y.Zhu、C.T.Chen、渡部俊太郎、張 贇、渡辺昌良、「準連続 160nm 光発生システム」, レーザー学会創立 40 周年記念学術講演会、2014年1月20日、北九州国際会議場(福岡県北九州市)
- 10) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Generation of isolated attosecond continua in the water window using a CEP-locked, few-cycle IR pulses from a BiB₃O₆ OPCA system", 4th International Conference on Attosecond Physics, 2013年7月8日~7月12日、パリ(フランス)
- 11) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Carrier-Envelope Phase-Dependent High Harmonic Generation in the Water Window by Few-Cycle IR Pulses", Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO), 2013年6月9日~6月11日、カリフォルニア(アメリカ)
- 12) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Carrier-Envelope Phase-Dependent High-Harmonic Generation in the Water Window Using a Few-Cycle Infrared Light Source", Conference on Lasers and Electro-Optics Europe, 2013年5月12日~16日、ミュンヘン(ドイツ)
- 13) 山口大智、(途中省略9名6番目)、星遼太、「KBBF-PCD を用いた外部共振器型 SHG による準連続 VUV 光発生システムの出力安定性」, 応用物理学会、2013年3月30日、神奈川工科大学(神奈川県厚木市)
- 14) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe and J. Itatani, "Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window by use of waveform-controlled infrared pulses", Ultrafast Optics 2013, 2013年3月4日~3月8日、ダボス(スイス)
- 15) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe and J. Itatani, "Sub-two-cycle, CEP-stabilized, millijoule-class IR optical pulses from a BiB₃O₆-based OPCA using

Ti:sapphire lasers”, Ultrafast Optics 2013, 2013年3月4日~3月8日, ダボス(スイス)

- 16) 周春、金井輝人、王晓洋、YongZhu、陳創天、渡部俊太郎、「多波長サブ TW 光源 () 深紫外光源」、応用物理学会、2012年9月13日、愛媛大学(愛媛県松山市)
- 17) 周春、関敬司、北村強、助川隆、石井順久、金井輝人、板谷治郎、小林洋平、渡部俊太郎、「1kHz テラワット級チタンサファイアレーザー用大型高効率透過型グレーティング () - 1740 本/mm」、応用物理学会、2012年9月13日、愛媛大学(愛媛県松山市)
- 18) Chun Zhou, Teruto Kanai, Xiaoyang Wang, Yong Zhu, Chuangtian Chen and Shuntaro Watanabe, “Compact Multi-Wavelength Laser Source for Harmonic Generation”, 5th Asian Workshop on Generation and Applications of Coherent XUV and X-ray Radiation, 2012年6月27日~6月29日、東京大学柏キャンパス(千葉県柏市)
- 19) Nozomi Hirayama, Akira Ozawa, Takashi Sukegawa, Takashi Seki, Yoshiyuki Kuramoto, Shuntaro Watanabe, Yohei Kobayashi, “High-power Yb-fiber laser system for high-field physics at 10-MHz repetition rate”, Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO), 2012年5月6日~5月11日、カリフォルニア(アメリカ)
- 20) N. Ishii, K. Kitano, K. Kaneshima, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, “Nearly-octave, sub-two-cycle, CEP-locked, intense IR pulses from BIBO OPCA using 810-nm pump pulses”, Conference on Lasers and Electro-Optics(CLEO), 2012年5月6日~5月11日、カリフォルニア(アメリカ)

他 日本物理学会 7編
応用物理学会 8編

〔産業財産権〕

○出願状況(計 1件)

名称: チタンサファイアレーザー装置、及び露光装置用レーザー装置、並びにチタンサファイア増幅器

発明者: 渡部 俊太郎

権利者: 同上

種類: 特許

番号: PCT/JP2014/84618

出願年月日: 2014年12月26日

国内外の別: 国内

〔その他〕

東京理科大学研究者情報データベース

<http://www.tus.ac.jp/ridai/doc/ji/RIJIA01Detail.php?kin=ken&diu=63d9>

6. 研究組織

(1)研究代表者

渡部 俊太郎 (WATANABE, Shuntaro)

東京理科大学・総合研究機構・教授

研究者番号: 50143540

(2)研究分担者

渡邊 昌良 (WATANABE, Masayoshi)

電気通信大学・情報理工学(系)研究科

・教授

研究者番号: 00175697

張 贊 (ZHANG, Yun)

電気通信大学・情報理工学(系)研究科

・准教授

研究者番号: 00508830

岡田 佳子 (OKADA, Yoshiko)

電気通信大学・情報理工学(系)研究科

・准教授

研究者番号: 50231212

(3)連携研究者

周 春 (ZHOU, Chun)

東京理科大学・総合研究機構・ポストドク

トラル研究員

研究者番号: 60599463

辛 埴 (SHIN, Shik)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号: 00162785

小林 洋平 (KOBAYASHI, Yohei)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号: 20357023

板谷 治郎 (ITATANI, Jiro)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号: 50321724

金井 輝人 (KANAI, Teruto)

東京大学・物性研究所・技術専門職員

研究者番号: 10575161