

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 23 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26600122

研究課題名(和文) 孤立アト秒パルスの回折限界集光と世界最高強度 XUV 場発生

研究課題名(英文) Diffraction limited focusing of isolated attosecond pulses and generation of intense XUV fields

研究代表者

高橋 栄治 (Takahashi, Eiji)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・専任研究員

研究者番号：80360577

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)：Schwarzschild光学系によるアト秒パルスの極限集光を実現すべく、40 nm 域において極端紫外光用ミラーの開発を行い、最大反射率 38%を有する SiC/Mg 多層膜ミラーを実現した。ミラーの反射帯域幅は 500 アト秒のパルス幅をカバーすることができ、反射率、バンド幅共にアト秒レーザーを集光する極限光学系に十分使用できる多層膜ミラーを製作することに成功した。また GW級の瞬間パワーを持つアト秒軟X線パルスを実現するための高出力励起レーザーの開発を行った。

研究成果の概要(英文)：To realize a diffraction limited focusing of an attosecond pulse by using the Schwarzschild optical system, we developed a multilayer mirror at the 40 nm XUV region and realized a SiC/Mg multilayer mirror with the maximum reflectivity of 38%. The reflection bandwidth of our mirror can cover the pulse duration of 500 as or less. We successfully fabricated a suitable multilayer mirror, which can be used for focusing of an attosecond pulse. We also developed a high power driver laser for generating GW-scale attosecond soft x-ray pulses.

研究分野：レーザー工学

キーワード：光学素子 アト秒パルス

1. 研究開始当初の背景

光強度が 10^{14} W/cm² を大きく上回るレーザー場と原子・分子を相互作用させると、トンネルイオン化、高次高調波発生、非逐次二重イオン化、超閾イオン化等の非線形・非摂動論的現象を励起することができる。このような非摂動論的な物理現象を扱う高強度物理学は、超短パルスレーザーの進展にも支えられ、これまで数多くの興味深い研究成果を生み出してきた。

一方近年、SASE 型の自由電子レーザー (FEL) や、超短パルスレーザーによる高次高調波ビームを用いることで、XUV 域以下の波長域における高強度場と物質の相互作用研究が開始されている。しかしながら SASE-FEL や従来の高調波光源では励起できる光強度は $\sim 10^{14}$ W/cm² 程度であるため、これまで実現された非線形現象のほとんどは光子的な記述で理解される数光子イオン化現象であり、電場がイオン化プロセスを支配する optical field ionization (OFI) 等の観測には至っていない。

2. 研究の目的

本研究では、瞬間パワー GW 級の世界最高出力をもつアト秒パルス光源を実現するための高出力励起レーザー、またアト秒パルスを数 10 nm の回折限界まで集光可能な光学系を開発する事を目的とした。先端光源と先端光学系を組み合わせる事で、原子・分子内において非摂動論的な物理現象が十分に発現できる 10^{16} W/cm² を超えるアト秒 XUV 場を発生させることを目指した。

3. 研究の方法

(1) アト秒パルス集光用光学素子

高い形状精度が得られる多層膜球面ミラー 2 面で構成した Schwarzschild 光学系の構築を行った。従来の Schwarzschild 光学系で必要となる 100 nm レベルのアライメント精度を緩和するため、偏心に鈍感な新型光学系の設計解を検討し、回転対称非球面からなる 2 面反射鏡に偏心が存在する場合の収差特性を 3 次の範囲で解析的に導出することで、瞳の中心遮光量をただ 1 つの設計パラメータとした収差特性を検討した。これらの検討により従来光学系と比較して、アライメント精度を最大で 50 倍に緩和すると共に、光学収差を極力低減することで使用波長の回折限界となる 100 nm を切る集光を達成することを目指した。さらに、Schwarzschild 光学系に採用する多層膜材料の検討を行い、使用するアト秒パルスに対して最適化された多層膜コートを材料段階から評価し、ミラー製作を行った。一方、実際の Schwarzschild 型集光ミラーでは、光学系を構成する多層膜凹凸面ミラー上の動径座標に依存して光線の入射角が変化する。このため、動作波長において高スループットを得るには、多層膜ミラーの周期長を入射角の変化に応じ制御し、ミラー全面で Bragg

反射をおこす必要がある (周期長分布制御)。そこで、ミラー基板が自転・公転運動を行うマグネトロンスパッタリング装置に適用可能な多層膜ミラーの周期長分布制御機構を開発した。

(2) アト秒光源に関して

代表者が 2012 年に提案した単一アト秒パルス (IAP: isolated attosecond pulse) の出力スケールリング法を基本とし、近赤外光 (1350 nm) と 800 nm による二波長電場合成レーザーを開発することで、励起レーザーのパルスエネルギーと高調波発生の断面積の拡大により IAP の出力を増加させる。本コンセプトに従い、励起レーザーのエネルギーを増加させると共に 5 m の集光光学系を採用し IAP の高出力化を行った。また、二波長合成レーザーを構成する 800 nm, 1350 nm の各パルス間の遅延ジッター、相対ジッターを精密に安定化させるため、各種レーザー同期系の開発を行い発生する IAP の出力安定化を行った。

4. 研究成果

(1) アト秒パルス集光用光学素子

まず光学反射率計算 Layer by Layer 法を用いて様々な物質対における光学反射率を計算し、使用するアト秒パルスの中心波長 40 nm 近辺において高反射率な多層膜材料の探索を行った。透明な物質が存在しない EUV 領域で高反射率を得るには、できるだけ吸収が小さく、且つ屈折率の差が大きい物質対を選択する必要がある。選択則により見出した物質対で得られる直入射でのピーク反射率を数値計算により求めた結果を表 1 に示す。理論計算より 50 % 超える反射効率が期待できる物質対を複数見いだすことに成功した。

物質対	周期長(Å)	Γ	反射率
Mo/Mg	212	0.25	0.59
Cr/Mg	212	0.23	0.57
B4C/Mg	212	0.25	0.54
SiC/Mg	212	0.25	0.53
W/Mg	209	0.19	0.42
Mo/Si	238	0.36	0.37
Sc/Si	210	0.33	0.31

表 1. 物質対の周期長、膜厚比、最大反射率

次にマグネトロンスパッタ装置を使用し候補材料を用いた多層膜ミラーの成膜実験を行った。作成した多層膜の周期構造の評価には、X線回折装置 (XRD) を用いた。XRD は周期長や多層膜形成の有無のデータを与えるが、実波長における多層膜反射率を評価する事はできない。そこで理研で稼働中の高次高調波光源を用いて、試作した多層膜ミラーの反射率評価を行った。高調波発生媒質にはアルゴンガスを用い、30 nm から 100 nm においてコヒーレント XUV 光を発生させた。測定には

2枚の多層膜テストピースを使用し、ビームを直入射でテストピースに入射し折り返すことで、XUV分光器に入射させた。テストピースを挿入した場合、取り除いた場合の高調波の強度比から反射率の評価を行った。測定結果より波長40 nm域で、40%近い反射率をSiC/Mg, Cr/Mgにおいて実現することに成功した。

高調波により評価した多層膜サンプルの帯域幅を詳細に評価するため、分子研 UVSOR BL5B を用いて実波長における反射率測定を行った。表2に放射光を用いて得られた反射率データを示す。計算反射率には劣るもののSiC/Mgにおいては40%近い反射率と2eVを超えるバンド幅が得られている。また、成膜条件を変えることで、バンド幅を4 eV 近くにまで拡大することにも成功している。得られたバンド幅は500アト秒のパルス幅をカバーすることができる帯域量であり、反射率、バンド幅共にアト秒レーザーを集光する光学系に十分使用できる多層膜ミラーを製作することに成功した。

資料No	物質対	反射率	FWHM [eV]	計算反射率	計算FWHM [eV]
1286-2	SiC/Mg	38.3	2.3	57	2.78
1321改	Cr/Mg	21	2.9	56	3.6
1322改	Cr/Mg	13.4	3.8	51	4.28
1316	SiC/Mg	28	3.89	43	4.24
1315	SiC/Mg	35.7	3.27	49	3.54
1313	SiC/Mg	37.9	2.98	51	3.22
1308-2	Sc/Si	23.3	4.58	37	4.54

表2. 多層膜ミラー候補と、その反射率

一方、集光するアト秒レーザーにおいてフーリエ限界パルスを実現するには、ミラー帯域だけでなく多層膜ミラーの反射位相を制御する必要がある。そこでTEY (Total Electron Yield) 法を用いて製作したSiC/Mg多層膜ミラーの反射位相の評価を行った。放射光による反射率測定の際、反射光強度と同時にミラー表面からの光電子の量を測定する。光電子の脱出深さは1nm程度で、その量はミラー表面の光強度に比例する。また、ミラー表面には、入射光と反射光からなる定在波が生じており、定在波の節や腹の位置はミラーの反射位相により変化する。これら2つの関係を用いて、ミラーの反射位相を推定することができる。図1は、SiC/Mg多層膜ミラーの反射率と反射位相の計測結果を示したものである。TEY法から得た反射位相は数値計算により求めた設計値と良く一致しており、作製したSiC/Mg多層膜ミラーでは、ほぼ設計通りの反射位相スペクトルが得られることが明らかになった。さらに、測定した反射位相、ミラー帯域、および理研において稼働中のアト秒レーザーのバンド幅を用いて本ミラーを組み込んだシュバルツシルト光学系により取り出すことができるアト秒パルスの時間プロファイルの評価を行った。図1挿入図に示すように、約800アト秒のパルス幅を実現することが可能であることが、計算により確かめられた。

多層膜ミラーの成膜に使用した周期長分布

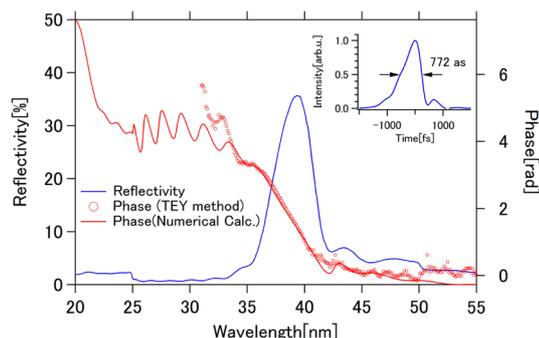


図1. SiC/Mg多層膜鏡の反射率と反射位相

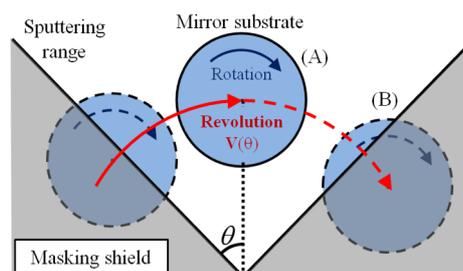


図2. 周期長分布制御機構

制御機を図2に示す。Schwarzschild対物ミラーに必要な回転対称な周期長分布を得るため、ミラー基板は成膜装置内で自転及び公転運動を行う。また、スパッターターゲットと基板間には遮蔽板を配置した。位置Aに基板がある場合ミラー全面に成膜されるが、位置Bではミラー外周部のみに成膜される。このため、位置Bの滞在時間を増やすように公転速度 $V(\theta)$ を制御すれば、外周部の周期長が大きいミラーを作製できる。制御機構は多元研技術室と共同で開発し、マグネトロンスパッタ装置(アネルバSPL-500)に組み込んだ。制御機構の評価のため、異なる周期長分布を持つMo/Si多層膜ミラー(表3)を作製した。基板の公転運動は、図2の配置を基に解析的に速度関数 $V(\theta)$ を求め、公転軸のモータを駆動することで制御した。成膜後X線小角散乱により周期長のミラー面内分布を計測した(図3)。分布制御をしない(等速公転運動:黒シンボル)場合、周期長は2次関数的に変化し最外周で2.2%減少した。この結果を基に速度関数を決定し、面内均一な周期長分布(赤シンボル)、および、曲面ミラーに必要な2次関数的分布(青シンボル)の試料を作製した。図3

Center period length	6.92[nm]	
Mirror diameter	75[mm]	
Quadratic coefficient : C_2	0.00[%]	2.00[%]
Substrate rotation speed	100[RPM]	

表3. Mo/Si多層膜ミラー

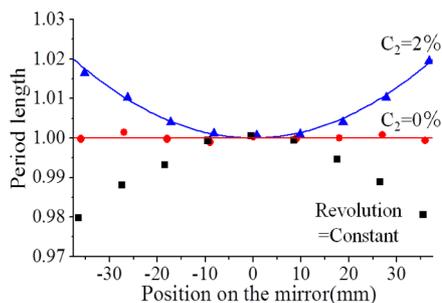


図 3. 周期長のミラー面内分布

に示すように、開発した制御機構により、何れの場合も 0.1%の厚さ精度で周期長を制御できることが明らかになった。

(2)アト秒光源に関して

GW 級の出力をもつアト秒光源実現を目指し、高出力 2 波長合成レーザー (800 nm + 1350 nm)の開発を行った。二波長合成レーザー場生成のため、パラメトリック増幅段、及び電場シンセサイズ用マッハチェンダー干渉計の構築を行った。図 4 にレーザーシステムのレイアウトを示す。まず 1350 nm 光を得るために、二段の OPA を構築した。OPA-1 では白色光をシード光に用いており、OPA-1 から発生したシグナル光を OPA-2 に入射し、800 nm ポンプで増幅を行う事で、1.3 μm で 7 mJ/pulse の出力が得られた。

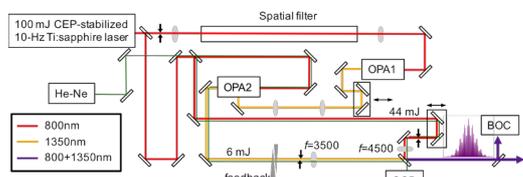


図 4. 二波長レーザーシステム

光学経路由来の二波長レーザー間の遅延ジッターを低減するため、CW レーザーをマッハチェンダー干渉計内に通し、干渉イメージを計測することで、遅延光路に起因する二波長間のジッター計測を行った。図 5 に 30 分にわたる光学経路の安定度を示した。経路内の空気揺らぎや振動等によって 1350 nm と 800 nm 間の時間差がドリフトしていること

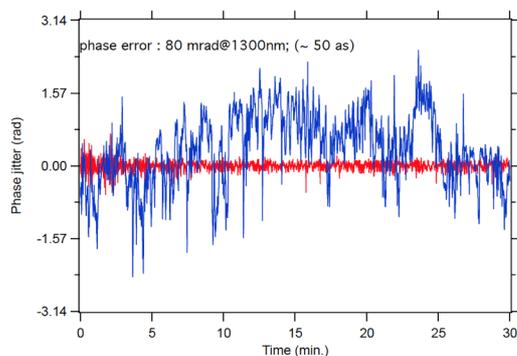


図 5. マッハチェンダー干渉計の安定度

が観測された (青ライン)。そこで 1350 nm の光学経路にウェッジプレートを挿入し、計測した相対位相値を参照信号として、動的なフィードバックをかけ、遅延経路の安定化を行った。結果、光学経路のドリフトを 50 as にまで低減することに成功した (赤ライン)。

一方、OPA1 内の白色光生成において発生する遅延ジッターについては、アト秒の時間分解能を持つ balanced optical cross-correlator (BOC) 法を用いて評価と動的制御を行った。構成した BOC の時間分解能は約 24 as であり、これは光の 1 周期 (2.7 fs@800 nm) と比べて十分に小さく、正確なタイミングジッターの評価が可能となっている。BOC の信号をエラー値として 800 nm と 1350 nm の 2 色パルス間の遅延ジッターの動的制御を行い、330 as の同期精度を達成した。これらの 2 波長パルス間の同期系の整備により、安定的に高強度アト秒パルスの発生が可能となった。また 2 波長レーザーの出力エネルギーは約 50 mJ であり、IAP の出力スケールアップから GW 級のアト秒パルスを得るのに十分な励起レーザーエネルギーを実現することに成功した。図 6 に計算から予測される二波長合成レーザー強度分布を示す。パルスの中心部 (0 fs) において隣あうレーザー強度比として 0.85 程度が得られる。この強度比はパルス幅 5 fs の 800 nm 光と同一である (図 6 挿入図、赤線)。

開発した高出力 2 波長合成レーザーを長距離の集光光学系で希ガスターゲットに集光し、高調波発生実験を行った。図 6 挿入図に各パルスの集光プロファイルを示す。集光点において同一の空間プロファイルを持つように、アパーチャー及びレンズ位置の調整を行った。Xe ガス媒質では、過去の実験と同様に 40 nm 近辺において連続スペクトルが得られた。上記のレーザー同期系を動作させることにより、高調波スペクトルの強度安定度が向上することが確認された。また Ar を媒質として用いた実験では、22 nm 領域において連続スペクトルを得られた。これまでの実験と比較して 20 nm 近い短波長化を実現しただけでなく、軟 X 線域において GW 級のアト秒光源を得る為の基礎データを取得することに成功した。

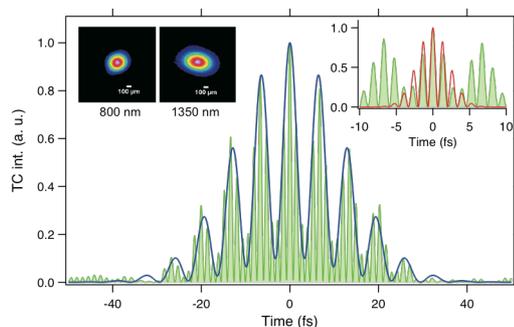


図 6. 2 波長合成レーザー強度分布

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

- ① E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Muecke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, Nonlinear Attosecond Metrology by Intense Isolated Attosecond Pulses, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 21, 1-12 (2015). (査読有り), 10.1109/JSTQE.2015.2405899
- ② Y. Fu, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, High-energy infrared femtosecond pulses generated by dual-chirped optical parametric amplification, Opt. Lett. 40, 5082-5085 (2015) (査読有り), 10.1364/OL.40.005082
- ③ Y. Fu, E. J. Takahashi, Q. Zhang, P. Lu, and K. Midorikawa, Optimization and characterization of dual-chirped optical parametric amplification, Journal of Optics 17 (2015) (査読有り), 10.1088/2040-8978/17/12/124001
- ④ M. Toyoda, (他 9 名), Demonstrating 30-nm spatial resolution of three-multilayer-mirror objective for extreme ultraviolet microscopy: Imaging test by observing lithography mask, Applied Physics Express, 7, 102502 (2014) (査読有り), 10.7567/APEX.7.102502

〔学会発表〕(計 21 件)

- ① M. Toyoda, Multilayer Mirrors for Focusing Objective in 40-nm Wavelength Region, The 15th International Conference on X-Ray Lasers, 2016/5/22-2016/5/27, 奈良春日野国際フォーラム, 奈良県・奈良市
- ② E. J. Takahashi, Carrier-envelope phase stabilization of a 10-Hz high-energy Ti:sapphire laser, ATTO 2015, 2015/7/6-2015/7/10, モントリオール(カナダ)
- ③ E. J. Takahashi, High-energy infrared pulses by dual-chirped optical parametric amplification, Ultrafast Optics 2015, 2015/8/16-2015/8/21, 北京(中国)
- ④ E. J. Takahashi, Generation of high-power isolated attosecond pulses by an infrared two-color gating, 2014/10/20-2014/10/23, ツーソン(米国)

〔図書〕(計 1 件)

- ① 高橋栄治, 緑川克美, 水の窓領域におけるフルコヒーレント光の発生, 0 plus E,

〔その他〕

http://www.riken.jp/ExtremePhotonics/attosec/index_j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 栄治 (TAKAHASHI Eiji)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学
研究領域・専任研究員

研究者番号: 80360577

(2) 研究分担者

豊田 光紀 (TOYODA Mitsunori)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号: 40375168