

## 論文の内容の要旨

論文題目 高出力固体レーザーと極端紫外光の発生

氏名 富樫 格

### 1. 概要

近年、超短パルス高出力レーザーの発展に伴い、高次高調波が極端紫外、軟X線領域まで達し、それ自身が光源として応用できるようになった。この領域の光源は、内殻励起による物質のコアの構造解明や、光電子分光による固体のフェルミ面近傍の電子状態の研究などに必要不可欠なものであり、現在、軌道放射光が主に用いられている。

高次高調波は、フェムト秒のパルス幅を持つため、時間分解分光用光源として非常に有効である。一方で、高分解能光電子分光のような狭帯域を必要とする分光用光源としても興味深い。現在、光電子分光用光源として用いられている軌道放射光や放電ガスランプのバンド幅が $\sim$ THz程度で、光電子分光装置の分解能が光源のバンド幅に制限されている。レーザーによる高調波は、そのバンド幅がレーザーのバンド幅程度になるため、 $\sim$ GHz程度に狭めることは容易である。また、最近、固体物性分野で注目を浴びている超伝導体などは、サンプルの大きさが $100\mu\text{m}$ 程度のものが多く、空間分解能も非常に重要な要因になっている。放電ガスランプは、インコヒーレント光であるため、 $\sim$ mm程度しかスポットサイズを絞り込むことができないのに対し、高調波は、空間コヒーレンスが非常に優れているため $\sim\mu\text{m}$ 程度に絞ることが可能である。つまり、光電子分光用光源として、高調波を用いれば、スペクトル分解能のみならず、空間分解能をも向上させることができるわけである。

本研究では、まず、Ti:sapphireと同様に広帯域な利得スペクトルを持つCr:forsteriteを用いて超短パルス発振を行い、チャープパルス増幅(CPA)により高出力化に成功し、77fs、5.2GWのピークパワーを得ることができた。これは、Cr:forsteriteレーザーにおいて最高である。次に、Ti:sapphireレーザーシステムの高繰り返し化を行った。5kHz、22fs、0.2TWのピークパワーを得ることができた。さらにこの増幅段を共有して、光電子分光用狭帯域極端紫外光発生のための高出力狭帯域波長可変レーザーシステムを開発した。平均出力32Wを得ることができ、これはTi:sapphireレーザーシステムにおいて最高の平均出力である。非線形結晶により波長変換を行うことで、2倍波、12W、3倍波、6.3Wの平均出力を得ることができた。この3倍波の出力は、波長可変紫外レーザーでは最高である。さらに、この3倍波、及び基本波により、Xeを用いた2光子共鳴4光波混合を行うことで、XUV、VUV光を得ることができた。この出力は、XUV光で $1\mu\text{W}$ 、VUV光で1mWであった。

## 2. フェムト秒高出力 Cr:forsterite レーザーシステム

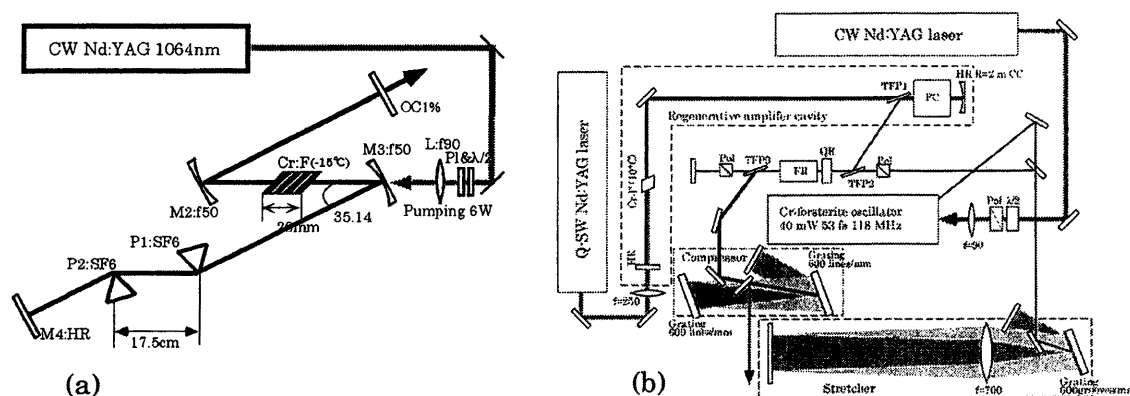


図1、Cr:forsterite カーレンズモード同期発振器(a)と CPA レーザーシステム(b)

Cr:forsterite は、フォレストライト ( $Mg_2SiO_4$ 、苦土カンラン石) に Cr をドープしたもので、最初に  $Cr^{4+}$  をレーザー活性イオンとして用いたレーザー結晶である。発振波長が、 $1.1\sim 1.3\mu m$  と広帯域であるため、Ti:sapphire と同様に、カーレンズモード同期による超短パルス発振が可能である。この波長は、生体分子の分光や、通信の分野への応用が期待されている。また、この結晶は吸収のピークを  $1\mu m$  付近に持つため、Nd:YAG レーザーの基本波で励起することができる。そのため、Nd:YAG レーザーの 2 倍波で励起しなければならない Ti:sapphire に比べ、高出力化が期待できる。

まず、カーレンズモード同期によるフェムト秒発振器の製作を行った (図 1,(a))。Z 型の共振器中に SF6 のプリズム対を挿入し、結晶の分散を補償している。結果、53fs の超短パルスが得られ、このときのバンド幅が 9.6THz で、時間幅とバンド幅の積は 0.50 となり、ほぼフーリエ限界パルスが得られている。

次に、チャープパルス増幅による、増幅システムの製作を行った (図 2,(b))。発振器からのフェムト秒パルスはストレッチャーにより 50ps 程度まで、引き延ばされる。その後、増幅器により増幅を行うが、増幅器を設計する上で、Cr:forsterite 結晶の利得を見積もる必要がある。そこで、発振器からの出力を利用して利得の測定を行った。以前から、Cr:forsterite には、レーザー励起準位における再吸収(Excited State Absorption: ESA)が指摘されており、測定結果は、これを考慮に入れたレート方程式から求められる利得の計算結果とよい一致をみせた。この ESA の影響で、励起光のエネルギーが浪費されるため、高い励起エネルギーにより、大きい利得を得るマルチパス増幅器には適さないことがわかった。そこで、増幅器には再生増幅器を用いた。また、レート方程式を用いて、この再生増幅器の評価も行った。再生増幅器による増幅の結果、0.8mJ のパルスエネルギーを得ることができた。これをコンプレッサーで圧縮することで、77fs、5.2GW のピークパワーを得ることができた。このときのバンド幅は 3.9THz であり、パルス幅とバンド幅の積は 0.30 でフーリエ限界パルスであるといえる。

## 3. 高繰り返し全固体波長可変レーザーシステムによる極端真空紫外光発生

高調波は光電子分光などのような極端紫外領域スペクトル分光用光源としても非常に有効である。高分解能の面から、サブギガヘルツ程度の狭帯域バンド幅が要求される。これは、サブナノ秒のパルス幅に相当するため、高次高調波発生に十分な光強度が得られな

い。そこで、希ガスの2光子共鳴4光波混合により極端紫外光の発生を行う。Xeの $5p^1S_0$   $6p[5/2]_2$ 遷移の2光子励起波長は256.01nmであるため、Ti:sapphireレーザーの3倍波に相当し、XUV光は3倍波の3次光( $3 \times 3\omega$ :85.3nm)として、VUV光は3倍波と基本波の差周波( $2 \times 3\omega - \omega$ :153.6nm)をとることで得られる(図4)。3倍波発生には非線形結晶を用いる。また、励起準位に波長を調節する必要があるため、波長可変レーザーであることが要求される。Ti:sapphireレーザーの波長は768.05nmにすればよい。

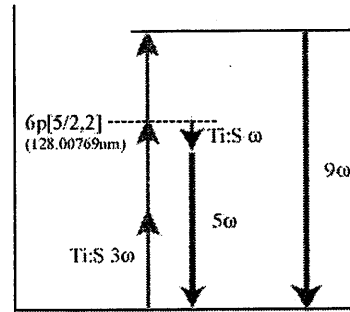


図4、Xeの2光子共鳴4光波混合模式図

(1). 5kHz、狭帯域波長可変 Ti:sapphire レーザーシステム

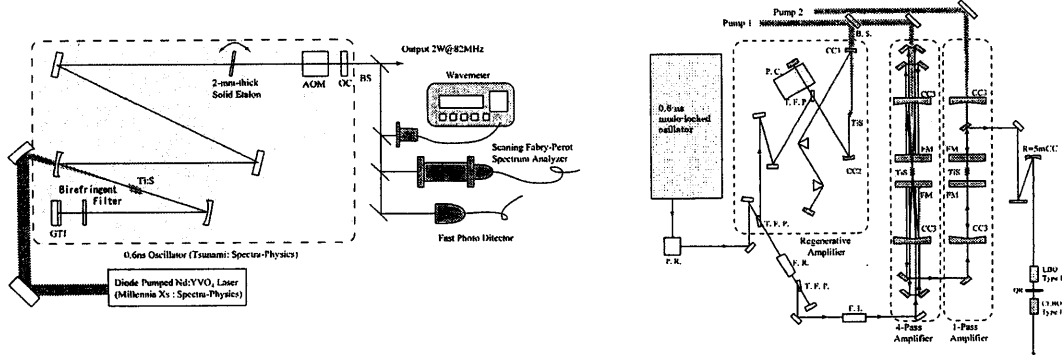


図5、狭帯域波長可変 Ti:sapphire 発振器(a)及びレーザーシステム(b)

5kHz 超短パルスレーザーシステムの増幅系を共用して、高分解能光電子分光用光源として狭帯域極端紫外光発生を目指した、狭帯域波長可変レーザーシステムの製作を行った。

まず、100psのパルス幅を得られる“Tunami”の共振器中にコーティングを施していない2mmの石英基盤をエタロンとして挿入することで、0.71GHzの狭帯域化に成功した(図5、(a))。このときのパルス幅は0.62nsであり、パルス幅とバンド幅の積は0.44と与えられ、これは、フーリエ限界パルスであることを意味する(図6)。このエタロンの入射角をステップモーターで微調節することにより、波長を1pmの精度で変化させることができる。

このようにして得られたサブナノ秒のパルスを種光として、再生増幅器及びマルチパス増幅器で増幅を行った(図5、(b))。サブナノ秒パルスの増幅は、超短パルスの増幅法であるチャープパルス増幅と違い、ストレッチャー、コンプレッサーを必要としない。よって、これらで使われている回折格子などの光学素子による損失がなく、さらなる高出力化(平均出力)が期待できる。結果、800nmで32Wの平均出力を得ることができた。

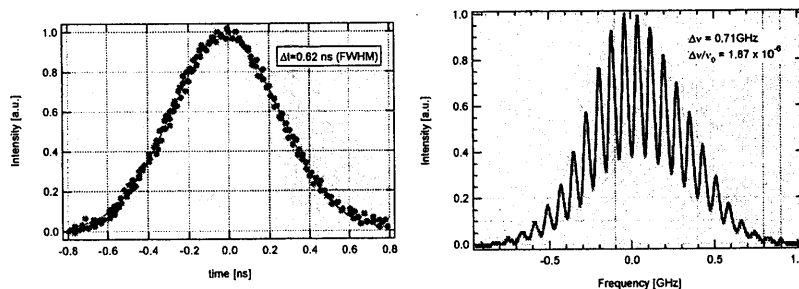


図6、狭帯域波長可変発振器の時間波形(a)とスペクトル(b)

## (2). 非線形結晶による波長変換

以上のようにして得られた増幅後のパルスを、非線形結晶により波長変換を行った。まず、2倍波発生用結晶としてLBO Type Iを用いた。LBOは786nmでのWalk offが0.93と非常に小さく、 $d_{eff}$ も0.70 pm/Vと比較的大きい。R=5mの凹ミラーで集光することにより、384nmで10.2W、400nmで12Wの平均出力を得ることができた。3倍波発生にはBBO Type IとCLBO Type Iを試みた。これらの結晶は2倍波発生用結晶の直後におくことで、2倍波と残りの基本波を同軸で集光している。2倍波と基本波の偏光をそろえるため、水晶偏光板を2倍波発生用結晶と3倍波発生用結晶の間にしている。BBOは、 $d_{eff}$ が1.76 pm/Vと非常に大きく、Walk offも $5.02^\circ$ と大きい。逆に、CLBOの $d_{eff}$ は0.82pm/VとBBOと比較して小さく、Walk offも $2.05^\circ$ と小さい。結果、256nmでは、BBOを用いたとき3.6W、CLBOを用いたとき4.2Wの平均出力を得ることができた。これは、ビームがソフトフォーカスなので、 $d_{eff}$ の大きさよりも、Walk offの小ささの方が効果的であったといえる。266nmでは、CLBOにより6.3Wの平均出力を得ることができた。

## (3). XUV、VUV光発生

XUV光の発生は、この3倍波をXeガスチューブに集光することで行った(図8)。集光にはf=1000のレンズを用いた。発生したXUV光は、斜入射のビームスプリッターで、3倍波と分離して、真空分光器と電子増倍管で測定した。電子増倍管の出力が $7 \times 10^8$  C(クーロン)であったので、ビームスプリッターの反射率、分光器のスリット及び回折効率、電子増倍管の増幅率を考慮に入れ見積もると、1 $\mu$ Wの平均出力に相当する。

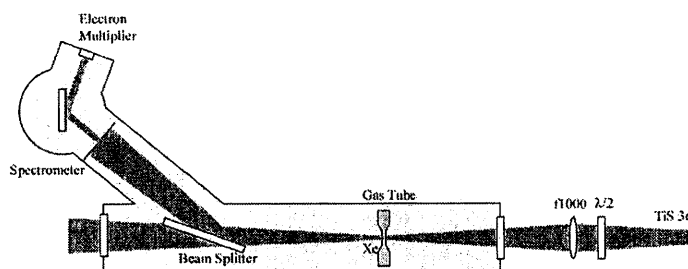


図8、XUV光発生装置及び測定装置

VUV光は、LiFやCaF<sub>2</sub>の窓材を使うことができるので、VUV光の発生には、ガスセルを用いた(図9)。ガスセルは、圧力を自由に変えることができ、相互作用長を長くすることができる。ガスセルへの集光は、3倍波と基本波を同軸にR=1mの凹ミラーで行った。集光点での3倍波と基本波のビーム径を一致させるために、3倍波と基本波を一度分離し、基本波のビーム径をf=300mmとf=-250mmのレンズで調節できるようにしている。発生したVUV光は、LiFウインドウを通して計測系へ送られ、CaF<sub>2</sub>プリズムで、3倍波、基本波と分離した。その後、f=400mmのCaF<sub>2</sub>レンズでパワーメーター上に集光して、直接、平均出力を測定した。結果、1mWの平均出力を得ることができた。

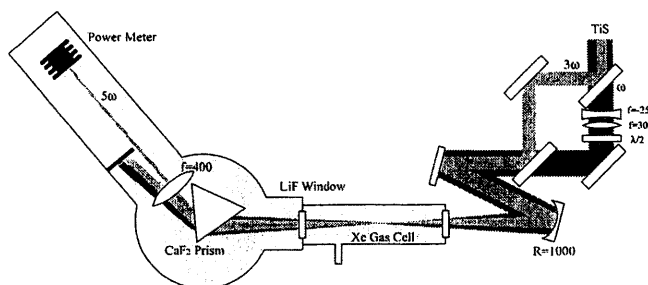


図9、VUV光発生装置及び測定装置