

論文の内容の要旨

論文の題目 非線型結晶による波長変換を用いた
超短パルス光及び深紫外光の発生

氏 名 金井 輝人

超短パルスレーザーの特徴として、時間的・空間的な高光子密度特性が挙げられる。応用としては、超高速現象の高時間分解能測定、高精度加工などがある。特に、近年の超短パルスレーザーやその増幅技術の進歩は、高次高調波発生や光電場による直接電離を用いたX線レーザーの実現など高強度電場と物質の相互作用に関する研究を急速に進展させつつある。フェムト秒レーザーより3桁短いアト秒パルスにより、新たな分野が開拓されようとしている。

アト秒パルスを発生するには、光の周波数を高くする、すなわち波長を短くすることが必要となる。高次高調波発生はアト秒パルス発生の有効な手段である。また、高調波は超短パルス性と空間コヒーレンスを兼備するため、極端紫外・軟X線の高光電場を生成することができる。高次高調波の出現により、極端紫外・軟X線領域の光源として利用可能となった。

本研究では、高次高調波の隣り合う次数の周波数間隔を広げ、スペクトルの重ならない、孤立したアト秒パルスを発生させるために、波長が短く(周波数が高く)、パルス幅の短い(サブ 10 fs)青色レーザーパルス光源を開発した。非線型結晶による広帯域波長変換により帯域を基本波の2倍に広げ、基本波の半分のパルス幅を2倍波で得た。これが本論文の第1部を成す。

実際にこのレーザー光源はアト秒発生実験に使用され、2004年に950 asの高次高調波パルスの自己相関波形を計測した。更に、2006年に、860 asの高次高調波パルスを周波数分解光ゲート法(FROG)法で計測した。

一方、非線型結晶を用いた波長変換は、超短パルス化のみならず、産業応用に期待が大きい深紫外光の発生にも有用である。現在の45-nm node 半導体リソグラフィ用光源はArFエキ

シマレーザーであるが、固体レーザーの非線型結晶を用いた波長変換は、その波長($\lambda = 193.5$ nm)のマスクパターンの検査光源、あるいは ArF エキシマレーザーの種光としてのポテンシャルを有する。

非線型結晶による波長変換により深紫外光を得るためには、深紫外域で広帯域に透過率を有し、第 2 高調波で深紫外光を発生させるために大きな複屈折性を有し、位相整合により波長変換させるために大きな非線型性を有することが条件である。深紫外域において 155 nm まで透過し、その波長まで位相整合条件を満たし、また非線型定数が大きい非常に優れた新しい非線型結晶、KBBF($\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$)が中国科学院の陳教授らによって開発された。KBBF 結晶は、第 2 高調波でコヒーレントな真空紫外光(VUV)を発生させる事が可能な唯一の非線型結晶である。この非線型結晶 KBBF を用いて位相整合による最短波長な光源および高出力な深紫外光源の開発を行った。これが第 2 部を成す。

第 1 部 非線型結晶を用いた短パルス化(サブ 10 fs 光の発生)

群速度ミスマッチ問題を解決するため、図 1 のような光学系を用いて、全帯域 SHG を試みた。

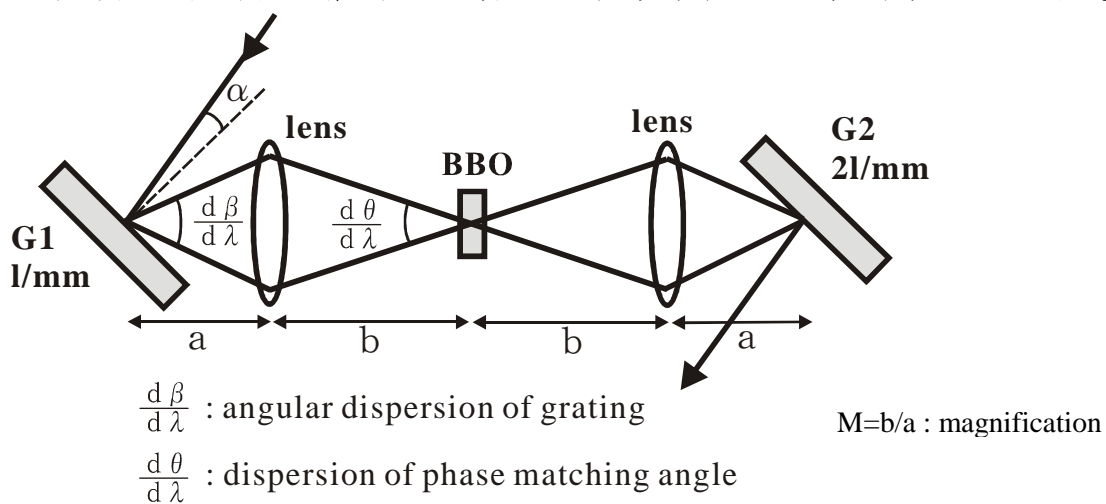


図 1 広帯域 SHG 発生(Broadband Frequency Doubling)光学系

まず、回折格子1(G1)の角度分散を利用して、波長毎に位相整合角で結晶に入射させる。レンズの働きは縮小率を決めると同時に回折格子上の像を結晶に転写することである。発生した SHG の角度分散を補償するために、結晶を中心に折り返した光学系で、逆の転写を行う。回折格子 2 は、半分の波長の角度分散を補償するため回折格子 1 の 2 倍の溝本数を持つ。これにより、全帯域の変換することができる。

ここで、 $d\beta/d\lambda$ は G1 の角度分散であり、 $d\theta/d\lambda$ は非線型結晶の位相整合角分散であり、拡大倍率 $M=b/a$ である。 a と b はそれぞれ回折格子からレンズまで、レンズから BBO 結晶までの距離である。この光学系を用い青色(400 nm)の 8.5 fs パルスを得る事ができた。パルス幅 12 fs のとき、平均出力は 5 kHz で 1.6 W、1 kHz で 1.9 W であった。ピークパワーは 1 kHz のときに 0.16 TW で、パルスエネルギーは 1.9 mJ であった。広帯域波長変換光学系のスループットは 22~23 % であった。

更に高出力化を図るために、ビーム径を上げると顕著になる収差を補正した以下の図 2 のような望遠鏡型光学系を組んだ。

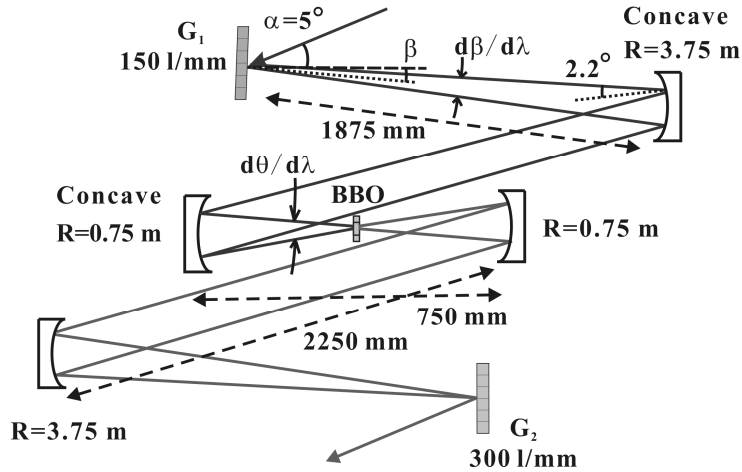


図 2 望遠鏡型広帯域 SHG 発生(Broadband Frequency Doubling)光学系

この光学系を用いることにより、収差が補正されたことが、光線追跡による計算と、干渉計によるパルスフロント測定の実験により確かめられた。この光学系で得られたパルスの幅は 10 fs、ピークパワーおよびパルスエネルギーはそれぞれ、1.4 TW、14 mJ であった。

第 2 部 非線型結晶を用いた短波長化(深紫外光の発生)

中国科学院の陳教授らによって開発された **KBBF** 結晶は透過波長が小さく、短波長の高調波を生み出せ、非線型光学定数が高い理想的な非線型結晶である。特に SHG の最短波長が 164 nm もの短波長であることは極めて魅力的である。現状で KBBF は 200 nm 以下を SHG で発生させる事が出来る唯一の結晶である。

唯一の欠点は現状では光軸方向に最大でも 2~3 mm 程度までしか結晶成長させられない事である。また、それによって面のカットも制限されてしまう。そのため、位相整合条件を満たすような角度でレーザー光を結晶に入射させようとしても表面で全反射してしまう。

このような問題を回避するため、KBBF を CaF_2 のプリズムで挟み込み、オプティカルコンタクトさせ、それによって位相整合を満たす手法を考案した。それを **Prism coupling** と呼び、この素子を KBBF-PCD (KBBF prism coupling device) と呼ぶ事にする。図 3 にその概要を示す。

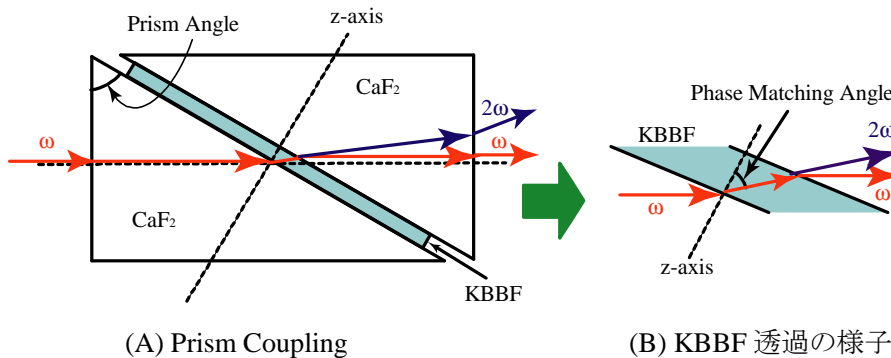


図 3 KBBF-PCD

KBBF-PCD を用いて、波長変換により深紫外光を発生させた。まず、KBBF 結晶が発生させる最短波長に挑戦した。シングルモードの **Ti:sapphire** レーザー(基本波 780 nm)の 5 ω として 156 nm を発生させた。これは非線型結晶を用いた位相整合による最短波長である。

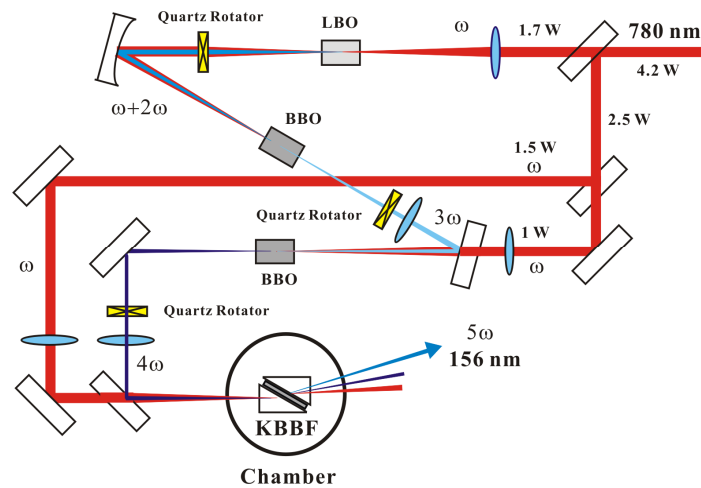


図 4 5 ω 発生光学系

図 4 にその発生光学系を示す。Ti:sapphire レーザーからの基本波 ω の出力 4.2 W は、2.5 W と 1.7 W に分割される。2.5 W のビームは更に分割されて、1 W が 4ω 発生に、1.5 W は 5ω 発生に使用される。Quartz rotator は偏光を縦方向に戻し、結晶の Z 軸に垂直になるよう SHG、SFM の前に挿入されている。 ω 、 4ω とともに焦点距離 300 mm のレンズで 1.2 mm 厚の KBBF 結晶に集光される。なお、KBBF 結晶は、乾燥窒素で満たされたチャンバー中にセットされた。LBO 結晶で 2ω を発生させ、その 2ω と波長変換されずに残った ω の和周波 3ω を BBO 結晶で発生させる。その 3ω と予め切り分けておいた ω とで和周波 4ω を BBO 結晶で発生させる。その 4ω と ω との和周波として 5ω を KBBF-PCD で発生させるスキームである。

また KBBF-PCD を用いて Nd:YVO₄ 準 CW レーザーの 6ω 光 (177.3 nm) を発生させ、超高分解能光電子分光用の光源を開発した。光電子分光の時間分解の記録を塗り替え、現在も物性研究の無二のツールとして使用され、多くの成果を挙げている。

最後に深紫外光の高出力化を目指した。実用性のある光源とするため、産業用に需要の高い 193.5 nm で平均出力ワット以上の光源開発を行った。Ti:sapphire レーザー 774 nm の 4ω とし 193.5 nm、5 kHz で平均出力 1.05 W を得た。またチューナブルな深紫外光源として 200 nm から 185 nm までの深紫外を発生させた。200 nm で 1.2 W、188 nm で 0.72 W、185 nm で 0.2 W が得られた。非線型結晶を用いた波長変換で得られた 200 nm 以下の深紫外光としては最高出力である。これらの結果を図 5 に示す。

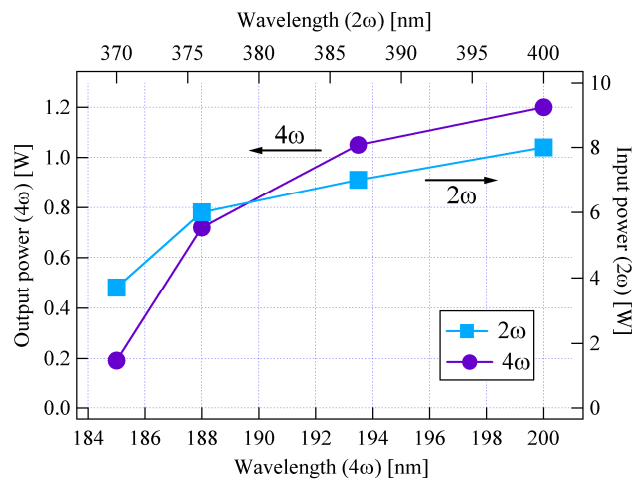


図 5 波長毎の 4ω 深紫外光の発生強度および対する入射 2ω 光強度