

レーザーによる EUV・X線の発生

藤 貴夫

分子科学研究所 レーザーセンター 准教授

自己紹介

- ▶ 1999 年 博士 (工学): 筑波大学大学院工学研究科 (中塚宏樹教授)
- ▶ 1999–2002 年: 東京大学理学部物理学教室 助手 (小林孝嘉教授)
- ▶ 2002–2004 年: JSPS 海外特別研究員 ウィーン工科大学 (Krausz 教授)
- ▶ 2004–2006 年: マックスプランク量子光学研究所 (Krausz 教授)
- ▶ 2006–2010 年: 理化学研究所 鈴木化学反応研究室 (鈴木主任研究員)
- ▶ 2010 年 2 月より現職:

専門分野: 非線形光学、超高速現象、レーザー開発

加速器の利用経験: UVSOR, SCSS

J. Synchrotron Rad. **5** 1072 (1998), Phys. Rev. A **81** 031403(R) (2010)

講演の概要

Table-top のレーザー装置による EUV・X線の発生

- ▶ 高次高調波発生 → EUV、X線、世界最短パルス発生
- ▶ 10 フェムト秒紫外光パルス発生と光電子分光

レーザーによる EUV・X線発生

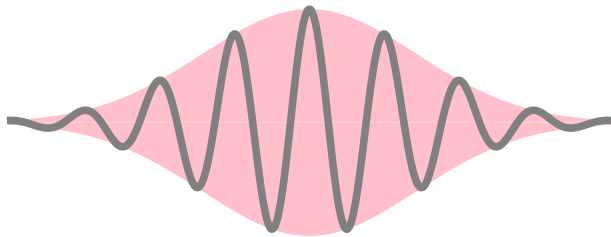
- ▶ 直接発振器からの発生は不可能 (FEL を除く)
- ▶ **非線形光学効果による波長変換: 高次高調波発生** → 高強度電場を作りやすい超短光パルス (チタンサファイアレーザーが主流) が有効
- ▶ 波長変換媒質
 - ▶ 気体: コヒーレンスが保たれ、アト秒パルス発生が可能
 - ▶ 固体: インコヒーレント光だが、短い波長の光を発生できる。

超短光パルスレーザー開発者の目標: 世界最短パルスの発生

短いパルスを発生させるためには、短い波長のコヒーレント光を発生させることが有効 → レーザーによる EUV・X線発生は、超短光パルスレーザー開発者にとって、常に重要な課題

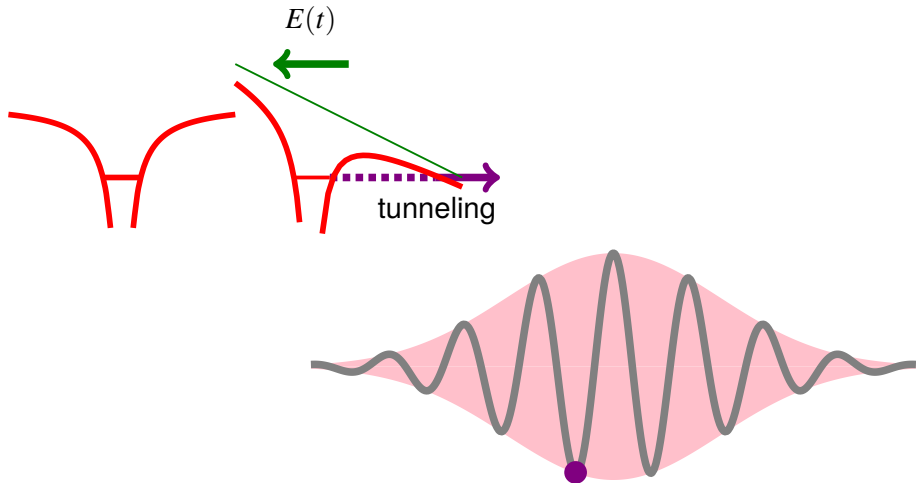
高次高調波発生 の原理

原子に高強度光パルスを入射する → 極端紫外光が発生



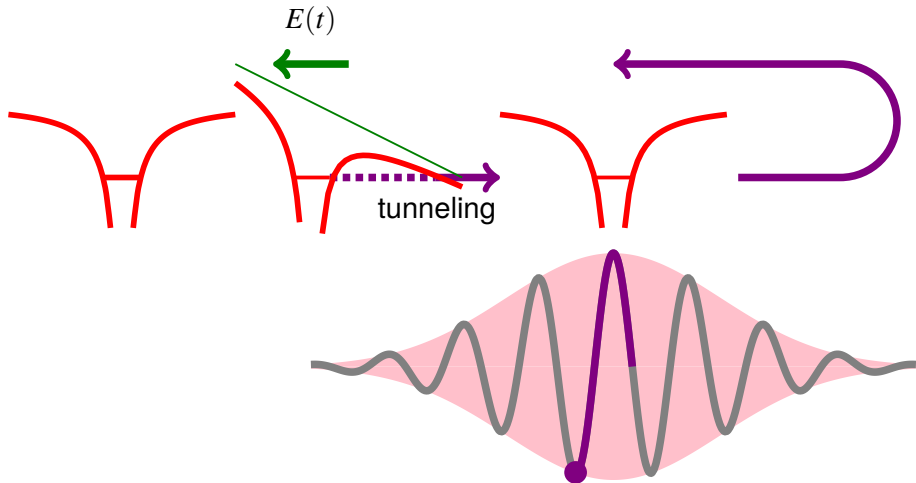
高次高調波発生 の原理

原子に高強度光パルスを入射する → 極端紫外光が発生



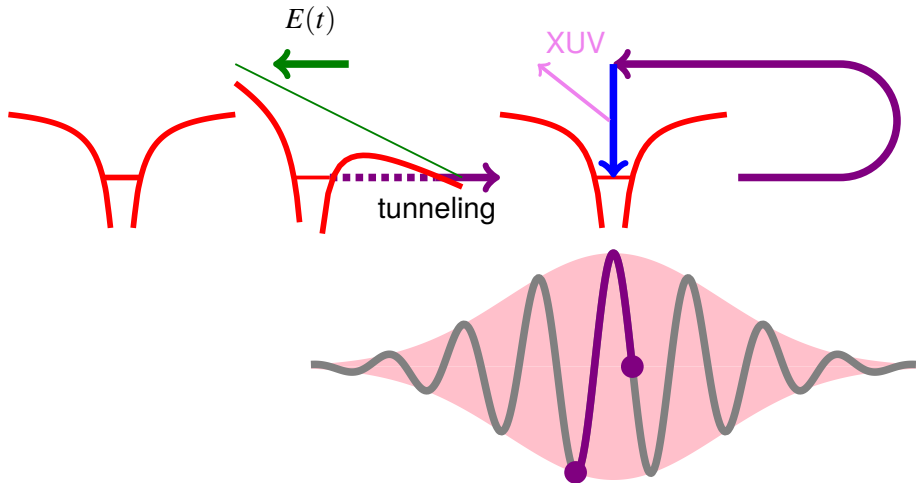
高次高調波発生 の原理

原子に高強度光パルスを入射する → 極端紫外光が発生

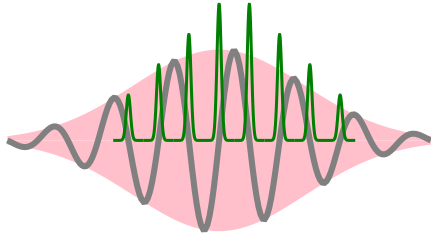
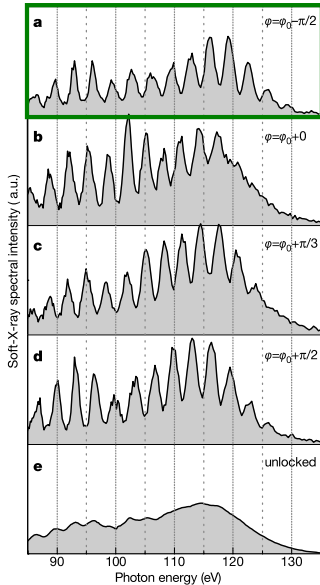


高次高調波発生 の原理

原子に高強度光パルスを入射する → 極端紫外光が発生

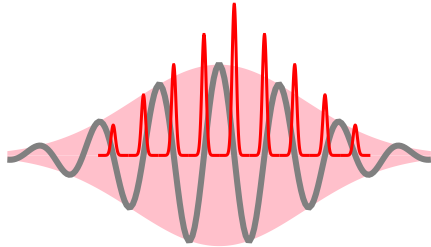
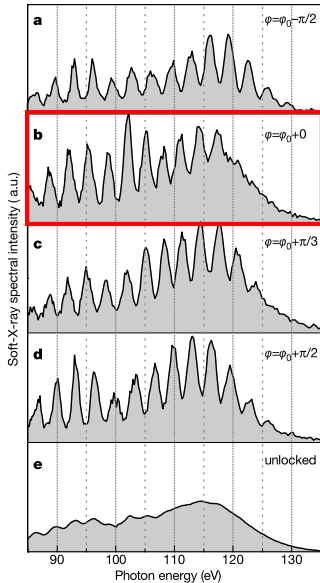


アト秒パルス発生



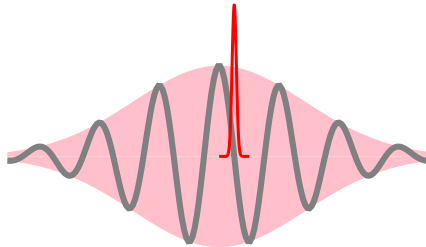
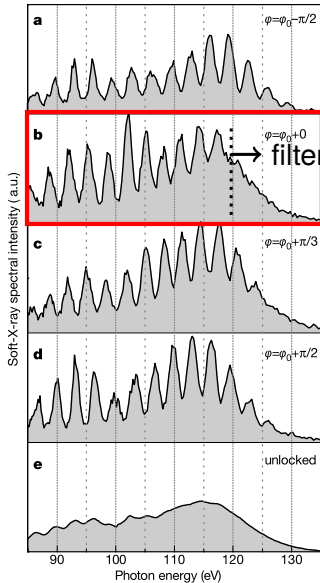
A. Baltuška et al. Nature, **421**, 611 (2003)

アト秒パルス発生



A. Baltuška et al. Nature, **421**, 611 (2003)

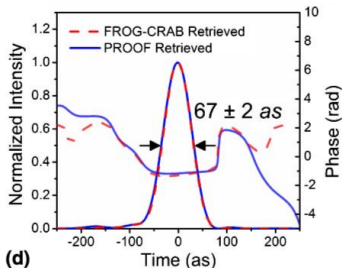
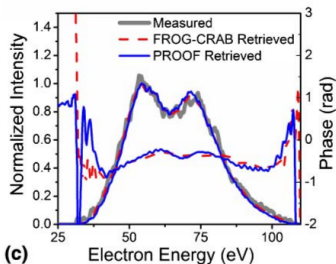
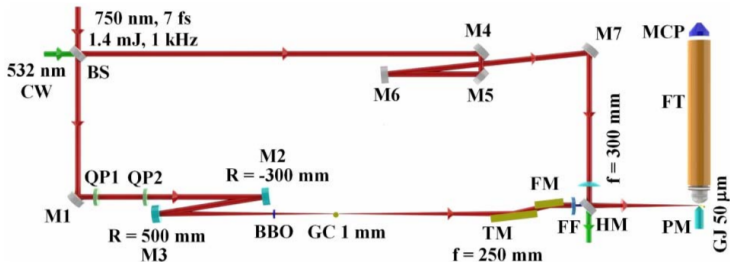
アト秒パルス発生



filtering → single attosecond pulse

A. Baltuška et al. Nature, **421**, 611 (2003)

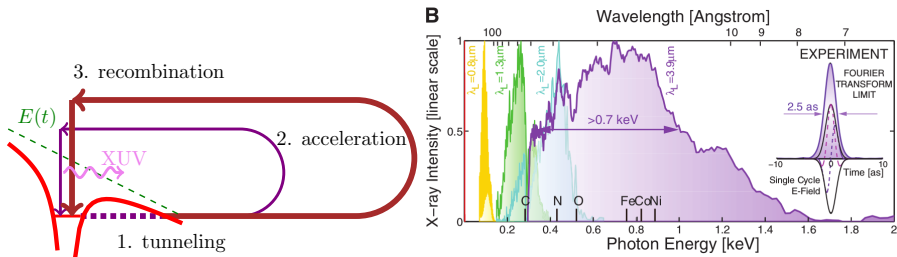
現在の世界最短パルス: 67as



K. Zhao, et al. Opt. Lett. **37** 3891 (2012)

高い光子エネルギーのパルス

長い波長のレーザー ($0.8\mu\text{m} \rightarrow 3.9\mu\text{m}$) を使うことによって、高い光子エネルギーの高調波が得られる。

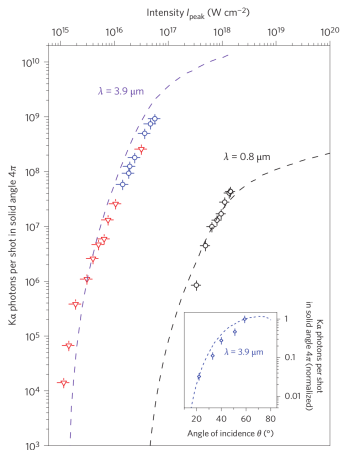
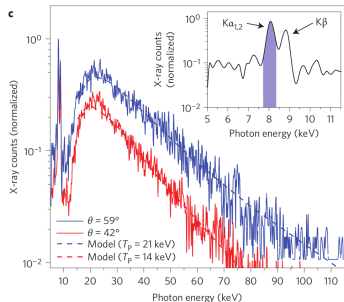
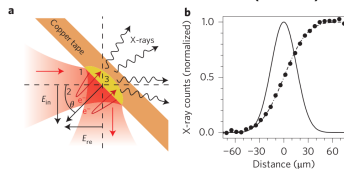


1keV(全体の1%)で 10^5 photons/shot (10^6 photons/s@20Hz) の輝度
T. Popmintchev, et al. Science **336** 1287 (2012)

全スペクトルの位相がそろえば、2.5 アト秒のパルスになる。
実際は1 フェムト秒程度になっていると推測される。

高い光子エネルギーのパルス

気体ではなく、固体(金属)から高調波を発生させる。



8keV で、 10^9 photons/shot (1.6×10^9 photons $\text{sr}^{-1} \text{s}^{-1}$)

J. Weisshaupt, et al. DOI: 10.1038/NPHOTON.2014.256

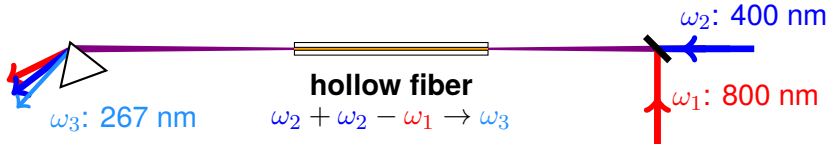
深紫外領域の超短光パルス発生

理化学研究所におけるプロジェクト: **10 フェムト秒程度の深紫外光パルス (<300nm)** を使った気相分子に対する超高速光電子イメージング分光

深紫外光パルス発生の問題点:

- ▶ レーザーで直接発生させるのは無理
- ▶ 固体結晶を使った波長変換: 結晶の透過帯域によって制限される。
- ▶ 気体を使った波長変換: 非線形屈折率が小さく、効率が低い。

従来の方法: 希ガスを充填した中空ファイバで相互作用長を確保する。



ex. OL **24** 697 (1999), PRL **87** 013601 (2001), JOSAB **19** 822 (2002)

分光に利用されたことはなかった ← ファイバの調整が難しい

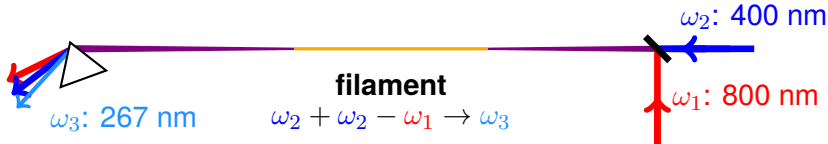
深紫外領域の超短光パルス発生

理化学研究所におけるプロジェクト: **10 フェムト秒程度の深紫外光パルス (<300nm)** を使った気相分子に対する超高速光電子イメージング分光

深紫外光パルス発生の問題点:

- ▶ レーザーで直接発生させるのは無理
- ▶ 固体結晶を使った波長変換: 結晶の透過帯域によって制限される。
- ▶ 気体を使った波長変換: 非線形屈折率が小さく、効率が低い。

従来の方法: 希ガスを充填した中空ファイバで相互作用長を確保する。

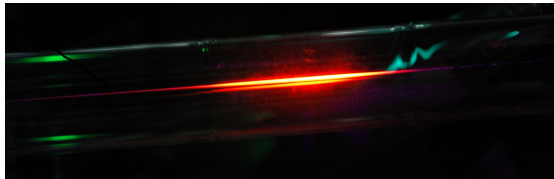
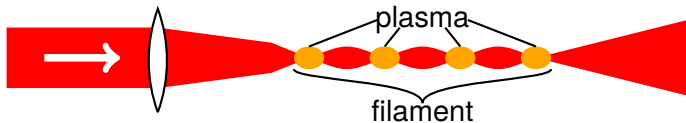


ex. OL **24** 697 (1999), PRL **87** 013601 (2001), JOSAB **19** 822 (2002)

ファイバを使わなくてもできる?

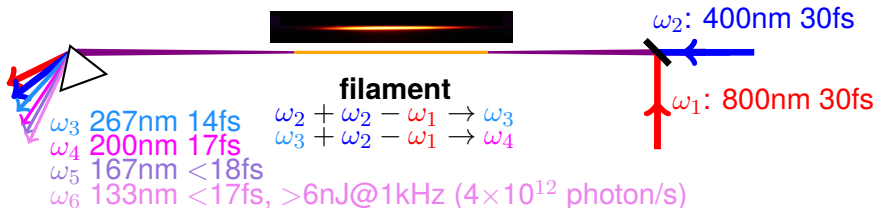
フィラメンテーション

高強度パルスによる非線形効果での屈折率増加と媒体のイオン化による屈折率減少がつりあって、集光されたままレイリー長よりも長い距離を伝搬する現象 (Opt. Lett. **20** 73 (1995)): 中空ファイバと同様の効果が期待できる。



入射光パルスが高強度な状態で長い距離を伝搬
→ 気体を非線形媒質としながら高い波長変換効率

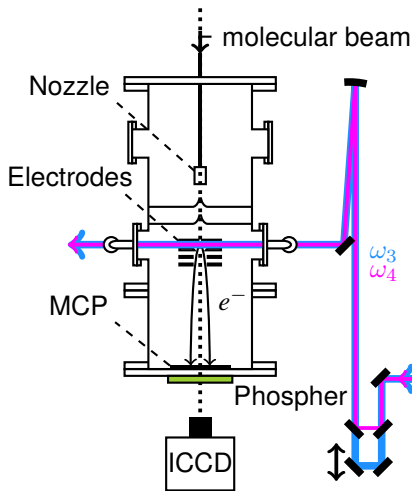
フィラメンテーションによる 超短深紫外光パルス発生



- ▶ T. Fuji, T. Horio, and T. Suzuki, *Opt. Lett.* **32** 2481 (2007)
- ▶ T. Fuji, T. Suzuki, E. E. Serebryannikov, and A. M. Zheltikov, *Phys. Rev. A* **80** 063822 (2009)
- ▶ P. Zuo, T. Fuji, and T. Suzuki, *Opt. Express* **18** 16183 (2010)
- ▶ P. Zuo, T. Fuji, T. Horio, S. Adachi, and T. Suzuki, *Appl. Phys. B* **108** 815 (2012)
- ▶ T. Horio, R. Spesyvtsev, and T. Suzuki, *Opt. Express* **21** 22423 (2013)
- ▶ T. Horio, R. Spesyvtsev, and T. Suzuki, *Opt. Lett.* **39** 6021(2014)

光電子イメージング分光への応用

多原子分子を対象とした光電子分光では最も高い時間分解能:



pyrazine
JACS **131** 10392
JCP **132** 174302

furan
JCP **132** 174302

benzene
JCP **134** 184313

CS₂
Chem. Asian J. **6** 3028

まとめ

Table top レーザー装置による EUV・X線発生

- ▶ 世界最短パルス 67 アト秒@60eV
- ▶ コヒーレント光で最も高い光子エネルギー：
<1.6keV, 10^6 photon/s、パルス幅 1fs
- ▶ インコヒーレント光で最も高い光子エネルギー：
8keV, 10^{10} photon/s、パルス幅 100fs
- ▶ Bremsstrahlung の成分は、~50keV ぐらいまででている。
- ▶ フィラメンテーションによる波長変換では、
9.3eV、 4×10^{12} photon/s、パルス幅 17fs

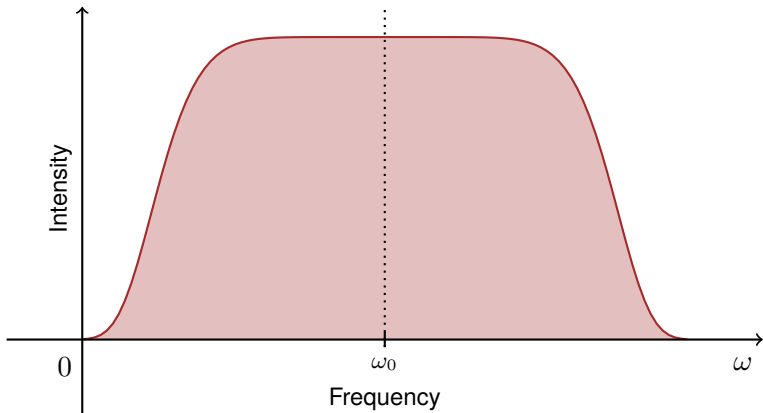
世界最短パルスの歴史

1987年:	6fs	Opt. Lett. 12 483 (1987)
1997年:	4.5fs	Opt. Lett. 22 102 (1997)
	4.5fs	Opt. Lett. 22 522 (1997)
2002年:	3.9fs	Opt. Lett. 27 306 (2002): Baltuška, Fuji, Kobayashi
	3.8fs	Phys. Rev. Lett. 88 203901 (2002)
2004年:	250as	Nature 427 817 (2004)
2006年:	130as	Science 314 443 (2006)
2008年:	80as	Science 320 1614 (2008)
2013年:	67as	Opt. Lett. 37 3891 (2013)

可視光 → 極端紫外光

中心周波数が高いほど、短いパルスを発生させることができる。

極限的に短いパルス



ある中心周波数における最も短いパルス:

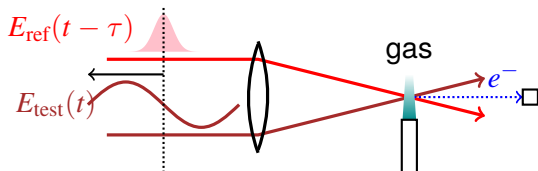
周波数 0 付近までの広がったスペクトルの位相が重なってできる光パルス
パルス幅の限界 \propto 中心周波数の周期

アト秒ストリーク法

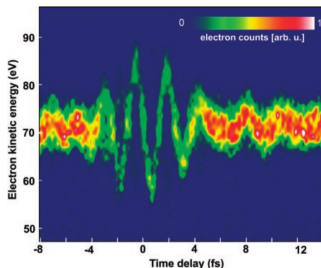
アト秒パルスと光電場の相互相関を測定

E. Goulielmakis, et al. Science **305** 1267 (2004)

$$\Delta p(t) \propto e \int_{-\infty}^{\infty} dt' I_{\text{ref}}(t' - \tau) \int_{t'}^{\infty} dt'' E_{\text{test}}(t'')$$



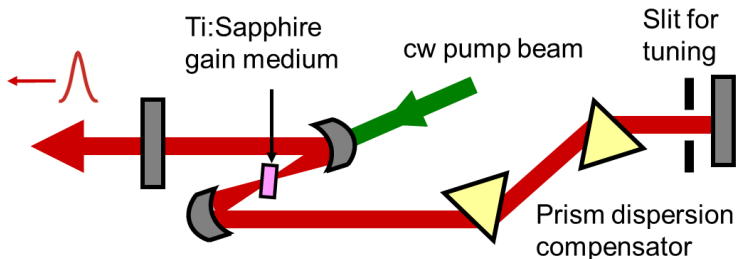
Science **305** 1267 (2004)



チタンサファイア増幅器、高真空装置、光電子分光装置、などが必要

チタンサファイアレーザー

増幅媒質が可飽和吸収体としても働く。



パルスになったときに、発振器が最も安定するように調整しておく。

カーレンズモード同期

D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, Opt. Lett. **16**, 42(1991).