

高密度パルスレーザー技術ラボ (High-Density Optical Pulse Lab.)

研究項目及び研究期間

- 単一サイクルパルスの発生に関する研究(平成11年度～15年度)
- コヒーレンス制御高強度レーザー技術の研究(平成9年度～13年度)
- 真空紫外域パルス光による材料評価技術の研究(平成12年度～14年度)
- 極限時間域高密度パルス光の高機能化技術の研究(平成9年度～13年度)

1. 当該研究の背景

超短パルスレーザー技術は、超短時間領域での物理現象や化学反応の動的過程の解明、超高速用光材料、デバイスの計測と制御、短時間に光エネルギーが集中することを利用した波長変換や特有の物質制御、超高速の励起が必要な軟X線レーザーの励起等に利用され、様々な分野の研究開発を支える基盤技術として重要である。

近年フェムト秒レーザーの登場により極短時間領域の現象の解明が可能となってきたが、さらに3桁短いアト秒領域にいたる短パルスを利用できれば、原子物理・超高速化学現象の探索・解明が可能となる。このような短パルスはレーザーによって発生された超短光パルスの波長変換によって発生が期待されている。また、現在超短パルスレーザーが存在する紫外、可視、赤外波長領域での超短パルス化においては、単一サイクルパルス発生が1つの到達目標となるが、さらにはパルス幅のみでなく光の電界変化波形そのものの制御、パルス波形と位相の関係の制御、それら光パルスと物質との相互作用における新現象・新機能などへの研究展開も現実的な課題となってきた。

本ラボでは、未踏の超短パルスレーザーの関連技術在先導的に開拓し、確立していくことを目指している。具体的な研究項目としては、時間分解計測用の紫外、可視、赤外領域単一サイクル光パルス発生を目標として「単一サイクルパルスの発生に関する研究」を、超短パルス光の特性を制御することにより高効率な軟X線レーザーの励起の実現を目標として「コヒーレンス制御高強度レーザー技術の研究」を、リソグラフィ用光学材料の評価へ真空紫外パルス光を利用する技術を開発することを目標として「真空紫外域パルス光による材料評価技術の研究」を、超短パルスを

増幅して物質制御に応用することを目標として「極限時間域高密度パルス光の高機能化技術の研究」をそれぞれ実施している。進歩の激しい分野であるが、これらの項目が連携することで最新技術動向の導入などにも効率的・効果的に対処しながらすすめることができている。

2. これまでの研究経過と現状

原子力特別研究「単一サイクルパルスの発生に関する研究」では、理化学研究所、産業融合領域研究所と連携してアト秒領域に至るパルス発生技術、計測技術、ならびに利用技術を確立することを目標とし、電総研では時間分解計測用の紫外、可視、赤外領域の単一サイクル光パルスの発生を担当して、フェムト秒領域の光パルスの圧縮技術、及び単一サイクルに至る極短パルスの操作・測定の技術の研究を行っている。

これまで平成11年度には、波長800nm、60fsの超短レーザーパルスの希ガス中での自己位相変調とチャープ補償の研究を行い、27fsの圧縮パルスを得た。平成12年度には、基本波パルスの出力を増幅してパルスの圧縮の高度化をすすめるとともに、フェムト秒パルス波長変換と、パルス制御の研究に着手する。

特別研究「コヒーレンス制御高強度レーザー技術の研究」では、「(中項目)極端紫外レーザーの高効率励起技術に関する研究」として、生体構造の超微細構造観察等に求められる、輝度が高く単色性・可干渉性の強い極端紫外レーザーを効率良く実現するための高効率励起技術を開発することを全体目標としており、本ラボでは、コヒーレンス制御高強度レーザー技術によってイオン化プロセスを高度に制御することによる新たな励起方式の探索を担当している。

高出力レーザーパルスで生成した電離気体内の電子衝突励起、再結合励起、及び原子・分子気体内での高次高調波発生等によってXUV-軟X線レーザーの研究開発が行われているが、いずれのアプローチについても、コヒーレント光発生効率の飛躍的な改善のための原理的・技術的なブレークスルーが極めて強く求められている状況である。本ラボでは、高強度なフェムト秒レーザーパルスのコヒーレンスに係わるパルス内振幅、位相、周波数、偏光、等を精密に制御することにより、同パルスと原子・分子・クラスター等との相互作用における励起過程を選択的に発現・制御することによって上記課題を克服し、XUVから軟X線における高効率なレーザー励起技術の開発を目指している。

本ラボではこれまでに、高繰り返し(1kHz)極短パルスTi:sapphireレーザー増幅システムを試作開発するとともに、干渉計構成のパルス整形装置の提案、開発と、精度向上を進めてきた。この技術により、位相精度で整形された高強度極短パルス光と気体媒質との相互作用の正確な計測が可能となった。具体的には、軟X線レーザーの媒体として期待されている原子のトンネルイオン化過程に関して、生じるイオンの価数分布、及び自由電子のエネルギー分布にあらわれるパルス整形の効果を観測することが可能となり、高効率な反転分布形成につながることを期待されている。

地域コンソーシアム研究開発「真空紫外域パルス光による材料評価技術の研究」は、この平成12年度に着手したところであるが、従来より特別研究「高効率XUVレーザー技術の研究(平成2~7年度)」において先導的に研究をすすめ実績のある超短パルスレーザーによる高次高調波光発生などの真空紫外域パルス光発生技術を、リソグラフィ用光学材料の特性評価、および劣化機構の解明に利用することを目標として、計測と材料特性評価の基盤技術を開発することを計画している。具体的には、高次高調波真空紫外域パルス光源の高性能化、真空紫外域光パルスの操作等の応用に必要な関連技術を開発するとともに、NEDO委託事業との共同研究によって、リソグラフィ用新材料の実現を目指す。なお、共同研究の参加機関は、東北大学金属材料研究所、株式会社トーキン、岡崎国立共同研究機構分子科学研究所、他である。

振興調整費「極限時間域高密度パルス光の高機能化技術の研究」では、高密度パルス光による物質制御ブ

ロセス現象の探索・解明・利用に資するため、極限時間域での超高密度パルス光発生・制御技術の開発を目的として、パルス幅 $\sim 10\text{fsec}$ 、尖頭出力 10TW を発生できるレーザーとその制御技術、及び同レーザーの高効率化・高安定化技術の研究開発をすすめてきた。平成9~12年の第1期には、以下の研究成果をあげている。

- (1) パルス幅 $\sim 10\text{fs}$ において 10TW が可能なチャープパルス増幅システム実現のため、a)新しい透過多層膜方式の利得狭帯域化補償を提案するとともに、試作した多層膜素子の性能を実験的に検証し、 1mJ の圧縮前チャープパルス増幅出力で、最大スペクトル幅 140nm を得た。また、b)増幅システムの性能を顕著に向上できる、新しい設計の広帯域高耐久性ミラーの開発を行った。広帯域な $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 誘電体多層膜と高耐久性の $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ 多層膜を複合し最適化した試作鏡で、反射率、群速度分散、耐光強度の評価を行い、性能(帯域 200nm 、耐フルエンス $>1\text{J}/\text{cm}^2$ 、分散特性)を確認した。さらに、この高耐久性鏡および平成9年度に開発した利得狭帯域化補償素子を用いて、 8.5fs パルスの高出力増幅実験を行い、高出力パルスとしては最大のスペクトル半値幅、すなわち出力 430mJ に対し 112nm (12fs 相当)、出力 300mJ に対し 153nm (10fs 相当)を得た。これらにより 10TW 級の極限時間域短パルスが期待できる。さらに、c) $\sim 10\text{fs}$ 増幅を可能とするパルス拡幅器・圧縮器(拡大パルス幅 300ps 、帯域約 300nm 、全群遅延差 10fs)の設計試作と評価、特性の解析を行っている。オフナー型パルス拡幅器を基本としつつ、球面収差の影響を考慮した最適化調整を新たに加えることで、充分な帯域と拡大率を有する拡幅器の設計を可能としている。また、実際にこの拡幅器を試作し、パルス幅拡大と再圧縮の評価実験を行い、 12fs の入射パルスに対して $<18\text{fs}$ の出力パルスを得た。この再圧縮後の広がりについて、干渉計測によって拡幅器を構成する大口径の凹面鏡の波長レベルの誤差を計測したうえで、シミュレーション計算を行い、曲面の形状誤差が原因であることを定量的に確認した。
- (2) モード同期発振器については赤色LD直接励起 $\text{Cr}^{3+}:\text{LiSAF}$ の研究を行った。 LiSAF 結晶の群速度分散の正確な測定を白色光フリンジを応用した方法で実施し、従来知られていた値と無視できぬ差がある

ことを見いだした。この成果に基づき、高次の群速度分散まで考慮してプリズム材質等を最適化設計して、LD 直接励起のレーザーとしては最短記録の 12fs パルスを得た。チャープパルス増幅システムの発振段となるモード同期 Ti:sapphire レーザーに関しても、高次分散低減のための分散補償ミラーを試作開発し短パルス化をすすめると共に、「超短光パルス技術評価ラボ」と共同で半導体可飽和吸収ミラー (SESAM) による短パルスと安定化の両立の研究も行っている。

3. 期待される効果

原子力分野においては、特に放射線照射による構造物などの劣化過程の解析や新素材生成のメカニズムの解明に、真空紫外域のアト秒レベルのパルスによる素過程の解明が重要である。紫外、可視、赤外波長領域での超短パルスは、真空紫外から軟 X 線領域のアト秒パルスの発生用基本波として重要である。また、この波長領域では到達パルス幅は単一サイクルでフェムト秒からサブフェムト秒に制限されるが、多くの物質・材料における内部構造の電子遷移の領域であり、物理現象や化学反応の素過程解明のための計測手段としても意義は大きい。

特別研究「コヒーレンス制御高強度レーザー技術の研究」は、基盤的な研究であるが、最終的には XUV から軟 X 線における高効率なレーザーがねらいであり、このような輝度が高く単色性、可干渉性の強い光源が実現すれば、物質表面解析、微小生体構造観察、高密度プラズマ計測などへのインパクトは計り知れないものがある。

地域コンソーシアム研究開発「真空紫外域パルス光による材料評価技術の研究」では、東北大学金属材料研究所等との連携によるプロジェクトの全体として、新フッ化物単結晶作製技術等の次世代光リソグラフィ用新光学材料の技術の確立をめざしている。このうち電総研の担当する超短光パルスを用いた高次高調波光発生により真空紫外域光パルスを効率的に発生する技術、パルス特性の計測技術等の研究開発は、リソグラフィ用光学材料の特性評価、および劣化機構の解明に利用される計測と材料特性評価の基盤技術として大きな意義がある。

振興調整費「極限時間域高密度パルス光の高機能化

技術の研究」では、総合研究「高密度パルス光と先端物質制御に関する研究」の一環として高密度パルス光の発生・制御技術を担当している。高密度超短パルス光の発生、及びこのパルス光によって実現できる超短時間高強度光電磁場域は人類が初めて掌中しつつある新しい物理領域であり、これによる新現象の発現とそれを利用した物質制御技術は、新機能物質・材料の創製や高機能デバイス創製に寄与するものとして期待が寄せられている。具体的には、電子温度のみが極端に高い非平衡状態を利用した加工、高エネルギー化学種のビームを発生し利用する堆積、薄膜作製、表面化学反応、あるいは低速多価イオン生成を利用した材料表面プロセッシング等が連携研究機関で研究開発されている。これらの成果はエレクトロニクス、バイオテクノロジー、航空・宇宙等の広範な分野の発展に寄与するものとして期待されている。

4. 今後の研究展開

原子力特別研究「単一サイクルパルスの発生に関する研究」では、研究方法として、光導波路等での非線形光学効果を利用したフェムト秒パルスの位相変調による圧縮技術にもとづき、さらに複数波長のフェムト秒パルスの合成技術を組み合わせることにより、現状技術の限界を越えた単一サイクルパルス発生をめざしている。今後は、基本波パルスの波形特性の向上と、波長変換による紫外から赤外域の複数波長フェムト秒パルス発生技術を開発し、異波長のフェムト秒パルス間の光波位相を比較する技術の研究を行うと共に、超広帯域光の分散補償と合成の研究を実施して、現状技術の限界を越えた単一サイクルパルス発生をめざす。

特別研究「コヒーレンス制御高強度レーザー技術の研究」では、今後 2 年程度で、利得媒体レベルの高密度条件下での測定を行うため、ガスジェット利用及び短波長光検出の技術等を開発するとともに、極短パルスレーザーシステムの出力増強を行い、短波長利得媒体を想定しての整形パルスによるイオン価数および電子エネルギー分布制御の実験研究を実施して、極短波長レーザーの新たな励起方式探索を図る計画である。現在、パルスレーザーのコヒーレンス制御に関しては新しい絶対位相制御の技術が提案され新しい研究展

開が始まりつつあり、最新の技術動向に対処しつつ超短パルス光の物質過程への応用技術を開拓していきたいと考えている。

地域コンソーシアム研究開発「真空紫外域パルス光による材料評価技術の研究」は平成12年度に開始したところであるが、3年間の計画で短期集中的に実施し、真空紫外域パルス光の応用面での有効性を提示していく必要がある。具体的には、以下の年次展開で研究を進める計画である。平成12年度には、希ガス媒体中の高次高調波発生を用いて中心波長800nmのフェムト秒から5次高調波(波長157nm)等のリソグラフィー波長コヒーレントパルス光を発生し、さらに分離して取り出す技術を開発することを目標とする。材料評価への応用を想定して、十分な光量を得るために必要となるフェムト秒パルスの高繰り返し増幅、高繰り返し発生用の媒体技術、真空紫外域の波長選択と分離の方式等の研究を実施する。平成13年度には、リソグラフィー波長コヒーレントパルス光のパルス特性を実測するとともに、試験用試料を対象に線形および非線形な方法での材料特性計測の方式検討と実験を行う。特にダブルパルスを用いた高調波発生を利用したコヒーレントパルス固有の計測法の開拓をめざし、可変なパルス遅延時間差を利用した計測、真空紫外域光の2次元検出によるフリッジ観測等の実験研究を行う。平成14年度には、開発した高調波パルス光源および計測技術を利用して、リソグラフィー用フッ化物結晶材料の特性を評価することを目標とする。光パルスの相関計測による真空紫外域の物質分散評価、ポンププローブ計測による材料劣化に関わる過程の時間分解計測等の実験を試み、共同研究先との連携による材料評価方式の研究を行う。

振興調整費「極限時間域高密度パルス光の高機能化技術の研究」については、第1期の自己評価及び今後の研究展開に関して以下のように考えている。

まず、これまでの成果について、極限時間域のチャープパルス増幅技術に関して、1)従来の方式に比べて広帯域に適用できる利得狭帯域化補償素子を実現したこと、及び、2)広帯域かつ高耐久性の反射鏡の実現に成功したこと、また、3)パルス拡幅器の設計・試作・評価を行い、sub-20fs級の再圧縮パルス幅と、それ以上の短パルス化出力パルス幅の制限要因を確定して、解決のめどをつけたことが成果といえる。発振器

については、4)短パルス化素子及び安定化素子の開発によって、パルス幅 ~ 10 fsのTi:sapphireレーザーの性能、効率維持、及び信頼性向上を両立させて、物質制御用レーザーとして十分な性能を実現することができた。また独自の技術として、5)モード同期Cr³⁺:LiSAFレーザーの短パルス化をすすめ、LD直接励起では世界最短パルス記録の12fsを得た。これにより、高効率・高安定・コンパクトな将来システム実現に向けてのLiSAF発振器の可能性を実証することができたと考えている。

これらの第I期成果により ~ 10 fs、10TWの性能に対応できる要素技術がほぼできあがり、第II期では全体システムとしての技術確立と、実際の物質プロセスでの評価が必要である。今後これらの最新成果に基づいたチャープパルス増幅システムを完成、さらに高密度パルス光の基本的な特性の計測、集光性・信頼性等の応用状況を念頭に置いた性能評価をすすめることで、極限時間域超高密度パルス光源技術が完成し、物質制御の新領域を開拓することが期待できる。今後の研究計画としては、第I期に開発した利得狭帯域化補償素子、高耐久性フェムト秒パルス鏡等の未踏領域の高密度光パルス発生のための要素技術をもとに、高精度のパルス波形調整とシステム最適化の技術を開発して、 ~ 10 fs、10TW極限時間域高密度パルス光発生用チャープパルス増幅システムを実現する。このとき、現状でパルス幅制限要因となっているパルス拡幅器の光学系の歪み低減が重要課題である。この光源技術を基として、出力のパルス幅、尖頭出力等の基本性能を評価するとともに、集光状態での時間波形測定等の、物質制御応用において重要となるパルス特性評価技術の開発、さらには原子・分子の多価イオン化等のパルス特性評価に用いる物理過程を中心とした、物質制御プロセス現象の計測技術の研究への展開を期待している。

当該研究担当者等

1)ラボ構成員(総数4名)

職員(4名) 鳥塚健二*、高田英行、欠端雅之、小林洋平
(光技術部)

2)その他の研究協力者

植村禎夫(NEDO)、酒井広文(東京大学)、藤平好彦
(芝浦工業大学)

*ラボリーダー