

XUV 高次高調波分離用高性能ビームスプリッタ材料の特性評価

Material characterization for highly-efficient beam splitter to separate XUV high-order harmonics

児嶋 洋典 (M2)

Yosuke Kojima

Abstract

In this report, we conducted material survey for fundamental (FU) laser – high-order harmonics (HH) beam splitter (BS) for high-average-power operation. We chose three transparent materials – crystalline SiC, diamond, and rutile – using data base and evaluated these materials as the BS. We concluded that crystalline SiC is the most promising candidate because of a high reflectivity for XUV light as well as an ignorable thermal distortion, while the surface flatness of a crystalline SiC plate should be improved.

1. はじめに

高次高調波を分光計測等に用いるためには、同軸上を伝搬している基本波を除去することが極めて重要な課題となる。典型的な高次高調波の発生効率は $\sim 10^{-6}$ であり、高次高調波のシグナルが基本波のノイズに埋もれてしまうためである。そこで、基本波を十分に減衰させるために、金属薄膜フィルタやアパーチャなど複数の光学素子が組み合わせて使われるが、最も手前に置いて基本波エネルギーの大部分を受け止めるのは 2004 年に提案された Si ビームスプリッタ(BS)ミラーである[1]。BS ミラーは、ブリュースタ角を利用して基本波の反射を抑え、波長による屈折率の違いから高次高調波を部分的に反射する仕組みである。Si プレートは基本波に対してブリュースタ角に置いたとき、例えば波長 29.6 nm の光に対して反射率 0.56 を示すなど、XUV 光

に対し非常に高い反射特性をもっている。また、同論文ではアモルファス SiC についても報告されており、Si には劣るものの波長 29.6 nm において反射率 0.45 という高い値を示している。これらを利用することで、基本波エネルギーを $\sim 10^{-5}$ まで減衰させることができる。

しかしながら、近年新たに開発されてきた高出力基本波レーザシステムにより熱的問題の懸念が浮上してきた。上述の BS ミラー材料は基本波を吸収し熱に変換するため、集光の際に熱変形による高次高調波の波面歪みが無視出来ない問題となる可能性がある。実際に、繰り返し周波数の増強に伴い平均出力が従来の 10 倍に高められた 4 W の基本波レーザシステム[2]を用いて高次高調波の自己相関計測を行ったとき、Si BS ミラーによって反射された 2 つの高次高調波パルスには深刻な光路のズレが見られた。これは、熱による影響がもはや無視出来ないことを示しているのではないかと疑っている。

そこで我々は、従来の BS ミラー材料である Si とアモルファス SiC の熱的影響を明らかにすると共に、熱の発生を抑制するために透明材料を用いた新たな高次高調波分離用 BS を提案する。基本波を透過する新たな BS は、熱的問題への解決策となり得るだけでなく、基本波の再利用をも可能にするため、共振器内高次高調波発生のアウトプットカップラや基本波を利用したポンププローブ計測への適用が期待できる。BS の性能は材料に由来するため、我々は有力な材料候補をいくつか選出し特性評価を行った。ここにそれらの熱的特性と反射特性をまとめて報告する。

2. 従来のBSミラー用材料の熱変形見積

不透明な材料であるSiおよびアモルファスSiCの高出力レーザー下における表面形状を解析し、照射レーザーの出力がどの程度まで上がると熱変形の影響が無視出来なくなるかを確認した。

まずは数値解析により大まかな変形量を見積もった。レーザー照射したときの温度分布を参考文献[3]を用いて計算し、その温度分布に従う変形を有限要素法(FEM)解析により算出した。使用したFEM解析ソフトはABAQUS Student Editionである。解析するモデルの寸法は、直径1インチ、厚さ5mmの円筒型プレートとした。境界条件は、計算を簡単にするため、表面と裏面からの熱の流出は無く側面の温度上昇と変位は0であると設定し

た。これは、真空中において、側面を冷却ホルダーに固定し、側面から熱が完全に排出される状態を意味している。このときのSiプレートの変形図をFig. 1 (a)に示す。照射レーザーのパラメータは、平均出力10W、ビーム半径1.5mm、パルスの繰り返し周波数1kHzと設定している。レーザーを照射しているプレートの中心部が凸型に膨張する様子がわかる。また、Fig. 1 (b), (c), (d)はそれぞれ照射レーザーの平均パワー、ビーム半径、繰り返し周波数を変えたときの、SiとアモルファスSiCのプレート中心部における変形量を示している。これらのグラフから、例えば、現在の使用条件と同じく平均出力4W、ビーム半径10mm、繰り返し周波数100Hzとしたとき、Siプレート中心部の変形は~7mmと見積もることができる。しかしながら、この値はあくまで

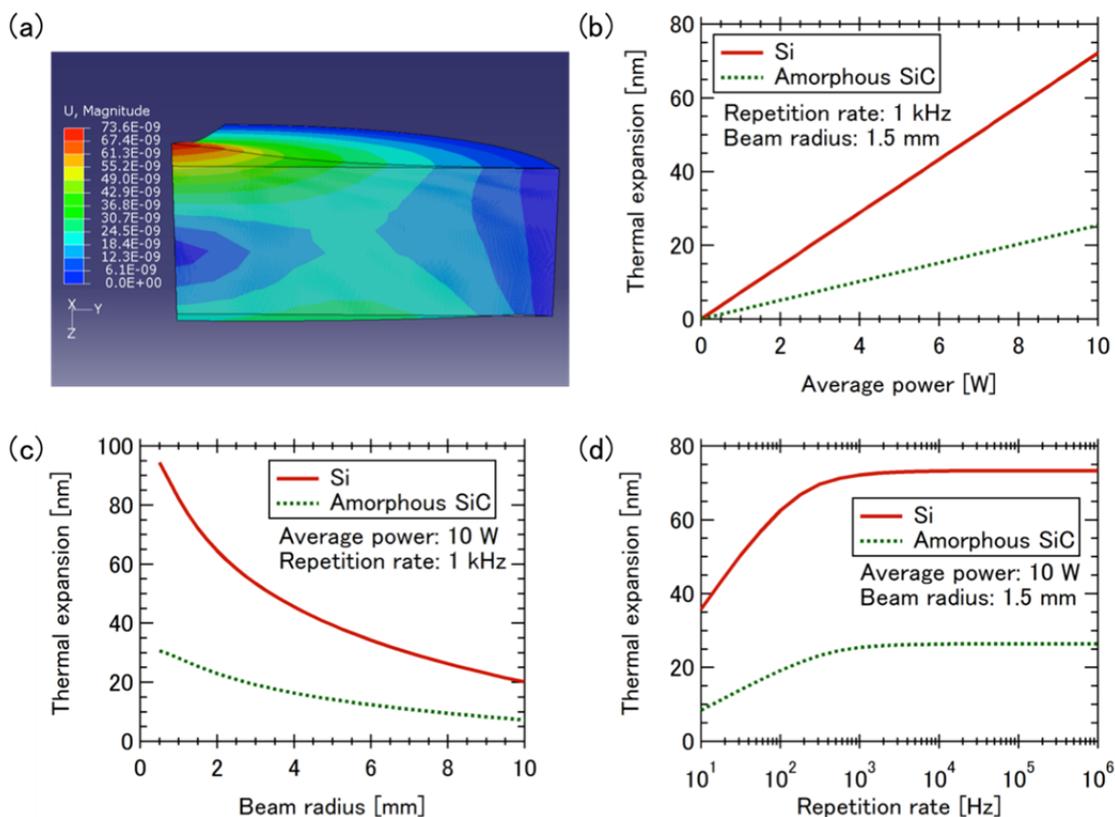


Fig. 1 Estimation of thermal deformation. (a) Overview of the displacement distribution. The amount of the expansion at the center of the plate when varying (b) average power, (c) beam radius, and (d) repetition rate of the laser irradiation.

最低限であり、ホルダーの冷却を行わない実際の実験環境においてはさらに大きく変形する可能性がある。そこで、実際に熱変形の測定を行った。

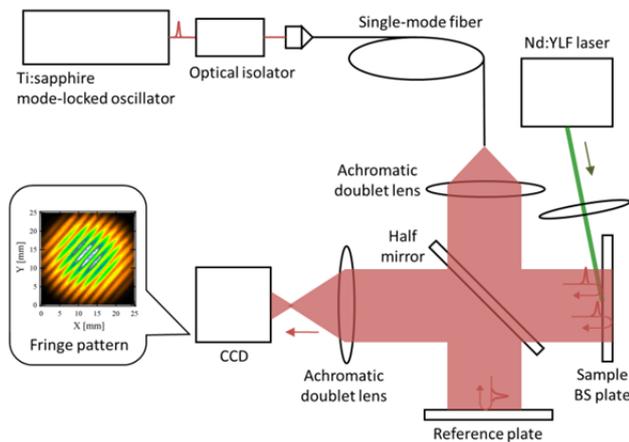
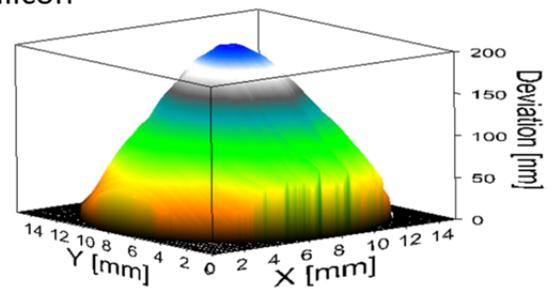


Fig. 2 Experimental setup for inspecting surface figure of sample BS plates.

Fig. 2 に示すような干渉計のセットアップを構築し、僅かに傾けたサンプルからの反射波面をフラットな参照波面と重ねて形成した干渉縞を測定し、干渉縞の歪みからサンプル表面の歪みを検出した。干渉計のビームスプリッタと参照ミラーはともに直径 80 mm の大きさであり、PV 値(Peak to Valley)は He-Ne レーザ波長に対して $\lambda/20$ 未満であることが保証されている。また、コリメートと像転送のためのレンズにはアクロマティックダブルレットレンズを用いた。プローブ光源には広帯域の Ti:sapphire モードロックオシレータを使用した。これは、後に透明材料のサンプルを測定する場合を考慮したもので、干渉計の 2 本の光路長を調整して裏面反射による干渉縞を除外するためである。単一横モードのビーム波面を得るために、シングルモードファイバを通して。照射レーザーには、照射地点において ~ 10 W の平均出力が確保できる LD 励起 Q スイッチ Nd:YLF レーザの 2 次高調波を利用し、ブリュスタ角で入射した。使用した Si サン

プルの寸法は幅 35 mm × 高さ 20 mm × 厚さ 5 mm であり、アモルファス SiC サンプルは幅 25 mm × 高さ 25 mm × 厚さ 5 mm である。それぞれのサンプルは、コの字型のアルミホルダーに底面と側面を接触させて固定した。本来この実験は真空中で行うべきであるが、真空装置を用意出来なかったため室温 20 °C の空气中で測定した。取得した干渉縞を参考文献[4]を利用して解析し、サンプルの表面形状を再構築した。レーザ照射前と照射中の表面形状の差分を取ることで熱変形のデータを取得した。

(a) Silicon



(b) Amorphous SiC

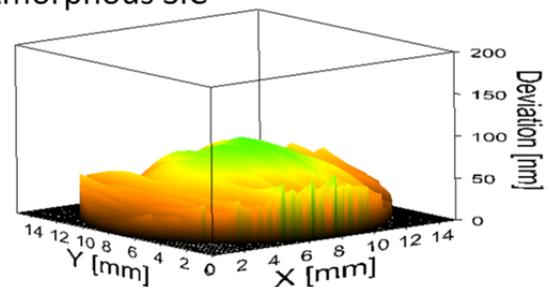


Fig. 3 Thermal surface distortion of opaque sample BS plates. (a) Si. (b) Amorphous SiC. The evaluation of surface distortion is made in a $\phi 15$ mm aperture.

Fig. 3 (a), (b)にそれぞれ Si サンプルとアモルファス SiC サンプルの解析結果を示す。照射レーザーのパラメータは、平均出力 10.3 W, ビーム半径 1.6

mm, 繰り返し周波数 1 kHz としている。Si サンプルは直径 15 mm の解析範囲において凸型に～180 nm 変形している。これは、波長数十 nm の高次高調波に深刻な波面の歪みを生じさせる問題となる。一方で、アモルファス SiC は Si に比べて熱伝導率が優れるため変形が比較的小さい。そのため、現在適用しようとしている 4 W レーザ下でもビーム半径を広げてホルダーと接触する面積を大きくすればこの問題を無視できる可能性が大きい。ただし、アモルファス SiC の熱伝導率は結晶品質によって大きく変わり、また、実際の使用環境は熱が逃げ難い真空中であるため、依然、熱的問題の懸念は残っているといえよう。

3. 新たな BS 用透明材料候補の選定

従来の BS ミラー用材料である Si とアモルファス SiC は比較的高い熱伝導率をもった物資ではあるが、10 W のレーザを照射したとき熱変形が明らかかな問題となることがわかった。これを解決するために、透明材料を用いることで熱の発生を抑制するという方法をとった。データベース[5][6]を用いて、次の手順で候補を選出した。(1)大きな入射角を得るために屈折率が大きい(2.0 以上)物質を選んだ。(2)波長 41 nm 未満における反射率がわかるデータベースを基に高い反射率が期待できる物質を選んだ。(3)実際に高い結晶品質で製造出来るものを問い合わせ入手した。選定した候補材料は、単結晶 SiC、ダイヤモンド、ルチルの 3 種類である。それぞれの写真を Fig. 4 (a), (b), (c)に示す。また、Fig. 4 (d)にはアモルファス SiC の写真を参考に示している。今回の研究では厳密に内部散乱や吸収の測定は行っていないが、従来の透明 BS 用材料に比べて明らかに透明であることが写真からわかる。また、それぞれの物質の特性を Table. 1 にまとめる。代表的な透明材料のひとつであるシリカは屈折率 1.45, 熱伝導率 $1.38 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ であるが、選出

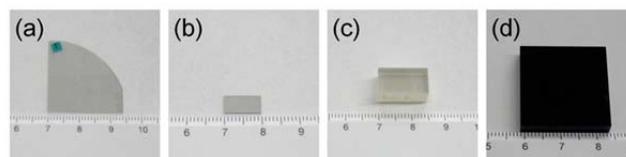


Fig. 4 Transparent materials as candidates for HH BS. (a) Crystalline SiC. (b) Diamond. (c) Rutile. A conventional BS material of amorphous SiC is also shown in panel (d) for comparison. The units are all in centimeters throughout the figure.

Table 1 Summary of physical properties of the HH BS candidate materials compared with conventional opaque materials. n indicates the index of refraction at 800 nm[7] and k indicates the thermal conductivity.[8]

Material	n	k [W/mK]	Dimensions	Manufacturer
Crystalline SiC	2.6	490	$\phi 50.8 \times 0.3$ mm (cut to 1/4)	CREE
Diamond	2.4	2600	10×5×0.4 mm	Diamond Materials
Rutile	2.8	8.8	15×8×7.5 mm	Furuuchi Chemical
Si	4.1	149	35×20×5 mm	NEXSYS
Amorphous SiC	2.6	360	25×25×5 mm	NEXSYS

した透明材料はいずれもこれと比べて大きな屈折率と熱伝導率をもっている。

4. 熱変形の有無の確認と面精度の測定

Fig. 2 の実験セットアップを用いて同様に熱変形の測定を行った。その結果、Fig. 5 に示すように、10 W 照射時でも明らかに熱変形だと判断できるような変形は見られなかった。端の方がギザギザして

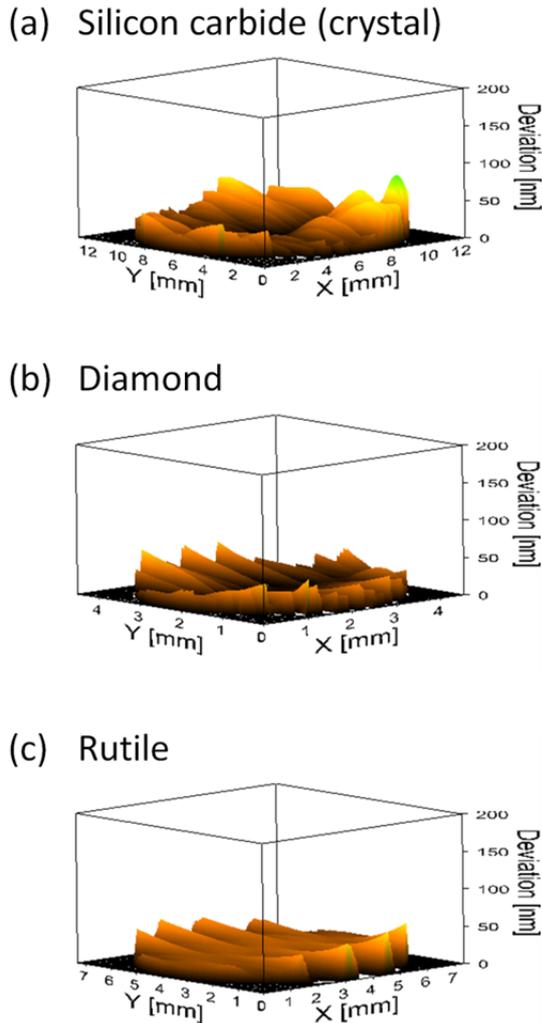


Fig. 5 Thermal surface distortion of transparent sample plate. (a) crystalline SiC. (b) diamond. (c) rutile.

いるのは、解析誤差によるものである。この結果から、透明材料を用いることで平均出力 10 W までのレーザー照射下における熱的問題を解決できることが確認できた。

また、この測定では同時にサンプルの面精度を調べることが出来る。それぞれのサンプルのサイズに応じた解析範囲内における表面形状の測定結果を Fig. 6 に示す。測定精度は、単結晶 SiC サンプルとダイヤモンドサンプルの解析条件下では PV 値 40

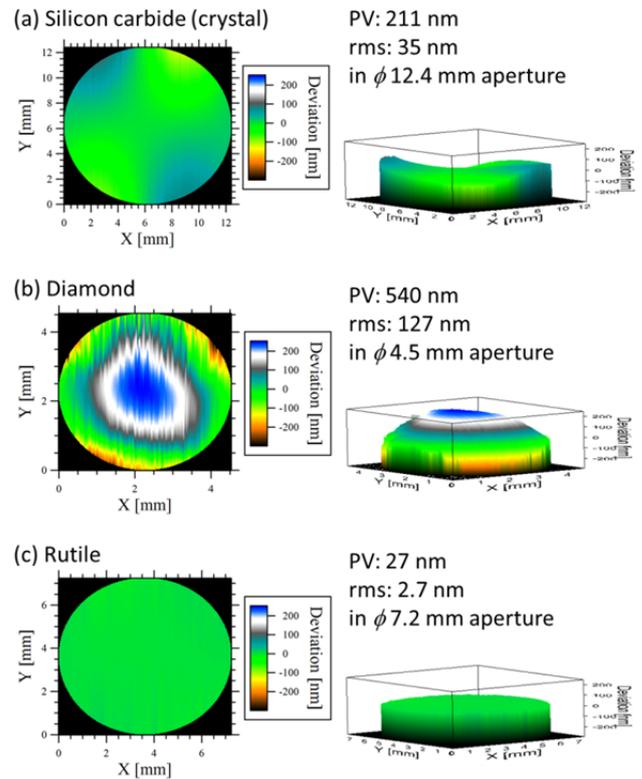


Fig. 6 Surface flatness of transparent sample BS plates. (a) Crystalline SiC. (b) Diamond. (c) Rutile. The evaluations of surface flatness of each sample in peak-to-valley (PV) and root mean square (rms) are shown in an apertured area with a false color image. The diameter of the aperture is determined by the dimensions of the surface of the sample BS plates in each panel.

nm – 50 nm, RMS 値 5 nm – 6 nm 程度であり、ルチルサンプルの解析条件下では PV 値 20 nm – 30 nm, RMS 値 3 nm – 4 nm である。今回使用した単結晶 SiC サンプルとダイヤモンドサンプルは光学的な表面品質が保証されていない市販品であり、XUV 光の波長を超える大きな起伏が見られる。このサンプルでは反射波面の歪みが問題となるため実用はできない。しかしながら、アモルファス SiC の結晶は実際に PV 値 $\lambda/20$ 未満の面精度でも作

られているので、単結晶 SiC プレートも実用的な表面品質まで向上させられる可能性は高い。また、 $\lambda/10$ 以下の PV 値が保証された特注品であるルチルサンプルの解析結果は測定精度と同等の値を示しており、実用可能な品質だと考えられる。

5. 反射特性の計測

A. XUV 高次高調波に対する反射率

選定した透明材料はいずれも熱的問題を解決できることが示されたが、それらの材料の高次高調波分離用 BS としての性能の差は、主に高次高調波の反射率において表れる。反射率が高いほど高次高調波の取り出し効率が高いということになる。

実験セットアップを Fig. 7 に示す。高次高調波の発生にはピークパワー数 TW、パルス幅 15 fs 以下、繰り返し周波数 100 Hz の Ti:sapphire チャープパルス増幅レーザーシステム[2]を基本波光源として利用し、曲率半径 10 m の凹面鏡で Xe ガスあるいは Kr ガスに集光することによりそれぞれ 11 次-19 次高調波と 15 次-27 次高調波を得た。発生させた高次高調波は基本波と共に Fig. 7 の左側にあ

るチャンバに送られ、不要な基本波はそこでアモルファス SiC BS ミラーに吸収される。反射された高次高調波は次にサンプルを置いたチャンバへと送られる。サンプルを設置したチャンバは上下に動かせるステージに載せており、真空チャンバごと上げ下げすることで、サンプルを挿入あるいは取り除くことができる。まずはサンプルを下げた状態にしておき、高次高調波の入射光スペクトルを XUV 用分光器で測定した。次に、入射光と同じ方向に反射光を送るため平行に 2 枚セットしたサンプルを挿入し、反射光のスペクトルを測定した。XUV 用分光器はスライディングプレートに載せられており、平行移動させることで入射光との光路のズレを補償することができる。入射光スペクトルと反射光スペクトルをそれぞれ 100 回計測し、その比の平方根から各次数の高次高調波に対するサンプル 1 枚あたりの反射率を得た。

Fig. 8 に測定結果を示す。エラーバーは高次高調波の強度揺らぎによる統計誤差を示している。35 nm から 75 nm の波長領域では単結晶 SiC がこれら 3 種類の材料の中で最も高い反射率を示していることがわかる。また、屈折率のデータから、ルチ

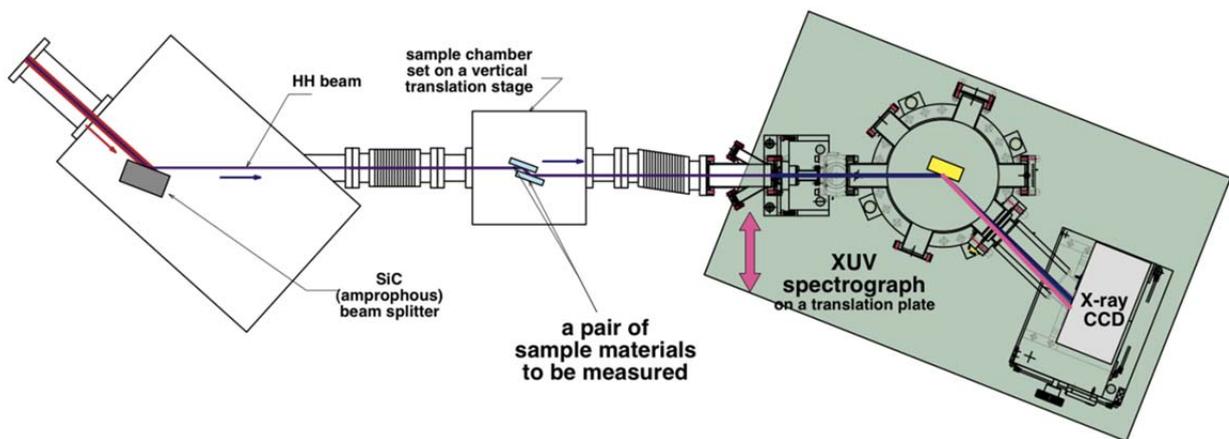


Fig. 7 Schematic of the experimental setup. The high-harmonic (HH) beam with the intense FU beam coming from the upper left-hand side is reflected with an amorphous SiC beam splitter (BS) mirror, and sent into a sample BS chamber. The spectra of the HH beam reflected from the sample BS pair or directly going to the XUV spectrograph is recorded with an X-ray CCD camera.

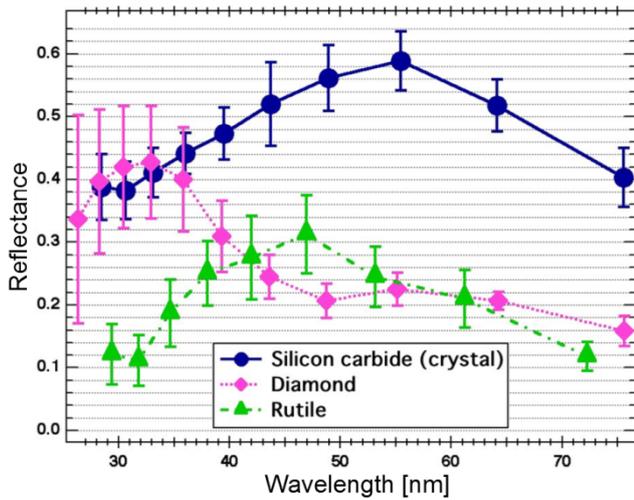


Fig. 8 Reflectance of BS sample plates. Circles with solid lines: crystalline SiC. Diamonds with dashed lines: diamond. Triangles with dot-dashed lines: rutile. The peak wavelengths of the HH spectra in the measurement of the rutile BS material are blue shifted due to an occasional high intensity of the pumping laser pulse.

ルは波長 20 nm 付近で高い反射率を持つことが期待できるが、我々の実験装置では高次高調波強度が低いためその領域を測定することは出来なかった。参考として、同じく透明材料であるシリカは、屈折率のデータから計算すると波長 40 nm において反射率は 2.6% である。選定した 3 種類の材料はいずれもこれに比べて非常に高い反射率を持っているといえる。

B. 基本波に対する反射率

基本波(700 nm – 900 nm)に対する反射率の測定を行った。基本波に対する反射率は低ければ低いほど良い。実験セットアップを Fig. 9 に示す。光源には Ti:sapphire モードロックオシレータを使用し、偏光子を通して S 偏光の強度を 10^{-5} 未満にした。検出器はオシロスコープにつないだ PIN フォトダイオードを用いた。まずはサンプルの手前で入射光

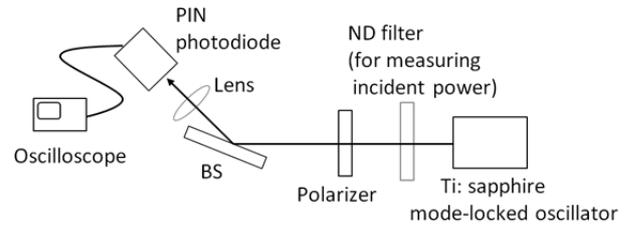


Fig. 9 Schematic of the experimental setup for measuring the reflectance of sample beam splitter (BS) plates against the fundamental (FU) beam.

強度を測定した。このとき、フォトダイオードが飽和しないように、実測して透過率を確かめたフィルタを通して測定を行った。次に、サンプルに光をブリュースタ角付近で入射し、サンプルからの僅かな反射光を検出した。単結晶 SiC、ダイヤモンド、ルチルのブリュースタ角はそれぞれ 69 度、67.5 度、70.5 度である。測定したデータは、S/N 比を上げるために、フーリエ変換した後バンドパスフィルタで光源の動作周波数の成分のみを抽出した。得られた入射光強度と反射光強度の比が基本波の反射率となる。

測定結果を Fig. 10 に示す。ブリュースタ角における単結晶 SiC サンプルの反射率は 4.2×10^{-5} 、ダイヤモンドサンプルは 7.9×10^{-4} 、ルチルサンプルは 4.1×10^{-4} である。Fig. 10 (a), (b) はそれぞれ入射角と偏光のズレによる反射率の変化を示している。図から偏光角に比べて入射角の方が角度のズレによる影響が大きいことがわかる。入射角は 0.5 度以内のズレであれば単結晶 SiC サンプルの反射率を 10^{-3} 未満に抑えることが出来る。実際の測定においては、0.5 度の調整を行うことはさほど難しいことではないので、実用においても上に挙げた値に近い性能で使用することが出来るだろう。また、ルチルは複屈折性があるため光学軸のズレによる反射率の変化を確かめたが、Fig. 10 (c) に示すように複屈折性の影響は比較的小さい。また、入射光強度と透

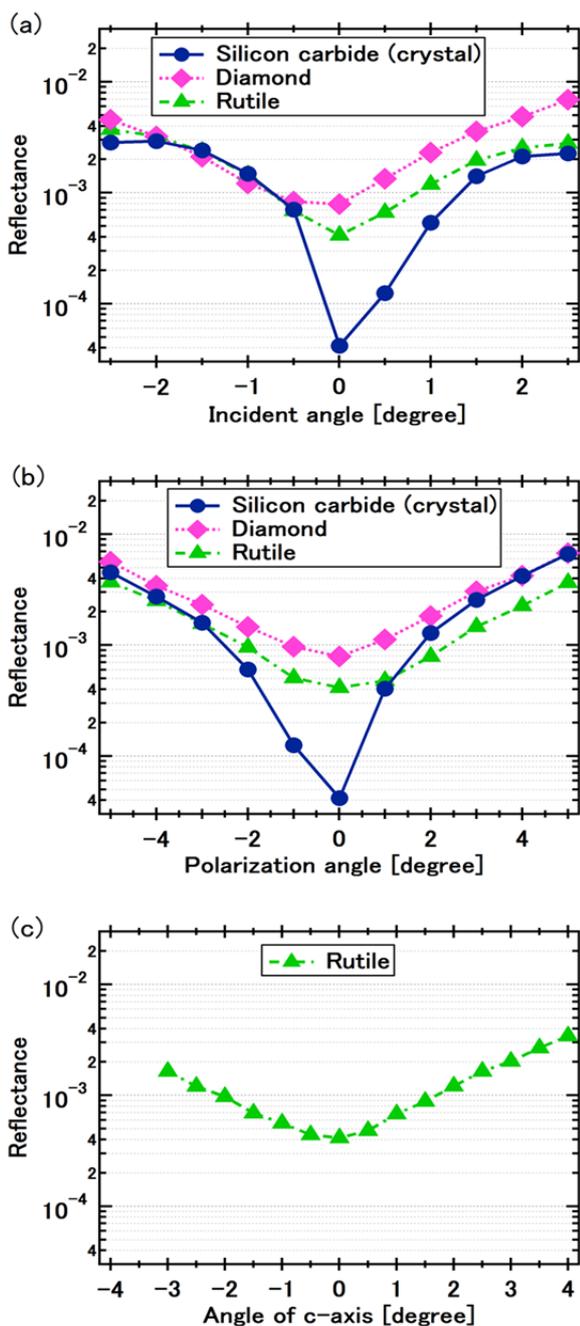


Fig. 10 Measured reflectance of the sample BS plates for the FU beam. (a) Dependence to the incident angle. (b) Dependence to the polarization angle. (c) Dependence to the c-axis orientation for the rutile sample plate. The offset angles of these figures are all set to the angle of minimum reflectance (Brewster angle) for each sample plate.

過光強度の比から見積もったそれぞれのサンプルの透過率は、単結晶 SiC : 0.998 以上, ダイヤモンド : 0.947 以上, ルチル : 0.947 以上であり, この中では単結晶 SiC サンプルが特に高い透過率を示した。

6. まとめ

従来の BS ミラー用材料は, 平均パワー 10 W のレーザを照射したとき高次高調波にとって深刻な変形が見られた。そこで従来の不透明な材料を透明な材料に置き換えることにより, この問題を解決することが出来た。中でも単結晶 SiC は, 35 nm から 75 nm の波長領域において反射率 0.4–0.6 という最も高い値を示した。また, 基本波に対する反射率は $10^{-4} - 10^{-5}$ であり, 基本波エネルギーの大部分を取り除くことが出来る。透過率も 0.998 以上と高い値を示している。以上から, 今回使用したサンプルは面精度が不十分であるものの, 単結晶 SiC は高次高調波分離用 BS に最も適した材料のひとつであるといえるだろう。

謝辞

本研究は理化学研究所緑川レーザー物理工学研究室主任研究員緑川克美博士に実験環境を提供して頂き, 研究員鍋川康夫博士とアマニ・イランル博士の指導を受けて行われました。厚く御礼申し上げます。

References

- [1] E. J. Takahashi, H. Hasegawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: *Opt. Lett.* **29** (2004) 507.
- [2] Y. Nabekawa, A. A. Eilanlou, Y. Furukawa, K. L. Ishikawa, H. Takahashi and K. Midorikawa: *Appl. Phys. B* **101** (2010) 523.
- [3] R. Lausten and P. Balling: *J. Opt. Soc. Am. B*

20 (2003) 1479.

[4] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi: *J. Opt. Soc. Am.* **72** (1982) 156.

[5] <http://refractiveindex.info/>.

[6] <http://www.cxro.lbl.gov/>.

[7] E. D. Palik: *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1985).

[8] P. Klocek: *Handbook of Infrared Optical Materials* (CRC Press, 2010).