特集

XUV および軟X線領域における
コヒーレント光発生 of 展望

佐藤 卓蔵*・宮崎 健創*

(1987年 5 月22日 受理)

Survey and Prospects of Generation of
Coherent Radiation in the XUV and Soft X-Ray Regions

Takuzo SATO* and Kenzo MIYAZAKI*

(Received May 22, 1987)

A review of the present status of research on the generation of coherent VUV and soft X-ray radiation is presented. In the last 15 years many techniques have been developed by utilizing third- and higher-order non-linear processes to generate coherent radiation in the spectral region below 200 nm. The shortest wavelength of the coherent radiation generated so far is 14.6 nm, which is the 17th harmonic of an intense picosecond KrF laser (248 nm) output, and the continuously tunable coherent radiation has been successfully generated down to about 70 nm. Further development of the nonlinear frequency conversion technique may extend the spectral region of useful coherent radiation to the XUV and X-ray.

Key Words : Coherent VUV and soft-X-ray radiation

1. はじめに

レーザーが發明されてから30年に近い年月が経た現在でも、真空紫外から極端紫外、さらにはX線、 γ 線と続く広大なスペクトル領域では、種々の提案と試みがなされているにもかかわらず、実用的なレーザー開発はされていないのが現状である。このような極短波長領域においては、大強度高速励起技術の開発や共振器技術の開発が著しい困難を伴うためである。これらの課題は今なお未解決であるが、短パルス大出力、短波長レーザー技術の進展に伴い、最近では極短波長レーザーの研究開発が世界的に活気を呈

してきている¹⁾。

本稿では、極短波長レーザー技術の中でも、比較的実用的な極短波長コヒーレント光発生技術として、最近とみに著しい発展を示している非線形光学効果を利用したコヒーレントVUV、XUV光の発生技術の現状と将来について展望する。

2. 非線形分極と周波数変換

レーザーの短波長化のための波長変換には、高調波発生や和・差周波数混合などの非線形光学効果が利用される。非線形媒質中にレーザー光が入射すると、媒質中に巨視的な分極 P が誘

* 電子技術総合研究所 (〒305 茨城県新治郡桜村梅園1-1-4)

* Electrotechnical Laboratory (1-1-4, Umezono, Sakura, Niihari, Ibaraki 305)

起される。

$$P = \chi_1 \cdot E_i + \chi_2 : E_i E_j + \chi_3 : E_i E_j E_k + \cdots \quad (1)$$

ここで、 E_i は入射光の高周波電場、 χ_1 は線形感受率、 $\chi_n (n \geq 2)$ は n 次の非線形感受率である。線形分極 $\chi_1 \cdot E_i$ は、媒質による光の吸収や分散を支配する。

反転対称性を欠く非線形結晶を用いると、2次の非線形分極 $\chi_2 : E_i E_j$ による第2高調波発生 (SHG: $\omega_2 = \omega_1 + \omega_1 = 2\omega_1$) や和周波数混合 ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) が可能である。非線形光学結晶における第2高調波発生や和周波発生による波長変換法は、可視から紫外域における高効率コヒーレント光発生法として広く利用されている。最近、非線形光学結晶 β -BaB₂O₄ を用いたエキシマレーザー励起色素レーザーの第2高調波発生によって、波長 205 nm までのUV全域ともいえる範囲で波長可変コヒーレント光が得られている²⁾。しかし、固体結晶を利用した周波数変換によって、コヒーレント光の波長を真空紫外 (VUV) ~ 極端紫外 (XUV) 域にまで拡大することはできない。これは、結晶による光吸収のためである。

反転対称性を持つ原子や分子では、奇数次の非線形分極のみが誘起される。その中でも、最低次の3次の非線形性 χ_3 が、広く波長変換に利用されている。 χ_3 による波長変換過程には、(a)

Fig. 1 Diagrammatic representation of third-harmonic generation (a), four-wave sum mixing (b) and four-wave difference mixing (c).

第3高調波発生 ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 + \omega_1 = 3\omega_1$), (b)和周波発生 ($\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$), (c)差周波発生 ($\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 - \omega_3$) などがある (Fig. 1)。レーザーの短波長化を目的としたVUV~XUVコヒーレント光発生には、気体 (原子や分子) の χ_3 またはそれ以上の高次非線形光学過程を利用するのが有効である。

3. 高調波発生の研究状況

非線形光学効果の中でも最低次の第2高調波発生や第3高調波発生に関しては、ルビーレーザーと非線形光学結晶や液体を用いて早くから (1961年~) 基礎研究が行われてきた³⁾。

その後、気体を非線形媒質とする第3高調波発生に関しても、1967年にはルビーレーザーを、1971年にはNd:YAGレーザーを用いて研究が進められた。その中で、アルカリ金属蒸気と希ガスの混合気体によって位相整合条件を満たすことができ、高効率波長変換の可能性が示された⁴⁾。このような気体における高効率波長変換法の研究を基礎として、VUV域においてピコ秒Nd:YAGレーザーを基本波とする高出力第3高調波発生 (1972~3年)^{4), 5)}、2光子共鳴4光波混合による高効率波長可変VUV光の発生 (1974年)²¹⁾ などの実用的な短波長コヒーレント光発生法の研究が発展した。

高次の非線形光学効果 (第5高調波以上) を利用した波長変換によるVUV域やXUV域でのコヒーレント光発生の理論的考察は、1972年S. E. Harrisによって行われている¹⁸⁾。それによると、Nd:YAGレーザーの高調波を基本波として、第15次までの高調波発生の可能性が論じられている。このような理論的示唆とピコ秒Nd:YAGレーザーの高出力化に伴い、1972年から1977年にかけてNd:YAGレーザーの高調波を基本波としたVUV~XUV領域での高次高調波発生の研究が相次いだ。1977年には、Nd:YAGレーザーの高調波 (波長: 266 nm) の第7次の高調波発生 (38 nm) が行われた⁹⁾。これが、しばらくの間コヒーレントXUV光の最短波長であった。

Table I Summary of higher-order harmonic generation in VUV~XUV region.

Harmonic Radiation				Fundamental Wave				Year	Ref.
Process	Wavelength (nm)	Nonlinear medium	Efficiency	Wavelength (nm)	Power density (W/cm ²)	Power	Pulse Width		
3 ω	118.1	Cd: Ar	10 ⁻⁷	354.7 YAG 3 ω		10 MW	50ps	1972	(4)
3 ω	118.1	Xe: Ar	2.8 $\times 10^{-2}$	354.7	6 $\times 10^{12}$	13MW	25ps	1973	(5)
3 ω	88.7	Ar	10 ⁻⁷	266 YAG 4 ω				1973	(6)
3 ω	57	Ar		171 Xe ₂		1.5MW	10ns	1976	(7)
5 ω	53.2	Ne, He	10 ⁻⁶ ~10 ⁻⁷	266	3 $\times 10^{14}$	330MW	30ps	1976	(8)
7 ω	38	He	10 ⁻⁵ ~10 ⁻⁶	266	10 ¹⁵	330MW	30ps	1977	(9),(10)
3 ω	102.7	Ar	3 $\times 10^{-8}$	308 XeCl	2 $\times 10^{11}$	0.5MW	10ns	1979	(11)
3 ω	83	Xe	7 $\times 10^{-9}$	248 KrF		6MW	10ns	1980	(12)
5 ω	61.6	Ar,Kr	10 ⁻¹⁰	308	10 ¹⁴	20~40MW	0.25~0.5ns	1981	(13)
3 ω	64	H ₂ ,D ₂ ,Ar, Kr,CO	10 ⁻⁶	193 ArF	2 $\times 10^{14}$	40MW	7ns	1982	(14)
7 ω	35.5	He	3 $\times 10^{-11}$	248	10 ¹⁵	1.3GW	15ps	1983	(15)
13 ω	19.1	Ne	2 $\times 10^{-11}$	248	10 ¹⁶	10GW	1.5ps	1986	(16)
17 ω	14.6	Ne	2 $\times 10^{-11}$	248	10 ¹⁶	10GW	1.5ps	1987	(17)

1979年頃から、高出力な紫外レーザーであるエキシマレーザーを基本波として高調波発生の研究が盛んに行われるようになった。1983年にはKrFエキシマレーザーを基本波とする第7次の高調波発生(35.5 nm)が達成され¹⁵⁾、現在ではKrFレーザーの第17次高調波発生(14.6 nm)までが観測されている¹⁷⁾。これが、現在報告されているコヒーレントXUV光の最短波長である。

このような高次高調波発生によるVUV~XUVコヒーレント光発生の研究開発状況を、Table I にまとめてみる。これまでの高次高調波発生の研究開発を概観すると、次のようになる。

①高調波発生のために利用される。基本波レーザーとしては、1960年代はルビーレーザー、1970年代はNd:YAGレーザーとその高調波、

1980年代はエキシマレーザーと移ってきた。

②基本波レーザーの性能として、Nd:YAGレーザーの高調波(266 nm)とKrFエキシマレーザーを比較すると、この10年間で次のような点が向上してきている。

短パルス化: 30 ps $\rightarrow$ 1.5 ps

高出力化: 0.3 GW $\rightarrow$ 10 GW

パワー密度: 10¹⁵ W/cm² $\rightarrow$ 10¹⁶ W/cm²

この高次高調波発生の研究開発の推移をみると、近い将来サブピコ秒~フェムト秒の極短パルス高出力(TW級)の紫外レーザーシステムが開発され、10 nm以下の軟X線領域でのコヒーレント光発生の研究開発も進展するものと期待できる。

4. 高次高調波発生における課題

高出力エキシマレーザーを基本波として、高次高調波発生によってコヒーレントXUV光を発生させる場合にはその変換効率が問題となる。一般に n 次の非線形感受率 χ_n は n とともに急激に小さくなる。たとえば、Naを非線形媒質とする場合、 $\lambda=1.06\mu\text{m}$ のとき $\chi_5/\chi_3\sim 10^{-10}$ である。そのため、 n 次の高調波発生において十分な変換光強度 I_n を得るためには、基本波強度 I_1 を著しく大きくしなければならない。

$$I_n \propto |\chi_n|^2 I_1^n \quad (2)$$

ここで、 n 次(奇数次)と $n+2$ 次の高調波強度を比較すると、近似的に次のようになる。

$$I_{n+2}/I_n \sim (2\pi/c)^2 |\chi_{n+2}/\chi_n|^2 I_1^2 \quad (3)$$

上式において、 I_1^2 がその係数程度の大きさになれば、 $I_n \sim I_{n+2}$ となることが期待できる¹⁹⁾。この条件は、ほぼ $I_1=10^{14}\sim 10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$ に相当し、現在のレーザー技術によって比較的容易に達成できる値である。たとえば、Heを非線形媒質、Nd:YAGレーザーの4倍高調波(266nm)を基本波とした場合に、共鳴効果の加わることもあって $I_1 \sim 5 \times 10^{12}\text{W}/\text{cm}^2$ で、 $I_5 \sim I_3$ となることが実際に観測されている。また、さらに大きな I_1 ($\sim 10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$)を基本波とすることによる5次、7次の高調波発生において、変換効率が $10^{-6}\sim 10^{-4}$ と比較的大きい高出力コヒーレントXUV光が得られている⁸⁻¹⁰⁾。

最近ピコ秒KrFエキシマレーザー増幅システムからの大きな I_1 ($\sim 10^{16}\text{W}/\text{cm}^2$)を基本波とし、Neを非線形媒質とした11次、13次、15次、17次の高調波発生において、共鳴効果が加わることもあり、それぞれの変換効率が $\sim 10^{-11}$ 前後と余り変わらないという結果も観測されている¹⁷⁾。これらのことから、ある程度大きな I_1 に対しては、高次の非線形光学効果 χ_n を利用する周波数変換(波長変換)は効率の悪い方法ではないということが言える¹⁾。

波長 $\lambda \leq 105\text{nm}$ のXUV域では、透過率の良好な光学材料がなく、そのためコヒーレント光発生のための非線形媒質の生成に種々の工夫が

必要となる。非線形媒質と基本波レーザー光との相互作用領域を空間的に孤立して生成しなければならないためであり、差動排気、キャピラリ一束窓、パルス超音速ビーム、回転ディスク法等が考案されている。非線形媒質としては、He, Ne, Ar, Kr, Xeが用いられることが多い。

このようなコヒーレントXUV光発生における主な技術課題をまとめると、次のようになる。

- (1) ビーム特性の優れた高出力短パルス短波長レーザーの開発。
- (2) 発生するXUV光が媒質自身を電離する場合が多く、その吸収を避けるため、非線形媒質を相互作用領域でのみ生成すること。
- (3) 高いイオン化ポテンシャルを持つ非線形媒質の開発と絶縁破壊の防止。

5. 波長可変VUV, XUVコヒーレント光源

VUV $\sim$ XUV域では、広い波長域で発振波長を掃引できる波長可変レーザーがないため、色素レーザー等を基本波として発生できる波長可変コヒーレントVUV, XUV光が、実用上特に重要になる。このような波長可変コヒーレントVUV, XUV光の発生には、気体(原子、分子)を非線形媒質とした第3高調波発生(THG: $\omega_{\text{THG}}=3\omega_1$), 4光波混合(FWM: $\omega_{\text{FWM}}=2\omega_1 \pm \omega_2$)などの非線形光学過程が最も広く利用されている。非線形媒質としては、Mg, Sr, Zn, Cd, Hg等の金属蒸気, Xe, Kr, Ar, Ne等の希ガス, NO, CO等の分子気体が利用されている。その波長可変コヒーレントVUV, XUV光発生例を、Table II および Table IIIに示す³³⁾。

このような波長可変コヒーレントVUV $\sim$ XUV光発生過程において、高効率波長変換を達成するためには、次のような方法がとられる。

- (1) 入射光強度 I_1 を大きくする。
- (2) 非線形感受率 χ_3 の大きな媒質を選ぶと共に、2光子共鳴などにより χ_3 を大きくする。
- (3) 位相整合条件を満足させるように媒質の分散を制御する。

このようにして発生したコヒーレントVUV, XUV光の特長は、シンクロトロン放射光や他

Table II Summary of generation of tunable coherent VUV radiation.

Nonlinear medium	Generated VUV (nm)	Processes	Power (W)	Maximum efficiency	Ref.
Hg	140 - 160	$2\omega_1 + \omega_2$	60	$\sim 2 \times 10^{-3}$	(20)
Sr	178 - 196	$2\omega_1 + \omega_2$	1	$\sim 10^{-2}$	(21)
Zn	106 - 140	$2\omega_1 + \omega_2$	—	$\sim 3 \times 10^{-7}$	(22)
Cd	115 - 150	$2\omega_1 + \omega_2$	100	$\sim 10^{-3}$	(23),(24)
Hg	109 - 126 161 - 188	$2\omega \pm \omega_2$	10^4	$\sim 10^{-2}$	(25)
Kr	110 - 124	$2\omega_1 + \omega_2$	16	$\sim 10^{-5}$	(26)
Xe	140 - 147 160 - 207	3ω $2\omega_1 - \omega_2$	30 500	$\sim 10^{-5}$ $\sim 10^{-3}$	(26),(27)
NO	130 - 152	3ω $2\omega + \omega_2$	—	$\sim 10^{-7}$	(28)

Table III Summary of generation of tunable coherent XUV radiation.

Nonlinear medium	Generated XUV(nm)	Processes	Fundamental (lasers)	Ref.
Hg	87.5 - 105	$2\omega_1 + \omega_2$	Dye	(29)
Kr	92.2 - 94.3	$2\omega_1 + \omega_2$	Dye	(30)
Ar	85.7 - 104.8	3ω	Dye	(31)
Ne	72.1 - 74.4	3ω	Dye	(32)

のVUV光源に比べると、著しく高輝度で、出力スペクトルの幅が狭いということである。光源自身が高分解能なスペクトル特性を備えているため、原子・分子の高分解能分光、光電子分光、プラズマ診断などに広く利用され始めている³³⁾。

6. おわりに

VUV～XUV領域においては、波長可変レーザーの開発は著しく困難なため、非線形光学効果を利用して得られる高輝度で狭スペクトルの波長可変コヒーレントVUV、XUV光は、今後増々極短波長域における実用的なコヒーレント光源として重要な地位を占めるものと思われる。今後とも、基本波としてのエキシマレーザーの短パルス高出力化、高品質化が進むとともに、より実用的な極短波長コヒーレント光源の開発が進め続けられて行くことであろう。

近い将来、VUV～XUV全域でレーザーを含むコヒーレント光の利用が可能になるとともに、より短波長のX線領域においても波長可変コヒーレント光源の開発が可能になるものと期待される。

参 考 文 献

- 1) 宮崎, 佐藤: 電気学会雑誌 **105** (1985) 525.
- 2) K. Miyazaki *et al.*: Opt. Lett. **11** (1986) 797.
- 3) P.A. Franken and J.F. Ward: Rev. Mod. Phys. **35** (1963) 23.
- 4) A.H. Kung *et al.*: Phys. Rev. Lett. **29** (1972) 985.
- 5) A.H. Kung *et al.*: Appl. Phys. Lett. **22** (1973) 301.
- 6) S.E. Harris *et al.*: "Laser Spectroscopy" (Plenum Press, 1973), p.59.
- 7) M.H.R. Hutchinson *et al.*: Opt. Commun. **18** (1976) 203.
- 8) J. Reintjes *et al.*: Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 1540.
- 9) J. Reintjes *et al.*: Appl. Phys. Lett. **30** (1977) 480.
- 10) J. Reintjes *et al.*: IEEE J. Quantum Electron. **QE-14** (1978) 581.
- 11) J. Reintjes: Opt. Lett. **4** (1979) 242.
- 12) H. Egger *et al.*: Opt. Lett. **5** (1980) 282.
- 13) J. Reintjes *et al.*: Opt. Commun. **39** (1981) 334.
- 14) H. Pummer *et al.*: Opt. Lett. **7** (1982) 93.
- 15) J. Boker *et al.*: Opt. Lett. **8** (1983) 217.
- 16) T.S. Luk *et al.*: "Ultrafast Phenomena V" (Springer, Berlin, 1986), p.366.
- 17) A. McPherson *et al.*: J. Opt. Soc. Am. B **4** (1987) 595.
- 18) S.E. Harris: Phys. Rev. Lett. **31** (1973) 341.
- 19) J.F. Reintjes: "Nonlinear Optical Parametric Processes" (Academic, London, 1984), p.183.
- 20) S.C. Wallace *et al.*: Appl. Phys. Lett. **28** (1976)

- 449.
- 21) R.T. Hodgson *et al.* : Phys. Rev. Lett. **32** (1974) 343.
- 22) W. Jamroz *et al.* : Opt. Lett. **7** (1982) 617.
- 23) K. Miyazaki *et al.* : Opt. Lett. **9** 457 (1984).
- 24) K. Miyazaki *et al.* : IEEE J. Quantum Electron. **QE-22** (1986) 2266.
- 25) R. Hilbig *et al.* : IEEE J. Quantum Electron. **QE-19** (1983) 1759.
- 26) R. Hilbig *et al.* : Appl. Opt. **21** (1982) 913.
- 27) R. Hilbig *et al.* : IEEE J. Quantum electron. **QE-17** (1981) 1566.
- 28) K.K. Innes *et al.* : Appl. Phys. Lett. **29** (1976) 715.
- 29) P.R. Herman *et al.* : Opt. Lett. **10** (1985) 502.
- 30) K.D. Bonin *et al.* : J. Opt. Soc. Am. **B 2** (1985) 527.
- 31) R. Hilbig *et al.* : Opt. Commun. **44** (1983) 283.
- 32) R. Hilbig *et al.* : Opt. Commun. **49** (1984) 297.
- 33) 宮崎, 酒井, 佐藤 : 昭和62年レーザー学会学術講演会第7回年次大会講演予稿集, (1987) p.186.