

# アト秒極紫外レーザには 高精度の多層膜ミラーが必要

オリビア・ウィーラー、アレクサンダー・グッゲンモス

極端紫外線(EUV)レーザのアト秒光学系は、中心波長/エネルギー、スペクトル形状、スペクトル位相、パルス幅(パルス持続時間)を最大限に制御できるように設計する必要がある。

過去数十年間、アト秒(asec)パルス幅のレーザパルスが開発されている。これまでのフェムト秒の時間スケールのレーザシステムでは実現できなかった電子ダイナミクス(電子運動状態の解析)への道が開かれた。

2001年にエム・ヘンツェル氏(M. Hentschel)らによって最初に生成されたレーザパルスはasecパルス(1 asec =  $10^{-18}$ sec)で、電子の運動などの最も基礎となる科学的な解析プロセスが実現可能になる<sup>(1)</sup>。アト秒パルスの長さの目安は、1アト秒を1秒とすると、1秒は宇宙年齢に相当する(図1)<sup>(2)</sup>。

現在、最短のレーザパルスは100アト

秒以下(2017年時点で43アト秒)で、これは水素内の電子の基底状態の軌道周期に匹敵する<sup>(3)</sup>。すべての超高速レーザはパルス幅の短さを特徴とし、アト秒レーザが超高速レーザのパルス幅の下限を押し上げている。電子局在、崩壊過程のダイナミクス、強磁界の効果などが観測されたが、アト秒科学という新たに確立された分野において、主要な発見のごく一部に過ぎない<sup>(4)~(6)</sup>。

## アト秒レーザパルスの生成

伝搬する超高速レーザパルスを生成するには、十分な帯域幅と適切な中心波長の両方が必要である。スペクトル

帯域幅から、フーリエ変換の関係式で決まる最小パルス幅が求められる。原理的には、スペクトル帯域幅が広いほど、短パルスになる。実際には、無限に短いパルス幅のレーザパルスを生成するために、無限に広いスペクトルを生成することはできない。

また、光周期(レーザパルスの中心波長の周期)によっても、パルス幅が制限される。この光周期は、中心波長を光速で割ると求められる。800nmを中心としたパルスの場合、光周期は約2.67fsである。このことから、800nmを中心とするレーザパルスは、たとえスペクトル帯域幅が十分に広くても、アト秒パルス幅の圧縮に対応できないことがわかる。一方、19nmを中心とするパルスの最小パルス幅は約63アト秒である。このため、アト秒レーザパ

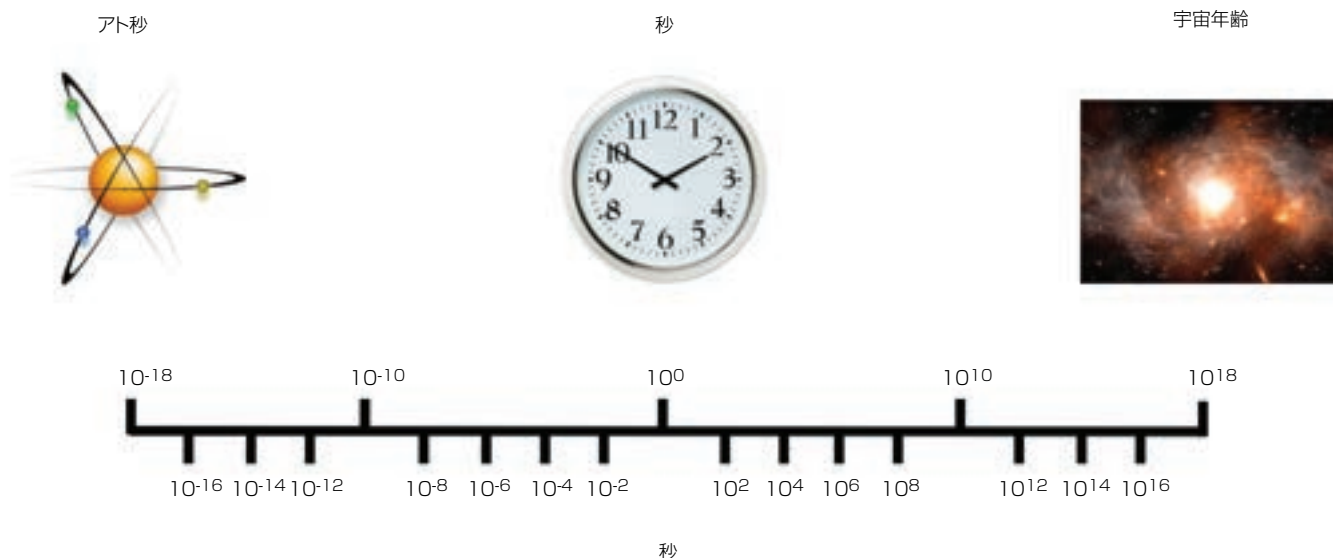


図1 アト秒、1秒、宇宙年齢の時間スケールの比較図。アト秒がいかに短い時間であることを示している。



図2 アト秒レーザービームの操作に使用されるEUVアト秒多層膜ミラー。

ルスは、一般に電磁スペクトルのEUV (XUVとも呼ばれる) 領域にあり、それより低いエネルギー領域(長波長)では生成されない。

### アト秒レーザー光源

EUVアト秒パルスの光源としては、自由電子レーザー(FEL)と高次高調波発生(HHG)が最も一般的であり、後者のほうが一般的なレーザー利用者には身近な存在である。HHGによるアト秒生成は、3つのステップからなり、まず、試料(通常は希ガス)を、レーザーから供給される強い電界と相互作用させる。印加された電界は、電子波動関数を支配するクーロンポテンシャル(エネルギー)を歪ませ、トンネル効果を用いて試料のイオン化を誘発する。電子はレーザー電界によって親イオンから離れる方向に加速されるが、振動電界

が反転すると親イオンの方向に加速される。電子は親イオンと再結合する際に、加速中に得た運動エネルギーを、駆動レーザー周波数の奇数次高調波で光子の形態として放出する<sup>(7)</sup>。

### アト秒極端紫外(EUV)レーザー用光学系

アト秒EUVの活用にあたって、本来、使用される光学部品には非常に厳しい条件が要求される。アト秒パルスのステアリング、集光、整形には、高精度の金属/誘電体多層膜ミラーが一般的に使用される(図2)。アト秒光学系は、中心波長/エネルギー、スペクトル形状、スペクトル位相、パルス幅を最大限に制御できるように設計する必要がある。

アト秒実験では、十分に同期されたレーザーパルスが必要である。コヒーレ

ントEUV/軟X線源は、波長可変性に限界があるため、レーザーミラーのようなパルス整形アト秒光学系で対処する必要がある。角度依存性や色分散性のない光学系が望ましい。これらの特性が、時間領域でパルスを広げるためである。こういった要件を満たすには、グレーティングなどの他の要素よりも多層膜ミラーのほうが適している。所望のパルス特性を維持するには、反射面に高精度の多層膜コーティングが必要であり、散乱による光損失を最小限に抑えるには、通常、表面粗さが1Å(10<sup>-10</sup>m)レベルの超研磨基板が必要である。コーティング層を積層する前に、多層膜ミラーコーティングの振幅と位相の特性の高度なシミュレーションを行い、最適化する。

アト秒EUVレーザーミラー用の原子レベルの薄さを持つ多層膜コーティング

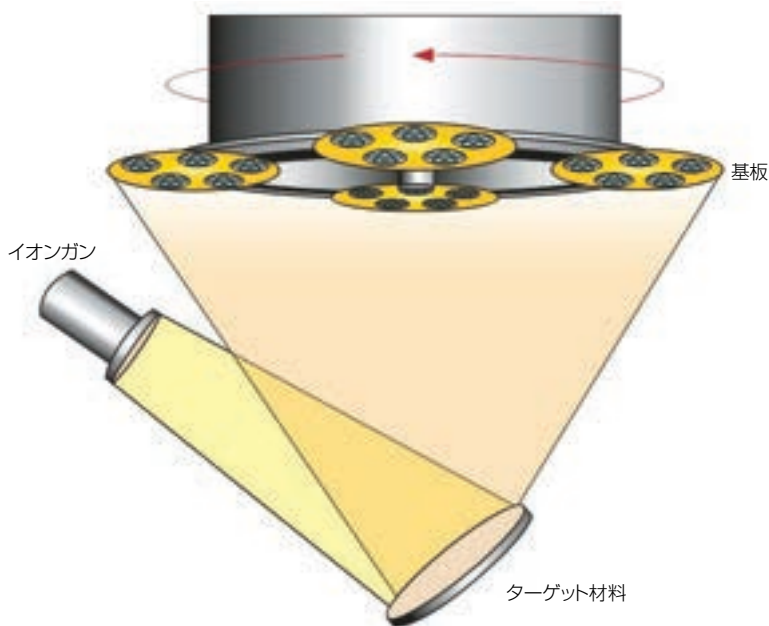


図3 イオンビーム蒸着法は、高制御のコーティング手法で、EUVアト秒ミラーの整形に用いられる。高エネルギーイオンガン(イオン銃)を用いて、ターゲット材料から材料を回転する基板上にスパッタリングすることで、非常に正確で再現性の高い光学コーティングを実現する。

には、化学蒸着法、パルスレーザ堆積法、マグネトロンスパッタリング法、電子ビーム加熱蒸着法など、さまざまな蒸着技術が使用される。一般的には、後者2つの技術が使用される。マグネトロンスパッタリング法でコーティングされたミラーでは、70.9%という最高記録を達成した<sup>(8)</sup>。しかし、コーティングの制御性と再現性が最も高いのは、イオンビーム蒸着法(イオンビームスパッタリング法とも呼ばれる)である。

イオンビーム蒸着法は、実際の膜厚監視を必要とせずに、正確に膜厚制御できる強力な手法である(図3)。イオンエネルギーと電流を別々に制御することで、層形成を最適化する自由度が高まる。

EUVアト秒ミラーは通常、白色光分光エリプソメトリ(偏光解析法)、EUV/軟X線反射率測定、斜入射硬X線反射率測定を使用して測定される。白色光分光エリプソメトリは包括的な測定技術であり、一定の入射角で

試料に反射した放射線の位相と振幅の変調を利用する。そのため、エリプソメトリを現場の測定に使用して、積層中の多層膜試料を分析し、必要な積層速度を決定する。

EUV/軟X線反射率測定では、特定の入射角での多層膜ミラーの絶対反射率を測定し、斜入射硬X線反射率測定で、ミラーの反射率に重要な役割を果たすコーティング層の粗さが明確になる。このような測定情報を組み合わせることで、EUVアト秒多層膜ミラーの理論的性能と実際の性能の包括的なモデルを構築できる。

### アト秒光学系の応用

アト秒光学系の進歩は、アト秒科学の分野で成長を促進している。ポンプ-プローブ分光法などの従来の超高速技術は、アト秒パルスの特徴によって強化されている。

ポンプ-プローブ分光法は、通常、ストリーキング分光法や過渡吸収分光

法で構成される。過渡吸収実験では、まず、可視ポンプレーザパルスで目的のシステムを励起させる。一定時間経過後、白色光プローブパルスで励起状態のスペクトル分解を監視する。アト秒過渡吸収分光法(ATAS)の場合、可視近赤外光ポンプで励起させ、アト秒EUVパルスを探針として機能させる。しかし、アト秒ストリーキング分光法の場合はその逆で、最初のレーザパルスで原子や分子のイオン化を引き起こし、その後、2番目の長波長レーザパルスの振動電界で放出された電子のエネルギーを変調させる。EUVアト秒パルスがもたらすスペクトル分解能を活用することで、価電子の運動や内殻電子状態のダイナミクスに関する知見が得られる<sup>(5)、(9)</sup>。

現在行われているアト秒実験の大半では、依然として、HHG用の駆動レーザには、増幅型チタンサファイアレーザ装置が用いられる。ストリックランド氏(Strickland)とムールー氏(Mourou)が2018年にノーベル物理学賞を受賞したチャープパルス増幅のような技術の場合、パルス圧縮の別の手法と同様に、ほぼ単一サイクルのパルス幅でHHG処理を駆動する。残念ながら、このようなレーザ装置に関連する比較的低い繰り返し周波数(最大10kHz)では、アト秒生成処理に対して、またアト秒実験における複雑な検出スキームに関連するデータ収集時間に対して、重大な制限が課される。その結果、アト秒研究コミュニティでは、さらに高出力で高繰り返し周波数の装置を求める傾向があり、繰り返し周波数がメガヘルツ級のEUV装置の導入に至った。

最近では、チタンサファイアレーザ装置か氏ら、1.030nmを中心とするイッテルビウム系レーザ装置に移行して



いる。高平均出力で高繰り返し可能な光パラメトリックチャープパルス増幅器と組み合わせることで、アト秒の研究は、さらに強力なレーザーで基礎的な電子現象を解明する方向へと進んでいる<sup>(10)</sup>。

アト秒科学の研究が発展し、さまざまなレーザー利用者が、こういった技術を利用しやすくなると、科学的探求に広がる光学部品が、研究に欠かせなくなる。アト秒EUVミラーのような複雑な超高速光学系は、カスタム設計が多々要求されるため、従来は調達が困難であった。少量生産であると、高価格で長納期のため、手が出ない場合が多いが、現在では、アト秒EUVミラーは標準的な既製品として、入手でき

るようになった。破損装置の修理の迅速化、装置試作への新たなアイデア探求の急速化、科学的発見の加速化にあ

たっては、既製品化による少量生産時の価格低廉化と納期短縮が特に重要である。

#### 参考文献

- (1) M. Hentschel et al., Nature, 414, 509-513 (2001); doi:10.1038/35107000.
- (2) D. Villeneuve, Contemp. Phys., 59, 1, 47-61 (2018); doi:10.1080/00107514.2017.1407093.
- (3) T. Gaumnitz et al., Opt. Express, 25, 22, 27506-27518 (2017); doi:10.1364/oe.25.027506.
- (4) G. Sansone et al., Nature, 465, 763-766 (2010); doi:10.1038/nature09084.
- (5) M. Drescher, Nature, 419, 803-807 (2002); doi:10.1364/oe.25.027506.
- (6) M. Lucchini et al., Science, 353, 6302 (2016); doi:10.1126/science.aag1268.
- (7) A. Zeidler et al., Phys. Rev. Lett., 95 (2005); doi:10.1103/physrevlett.95.203003.
- (8) S. Bajit et al., Proc. SPIE, 4506, 65-75 (2001); doi:10.1117/12.450946.
- (9) E. Goulielmakis et al., Nature, 466, 7307, 739-743 (2010); doi:10.1038/nature09212.
- (10) T. Witting et al., Optica, 9, 2, 145-151 (2022); doi:10.1364/optica.443521.

#### 著者紹介

オリビア・ウィーラーは、米エドモンド・オプティクス社(Edmund Optics)のウルトラファストレーザーオプティクスエンジニア。アレクサンダー・グッゲンモスは、独ウルトラファスト・イノベーションズ社(UltraFast Innovations)のCEO。

email: owheeler@edmundoptics.com guggenmos@ultrafast-innovations.com

URL: www.edmundoptics.com www.ultrafast-innovations.com

LFWJ

THE FUTURE DEPENDS ON OPTICS™

**TECHSPEC® レーザーミラー**

- ・ 在庫販売で1個から短納期供給可能な標準品のレーザーミラー
- ・ 自社内の加工とコーティング設備で製造可能な特注ミラー
- ・ Nd:YAG, Yb:YAG, チタンサファイアや他の共通レーザー波長用にデザイン
- ・ 超短パルスレーザー用の誘電体膜と超短パルス用反射強化銀コーティング
- ・ レーザー誘起損傷閾値 (LIDT) を保証

エドモンド・オプティクス・ジャパン株式会社  
〒113-0021 東京都文京区本駒込2-29-24  
パシフィックスクエア千石 4F  
TEL: 03-3944-6210 E-mail: sales@edmundoptics.jp

**Edmund optics | japan**  
詳しい情報はこちらへ:  
[www.edmundoptics.jp/112-8158](http://www.edmundoptics.jp/112-8158)