

論文の内容の要旨

高次高調波を用いた 時間分解位相敏感屈折率計測法の開発 (Development of a method for time-resolved phase-sensitive detection of refractive indices using high-order harmonics)

氏名 永久保 祐紀

強い短パルスレーザーを希ガスに集光することでレーザー光の光子エネルギーの何十倍もの光子エネルギーを持つ光を発生させる高次高調波発生により、真空紫外から軟 X 線領域までの幅広いエネルギー範囲で高いコヒーレンスを持つ光源を得る技術が注目を集めている。この光を用いたポンプ・プローブ時間分解測定を始めとした物性実験への応用が進みつつある。本研究では、固体の伝導電子のアト秒領域の超高速ダイナミクスを捉えることを目指して、高次高調波を光源に用いた時間分解測定への応用が可能な屈折率計測手法を確立するために、二重スリット干渉計による位相敏感な計測装置を開発した。高い空間コヒーレンスを持つ光が二重スリットを透過するとヤングの干渉像が生じるが、二重スリットの片側にアルミニウム薄膜試料を貼りつけたサンプルの干渉像の明暗度と位相から、各々のスリットを透過した光の強度比と光路差を求め、試料の複素屈折率分散を計測することができる点に着目した。

まず位相敏感屈折率計測の前段階として、高次高調波発生の基本波となるチタンサファイア再生増幅器、高調波発生装置や高調波のキャラクタリゼーションを行う分光器の特性を理解し、光パラメトリック増幅器(OPA)の導入と調整、分光器の分解能向上や波長校正といった改善を通じて、本研究の屈折率計測に堪えうるパフォーマンス

スを発揮できるよう装置を最適化した。

次に計測実験の第一段階として、定常状態にある試料の屈折率計測を行った。OPA の出力を基本波として用いることで、高次高調波の波長を可変にすることができる。このことを利用して、片側にアルミニウム薄膜試料を貼った二重スリットの干渉像を観測し、屈折率の実部と虚部を同時に測定した。OPA の波長設定を変え高次高調波のエネルギーを万遍なく動かして、アルミニウムの L 殻吸収端 72.8 eV 周辺の屈折率分散の詳細を明らかにした。実験結果は試料表面の酸化膜の効果を加味すると文献値と整合したことから、試料の屈折率分散を正しく測定できることが確認できた。

そしてその成果を踏まえて、時間分解測定への応用について検討した。同軸波面分割型ポンプ・プローブの手法を取り入れ、ポンプ・プローブ時間分解測定用の装置を構築、追加した。リング状のマスクによって波面分割された外側の基本波は Ne ガスに集光、高次高調波を発生する一方、内側の励起光は透過する石英プレート of 角度を変えることでポンプ・プローブの遅延時間を制御しつつ、凹面レンズによりダブルスリット(サンプル)に集光するような配置とした。遅延時間ゼロ点の前後で、ポンプの有無による二重スリット干渉像の位相差分、すなわちポンプ光によるアルミニウムの L 端付近の屈折率変化の遅延時間依存性を測定した。

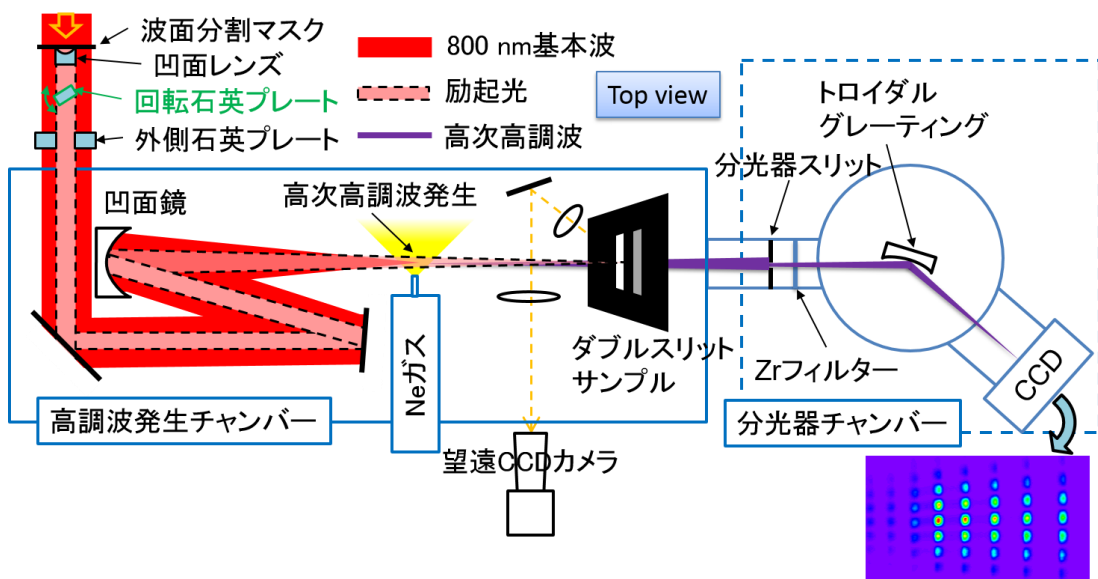


図 1. 同軸波面分割型ポンプ・プローブ装置の上面図

さらにポンプ・プローブ実験系の問題点を検討し、系統誤差を抑えるビームポインティング安定化機構の導入、ポインティング以外の要因の検討、解析手法の改善といった改良を加えた。それによって現在の装置の位相差分検出性能を正しく評価できるようになり、OPA 波長 660 nm の基本波による高調波干渉像では、600 s 積算で 66

mrad の精度を確認した。また、図 2 のように位相誤差の積算回数依存性を調べた結果、位相の検出限界は干渉像のモデル関数の適合度により制限されることを明らかにした。

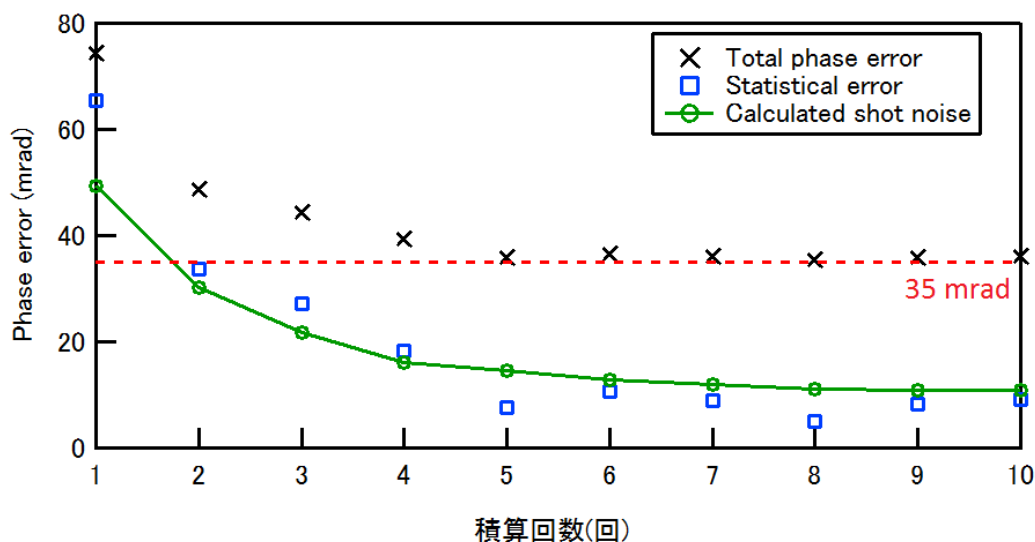


図 2. 高調波干渉像のフィッティングによる位相誤差の積算回数依存性

現在の装置では検出限界のために、ポンプ光でアルミニウム試料を励起した瞬間の伝導帯の電子温度上昇による屈折率変化を捉えることはできなかったが、今後の課題に道筋をつけることができた。現状の検出限界でもポンプによる屈折率変化が観測できるような新たな試料の探索や、検出限界向上ために、モデル関数導出に用いた近似の問題、二重スリットの開口の形が理想的な長方形から歪んでいることによる効果、二重スリットに当たる高調波の波面が前提としている平面波からずれている可能性などの検討と改善が必要と言える。積算時間や高次高調波の強度を増すことで統計誤差を減少させるとともに、高次高調波の波面分布の同定や、実際のスリット形状の厳密な測定、スリット形状の最適化、モデル関数の再構築などによって系統誤差も抑え込む対策が望まれる。

将来的な展望では、固体の伝導体電子の超高速ダイナミクスにアクセスするツールとして高温の電子の非平衡状態における弾道運動を捉え、レーザーアブレーションについての特性の解明に資することや、EUV リソグラフィ用光学素子設計に関わり、従来の Kramers-Kronig 変換に頼らない直接的な屈折率実部の精密計測手法となって重要な役割を果たすことが期待される。