

# 透明材料を用いた高次高調波用ビームスプリッター

## Beam Splitters for High-Order Harmonics Using Materials Transparent to Fundamental Laser

児嶋洋典(M1)

Y. Kojima

### Abstract

It is a crucial issue to separate high-order harmonic (HH) beams from the intense fundamental laser beam when we apply the HH beams to spectroscopic measurements. The beam splitter (BS) mirror made of Si or amorphous SiC has been used for the attenuation of the fundamental beam. But these BSs absorb the fundamental beam, so there is a concern of thermal expansion due to increase of an average power of the fundamental beam. In fact, the average power of the fundamental beam from our laser system is now tenfold magnitude compared with that from the previous laser system. Therefore, we examined the BS property of transparent materials in 700 to 900 nm, which are aimed to suppress the generation of heat.

### 1 はじめに

フェムト秒レーザーを基本波として発生した高次高調波を利用するためには、同軸上を伝搬している基本波から分離する必要がある。そのための手法として、基本波と高次高調波に対する屈折率の違いを利用したビームスプリッター(BS)が考案された。これは、結晶の光学研磨された面を基本波に対してブリュースター角に設定することによって基本波の反射を抑え、高次高調波は屈折率が異なるため反射されるというものである。その材料には最初に提案された Si とアモルファス SiC[1]が今も使われており、最低でも  $0.8 \text{ TW/cm}^2$  という高い損傷閾値をもっている。また、基本波(800 nm)の減衰率(反射率)は $\sim 10^{-5}$ 、高次高調波の反射率は 29.6 nm に対して Si は 0.56, SiC は 0.45 という値が報告されている。ここで今新たに BS 材料の調査を行ったのは、これら従来の BS 材料は基本波を吸収するため(Si の侵入長は  $3 \mu\text{m}$ , SiC は  $9 \text{ nm}$  程度)、基本波の平均パワー上昇に伴い熱による変形が起こる可能性が考えら

れるからである。近年では  $12 \text{ fs} \cdot 40 \text{ mJ} \cdot 100 \text{ Hz}$  のレーザーシステム[2]や  $5 \text{ fs} \cdot 5 \text{ mJ} \cdot 1 \text{ kHz}$  のレーザーシステム[3]など、従来の 10 倍程度の平均パワーをもつ高強度高繰り返しレーザーが開発されてきた。これらのレーザーの高繰り返しを活かしつつ高品質の高次高調波ビームラインを得るためには、高平均出力化による熱の影響を最小限にする高次高調波用 BS が不可欠である。そこで我々は、基本波(700-900 nm)を透過する材料を用いることで熱の発生を抑制することを考えた。どの材料が高次高調波用 BS に適しているか確かめるべく高次高調波に対する反射率と基本波に対する減衰率(反射率)を測定したので、その特性をここに報告する。

### 2 材料の選定

ここでは BS 用材料の選定について述べる。まずは高次高調波用 BS の概略図を Fig. 1 に示す。光学研磨した結晶を P 偏光の基本波に対してブリュースター角に置く。ここで、基本波が吸収されず透過するのが従来の高次高調波用 BS との違いである。そして高次高調波は、基本波と同じく P 偏光ではあるが、基本波とは屈折率が大きく異なるためブリュースター角とはならず、屈折率と入射角に応じていくらか反射される。ここで高次高調波の屈折率は概して 1 より小さく、入射角が大きいほど高い反射率が得られる傾向にある。また、屈折率が大きいほどブリュースター角は大きく

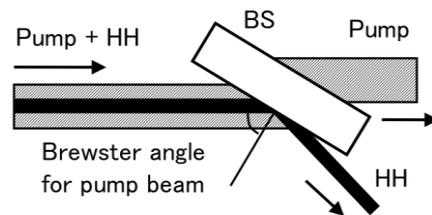


Fig. 1 Schematic of the BS for high-order harmonic fields.

なる。そのため、基本波に対する屈折率が大きいほど高次高調波に対して高い反射効率を期待できる。また、屈折率が1に近いほど反射率は下がるので、高次高調波に対する屈折率は小さいほど(1から離れるほど)BS用材料に適しているといえる。よって、(1)基本波に対する屈折率が大きい、(2)高次高調波に対する屈折率が小さい、(3)化学的に安定で面精度の良い結晶が得られる、といった条件が設定される。我々はこれらの条件に適合する透明材料として、多結晶 SiC, C(ダイヤモンド), TiO<sub>2</sub>(ルチル), GaP に着目した。

SiC は本来透明であるが、純度の高い結晶をつくるのが難しく、従来の高次高調波用 BS に使われていたものは不純物により基本波の吸収が起こっていた。今回、高純度の透明 SiC が手に入ったのでその特性を測定する。C は高い熱伝導率を持つ非常に堅固な物質であるため、高出力レーザー下でも安定した性能が期待できる。TiO<sub>2</sub> は複屈折性を持つため c 軸の角度を調節する必要があり、熱伝導率も非常に低いが、従来の BS 材料である Si と SiC の反射率が下がる 20 nm 付近に反射率のピークを持っている。また、GaP は低次側で高い反射率が期待でき、他の3つの材料に比べると安価で容易に入手できる。Table 1 に選んだ材料の基本波に対する屈折率と熱拡散係数をまとめる。

Table 1 Refractive index and thermal diffusivity of SiC, C, TiO<sub>2</sub>, and GaP.

	Refractive index at 800 nm	Thermal diffusivity [ $10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ ]
SiC	2.6	229
C	2.4	985
TiO <sub>2</sub>	2.8	2.64
GaP	3.2	121

### 3 高次高調波の反射率測定

Fig. 2 に実験セットアップを示す。測定には、100 Hz・サブ 15 fs のレーザー光[2]をポンプ光として用い、高次高調波を Xe ガス(11-19 次高調波)または Kr ガス(13-27 次高調波)を非線形媒質として発生させた。発生

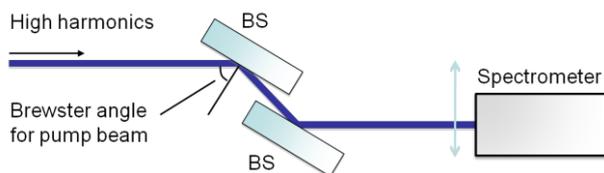


Fig. 2 Setup for measuring the BSs' reflection efficiency.

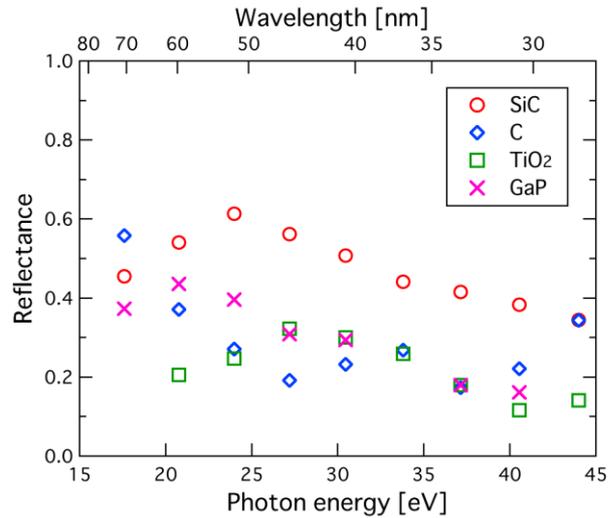


Fig. 3 The measured reflectance of SiC (open circles), C (open diamonds), TiO<sub>2</sub> (open squares), and GaP (crossings).

した高次高調波は SiC の BS で反射された後、極端紫外用分光器に導いて、スペクトル強度を観測する。その途中に反射率を計測する BS 材料(2枚組)をブリュースター角入射で反射する様に出し入れできる真空チャンバーを配置した。反射率は、高調波が直接分光器に入射した時のスペクトル強度, BS 材料 2 枚反射後のスペクトル強度比から、1枚あたりの平均の反射率として算出している。

Fig. 3 は測定結果を表している。最も優れた反射特性を見せているのは SiC であり、70-30 nm において 0.4-0.6 という高い反射率を示している。良好な面精度が保たれている限り、この波長帯域の高次高調波用 BS に最適な透明材料は SiC であるといえる。

### 4 基本波(800 nm)の減衰率測定

Fig. 4 に基本波の減衰率(反射率)測定のためのセットアップを示す。高次高調波用 BS にブリュースター角で入射したときの反射強度を測定することで基本波の減衰率を求めた。光源は Ti サファイアのモードロックオシレーターを用いた。光源の S 偏光成分は P 偏光成分の 0.23 倍程度であり、さらに消光比 100,000:1 の偏光子を置くことで、P 偏光に対する S 偏光の強度を  $10^{-6}$  程度に抑えている。まずは BS の手前にピンホールフォトダイオードを置いて、入射光強度を測定した。測定の際は、フォトダイオードが飽和しないように ND フ

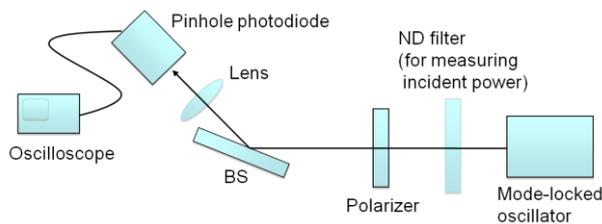


Fig. 4 Setup for measuring the attenuation of BSs.

フィルターを挿入して入射光強度を十分に落としている。次に、BSを入射光に対してブリュースター角となるように置いて、反射光強度を測定した。反射光強度は非常に小さいため、ノイズを低減する必要がある。そこで、検出した信号をフーリエ変換し、光源の動作周波数である 78MHz 付近の成分のみを取り出すことで S/N 比を上げている。そして、測定した入射光強度と反射光強度の比から減衰率を算出した。

Table 2 に測定値を示す。基本波の減衰率は  $\sim 10^{-5}$  となっている。また、S 偏光強度は検出された反射光強度の 100 分の 1 程度なので、S 偏光成分を除外するような計算処理はしていない。ここで、各材料の値の差異に関係しうるパラメータとしては、(1)結晶の面精度、(2)波長による屈折率の分散、(3)吸収係数、(4)屈折率の非線形性などが考えられるが、(2)-(4)は測定値との相関はなく、減衰率は主に結晶の面精度に依存していると考えられる。今後、面精度の測定を行う予定である。また、参考として、高次高調波の発生効率は概ね  $\sim 10^{-5}$  程度なので、通常はスリットやフィルターと組み合わせることでさらに基本波を減衰させる必要がある。

Table 2 The measured attenuation rate of BSs for pump pulse at Brewster angle.

	Attenuation rate
SiC	$4.2 \times 10^{-5}$
C	$7.9 \times 10^{-4}$
TiO <sub>2</sub>	$4.1 \times 10^{-4}$
GaP	$5.8 \times 10^{-4}$

## 5 まとめ

高次高調波用ビームスプリッターに適した透明材料として SiC, C, TiO<sub>2</sub>, GaP に着目し、これらの各次数の高次高調波に対する反射効率および基本波の減衰率を測定した。中でも SiC が最も高い反射効率を示して

おり、BS 用材料として最適だと考えられる。この透明材料による高次高調波用 BS は高出力レーザー下での使用に向いており、今後のさらなるレーザーの高出力化にも伴ってその重要性を増していくであろう。

また、まだ実施していない実験項目としては、面精度の測定と、高出力レーザー下での表面の変形の有無を確認する必要があるため、それらを今後行っていきたいと思う。

## 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, *et al.*, *Opt. Lett.* **29**, 507 (2004).
- [2] Y. Nabekawa, *et al.*, *Appl. Phys. B.* **101**, 523 (2010).
- [3] S. Bohman, *et al.*, *Opt. Lett.* **35**, 1887 (2010).