

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13375

研究課題名(和文)アト秒光電子分光のための超高強度テラヘルツパルス発生

研究課題名(英文)Ultra high intensity terahertz pulse generation for attosecond photoelectron spectroscopy

研究代表者

板谷 治郎 (ITATANI, Jiro)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：50321724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：赤外域の広帯域光パラメトリック増幅器において、三次分散を利用した二波長増幅手法を提案・実証し、波長の異なる二つのパルスを発生させた。この出力をLGS結晶に集光することによって、波長5～10ミクロン帯をカバーする位相安定な中赤外光パルス発生を実現した。得られたパルスを集光することによって、最大電場強度56 MV/cmを達成した。また、中赤外パルスの時間波形と同期した6.5フェムト秒の超短パルスを用いることにより、中赤外パルスの電場波形を直接、電気光学的に測定することにも成功した。これらの成果は、アト秒領域の超高速光科学の研究対象を、気相の原子分子から固体へと広げる上で重要な成果である。

研究成果の概要(英文)：We have developed a novel optical parametric amplification (OPA) scheme, the dual-wavelength OPA, to produce intense mid-IR pulses. The scheme is based on the OPA to amplify heavily chirped pulse with the third-order dispersion, resulting in the phased two-color pulses. These pulses are focused into an LGS crystal to produce carrier-envelope phase-stable mid-IR pulses that cover 5-10 micrometers in the spectrum. The waveform of the electric field was directly measured by the electro-optic sampling method using 6.5-fs ultrashort visible pulses. The focused intensity of the mid-IR pulses reaches 56 MV/cm. These results are an important step to expand the objects of attosecond optical science from gas-phase atoms and molecules, to crystalline solids and condensed matters.

研究分野：アト秒光科学, レーザー物理

キーワード：応用光学・量子光光学 量子エレクトロニクス 高性能レーザー 光物性 テラヘルツ/赤外材料・素子、天然ガス

1. 研究開始当初の背景

2001年の最初のアト秒パルスの報告以来、アト秒光科学では、数サイクルの位相安定な高強度レーザーと極紫外アト秒パルスの利用によって、気相の原子分子を対象とした研究が飛躍的に進展した。その後、2013年に集光電場 1 MV/cm を越える高強度テラヘルツパルス発生が実現し、様々な固体中での強電場現象の発見がなされた。波長の長い光源でより高い光電場を達成することにより、新現象の発見と、特に固体を対象とした強光子場科学の展開が期待されていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、長波長領域で 10 MV/cm を越える高強度の光電場を達成し、新現象および新しい光技術のシードの探索を実験的に行うことである。特に、キャリアエンベロープ位相安定な高強度光電場中での電子過程は、光電場でアト秒精度で駆動されていることから、アト秒科学への応用が期待される。

3. 研究の方法

当初の研究提案では、30 Hz 程度の低繰り返し高エネルギーレーザーを開発し、従来型的手法で高強度テラヘルツパルスを発生する目論見であった。しかしその後、高強度中赤外光源を用いて固体からの高次高調波発生が報告された。そこで本研究では、当初目指していたテラヘルツ領域での高強度光パルス発生ではなく、中赤外領域での高強度光パルス発生を行う事とした。高強度中赤外パルスの応用としては、固体における高次高調波発生を行い、偏光解析等によりその発生過程に関する知見を得ることとした。

4. 研究成果

これまでに、キャリアエンベロープ位相安定な中赤外光の発生では、波長の異なる二波長のパルスを独立した光パラメトリック増幅器で増幅し、非線形光学結晶中で差周波発生を行う手法が一般的だった。しかしこの手法では、波長の異なる二つのパルスの光路長のわずかなゆらぎで相対位相が変化し、それによって中赤外光のキャリアエンベロープ位相が一定にならなくなるという問題点があった。この問題を解決するために、「二波長光パラメトリック増幅法」を考案し、実証した。図1に二波長光パラメトリック増幅法の概念図を示す。

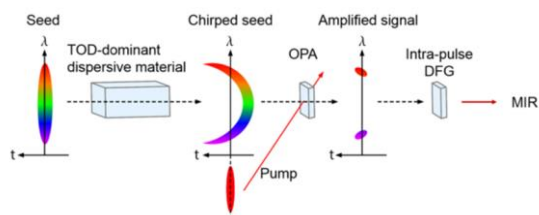


図1：二波長光パラメトリック増幅法の概念図。

多くの光学材料は波長 1~2 μm 帯において群速度分散がゼロとなる波長をもつ。群速度分散がゼロとなる波長をカバーする超短パルスを伝播させることによって、三次分散によって二つの瞬間周波数が共存するチャープパルスを発生させることが出来る。これを光パラメトリック増幅におけるシード光として用い、超短パルスをポンプ光として用いることにより、二つの波長を同時に選択的に増幅することが可能となる。この二波長パルスを非線形光学結晶に集光し差周波発生を行えば、中赤外パルスが得られる。本手法の重要な特徴は、二つのスペクトル成分が同時に増幅されて、空間的に分離する必要がないことである。この結果、差周波発生における二つの入射パルスの相対位相が光路長の揺らぎ等によって変化することがなく、中赤外パルスのキャリアエンベロープ位相が受動的に安定化される。

図2に開発した実験装置の配置を示す。まず、高強度チタンサファイアレーザー (パルスエネルギー7 mJ, パルス幅 40 fs, 繰り返し 1 kHz) の出力の一部を YAG 結晶に集光し、赤外域 (波長 1~1.5 μm) をカバーする白色光を発生させた。この出力を石英ブロック (光路長 300 mm) に二回通すことにより、三次分散によって大きくチャープしたシードパルスを発生させた。石英のゼロ分散波長は 1230 nm にあるため、この出力を光パラメトリック増幅することにより、波長 1230 nm の短波長側と長波長側の二成分を選択的に増幅することができる。また、二波長の波長間隔は OPA のポンプ光とシード光の遅延時間を調整することによって制御できる。BIBO 結晶を用いた二段の広帯域 OPA によって、パルスエネルギー 0.5 mJ まで増幅し、偏光と遅延を制御してから、LGS 結晶に集光して差周波発生を行った。

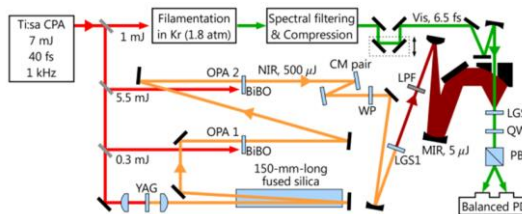


図2：中赤外パルスの発生と計測の配置図。

図2の最上部に示すように、中赤外光発生と同時にチタンサファイアレーザーの出力の一部をガスセルに導入し、フィラメンテーションに伴うスペクトルの広帯域化を行い、中心波長 600 nm 付近においてパルス幅 6.5 fs の極短パルスを発生させた。この極短パルスと中赤外パルスを同時に LGS 結晶へ集光することによって、中赤外パルスの電場波形の電気光学サンプリングを行った。図3に示され

るように、波長5～10ミクロンをカバーする中赤外パルス発生が確認出来た。また、電場波形を直接観測することによって、キャリアエンベロープ位相が受動的に安定化されていることも実験的に示すことが出来た。

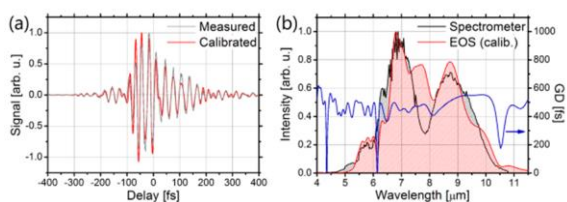


図3：(a)電気光学サンプリングによって直接観測された中赤外パルスの電場波形。(b)電場波形をフーリエ変換することによって得られたスペクトル(赤線部)。

また、キャリアエンベロープ位相の長期安定性に関しては、電気光学サンプリングによる電場波形計測を長時間にわたって行うことによって評価を行った。図4にその結果を示す。全体的に中赤外パルスの電場波形は1/2周期程度変化していることがわかるが、電場波形そのものは形状を保っていることがわかる。これは、電気光学サンプリングで用いる極短パルスのタイミングが温度変化等によって変化しているためと考えられる。

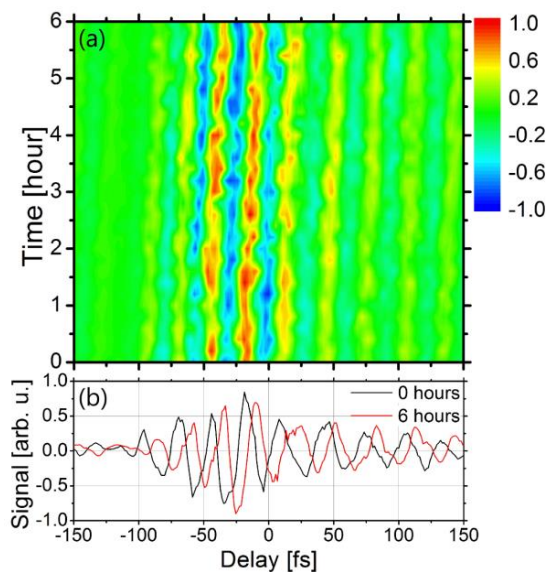


図4：(a)電気光学サンプリングによる6時間計測結果。(b)測定開始時と6時間後の中赤外電場波形の比較。

得られたパルスを集光することによって、最大電場強度56 MV/cmが達成された。当初の目的は10 MV/cmだったため、それを十分に上回る結果を得ることが出来た。

高強度光電場による非線形光学現象の探索として、得られた中赤外パルスを半導体結

晶(GaSe)へ集光する実験も行った。その結果、可視域をカバーし、なおかつバンドギャップを越える高次高調波発生を確認した。偏光解析とモデル計算との比較を現在進めており、発生機構に関して有益な知見が得られつつある。とくに、固体中におけるアト秒過程として、バンド曲面中を光電場で加速される過程において入射光に対して垂直な偏光成分が発生していることが強く示唆される結果を得ている。この結果は、固体における高次高調波からバンド構造を全光学的に決定する道につながるものである。また、本実験は、固体中の電子の運動をアト秒精度で制御していることに相当し、気相の原子分子を対象としてきたアト秒光科学を、固体中の電子ダイナミクスへと拡大させるための重要なマイルストーンである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計4件)

[1] K. Kaneshima, K. Takeuchi, N. Ishii, and J. Itatani, "Generation of spectrally stable 6.5-fs visible pulses via filamentation in krypton", High Power Laser Science and Engineering 4, e17-1-5 (2016), 査読有, DOI:10.1017/hpl.2016.17.

[2] K. Kaneshima, N. Ishii, K. Takeuchi, and J. Itatani, "Generation of carrier-envelope phase-stable mid-infrared pulses via dual-wavelength optical parametric amplification", Opt. Express 24 (8), 8660-1-6 (2016), 査読有, DOI:10.1364/OE.24.008660.

[3] N. Ishii, K. Kaneshima, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Generation of ultrashort intense optical pulses at 1.6 μm from a bismuth triborate-based optical parametric chirped pulse amplifier with carrier-envelope phase stabilization", J. Optics 17, 094001-1-8 (2015), 査読有, DOI: 10.1088/2040-8978/17/9/094001.

[4] K. Kaneshima, M. Sugiura, K. Tamura, N. Ishii, and J. Itatani, "Ultrabroadband IR chirped mirrors characterized by white-light Michelson interferometer", Appl. Phys. B 119, 347-353 (2015), 査読有, DOI: 10.1007/s00340-015-6076-2.

[学会発表](計13件)

[1] 石井順久, 金島圭佑, 篠原康, 石川顕一, 板谷治郎, 「セレン化ガリウムからの高

次高調波の偏光回転」, 第 64 回応用物理学
会春季学術講演会, 2017 年 3 月 14-17 日, パ
シフィコ横浜 (神奈川県横浜市) .

[2] 水野智也, 金島圭佑, 竹内健悟, 石井
順久, 金井輝人, 板谷治郎, 「中赤外パルス
におけるナノチップによる電場増強効果と
光電界電子放出」, 第 64 回応用物理学会春
季学術講演会, Mar 2017 年 3 月 14-17 日, パ
シフィコ横浜 (神奈川県横浜市) .

[3] 金島圭佑, 竹内健悟, 石井順久, 板谷
治郎, 「CEP 安定な高強度中赤外パルス光に
よるサブサイクル分光」, 日本物理学会 2016
年秋季大会, 2016 年 9 月 13-16 日, 金沢大学
角間キャンパス (金沢県金沢市) .

[4] 向井佑, 石井順久, 金島圭佑, 内田裕
久, 板谷治郎, 田中耕一郎, 「近赤外 OPCPA
超短パルス光源を用いた広帯域テラヘルツ
波発生」, 応用物理学会秋季学術講演会,
2016 年 9 月 13-16 日, 朱鷺メッセ (新潟県新
潟市) .

[5] J. Itatani, “Intense few-cycle IR
sources for attosecond science: new
opportunities at higher energies and in
solids”, International Symposium on
Attosecond Science, 2016 年 7 月 30 日, 東
京大学小柴ホール (東京都文京区) .

[6] K. Kaneshima, N. Ishii, K. Takeuchi,
and J. Itatani, “Generation of CEP-stable
mid-infrared fields exceeding 20 MV/cm”,
International Conference on Ultrafast
Phenomena 2016 (UP2016), 2016 年 7 月 17-22
日, Santa Fe (USA).

[7] K. Kaneshima, N. Ishii, K. Takeuchi,
and J. Itatani, “Waveform
characterization of CEP-stable intense
mid-infrared pulses generated via
dual-wavelength OPA”, CLEO:2016, 2016 年
6 月 5-10 日, San Jose (USA).

[8] 金島圭祐, 石井順久, 板谷治郎, 「高強
度中赤外パルス光によるサブサイクル分光」,
第 3 回超高速光エレクトロニクス研究会
兼 理研シンポジウム「超短パルス長波長光
源の進展とその応用」, 2016 年 4 月 26 日, 理
化学研究所 (埼玉県和光市) .

[9] 板谷治郎, 「BIBO 結晶を用いた超広帯域
赤外 OPCPA 光源の開発とアト秒・サブサイク
ル分光への展開」, 応用物理学会春季学術講
演会, 2016 年 3 月 19-22 日, 東工大大岡山キ
ャンパス (東京都目黒区) .

[10] 金島圭佑, 石井順久, 竹内健悟, 板谷
治郎, 「広帯域光パラメトリック増幅器によ

る二波長同時増幅を利用した位相安定な高
強度中赤外光パルスの発生と, その電場波形
の測定」, 応用物理学会春季学術講演会,
2016 年 3 月 19-22 日, 東工大大岡山キャン
パス (東京都目黒区) .

[11] 板谷治郎, 「位相制御された高強度赤
外 OPCPA 光源によるアト秒軟 X 線パルス発
生」, 応用物理学会・量子エレクトロニクス
研究会「極限計測の科学と技術」, 2015 年
12 月 18-20 日, 東京大学山中寮内藤セミナー
ハウス (山梨県南都留郡) .

[12] 金島圭佑, 石井順久, 板谷治郎, 「広
帯域光パラメトリック増幅器による二波長
同時増幅を利用した波長可変中赤外光パ
ルス発生」, 応用物理学会秋季学術講演会,
2015 年 9 月 13-16 日, 名古屋国際会議場 (愛
知県名古屋市) .

[13] K. Kaneshima, N. Ishii, and J. Itatani,
“Tunable mid-IR pulse generation via
frequency selective optical parametric
amplification”, 10th International
Ultrafast Optics Conference (UFO X), 2015
年 8 月 16-21 日, Huairou (China).

[その他]
研究室ホームページ
<http://itatani.issp.u-tokyo.ac.jp/>

応用物理学会奨励賞受賞報告のホームペ
ージ
[http://itatani.issp.u-tokyo.ac.jp/index
.php?id=55](http://itatani.issp.u-tokyo.ac.jp/index.php?id=55)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

板谷 治郎 (ITATANI, Jiro)
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号: 50321724

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

石井 順久 (ISHII, Nobuhisa)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号: 40586898

金井 輝人 (KANAI, Teruto)
東京大学・物性研究所・技術専門職員
研究者番号: 10575161

北野 健太 (KITANO, Kenta)
青山学院大学・理工学部・助教
研究者番号: 90586900

(4) 研究協力者

金島 圭佑 (KANESHIMA, Keisuke)
東京大学・理学系研究科・博士課程

竹内 健悟 (TAKEUCHI, Kengo)
東京大学・理学系研究科・修士課程