

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02802

研究課題名(和文)液膜ジェットを用いた全光学的アト秒パルス計測とレーザープラズマの超高速計測

研究課題名(英文)All optical measurement of attosecond pulses and laser plasma dynamics using liquid-sheet jets

研究代表者

板倉 隆二 (Itakura, Ryuji)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・グループリーダー(定常)

研究者番号：80334241

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：プラズマミラーの反射を用いた全光学的パルス波形計測法であるプラズマミラー周波数分解光ゲート法(PM-FROG)が20 fs程度の幅を持つパルスに有効であることを実証した。波長160 nmの真空紫外パルスに対して、フーリエ変換限界に近い20 fsの複素振幅を求めることに成功した。また、生成したプラズマ反射の空間依存性も観測できた。

水の液膜ジェットを用いたPM-FROGを紫外パルスに対して実証し、自己回折FROG計測と比較し、PM-FROGの結果が信頼性のあることを確認した。さらにPM-FROGにより求めた液膜の時間依存複素反射率から水の励起電子ダイナミクスを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在のアト秒パルスを用いた実験において、パルス幅計測は気相原子、分子のイオン化を介した測定に限定されている。その正確性や手法の限界を評価する上で、PM-FROGは独立した別の手法であり、アト秒科学の更なる発展に貢献するものと期待できる。また、アト秒科学は、気相の原子分子から、固体や液体に対象が拡張してきており、その観点からも、固体表面や液体をターゲットとした計測法の実現は大きな意義がある。また、近年、レーザー加工などの産業応用においても、その学理解明が重要視されており、本研究の成果は、物質の励起の根幹である電子ダイナミクスを時空間分解測定するため測定法として貢献する可能性を持つ。

研究成果の概要(英文)：Plasma-mirror frequency-resolved optical gating (PM-FROG) is a method by all optical measurement. We demonstrated that PM-FROG is applicable to characterization of 20-fs pulses. We could characterize a nearly Fourier transform limited vacuum ultraviolet pulse with the pulse duration of 20 fs and the wavelength of 160 nm. In addition, a spatial dependence of plasma reflectivity could be observed.

We demonstrated that a liquid-sheet jet of water is used in the PM-FROG measurement of an ultraviolet pulse. The validity of the PM-FROG measurement was confirmed by the measurement with self-diffraction FROG. We revealed the electronic excitation dynamics in the surface of water liquid sheet through the time-dependent complex reflectivity obtained by the PM-FROG.

研究分野：物理化学 超高速科学

キーワード：プラズマミラー 時間分解反射分光 周波数分解光ゲート法 高次高調波 真空紫外

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

超高速パルスレーザー技術はアト秒領域に入り、電子ダイナミクスの実時間追跡が可能となった。ところが、アト秒領域では、光電子放出に遅延時間があることや分子のイオン化の際の振動波束生成に時間が掛かることなどが報告され、イオン化はアト秒パルスに対して十分に速いとは言えないことがわかってきた。これまで瞬時に起こるとみなしていた現象の時間スケールに迫っている反面、アト秒パルス幅と観測対象のダイナミクスの時間特性が同程度の時間スケールのためパルスの幅と事象にかかる時間を厳密に分離できない問題が生じている。正確なアト秒パルスや可視・赤外領域の数サイクル電場波形の評価のためにも、また、イオン化ダイナミクス計測にとっても、イオン化を使ったパルス評価とは独立した別の評価法によるダブルチェックが強く望まれる。

我々は、石英表面にチタン・サファイアレーザーの基本波を集光照射することでプラズマミラーを生成し、同軸で進行する5次高調波(~160 nm)について遅延時間を掃引しながら反射スペクトルを測定した。得られたスペクトルグラムを周波数分解光ゲート法(FROG)のアルゴリズムによって再構築し、真空紫外パルスのパルス波形とプラズマミラー生成における反射率変化を抽出できることを200 fs ~ 1 psの幅を持つ真空紫外パルスについて実証した [1, 2]。

これまでのプラズマミラー-FROG (PM-FROG) 実験は固体基板を対象としており、繰返し10 Hzのレーザーショット毎にアブレーションを起こし、常にきれいな表面がレーザー照射されるように基板をスライドさせていた。繰返しがkHzと高くなると、基板の移動スピードが追いつかない問題を抱えていた。高調波発生実験は、高繰返しのレーザーシステムで広く行われており、PM-FROGの普及には、固体基板に変わるターゲットが必要であった。

強レーザー場と固体・液体の相互作用の研究の観点については、多くのグループが高次高調波スペクトルに基づいて解析・議論を進めている。しかし、励起とプローブが一体となった高次高調波発生分光の場合、観測できる現象が制限される。励起とプローブが独立させることができれば、観測できる現象も格段に多くできる。

### 2. 研究の目的

我々の開発した非共鳴のプラズマ反射スペクトルによるFROG法が、高密度励起状態の反射係数について位相まで決められることができる優れた技術であり、より短パルスで適用可能であることを実証することが本研究の目的である。本研究では、液体中の強励起まで展開し、その適用範囲の広さを世界に認知させていく。

本研究は、イオン化による光電子・イオン計測とは独立したものとして、全光学的手法によるアト秒パルス計測法の確立を目指す。プラズマミラーを超高速光スイッチとして利用し、高繰返し測定にも対応可能な液膜ジェットを用いた装置を開発する。パルス計測のみに留まらず、極短レーザーパルスによる固体および液体中プラズマ生成に至る電子励起およびその緩和ダイナミクスの解明を目指す。

### 3. 研究の方法

本研究は、液膜ジェット表面上に強レーザー励起パルスを集光照射することでプラズマミラーを生成し、そこから反射されるプローブパルスの時間分解反射分光を行い、FROG計測を行う。液体ジェットの装置の開発と並行して、固体基板を用いた真空紫外パルスの測定パルス幅の短縮および波長の短波長化を進める。パルス波形計測とともに強レーザーパルスによる表面の電子励起からプラズマ生成に至る超高速過程を明らかにする。

### 4. 研究成果

本研究の主な成果として、以下に2つ記す。

(1) 石英基板を用いた20-fs VUVパルスの波形計測および空間モード解析 [3]

チタン・サファイアレーザーからの出力パルス(795 nm, 80 fs, 10 Hz)を真空中にてパルス噴射されたXeガスに集光し、高次高調波発生を行った。同軸で進行する高調波および基本波( $\omega$ )は、誘電体多層膜ミラーにより5次高調波( $5\omega$ , 160 nm)のみを反射させ、透過した $\omega$ および他の高調波は800 nm近傍に反射率を持つ多層膜ミラーによって $\omega$ のみを選別した。並進ステージによって $\omega$ に光学遅延を付け、160 nm反射用の多層膜ミラーを用いて、再び、 $\omega$ と $5\omega$ を同軸に合流させた。並進ステージ直前に設置した絞りにより $\omega$ の強度を調整した。移動ステージに取り付けた溶融石英基板に $\omega$ と $5\omega$ を集光し、反射された $5\omega$ を瀬谷波岡型分光器の入射スリットへと導いた。分光器出射口にはMCP、フォスファースクリーンおよびCCDカメラを設置し、スペクトル画像をレーザーショット毎に計測し、全測定終了後に積算、解析を行った。得られた2次元画像の横軸が波長、縦軸が空間座標(縦方向)となる。図1, 2は空間分布(縦方向の分布)の中心部を切り出した結果である。

時間遅延の関数としたスペクトル、すなわちプラズマミラー FROG 画像(図1)を作成した。切り出した領域毎に FROG 画像の再構築計算を行ったところ、 $5\omega$  のパルス波形は空間位置によってほとんど変わりなく約 20 fs のパルス幅(半値全幅)であることがわかった(図2(a))。一方、励起前の溶融石英基板からのフレネル反射率を基準とした反射率の増加については、空間中心部が約 16 倍と最も大きく(図2(b))、外側に行くにしたがって反射率の増加率が小さくなることがわかった。

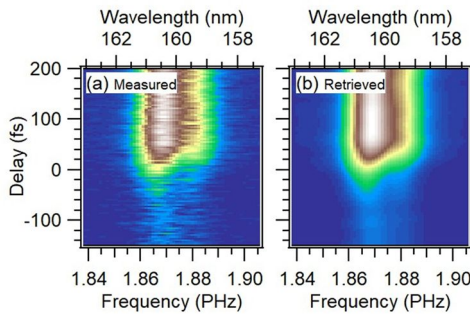


図1. 熔融石英基板上に生成したプラズマミラーの時間分解真空紫外スペクトル. (a) 実測. (b) 再構築結果.

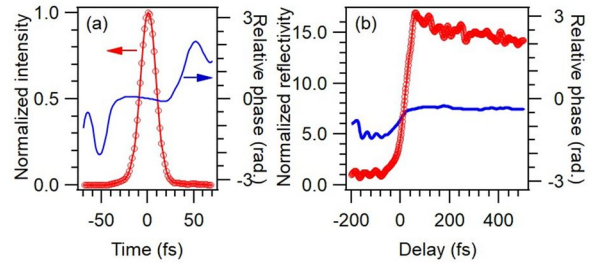


図2. (a) FROG 解析により得られた 160 nm のパルス波形. (赤丸: 強度, 青線: 位相). (b) プラズマミラーの時間依存反射率(赤丸)と位相(青線). 反射率は励起前の石英からのフレネル反射を1として規格化.

(2) 液膜ジェットを用いたプラズマミラー周波数分解光ゲート測定 [4]

チタン・サファイアレーザー再生増幅器からの出力 ( $\omega$ , 795 nm, 70 fs, 1 kHz) を BBO 結晶 (厚さ 100  $\mu\text{m}$ ) に入射し, 2 倍波 ( $2\omega$ , 404 nm) を発生させた. 多層膜ミラーにより  $2\omega$  のみを反射し, 透過した基本波に光学遅延を付けた. 再び多層膜ミラーを用いて  $\omega$  と  $2\omega$  を同軸に重ね合わせた. 2 つのレーザーパルスを凹面鏡 ( $f=150$  mm) により, スリットノズルを用いて生成した水の液膜ジェット (厚さ  $\sim 8$   $\mu\text{m}$ ) の表面に集光した. 液膜表面で反射された  $2\omega$  を  $4f$  光学系で分光器へと導いた. 基本波と  $2\omega$  の遅延時間を変化させながら, 反射スペクトルを計測した.

周波数および遅延時間の関数として測定された 2 次元スペクトログラム (図 3(a)) から, 最小二乗一般化射影アルゴリズム [2] を用いてパルス波形の再構築計算をおこなった. 図 3(b) に得られた  $2\omega$  の時間波形を示した.  $2\omega$  パルスの半値全幅は 52 fs であった. この結果は, 自己回折 FROG 法によるパルス幅計測の結果とよい一致を示した. また,  $2\omega$  の光路に合成石英を挿入し, 群遅延分散を測定した. 得られた結果は文献値とよい一致を示した. 以上の結果から, 本手法により高繰り返しレーザーのパルス波形が位相を含めて精度よく計測できることが示された. 図 3(c) にプラズマミラーの  $2\omega$  に対する反射率および位相の時間変化を示した. プラズマミラーの反射率は, 遅延時間の変化に伴い, 一旦低下した後, 飛躍的な増大を示した. これは負の遅延時間では液膜の両界面でのフレネル反射 ( $R=0.021$ ) のみが観測されているのに対し, 遅延時間が増加するとプラズマ密度の上昇により屈折率が減少し, 反射率が変化するためである. 液膜表面の屈折率が空気の屈折率 ( $n_{\text{air}} \sim 1$ ) と等しくなるまでは反射率が低下し, 空気よりも小さくなると反射率が増大に転じる. Drude モデルに基づいて, 複素反射率を励起電子密度の関数として求めたところ, 励起電子密度が  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$  オーダーまで増加する時の複素反射率変化が PM-FROG により求めた時間依存複素反射率とよく一致していることを明らかとした.

本研究は, 液膜をターゲットとした PM-FROG 法を用いて高繰り返しレーザーのパルス波形計測が可能なることを示した. また, プラズマミラーの複素反射率の時間変化も測定でき, プラズマ生成の初期過程を調べることが可能である.

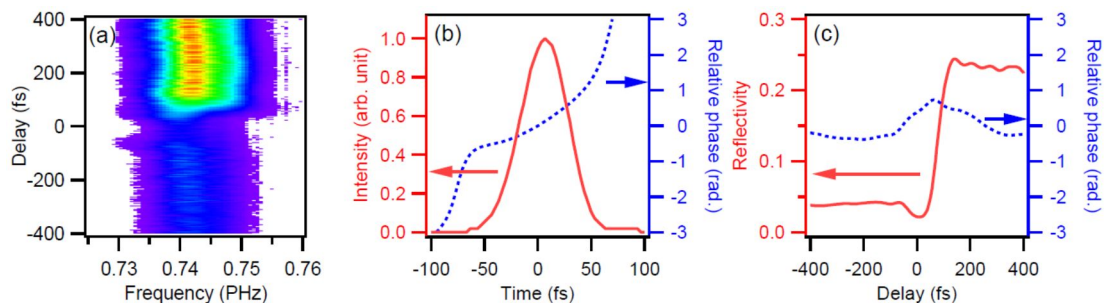


図3. (a) 水液膜上レーザープラズマの時間分解紫外反射スペクトル. (b) 2倍波の時間波形. (c) プラズマミラーの反射率と位相の時間変化.

上記の 2 項目の他にも, Si のアブレーションによる反射減衰を使った計測波長の短波長化やサブ 10 fs パルスを用いた水の励起ダイナミクスの観測などの成果が得られた.

< 引用文献 >

- [1] R. Itakura, T. Kumada, M. Nakano, H. Akagi, Opt. Express **23**, 10914-10924 (2015).
- [2] R. Itakura, T. Kumada, M. Nakano, H. Akagi, High Power Laser Sci. Eng. **4**, e18-1-5 (2016).
- [3] R. Itakura, H. Akagi, T. Otobe, Opt. Lett. **44**, 2282-2285 (2019).
- [4] T. Endo, M. Tsubouchi, R. Itakura, Opt. Lett. **44**, 3234-3237 (2019).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 R. Itakura, H. Akagi, and T. Otake	4. 巻 44
2. 論文標題 Characterization of 20-fs VUV pulses by plasma-mirror frequency-resolved optical gating	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 2282-2285
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.44.002282	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Endo, M. Tsubouchi, and R. Itakura	4. 巻 44
2. 論文標題 Plasma-mirror frequency-resolved optical gating using a liquid-sheet jet in ultraviolet region	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 1539-1542
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.44.003234	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 板倉 隆二	4. 巻 96
2. 論文標題 超高速プラズマミラー生成によるレーザーパルス波形計測	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 プラズマ・核融合学会誌	6. 最初と最後の頁 186-189
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計23件（うち招待講演 6件 / うち国際学会 12件）

1. 発表者名 板倉 隆二
2. 発表標題 強レーザーパルスと水の相互作用
3. 学会等名 シンポジウム「DNA損傷・修復と高強度レーザー化学の交差点」（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryuji Itakura
2. 発表標題 Laser ablation probed by time-resolved reflection spectroscopy
3. 学会等名 Mini-workshop on Nonlinear response in Laser-Matter Interaction (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tomoyuku Endo, Masaaki Tsubouchi, Ryuji Itakura
2. 発表標題 Plasma-mirror FROG using liquid-sheet water jet in ultraviolet region
3. 学会等名 CLEO/Europe-EQEC 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tomoyuki Endo, Masaaki Tsubochi, Ryuji Itakura
2. 発表標題 Time-resolved reflection spectroscopy of water liquid-sheet jet
3. 学会等名 International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tomoyuki Endo, Masaaki Tsubochi, Ryuji Itakura
2. 発表標題 Time-resolved reflection spectroscopy of water liquid-sheet jet excited by intense laser pulses
3. 学会等名 35th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryuji Itakura, Hiroshi Akagi, Tomohito Otobe
2. 発表標題 VUV waveform characterization by reflectivity depletion in laser ablation of Si
3. 学会等名 35th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryuji Itakura, Hiroshi Akagi, Tomohito Otobe
2. 発表標題 VUV waveform characterization by reflectivity depletion in laser ablation of Si
3. 学会等名 光・量子ビーム科学合同シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 遠藤 友随, 坪内 雅明, 板倉 隆二
2. 発表標題 液膜ジェットを用いた水の強レーザー場励起過程の時間分解反射分光計測
3. 学会等名 光・量子ビーム科学合同シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 板倉 隆二, 赤木 浩, 乙部 智仁
2. 発表標題 アブレーションによる反射率変化を用いた真空紫外パルス波形計測
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 遠藤 友随, 坪内 雅明, 板倉 隆二
2. 発表標題 液膜プラズマミラーを用いた周波数分解光ゲート計測法の開発
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 遠藤 友随, 板倉 隆二, 坪内 雅明, 赤木 浩, 乙部 智仁, 中嶋隆
2. 発表標題 真空紫外パルスの位相計測と電子状態制御
3. 学会等名 京都大学エネルギー理工学研究所 ゼロエミッションエネルギー研究拠点 平成30年度共同利用・共同研究成果報告会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 遠藤 友随, 坪内 雅明, 板倉 隆二
2. 発表標題 液膜プラズマミラーを用いた紫外領域における周波数分解光ゲート計測
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ryuji Itakura
2. 発表標題 VUV waveform characterization by reflection of highly excited solids
3. 学会等名 9th The Shanghai Tokyo Advanced Research (STAR) Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 板倉 隆二
2. 発表標題 真空紫外領域の高調波波形計測と実時間レーザープラズマ観測
3. 学会等名 応用物理学会北海道支部講演会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 板倉 隆二
2. 発表標題 真空紫外領域の高調波波形計測と実時間レーザープラズマ観測
3. 学会等名 RIKEN-RAP and QST-KPSI Joint Seminar
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 板倉 隆二
2. 発表標題 アト秒科学への展望
3. 学会等名 第1回アト秒レーザー科学研究施設シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ryuji Itakura, Hiroshi Akagi, Yoriko Wada, Tomohito Otobe
2. 発表標題 Intense laser induced spatio-temporal dynamics of transparent solid probed by VUV reflection
3. 学会等名 International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (国際学会)
4. 発表年 2017年



1. 発表者名 Ryuji Itakura, Hiroshi Akagi, Yoriko Wada, Tomohito Otobe
2. 発表標題 Time-Resolved VUV Reflection Spectroscopy for Spatio-Temporal Characterization of Ultrafast Plasma Formation
3. 学会等名 CLEO/ Europe-EQEC 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 板倉 隆二
2. 発表標題 時間分解反射分光によるレーザープラズマ計測
3. 学会等名 光・量子ビーム科学合同シンポジウム2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ryuji Itakura
2. 発表標題 Spatio-temporal diagnosis of laser-plasma formation on transparent solid probed by VUV reflection
3. 学会等名 The 8th Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ryuji Itakura, Hiroshi Akagi, Yoriko Wada, Tomohito Otobe
2. 発表標題 Time-resolved VUV reflection spectroscopy for spatio-temporal diagnosis of ultrafast plasma formation
3. 学会等名 The 6th Advanced Lasers and Photon Sources (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ryuji Itakura, Yoriko Wada, Hiroshi Akagi, Tomohito Otobe
2. 発表標題 Time-resolved VUV reflection spectroscopy of spatio-temporal dynamics of transparent solid in intense laser fields
3. 学会等名 第2回アト秒科学に関する国際シンポジウム (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ryuji Itakura, Hiroshi Akagi, Yoriko Wada, Tomohito Otobe
2. 発表標題 Space- and time-resolved VUV reflection spectroscopy of fused silica excited by an intense laser pulse
3. 学会等名 33rd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

関西光科学研究所 超高速光物性研究グループ <a href="https://www.qst.go.jp/site/kansai-dapr/2657.html">https://www.qst.go.jp/site/kansai-dapr/2657.html</a>  Kansai Photon Science Institute   Ultrafast Dynamics Group <a href="https://www.qst.go.jp/site/kansai-adprenglish/2879.html">https://www.qst.go.jp/site/kansai-adprenglish/2879.html</a>
---

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考