

機関番号：10101

研究種目：基盤研究 (A)

研究期間：2008 ~ 2010

課題番号：20246017

研究課題名 (和文) 光電子波束干渉法によるアト秒パルス計測法の開発

研究課題名 (英文) Development of a characterization method for attosecond pulses by photoelectron interferometry

研究代表者

関川 太郎 (SEKIKAWA TARO)

北海道大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90282607

研究成果の概要 (和文) : アト秒パルスを含む高次高調波は非常に広帯域のスペクトルを有している。そのため分光研究に用いるためには必要な部分のみを取り出す必要がある。本研究では高次高調波のスペクトルを切り出す時間補償分光器の開発と、切り出された高調波パルスの時空間特性を評価した。その結果、21 次高調波 (光子エネルギー 33 eV)、時間幅 11 fs の光パルスを 57 ミクロン径に集光することができることが分かった。

研究成果の概要 (英文) : The bandwidth of high harmonics, including attosecond pulses, is very broad. Because the broad bandwidth is too broad for spectroscopy, it is necessary to take out the adequate spectrum to target samples. In the present study, we have developed the time-compensated monochromator to take out a single harmonic and characterized the temporal width and the spatial distribution of the selected harmonic pulses. Consequently, we found that the pulse duration of the 21st harmonic (photon energy 33 eV) was 11 fs and that the spatial diameter of the beam at focus was 57  $\mu\text{m}$ .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	15,600,000	4,680,000	20,280,000
2009 年度	11,600,000	3,480,000	15,080,000
2010 年度	7,000,000	2,100,000	9,100,000
年度			
年度			
総計	34,200,000	10,260,000	44,460,000

研究分野：量子エレクトロニクス

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用光学・量子光工学

キーワード：非線形光学、アト秒パルス

## 1. 研究開始当初の背景

超短パルスレーザーの技術の進歩とともに時間分解能はナノ秒からフェムト秒にまで達し、その時代に応じ様々な非平衡状態に起因する超高速現象の研究が進んだ。万人に認められた成果の一つが Zewail に代表される「フェムト秒化学」であろう。現在、フェムト秒より更に早いアト秒領域の研究に注目が集まり、アト秒パルス発生・応用の研究が急速に進み

つつある。アト秒パルスは高次高調波発生の過程で生成する方法が主流である。そのためこれまでの超短パルスレーザーと異なり極端紫外・軟 X 線領域の光であり、軌道放射光を用いて研究されてきた研究分野と研究対象が重なる。軌道放射光の時間幅はフェムト秒にすら達していないため、高次高調波パルス、特にアト秒パルスの応用は応用光学・量子光工学分野のみならず原子・分子分野、光物性

分野、表面物性分野、生体イメージングなど多くの幅広い分野から期待されている。

アト秒パルスに応用するためには、①研究対象に応じて適切なスペクトルを選択し、②そのパルス幅を評価する必要がある。①に関しては、金属・半金属の多層膜鏡がよく用いられるが、複数の次数が選べれば単一次数のみを選ぶことができない。また、選択した波長が固定される。②については、時間幅が短いため新たな手法を開発する必要がある。

## 2. 研究の目的

以上の背景より、本研究では、

- 1) 回折格子を用いて分光研究に必要なスペクトル領域の高次高調波を切り出す、時間補償分光器の開発
- 2) 切り出された高次高調波パルスの時間波形、空間集光形状、全体光量の評価を行うこととした。

## 3. 研究の方法

スペクトルを切り出す際、シンクロトロン放射光では回折格子を用いるのが普通である。しかし、高次高調波の場合は、回折格子により回折されるとパルス波面が傾くため実効的な時間幅がピコ秒まで伸びる。そのため、高次高調波の特徴であるフェムト秒からアト秒にいたる超短パルスという特徴が失われてしまう。ところが、1999年にイタリアの Villoresi が、回折格子を図1のように2枚配置することによりパルス波面の傾きを補償する光学系（時間補償分光器）を提案した。回折格子を用いているため多層膜鏡とは異なりスペクトル成分が混じる恐れが全くない。

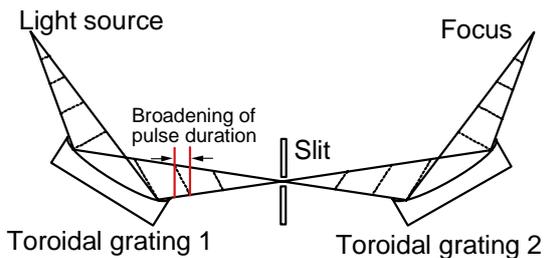


図1：時間補償分光器

時間補償分光器は、その後 UC Berkeley の Leone のグループが1枚目のトロイダル回折格子を球面回折格子に置き換えて作成した。しかし、球面回折格子は非点収差が大きいため集光性が悪くなるなど利点はなく、なぜこのような光学系を採用したのか、理由は不明である。その後、Villoresiらは平面回折格子をコニカル配置にしてトロイダル鏡4枚で集光を行う光学系を開発した。回折効率が高いのが特徴である。しかし、光学配置が複雑

なため必ずしも製作・調整が容易な光学系ではない。そこで、より単純で集光性が優れた光学系を開発した。

## (1) パルス幅計測

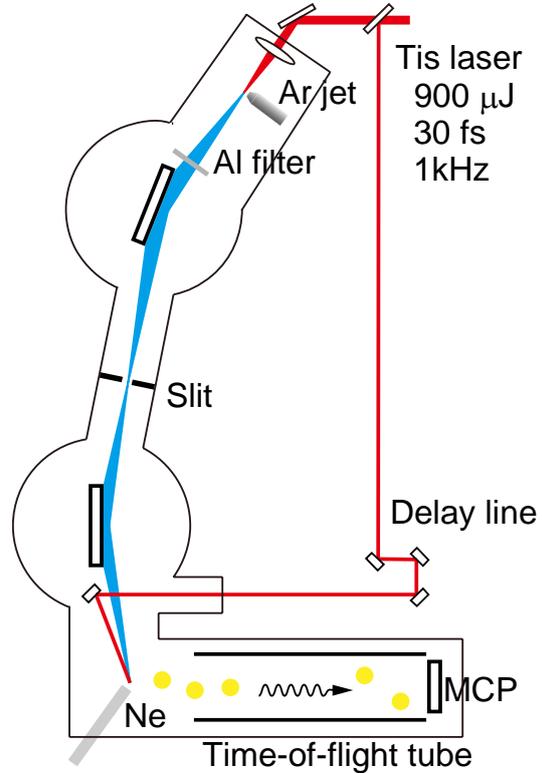


図2 パルス幅測定のための実験配置図

本研究では、まず、チタンサファイアレーザー増幅器からの出力光（パルス幅 25 fs）を使った交差相関法により光学系の評価を行った。図2がその実験配置図である。この配置は、アト秒パルスを計測するための FROG CRAB 法にも拡張できる。チタンサファイアレーザーを二つにわけ、一方で高次高調波を発生して時間補償光学系で単一次数を切り出し、同時に光電子分光器のスリットに集光する。他の一方は、遅延時間路をへて高調波と同一地点に集光する。高調波とチタンサイファイレーザー基本波の二光子吸収光電子を観測する。二光子吸収が起きると、光電子スペクトルにおいて、高次高調波の一光子遷移に光電子の両脇にチタンサファイアレーザーの1光子ぶんだけ離れたところに別スペクトル成分が現れる。この強度を測定することによりパルス幅を見積もることができる。一方、FROGCRAB 法においては、基本波による光電子の変調を観測することになる。

## (2) 空間形状の測定

極端紫外光は空气中を伝搬できないため、直接、空間形状を測定することは難しい。そこで、シンチレーターとして Ce:YAG 結晶を用

いて、極端紫外光を可視光に変換し、その空間形状を観測することにより高調波の空間形状を測定した。

### (3) 絶対光量

高次高調波の極端紫外光源としての有用性を判断する一つの指標は絶対光量である。とくに、本研究では、回折格子を2枚用いていることより光学系の効率に関心が集まっていた。分光研究への応用の適否を判断する目安としてシンクロトロン放射光の光量との比較を行った。絶対光量の測定は、量子効率が分かっている極端紫外～軟X線用フォトダイオードを用いて行った。

## 4. 研究成果

### (1) パルス幅の計測

チタンサファイアレーザーの17次(26 eV)から23次高調波(36 eV)のパルス幅を測定した。これらの次数は、採用した回折格子の回折効率がよい波長領域により決まっており、約4%程度の透過効率がある。

図3に回折格子を反射配置にした時の23次高調波の交差相関関数を示す。このときの、チタンサファイアレーザーのパルス幅は30 fsであり、高次高調波のパルス幅は30 fsであった。

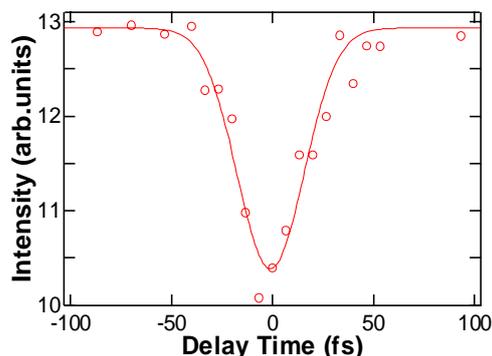


図3 0次-0次光の交差相関関数

次いで、1枚の回折格子を1次回折の位置にした時、図4のような交差相関関数が得られ、パルス幅は、229 fsになった。これは、

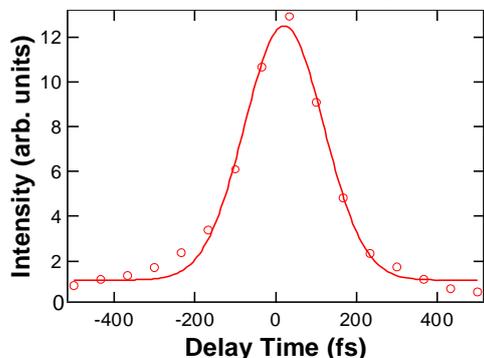
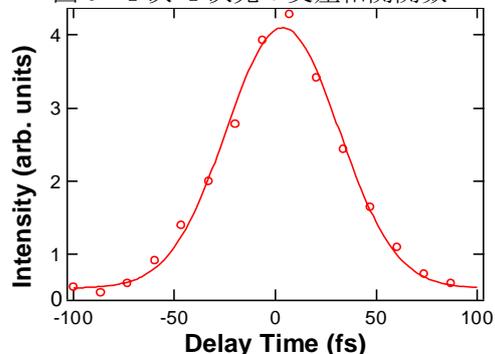


図4 1次-0次光の交差相関関数

回折格子によりパルス波面の傾いたことによりパルス幅が伸びたことによる。

回折格子を2枚とも1次回折光にしたときの交差相関関数を図5に示す。パルス幅は59 fsでパルス波面の傾きが補償されていることが分かる。しかし、この段階では、元のパルス幅までに圧縮することはできなかった。

図5 1次-1次光の交差相関関数



そこで、レーザーのパルス幅を25 fsまで圧縮し、更に回折格子への入射角を調整して最短パルスになる条件を探った。その結果、図6のような相関関数を得ることができた。赤線は、ガウス関数によるフィッティングの結果をしめす。このとき、高調波のパルス幅は12 fsである。緑(青)色の線は、高調波のパルス幅が20(30) fsの時に予想される相関波形で、これらは、実験結果より幅が広いことが分かる。このことから高調波のパルス幅は、12 fsまで圧縮されたとと言える。高調波を発生するレーザーパルスの時間幅を数フェムト秒にすることにより波長可変アト秒パルスの実現に近づいたと考えている。

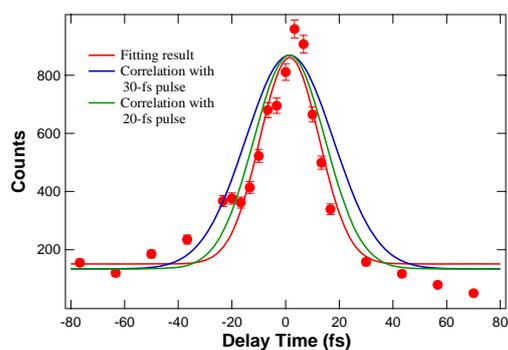


図6 圧縮後の相関波形

### (2) 空間形状の測定

図7に0次-0次光にした場合の空間波形を示す。図8は二つとも1次光の配置にした場合である。図8では、0次-0次の場合と同じように、空間形状がほぼ円径になっている。このことより、二つの回折格子を1次光にすることにより、スペクトルの空間広がりを補償していることが分かる。それに伴い、パルス波面の傾きも補償されていると考えられる。ビームの直径は56 ミクロンであった。

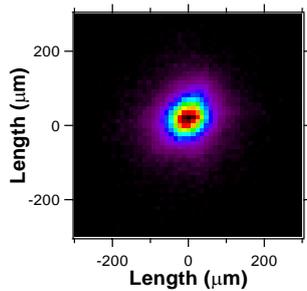


図7 0次-0次の場合の空間形状

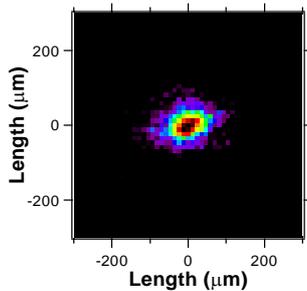


図8 0次-0次の場合の空間形状

(3) 絶対光量

図9に開発した時間補償分光器の射出点での1秒間あたりの光子数の測定結果を示す。一方、図10には分子科学研究所のUVSOR-IIのビームラインBL4Bでの光量を示す。赤く塗

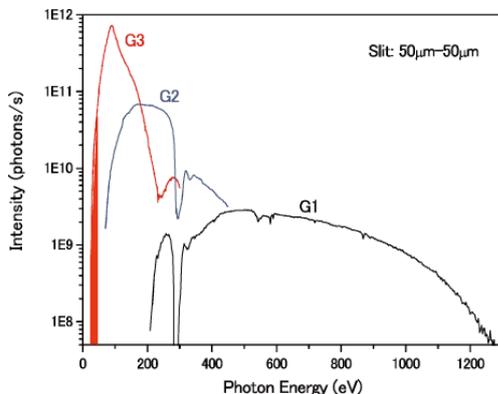


図9 集光点での1秒間あたりの光子数

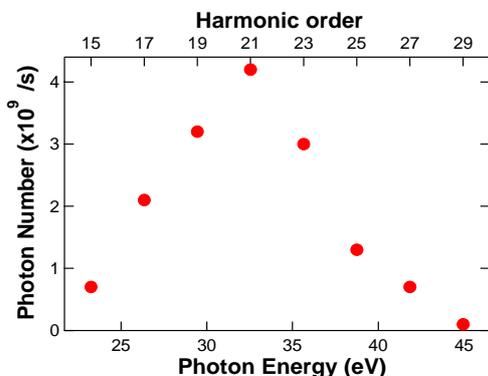


図10 集光点での1秒間あたりの光子数

られた部分が高調波のスペクトルに対応する部分である。高調波の波長可変域は狭いものの、1秒間あたりの光量はシンクロトロン放射光に匹敵する。パルス幅はシンクロトロン放射光より3桁以上短いので、時間分解光電子分光などの光源として、非常に有望である。

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 10 件)

- 1) M. Ito, Y. Kataoka, T. Okamoto, M. Yamashita, and T. Sekikawa, “Spatiotemporal characterization of single-order high harmonic pulses from time-compensated toroidal-grating monochromator” *Optics Express* **18**, 6071–6078 (2010). 査読有
- 2) JF Zhu, T. Tanigawa, T. Chen, SB Fang, K. Yamane, T. Sekikawa, and M. Yamashita, “Ultrabroadband spectral amplitude modulation using a liquid crystal spatial light modulator with ultraviolet-to-near-infrared bandwidth” *Applied Optics* **49**, 350-357 (2010). 査読有
- 3) A. Yamaguchi, N. Nakagawa, K. Igarashi, T. Sekikawa, H. Nishioka, H. Asanuma, and M. Yamashita, “Photoisomerization dynamics study on *cis*-azobenzene derivative using ultraviolet-to-visible tunable femtosecond pulses” *Applied Surface Science* **255**, 9864-9868 (2009). 査読有
- 4) E. Haraguchi, K. Sato, T. Tanigawa, M. Yamashita, and T. Sekikawa, “Efficient Compression of Carrier-Envelope Phase-Locked Laser Pulses to 5.2 fs Using an Al-Coated Hollow Fiber” *Japanese Journal of Applied Physics* **48**, 010213 (3 pages) (2009). 査読有
- 5) T. Tanigawa, Y. Sakakibara, S. Fang, T. Sekikawa, and M. Yamashita, “Spatial light modulator of 648 pixels with liquid crystal transparent from ultraviolet to near-infrared and its chirp compensation application” *Optics Letters* **34**, 1696-1698 (2009). 査読有
- 6) E. Matsubara, Y. Kawamoto, T. Sekikawa, and M. Yamashita, “Generation of ultrashort optical pulses in the 10 fs regime using multicolor Raman sidebands in KTaO<sub>3</sub>” *Optics Letters* **34**, 1837-1839 (2009). 査読有
- 7) T. Sekikawa, T. Okamoto, E. Haraguchi, M. Yamashita, and T. Nakajima, “Two-photon resonant excitation of a doubly excited state in He atoms by high-harmonic

- pulses”Optics Express **16**, 21922-21929 (2008).  
査読有
- 8) K. Yamane, T. Tanigawa, T. Sekikawa, and M. Yamashita,  
“Angularly-dispersed optical parametric amplification of optical pulses with one-octave bandwidth toward monocycle regime”  
Optics Express **16**, 18345-18353 (2008). 査読有
- 9) E. Matsubara, T. Sekikawa, and M. Yamashita,  
“Generation of ultrashort optical pulses using multiple coherent anti-Stokes Raman scattering in a crystal at room temperature”  
Applied Physics Letters **92**, 071104-1-071104-3 (2008) 査読有

[学会発表] (計 23 件)

- 1) T. Sekikawa, M. Itoh, M. Kataoka, A. Makita, and T. Igarashi,  
“Spatio-Temporal Characterization of Single-Order High Harmonic Pulses Separated by Pulse-Front-Tilt Compensator”  
4th Asian Workshop on Generation and Applications of Coherent XUV and X-ray Radiation, (Pohang (Korea) January 20, 2011)  
**Invited Talk**
- 2) T. Sekikawa, M. Itoh, and M. Kataoka,  
“Spatio-Temporal Characterization of Single-Order High Harmonic Pulses Separated by Pulse-Front-Tilt Compensator”  
Symposium on the development of ultrashort pulse lasers and ultrafast spectroscopy, (Chofu, September 17, 2010) **Invited Talk**
- 3) M. Ito, Y. Kataoka, T. Sekikawa  
“Spatio-Temporal Characterization of Single-Order High Harmonic Pulses Separated by Pulse-Front-Tilt Compensator”  
ME1, 17th International Conference on Ultrafast Phenomena, (Snowmass (USA), July 19, 2010)
- 4) M. Ito, T. Okamoto, Y. Kataoka, M. Yamashita, and T. Sekikawa,  
“Spatio-Temporal Characterization of Single-Order High Harmonic Pulses Separated by Pulse-Front-Tilt Compensator”  
JThE122, Conference on Lasers and Electro-Optics, (San Jose (USA), May 20th, 2010)
- 5) T. Sekikawa, M. Ito, T. Okamoto, Y. Kataoka, and M. Yamashita,  
“Single order selection from multiple high harmonics for time-resolved photoelectron spectroscopy”  
6BP45 11th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure, (Nara, October 6th, 2009) poster
- 6) T. Sekikawa, T. Okamoto, E. Haraguchi, M. Yamashita, T. Nakajima  
“Two-Photon Resonant Excitation of a Doubly

- Excited State in He Atoms by High-Harmonic Pulses”  
CFG5, Conference on Lasers and Electro-Optics, (Baltimore (USA), June 5th, 2009) oral
- 7) T. Okamoto, K. Sato, M. Yamashita, and T. Sekikawa  
“Efficient Selection of High Harmonics by a Pulse-Front-Compensated Separator”  
JThE49, Conference on Lasers and Electro-Optics, (Baltimore (USA), June 4th, 2009)
- 8) T. Sekikawa, T. Okamoto, E. Haraguchi, M. Yamashita, and T. Nakajima,  
“Two-photon resonant excitation of a doubly excited state in He atoms by high harmonic pulses”  
RIKEN International Symposium on Attosecond Science (Wako, April 3rd, 2009)  
**Invited talk**
- 9) T. Sekikawa, E. Haraguchi, T. Okamoto, T. Tanigawa, and M. Yamashita,  
“Complete Characterization of High Harmonic Pulses by Photoelectron Spectral Shearing Interferometry”  
MONIC.3, XVI International Conference on Ultrafast Phenomena (Stresa (Italy), June 9th, 2008).
- 10) E. Haraguchi, T. Okamoto, T. Tanigawa, M. Yamashita, and T. Sekikawa,  
“Complete Characterization of High Harmonic Pulses by Spectral Shearing Interference of Photoelectron Wave Packets”  
JFD4, Conference on Lasers and Electro-Optics, (San Jose (USA), May 9th, 2008) **oral**

6. 研究組織

(1) 研究代表者

関川 太郎 (SEKIKAWA TARO)  
北海道大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号：90282607

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

原口 英介 (HARAGUCHI EISUKE)  
北海道大学・大学院工学研究科・修士課程  
岡本 達也 (OKAMOTO TATSUYA)  
北海道大学・大学院工学研究科・修士課程  
伊藤 元彦 (ITO MOTOHIKO)  
北海道大学・大学院工学研究科・修士課程  
片岡 義雅 (KATAOKA YOSHIMASA)  
北海道大学・工学部・学士課程

五十嵐 裕紀 (IGARASHI HIRONORI)  
北海道大学・工学部・学士課程  
榎田 歩 (MAKIDA AYUMU)  
北海道大学・工学部・学士課程