

機関番号：14301

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21740298

研究課題名(和文) 水の窓領域を含む軟X線アト秒パルスの発生

研究課題名(英文) Generation of soft X-ray attosecond pulse in a water-window region

研究代表者

足立 俊輔 (ADACHI SHUNSUKE)

京都大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：90431874

研究成果の概要(和文): 高性能パルスレーザーを用いて、“水の窓” [2.3 - 4.4 nm、水(酸素原子)は透過するが炭素(炭素原子)には吸収される] 領域の軟X線パルスを発生させることに成功した。この領域では、水を含んだ(生体)試料の炭素構成物(核酸等)のイメージングが可能であるため、生物学的にも注目を集めている。また、新たなレーザーパルスの圧縮法を開発し、レーザーの更なる高性能化に成功した。

研究成果の概要(英文): “Water-window” region [2.3 ? 4.4 nm, transparent for water (Oxygen atom) but absorptive for hydrocarbon (carbon atom)] soft X-ray pulses have been successfully generated by a high-performance pulse laser. This region is attractive for high-contrast imaging of carbon structures within biological specimens. In addition, we have demonstrated a novel energy-scalable spectral-broadening method.

交付決定額

(金額単位: 円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：量子エレクトロニクス

科研費の分科・細目：物理学、原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：超短パルス、アト秒、軟X線、水の窓、高次高調波

## 1. 研究開始当初の背景

まだ非常に若い分野であるアト秒科学の研究は、ここ10年の間に、高次高調波過程による軟X線アト秒パルス発生、及びそのパルス幅評価が行えるという段階までようやく到達し、いよいよその応用としての超高速時間分解分光へと焦点が移りつつある。ここで(アト秒パルス列ではなく)単一アト秒パルスの発生に話を絞ると、アト秒パルス発生には主としてホローファイバーの出力(典型的には0.3-0.5 mJ, 5 fs)が使われてきた。ところが、これを用いて発生させたアト秒パルスの強度は非常に低く、特にその非常に高い時間分解能を利用するための、高調波の非

線形過程を利用した実験を行うことができていない。高調波強度を上げるためには、高調波発生用レーザー光源の高出力化(> mJ)が必要になるが、ホローファイバーによる方法では、ファイバーの損傷閾値や非線形性の面から非常に困難である。つまり、アト秒パルス発生用のレーザー光源自体は、ここ10年間でほとんど進歩していない。この状況を打破すべく、研究代表者らは最近、光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)を利用した高強度超短パルス光源を開発した(2.7 mJ, 5.5 fs)。これにより、パルスエネルギーは、従来のアト秒パルス発生光源であるホローファイバー出力の5-10倍を達成し

た。また、この光源のもうひとつの大きな特徴は、電場波形の搬送波位相(C E P)・分散を自在に制御できることにある。これも、従来のホローファイバー出力では行っていないことである。この新光源を用いることで、以下で述べるような極限的なアト秒高調波パルスを発生させることができる。

## 2. 研究の目的

O P C P A から発生する C E P の制御された高強度超短レーザーパルスにより、高調波の波長領域を“水の窓”[2.3-4.4 nm、水(O原子)は透過するが炭素(C原子)には吸収される]まで到達させる。この領域では、水を含んだ(生体)試料の炭素構成物(核酸等)のイメージングを可能にするため、生物学的にも注目を集めている。通常、発生する高調波のスペクトルカットオフ、つまり最短波長は、高調波発生レーザー光源の中心波長(我々の場合は 800 nm)及び、高調波発生に用いるガス種(ネオン、ヘリウム等)で決まる。ただしそれに加えて、高調波発生レーザー光源のパルス幅を短くすることで、高調波発生用ガスが完全にイオン化されてしまう(=中性原子が枯渇する)直前のレーザー電場の尖頭パワーを高くでき、その結果としてカットオフを更に高エネルギー領域まで伸ばすことができる。この場合、カットオフ領域の高調波は、イオン化直前の光電場の振動の半周期内でのみ発生することになり、レーザーパルス内での電場の位相、すなわち C E P の制御が本質的に重要になるのはもちろん、電子のトンネルイオン化から再結合に至る一連の過程(3ステップモデル)での電場波形そのものが、発生するカットオフ高調波に影響する。カットオフ領域のスペクトルに対する C E P の影響に関しては、例えば 13nm 付近の波長領域において Baltuska ら[“Attosecond control of electronic processes by intense light field”, Nature 421, 611 (2003)]が議論しており、C E P の値に応じてスペクトル波形・強度が変化することが分かっている。ただ彼らの実験では、制御していたのは C E P (言い換えれば位相の 0 次分散)のみであった。それに対して本研究で利用する光源であれば、群速度分散(2次分散)、また更に高次の分散も含めて電場波形を任意に制御でき、まさにトンネル電子の再結合のトラジェクトリ(軌道)そのものにアクセスが可能である。これは従来のホローファイバー出力(圧縮はチャープ鏡のみで、任意の分散制御は不可)ではできなかったことだが、研究代表者らの開発した O P C P A では可能である。電場波形の最適化により、カットオフを最大まで高エネルギー化・広帯域化し、次のステップであるサブ 100 アト秒軟 X 線シングルパルスの発生につなげる。

## 3. 研究の方法

O P C P A 出力を、 $4 \times 10^{14}$  GW/cm<sup>2</sup> 程度の集光強度でネオンガスのパルスジェットに照射し、高調波を発生させる。集光点において所望の集光強度を実現するには、集光系に用いる球面反射鏡(可視域用)の組み合わせが重要になる。水の窓領域まで延びた高調波(イオン化直前の光電場の振動の半周期内で発生)のカットオフに関して、C E P を制御することによって更なる短波長化・広帯域化を図る。既に O P C P A システムの C E P の安定化は実現されているが、その安定化フィードバックのアウトオブレンジで C E P の値を変更・制御する必要から、分散ガラスのウェッジ基板対を用いた C E P 制御機構を導入する。また、O P C P A 出力のパルス圧縮に用いている音響光学素子(Dazzler)により、水の窓領域での高調波発生に最適になるようパルス波形(分散)を高次分散まで含めて制御する。

発生した高調波は、元の基本波レーザーと同軸方向に発生するため、薄膜金属フィルタを 1 枚ないしは複数枚用いて基本波をカットしてから軟 X 線分光器に入射する必要がある。その可視域・軟 X 線域での反射・透過特性から、この用途にはアルミニウム、インジウム、銀のフィルタを用いる。更に、分光器の波長較正のためのホウ素(B)、炭素(C)化合物のフィルタも用いる。これらのフィルタ中を高調波が透過すると、分光器で観測される軟 X 線スペクトルにその吸収端が現れ、その波長を文献値と照合することで分光器の較正を行える。

それと並行して、O P C P A システムの更なる短パルス化を行うことで、得られるであろう高調波の短パルス化を目指す。これにより、真空紫外域での時間分解測定における時間分解能の向上が見込める。具体的には、O P C P A 出力パルスを真空チャンバー中のアルゴンのセルに集光することで起こる、希ガスのイオン化を利用したスペクトルブロードニング法を用いる。既に、この手法によりフーリエ限界幅で 3.5 フェムト秒のスペクトルが得られることを確認しており、チャープ鏡・ウェッジガラス対などを用いてこのスペクトルを時間的に圧縮する。

## 4. 研究成果

(1) 光パラメトリックチャープパルス増幅(O P C P A)システム(搬送波位相(C E P)安定化、1 kHz、2.7 mJ、5.5 fs、770 nm)を用いて、水の窓領域(2.3-4.4 nm)の高次高調波発生の実験ならびに、世界最短波長での高調波の C E P 依存性の観測を行った。X 線分光器並びに各種フィルターにより、水の窓の入り口である 280 eV において高調波が発生

していることを確認した。高調波は少なくとも 300 eV 程度までスペクトル成分が存在することが分かった(図1)。ただしCEPの効果はこのスペクトル領域では観測することは難しく、高調波強度の強い軟X線領域(180 eV, 7 nm 近傍)でのCEP観測を行った。この領域であっても、現在CEP依存性が検証されている極端紫外域(13 nm 近傍)よりはるかに高エネルギー側であり、高調波のCEP依存性を確認することが出来る世界最短波長となる。(投稿準備中)

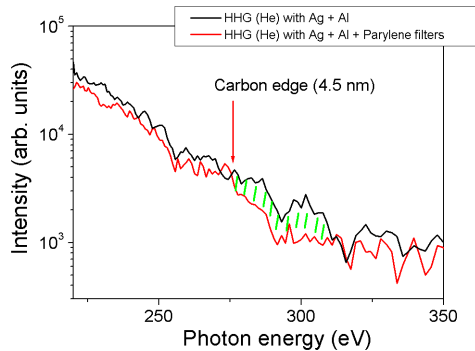


図1 発生した高調波スペクトル

(2) 光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)出力を真空チャンバー中のアルゴンのセルに集光することで、スペクトルの更なる広帯域化を行った。その結果、OPCPA出力パルスの更なる短パルス化(3.8fs)を実現した(図2)。この成果は、高出力(>mJ)パルスでは世界でも例を見ない短パルスであるという、記録としての側面もさることながら、従来のホローコアファイバーを用いたスペクトルの広帯域化法に欠けていたエネルギースケラビリティを備え、パルス幅 10fs 以下のレーザーシステムの多くに適用可能な、優れた超短パルス発生法の提案であるという面も併せ持っている。(発表論文)

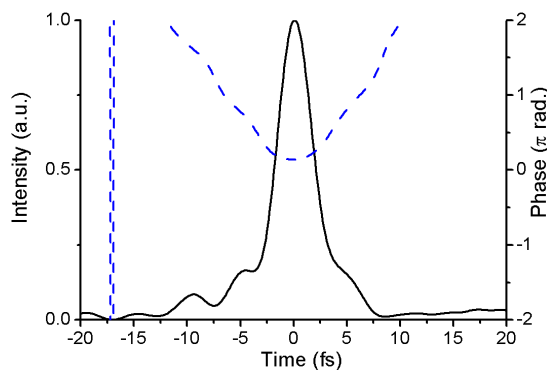


図2 圧縮後のパルス波形

更に、OPCPAのパラメトリック増幅段

及び伸長・圧縮過程により残っていた1Hz程度のCEP揺らぎを、同軸型f-to-2f干渉計により評価し、共振器のCEP制御信号に加算することによって、OPCPAシステム全体のCEP安定化を行った。更に、フィードバックループの外に配置したウェッジガラス対により、CEPの任意値への制御を実現した。また、CEP安定化フィードバック用の音響光学素子(AOM, 応答周波数: 数kHz)を、より高速な電気光学素子(EOM, 100kHz程度)と交換することで、共振器のCEPを更に安定化した。(図3、発表論文)

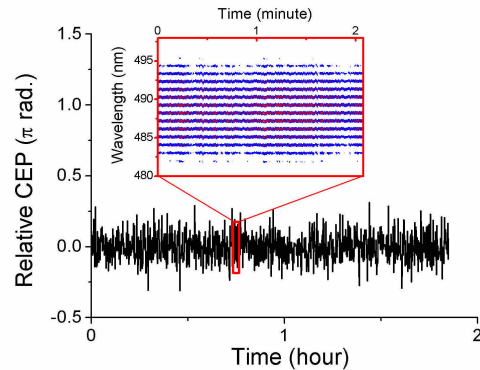


図3 安定化されたCEP

(3) 年度途中の平成22年8月1日付で京都大学へ赴任したため、チタンサファイア増幅器を新たに建設した。チタンサファイア増幅器の出力スペックは、パルスエネルギー1.3mJ、パルス幅35fs、繰り返し1kHz、パルス毎の安定性は0.3% rmsである。これらの値は、高調波を安定に発生させるのに十分である。更に、高調波パルス発生実験に用いる真空系を完成させた。今後は、完成したチタンサファイア増幅器、及び高調波パルス発生システムを用いて、実際に高調波パルスを発生させ、その出力評価(パルス幅、パルスエネルギー等)を行う。また更に、高調波パルスによる光電子イメージング測定に向けた装置開発を行うのが、次の展開である。

#### 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5件)

S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe, "1.2-mJ, sub-4-fs source at 1 kHz from an ionizing gas", OPTICS LETTERS 35(7), 980-982 (2010) 査読有  
S. Adachi, A. Ozawa, and T. Kobayashi, "Carrier-envelope phase-locked pump-probe experiment for independent

phase/delay manipulation", CHEMICAL PHYSICS LETTERS 489(1-3), 130-133 (2010), 査読有

S. Adachi, N. Ishii, Y. Kobayashi, Y. Nomura, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe, "Carrier-envelope phase control of few-cycle parametric chirped-pulse amplifier", JAPANESE JOURNAL OF APPLIED PHYSICS 49(3), 032703 (2010), 査読有

[学会発表](計9件)

S. Adachi, "Few-cycle parametric chirped-pulse amplifier for attosecond pulse generation", Workshop of Consortium for Photon Science and Technology, 2010年10月21日, 岡崎市

S. Adachi, "Few-cycle parametric chirped-pulse amplifier", Symposium on the development of ultrashort pulse lasers and ultrafast spectroscopy, 2010年9月17日, 調布市

S. Adachi, "Multi-mJ, sub-4-fs, CEP-controlled source at 1 kHz from an ionizing gas", UFO/HFSW '09, 2009年8月31日, Arcachon (France)

S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, A. Kosuge, J. Itatani, T. Kanai, S. Watanabe, "CEP control of few-cycle multi-mJ OPCPA system for attosecond harmonics generation", CLEO/QELS '09, 2009年6月5日, Baltimore (USA)

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

足立 俊輔 (ADACHI SHUNSUKE)

京都大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：90431874