

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 15 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23246019

研究課題名(和文) 高強度単一アト秒パルスによる2光子二重電離に関する研究

研究課題名(英文) Generation of intense isolated attosecond pulses for attosecond nonlinear optics

研究代表者

緑川 克美 (Midorikawa, Katsumi)

独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー物理工学研究室・主任研究員

研究者番号：40166070

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,400,000円、(間接経費) 10,920,000円

研究成果の概要(和文)：独自に開発した2波長励起方式によりマイクロジュールクラスの単一アト秒パルスの発生に成功した。パルス幅は、窒素分子の2光子二重イオン化に基づく自己相関信号を用いて約500 asと測定され、出力エネルギー及びパルス幅から見積もられた単一アト秒パルスのピークパワーは2.6 GWに達した。これは、従来法と比較すると100倍以上の高出力化であり、アト秒非線形光学への道を拓く成果である。

研究成果の概要(英文)：We have generated high energy isolated attosecond pulses, which are intense enough to induce the nonlinear phenomena in atoms and molecules. The pulse width was directly characterized by autocorrelation measurement based on two-photon double ionization in nitrogen molecules. By carefully designing the generation configurations, we obtained isolated attosecond pulses with energy up to 1.3 micro Joule/pulse, thus showing its energy enhancement from 100- to 1000-fold compared with the previous report so far. From a 500-as pulse duration determined by the autocorrelation method, the peak power of this isolated attosecond pulse was evaluated to be 2.6 GW. The presented method paves the way for the intense attosecond science frontier, which will certainly bring a great leap forward in research on ultrafast phenomena and nonlinear optics.

研究分野：工学

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：量子エレクトロニクス 非線形光学 アト秒パルス 高次高調波 高強度レーザー物理

## 1. 研究開始当初の背景

2001年に高次高調波による単一アト秒パルスの発生が報告されて以来、理論および実験の両面から盛んに研究されているが、未だにその発生や計測は容易ではなく、期待される応用に対してもその強度は全く不十分であり、それがアト秒パルスの利用研究の発展を妨げている。一方、2光子二重電離は、電子相関を研究するうえで理想的な系であり、特にHe原子やH<sub>2</sub>あるいはD<sub>2</sub>分子では精密な理論解析が可能であるため多くの報告があるが、それらの値には1桁以上のひらきがあり実験的なデータが切望されている。しかし、従来法による単一アト秒パルスの発生では、この2光子過程を観測するには強度が不十分であり、新たな手法の開発が望まれていた。

アト秒パルスの高出力化には、励起レーザーの高出力化が必須であるが、数10mJを超すよう出力でCEPを安定させ且つ5fs以下のパルスを実現することは極めて困難であり、これが単一アト秒パルスの高出力化を大きく妨げてきた。そのような困難さを回避する手法として基本波とその第二高調波を組み合わせた2波長励起法や、右回りと左回りの円偏向を組み合わせた偏向ゲート法、さらにはこれら両者を組み合わせたダブルオプティカルゲート法などが提案されてきたが、本質的な解決には至っていない。

## 2. 研究の目的

本研究では、我々が独自に考案した赤外パルスを重畳する2波長励起法を用いてマイクロジュール級の高強度単一アト秒パルス光源の発生を行い、その有効性を実証するとともに、2光子二重電離過程を利用した自己相関法により単一アト秒パルスのパルス幅を測定することを目的としている。自己相関計測は、ポンプ-プローブ計測の一種と見なすことができ、これによりアト秒計測に大きな進展がもたらされるものと期待される。

## 3. 研究の方法

実際に、赤外2波長合成法を用いて単一アト秒パルスの高出力化を行うにあたっては、まずシミュレーションコード(P. Lan et al. Phys. Rev. A 82, 053413 (2020))により2波長の強度比や伝搬条件等の最適化を行った。シミュレーションにおいては、時間依存のシュレディンガー方程式による単一原子の応答と伝搬方程式による巨視的効果を含めて計算を行った。計算では、主励起光であるパルス幅30fsの800nmレーザー光と副励起光であるパルス幅40fsの1.3 $\mu$ m光を強度比やCEPを様々に変化させてArやXeガスターゲットに集光する設定とし、最適条件を求めた。

実験は、パルス幅30fs、出力エネルギー200mJのTi:sapphireレーザーを用いて行った。本レーザーの出力をビームスプリッターで分割し、30mJのエネルギーで1.3 $\mu$ m光発

生のためのOPA(光パラメトリック増幅器)システムを励起する。このOPAシステムは、市販の2段OPAと当研究室で開発した3段目の高エネルギーOPAで構成され、波長1.2~1.6 $\mu$ m領域において40fsのパルス幅で最大7mJのエネルギーが得られる(Takahashi et al., Appl. Phys. Lett. 93, 041111(2008))。この波長1.3 $\mu$ mのOPA光パルスと主励起光である波長800nmのTi:sapphireレーザーパルスの集光位置をそれぞれ異なる焦点距離のレンズで調整した後、マイケルソン型干渉計で結合し高調波発生用のガスセルに集光する。集光強度は、用いる希ガスターゲットの種類によって変わるが、Xeガスを用いた場合は約 $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>とする。この値であれば媒質のイオン化は抑えられ、中性媒質による位相整合条件を満たすことが可能となり、我々の開発した高エネルギー化の手法(Takahashi et al., Phys. Rev. A 66, 021802R(2002))が適用できる。

高次高調波発生には、相互作用長12cmの定圧ガスセルを用いる。ガスセルの両端には、直径約1 $\mu$ mのピンホールが設置され、励起光の導入と出力光の取り出しに用いられる。ガスセルの外側は、希ガス媒質による再吸収を防ぐためターボ分子ポンプにより $10^{-5}$  Torr以下の真空に保たれる。

発生した高調波は、Siビームスプリッターで励起レーザーの大部分を除去した後、斜入射の極端紫外分光器にみちびかれ、単一アト秒発生に必要な連続スペクトル構造が得られていることを確認する。そして時間構造計測するための自己相関計測器(アトコリレーター)に導かれる。アトコリレーターは、二光子電離過程を利用した自己相関計であり、Siビームスプリッター基板を上下に2分割し、一方を稼働ステージに設置することで、空間的に2分割された高次高調波の一方に時間遅延をつけることができる。2分割された高調波ビームは直径2mmのアパーチャーを通過したのち、飛行時間測定型(TOF)のイオンエネルギー分光器の中心部に導かれ、Sc/Siの凹面鏡によって、スキマーから供給される窒素分子に集光される。

## 4. 研究成果

図1に斜入射分光器で観測された典型的な高調波スペクトルを示す。青点線は800nm光のみを集光して得られた高調波であり、高次高調波の次数に対応した離散的なスペクトル構造を持つ。それに対し二色パルスでは低次成分において不連続構造を持つものの(赤線)、カットオフ近傍ではスムーズな連続的なスペクトルが得られている。Sc/Si多層膜ミラー(緑線)で切り出すことができるカットオフ近傍(~30eV)の出力エネルギーは1.3 $\mu$ J/pulseであり、のときの励起光からの変換効率率は約 $10^{-4}$ と見積もられた。得られた連続スペクトルの

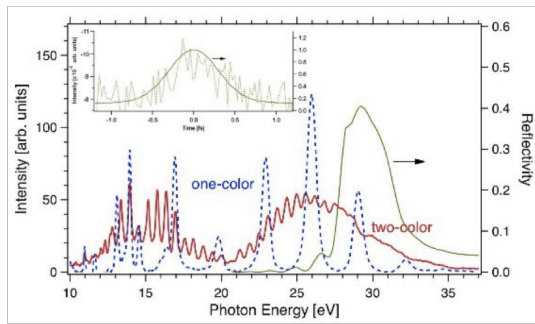


図1 観測された高調波スペクトル. 挿入図: IAP の自己相関波形

時間構造を、窒素分子の二光子電離過程を利用した自己相関計測により評価した。TOF イオン分光器で観測したイオンの中で、質量数/電荷比が 14 の位置の質量スペクトルを詳しく調べると、中心にあるピークの両脇に 2 つのピークが観測された。これは  $N^+$  イオンが高い運動エネルギーを持って現れた事を意味し、見積られた運動エネルギーの値から  $N_2^{2+}$  のクーロン爆発によって生じたものである事が分かった。窒素分子の 2 価イオンを生成するには、使用している高調波が非逐次的に 2 光子吸収される必要があることから、観測された  $N^+$  原子が非線形相互作用で生成されていると判断できる。次に、観測された  $N^+$  イオンの信号を自己相関信号として用い、アト秒パルスの時間幅計測を行った。Si ビームスプリッターの稼働ステージを 25nm 刻みで移動させることにより、空間的に分割した 2 つのアト秒パルスの遅延を 28nm 刻みで走査した。そして質量スペクトルの強度変化を記録した結果、単一のアト秒パルスの生成が自己相関信号として観測された (図 1 挿入図)。相関波形より評価される高調波の時間波形は 500 as であり、出力エネルギー及びパルス幅から このアト秒パルスのピークパワーは 2.6 GW、瞬間輝度は約  $10^{30}$  photons / (mm<sup>2</sup>mrad<sup>2</sup>s) と見積もられた。

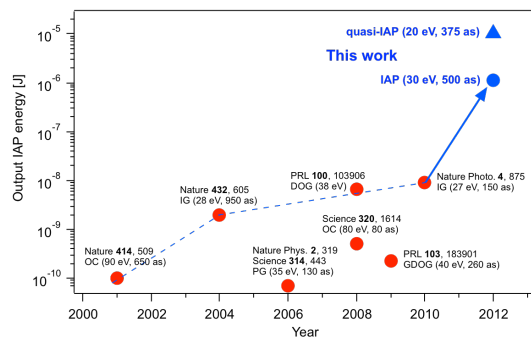


図 2. 本研究によって実現された IAP 出力

本研究により実現された単一アト秒パルスのエネルギーは、従来法と比較して二桁以上高く (図 12)、自己相関法で評価された単一アト秒パルスとしては世界最短のパルス幅である。開発された光源は、非線形

現象を励起できる世界最短の単一アト秒パルス光源であると共に、テーブルトップサイズながら加速器ベースの EUV-FEL 光源を凌駕する瞬間パワーを有している。

本研究で開発した赤外 2 波長電場を用いる単一アト秒パルスに発生法が特に優れている点は、その拡張性にある。例えば、同じ波長域でアト秒パルスのエネルギーを増加させるのであれば、単に励起光のエネルギーを増加させ、それに見合った集光系を導入すればよい。一方、より波長の短い領域で時間的にも短いアト秒パルスを得たいのであれば、媒質を Xe から Ar あるいは Ne に変えれば、それぞれ 50eV あるいは 100eV 近傍で 300 から 100 as の単一アト秒パルスが得られる。図 3 は、Ar ガスを用いて発生した連続スペクトルであり、パルス幅は 300 as と予測される。

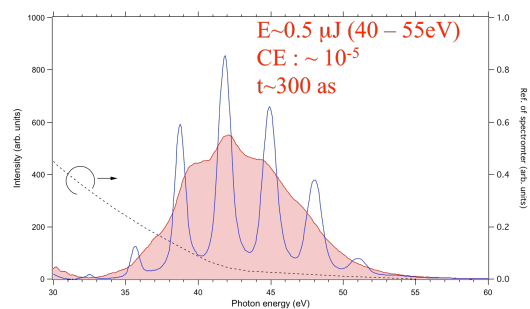


図 3 Ar ガスを用いて得られた連続スペクトル

さらに、本方式において主励起パルスと副励起パルスの波長関係を逆転させ、主励起パルスに長波長の赤外光を用いる事により、連続スペクトルの得られる波長域をいわゆる ‘水の窓’ 領域にまで拡張することが可能である。この際に必要となる高エネルギーのフェムト秒赤外光に発生法に関してもダブルチャープ光パラメトリック増幅という新たな方式を提案し、シミュレーションにより 100 mJ 級の高エネルギー赤外光の発生が可能であることを示した。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

1. E. J. Takahashi, P. F. Lan, O. D. Mucke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, “Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses,” Nat. Commun., 査読有, Vol. 4, 2691 (2013). DOI:10.1038/ncomms3691
2. E. Löstedt and K. Midorikawa, “Laser-induced electron localization in a triatomic molecular ion,” Phys. Rev. A, 査読有, Vol. 88, 041402 (2013). DOI:10.1103/PhysRevA.88.041402
3. P. Lan, E. J. Takahashi, K. L. Liu, Y. X. Fu, and K. Midorikawa, “Carrier envelop phase dependence of electron localization in the multicycle regime,” New J. Phys., 査読有, Vol. 15, 063023 (2013).

- DOI:10.088/1367-2630/15/6/063023
4. E. Lötstedt and K. Midorikawa, “Effect of the laser magnetic field on nonsequential double ionization of He, Li<sup>+</sup>, and Be<sup>2+</sup>,” *Phys. Rev. A*, 査読有, Vol. 87, 013426 (2013).  
DOI:10.1103/PhysRevA.87.013426
  5. P. Lan, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, “Efficient control of electron localization of subcycle waveform synthesis,” *Phys. Rev. A*, 査読有, Vol. 86, 013418 (2012).  
DOI:10.1103/PhysRevA.86.013418
  6. Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, P. Lan, K. L. Ishikawa, T. Sato, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, “Resolving vibrational wave-packet dynamics of D<sub>2</sub><sup>+</sup> using multicolor probe pulses,” *Opt. Lett.*, 査読有, Vol. 37, 2922-2924 (2012).  
<http://dx.doi.org/10.1364/OL.37.002922>
  7. Y. Kojima, A. A. Eilanlou, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, E. J. Takahashi, F. Kannari, and K. Midorikawa, “Material survey for a novel beam splitter separating high-order harmonics from high-average power fundamental pulses,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 査読有, Vol. 51, 062601 (2012).  
DOI:10.1143/JJAP.51.02601
  8. P. Lan, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, “Rotation-free holographic imaging with extended arc reference,” *Opt. Exp.*, 査読有, Vol. 20, 6669-6676 (2012).  
<http://dx.doi.org/10.1364/OE.20.006669>
  9. P. Lan, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, “Isolated-attosecond-pulse generation with infrared double optical gating,” *Phys. Rev. A*, 査読有, Vol. 83, 063839 (2011).  
DOI:10.1103/PhysRevA.83.063839
  10. Q. B. Zhang, E. J. Takahashi, O. D. Mucke, P. X. Lu, and K. Midorikawa, “Dual-chirped optical parametric amplification for generating few hundred mJ infrared pulses,” *Opt. Exp.*, 査読有, Vol. 19, 7190-7212 (2011).  
<http://dx.doi.org/10.1364/OE.19.007190>
  11. K. Midorikawa, “High-order harmonic generation and attosecond science,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, 査読有, Vol. 50, 09001 (2011).  
DOI:10.1143/JJAP.50.09001

[学会発表] (計 15 件)

1. K. Midorikawa, “Generation of intense isolated attosecond pulse”, The 4th Asian Spectroscopy Conference, Singapore, Dec. 2013. (2013年12月16日)
2. K. Midorikawa, “Generation and application of intense high harmonics and attosecond pulses”, OSA’s 97th Annual Meeting: Laser Science XXIX, Orlando, USA, Oct. 2013. (2013年10月8日)
3. K. Midorikawa, “Progress of XUV science by high-order harmonic generation”, The 6th International Congress on Laser Advanced Materials Processing, Niigata, Japan, July 2013. (Plenary Talk) (2013年7月23日)
4. K. Midorikawa, “Intense attosecond pulse: generation and applications”, 4th International Conference on Attosecond Physics, Paris, France, July 2013. (2013年7月11日)
5. K. Midorikawa, “Recent progress on high harmonic generation and application at RIKEN”, The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific RIM, Kyoto, Japan, June-July 2013. (2013年6月30日)
6. K. Midorikawa, “Advanced Lasers and Photon Sources”, (Keynote Lecture) Optics and Photonics International Congress 2013. Yokohama, Japan, April 2013. (2013年4月23日)
7. E. J. Takahashi, P. Lan, and K. Midorikawa, “Energy scaling of isolated attosecond pulses,” 7th Asian Symposium on Intense Laser Science, Tokyo, Japan, Nov. 2012. (2012年11月9日)
8. K. Midorikawa, “Generation of microjoule isolated attosecond pulses”, Int. Sympo. on Ultrafast Intense Laser Science (ISUILS 11), Jjuju, Korea, Oct. 2012. (2012年10月24日)
9. K. Midorikawa, “Generation of multi-gigawatt isolated attosecond pulses”, OSA’s 96th Annual Meeting: Laser Science XXVII, Rochester, USA, Oct. 2012. (2012年10月18日)
10. K. Midorikawa, “Generation of intense isolated attosecond pulses”, The Workshop on Super Intense Laser-Atom Physics (SILAP 2012), Suzhou, China, Sept. 2012. (2012年9月24日)
11. K. Midorikawa, “Intense high harmonic generation and application”, Light at Extreme Intensities 2011, Szeged, Hungary, Nov. 2011. (Plenary) (2011年11月15日)
12. K. Midorikawa, “Application of high harmonics to attosecond nonlinear spectroscopy”, SPIE Conference 8140 X-Ray Lasers and Coherent X-Ray Sources: Development and Applications, San Diego, USA, Aug. 2011. (2011年8月23日)
13. K. Midorikawa, “Attosecond nonlinear optics,” 2011 OSA Topical Meeting on Nonlinear Optics, Kauai, USA, July 2011. (2011年7月21日)
14. K. Midorikawa, “Attosecond nonlinear spectroscopy by high-order harmonics”, 20th International Conf. on Laser Spectroscopy, Aerzen, Germany, May-June 2011. (2011年5月31日)
15. K. Midorikawa, “Attosecond nonlinear spectroscopy”, KITPC Workshop on Attosecond Science, Beijing, China, May

2011. (2011年5月23日)

[図書] (計 3 件)

1. E. J. Takahashi, P. Lan, and K. Midorikawa, "Generation of isolated attosecond pulses," Springer Series in Optical Science 177, Attosecond Physics, Springer 47-68 (2013).
2. K. Yamanouchi and K. Midorikawa Eds., "Progress in Ultrafast Intense Laser Science XI", Springer Series in Chemical Physics 105, Springer, 2013.
3. K. Yamanouchi and K. Midorikawa Eds., "Multiphoton Processes and Attosecond Physics", Springer Proceedings in Physics 125, Springer, 2012.
4. K. Midorikawa, "X-ray and EUV Sources" Handbook of Lasers and Optics 2nd Edition, F. Träger Ed., Springer, 908-916 (2012).

[その他]

ホームページ

<http://www.riken.jp/lab-www/mid-lab/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

緑川 克美 (Midorikawa Katsumi)

独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー  
物理工学研究室・主任研究員

研究者番号：40166070

### (2) 連携研究者

鍋川 康夫 (Nabekawa Yasuo)

独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー  
物理工学研究室・専任研究員

研究者番号：90344051

高橋 栄治 (Takahasi Eiji)

独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー  
物理工学研究室・専任研究員

研究者番号：90344051

石川 顕一 (Ishikawa Kennichi)

東京大学・工学研究科研究院・准教授

研究者番号：70344025