

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：12612

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790064

研究課題名(和文)新規のパルス圧縮法を用いた紫外-可視-近赤外域アト秒パルスレーザーの開発

研究課題名(英文)Generation of attosecond pulse laser in UV-VIS-NIR region with novel dispersion compensation technique

研究代表者

吉井 一倫 (YOSHII, KAZUMICHI)

電気通信大学・情報理工学(系)研究科・助教

研究者番号：90582627

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：申請者は、光軸上に透明の媒質を置きその厚みを調整するだけという極めてシンプルかつ堅牢な新規のパルス圧縮方法(分散補償方法)を提案した。その手法を誘導ラマン散乱により発生させた全帯域500 THzに渡る離散スペクトルに適用し、フーリエ変換限界のパルス幅である1.78 fsのパルス幅を持つ超短パルス光列を発生させることに成功した。

研究成果の概要(英文)：We experimentally demonstrate generation of a train of ultrashort pulses with a nearly TL pulse duration of 1.78 fs by simply inserting transparent plates on the optical path and adjusting their thicknesses precisely.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：超短パルスレーザー アト秒 分散補償 誘導ラマン散乱

### 1. 研究開始当初の背景

1980年より連続と続けられたモードロック Ti:Sapphire レーザーと高次高調波発生に関する成熟した研究を土台とし、アト秒の時間スケールにアクセスできるようになった。これにより原子・分子内の超高速の電子ダイナミクスが明らかになりつつある。さらに、近年ではアト秒光源の高強度化による非線形分光も開拓されつつある。これらは、いずれも真空紫外(VUV)から極紫外(XUV)または軟X線の波長域を対象とするものである。

一方で、近赤外(NIR)・可視(VIS)・紫外(UV)域では、伝統的な超高速技術研究に加えて、微小球を用いた四波混合過程や、分子のラマン遷移過程を断熱的に操作することによる、オクターブを超える広帯域離散スペクトルの発生と操作が、興味深いアプローチとして盛んに議論されている。特に、水素分子のラマン遷移過程を断熱励起することにより同軸上に発生する NIR-VIS-UV 域離散スペクトル(分子変調によるサイドバンド発生)は、研究当初から魅力的なサイクルパルス光源であることが提案され、研究が続けられてきた。近年では、そのモード間隔の広さを生かし空間的に分離したモードを line-by-line で制御することにより 1.6 fs のサイクルパルス列発生が達成されている。しかしながら、バンド幅拡大に伴い増加する高次分散の補償の困難さのため NIR-VIS-UV 域でのアト秒パルス発生は、申請者の知る限り、まだ達成されていない。

### 2. 研究の目的

水素の振動準位に対応するモード間隔は 124 THz であり、上述の分子変調法を用い 9 本以上のモードを発生させれば、そのバンド幅は NIR-VIS-UV 領域において 500 THz ~ 1 PHz 以上におよぶ。このときのフーリエ変換限界(TL)パルス幅は 800 as ~ 700 as のアト秒域に達する。申請者は、分子変調法による広帯域光の最大の特徴である「離散的かつ同軸上に発生する」ことを積極的に活かし、後述する新規の分散補償法を考案した。本手法は、光軸上に数枚の透明媒質を設置しその物質長を変化させることにより、光を空間的に分けること無く高次分散を含め分散補償を行うことができる。実際の実験を想定した数値実験により、本手法によりパルス幅 728 as のアト秒パルスを得られることを既に示している。本研究の目的は、この提案した新規パルス圧縮法を実験的に実証し、NIR-VIS-UV 域でのアト秒パルスレーザーを実現することである。

### 3. 研究の方法

#### (1) 広帯域離散スペクトル発生

- ・ 励起光源レーザーの開発。  
誘導ラマン散乱高次系列光発生のための励起光として 2 波長の高強度ナノ秒パルス光源の開発を行った。励起光の一つ

である  $\Omega_0$  として、1 波長注入同期ナノ秒パルス Ti:Sapphire レーザーから出力される波長 801.0817 nm のパルス光を用いた。もう一方の励起光  $\Omega_1$  には、外部共振器安定化半導体レーザーから出力される連続光を非線形光学結晶により高強度化した波長 1201.623 nm のパルス光を用いた。励起光  $\Omega_1$  の高強度化は 2 段階に分け行った。第 1 段階ではリング型共振器中に設置した Periodically Poled Lithium Niobate (PPLN) 結晶(分極反転周期: 21.6  $\mu\text{m}$ , 結晶長: 15 mm)を用いて光パラメトリック発振を行い、パルスエネルギー約 0.5 mJ のパルス光を得た。パルス化した  $\Omega_1$  はバルク型 KTP 結晶を用いた光パラメトリック増幅により約 5 mJ まで増幅させた。これらの増幅過程におけるポンプ光には  $\Omega_0$  の一部をそれぞれ用いる。1 段階目では約 0.5 mJ, 2 段階目では約 14 mJ を供給し、残りを励起光  $\Omega_0$  として約 5 mJ を用いる。

- ・ パラ水素の振動ラマン遷移の断熱励起による 500 THz ~ 1 PHz (モード本数 5 ~ 8 本) 以上の広帯域離散スペクトルの発生とそのスペクトル強度測定。

エネルギー比率を 1:1 に調整した 2 波長励起光を液体窒素温度に保持した気相パラ水素分子へ入射した。励起光 2 波長を断熱条件が満たされる二光子離調に設定し、パラ水素の振動準位間に高いコヒーレンスを生成した。

#### (2) 新規分散補償装置の開発

- ・ 新規のパルス圧縮法を用いた分散補償装置の開発とスペクトル位相制御。

発生した離散スペクトルの分散補償方法として提案した数値探索法を用いた。これは最適化プログラムを用い、全スペクトル位相がある直線上に分布するような物質長を数値解析的に求める手法である。分散媒質として厚さ 5 mm の合成石英を用いる。図 1 の挿入図のように基板 2 枚をハの字型に設置し、独立に逆方向に回転させることで光路長を変化させ各スペクトル位相の操作を同軸上で行った。

#### (3) パルス幅測定

- ・ 広帯域離散スペクトル用 SPIDER 装置の開発とパルス幅計測(スペクトル位相測定)。

当研究室ではすでに周波数間隔 10 THz の離散スペクトルに適応した SPIDER (Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction) 装置を開発している。周波数間隔 125 THz に適応可能な新たな位相測定装置を開発し、スペクトル位相の測定を行った。

### 4. 研究成果

提案した新規位相操作法の実証実験を行った。5 本のモードからなる帯域 500 THz のコヒーレント離散スペクトルを対象に正の分散媒質である合成石英のみを用いて位相

操作を行いパルス幅を評価した結果、計算により探索した最適な物質長において、強度時間波形のピーク値が TL 条件の  $99.3^{+0.6}_{-1.6}\%$  まで回復する点を実験的に見出した。同時に、パルス幅  $1.78 (+0.01)$  fs で  $8.02$  fs 周期で繰り返すパルス列の発生に成功した(図 1)。

研究方法(1)の励起光を十分に高強度化する作業の進展に遅れが生じ最終年度内に研究目的であるアト秒パルス光発生の実証には至ることができなかった。しかしながら、提案した分散補償方法の実証は行うことができ研究目的の 90%は達成できたと考えている。励起光の高強度化にも支障は無く、ごく近い内に目的を達成できると考える。

本成果はレーザー光科学分野で世界最大級の国際会議の 1 つである CLEO:2014 にて、採択率が約 20%程度である口頭発表に採択された[K. Yoshii et al., CLEO:2014, FTh1D.5 (2014)]。また、第 34 回レーザー学会にて本成果を発表し優秀論文発表賞を受賞した。

### 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 0 件)

[学会発表](計 18 件)

(1) 吉井一倫, 伊藤公人, 森宗慶, 桂川眞幸, "UV-VIS-NIR 帯域離散スペクトルを用いたサブフェムト秒パルス光列発生", 第 35 回レーザー学会学術講演会, 11p-VII-4, 東海大学 高輪校舎, (2015 年 1 月 11 日)。(口頭発表)

(2) 森宗慶, 吉井一倫, 伊藤公人, 桂川眞幸, "周波数間隔 125 THz 全帯域 1000 THz 振動誘導ラマン散乱光系列の高出力発生", 第 35 回レーザー学会学術講演会, 11p-VII-5, 東海大学 高輪校舎, (2015 年 1 月 11 日)。(口頭発表)

(3) 吉崎諒, G. TRIVIKRAMARAO, 藤村祐希, 川島拓也, 大橋タケル, 佐々木祐介, 浜野紘

明, 吉井一倫, 植竹智, 桂川眞幸, "二周波数注入同期連続発振 Ti:Sapphire レーザーの高機能化", 第 35 回レーザー学会学術講演会, 12p-IX-7, 東海大学 高輪校舎, (2015 年 1 月 12 日)。(口頭発表)

(4) [Invited paper] K. Yoshii, Y. Nakamura, K. Hagihara, and M. Katsuragawa, "Generation of a 1.8 fs pulse train by simply controlling transparent plate thickness placed on the optical path," *The 45th Winter Colloquium on the PHYSICS of QUANTUM ELECTRONICS*, Tuesday Morning Invited Session 2\_Molecular modulation 12:20, Snowbird, Utah, USA, (January 6th 2015)。(口頭発表)

(5) (招待講演) 桂川眞幸, Jian Zheng, 吉井一倫, 伊藤公人, "任意にデザイン可能なコヒーレント光源", 2014 年電子情報通信学会ソサイエティ大会, BCI-2-2, 徳島大学 常三島キャンパス, (2014 年 9 月 25 日)。(口頭発表)

(6) G. Trivikramarao, Y. Fujimura, R. Yoshizaki, N. S. Suhaimi, T. Kawashima, T. Ohashi, Y. Sasaki, H. Hamano, K. Yoshii, S. Uetake, and M. Katsuragawa, "Dual Frequency Injection Locked Continuous Wave Ti:Sapphire Laser", 第 75 回応用物理学会秋期学術講演会, 20a-C8-3, 北海道大学 札幌キャンパス, (2014 年 9 月 20 日)。(口頭発表)

(7) 吉井一倫, 伊藤公人, 森宗慶, 桂川眞幸, "新規の分散補償法を用いたアト秒パルス列発生 III", 第 75 回応用物理学会秋期学術講演会, 19p-C2-10, 北海道大学 札幌キャンパス, (2014 年 9 月 19 日)。(口頭発表)

(8) 桂川眞幸, 吉井一倫, Jian Zheng, "離散性の高いコヒーレントスペクトル群で構成される光学過程の興味深い特性", 日本物理学会 2014 年秋期大会, 10aAW-6, 中部大学, (2014 年 9 月 10 日)。(口頭発表)

(9) K. Yoshii, Y. Nakamura, K. Hagihara, and M. Katsuragawa, "Generation of a Train of Ultrashort Pulses by Simply Inserting Transparent Plates on the Optical Path,"

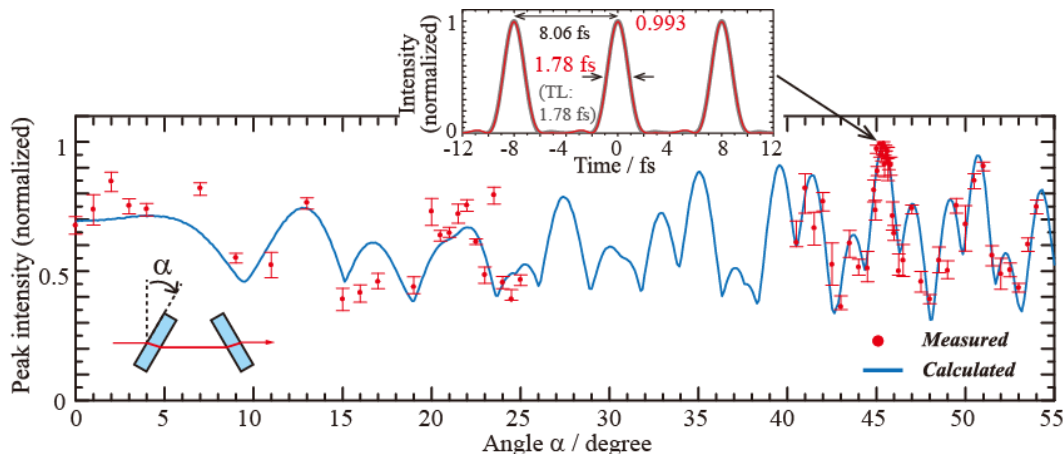


図 1 強度時間波形のピーク値の測定及び計算結果。  $\alpha = 45.4^\circ$ でのスペクトル強度と SPIDER 装置により測定したスペクトル位相(挿入図)とから再構成された強度時間波形。

CLEO/QELS 2014, FTh1D.5, San Jose Convention Center, San Jose, California, USA, (June 12th 2014). (口頭発表)

(10) 萩原浩平, **吉井一倫**, 中村佳孝, Nurul Sheeda Suhaimi, 桂川眞幸, "125THz 周波数間隔を持つ離散スペクトル用 SPIDER 装置の開発", 第 61 回応用物理学会学術講演会, 17p-F7-9, 青山学院大学相模原キャンパス, (2014 年 3 月 17 日). (口頭発表)

(11) **吉井一倫**, 中村佳孝, 萩原浩平, Nurul Sheeda Suhaimi, 桂川眞幸, "新しいパルス圧縮法による 125THz 繰り返し 1.8fs パルス列発生", 第 61 回応用物理学会学術講演会, 17p-F7-8, 青山学院大学相模原キャンパス, (2014 年 3 月 17 日). (口頭発表)

(12) 藤村 祐希, G. Trivikramarao, 吉崎 諒, 川島 拓也, 大橋 タケル, 佐々木 祐介, 浜野 紘明, **吉井一倫**, 植竹 智, 桂川 眞幸, "二周波数注入同期 Ti:Sapphire 連続発振レーザの開発", 第 34 回レーザー学会学術講演会, 20p-IV-14, 北九州国際会議場, (2014 年 1 月 20 日). (口頭発表)

(13) **吉井一倫**, 中村佳孝, 萩原浩平, Nurul Sheeda Suhaimi, 桂川眞幸, "広帯域離散スペクトルに対する任意位相操作法を用いた 1.8 フェムト秒パルス光列発生", 第 34 回レーザー学会学術講演会, 20p-IV-1, 北九州国際会議場, (2014 年 1 月 20 日). (口頭発表)

(14) **吉井一倫**, 中村佳孝, Nurul Sheeda Suhaimi, 桂川眞幸, "新規の分散補償法を用いたアト秒パルス列発生 II", 第 74 回応用物理学会学術講演会, 19p-A3-7, 同志社大学京田辺キャンパス, (2013 年 9 月 19 日). (口頭発表)

(15) [Invited paper] M. Katsuragawa, **K. Yoshii**, K. Shiraga, M. Arakawa, and F. L. Hong, "Attractive Natures of a Raman Frequency Comb in the Time and Frequency Domains," CLEO-PR & OECC/PS 2013, WF3-1, Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan, (July 2<sup>nd</sup> 2013). (口頭発表)

(16) **K. Yoshii**, N. S. Suhaimi, J. K. Anthony, and M. Katsuragawa, "Attosecond Temporal Shape Manipulation by Arbitrarily Designing Spectral Phases," CLEO-PR & OECC/PS 2013, TuB4-2, Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan, (July 2<sup>nd</sup> 2013). (口頭発表)

(17) 中村佳孝, **吉井一倫**, N. S. Suhaimi, 桂川眞幸, "新規の分散補償法を利用した紫外-可視-近赤外光のアト秒パルス列発生", 第 10 回 AMO 討論会, P5, 電気通信大学, (2013 年 6 月 14 日). (ポスター発表)

(18) **吉井一倫**, "新しい極限光技術: 100THz 繰り返しアト秒パルス列の発生・制御と真空紫外光周波数標準への展開", 日本学術会議「第 3 回先端フォトンクスシンポジウム」, P56, 日本学術会議, (2013 年 4 月 26 日). (ポスター発表)

[図書](計 0 件)

[産業財産権]  
出願状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
取得年月日:  
国内外の別:

[その他]  
ホームページ等  
<http://www.es.uec.ac.jp/faculty/yoshii-kazumichi/index.html>

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者  
吉井 一倫 (YOSHII KAZUMICHI)  
電気通信大学・情報理工学(系)研究科・助教  
研究者番号: 90582627

(2) 研究分担者  
( )

研究者番号:

(3) 連携研究者  
( )

研究者番号: