

次世代極短パルスレーザーによるアト秒科学の新展開

Evolution of Attosecond Science by Next-generation

Ultrashort-pulse Lasers

課題番号：18H05250

板谷 治郎（ITATANI, JIRO）

東京大学・物性研究所・准教授



研究の概要（4行以内）

高出力・高繰り返し Yb 固体レーザーで励起される位相制御された極短パルス光パラメトリック増幅光源を「次世代極短パルスレーザー」と位置づけて開発し、短波長領域（深紫外・真空紫外・軟 X 線）におけるアト秒パルス光源を整備する。これにより、アト秒科学を「実験手法の原理実証」の段階から、「物質科学における汎用的な手法」へと飛躍させる。

研究分野：光量子科学

キーワード：アト秒科学、高強度極短パルスレーザー、超高速軟 X 線分光

1. 研究開始当初の背景

Ti:Sapphire (TiS) レーザー技術の二十余年にわたる発展により、高強度極短パルスレーザーが普及し、強レーザー場を用いた多様な実験が可能となった。特に、高強度レーザーパルスをガス媒質に集光して得られる高次高調波に関しては 2001 年にアト秒パルス発生への応用が実証され、「アト秒科学」と呼ばれる極限的な時間スケールの現象を観測し操作する新しい光科学が生まれた。アト秒科学の進展により、気相の原子・分子の超高速電子過程に関するわれわれの理解は飛躍的に増大した。その一方で、アト秒科学を支えてきた TiS レーザーそのものに起因する光源性能の限界が、アト秒科学の新たな展開（具体的には、アト秒パルスの光量の増大と、軟 X 線への波長領域の拡大）を制限している。

この TiS レーザー技術の限界を打破するために「光パラメトリックチャープパルス増幅法（Optical Parametric Chirped Pulse Amplification; OPCPA）」と呼ばれる光増幅手法の開発が世界的に進められている。アト秒パルスの最短波長はレーザー波長の 2 乗に反比例するため、OPCPA に基づく長波長光源の登場によって、アト秒パルスのスペクトルは軟 X 線領域へと拡大した。その一方で、イッテルビウム (Yb) 添加媒質による新固体レーザー技術の成熟が進み、産業応用可能な高平均出力・低フォトンコスト・高信頼性をもつ半導体レーザー励起 Yb 系固体レーザーの普及が始まった。ここに至り、Yb 系固体レーザーを励起源とした OPCPA 光源を構築することによって、TiS レーザーを超える次

世代極短レーザーを実現し、アト秒科学の新展開を図ることが現実的な課題となった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、アト秒パルスの軟 X 線領域への波長域の拡大とフォトンフラックスの増大を実現することにより、これまでに大きな成功を収めたアト秒科学を、物質科学および生命科学を支える計測技術としてさらに発展させることである。そのために、アト秒パルスの波長域に応じて適切な OPCPA 光源を開発し、効率的なアト秒パルス発生を実現する。また、アト秒パルスの利用技術の開発も行い、原子・分子・固体・凝縮系に帯するアト秒分光法を実証する。

3. 研究の方法

アト秒パルスの発生では、最短波長がレーザー波長の 2 乗に反比例することと、変換効率がレーザー波長の 5～6 乗に反比例するという二つのスケーリング則が確立している。そのため、長波長レーザーを用いると軟 X 線領域への短波長化が可能となるが、光量が劇的に減少するというトレードオフが問題となっている。そこで本研究では、真空紫外・極端紫外・軟 X 線の三つの波長域において適した波長をもつ位相安定な高強度極短パルス OPCPA 光源を開発する。

軟 X 線領域のアト秒パルス発生では、TiS 励起・赤外 OPCPA 光源の高度化とビームラインの整備を進め、気相・固体・溶液系を対象とした多様なアト秒軟 X 線吸収分光を実施する。

真空紫外・極端紫外領域での高繰り返しかつ効率的なアト秒パルス発生のために、繰り返し 10~100 kHz で動作する Yb 固体レーザーの基本波 (波長 1030 nm)・二倍波 (波長 515 nm)・三倍波 (波長 343 nm) を励起源とした光パラメトリック増幅 (Optical Parametric Amplification; OPA) 光源の開発を行い、アト秒パルス発生と分光応用のためのビームラインを整備する。

また、OPA/OPCPA 光源技術を利用して、高強度中赤外光源とサブサイクル分光の開発を行い、固体を対象とした極端非線形光学に関する実験的研究を進める。

4. これまでの成果

軟 X 線領域のアト秒分光は未開拓の分野であったが、これまでに開発してきた赤外領域で位相安定な高強度極短パルス OPCA 光源を高度化し、アト秒軟 X 線パルスの発生・利用技術を開発した結果、「水の窓」と呼ばれる軟 X 線領域 (光子エネルギー 280~530 eV) での孤立アト秒パルスの発生と、NO 分子を対象としたアト秒精度での軟 X 線吸収分光を実現した[1]。また、光電場波形の直接的な観測手法として、プラズマ発光を利用した全光学的な手法を提案し、実証した[5]。これらの実験により、光電場の振動の一周期以下の時間スケールでおこる光イオン化や分極振動などのアト秒電子過程や、フェムト秒オーダーでおこる分子振動と分子回転を統一的に観測し、光励起に伴う階層的な量子ダイナミクスを明確に説明することに成功した。この成果は、アト秒軟 X 線吸収分光が「汎用的な実験手法」として極めて有効であることを示したものである。なお本実験は、アト秒軟 X 線吸収分光の再短波長の世界記録 (光子エネルギー 400 eV, 波長 3.1 nm) となっている。

極端紫外・真空紫外領域の高繰り返しアト秒パルス光発生に関しては、10kHz で動作する Yb 固体レーザーで励起される中赤外 OPA 光源を開発した[3]。本光源は中赤外パルスでの OPA であるが、薄板による 200 フェムト秒パルスの 6 フェムト秒までの圧縮も実現し、今後開発予定の OPA 光源のプロトタイプでもあり、スペクトルの広帯域化や位相補償に関する課題を解決する道筋を見いだすことが出来た。

中赤外 OPA 光源については、既存の波長 3.5 μm 帯での位相安定な高強度パルス光源を用いて探索的な実験を実施し、固体における高次高調波発生におけるレーザーパルスの非線形伝搬の影響の解明[4]や、回折格子表面でのプラズモン伝搬に伴う共鳴的で指向性の高い光電子放出過程の発見 [2]、また、多様な物質における固体高調波発生や強誘電体における光駆動時のサブサイクル分極応答等に関する実験も実施し、光で駆動された物質系に関して貴重な知見を得た。

5. 今後の計画

軟 X 線領域のアト秒吸収分光については、光電子計測手法もとりにいれて計測装置を高度化し、対象を気相原子分子の多電子過程、溶液系 (溶液分子、水和分子) へと広げる。

極端紫外・真空紫外領域でのアト秒パルス発生については、段階的に繰り返し 10~100 kHz で動作する Yb 固体レーザーの基本波・二倍波・三倍波を励起源とした OPA 光源の開発を行い、高繰り返し特性を生かした超高速分光計測法を開拓する。

高強度中赤外光源の開発と利用研究も進め、固体における高次高調波発生やコヒーレント真空紫外光発生等の強レーザー場で駆動される固体の非線形光学応答に関する研究を進める。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

- [1] N. Saito, H. Sannohe, N. Ishii, T. Kanai, N. Kosugi, Y. Wu, A. Chew, S. Han, Z. Chang, J. Itatani, "Real-time observation of electronic, vibrational, rotational dynamics in nitric oxide with attosecond soft x-ray pulses at 400 eV," *Optica* **6** (12), 1542-1546 (2019).
- [2] T. Mizuno, K. Takeuchi, K. Kaneshima, N. Ishii, T. Kanai, J. Itatani, "Resonant-Like Field Enhancement by Nanoscale Grating-Coupled Propagating Surface Plasmons and Localized Surface Plasmons in the Mid-Infrared Range: Implications for Ultrafast Plasmonic Electron Sources," *ACS Appl. Nano Mater.* **2**, 7067-7073 (2019).
- [3] N. Ishii, P. Xia, T. Kanai, J. Itatani, "Optical parametric amplification of carrier-envelope phase-stabilized mid-infrared pulses generated by intra-pulse difference frequency generation," *Optics Express*, **27** (8), 11447-11454 (2019).
- [4] P. Xia, C. Kim, F. Lu, T. Kanai, H. Akiyama, J. Itatani, N. Ishii, "Nonlinear propagation effects in high harmonic generation in reflection, transmission from gallium arsenide," *Opt. Express* **26** (22), 29393-29400 (2018).
- [5] N. Saito, N. Ishii, T. Kanai, J. Itatani, "All-optical characterization of the two-dimensional waveform and the Gouy phase of an infrared pulse based on plasma fluorescence of gas," *Opt. Express* **26** (19), 24591-24601 (2018).

7. ホームページ等

<http://itatani.issp.u-tokyo.ac.jp/>