

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月30日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2014～2018

課題番号：26220606

研究課題名(和文) 単一アト秒パルスの高出力化によるアト秒電子ダイナミクス計測の確立

研究課題名(英文) Generation of intense isolated attosecond pulses and their application to attosecond electron dynamics measurement

研究代表者

緑川 克美 (Midorikawa, Katsumi)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究センター・センター長

研究者番号：40166070

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 136,340,000円

研究成果の概要(和文)：基本波800nmとOPAからのシグナル光1300nmに1900nmのアイドラー光を加えた3波長励起方式を開発し、中心波長60eVにおいてパルス幅140as、ピークパワー1.7GWの単一アト秒パルスの発生に成功した。開発した高エネルギー3波長レーザーシステムには、低繰り返し高エネルギーレーザーのために開発されたCEP安定化技術をはじめとして、様々な先端的時空間光波制御技術が取り入れられている。一方、MHz級超高繰り返しアト秒パルスの発生においては、Yb:YAG Thin-Disk型モード同期リングレーザーの共振器内の2箇所の希ガスガスジェットを配置し、初めて2波長同時発生に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で達成された単一アト秒パルスのピークパワーは、1.7GWにも達しており、これは2光子過程を誘起するに十分な強度であり、これによってアト秒ポンプ-アト秒プローブ実験が可能となる。一方、この高強度アト秒パルスの発生のために開発された低繰り返し高エネルギーレーザーのためにCEP安定化技術や時空間制御技術は、今後の高度物理に新たな展開をもたらすものと期待される。また、マルチポート動作のMHz級の超高繰り返し高調波光源は、シンクロトロン放射光とX線自由電子レーザーのギャップを埋め、超高速光電子分光やコインシデンス計測を利用した材料開発や化学反応研究に画期的な進展をもたらすであろう。

研究成果の概要(英文)：We have developed high-energy three-color optical waveform synthesizer consisting of the 800 nm main, 1300 nm signal and 1900 idler pulses by upgrading our original 2-color excitation method. By focusing the three color pulses into Ar gas cell, an isolated attosecond pulses energy of 240 nJ with a pulse duration of 140as at a central wavelength of 60eV was achieved. The attained peak power of 1.7 GW was intense enough to implement attosecond pump - attosecond probe experiments. In addition, we have demonstrated two-color simultaneous operation of 3 MHz high harmonics with a high-pulse-energy Yb:YAG thin disk ring-type oscillator. The harmonic order in each port can be independently controlled by choosing an appropriate gas for each port. Our method paves the way to MHz repetition-rated high-power XUV sources for multi-user or multi-color experiments.

研究分野：量子エレクトロニクス

キーワード：アト秒パルス 超短パルスレーザー 高次高調波 非線形波長変換

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

物質中の電子の動きを捉えることができるアト秒パルスレーザーは、物理学や化学のみならず生物・医科学等の分野においても今後必須のツールとなると考えられる。2001年にアト秒パルスおよびパルス列の発生が観測されて以来、その発生・計測法ならびに利用は、急速に発展してきたが、未だに波長域、エネルギー、平均出力等は十分ではなくその応用範囲を制限している。特に、単一アト秒パルスに関しては、その強度および繰り返し速度は、目標となる計測に必要とされるレベルには達していない。

これに対して研究代表者等は、波長 $1.3\mu\text{m}$ の赤外光を 800nm の Ti:sapphire (Ti:S) レーザー光に重畳することにより、高エネルギー化が容易な従来の $20\sim 30$ フェムト秒のパルス幅のレーザーでも、高強度の単一アト秒パルスが発生できることを見いだした。そして、この2波長方式とルーズフォーカス方式によるエネルギー拡大測を組み合わせることにより従来法に比べてそのエネルギーを約100倍増加させる事に成功し、初めてマイクロジュール級の単一アト秒パルスを実現した。しかし、当時は、 10Hz の低繰り返しで高エネルギーの2つのレーザーパルスを安定に合成するための技術が未成熟であったため、出力の安定性に大きな問題があり、その解決が望まれていた。

一方、電子材料や触媒等の研究で必要とされる光電子分光計測においては、空間電荷による制限からアト秒パルスの強度よりも MHz 級の超高繰り返しが要求されていたが、励起レーザー増幅における熱レンズ等に影響により、高調波の繰り返しは数 kHz 以下に制限されていた。

2. 研究の目的

研究代表者らがこれまで開発してきた2波長励起による高強度の単一アト秒パルスの発生法をさらに高度化し、その波長域をサブ keV 領域にまで拡張するとともに、リング型共振器を用いた新しい超高繰り返しアト秒パルス光源を開発し、アト秒科学の先端を切り開くことを目的として、以下の4課題を推進する。

(1) 高出力単一アト秒パルスの波長域の拡大

研究代表者らの開発した赤外2波長励起法を拡張し、高出力単一アト秒パルスの短波長化と短パルスを行う。具体的には、非線形媒質を Xe から Ar にイオン化ポテンシャルの大きな媒質に代えることにより、 20nm 領域で $0.2\mu\text{J}$ 、 200fs の単一アト秒パルスを得る。さらに、赤外光の波長を $1.7\mu\text{m}$ の長波長化するとともにエネルギーを約 50mJ に増大し、これをメインパルスとした赤外2波長方式による‘水の窓’領域での単一アト秒パルスの高出力化の可能性を検討する。

(2) 単一アト秒パルスの安定化と高出力化

低繰り返し、高エネルギーレーザーの Carrier-Envelop Phase (CEP) 安定化法を開発し、これを2波長励起レーザーシステムに導入することにより、高出力で安定な単一アト秒パルスの発生法を確立する。

(3) アト秒ポンプ-プローブ法によるアト秒電子ダイナミクスの計測

開発する安定で強力な単一アト秒光源を利用して、同時に複数の電子が励起状態にある多電子励起状態の関与する過程や二重イオン化過程のポンプ-プローブ計測を行うことにより、アト秒電子ダイナミクス計測の技術基盤を確立する。

(4) MHz 級超高繰り返しアト秒パルスの発生

これまで開発してきた Yb:YAG の Thin-Disk を利得媒質とした一方向リング型モード同期レーザー内に高調波ポートを設け MHz 級の高繰り返し高次高調波発生を実現する。さらに、本方式でより高次の高調波を効率良く発生することを目指して、Yb:Lu₂O₃ や等のより利得帯域の広い媒質の可能性について検討する。

3. 研究の方法

単一アト秒パルスの高度化については、繰り返し 10Hz 、パルス幅 25fs の高エネルギーチタンサファイアレーザーを基本波として、OPA により発生した中赤外パルス 1300nm と 1900nm を加えて3波長合成パルスを構築した。これを希ガスセルでの位相整合条件を満たすように集光し高エネルギーの単一アト秒パルスを発生した。

一方、MHz 級高繰り返し高調波光源の開発においては、これまで開発してきた Yb:YAG Thin-Disk を用いた高エネルギーのリング型モード同期発振器内の2カ所の高調波発生ポートを設置し、2波長同時発振を行った。また、Yb:Lu₂O₃ 等の新規固体レーザー媒質の探索においては、バルク状の Yb:Lu₂O₃ セラミックを用いたカーレンズモード同期発振器の開発し、その特性を評価した。

4. 研究成果

(1) 高出力単一アト秒パルスの波長域の拡大

これまでに開発した赤外 2 波長励起法を拡張し、高出力単一アト秒パルスの短波長化と短パルスを行にあたり、非線形媒質を Xe から Ar へとイオン化ポテンシャルの大きな媒質にかえて、必要なレーザーパラメータと検討した。その結果、赤外 2 波長レーザーの場合、10%程度のサテライトパルスを完全になくすことは困難であることがわかった。そこで、当初の計画を変更し、基本波の 800nm とシグナル光 1300nm に 1900nm のアイトラー光を加えた 3 波長励起方式を採用することにした。本実験では、CEP (carrier-envelope phase) が安定化された繰り返し 1kHz の Ti:S フロントエンドシステムからの 7mJ, 25fs のパルスを 10Hz のマルチパルス増幅器で増幅し、パルス圧縮後 170mJ を得た。一方、シグナル光とアイトラー光は、この Ti:S パルスの一部を励起光とした 2 段の OPA を用いて発生し、それぞれ 6.1mJ, 44fs と 4.3mJ, 88fs が得られた。最終的には、この 2 波長のパルスに 44mJ, 30fs の基本波パルスをあわせて、3 波長合成パルスを構築し、これを Ar ガスを充填した高調波発生セルに緩やかに集光しアト秒パルスの発生を行った。図 1 は、観測されたスペクトルで、3 波長にすることによりカットオフ領域 (50eV ~ 70eV) で単一アト秒パルスの発生を示す連続スペクトルの発生が確認された。2 波長にくらべても、スペクトルは非常にスムーズで、そのフーリエ変換波形 (図 1 右上図) からサテライトパルスの発生が十分に抑制されたことがわかる。この時のパルス幅は 140as で、エネルギーは 0.24 μ J あった。

一方、高調波のカットオフが励起光波長の 2 乗に比例することをから、メインパルスの波長を 800nm から 1900nm に変えると、カットオフ波長は 6 倍程度 (400eV) の短波長域まで拡張されることが期待される。図 2 は、パルス幅 30 fs で波長 1900nm, 1300, nm, 800nm の 3 つのパルスを強度比 1 : 0.2 : 0.02 で Ne ガスに強度 3×10^{14} W/cm² で集光した場合の高調波スペクトル(左)とアト秒パルス波形の計算結果である。さらに 1900nm 光を独自に開発した DC-OPA 法 (論文②) による高出力化してメインパルスとして用いることにより、水の窓領域でパルス幅約 50as の単一アト秒パルスが直接発生できること示された (論文①)。

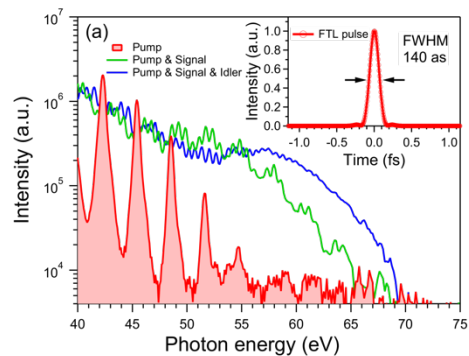


図 1 3 波長合成パルスを用いて発生した高調波スペクトル(青線)と 2 波長および 1 波長の場合の比較。

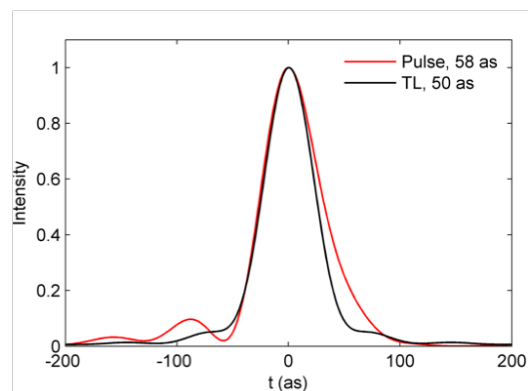
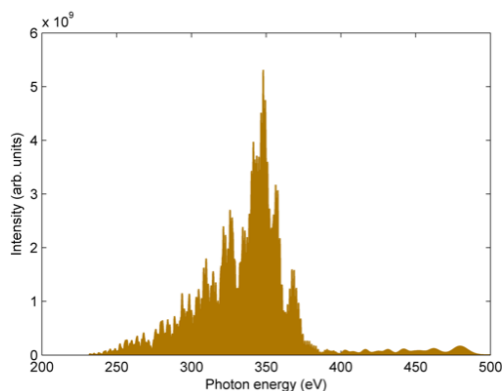


図 2 1900nm 光を主励起波長とする 3 波長合成パルスとして用いて Ne ガスから得られる高調波のスペクトル(左)とその時間波形(右)。

(2) 単一アト秒パルスの安定化と高出力化

2 あるいは 3 波長励起において安定な単一アト秒パルスをえるためには、励起レーザーの CEP を安定化させる必要がある。通常、CEP の安定化には、CEP エラー信号を数 kHz から MHz の繰り返しで共振器等にフィードバックする必要があるが、100mJ 以上の高エネルギー増幅器の繰り返し周波数は 10Hz 程度であるため、その安定化は困難とされていた。本研究では、これを解決するための図 3 に示すような新しい手法を開拓した。

まず開発においては、フロントエンドとなるチタンサファイアレーザーシステムの前置増幅器をレーザーダイオード励起のグリーンレーザーとし、レーザーシステムの安定化を行った。前置増幅器の出力光をパルス圧縮した際のキャリア包絡線位相(CEP)の揺らぎは 180mrad に抑えられており、この増幅段で十分な安定性を得た。繰り返しは 1kHz である。この前置増幅器に 10Hz の高エネルギー最終段増幅器を組み合わせた。パルス圧縮後のエネルギーは、400mJ で、パルス幅は 25 フェムト秒である。この状態で安定な CEP は得るために、増幅されるシードパルスと同軸に伝搬しているが、増幅に使われない高繰り返しのシードパルスをパルス圧縮後に取り出し、ここから得られた CEP 信号をレーザーシステムにフィードバックする事で増幅パルスの CEP 安定化を試みた。非増幅パルスの取り出しには、当初は機械的なチョッパーを用いてい

るが、非増幅パルスのみをの偏光を 90 度変える方式考案し、より高いフィードバック周波数を実現した(論文④)。機械的なチョッパーを用いた場合の実験結果を図 4 に示す。最終的に得られた出力エネルギー 400mJ で、10Hz の繰り返し動作で 670mrad (RMS) の CEP 安定性を達成した。この時の、パルス幅は 25fs であり、ピークパワーは 16TW にまで達した。これにより 10Hz 繰り返しで 10TW 以上の高出力レーザーパルスに於いて、初めて CEP の安定に成功した。

さらに、2 段の OPA からのパルスをアト秒領域の時間制度でこの基本波レーザーを同期させるために、2 つの手法を導入した。その 1 つは、可視レーザービームを OPA の光路に導入し、その干渉信号をピエゾステージにフィードバックすることにより、11 as の安定性を実現した。また、OPA の励起光である Ti:S パルスのエネルギーの揺らぎは、白色光発生部において自己収束距離の変化による時間的変動をもたらす。これを抑えるために Balanced Optical Correlator を採用し、この時空間結合によるジッターを 610 as に抑えることに成功した。この結果、図 5 に示すように安定なアト秒パルス出力が達成された

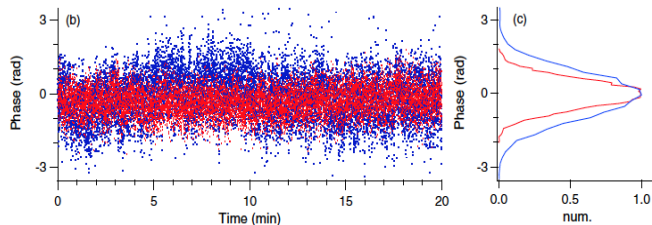


図 4 10Hz レーザーの CEP 長期安定実験の結果

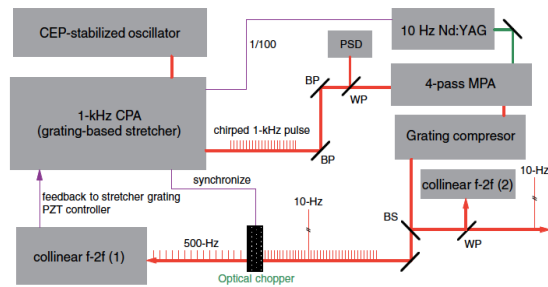


図 3 10Hz, 25fs, 400mJ CEP 安定化 Ti:S レーザ

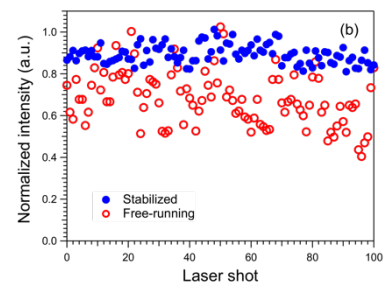


図 5 アト秒パルスのショット毎の安定性: 青丸は安定化した場合で、赤丸はフリーランニング。

(3) アト秒ポンプ-プローブ法によるアト秒電子ダイナミクスの計測

本課題では、同時に複数の電子が励起状態にある多電子励起状態の観測をターゲットとして He 原子の 2 電子励起状態のアト秒計測のためのシミュレーションモデルを開発した。このモデルでは、2 電子の偏角運動や回転運動を観測する手法として、励起状態からの XUV 光を用いことを新たに提案している(図 6)。シミュレーションの結果では、パルス幅 600fs、光子エネルギー約 30eV の XUV 光を 10^{15}W/cm^2 の強度で He 原子に集光し 2 電子励起した後、それと同じ XUV 光のプローブパルスの遅延時間を変えながら波長 40.8eV の XUV 光の変化を観測することにより、目標とする 2 電子の相関運動がサブフェムト秒の精度で得られることが明らかになった。さらに、この実験を実現するためには、新たな XUV 多層膜鏡の開発も必要であるため、NTT AT 社と協同でその開発を行い、これを用いて単一アト秒パルスによる 2 光子超しきい値イオン化による電子スペクトルの観測に成功(論文⑦)。一方、このシミュレーションと平行して、これまで開発してきたアト秒パルス列を用いて、アト秒ポンプ-プローブ計測のための高精度干渉計と速度転写型画像荷電粒子分光器の高精度化と安定化を行った。特に、ポンプ-プローブ計測における長時間の干渉計の安定性を重視して、用いる XUV ビームスプリッターに 0.001 度の温度制御を導入することにより 13as 以下の分解能を達成し、これを用いて、窒素分子のアト秒電子ダイナミクスの測定(論文⑤)や水素分子における量子波束の形成過程の観測(論文⑥)に成功した。さらに、これらの技術を発展させることにより、初めて XUV 光のみによる超高速分子解離反応制御にも成功した(論文③)。

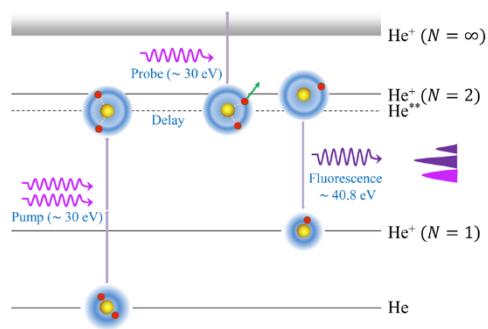


図 6 He の 2 電子励起状態のアト秒ポンプ-プローブスキーム

(4) MHz 級超高繰り返しアト秒パルスの発生

本課題では、固体表面や吸着分子等のアト秒電子ダイナミクスの光電子分光計測において必要とされる MHz 級の超高繰り返し高次高調波光源の開発について報告する。研究代表者らは、これまでに 100m の共振器長を有し 3MHz の繰り返しで 1mJ クラスの超短パルスを蓄積できる Yb:YAG Thin-Disk 型モード同期リングレーザーを開発してきた。この共振器内の 2 箇所を集光位置に Ar および Ne ガスジェットを配置し、高次高調波の観測をした。その結果、Ar ガスで 23 次、Ne ガスで XUV 分光器の観測限界（波長 50nm）である 43 次までの高調波までが観測された（図 7）。これは、モード同期レーザー共振器内の高次高調波の 2 波長同時発生初めての成功である。

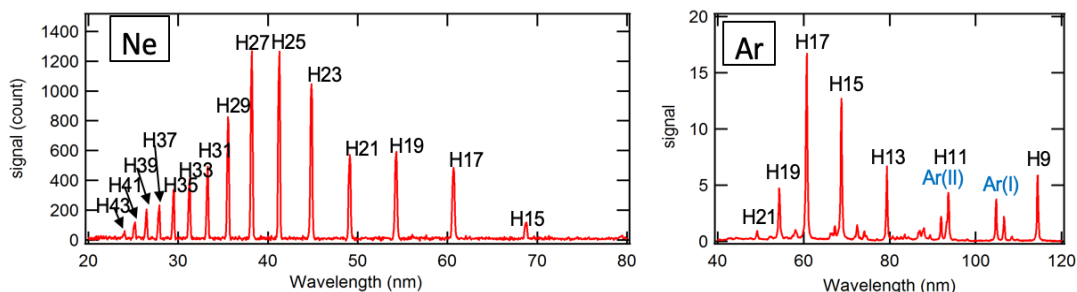


図 7 Yb:YAG Thin-Disk を用いたリング型モード同期レーザーの共振器内高次高調波の 2 波長同時発生スペクトル

一方、より短パルスのモード同期をおこなうために、Yb:Lu₂O₃ 等の新規固体レーザー媒質の探索も行った。Yb:Lu₂O₃ セラミックは高い熱伝導率、広い利得帯域や大型化が可能といった利点が報告されているが、市販されておらず、上記の高出力発振器への応用の前にその特性を把握する必要がある。そこで、バルク状の Yb:Lu₂O₃ セラミックを用いたカーレンズモード同期発振器を開発し、その特性を評価した。その結果、パルス幅 135fs で繰り返し 78MHz の安定なモード同期発振が平均出力 1.83W で得られた。今後、より大型の Yb:Lu₂O₃ セラミックが作製されるようになれば、共振器内高次高調波発生において非常に有力であると結論された。

以上、10Hz の高エネルギーレーザーをベースとして、このような CEP の安定化と安定な高出力アト秒パルスの達成により、アト秒ポンプアト秒プローブ法を可能にするものである。一方、MHz 級で安定な 2 波長高調波システムは、アト秒光電子分光に新たな道を開拓するものであり、本研究により開発された 2 つのアト秒光源は、今後のアト秒科学の重要な役割を果たすものと期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 19 件）

- ① Y. Fu, B. H. Yuan, K. Midorikawa, P. Lan, and E. J. Takahashi, “Toward GW-scale isolated attosecond pulses far beyond carbon K-edge driven by mid-infrared waveform synthesizer,” *App. Sci.* 8, 2451 (2018). DOI:10.3390/app8122451 査読有
- ② Y. Fu, K. Midorikawa, and E. J. Takahashi, “Towards a petawatt-class few cycle infrared laser system via dual-chirped optical parametric amplification,” *Sci. Reports.* 8, 7629 (2018). DOI:10.1038/s41598-018-25783-0 査読有
- ③ Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, “Sub-10-fs control of dissociation pathways in the hydrogen molecular ion with a few-pulse attosecond pulse train,” *Nat. Commun.* 7, 12835 (2016). DOI:10.1038/ncomml2835 査読有
- ④ Y. Fu, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, “Indirect high-bandwidth stabilization of carrier-envelope phase of a high-energy, low-repetition-rate laser,” *Opt. Exp.* 24, 13276-13287 (2016). DOI:10.1364/OE.24.013276 査読有
- ⑤ T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, “Direct observation of an attosecond electron wave packet in a nitrogen molecule,” *Science Advances* 1, e1500356 (2015). DOI: 10.1126/sciadv.1500356 査読有
- ⑥ Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, “Settling time of a vibrational wavepacket in ionization,” *Nat. Commun.* 6, 8197 (2015). DOI: 10.1038/ncomm9197 査読有
- ⑦ E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Mücke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, “Nonlinear Attosecond Metrology by Intense Isolated Attosecond Pulses,” *IEEE Selc. Topics in Quantum Electron.* 21, 8800112 (2015). <http://www.ieee.org/publications>

〔学会発表〕（計 183 件）

国際会議（招待講演）

- ① K. Midorikawa, “Next generation XUV high harmonic and attosecond light sources,” The 5th Int. Symp. on Laser Interactions with Matter, Changsha, China, Nov. 2018 (Plenary)
 - ② K. Midorikawa, “Next generation high-order harmonic sources,” International Conference on Extreme Light, Szeged, Hungary, Nov. 2017. (Plenary)
 - ③ K. Midorikawa, “High-order harmonics: Application and Prospects,” OSA Laser Congress, Nagoya, Japan. Oct. 2017. (Plenary)
 - ④ K. Midorikawa, “Attosecond science by intense high-order harmonics,” 8th International Symposium on Ultrafast Phenomena and Terahertz Waves, Chongqing, China, Oct. 2016. (Keynote)
 - ⑤ K. Midorikawa, “High energy synthesizer for generating intense isolated attosecond pulses,” The 18th Gordon Research Conference on Multiphoton Processes, Andover, NH, USA, June 2016.
 - ⑥ T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, “Attosecond nonlinear Fourier transform spectroscopy of molecules with intense a-few-cycle attosecond pulse train: observation of vibrational and electron wavepackets,” 5th Int. Conf. on Attosecond Physics, Québec, Canada, July 2015.
- （他 59 件）

国内会議（招待講演） 30 件

〔その他〕

解説等

- ① 緑川克美、“ノーベル物理学賞：超短パルス高強度レーザーに画期的進展をもたらしたチャープパルス増幅”、パリティ 33、No. 12, 42-44 (2018).
- ② 緑川克美、“アト秒計測で電子ボルトの分解能を達成”、パリティ 33、No. 11, 32-35 (2018).
- ③ 沖野友哉、鍋川康夫、緑川克美、“高次高調波によるアト秒量子波束計測”、分光研究 65, pp. 81-91, 2016.
- ④ 鍋川康夫、古川裕介、沖野友哉、山内薫、緑川克美、“高強度アト秒パルス列を用いた水素イオンの振動波束の研究”、レーザー研究 43, 823-827 (2015).
- ⑤ 沖野友哉、古川裕介、鍋川康夫、山内薫、緑川克美、“アト秒非線形フーリエ分光”、レーザー研究 43, 217-221 (2015).

ホームページ等

http://www2.riken.jp/ExtremePhotonics/attosec/index_j.html

6. 研究組織

(1) 研究分担者

(2) 研究協力者

研究分担者氏名：鍋川 康夫

ローマ字氏名：Nabekawa Yasuo

研究分担者氏名：高橋 栄治

ローマ字氏名：Takahashi Eiji

研究分担者氏名：沖野 友哉

ローマ字氏名：Okino Tomoya

研究分担者氏名：森下 亨

ローマ字氏名：Morishita Touru

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。