

令和元年5月29日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13704

研究課題名(和文)ミリジュール級 THz レーザーシステムの開発

研究課題名(英文)Development of a millijoule-class THz laser system

研究代表者

高橋 栄治 (Takahashi, Eiji)

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・専任研究員

研究者番号：80360577

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではキロエレクトロン領域のコヒーレント軟X線の発生を目指し、その為の励起レーザーとして出力がミリジュールクラス、周波数可変域が 50 - 15 THz (波長可変域 6 - 20 μm)、パルス幅が数サイクルの THz パルスを開発した。また THz パルス発生 of 差周波励起レーザーとして、DC-OPA (dual-chirped optical parametric amplification) 法を用いて100 ミリジュールクラスの高出力近赤外レーザーシステム (波長 1 - 2 μm) を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光源開発から得られた成果より、これまで1 keV 程度であった高次高調波の光子エネルギーをさらに高光子エネルギー化できる目処がたった。将来的に本レーザー光源により数 keV の光子エネルギーを持つコヒーレント光発生が可能になれば、物性特性を測定する為の軟 X 線分光計測等に高い時間分解能を付加することができ、フェムト秒からアト秒にわたる超高速軟X線分光学という新しい研究分野が開拓されると期待できる。

研究成果の概要(英文)：In this research, we demonstrated few-cycle millijoule-class THz light sources (50 - 15 THz) with the aim of generating coherent keV soft x-ray pulses via high-order harmonic generation. For a pump pulse to a difference frequency generation of THz pulses, we developed a 100-mJ class near-infrared pulse (1 - 2 μm) using DC-OPA (dual-chirped optical parametric amplification) method.

研究分野：レーザー工学

キーワード：レーザー THz発生

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高次高調波発生を用いたコヒーレント短波長光源は、長波長レーザーと位相整合技術を組み合わせた高効率発生法の実現により最大光子エネルギーを1 キロエレクトロンボルト (keV) に拡張するまでになっている。この高光子エネルギー化を一つのモチベーションとして、100 - 30 THz 域において数サイクルの高出力レーザー光源の開発が精力的に進められている。長波長レーザーを用いた高調波発生のスケーリング則によると、100 THz 励起レーザーを用いて光電場 GV/m 程度を発生できれば、原理的には光子エネルギーが keV 域の高調波ビームを得ることができる。しかしながら THz 域において実現可能な光電場は数 100 MV/m 程度であり、THz パルスのエネルギーもマイクロジュール程度に留まっている。また高効率な高調波発生を実現するには、所望とする高調波光子エネルギーに最適化された励起波長を選ぶ必要があり、励起光として用いる THz パルスには高出力性のみならず波長可変性も要求される。

2. 研究の目的

本研究では keV 領域のコヒーレント軟 X 線の発生を目指し、その為の励起レーザーとして出力がミリジュールクラス、周波数可変域が 50 - 15 THz (波長可変域 6 - 20 μm)、パルス幅が数サイクルの世界最高出力の THz レーザーシステムを開発することを目的とする。また THz 波生成の為の差周波 (DFG: Difference Frequency Generation) 励起レーザーとして、DC-OPA (dual-chirped optical parametric amplification) 法を用いて 100 mJ クラスの高出力近赤外レーザーシステム (波長 1 - 2 μm) を実現する。

3. 研究の方法

(1) DFG 励起用高出力 NIR レーザーの開発

超短パルスの近赤外 (Near-infrared: NIR) 光を得るための一般的な手法として光パラメトリック増幅 (Optical Parametric Amplifier: OPA) が幅広く採用されている。しかしながら非線形結晶の損傷閾値の問題から、広帯域光の出力は 10 mJ/pulse 程度で制限されている。研究課題では 100 mJ クラスの NIR を実現するため、申請者独自の OPA 出力スケーリング法である DC-OPA 法を採用した。DC-OPA の出力スケーリング則に従い、0.8 μm ポンプを 500 mJ 以上に引き上げるとして 100 mJ を超える NIR 光の発生を行った。

(2) ミリジュール級 THz レーザーの開発

50 - 15 THz 域において DFG を用いた数サイクルの THz パルスはこれまでも実現されているが、出力エネルギーは数 10 μJ に過ぎず、発生可能な電場強度も 100 MV/m 程度となっている。高出力化が進まない大きな理由は NIR 域と同様に DFG をポンプする励起レーザーのエネルギー制限によるところが大きい。また THz 域における代表的な非線形結晶 (GaSe 等) の損傷閾値は数 10 GW/cm^2 と比較的低いため、高いポンプエネルギーで励起することが難しいという問題もある。これらの技術的困難を解決するため、上述した DC-OPA により発生した NIR 光をパルス圧縮せず、そのまま DFG 励起に使用し結晶の損傷問題を回避する。DC-OPA を用いることで、上述した NIR レーザーの場合と同様に THz 発生用非線形結晶に投入できる励起エネルギーをポンプパルスのストレッチング量に比例してスケーリングが可能となる。

上記二項目の実験装置概略を図 1 に示した。

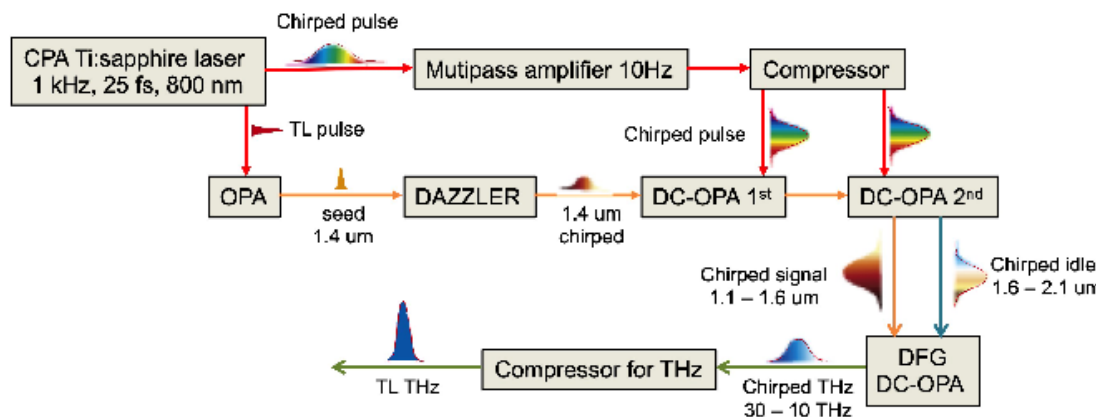


図 1. DC-OPA を用いた DFG 励起用高出力 NIR レーザー及び DFG による THz 発生の概略図

4. 研究成果

(1) DC-OPA を用いた 230 mJ チャープ NIR 光の発生

図 2(左)に、0.8 μm ポンプレーザーエネルギーに対する DC-OPA 出力を示した。図 1 の装置概略図に示した様にフロントエンドには 1-kHz のチタンサファイアレーザーを使用し、出力され

るコンプレッションパルスを生光生成の為の OPA 励起へ、チャープ光を後段に設置した 10 Hz のマルチパス増幅器に入射し 1 ジュールまで増幅した。ポンプ光となる 10 Hz 増幅された 0.8 μm 光に対して大型回折格子を用いたパルスコンプレッサーにより DC-OPA に最適化したチャープ量と符号を与え、OPA 後のシード光に対しては音響光学素子を用いてチャープ量の制御を行った。DC-OPA は BBO Type-II 結晶を用いた 2 段の増幅器で構成した。ポンプ光エネルギーに対して DC-OPA 出力は線形に増加しており、ポンプ光からの変換効率として 30% を実現した。また 2 段目の DC-OPA に対して 0.7 ジュールのポンプエネルギーを投入することにより、シグナル+アイドラーの全エネルギーとして 230 mJ を取り出すことに成功した。本出力エネルギーはこれまで実現された 1 - 2 μm 帯における広帯域光パルスエネルギーとして世界最大値である。別途実施した実験において、大型プリズム結晶を用いたシグナル光のパルス圧縮を行い、スペクトル帯域から決まるフーリエ限界値のパルス幅を実現することにも成功している。

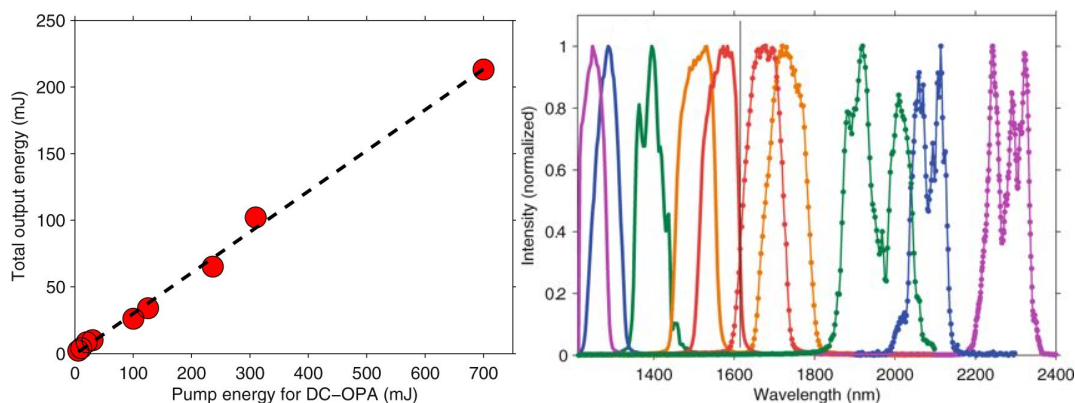


図 2. (左)DC-OPA 出力, (右)DC-OPA の波長チューナビリティ

一方、DFG 発生を行う際には DC-OPA によって得られたシグナル光、アイドラー光の波長可変性が重要となる。DC-OPA における非線形結晶として BBO Type-II 結晶を用いていることから、その角度を変えることで簡単に中心波長を変えることが可能である。図 2 (右)へ DC-OPA の波長チューナビリティを示した。1.1-2.4 μm までの範囲で広い増幅帯域を保ったまま中心波長を自由に変更できることが確かめられている。

(2) チャープポンプ光を用いた THz 発生

開発した DC-OPA レーザーシステムを使用して THz 発生実験を行った。DC-OPA から出力されたチャープシグナル光 (1 - 1.6 μm) 及びシャープアイドラー光 (1.6 - 2.2 μm) を用いた差周波発生により THz 発生をおこなった (図 1 を参照)。差周波発生为非線形媒質として AgS, AgSe 結晶を使用した。AgS は 0.47 - 13 μm , AgSe は 0.71 - 18 μm 域において良好な透過特性を持つ結晶であるが、ダメージ閾値が低いため差周波発生に高エネルギーパルスを使用できないという問題を抱えていた。実験ではチャープ光を用いることで結晶のダメージ問題を回避し、差周波発生において高エネルギーパルスの投入を可能にした。広帯域且つ高効率な差周波発生を実現する為、ポンプとして用いるシグナル及びアイドラー光の分散量だけでなく符号の最適化も行い、波長変換特性のデータを収集した。図 3 に DFG の波長可変性を示す。11 μm 以下が AGS 結晶, 11 μm 以上は AGSe 結晶による DFG に対応している。30 THz (波長 10 μm) において AgS 結晶を用いることで 3% 程度の変換効率が実現されており、出力エネルギーとして 100 マイ

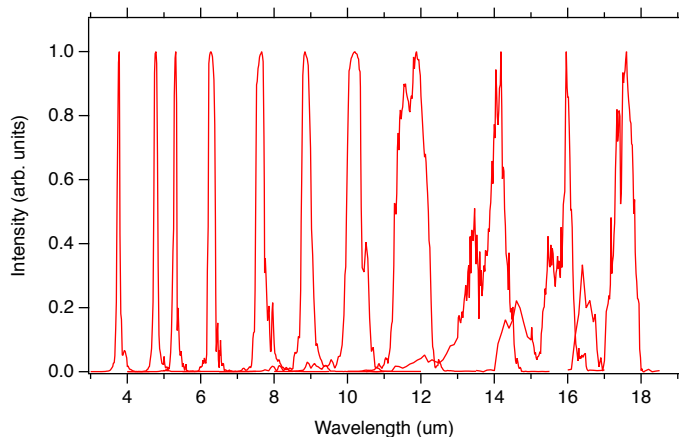


図 3. DFG の波長チューナビリティ

クロジュール が得られた。これら実験的に導いた差周波発生最適レーザー条件から THz パルスの出力スケールパラメーターを求めることが可能となり、ミリジュールパルス発生への指針を得ることに成功した。また、3 - 4 μm 帯において高強度中赤外超短パルスを得る為、MgO 結晶を媒質とした DC-OPA 実験にも並行して取り組み、5 % の変換効率でパルスエネルギー 30 mJ を実現した。

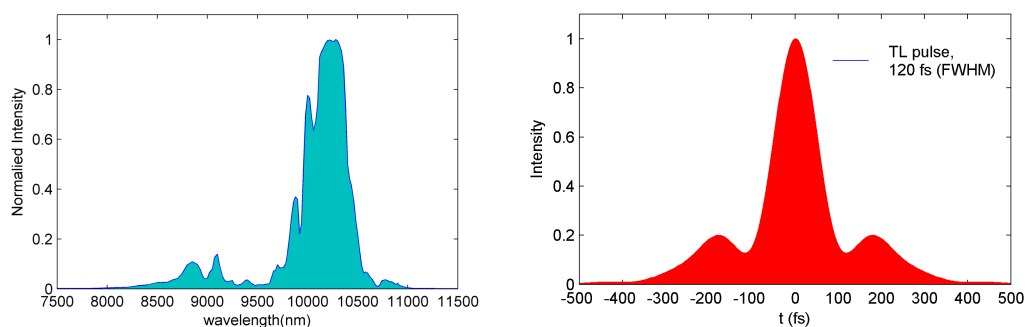


図 4. (左) DFG の典型的スペクトル. (右) スペクトルから計算される FT パルス

図 4 へ 30 THz パルスのスペクトルと、スペクトル幅から計算されるフーリエ限界 (FT) パルスを示した。DFG には 1.5 μm チャープシグナル光, 1.76 μm チャープアイドラー光を使用した。パルス圧縮を行う事により、120 フェムト秒 (約 4 サイクル) の光パルスが 30 THz 域で生成可能であることが示唆されている。変換効率として約 3 % が得られていることから、上述した 230 mJ の光パルスをポンプとして使用する事で数 mJ 級の THz パルス発生が目処が立った。最終年度後半により大口径の AgS 結晶を調達できたことから、実験から得られた出力スケールパラメーターを使用して、ミリジュールクラスの THz 発生に現在取り組んでいる。さらに得られた THz チャープパルスを時間圧縮するための固体媒質の選定も完了した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 8 件)

- ① Yuxi Fu, Bing Xue, Katsumi Midorikawa and Eiji J. Takahashi, 'TW-scale mid-infrared pulses near 3.3 μm directly generated by dual-chirped optical parametric amplification,' Applied Physics Letters, 査読有り, 112, 241105 (2018). DOI: 10.1063/1.5038414
- ② Yuxi Fu, Katsumi Midorikawa and Eiji J. Takahashi, 'Towards a petawatt-class few-cycle infrared laser system via dual-chirped optical parametric amplification,' Scientific Reports, 査読有り, 8: 7692 (2018). DOI: 10.1038/s41598-018-25783-0
- ③ Yuxi Fu, Katsumi Midorikawa and Eiji J. Takahashi, 'Towards a petawatt-class few-cycle infrared laser system via dual-chirped optical parametric amplification,' Scientific Reports, 査読有り, 8: 7692 (2018). DOI: 10.3390/app8122451
- ④ Yuxi Fu, Eiji J. Takahashi and Katsumi Midorikawa, 'Energy scaling of infrared femtosecond pulses by dual-chirped optical parametric amplification,' invited paper, IEEE Photonics Journal, 査読有り, 9, 1503108 (2017), DOI: 10.1109/JPHOT.2017.2704096
- ⑤ V. H. Trinh, T. Morishita, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, "Probing two-electron dynamics of helium in time domain via fluorescence channel," Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 査読有り, 220, pp.133-136, (2017). DOI: 10.1016/j.elspec.2017.03.015
- ⑥ Yuxi Fu, Eiji J. Takahashi and Katsumi Midorikawa, 'Indirect high-bandwidth stabilization of carrier-envelope phase of a high-energy, low-repetition-rate laser,' Optics Express, 査読有り, 24, pp.13276-13287 (2016), DOI: 10.1364/OE.24.013276
- ⑦ M. Hatayama, S. Ichimaru, T. Ohcni, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, and S. Oku, "Wide-range narrowband multilayer mirror for selecting a single-order harmonic in the photon energy range of 40-70 eV," Optics Express, 査読有り, vol. 24, no. 13, pp. 14546-14551, (2016). DOI: 10.1364/OE.24.014546

[学会発表] (計 51 件)

- ① Eiji. J. Takahashi et al., 'Evaluation of efficient laser plasma acceleration driven by a relativistic mid-infrared laser field', in 31st Annual Conference of the IEEE Photonics Society, Reston, USA, 2018
- ② Eiji. J. Takahashi et al., "Efficient laser wakefield acceleration by using mid-

- infrared pulses” in CLEO: 2018, San Jose, USA, 2018
- ③ Eiji J. Takahashi, ‘High power mid-infrared laser by DC-OPA,’ invited talk, The 9th International Symposium on Ultrafast Phenomena and Terahertz Waves, Changsha, China, 2018.
 - ④ Eiji J. Takahashi et al., “Future prospects of dual-chirped optical parametric amplification,” in 6th International Conference on Attosecond Physics (ATTO2017), Xi’an, China, 2017
 - ⑤ Eiji J. Takahashi et al., ‘TW-class infrared femtosecond laser by DC-OPA’, The 24th Congress of the international commission for optics, Tokyo, 2017
 - ⑥ Eiji J. Takahashi et al., ‘High-flux attosecond soft x-ray by a high-energy three-channel waveform synthesizer’, CLEO/EUROPE-EQEC 2017, Munich, Germany, 2017
 - ⑦ Eiji J. Takahashi et al., ‘235-mJ femtosecond infrared pulse by DC-OPA’, CLEO/EUROPE-EQEC 2017, Munich, Germany, 2017

6. 研究組織

(1) 研究分担者

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：付 玉喜

ローマ字氏名：Fu Yuxi

※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。