

## サブ keV 領域のアト秒科学

### Attosecond Science in the sub-keV region

課題番号：19H05628

緑川 克美（MIDORIKAWA Katsumi）

理化学研究所・光量子工学研究センター・センター長



#### 研究の概要（4行以内）

独自に開発した DC-OPA による高エネルギー中赤外パルスをもとに、これとルーズフォーカスによる位相整合を組み合わせることにより、サブ keV 領域においてアト秒高次高調波を高効率で発生する。そして、この光源を用いて X 線過渡吸収分光法により炭素材料等の超高速ダイナミクスを解明する。

研究分野：応用物理、光量子科学

キーワード：量子エレクトロニクス、アト秒科学、超高速光科学、非線形光学

#### 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、化学、生物・医科学等の基礎科学分野のみならず、超高速電子デバイスならびに高性能触媒や人工光合成等の化学・材料等の産業分野においても必須のツールとなるとも期待されている。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、未だに利用できる波長域は、光子エネルギーにして 100eV 以下の極端紫外（XUV）領域に制限されており、今、その波長域の拡大が切望されている。

#### 2. 研究の目的

我々が独自に開発した DC-OPA による高エネルギー中赤外パルスをもとに、これとルーズフォーカスによる位相整合を組み合わせることにより、サブ keV 領域においてアト秒高次高調波を高効率で発生する。そして、この光源を用いて X 線過渡吸収分光法により炭素材料の構造変化をサブフェムト秒の時間分解能で観測し、そのダイナミクスを解明する。さらに、キラル分子や磁性材料の超高速ダイナミクス観測を可能にするために、新たに考案した偏光制御法を用いて、円偏光の高次高調波発生についてもサブ keV にまで拡張する。

#### 3. 研究の方法

(1) 高エネルギー中赤外光のパルス圧縮

これまでに得られた 6.3 サイクル（70fs）の高エネルギー中赤外パルスをもとに、約 2 サイクル（22fs）まで圧縮する。

(2) サブ keV 領域のアト秒高次高調波の発生

中赤外パルスをもとに励起光として希ガスセルに集光し、サブ keV 領域までの軟 X 線高調波の発生を行う。励起波長の長波長化とともに 1 原子あたりの発生効率は、急速に小さくなるが、希ガス自体による吸収がほとんど無視できるので高圧力で位相整合を満たすような高圧ガスセルを開発する。

(3) X 線過渡吸収分光によるサブフェムト秒構造ダイナミクスの観測

フェムト秒レーザー照射された炭素素含む材料の軟 X 線吸収スペクトルの過渡的变化をポンププローブ法により計測し、その構造変化をサブフェムト秒の時間分解能で解明する。

(4) 新しい円偏光高次高調波の発生法の開発

高次高調波の新しい円偏光の発生法を提案し、その有効性を実証するとともに、その利用領域をサブ keV まで拡張する。

#### 4. これまでの成果

これまで得られた成果のなかで、最も重要である水の窓領域の高次高調波の高出力について以下に報告する。

DC-OPA から得られた近赤外パルス(10 Hz, 1.55  $\mu\text{m}$ , 80mJ, 50 fs)を、焦点距離 2 m の平凸レンズを用いて、新たに開発したパルスガスセルへと集光した。このガスセルは二重構造の差動排気系となっていることに加え、パルスバルブを用いて相互作用域への He ガスの供給を励起レーザーと同期させており、真空チャンバー内へのガスの流出量を軽減することが可能である。これによって、これまでの定圧セルにくらべて数倍の高圧動作が可能になり(図1)、He ガスにおいても位相整合条件を満たすことができるようになった。その結果、”水の窓”領域において従来に比べて1000倍以上の高出力を達成した(Commun. Phys. 2020, 図2)。

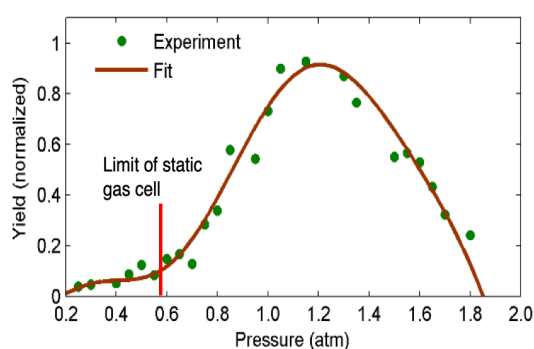


図1 He ガス圧力に対する高調波出力の変化

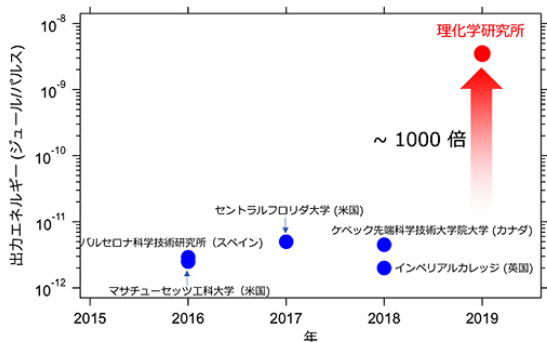


図2 各機関の開発した水の窓領域の高次高調波光源の出力エネルギーと年代の推移

さらに、発生した”水の窓”領域の高次高調波を用いて、X線過渡吸収分光の予備的な実験としてX線吸収端近傍スペクトルの測定を行った。測定試料は、厚さ 0.25  $\mu\text{m}$  の Parylene-C と 1.0  $\mu\text{m}$  の Mylar である。最大光子エネルギーは 360 eV 程度であった。フォトダイオードによる測定から、”水の窓”(284-360 eV)領域全体でのパルスエネルギーは 3.5 nJ であると求められた。図3は、厚さ 0.25  $\mu\text{m}$  の Parylene-C の炭素の K 吸収端近傍の吸光度である。285 eV 付近において、ベンゼン環に起因する明瞭

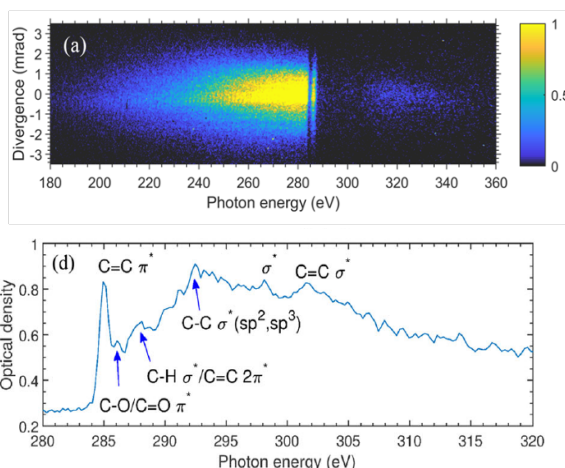


図3 Mylar 透過後の 2 次元高調波スペクトル(上)と Parylene-C の X 線吸収端近傍スペクトル

な吸収ピークを観測することに成功した。今回の測定では、予備実験としての配置のため発生した高調波の約 2% 程度しか使われておらず、98% は分光器のスリットで除去されている。このため測定時間は約 2 分で 120 ショットを要したが、トロイダル鏡等を用いてスリットに集光することにより測定時間の大幅短縮化が見込まれ、単一ショットでの分光スペクトルの計測も可能であると考えている。

## 5. 今後の方針

現在、高調波スペクトルをさらに短波長化するために、DC-OPA の波長域を 2  $\mu\text{m}$  帯にまで拡張している。一方、励起光のパルス圧縮も進めており、これらを組み合わせることにより 500 eV を超す領域までのアト秒高調波発生が可能となる。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

Y. Fu, K. Nishimura, R. Shao, A. Suda, K. Midorikawa, P. Lan, and \*E. J. Takahashi, “High efficiency ultrafast water-window harmonic generation for single-shot soft x-ray spectroscopy,” Commun. Phys. 3, 92-1-10 (2020).

L. Xu, K. Nishimura, A. Suda, K. Midorikawa, Y. Fu, and \*E. J. Takahashi, “Optimization of a multi-TW few-cycle 1.7- $\mu\text{m}$  source based on Type-1 BBO dual-chirped optical parametric amplification,” Opt. Exp. 28, 15138-15147 (2020).

他 5 編

## 7. ホームページ等

<https://rap.riken.jp/labs/eprg/asrt/>