

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K20113

研究課題名(和文) 過渡吸収現象を利用した極端紫外・軟X線領域の高強度アト秒パルスの生成

研究課題名(英文) Atto-second pulse generation in XUV and soft X-ray region using transient absorption of helium

研究代表者

大和田 成起 (Owada, Shigeki)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・XFEL利用研究推進室・主幹研究員

研究者番号：90725962

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：ヘリウム原子の2s2p二重励起準位の吸収スペクトルは、自動電離状態との干渉によりFanoプロファイルと呼ばれる特徴的な構造を示すことが知られている。本研究では、近赤外レーザーパルスの照射によって、ヘリウムの2s2p二重励起準位における吸光度が、非対称なFanoプロファイル形状から対称なガウシアン形状へと過渡的に変化すること観測した。その結果、近赤外レーザーパルスのパラメータによって透過スペクトル形状を制御できることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、物質の透過率を過渡的に変化させ入射パルス光の一部を切り出すことで、パルス幅を短くすることができる可能性を示している。本研究は、特に将来において短波長領域でもミラー共振器型自由電子レーザーが主流になった時の短パルス化に有用であることが期待される。短波長領域では共振器に多層膜ミラーを使用するため発振波長幅が狭くなり、結果としてパルスの時間幅が長くなることが予想される。そこへ本研究による成果を応用することで、ミラー共振器型自由電子レーザーの短パルス化が期待される。

研究成果の概要(英文)：It is known that the absorption spectrum of the 2s2p doubly excited level of a helium atom exhibits a characteristic structure called the Fano profile due to interference with the autoionization state. In this study, we observed that the absorbance at the 2s2p doubly excited level of the helium atom transiently changes from an asymmetric Fano profile shape to a symmetric Gaussian shape by irradiating intense near-infrared laser pulse. As a result, we found that the shape of the transmission spectrum can be controlled by the parameters of the NIR laser pulse.

研究分野：原子・分子・光科学

キーワード：過渡吸収 軟X線自由電子レーザー

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

超高速の現象、例えば、物質の内殻電子に関するオーグメント過程や発光による脱励起などの原子過程はフェムト秒からアト秒領域の時間スケールであり、これらの現象の直接観測が可能となる極端紫外から硬 X 線領域の超短パルス光源として、X 線自由電子レーザー (X-ray free-electron laser; XFEL) や光学レーザーの高次高調波があげられる。高次高調波では以前からアト秒領域のパルス幅が達成されているのに対して、XFEL におけるアト秒パルス達成は研究段階である。一方で、高いピーク輝度を持つ XFEL の登場は、極端紫外から X 線領域の可飽和吸収や和周波発生、2 次高調波発生など、非線形光学研究を可能とした。高強度 XFEL において短パルス化が実現されることで、新しい現象の観測が期待される。例えば軟 X 線領域でしばしば研究対象となっている炭素、窒素、酸素原子の 1s 空孔の寿命幅は 80 meV から 160 meV 程度であり、これは 10 fs 程度の寿命に相当するため、これらの内殻電子の関与する現象を直接観測するためには超短パルスが必須となる。

### 2. 研究の目的

本研究では極端紫外・軟 X 線領域における超短 FEL パルスを達成するために、希ガスの電子状態分布数を光学レーザーによって制御することで過渡的な吸収率の変化を誘起し、FEL パルスの強度が時間的に切り出されることを、理化学研究所 SACLA の FEL パルスを用いて実証する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 近赤外 sub-10 fs パルスの発生

0.3 気圧程度のアルゴン雰囲気下に設置したコア径 500  $\mu\text{m}$ 、長さ 1 m の中空ファイバー中に、中心波長 800 nm の同期レーザーパルスを伝搬させたことで超広帯域パルスを得る。中空ファイバーには両端から張力をかけることで、直線性を確保する。広帯域パルスをチャープミラーで分散補償することで、sub-10 fs のパルス幅を得る。

#### (2) ヘリウム 2s<sub>2p</sub> 準位の時分割スペクトル計測

理化学研究所 SACLA の軟 X 線自由電子レーザー (SXFEL) ビームライン BL1 にて  $h\nu = 60.1$  eV の SXFEL パルスを利用して実験を行う。真空チャンバー内に設置したガスセルに SXFEL に同期したパルスバルブを用いてヘリウムを導入し、SXFEL パルスと(1)で発生させた sub-10 fs パルスを集光照射する。ガスセルの下流には平面結像型斜入射分光器を設置し、透過 SXFEL パルスのスペクトルを測定、得られたスペクトルはビームラインの強度モニターで計測した入射 SXFEL パルスの強度で規格化する。2 つのパルスの到着時間差は、ステッピングモーター制御の光学遅延ステージで 50 fs ステップで変化させる。SXFEL パルスと sub-10 fs パルスの到着時間差にはショットごとに 500 fs (半値全幅) 程度のばらつきが存在するが、SACLA BL1 に整備されているタイミングモニターと呼ばれる到着時間差診断システムにより、約 10 fs の精度で到着時間差の揺らぎを計測する。到着時間差揺らぎの計測結果と光学遅延ステージの位置により、2 つのパルスの最終的な到着時間差を決定する。得られた吸収スペクトルは到着時間差 10 fs 毎にビン分割し、同一ビンのスペクトルを平均化することで、時間分解能 10 fs で吸収スペクトルを得る。

### 4. 研究成果

#### (1) 近赤外 sub-10 fs パルスの発生

アルゴンガスを 0.3 気圧程度充填したガラス管内に石英中空ファイバーを設置し、パルス幅 30 fs (半値全幅)、パルスエネルギー 3 mJ/pulse、中心波長 800 nm のレーザー光を焦点距離 1500 mm のレンズを用いて中空ファイバーへ集光照射した。ファイバー透過後に得られた超広帯域パルスをチャープミラーを用いて分散補償を行った。また、光路上に石英ウェッジ板を設置し、光が透過する石英板の厚みを調整することで、分散補償の最適化を行なった。直接電場構築スペクトル干渉法 (SPIDER) により、パルス幅 8 fs (半値全幅) の短パルス化を達成したことが確認された (図 1)。さらに、レーザー筐体や光学素子のわずかな温度変化による光軸変化を補償し、長時間安定して sub-10 fs パルスを得るための光軸自動調整システムを導入した。まず、近傍界および遠方界の 2 種のプロファイラーで光軸ずれを検出した。続いて、レーザー光路上に組み込んだステッピングモーター駆動により、検出された光軸ずれを補正した。その結果、レーザー光軸の安定性が向上し、1 週間以上の期間にわたって sub-10 fs パルスの発生を安定して継続することに成功した。

#### (2) 平面結像型斜入射分光器による SXFEL 分光環境の構築

非等線間隔回折格子を用いた平面結像型斜入射分光器を用いた SXFEL 分光環境を構築した。本分光器は、SACLA BL1 の KB ミラー集光点 (集光サイズ 5  $\mu\text{m}$  程度) を光源点とするスリットレス分光器である。 $h\nu = 81.5$  eV の SXFEL パルスの 3 倍波 ( $h\nu = 244.5$  eV) を用いたアルゴンの 2p 4s 遷移の吸収スペクトル測定により性能評価を行った。ピクセルサイズ 13.5  $\mu\text{m}$  の裏面照射

型 CCD を用いた場合において、 $E/\sigma$  が 1800 程度となることが確認された。このことにより、これまで SACLA で用いられていた分光器 (XUV235 型、真空光学) に蛍光スクリーン付マイクロチャンネルプレートを用いた場合と比較して、1 桁程度の分解能の向上を達成した。

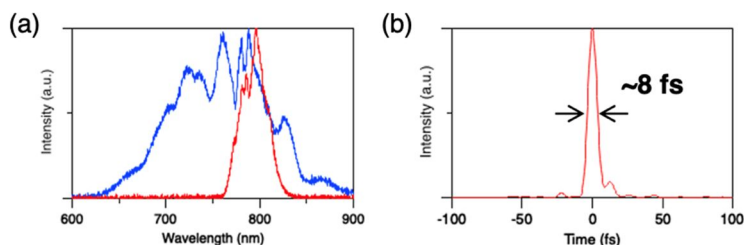


図 1 中空ファイバーを透過した近赤外パルスのスペクトルと時間波形

(a) 赤：近赤外スペクトル、青：広帯域化後の近赤外スペクトル、(b) SPIDER による時間波形

### (3) ヘリウムの過渡吸収スペクトルの測定

ヘリウムの過渡吸収スペクトルの測定は、SACLA 利用研究課題募集に申請・採択後 SACLA BL1 に行った (SACLA 利用研究課題募集が限定的であった 2020 年度を除く)。真空チャンパー内にガスセルに設置したガスセルに、SXFEL に同期したパルスバルブでヘリウムを導入し、バルブ背圧を制御することでガスセル内部の圧力を変化させた。ヘリウム 2s2p 準位の吸収スペクトルは、自動電離準位との干渉により Fano プロファイルと呼ばれる特徴的な構造を示し、ガスセル内部のヘリウム圧力が高くなると、Fano プロファイルにおけるゼロ吸収部分のみが強調されるようになることが知られている。ガスセル内部のヘリウム圧力を直接測定することは困難であるが、本研究では観測された透過スペクトルの形状から、ガスセル内部のカラム密度が最大で  $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$  以上に達していると思積もった。続いて、カラム密度が、それぞれ  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ 、 $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ 、 $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$  程度の場合において、中心波長 800 nm・パルス幅 30 fs の近赤外パルスを、SXFEL パルスとの遅延時間を変えながら照射した。近赤外パルスの集光強度が  $10^{13}$  から  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  の時には吸収スペクトルの明確な変化が確認できなかった一方で、 $10^{15} \text{ W/cm}^2$  程度と極めて高強度な時には吸収スペクトルの変化が明確に確認された。これは、高強度近赤外レーザー照射によるヘリウムの多光子イオン化率の上昇に伴い、自動電離準位との干渉が消失したこと示していると考えられる。図 2 に各カラム密度におけるヘリウムガスセルの吸光度の時間変化を示す。図 2(c) に示すように、カラム密度が  $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$  程度の時に高強度近赤外パルス照射により吸光度の大きな変化が見られた。この時、図 2(d) に示すように、入射光のスペクトル幅と比較して、透過光のスペクトル幅が広がっていることが確認できた。このことはパルスの時間幅が短くなった可能性を示唆しているが、スペクトル幅だけでは時間幅に関する議論が不十分であるため、今後シミュレーションなどを含め時間波形を得るための検討を進める。なお、SACLA 同期レーザーシステムの不具合により、図 2 のデータは、パルス幅 30 fs の圧縮されていない近赤外パルスを用いて測定された。今後、sub-10 fs パルスを用いることで SXFEL パルス透過窓の時間幅をより短くできる可能性があることから、sub-10 fs パルスを用いた実験についても検討を進める。

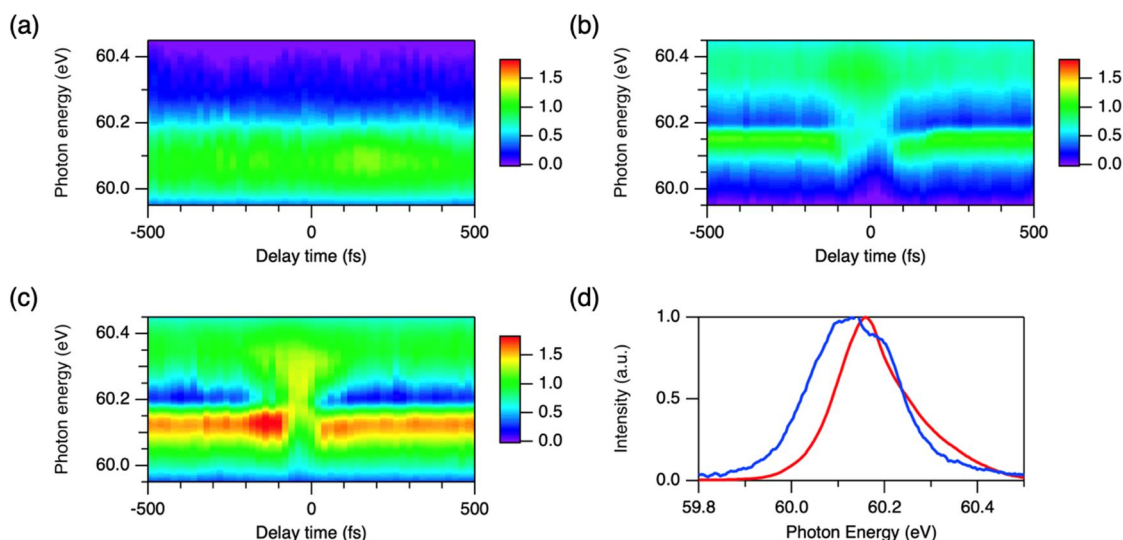


図 2 He ガスセルの吸光度とガスセル前後の SXFEL スペクトル

(a)~(c)：カラム密度がそれぞれ  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ 、 $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ 、 $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$  の時の吸光度の時間変化、(d)：ガスセル入射 SXFEL (赤線) とガスセル透過 SXFEL (青線) のスペクトル幅の比較

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Shigeki Owada
2. 発表標題 Recent developments of experimental platforms to observe the ultrafast phenomena at SACLA
3. 学会等名 International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 2022（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------