

令和 6 年 5 月 27 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01850

研究課題名（和文）単一ショット軟 X 線アト秒分光計測の実現

研究課題名（英文）Demonstration of single-shot soft x-ray attosecond spectroscopy

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・チームリーダー

研究者番号：80360577

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,300,000 円

研究成果の概要（和文）：単一ショット軟 X 線アト秒分光計測の実現を目指し、励起レーザーとなる数サイクルレーザーシステムの開発、及びコヒーレント軟 X 線発生研究を行った。開発したレーザーシステムはテラワット級の出力と、10 fs 以下のパルス幅を持ち、ピーク出力及びエネルギーにおいて世界最高性能を達成した。開発した中赤外レーザーを使用してアルゴンガス媒質からの軟 X 線高調波発生実験を行い、スペクトルの CEP (carrier-envelope phase) 依存性を計測すると共に、ハーフサイクルカットオフと呼ばれるスペクトル構造の確認を行った。さらに、ネオンガスを媒質として高出力軟 X 線高調波を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究から得られた成果より、シングルショットでの超高速軟 X 線分光計測の実現に目処がたった。結果、従来の放射光軟 X 線分光で取り扱う事が難しかった、フェムト秒以下の動的ダイナミクス、非可逆的な現象、ショット数が制限される測定を実施する事が可能となる。特に軟 X 線プローブ光の時間分解能がフェムト秒域にまで向上した事により、物質の化学結合状態、電子構造、バンド構造、磁気構造等の情報を高い時間分解能で理解することが可能になることから、関連する分野に大きな波及効果をもたらすと期待できる。

研究成果の概要（英文）：We aimed to achieve single-shot soft x-ray attosecond spectroscopy by developing a few-cycle laser system and conducting research on coherent soft x-ray generation. The developed laser system achieved world-leading performance with an output of 100 mJ, peak power of 10 TW, and pulse duration of 10 fs. Using this mid-infrared laser, we performed experiments on soft x-ray high-order harmonic generation, measuring the spectrum's carrier-envelope phase (CEP) dependence and confirming the spectral structure known as the half-cycle cutoff. Furthermore, adopting a loose focusing geometry, we achieved an intense attosecond soft x-ray harmonic.

研究分野：レーザー工学

キーワード：軟X線分光 超短パルスレーザー アト秒光科学 量子エレクトロニクス

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

軟 X 線領域には "水の窓" と呼ばれる炭素, 酸素, 窒素といった有機材料や生体分子を構成する重要元素の K 吸収端とともに, 磁性材料や触媒等に用いられる元素の L 吸収端が存在する. 元素の吸収端を利用した軟 X 線分光は元素選択性が高いため, 物質を構成する特定元素の化学結合等の電子状態とその変化を直接観測する手法につながることから, これまでも放射光を用いて様々な材料や分子の構造解析が行われている. 一方で放射光を用いた軟 X 線分光の時間分解能はサブナノ秒程度が限界であり, パルスエネルギーも低いことから CW 的に光源を使用した分光計測が行われている. つまり放射光軟 X 線分光は, フェムト秒以下の動的ダイナミクス, 不可逆的な現象, ショット数が制限される測定等に適応することは困難であり, それを可能とする高輝度な軟 X 線・超短パルス光源が求められてきた.

2. 研究の目的

レーザーベースの光源である高次高調波はフェムト秒からアト秒のパルス幅を持つことから, 軟 X 線分光に高い時間分解能を付加することが可能となり, 光源のコンパクト性も相まって, 新しい超高速軟 X 線分光光源として注目を集めてきた. しかしながら, 軟 X 線アト秒高調波のパルスエネルギーはサブピコジュール程度と非常に低く, 水の窓域を含む軟 X 線域において期待される様々な計測に資するに十分な出力は未だに実現されていない. 結果, 高調波の波長利用はアト秒パルス発生が確認されてから 20 年経った今現在でもそのほとんどが 100-200 eV 程度に留まっている.

本課題では申請者がこれまでの研究活動で開発してきた, 中赤外レーザーを用いた高調波短波長化技術, 長波長レーザー増幅技術, 光シンセサイザー技術の三つの光技術を融合することで, 軟 X 線域において単一ショット分光イメージングが可能な出力を持つ励起レーザーも含めたアト秒高調波発生法を確立することを目的とした. 単一ショットでのアト秒分光計測が可能になれば測定時間の短縮だけでなく, サブピコ秒の高速現象の観測, 再現性の乏しい物理過程の測定, 破壊を伴うような不可逆的な測定対象, 数 10 分に一度しか実施できない強磁場印可の物性実験, 生体分子のような動きがある測定対象にまで軟 X 線分光測定を広げることができ, 軟 X 線科学だけでなくアト秒科学の新たな展開が可能となる.

3. 研究の方法

上記目的の研究を達成するために, 申請者の独自光源技術により下記二つの課題を解決する.

- (1) マルチテラワット出力を持った数サイクル光電場の発生 (励起レーザーの開発)
- (2) 出力がナノジュールを超える軟 X 線高調波発生 (ロバストな高調波発生法の実現)

水の窓域全体を連続スペクトルでカバーでき且つナノジュールの出力を持つアト秒パルスを得るためには, 出力 100 mJ でキャリアエンベロープ位相(CEP)が安定化されたシングルサイクル中赤外レーザーが必要となる. しかしながら一般的な OPA 法を使用してこのような超広帯域且つ高出力なレーザーシステムを実現することは不可能である. 申請者は, DC-OPA (Dual-Chirped Optical Parametric Amplification) と呼ばれる非線形結晶のサイズに制限されない OPA の高出化法を開発している. 本課題では申請者の独自手法である DC-OPA を更に発展させた手法を開発し, シングルサイクルのマルチ TW 中赤外レーザーを開発し, オクターブを超える連続スペクトルを持つ単一アト秒パルス発生の励起レーザーを実現した.

一方で軟 X 線アト秒高調波を実現しそれを利用実験に供するには, 高効率且つ工学的にもロバストな発生方法を実現する必要がある. 従来のようなタイトフォーカスを用いた高調波発生法と異なり, 中赤外レーザーを高出力化することで申請者が考案したルーズフォーカス法が適用可能となる. ルーズフォーカス法により数気圧が必要とされる高調波発生媒質ガス圧を 100 Torr 以下にまで低減することができ, 結果チャンバー内真空度を長時間保てるようになり利用実験においもロバストな高調波発生系を実現することができる. また中性ガスによる位相整合効果により 2 桁程度の効率の改善が可能となると共に, 低発散角の軟 X 線ビームを得ることができる.

4. 研究成果

- (1) TW 級シングルサイクルレーザーの開発

2011 年に申請者が考案した二重光チャープ光パラメトリック増幅法 (Dual-Chirped Optical Parametric Amplification: DC-OPA) は, OPCPA 法を基にした中赤外パルスの増幅法であり, 100 mJ を超える数サイクルレーザー開発において重要なレーザー増幅技術となっている. OPCPA と

異なり DC-OPA ではチャープしたブロードバンドのピコ秒レーザーをポンプ光として使用する。DC-OPA は出力カスケード特性に優れ、マルチ TW のピークパワーを持つ数サイクルレーザーを実現することができるが、非線形結晶の位相整合によって決定される増幅帯域の制限からシングルサイクルレーザーの増幅には使用できなかった。そこで、DC-OPA を基本原理とし、その増幅帯域を大幅に拡張できる手法を開発した。Advanced DC-OPA と呼称される本手法

は、DC-OPA に二種類の非線形結晶を組み合わせたユニークな構成をとっている (図 1)。それぞれの非線形結晶 (NC1: BiB₃O₆, NC2: MgO:LiNbO₃) が担当する増幅波長域を分けることで、一つの非線形結晶ではカバーできない増幅域を互いに補いオクターブを大きく超える増幅域を可能にしている。この新手法は DC-OPA が持つレーザー出力カスケード特性を損なうことなく、その増幅帯域を超広帯域化できるという画期的な特徴を有している。

図 2 へ開発したレーザーシステムのレイアウトを示す。DC-OPA 法の励起レーザーには、ジュールクラスの出カエネルギーを持つチタンサファイアレーザーを使用し、1 台のレーザーから微弱シード光と DC-OPA の為のポンプ光を作り出している。DC-OPA 法においてシード光とポンプ光間の分散量 (チャープ量) と符号の関係が、増幅効率および増幅帯域を決定する重要なパラ

メーターとなる。そこで、シード光には音響光学素子を用いて、ポンプ光にはチャープ調整機を用いて個別に分散を与えている。付加された分散によりパルス幅が伸ばされたチャープシード光は MgO:LiNbO₃ 結晶による予備増幅段、及び BiB₃O₆ と MgO:LiNbO₃ 結晶により構成された 3 段の DC-OPA を通じてチャープポンプ光により増幅され、増幅後の光パルスはパルス圧縮器によりシングルサイクルに圧縮される。

各増幅段の増幅スペクトルを図 3 に示す。シード光は 1.4–3.0 μm の帯域を持ち、そのスペクトル帯域を保ったまま 3 段の DC-OPA により増幅される。DC-OPA 増幅 3 の後のパルスエネルギーは 53 mJ であり、図 3 のスペクトル構造からその中心波長は 2.4 μm と評価される。

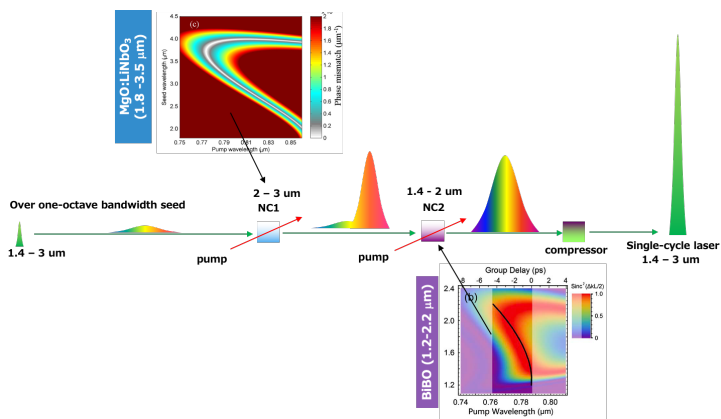


図 1. Advanced DC-OPA の概念図

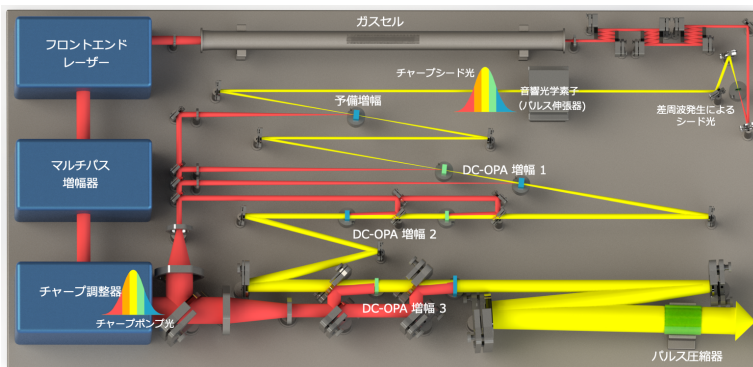


図 2. TW 級シングルサイクルレーザーシステム

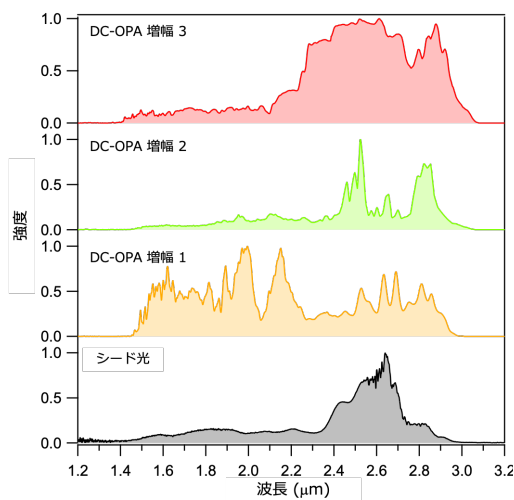


図 3. 各 DC-OPA 増幅段の出力スペクトル

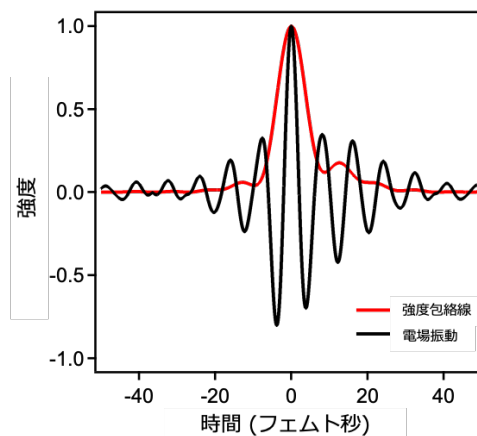


図 4. DC-OPA 増幅光のパルス圧縮結果

DC-OPA 法で増幅された光パルスは、サファイアを用いたパルス圧縮機により音響光学素子で与えた分散量を補償され、時間圧縮される。図 4 は中心波長 $2.4 \mu\text{m}$ 光のパルス圧縮の結果を示しており、 8.6 fs のパルス幅が達成されている。レーザー光の中心波長が $2.4 \mu\text{m}$ であることから、そのパルス幅の中には 1 回の光サイクルしか含まれていないと評価できる。この結果、中心波長 $2.4 \mu\text{m}$ の中赤外レーザーにおいて出力エネルギー 53 mJ 、ピークパワー 6 TW のシングルサイクルレーザーが発生していることが明確に確認された。これらの値はシングルサイクルレーザーとして世界最高の出力スペックとなる。

(2) マルチ TW シングルサイクルレーザーを用いた高次高調波発生

TW 級シングルサイクルレーザーを 放物面鏡 ($f=516 \text{ mm}$) を用いてアルゴンガスに集光し高次高調波発生実験を行った。集光強度は $1.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、ガス圧は 0.13 atm とした際に得られた高次高調波の CEP 依存性を図 5 に示す。光子エネルギー $80 - 160 \text{ eV}$ の帯域において高調波スペクトルが CEP 値に応じて変動しており、スペクトル全体の約 50% が連続領域となっていることがわかる (図 6)。スペクトルから計算されるフーリエ限界パルス幅は 50 as であり、中心光子エネルギーが約 110 eV であることから、分散補償を適切に行えば 1.5 サイクルの単一アト秒パルスの発生が可能であることが示唆されている。

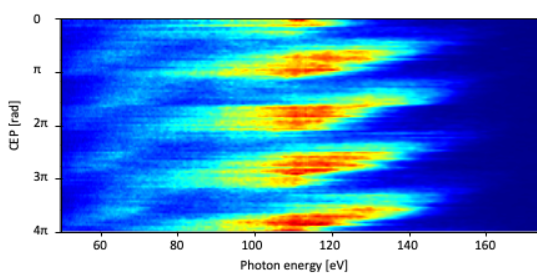


図 5. 高次高調波の CEP 依存性

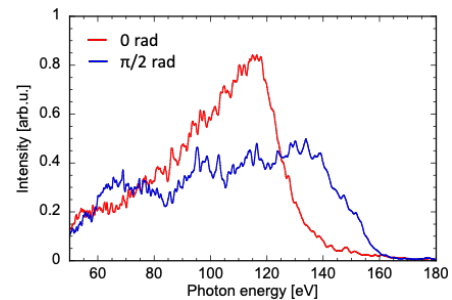


図 6. 高調波スペクトル

(3) ルーズフォーカス法による軟 X 線高調波発生

図 7 に構築した高次高調波ビームラインの概略図を示す。DC-OPA レーザーシステムから出力された中赤外光パルスを、ルーズフォーカス法に従い緩やかに高調波発生媒質に集光している。高圧ガスセル内に媒質ガスを充填し、中赤外励起レーザーの強度を調整することで、光子エネルギーの異なる高次高調波のスペクトルを得ることができる。ルーズフォーカス法により位相整合の最適化ガス圧を 1 桁程度低減でき、結果、ネオンガスでは約 200 Torr 、ヘリウムガスでは約 1 気圧の媒質ガスで位相整合条件の最適化が可能となった。

図 8 に Ne 媒質および He 媒質から発生した高調波出力と励起レーザーからの変換効率を示した。Ne ガスでは 250 eV において 0.32 nJ/pulse 、 $140 - 300 \text{ eV}$ の合計出力エネルギーとして 10 nJ/pulse が得られている。また He 媒質では 310 eV において 0.22 nJ/pulse 、 $283 - 380 \text{ eV}$ の合計エネルギーとして 3.5 nJ/pulse の出力が達成されている。

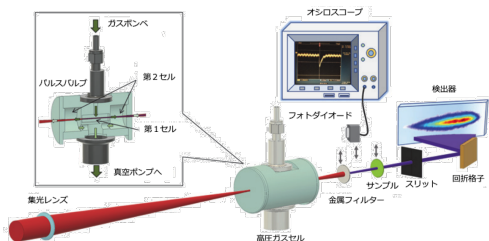


図 7. 高次高調波発生ビームライン

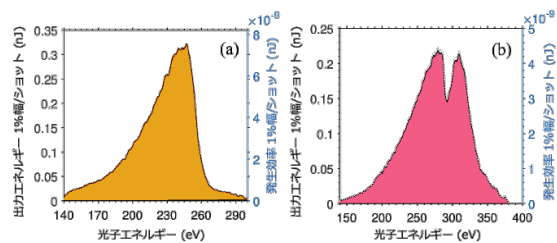


図 8. (a) Ne (b) He 媒質からの高調波出力エネルギーと励起レーザーからの変換効率

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Xue Bing, Midorikawa Katsumi, Takahashi Eiji J.	4. 巻 9
2. 論文標題 Gigawatt-class, tabletop, isolated-attosecond-pulse light source	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optica	6. 最初と最後の頁 360 ~ 360
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/Optica.449979	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nishimura Kotaro, Fu Yuxi, Suda Akira, Midorikawa Katsumi, Takahashi Eiji J.	4. 巻 92
2. 論文標題 Apparatus for generation of nanojoule-class water-window high-order harmonics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 063001 ~ 063001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0045342	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Xue Bing, Tamaru Yuuki, Fu Yuxi, Yuan Hua, Lan Pengfei, Mueck Oliver D., Suda Akira, Midorikawa Katsumi, Takahashi Eiji J.	4. 巻 2021
2. 論文標題 A Custom-Tailored Multi-TW Optical Electric Field for Gigawatt Soft-X-Ray Isolated Attosecond Pulses	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Ultrafast Science	6. 最初と最後の頁 1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.34133/2021/9828026	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Xu Lu, Takahashi Eiji J.	4. 巻 18
2. 論文標題 Dual-chirped optical parametric amplification of high-energy single-cycle laser pulses	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Photonics	6. 最初と最後の頁 99 ~ 106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41566-023-01331-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tran G. N., Midorikawa Katsumi, Takahashi Eiji J.	4. 巻 41
2. 論文標題 Quantitative diffraction imaging using attosecond pulses	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of the Optical Society of America B	6. 最初と最後の頁 B14 ~ B14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/josab.512362	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計20件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 13件)

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Novel laser sources for driving an intense attosecond pulse
3. 学会等名 CIOP 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Intense single-cycle pulses via sequential waveform synthesis
3. 学会等名 ISUILS 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 High efficiency ultrafast soft x-ray harmonic generation which is a complementary partner to Free Electron Lasers
3. 学会等名 HILAS 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Lu Xu, Bing Xue, Katsumi Midorikawa, and Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 102 mJ a few-cycle IR laser system based on BiBO dual-chirped optical parametric amplification
3. 学会等名 HILAS 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Bing Xue, Katsumi Midorikawa, Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Realization of compact GW-scale soft x-ray isolated attosecond pulses
3. 学会等名 HILAS 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Lu Xu, Bing Xue, Katsumi Midorikawa, and Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 A CEP stable, sub-two-cycle, over 100 mJ IR DC-OPA: Towards a sub-microjoule water window isolated attosecond pulse
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Novel ultrafast laser technologies for generating GW isolated attosecond pulses
3. 学会等名 UltrafastX (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西村 光太郎, Xue Bing, 須田 亮, 緑川 克美, 高橋 栄治
2. 発表標題 長波長基本波による円偏光高次高調波の短波長化
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第42回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Bing Xue, Katsumi Midorikawa, Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 GW scale isolated attosecond pulse characterization by streaking method under low-repetition rate
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第42回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋栄治
2. 発表標題 高出力軟 X 線アト秒高高調波光源の現状と展開
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Bing Xue, Kastumi Midorikawa, and Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 1.1-GW 213-as soft-x ray isolated attosecond pulse created by a fully stabilized 50-mJ three-channel optical waveform synthesizer
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Lu Xu, Katsumi Midorikawa, Nobuhisa Ishii, Jiro Itatani, and Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 52 mJ CEP-stable sub-2-cycle 1.7 μm laser based on DC-OPA
3. 学会等名 IEEE Photonics Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西村 光太郎, Xue Bing, 須田 亮, 緑川 克美, 高橋 栄治
2. 発表標題 コヒーレント軟X線円偏光高次高調波光源の開発
3. 学会等名 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋栄治
2. 発表標題 高強度アト秒パルス発生用光シンセサイザーの開発
3. 学会等名 第41回レーザー学会学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Generation of 60-mJ, 1-cycle pulses
3. 学会等名 7th International Symposium on Intense Field, Short Wavelength Atomic and Molecular Processes (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 アト秒科学のためのマルチTW シングルサイクルレーザー光源
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第44回年次大 (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Amplification of high-energy single-cycle pulses
3. 学会等名 The Optica High-Brightness Sources and Light-Driven Interactions Congress (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Novel Amplification Method for a Single-Cycle Laser Pulse
3. 学会等名 4th International Conference on Optics, Photonics, and Lasers (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Novel Ultrafast Laser Technology for Generating Gigawatt-Class Isolated Attosecond Pulses
3. 学会等名 CLEO/Europe-EQEC 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 Amplification of a single-cycle pulse
3. 学会等名 The 2nd International Conference on UltrafastX and the 3rd Youth Forum on Ultrafast Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023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