

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2011～2015

課題番号：23226003

研究課題名(和文) 1 keV 領域での高次高調波発生とアト秒軟 X 線分光への展開

研究課題名(英文) High harmonic generation towards 1-keV photon energies and their applications to attosecond soft-X-ray spectroscopy

研究代表者

板谷 治郎 (Itatani, Jiro)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：50321724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 119,800,000 円

研究成果の概要(和文)：BIBO結晶を用いた光パラメトリックチャープパルス増幅法に基づく高強度極短パルス赤外光源を開発した。得られた出力は、繰り返し1kHz、パルスエネルギー1.5mJ、パルス幅11fs、キャリアエンベロープ位相(CE位相)安定というものであり、世界的にも先端的な光源を実現した。本光源を用いた高次高調波発生実験では、高調波の最大光子エネルギーは325eVに到達した。CE位相敏感な軟X線スペクトルの振る舞いから、250～325eVにおいて孤立アト秒パルスが発生していることが示された。炭素系物質の吸収スペクトル測定にも成功し、アト秒軟X線吸収分光が可能であることが実験的に示された。

研究成果の概要(英文)：We have developed a novel BIBO-based optical parametric chirped pulse amplifier (OPCPA) system for producing intense ultrashort infrared pulses. We obtained record-breaking 1.5-mJ, 11-fs pulses at 1600 nm at a repetition rate of 1 kHz, which was best suited for the generation of attosecond soft-X-ray pulses. We observed a carrier-envelope phase-dependent behavior in the spectra of soft-X-ray harmonics, which supported the generation of single isolated attosecond pulses in 250-325 eV. We also carried out the soft-X-ray absorption spectroscopy of carbon material at the carbon K edge. We successfully identified the peak structures that originated from chemical bonding of carbon atoms. This result is an important step to realize ultrafast soft-X-ray absorption spectroscopy on attosecond time scales.

研究分野：アト秒科学

キーワード：アト秒科学 光源技術 光・量子ビーム 超高速分光 軟X線分光 超精密計測 非線形光学 赤外材料  
・素子

### 1. 研究開始当初の背景

チタンサファイアレーザーに基づく高強度超短パルスレーザー技術の急速な進展によって、2001年に気相原子における高次高調波発生によるアト秒光パルスの発生が実現した。その後約10年が経過し、気相の原子・分子を対象として、極紫外領域のアト秒パルスを用いたアト秒科学が急速に進展した。しかしアト秒光パルスの波長域は極紫外(光子エネルギー<200 eV)に止まっており、軟X線領域への短波長化は困難であった。その理由は、高次高調波の最短波長に相当する光子エネルギーはレーザー波長の二乗に比例するのに対して、チタンサファイアレーザーに基づく光源では波長が近赤外(800 nm 近辺)にあるため、高いフォトンフラックスの得られる高次高調波の最大光子エネルギーは100 eV程度に止まっていた。また、チタンサファイアレーザーにおいて位相安定な極短パルス光を得るためには、希ガス充填中空ファイバーを用いた非線形パルス圧縮や、能動的な位相制御など、エネルギースケールアップが困難で複雑なセットアップが必要であった。

その一方で、チタンサファイアレーザーとは全く異なる「光パラメトリック増幅」に基づく高強度レーザーの登場によって、赤外から中赤外における高強度極短パルス光源が可能になりつつあった。しかし、30年近い技術開発の蓄積のあるチタンサファイアレーザーに匹敵する性能をもつ赤外光源を実現するには、パルスエネルギーとパルス幅だけでなく、高い繰り返し・精緻な位相制御・長時間安定性といった要素を限界まで高める必要があった。当時、光パラメトリック増幅光源は原理実証の追求が多く行われており、チタンサファイアレーザーを越える光技術として完成させるための道筋は不透明であった。

そのような状況下で、本事業の採択者のグループでは、当時一般的ではなかったBiB<sub>3</sub>O<sub>6</sub>(BIBO)結晶を用いた光パラメトリック増幅の帯域評価実験が行われて、赤外域において1オクターブを越える利得帯域(波長1100~2200 nm)が可能であることを見いだした。この予備実験に基づく新しい赤外光源の開発と応用を提案し、本研究課題が採択されるに至った。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、BIBO結晶を用いた超広帯域光パラメトリック増幅手法を全面的にとり入れた高強度赤外光源を開発し、それによって既存のチタンサファイアレーザーでは実現不可能な軟X線領域のアト秒パルス発生を実現し、その分光応用を図ることである。特に、アト秒軟X線パルス発生と分光応用のために、光源の仕様としては、(1)サブ2サイクルのパルス幅(パルス幅11 fs以下)、(2)高次高調波発生に十分な0.1TW程度のピーク出力、(3)長時間安定なキャリアエンベロ

ープ位相、(4)高精度の実験を行うために必要な1 kHz以上の高い繰り返し、といった要素をすべて満たすべき目標として設定した。

利用研究としては、軟X線領域の元素吸収端を利用した吸収分光を目標として設定した。当時、軟X線吸収分光を行う上で十分なフォトンフラックスが得られる保証はなかったため、軟X線領域の高次高調波発生に関しては、フォトンフラックスの向上を最重要課題とした。

### 3. 研究の方法

本研究課題ではまず、サブテラワット級の高強度極短パルス赤外光源の開発を行った。高次高調波発生に十分なパルスエネルギーが得られた時点で、高次高調波発生実験と、高強度赤外光電場を利用した新規現象の探索を行った。次の段階として、高強度赤外光源の高出力化を進め、高次高調波発生についての改善を行い、軟X線吸収分光を実際に行うことによって、その実現可能性を評価した。

本研究の後半では、BIBO結晶をもちいた光パラメトリック増幅光源をベースとして、より長波長(中赤外)における高強度光電場の実現と、シンプルな構成でかつ高繰り返し動作可能な光パラメトリック増幅光源の開発を行った。前者は、「水の窓」に到達した高次高調波のさらなる短波長化を目指したものであり、後者は光電子を用いた精密計測を行うことを想定した光源開発である。

### 4. 研究成果

BIBO結晶を用いた光パラメトリックチャープパルス増幅システムの開発はきわめて順調に進み、H24年度にはパルスエネルギー0.5 mJ、パルス幅9.0 fsかつキャリアエンベロープ位相安定な赤外パルス(中心波長1600 nm)を繰り返し1 kHzで得ることが出来た。本光源のキャリアエンベロープ位相の短期安定性は、非線形干渉計を用いて160 mradと評価された。また、本光源を用いて高次高調波発生実験を行い、炭素のK吸収端(284 eV)を越える高調波スペクトルを確認した。また、キャリアエンベロープ位相を変化させることによって、カットオフ近傍の軟X線スペクトルのピーク構造がシフトする現象(ハーフサイクルカットオフ; HCO)を見いだした(図1)。このHCO現象はチタンサファイアレーザーを用いた高次高調波ですでに観測されていたが、赤外サブ2サイクル光源を用いることによって初めて、100 eVを超える広い波長範囲にわたって明瞭に観測された。

また、本光源を用いて、気相原子のトンネルイオン化に伴う光電子スペクトルのキャリアエンベロープ位相依存性の測定を行い、位相敏感な高エネルギー光電子の発生を確認出来た。この現象を利用することによって長時間の位相安定性を評価した結果、45時間にわたって位相揺らぎが250 mrad以下であ

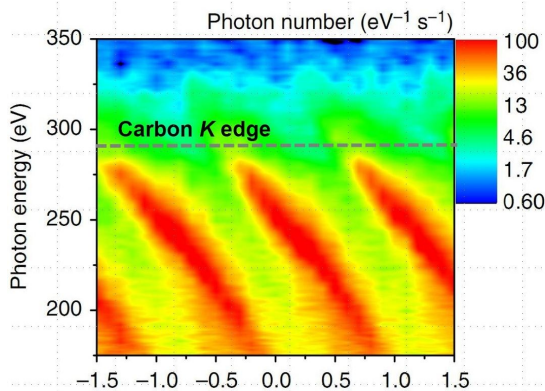


図1：軟X線領域の高次高調波スペクトルのキャリアエンベロープ位相依存性。

ることを示した。この値はサブテラワット級のチタンサファイアレーザーにおけるキャリアエンベロープ位相の揺らぎと同程度であり、プロトタイプ機でこのような値が得られたことは、受動的な位相安定化機構が非常に精度良く実現されていることを示している。

前述した高次高調波発生による軟X線フォトン発生および超閾イオン化による高エネルギー光電子発生に関する実験が一通り完了した段階で、高強度赤外光源の高出力化を行った。これは、高次高調波発生による軟X線スペクトル測定を行った結果、軟X線吸収分光を行うためにはより高いフォトンフラックスが必要という知見が得られたためである。高強度赤外光源の高出力化を着実に進めた結果、H27年度にはパルスエネルギー1.5 mJの出力が実現され、光子エネルギー200~300 eVにおける高調波のフォトンフラックスは、約35倍増大した。この結果、炭素のK吸収端における軟X線吸収分光が実現可能となった。炭素を含む薄膜試料を用いた軟X線吸収分光では、約100秒の測定時間で炭素のK吸収端(284 eV)における吸収端近傍X線吸収微細構造の観測に成功した(図2)。

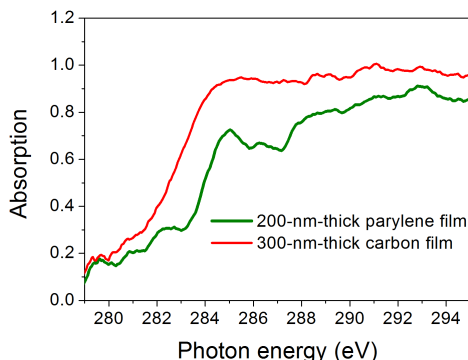


図2：炭素系薄膜物質の軟X線吸収スペクトル。

光源の分光応用としては、軟X線吸収分光と平行して、高強度赤外電場中での光電子の

散乱現象の探索も行った。原子がイオン化する際に、光電子の高エネルギー成分がキャリアエンベロープ位相に依存することは以前から知られていたが、その情報を定量的に評価して、原子の持つ固有の物理量と比較する試みはほとんど行われていなかった。われわれは、希ガス原子の超閾イオン化と光電子の弾性散乱によって生成する光電子の高エネルギー成分に着目し、キャリアエンベロープ位相と散乱時の入射エネルギーを対応させる新手法(キャリアエンベロープ位相マッピング法)を提唱し、測定した光電子スペクトルから希ガス原子の微分散断面積を再構築することに成功した。得られた結果は、現時点におけるもっとも精密な理論による計算結果と定量的によく合致した。この結果から、原子分子のイオン化理論がさらに精密化されたときに、理論と実験の比較を行ううえで重要な実験手法となることが期待出来る。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(雑誌論文)(計 21 件)

K. Kaneshima, N. Ishii, K. Takeuchi, and J. Itatani, Generation of carrier-envelope phase-stable mid-infrared pulses via dual-wavelength optical parametric amplification, *Opt. Express*, 査読有, **24**, 2015, 8660-1-6.

DOI: 10.1364/OE.24.008660

N. Ishii, K. Kaneshima, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, Generation of ultrashort intense optical pulses at 1.6  $\mu\text{m}$  from a bismuth triborate-based optical parametric chirped pulse amplifier with carrier-envelope phase stabilization, *J. Optics*, 査読有, **17**, 2015, 094001-1-8.

DOI: 10.1088/2040-8978/17/9/094001

K. Kaneshima, M. Sugiura, K. Tamura, N. Ishii, and J. Itatani, Ultrabroadband IR chirped mirrors characterized by white-light Michelson interferometer, *Appl. Phys. B*, 査読有, **119**, 2015, 347-353.

DOI: 10.1007/s00340-015-6076-2

H. Geiseler, N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, and J. Itatani, High-energy half-cycle cutoffs in high harmonic and rescattered electron spectra using waveform-controlled few-cycle infrared pulses, *J. Phys. B*, 査読有, **47**, 2014, 20401-1-8.

DOI: 10.1088/0953-4075/47/20/204011

H. Geiseler, N. Ishii, K. Kaneshima,

T. Kanai, and J. Itatani, Long-term passive stabilization of the carrier-envelope phase of an intense infrared few-cycle pulse source, *Appl. Phys. B*, 査読有, **117**, 2014, 941-946.

DOI: 10.1007/s00340-014-5912-0

C. Zhou, T. Seki, T. Kitamura, Y. Kuramoto, T. Sukegawa, N. Ishii, T. Kanai, J. Itatani, Y. Kobayashi, and S. Watanabe, Wavefront analysis of high-efficiency, large-scale, thin transmission gratings, *Opt. Express*, 査読有, **22**, 2014, 5995-6008.

DOI: 10.1364/OE.22.005995

N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses, *Nature Commun.*, 査読有, **5**:3331, 2014, 1-6.

DOI: 10.1038/ncomms4331

N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, Sub-two-cycle, CEP-stable, intense optical pulses at 1.6  $\mu\text{m}$  from a  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  optical parametric chirped-pulse amplifier, *Opt. Lett.*, 査読有, **37**, 2012, 4182-4184.

DOI: 10.1364/OL.37.004182

N. Ishii, S. Adachi, Y. Nomura, A. Kosuge, Y. Kobayashi, T. Kanai, J. Itatani, and S. Watanabe, Generation of soft x-ray and water window harmonics using a few-cycle, phase-locked, optical parametric chirped-pulse amplifier, *Opt. Lett.*, 査読有, **37**, 2012, 97-99.

DOI: 10.1364/OL.37.000097

C. Zhou, T. Seki, T. Sukegawa, T. Kanai, J. Itatani, Y. Kobayashi, and S. Watanabe, Large-Scale, High-Efficiency Transmission Grating for Terawatt-Class Ti:sapphire Lasers at 1 kHz, *Applied Physics Express*, 査読有, **4**, 2011, 072701-1-3.

DOI: 10.1143/APEX.4.072701

N. Ishii, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, Carrier-envelope-phase-preserving, octave-spanning OPA in the infrared based on  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  pumped with 800-nm laser pulses, *Applied Physics Express*, 査読有, **4**, 2011, 022701-1-3.

DOI: 10.1143/APEX.4.022701

Mapping in Laser-Induced Electron Rescattering, *The High-Intensity Lasers and High-Field Phenomena (HILAS)*, 20-22 March 2016, Long Beach(USA).

金島 圭佑, 広帯域光パラメトリック増幅器による二波長同時増幅を利用した位相安定な高強度中赤外光パルスの発生と、その電場波形の測定。応用物理学会春期学術講演会, 19-22 March 2016, 東工大 大岡山キャンパス(東京都目黒区)。

齋藤 成之, 極紫外アト秒パルスの赤外電場によるストリーク計測、応用物理学会春期学術講演会, 19-22 March 2016, 東工大 大岡山キャンパス(東京都目黒区)。

N. Ishii, Sub-Two-Cycle Millijoule Optical Pulses at 1600 nm from a  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  Optical Parametric Chirped-Pulse Amplifier, *CLEO:2015*, 10-15 May 2015, San Jose (USA).

N. Ishii, Development of a Millijoule Few-Cycle IR Light Source and its Application to High-Flux Harmonics in the Water Window, *CLEO/Europe-EQEC 2015*, 21-25 June 2015, Munich (Germany).

J. Itatani, Half-cycle cutoffs in soft-X-ray high harmonics and high-energy above threshold ionization, *The Sino-German Symposium on Attosecond Photonics 2015*, 16-18 Nov 2015, Shanghai (China).

N. Ishii, Isolated Attosecond Continua in the Water Window via High Harmonic Generation using a Few-cycle Infrared Light Source, *CLEO:2014*, 8-13 Jun 2014, San Jose (USA).

H. Geiseler, Probing Atomic Structure with Carrier-Envelope Phase-Stable Few-Cycle Pulses in the Infrared, *Frontiers in Optics 2013*, 19-23 Oct 2014, Tuscon(USA).

N. Ishii, Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window by use of waveform-controlled infrared pulse, *Ultrafast Optics 2013*, 4-8 Mar 2013, Davos (Switzerland).

N. Ishii, CEP-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle, mJ-class infrared optical parametric chirped pulse amplifiers, *Gordon Research Conference on Multiphoton Processes*, June 3-8 2012, South Hadley (USA).

〔学会発表〕(計 82 件)

H. Geiseler, Carrier-Envelope Phase

〔図書〕(計 1 件)

大森 賢治編、化学同人、アト秒科学、2015  
年、全 178 頁( 103 ~ 130 頁を板谷 治郎・  
石井 順久が執筆 )

[ その他 ]

ホームページ等

<http://itatani.issp.u-tokyo.ac.jp/>

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

板谷 治郎 ( ITATANI, Jiro )

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号 : 50321724

### (2)研究分担者

なし

### (3)連携研究者

金井 輝人 ( KANAI, Teruto )

東京大学・物性研究所・技術専門職員

研究者番号 : 10575161

石井 順久 ( ISHII, Nobuhisa )

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号 : 40586898

北野 健太 ( KITANO, Kenta )

東京大学・物性研究所・特任研究員

研究者番号 : 90586900

### (4)研究協力者

ガイゼラ ヨスト・ヘニング ( GEISELER,  
Jost Henning )

金島 圭佑 ( KANESHIMA, Keisuke )

松本 由幸 ( MATSUMOTO, Yoshiyuki )

シュオ テンキョ ( SHAO, Tianjiao )

ガイヤ フロリアン ( GEIER, Florian )

プペイクス ジュスティナス

( PUPEIKIS, Justinas )

齋藤 成之 ( SAITO, Nariyuki )