

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 4 月 17 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ~ 2012

課題番号：23654140

研究課題名（和文） S P r i n g - 8 級の光量をもつレーザー高調波光源の開発

研究課題名（英文） Development of high harmonic beamline with high photon flux comparable to SPring-8

研究代表者

関川 太郎 (SEKIKAWA TARO)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：90282607

研究成果の概要（和文）：

レーザー高調波の単一次数を取り出す時間遅延補償分光器の出力を、シンクロトロン放射光である SPring-8 級に増強し、波長可変ビームラインを開発する研究である。ビームラインの試料上での光量を増強するため、中空ファイバー中での位相整合を利用して高調波発生効率を向上させた。19 次高調波（光子エネルギー 29.6 eV）で、試料上で 1 秒間あたり  $7 \times 10^9$  光子と UVSOR 級の光量を与えた。更に、2 枚使用している回折格子のうち一枚を 0 次光にすると、パルス幅が 200fs 程度になるが光量は 10 倍程度になり、最終目的を達成した。

研究成果の概要（英文）：

This project pursues the photon-flux enhancement of a high harmonic beamline upto the flux of the synchrotron facility SPring-8. The beamline is based on a time-delay compensated monochromator, selecting a single harmonic with the pulse duration preserved. The photon flux was increased by exploiting phase match for high harmonic generation inside a hollow fiber filled with rare gas as nonlinear medium. The photon flux on target was  $7 \times 10^9$  photons/sec at the 19th harmonic (=29.6 eV), comparable to that of UV-SOR. Furthermore, the photon flux was enhanced by 10 times by using one grating at the 0th order reflection, although the pulse duration became 200 fs. Consequently, the high harmonic beamline comparable to SPring-8 was successfully developed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：高次高調波、時間遅延補償分光器、位相整合、SPring-8

## 1. 研究開始当初の背景

フェムト秒レーザーの高次高調波はアト秒パルス発生でよく知られているが、フェムト秒極端紫外・軟X線光源としても有用である。時間分解光電子分光などに応用し、光励起後の分子の乖離や電子状態の変化など、ダイナミクスの研究が可能となる。

しかし、基本波のみならず、高調波はすべての次数が同軸に発生・伝搬して不要な信号をだすため、実際に光源として応用される例

は少ない。回折格子1枚で分光するとパルス幅が伸び、200~300fsにも時間分解能が悪化する。また、よく使用される多層膜鏡では単一次数のみ切り出すことは難しく、他の次数で信号が隠される。そのため、近年、高調波の分光応用が進むにつれ、単一次数を切り出す方法の開発が望まれてきた。

申請者らは高調波を分光用光源として利用するため、パルス幅を伸ばさずに高調波の単一次数をとりだす光学系を開発し、特性評

備を行った (Opt. Express 18, 6071 (2010))。パルス幅は最短47fs で56 ミクロン径まで集光することができた。単一次数を切り出した後の1秒間あたりの光量は試料上で $\sim 10^9$ 光子であり、分子研のUVSOR級の光量を持つことが分かった。ただし、この際、排気ポンプが停止する寸前まで高調波発生用ガスの背圧を高めているため、応用可能な光子数は実質 $\sim 10^8$ であった。

## 2. 研究の目的

応用のためにはさらに光量が多い方が望ましいことは、SPring-8に多くの研究者が集まる現状を見れば明らかである。そこで、本研究では、高次高調波発生における位相整合を利用して高調波の強度を2桁強くすることにより、SPring-8級の光量( $\sim 10^{11}$ 光子/秒)を得ることを目標とする。

また、高調波の空間広がり、光学系を設計する上で必要な情報であるが、ファイバーを用いた場合については研究されていない。さらに、高調波発生では原子双極子位相を考慮する必要があることも、他の波長変換に比べ特徴的な点である。

## 3. 研究の方法

現在のシステムにおいて光量を増やすためには、レーザーのパルスエネルギーを増すか、高次高調波の発生効率を上げるより他に方法はない。時間遅延歩調分光器で用いられる回折格子に損傷を与えないため、レーザーの出力を増やすのは難しい。そのため、本研究では発生効率を向上させる。その方法として、位相整合条件を満たした状況でレーザー光と希ガスを相互作用させ、光量を増加させることを目指す。よって、これまでパルスガスジェットによりガスを真空中に噴出していた部分を、希ガスを満たした中空ファイバーに置き換える。

中空ファイバーを用いた位相整合に関しては、10年以上前に理研の緑川グループとコロラド大のKapteyn-Murnaneグループが報告している。両グループとも、中空ファイバー中の位相整合により2~3桁の光量の増強を報告している。現在の設定で最大 $10^9$ 光子/秒を得ているので、Spring-8級の光量を得ることができると考えた。しかし、彼らのレーザーのパルスエネルギーは、我々が使用しているレーザーより大きいため、位相整合条件が異なると予想される。また、両グループの間でも使用するファイバー長が異なっており、我々が使用するシステムに応じた最適化が必要である。

高調波のビーム広がり、高調波照射により発するCe:YAG結晶の蛍光(中心波長500nm)の空間分布と等価として決定した。高調波はチタンサファイアレーザーを、ガス

ジェット、内径が $300\mu\text{m}$ と $200\mu\text{m}$ の中空ファイバー(長さ1cm)の3種類に集光して発生した。媒質にはKrガスを使用した。時間遅延補償分光器は、2枚の回折格子が0次反射光のみを取り出せる状態(0-0次)と、入射側の回折格子のみを回転させて単一次数高調波を取り出せる状態(1-0次)で観測した。単一次数高調波には19次高調波を選択した。観測点は集光点、集光点から4.2cm、6.5cm、12cmの4地点である。

## 4. 研究成果

### (1) 位相整合による光量の増加

最適な位相整合条件を実験で求めるため、中空ファイバーに充填するガス圧と高調波の光量の関係を測定した。屈折率分散と自由電子によるプラズマ分散はガス圧に依存するため、ガス圧は位相整合条件を制御する重要な因子の一つである。図1に内径が $300\mu\text{m}$ の中空ファイバー長がa) 2cm及びb) 1cmの場合の、21次高調波の光量の圧力依存性を示す。a)の場合、圧力と共に急激に光量が増加するが、圧力が20 Torr付近で最大値をとり、その後、急激に減少する。一方、b)の場合、80 Torrくらいまで光量は圧力と共に増加し、その後飽和する。

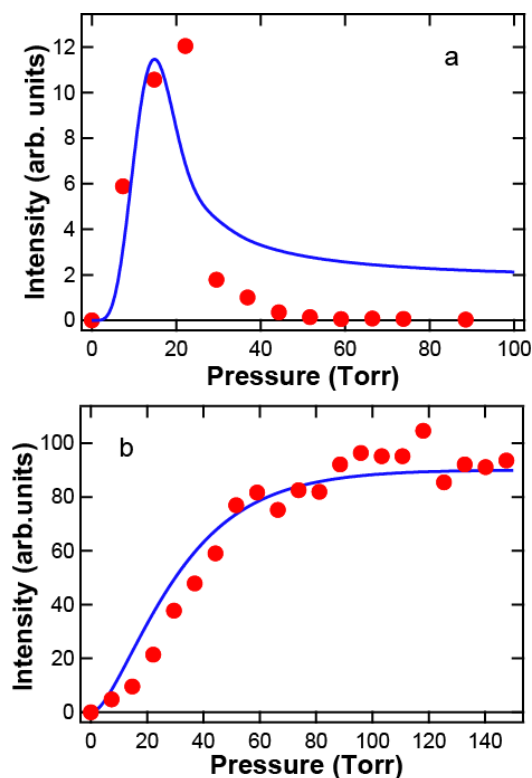


図1: 21次高調波のKrガス圧力依存性  
ファイバー長はa) 2cm及びb) 1cm。  
実線は、実験条件下での位相整合因子。

これらの違いを理解するために、吸収がある場合の位相整合因子

$$J(\Delta k) = \frac{1 + \exp(-\alpha L) - 2 \cos(\Delta k L) \exp(-\alpha L/2)}{(\alpha/2)^2 + (\Delta k)^2}, \quad (1)$$

を実験条件下で計算した。ここで、 $L$  は中空ファイバーの長さ、 $\alpha$  は吸収係数を表す。Kr ガスのレーザー光によるイオン化率を 5, 6, 7% と仮定して計算した結果が図 2 である。イオン化率が 6 および 7% の場合、それぞれ、図 2a および 2b の場合の圧力依存性を再現する。位相不整合量  $\Delta k$  を調べてみると、7% のイオン化のとき、イオン化による屈折率変化がガスの分散を補償して  $\cos(\Delta k L)$  が負になる領域があることが分かった。その結果、圧力増加に対して位相整合因子が必ずしも減少しない。実験結果のファイバー長による圧力依存性の違いは、レーザー光とファイバーの結合損失のため、ファイバー中のレーザー強度が異なるためと考えている。

最終的な 21 次高調波 (32.6 eV) の出力は、 $5.7 \times 10^9$  photons/sec, 19 次高調波 (29.5 eV) において  $7.1 \times 10^9$  photons/sec の光量が試料に集光される。この光量は分子科学研究所の放射光施設 UV-SOR 級である。さらに、回折格子を 1 枚にして回折損失を低減した場合、試料上での光量は SPring-8 に匹敵する。これらの成果を、Optics Express **20**, 3725 (2012) に公表した。

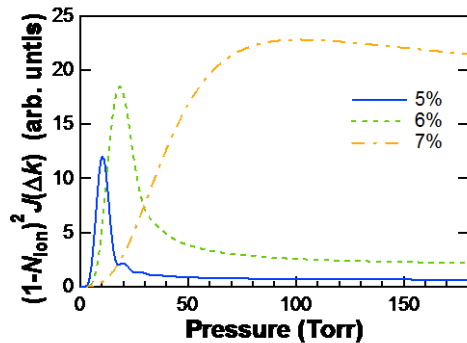


図 2: 位相整合因子の圧力依存性。ガスのイオン化率が 5 (実線)、6 (点線)、7 (一点鎖線) % の場合。

## (2) 高次高調波の空間広がり の測定

図 3a), b) に 19 次高調波を内径 300  $\mu\text{m}$  と 200  $\mu\text{m}$  の中空ファイバーを使った場合のビーム半径の距離依存性を示す。300  $\mu\text{m}$  (図 3a) においては、0.05 cm 以遠での発散角を再現するようなガウス波形とトップハット型の波形の伝搬の計算結果も示す。発散角はどちらでも再現できるが、発生地点では高次の横モードのため回折限界よりビーム径が 6 倍ほど大きくなっていった。一方、200  $\mu\text{m}$  (図 3b) においては、ビーム径およびビーム広がり

は 300  $\mu\text{m}$  の場合より大きいことが分かった。また、ガウス波形とトップハット型の伝搬ではビームの広がり角を説明できないことも分かった (理想的な場合、焦点でのビーム径を拡大すると広がり角は急速に小さくなる)。

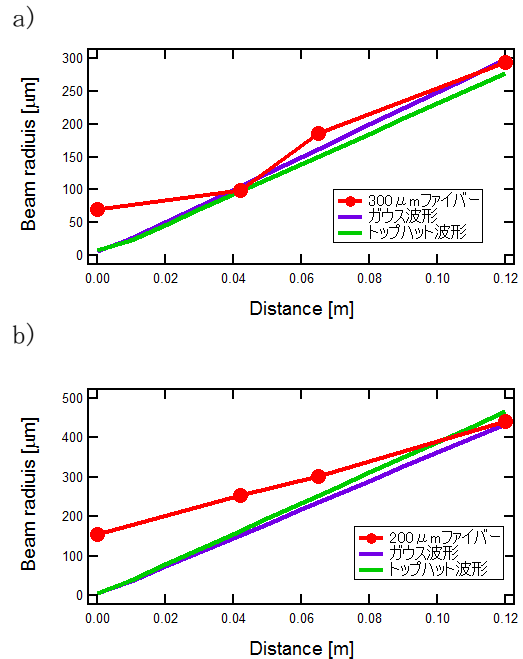


図 3: a) 300  $\mu\text{m}$  ファイバーで発生した 19 次高調波のビーム半径の伝搬長依存性。実線は、ビーム広がり再現するようにしたガウス波形とトップハット波形のビーム半径。b) 200  $\mu\text{m}$  ファイバーで発生した 19 次高調波のビーム半径の伝搬長依存性。実線は、12cm でのビーム半径を再現するようにしたガウス波形とトップハット波形のビーム半径。

この違いを説明するため、位相整合条件の空間依存性を計算した。1) で述べたように、300  $\mu\text{m}$  ファイバーは 100 Torr 付近で最大値をとり、200  $\mu\text{m}$  ファイバーは 10 Torr 付近で最大値をとる。最適値の違いは、ファイバーとの結合効率の違いによる最適位相整合条件の違いから生じている。図 4 にコヒーレント長マップを示す。図 4a, 4b はそれぞれ、300  $\mu\text{m}$  ファイバーと 200  $\mu\text{m}$  ファイバーの場合を示す。レーザーのピーク強度は 300  $\mu\text{m}$  ファイバーについては  $2 \times 10^{14} \text{ W. cm}^{-2}$ 、200  $\mu\text{m}$  ファイバーについては  $1.2 \times 10^{14} \text{ W. cm}^{-2}$  とした。200  $\mu\text{m}$  ファイバーは透過率が低いので高調波発生強度が低下する。図中矢印が各点における高調波の発生する方向を示す。コヒーレント長が長い領域とベクトルの向きが一致したとき、高調波が効率良く発生する。

300  $\mu\text{m}$  の場合、原子双極子位相は短軌道が支配的で進行方向に位相整合が取れる。一方、200  $\mu\text{m}$  場合は、長軌道が支配的となるため拡散する方向に高調波の波数ベクトルが向き、

同時に、位相整合が取れる相互作用長も短いことが分かる。このため、 $200\ \mu\text{m}$ ファイバーからのビーム広がりが大きく光量も弱いと考えられる。高調波発生時のレーザー強度が位相整合条件を通して空間コヒーレンスに影響を与えていることが分かった。

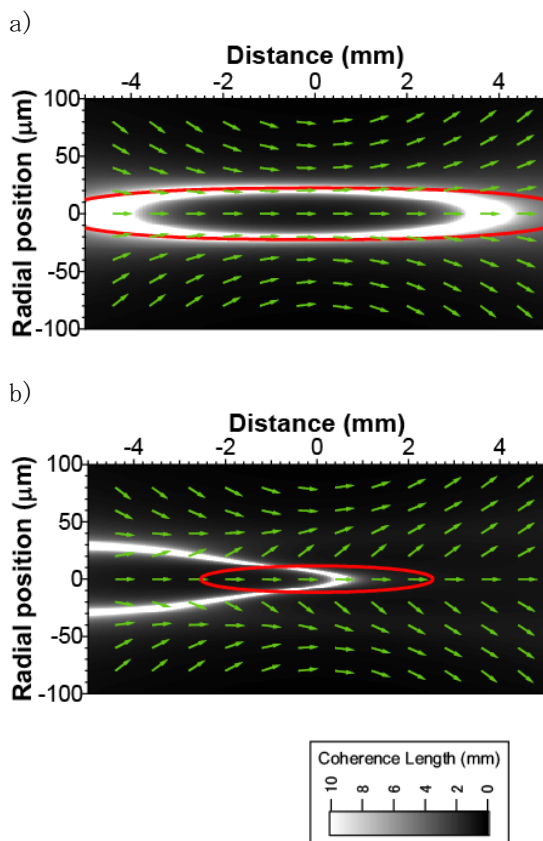


図 4: a)  $300\ \mu\text{m}$  ファイバー中でのレーザー光の焦点付近での位相整合マップと b)  $200\ \mu\text{m}$  ファイバーの場合。赤線の内部で高調波が発生する強度に達している。

## 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 2 件)

(1) T. Sekikawa, O. Schalk, G. Wu, A. E. Boguslavskiy, and A. Stolow, “Initial Processes of Proton Transfer in Salicylideneaniline Studied by Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy”, *Journal of Physical Chemistry A* **117**, 2971–2979 (2013). 査読有  
DOI: 10.1021/jp4016036

(2) H. Igarashi, A. Makida, M. Ito, and T. Sekikawa, “Pulse compression of phase-matched high harmonic pulses from a time-delay

compensated monochromator”, *Optics Express* **20**, 3725–3732 (2012). 査読有  
<http://dx.doi.org/10.1364/OE.20.003725>

[学会発表] (計 22 件)

(1) T. Sekikawa, O. Schalk, G. Wu, A. E. Boguslavskiy, and A. Stolow, “Initial Processes of Proton Transfer in Salicylideneaniline Studied by Time-resolved Photoelectron Spectroscopy”, THU.PIII.80, 18th International Conference on Ultrafast Phenomena, (University of Lausanne, Lausanne (Switzerland), July 12, 2012).

(2) H. Igarashi, A. Makida, M. Ito, and T. Sekikawa, “Pulse Compression of Phase-matched High Harmonic Pulses from a Time-delay Compensated Monochromator”, THU.PIII.3, 18th International Conference on Ultrafast Phenomena, (University of Lausanne, Lausanne (Switzerland), July 12, 2012).

(3) H. Igarashi, A. Makida, M. Ito, and T. Sekikawa, “Enhancement of photon flux of a time-compensated monochromator by phase matching in a hollow fiber”, 5th AWCXR & ISSP International Workshop on Coherent Soft-X-ray Sciences (University of Tokyo, Kashiwa (Japan) June 28, 2012).

(4) Taro Sekikawa, “Development of a single harmonic beam line and its application to time-resolved photoelectron spectroscopy”, 5th AWCXR & ISSP International Workshop on Coherent Soft-X-ray Sciences (University of Tokyo, Kashiwa (Japan) June 28, 2012).

(5) H. Igarashi, A. Makida, M. Ito, and T. Sekikawa, “Pulse compression of phase-matched high harmonic pulses from a time-delay compensated monochromator”, QTu2H.8, Conference on Lasers and Electro-Optics, (San Jose Convention Center, San Jose, May 8, 2012).

(6) H. Igarashi, A. Makida, M. Ito, and T. Sekikawa, “Pulse Compression of Phase-Matched High Harmonic Pulses from a Time-Delay Compensated Monochromator”, AT-O12, 1st Advanced Lasers and Photon Sources, (Pacifico Yokohama, Yokohama, April 26, 2012).

(7) A. Makida, M. Ito, Igarashi, and T. Sekikawa, “Temporal optimization of the time-delay-compensated monochromator”, Poster 41, The 3<sup>rd</sup> International Conference on Attosecond Physics, (Hokkaido University,

Sapporo, July 8, 2011).

(8) H. Igarashi, A. Makida, and T. Sekikawa, “Enhancement of photon flux of a time-compensated monochromator by phase matching in a hollow fiber”, Poster 7, The 3<sup>rd</sup> International Conference on Attosecond Physics, (Hokkaido University, Sapporo, July 8, 2011)

(9) T. Sekikawa, O. Schalk, G. Wu, A. E. Boguslavskiy, and A. Stolow, “Initial process of proton transfer in salicylideneaniline studied by time-resolved photoelectron spectroscopy” Poster 83, The 3<sup>rd</sup> International Conference on Attosecond Physics, (Hokkaido University, Sapporo, July 8, 2011).

(10) T. Sekikawa, O. Schalk, G. Wu, A. E. Boguslavskiy, and A. Stolow, “Initial Process of Proton Transfer in Salicylideneaniline Studied by Time-resolved Photoelectron Spectroscopy”, EG2.4, Conference on lasers and electro-optics-European quantum electronics conference, (The ICM Centre of the New Munich Trade Fair Centre, Munich (Germany) May 23, 2011).

[図書] (計 5 件)

(1) H. Igarashi, A. Makida, and T. Sekikawa, “Enhancement of photon flux of a time-compensated monochromator by phase matching in a hollow fiber”, Page53-56 “Multiphoton Processes and Attosecond Physics”, Springer Proceedings in Physics 125 edited by K. Yamanouchi and K. Midorikawa, Springer (2012). DOI.10.1007/978-3-642-28948-4\_9.

(2) A. Makida, M. Ito, Igarashi, and T. Sekikawa, “Temporal Optimization of the Time-Delay-Compensated Monochromator”, Page57-60 “Multiphoton Processes and Attosecond Physics”, Springer Proceedings in Physics 125 edited by K. Yamanouchi and K. Midorikawa, Springer (2012). DOI 10.1007/978-3-642-28948-4\_10.

(3) T. Sekikawa, O. Schalk, G. Wu, A. E. Boguslavskiy, and A. Stolow, “Initial process of proton transfer in salicylideneaniline studied by time-resolved photoelectron spectroscopy”, Page313-316 “Multiphoton Processes and Attosecond Physics”, Springer Proceedings in Physics 125 edited by K. Yamanouchi and K. Midorikawa, Springer (2012). DOI 10.1007/978-3-642-28948-4\_52.

(4) 関川太郎, 「先端固体レーザー」 社団法人レ

ーザー学会編 オーム社

ISBN978-4-4274-21124-9 (2011) 6.3節 (page189-192) 7.4~7.6節(page 239-262).

(5) M. Ito, Y. Kataoka, and T. Sekikawa, “Spatio-temporal characterization of single-order high harmonic pulses separated by pulse-front-tilt compensator”, Page 24-26, “Ultrafast Phenomena XVII”, Oxford university press (2011)

[その他]

ホームページ等

<http://www.facebook.com/SEKIKAWA.lab>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

関川 太郎 (SEKIKAWA TARO)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：90282607

(2) 研究分担者

該当しない

(3) 連携研究者

該当しない