

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 9 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23760057

研究課題名(和文)二波長合成レーザーパルスを用いた単一アト秒パルスの発生と評価

研究課題名(英文)Generation of isolated attosecond pulses by a two-color laser field synthesis

研究代表者

高橋 栄治(Takahashi, Eiji)

独立行政法人理化学研究所・光量子工学研究領域・専任研究員

研究者番号：80360577

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：近赤外域の二波長合成レーザーパルスを用いることで、簡易に孤立アト秒パルス(isolated attosecond pulse: IAP)を発生できる手法の開発を行い、パルス幅 500 アト秒、パルスエネルギー 1.3 マイクロジュール、瞬間パワー 2.6 ギガワットの出力的な IAP 光源の開発に成功した。本手法は、励起レーザーからの高い変換効率と、優れた出力スケラビリティを兼ね備えている。また開発した光源の高出力性を示すため、IAP 光源による非線形光学研究の実験的デモンストレーションを行った。

研究成果の概要(英文)：We propose and demonstrate a robust generation method of intense isolated attosecond pulses (IAP), which enable us to perform a nonlinear attosecond optics experiment. Our generation scheme is based on the two-color infrared laser field synthesis and the energy-scaling method of HHG. By using our robust generation method, the maximum pulse energy of the IAP reaches as high as 1.3 μJ . The generated pulse with a duration of 500 as, as characterized by a nonlinear autocorrelation measurement, is the shortest and highest-energy pulse ever with the ability to induce nonlinear phenomena. The peak power of our tabletop light source reaches 2.6 GW, which even surpasses that of an extreme-ultraviolet free-electron laser.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：レーザー 高次高調波発生 アト秒パルス

1. 研究開始当初の背景

高強度のフェムト秒レーザーを希ガスに集光する事によって得られる高次高調波は、真空紫外から軟 X 線の波長領域で PHz (10^{15} Hz) を大幅に上回る周波数帯域幅を持つコヒーレント光を発生させる事ができる。その高い時間コヒーレンスをいかして、アト秒 (10^{-18} 秒) の時間幅を持つ光パルスの発生研究が進んでおり、近年では 80 as の時間幅を持つ単一アト秒パルス (isolated attosecond pulse: IAP) が得られるまでになっている。

しかしながら、これまで開発された IAP 光源の出力は、ナノジュール (1 ナノジュールは 10 億分の 1 ジュール、 10^{-9} J) 程度と非常に低かったため、非線形光学研究などの強い光の場を扱う研究にアト秒光源を利用することは難しく、結果、その利用研究のほとんどは一光子過程を用いたポンプ・プローブ実験などに限定されてきた。

2. 研究の目的

IAP の高出力化を困難にしている大きな理由は、その励起レーザーにパルス幅が 5 fs 以下で且つその光波位相 (carrier envelope phase: CEP) が制御されたレーザーシステムを用いる必要がある点にある。そこで本研究では、励起レーザー光源に対する高度な要求を低減させることで、出力スケラビリティに優れた IAP の高出力化法の開発研究を行った。また開発された IAP 光源の高出力性能を示すため、窒素分子を媒質とした非線形自己相関計測を用いてそのパルス幅測定を行った。

3. 研究の方法

本 IAP 高出力化法 (以下、二波長合成レーザー法と呼ぶ) では、近赤外光と 800 nm の波長電場合成を基礎とし、弱い近赤外光により基本波となる 800 nm の電場振幅に変調を加えることで高次高調波発生に参与する光電場のサイクル数を制限して IAP の発生を行った。これまでアルゴンガスを媒質とした二波長合成レーザー法による高調波実験を行い、カットオフ近傍で連続的なスペクトルが得られている。申請課題においては、二波長合成レーザー法をスケールアップし、申請者が過去に提案した長焦点の集光光学系を用いた高調波の高出力化手法と組み合わせることで、マイクロジュールクラスの出力を持つ IAP 発生を目指した。

二波長合成レーザー光の発生には、チタンサファイヤレーザーから発生した 800 nm 光 (30 fs) と光パラメトリック増幅により出力されたシグナル IR 光 (35 fs) を時間・空間で合成する事で発生させた。更にマイクロジュールクラスの出力を実現するために、励起レーザーの集光光学系を約 4 m に長尺化した。波長が異なる二色の光を同一空間に集光する為、異なる集光距離を持つレンズを用いた。高調波発生媒質にはゼノンガスをを用

ており、媒質条件 (ガス圧、相互作用長) は位相整合条件によって決定した。発生した IAP のパルス幅を自己相関計測により評価するため、Si ビームスプリッターで励起レーザーの大部分を除去した後、直径 2 mm のアパーチャーを通過させ、Sc/Si の凹面鏡によって、スキマーから供給される窒素分子 (N_2) に集光した。IAP との相互作用により発生した窒素分子由来のイオン種を飛行時間測定型 (TOF) のイオン分光器により測定した。また自己相関信号を得る際には、2 枚の Si ビームスプリッターで IAP を空間的に二つに分離し、片方のビームスプリッターを前後させることで窒素分子ビームにたどり着く IAP の時刻に遅延を与えた。この遅延時間を関数とし、窒素分子が IAP を 2 光子吸収して引き起こされるイオン化信号の強度を測定し、自己相関波形を得た。

4. 研究成果

図 1 に斜入射分光器で観測された典型的な高調波スペクトルを示す。青点線は 800 nm 光のみを集光して得られた高調波であり、不連続なスペクトル構造を持つ。それに対し二波長合成レーザーでは低次成分において不連続構造を持つもの (赤線)、28 eV から 35 eV の領域において次数間の隙間を埋めるように高調波信号が現れ連続的なスペクトルを得ることができる。Sc/Si 多層膜ミラーで切り出すことができるカットオフ近傍 (~30 eV) の出力エネルギーは 1.3 μ J/pulse であった。励起レーザーからの変換効率 は約 1 万分の 1 で、これまで実現された実験値と比べて 10 倍以上もの効率の改善を達成した。さらに、発生した IAP は、良好な空間分布と 0.5 ミリラジアンという低いビーム発散角を持ち、高品質なビーム特性も兼ね備えている (図 1 挿入図)。ビーム品質はイメージングなどへの応用の際に非常に重要な役割を果たすのであり、今回の発生手法は高い品質の高次高調波ビームを得ることができるという点でも優れていると言える。

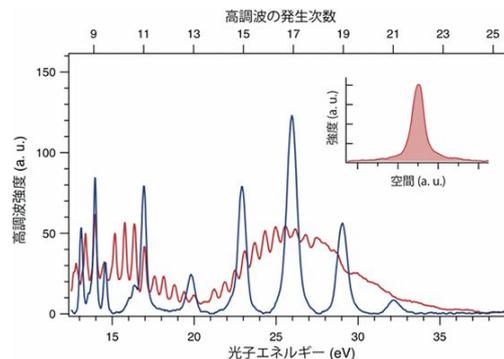


図 1. 観測された高次高調波の分光スペクトル。挿入図は連続スペクトルの空間強度プロファイル

また得られた連続スペクトルの時間構造を、窒素分子の二光子吸収過程を利用した自

己相関計測により評価した。TOF イオン分光器で観測したイオンの中で、質量数 / 電荷が 14 の位置の質量スペクトルを詳しく調べると、中心にあるピークの両脇に 2 つのピークが観測された。これは N^+ イオンが高い運動エネルギーを持って現れた事を意味し、見積られた運動エネルギーの値から N_2^{2+} のクーロン爆発によって生じたものである事が分かった。窒素分子の 2 価イオンを生成するには、使用している高調波が非逐次的に 2 光子吸収される必要があることから、観測された N^+ 原子が非線形相互作用で生成されていると判断できる。次に、観測された N^+ イオンの信号を自己相関信号として用い、アト秒パルスの時間幅計測を行った。空間的に分割した 2 つのアト秒パルスの遅延を走査しながら、質量スペクトルの強度を記録した結果、IAP の生成が自己相関信号として観測された (図 2)。自己相関波形より評価される IAP のパルス波形は 500 as であり、出力エネルギー及びパルス幅からそのピークパワーは 2.6 GW、瞬間輝度は約 10^{30} photons/(mm²mrads) と見積もられた。

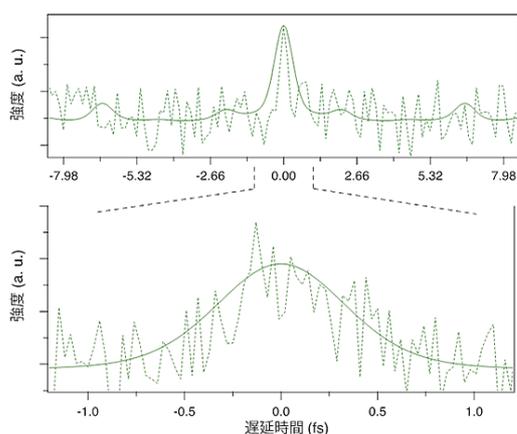


図 2. 2 波長合成レーザーを励起光として発生したアト秒パルスの自己相関波形。点線は実験的に得られた自己相関波形、実線は数値シミュレーションから得られた自己相関波形。

本研究により実現された IAP エネルギーは、従来法と比較して二桁以上高く (図.3)、自己相関法で評価された IAP としては世界最短のパルス幅を持つ。開発された光源は、非線形現象を励起できる世界最短の IAP 光源であると共に、テーブルトップサイズながら加速器ベースの EUV-FEL 光源を凌駕する瞬間パワーを有している。

今回開発した高出力化法は、高い変換効率を保ったままアト秒パルスの出力エネルギーを拡大できるという優れた特徴を持ち、軟 X 線から X 線域において高強度の孤立アト秒レーザーを開発する際の指針を与える成果となる。例えば、現在のレーザー技術と二波長合成レーザー法を組み合わせることで、数

100 アト秒のパルス幅を保ちながら、XUV 域で数 10 GW 出力を持つ光源や、軟 X 線領域で数 100 MW の孤立アト秒パルスの発生が可能になる。

また光源が卓上サイズであることは、大学の研究室や各企業での光源所有を可能とし、短波長光源利用の裾野を広げ、その応用研究を進展させると予想できる。特に従来の IAP 光源では難しかった、強い光と物質の相互作用研究にアト秒パルスを利用できるようになり、アト秒領域の超高速物理現象と非線形光学を組み合わせた未知の研究領域が拓かれるだけでなく、それらを利用して光学の分野に革新的な計測・解析技術や新しい粒子操作技術などがもたらされるものと期待できる。

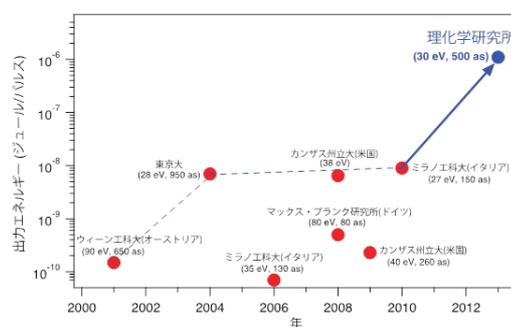


図 3. 各研究機関が開発した孤立アト秒パルス光源の出力エネルギーと年代毎の推移

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 11 件)

Eiji J. Takahashi (他 4 名), Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses, Nat Commun. 査読有, 4, 3691, (2013)

DOI: 10.1038/ncomms3691

Pengfei Lan, Eiji J. Takahashi (他 1 名), Carrier envelope phase dependence of electron localization in the multicycle regime, New Journal of Physics, 査読有, 15, 063023 (2013) DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.86.013418>

Pengfei Lan, Eiji J. Takahashi (他 3 名), Efficient control of electron localization by subcycle waveform synthesis, Physical Review A, 査読有, 86, 013418 (2012)

DOI: 10.1088/1367-2630/15/6/063023

Qingbin Zhang, Eiji J. Takahashi (他 3 名), Dual-chirped optical parametric amplification for

generating few hundred mJ infrared pulses, Opt. Express, 査読有, 19, 7190 (2011)

DOI: 10.1364/OE.19.007190

Pengfei Lan, Eiji J. Takahashi (他3名), Isolated-attosecond-pulse generation with infrared double optical gating, Physical Review A, 査読有, 83, 063839 (2011)

DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.83.063839>

[学会発表](計 22 件)

高橋 栄治, Microjoule isolated attosecond pulses created by high-order harmonic generation, CLEO-PR 2013, 2013/6/30-2013/7/4, Kyoto, Japan

高橋 栄治, Generation of Gigawatt-scale Isolated Attosecond pulses, CLEO/Europe-IQEC 2013, 2013/5/12-2013/5/16, Munich, Germany

高橋 栄治, Energy scaling of isolated attosecond pulses, AISAMP10, 2012/10/23-2012/10/27, Taipei, Taiwan

高橋 栄治, Generation of an isolated attosecond pulse with microjoule-level energy, CLEO 2012, 2012/5/6-2012/5/11, San Jose, USA

高橋 栄治, Generation of microjoule isolated attosecond pulses by infrared two-color laser field synthesis, ICPEAC2011, 2011/7/27, Belfast, Northern Ireland, UK

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 栄治 (TAKAHASHI Eiji)

独立行政法人理化学研究所・光子工学研究領域・専任研究員

研究者番号: 80360577