

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 24 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25286074

研究課題名(和文)ギガワット級単一アト秒パルス光源の開発と軟X線非線形光学実験への応用

研究課題名(英文)Development of GW-scale isolated attosecond pulses and its applications for soft x-ray nonlinear optics

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) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：軟X線領域においてギガワットクラスの出力を持つ単一アト秒パルス光源を実現するため、その励起レーザーとなる3波長・高出力光シンセサイザーの開発を行った。3色の超短パルス光で構成される光シンセサイザー内のキャリアエンベロープ位相、相対位相ジッター、遅延ジッターを高精度で安定化させる事により、軟X線領域において高調波スペクトルの高強度化・強度安定化に成功した。また多波長ゲーティング法を拡張することで、円偏光を組み合わせた二波長ゲーティング法の開発に取り組み、ギガワット級単一アト秒パルス光を生成する新たな手法を実現した。

研究成果の概要(英文)：We aimed at generating of GW-scale isolated attosecond pulses in the soft x-ray region, and developed a high-power 3-channel waveform synthesizer. By precisely stabilizing carrier envelope phases, relative phase jitters and delay jitters in our waveform synthesizer, we succeeded in improving the output stability of isolated attosecond pulses in the soft x-ray region. In addition, we expanded our multi-color gating method for generating isolated attosecond pulses, and proposed a new generation method combining circularly polarized light which called generalized infrared double optical gating (GIRDOG). GIRDOG has an ability to generate GW-scale isolated attosecond pulses.

研究分野：レーザー工学

キーワード：アト秒パルス 高次高調波発生 非線形光学

1. 研究開始当初の背景

非線形光学研究等の高い光強度を必要とする研究に単一アト秒パルス (isolated attosecond pulse: IAP) を応用するには、アト秒パルス自身の高出力化が必要不可欠となる。しかしながら、IAP を発生させる励起レーザーに対して高度な技術力が要求されることから、その高出力化研究はほとんど進んでいない。結果、IAP の出力はナノジュール程度で制限されており、高強度性を必要とする研究に IAP を利用するのは困難な状況が続いていた。これに対して申請者は、2 波長レーザーパルスを用いて IAP 出力をマイクロジュールクラスにまで拡大できる手法(多波長ゲーティング法)の提案、実証に 2012 年に成功した。本手法は、申請者が提案、実証してきた二つのオリジナル手法に基づいており、高い変換効率と優れたパワースケーラビリティを兼ね備えている。多波長ゲーティング法により開発された IAP 光源は、極端紫外域 (30 eV) においてパルス幅 500 as、出力はこれまでの世界記録の 1000 倍以上となるマイクロジュール、そしてピークパワーは極端紫外域 FEL を凌駕するギガワットという高強度性を誇っている。2012 年より稼働を始めた我々の IAP 光源以外で、ギガワット級の出力を持つ光源は世界的には存在しないが、その発生波長域は極端紫外域 (XUV) に留まっている。またショット毎に IAP の出力値が大きく揺らぐという問題を抱えており、出力安定度の改善が大きな課題となっていた。

2. 研究の目的

本研究では、軟 X 線領域 (40 - 100 eV) においてギガワットクラスの出力を持つ IAP 光源を実現し、さらに高強度の IAP を用いて軟 X 線域における非線形相互作用実験を行う事を目指し、IAP 励起レーザーとなる 3 波長・高出力光シンセサイザーの開発を行うことを目的とした。3 色の超短パルス光で構成される光シンセサイザー内のキャリアエンベロープ位相 (CEP: Carrier Envelope Phase)、相対位相ジッター、遅延ジッターを高精度で安定化させる事により、IAP の出力性の向上を目指した。また多波長ゲーティング法を拡張し、円偏光を組み合わせた二波長ゲーティング法の開発に取り組み、ギガワット級 IAP 光を生成する新たな手法の開発を行う。

3. 研究の方法

申請者が 2012 年に提案した IAP の出力スケール法に基づき、800nm 光: E_p 、OPA から出力されるシグナル光 (1350 nm: E_s)、及びアイドラー光 (1950 nm: E_i) を用いて 3 波長光シンセサイザーの開発を行った。単純化した式においてシンセサイザーの電場形状 E_{3c} は以下の様に与えられる、 $E_{3c} = E_p \cos(\omega_p t + \phi_{CEP}) + E_s \cos(\omega_s (t + \delta t_1) + \phi_{CEP}) + E_i \cos(\omega_i (t + \delta t_2) + \phi_{error})$ 。電場形状を固定する為には、CEP 値、各パルス間の遅延ジッター値、相対位

相ジッター値を精密に安定化させる必要がある。CEP 値の安定化の為に、低繰り返しレーザーにおいて CEP 値を制御する新たな手法の開発を行った。また遅延ジッター、位相ジッターの安定化において各種レーザー同期系の開発を行い、高精度な制御を実現した。さらに開発した高出力光シンセサイザーを用いて軟 X 線域における高調波発生実験を行い、発生する連続スペクトルの強度安定性を確認した。円偏光を組み合わせた二波長ゲーティング法の開発においては、最初のデモンストレーションとして極端紫外域における連続スペクトルの発生実験を行った。また多層膜ミラー技術を利用することで、アト秒パルスの利用実験に必要な軟 X 線光学素子の開発を行った。

4. 研究成果

(1) 高出力光シンセサイザーの開発

本研究で開発したレーザーシステム (図. 1) は CEP 制御された 100 mJ 級のチタンサファイヤレーザー (800 nm) と、その一部を励起光として OPA から生成したシグナル光 (1350 nm) 及びアイドラー光 (1950 nm) の 3 色の光パルスから構成される。

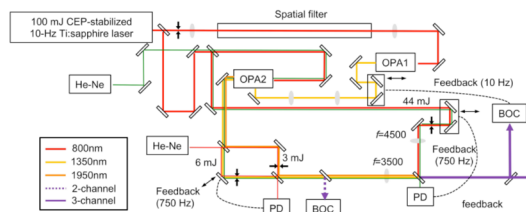


図 1: 3 波長光シンセサイザーのレイアウト

まず、低繰り返し・高出力レーザーの CEP を安定化させるため、1 KHz のフロントエンドレーザーと、10 Hz のパワーアンプによりレーザーシステムを構築した。図 2 にシステムのレイアウトを示す。フロントエンドレーザーから出力される 1 kHz のパルスを、後段に設置された 10 Hz のマルチパス増幅器に入射し増幅を行う。光パルスは図 3 に示すように、100 ms の時間間隔 (10 Hz) で増幅をされ、且つ 10 ms の時間幅で繰り返される増幅されない 1kHz パルス (正確には 990 shots/sec) を含むハイブリッドなパルス繰り返し構造を持つ。コンプレッション後に、レーザー光の一部を取り出しシステムと高精度に時間同期された光チョッパーを通すことで、増幅された 10 Hz 成分をカットし、500 Hz の繰り返しを持つ増幅されていない光パルスのみを抽出する。この 500 Hz 高繰り返しパルスの CEP を計測し、その値をフィードバックパラメーターとして使用する事で CEP の動的安定化を行った。フロントエンドの高繰り返しレーザーから抽出した 500 Hz のパルスを用いることで、フィードバック帯域を確保

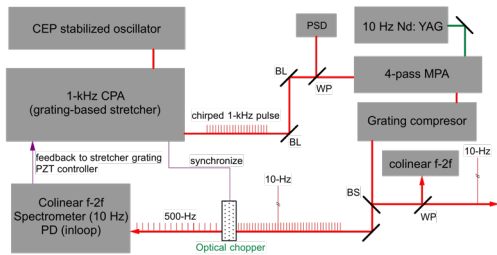


図 2: 10Hz CEP 安定レーザーシステム

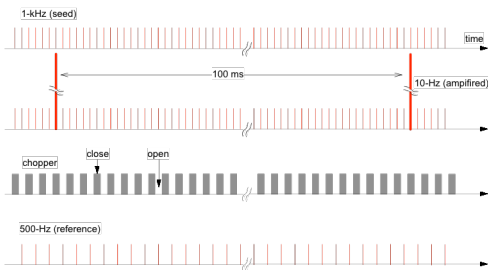


図 3. タイミングチャート

することが可能となり、結果 10 Hz パルスの CEP の間接的な動的安定化が可能となっている。図 4 に増幅された 10 Hz パルスの CEP 値を示す。低繰り返しレーザーでありながら、600 mrad rms の CEP 安定度が達成されている。またパルスエネルギーとして 800 mJ、パルス幅として 28 fs が得られており、CEP が安定化されたチタンサファイヤレーザーとしては、世界最高出力を実現することに成功した。

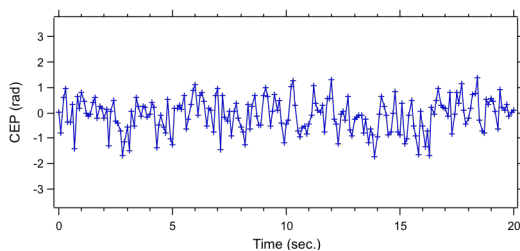


図 4. 10Hz パルスの CEP 安定度

上記の CEP 安定化されたチタンサファイヤレーザーから出力された 100 mJ のパルスを用いて、シンセサイザー内における OPA 励起及び、メインの 800 nm パルスを生成した。CEP 安定化されたメインポンプパルスを使用する事で、OPA により発生するシグナル光、アイドラー光の CEP も一定値に安定化させることが可能となる。一方、シンセサイザー内の光学パスで発生する遅延ジッターをアト秒精度で精密に安定化する必要がある。800 nm と 1350 nm の 2 色パルス間の遅延ジッターの評価と制御にはアト秒の時間分解能を持つ balanced optical cross-correlator (BOC) 法を用いた。構成した BOC の時間分解能は約

24 as であり、これは光の 1 周期 (2.7 fs@800nm) と比べて十分に小さく、正確なタイミングジッターの評価が可能となっている。一方、本研究で使用したレーザーシステムは繰り返し周波数が 10 Hz である為、その光パルスをタイミングジッター制御の信号として直接使用した場合、フィードバック帯域が数 Hz に制限されるという問題がある。そこでマッハチエンダータイプの遅延路に He-Ne レーザーを共軸に伝搬させ、その空間干渉信号を用いて遅延ジッターの動的フィードバック制御を行った。動的フィードバックの周波数は 750 Hz であり、マッハチエンダータイプの遅延路に由来する遅延ジッターを 20 as にまで低減することに成功した。また BOC の信号をエラー値として 800 nm と 1350 nm の 2 色パルス間の遅延ジッターの動的制御を行い、330 as の同期精度を達成した (図 5)。別途測定した 800 nm と 1350 nm パルス間の相対位相安定度は 620 mrad であり、時間ジッター、位相ジッター共に高精度で固定されていることが実験的に確認された。

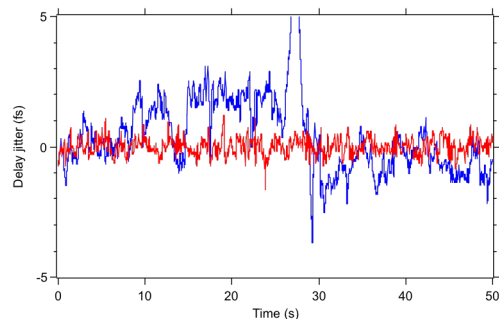


図 5. 800 nm, 1350 nm 間の遅延ジッター。
(青線)フリーランニング (赤線)動的制御

図 6 へシンセサイザーから出力されたスペクトル、及び図 7 へ SPIDER 法で測定した各パルスの時間プロファイルを示す。メインの 800 nm パルスが 45 mJ (28 fs)、シグナル光が 6 mJ (33 fs)、アイドラー光が 4 mJ (40 fs)、であり、シンセサイザーの出力として 50 mJ を超えるパルスエネルギーを実現した。本出力エネルギーは、これまで実現された光シンセサイザーの 100 倍を超える値であり、高強度のアトパルス発生に十分に適

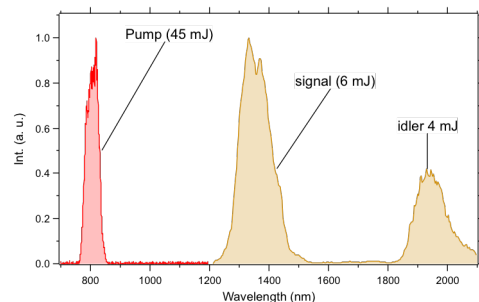


図 6: 出力スペクトル

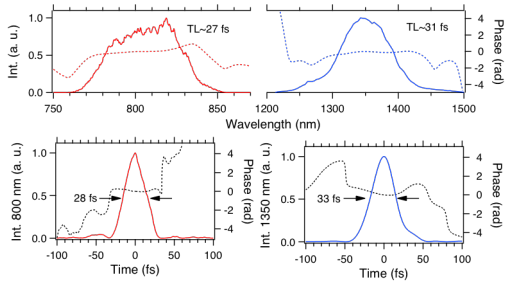


図 7:パルス特性

用可能なレーザースペックとなっている。

開発した高出力光シンセサイザーにより発生した高次高調波スペクトルを図 8 へ示す。シンセサイザーを構成する三色パルス間の時間遅延, 相対位相, 強度比等を最適化することにより 50 - 65 eV 間にかけて, 連続スペクトルを得ることに成功した。またシンセサイザーの各種パラメーターを動的制御することで, 発生する連続スペクトル光の強度が安定化される事が確認された。これは光シンセサイザーの電場形状が全ショットで固定されていることを示唆する結果である。スペクトルバンド幅から換算されるパルス幅は約 300 as であり, 出力エネルギーとして 0.1 uJ 程度が得られている。従来, 極端紫外域でしか高出力アト秒光源は得られていなかったが, 本高出力光シンセサイザーによりギガワット級の軟 X 線アト秒パルス光源実現への見通しが得られた。数値シミュレーションより, 開発した 50 mJ 光シンセサイザーとルーズフォーカス法を組み合わせ, さらに Ne ガスをターゲット媒質として用いることにより, 100 eV の光子エネルギーにおいて, パルス幅 100 as, パルスエネルギー 0.1 uJ が得られる事が予測されている。

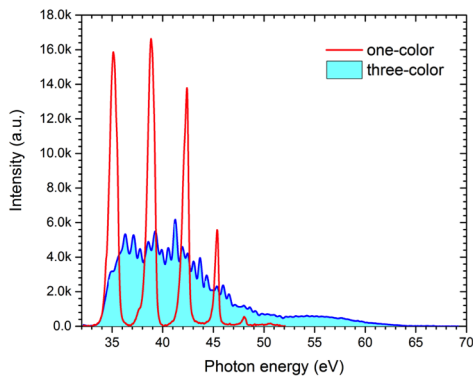


図 8. Ar から発生した高調波スペクトル

(2) 円偏光を組み合わせた二波長ゲーティング法の開発: Generalized infrared double optical gating (GIRDOG)

上記の光シンセサイザーにおいては, 同一直線偏光を持ったパルス間の電場干渉効果を使用して IAP 発生を可能としている。一方, 円偏光を組み合わせたゲーティング法

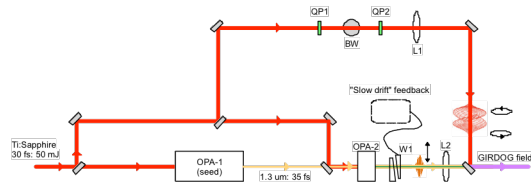


図 9: GIRDOG のセットアップ

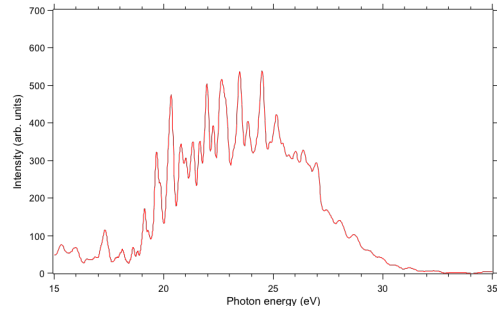


図 10: Xe から発生した高調波スペクトル

(GDOG: generalized double optical gating) が 800 nm のチタンサファイヤレーザーとその倍波 (400 nm) を利用して実現されている。GDOG はパルス幅の比較的長い 800 nm (~10 fs) から IAP が発生できる手法として注目を集めている。本実験では, 400 nm の代わりに 1300 nm 光を使用して GDOG の実験を行った。1300 nm を用いることで, 25 fs 程度のパルス幅を持つ 800 nm 光においても IAP が発生できる事が数値シミュレーションより示唆されている。

図 9 に実験のセットアップを示す。従来の 2 波長レーザーシステムと基本レイアウトは同じであるが, 800 nm (30 fs) の光学パスに波長板を挿入し, 逆回り偏光を持つポンプ光を生成した。OPA から発生した 1300 nm 光を逆回り円偏光の 800 nm 光と時間的・空間的に重ね合わせて, 長焦点で Xe ガス (12 cm, 0.9 Torr) に集光し高調波発生を行った。図 10 に得られた高調波スペクトルを示す。26 eV 以上において連続スペクトルが観測された。一方, 低光子エネルギー成分において, 不連続なスペクトル構造が出現しており, 逆回り 800 nm 光の時間遅延のさらなる最適化が必要な事がわかる。26 - 32 eV の連続スペクトル領域における出力エネルギーは約 0.3 uJ であり, 変換効率として 10^{-5} 程度が得られた。

本実験より, 400 nm 光りの代わりに 1300 nm 光を使用する事で, 30 fs 程度の 800 nm 光であっても連続スペクトルの発生が可能な事が理論的, 実験的に実証された。GIRDOG と呼ばれる本手法は, ギガワット級の出力をもつ IAP 光を生成する新たな手法として位置づけられる。

(2) 多層膜ミラー技術を用いたチャープフリーモノクロメーターの開発

アト秒パルスを用いたポンプ・プローブ系

光学実験における一つの問題点が、装置を構成する多層膜ミラー群によって使用できる高調波波長が一意に決定されるという点である。Time-delay compensated monochromator (TDCM) のようなグレーティングペアを用いた波長分割法も提案されているが、高度なアライメントが要求される上、アト秒パルスに対する分散値を完全に補償しきれないという欠点がある。そこで民間会社と共同研究を行い、XUV から軟 X 線域において連続的に反射波長をコントロールできる多層膜ミラーの開発を行い、単一次数高調波ビームをチャープフリーで抽出可能なモノクロメーターの開発を行った。

Bragg 条件は $2d\sin\theta = m\lambda$ で与えられ、多層膜ミラーの膜間隔 d は反射させる波長により一意に決定されることになる。一方、Bragg 条件は入射角に対しても依存する事から、本手法では d を固定し、 θ を変化させる事で反射波長は超連続してチューニングした。図 11 へ Zr/Al 多層膜ミラー ($d = 16.00$ nm, レイヤー数 60) の反射率の入射角依存性を示した。入射角を変化させる事により、反射波長帯域が 70 - 40 eV の間で連続的に変化していることがわかる。本モノクロメーターでは、2枚の対向配置した Zr/Al 多層膜ミラーを用い、各ミラーを回転させることで反射波長を変化させた。さらにミラーを対向且つ平行配置することによりモノクロメーターより出力されるビームの空間的変位を固定した。

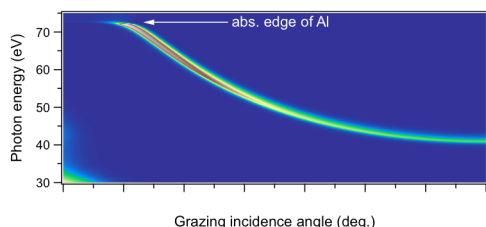


図 11. Zr/Al ミラー反射率の入射角依存性

図 12 にモノクロメーターで単色化された高調波スペクトルを示す。実験では、励起レーザーとしてチタンサファイヤレーザーを、媒質には Ne ガスを使用し高調波発生を行った。最大 65 次までの高調波ビームが得られており (図 12 最上段)、出力されたビームをモノクロメーターに入射し単色化を行った。入射角を 25 - 55 度まで変化させる事により、29 次から 41 次までの単一次数高調波ビームを連続的に抽出することに成功した。多層膜コートが高調波に与える分散量は僅かであり、ほぼチャープフリーで単一次数ビームを取り出すことが可能となっている。また反射帯域は約 1 eV であり、光子エネルギー 55 eV において約 20 % の出力効率を得られている。さらに、同一手法を SiC/Mg 多層膜ミラーを用いたモノクロメーターにも適用し、30 - 45 eV において単一次数の高調波ビームを取り出すことに成功した。本モノクロメ

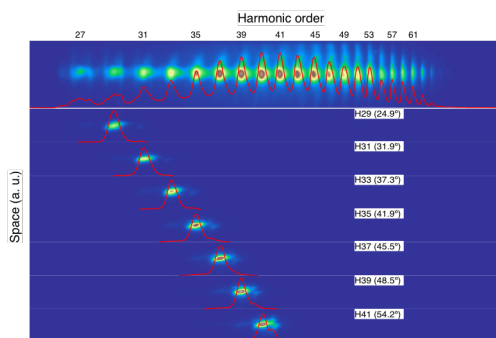


図 12: Zr/Al 多層膜ミラーを用いたモノクロメーターの出力特性

ーターを使用する事により、複数次数を含む高次高調波より単一次数且つ波長可変の高調波ビームをチャープフリーで抽出ことができ、高調波を用いたポンプ・プローブ実験において非常に有用な光学系を提供することが可能となった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 13 件)

- ① M. Hatayama, S. Ichimaru, T. Ohcni, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, and S. Oku, Wide-range narrowband multilayer mirror for selecting a single-order harmonic in the photon energy range of 40-70 eV, *Optics Express* 24, 14546-14551 (2016). (査読有り), 10.1364/OE.24.014546
- ② Y. Fu, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Indirect high-bandwidth stabilization of carrier-envelope phase of a high-energy, low-repetition-rate laser, *Optics Express* 24, 13276-13287 (2016). (査読有り), 10.1364/OL.40.005082
- ③ Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, Settling time of a vibrational wavepacket in ionization, *Nature Communications* 6, 8197 (2015). (査読有り), 10.1038/ncomms9197
- ④ E. J. Takahashi, Y. Fu, and K. Midorikawa, Carrier-envelope phase stabilization of a 16 TW, 10 Hz Ti:sapphire laser, *Opt. Lett.* 40, 4835-4838 (2015). (査読有り), 10.1364/OL.40.004835
- ⑤ E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Muecke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses, *Nature Communications* 4, 2691 (2013) (査読有り), 10.1038/ncomms3691

[学会発表] (計 21 件)

- ① E. J. Takahashi, High-energy multi-channel waveform synthesizer for generating microjoule-level isolated attosecond pulses, 2016 IEEE photonics conference, 29th Annual conference of the IEE Photonics society, 2016/10/2 - 2016/10/6, ハワイ (米国)
- ② E. J. Takahashi, Y. Fu, K. Midorikawa, Carrier-envelope phase stabilization of a 10-Hz high-energy Ti:sapphire laser system, 2015 IEEE photonics conference, 28th Annual conference of the IEE Photonics society, 2015/10/4 - 2016/10/8, バージニア (米国)
- ③ E. J. Takahashi, P. Lan, K. Midorikawa, Infrared double optical gating for generating submicrojoule

isolated attosecond pulses, Ultrafast Phenomena 2014, 2014/7/7/-2014/7/11, 沖縄コンベンションセンター(沖縄県・宜野湾市)

- ④ E. J. Takahashi, M. Hatayama, S. Ichimaru, K. Midorikawa, Dispersion-free monochromator for selecting a single high-order harmonic beam, Conference on Lasers and Electro-Optics 2014, 2014/6/8-2014/6/13, サンノゼ(米国)
- ⑤ E. J. Takahashi, Generation of Gigawatt-scale Isolated Attosecond Pulses, CLEO/Europe-IQEC 2013, 2013/5/12-2013/5/16, ミュンヘン(ドイツ)

[図書] (計 1 件)

- ① 高橋栄治, 緑川克美, 水の窓領域におけるフルコヒーレント光の発生, 0 plus E, 36, 266, (2014)

[その他]

http://www.riken.jp/ExtremePhotonics/attosec/index_j.html

6. 研究組織

(1) 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・光量子工学研究領域・専任研究員
研究者番号: 80360577

(2) 連携研究者

鍋川 康夫 (Nabekawa Yasuo)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・専任研究員
研究者番号: 90344051

古川 祐介 (Furukawa Yusuke)

独立行政法人理化学研究所・高強度軟X線アト秒パルス研究チーム・基幹研究所研究員
研究者番号: 90344051 (H25-H26)

ラン ペングフェイ (Lan Pengfei)

独立行政法人理化学研究所・高強度軟X線アト秒パルス研究チーム・協力研究員 (H25)
研究者番号: 80595017 (H25-H27)

(3) 研究協力者

フーユーシー (Fu Yuxi)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・研究員
研究者番号: 10596133

シュエ ビイン (Bing Xue)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・研究員
研究者番号: 50793949