

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 23 日現在

機関番号：92704

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25706027

研究課題名(和文)単一100アト秒パルスを用いた超高速コヒーレント制御

研究課題名(英文)Ultrafast coherent control with isolated 100 attosecond pulse

研究代表者

増子 拓紀(Mashiko, Hiroki)

日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員

研究者番号：60649664

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、真空紫外～極端紫外領域にて発生する世界最短級の単一アト秒(10⁻⁸秒)パルス光源を開発し、アト秒コヒーレント制御技術を用いて物質内の波動性を光操作することを目的とする。本研究では、開発した周波数可変型の単一アト秒パルスを用いて、物質中の内核電子の双極子応答(振動周期、位相、緩和時間)の観測を実現した。さらに、窒化ガリウム半導体においてアト秒時間で振動する電子運動観測に成功し、その周波数はペタヘルツ(10¹⁵Hz)に達する。これらの成果は、内核電子を用いた新規的な化学反応制御や、半導体電子系の新たな超高周波の光機能性を実現する上で重要な知見となると考えられる。

研究成果の概要(英文)：We successfully observed electronic oscillation with attosecond (as: 10⁻⁸ sec.) periodicity with gallium nitride (GaN) semiconductor using an isolated attosecond pulse (IAP). A near-infrared pulse induces the electric interband polarization. The oscillation with 860-as periodicity in the GaN electron and hole system is revealed by the IAP. The resultant frequency reaches 1.16 PHz (10¹⁵ Hz), making the first time the petahertz frequency barrier has been exceeded with semiconductor. In addition, we observed an inner-shell electron motion using the IAP. We were able to characterize it by combining the IAP and an analytical method called SPIDER (spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction). The method can fully characterize the dipole response (the decay time, dipole phase, and dipole oscillation). These studies on the ultrafast electron motion are substantially importance for future quantum optics, chemistry, and high-speed signal processing engineering.

研究分野：総合理工

キーワード：アト秒科学 超高速物理 高強度物理 原子・分子光学物理 量子光学 量子光エレクトロニクス 単一アト秒パルス 物性物理

1. 研究開始当初の背景

近年、発生が実現されたアト秒(10^{-18} 秒: as)パルス光源は、超高速の運動過程を持つ電子の実時間計測および制御を可能とする。従来、この波長領域では、軌道放射光が光源の主流であり、基礎物理、分析化学、固体物性、産業技術応用に至まで多岐の分野に渡り科学貢献してきた。アト秒パルスは軌道放射光よりもパルス幅が 100 万倍短い利点を持ち、その時間スケールは電子運動の時間制御を可能とし、次世代の光源として注目されている[1]。過去の研究において申請者は、基本波となるフェムト秒パルスに偏光制御法と二色合成法を組み合わせた Double Optical Gate(DOG)法を確立し、単一アト秒パルスの発生に成功している[2]。この DOG 技術は、市販レーザー級のパルス幅の長い基本波(約 30 fs)からでも単一アト秒パルス発生を可能とし、現在の世界最短パルス記録である 67 as のパルス発生にも成功している[3]。

アト秒パルスの最大の特徴は、高速のシャッタースピード(時間分解能)を有する点であり、様々な物質中で超高速の電子運動をコマ撮りの様に観測し、また操作することも可能であり応用性は広い。例えば、現在の信号処理において利用されている半導体電子系の操作時間はピコ秒(10^{-12} 秒: ps)程度であり、より速い電子運動を観測・制御することは、半導体の新たな機能性を引き出す可能性がある。一方、物質が持つ外殻電子(価電子)のみならず、より高速な運動過程を持つ内殻電子でさえ、アト秒時間では捉えることが可能となる。この様に、高速で運動する物質中の内・外殻電子の波動性を操作するアト秒コヒーレント制御技術の発展は、新たな化学反応制御の提唱や、量子科学に対する学术界への貢献のみならず、産業応用に至るまで新規的な技術となる期待がある。

2. 研究の目的

本研究は単一 100 アト秒パルスを用いたコヒーレント制御を目的とし、物質中に存在する電子の超高速運動の観測を行う。本目的を遂行するために、下記の研究課題を行った。
 [課題 1] 周波数可変型単一アト秒パルス光源の開発
 [課題 2] 半導体電子系におけるアト秒時間で振動する双極子運動の観測(固体)
 [課題 3] 内殻電子の双極子応答計測(原子)

3. 研究の方法

[課題 1] 物質中に存在する様々な電子遷移に対応するため、真空紫外・極端紫外・軟 X 線領域において周波数が可変である単一アト秒パルス発生を行う。図 1 a に、DOG 法を構成する光学素子を示す。本手法は、2 枚の水晶板(波長板)と 1 枚の BBO 結晶の光学素子により構成される。偏光ゲート法と二色合成法を組み合わせた DOG 法は、近赤外領域フェムト秒パルス(NIR)

を構成する電場の半周期だけを直線偏光にし、アト秒パルスの発生を半周期内に制限し、パルスの単一化を可能とする(図 1b)。最大の利点は、(1)アト秒パルスを発生させる基本波のパルス幅が従来の 5 fs 以下までの時間圧縮を要しないこと、(2)超広帯域の白色スペクトルを持つ単一アト秒パルス発生が可能であることにある。本実験では、チタンサファイアレーザーを用いて(パルス幅: 7 fs、パルスエネルギー: 350 μ J、繰り返し周波数: 1 kHz)と DOG 法を組み合わせることで、単一アト秒パルス発生および計測を行った。

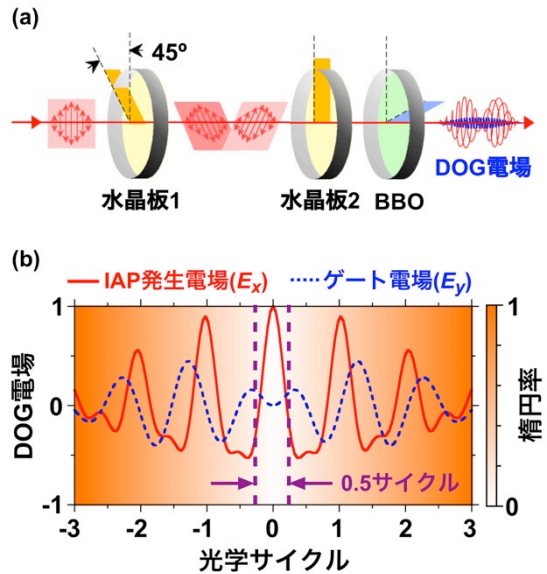


図 1 Double Optical Gate(DOG)法。(a) DOG 光学素子。DOG 電場の構成。IAP: isolated attosecond pulse.

[課題 2] 本課題では、単一アト秒パルスを用いて窒化ガリウム半導体内部の光誘起に伴う電子の超高速な振動現象(双極子振動)を観測する。過渡吸収分光法を用いて、双極子振動により変化するアト秒パルスの吸光度(吸収率)の測定を行った(図 2a)。近赤外領域フェムト秒パルスを励起光源として、窒化ガリウム半導体中の価電子を価電子帯から伝導帯へと 3 光子励起させる(図 2b)。このバンド間遷移に伴い生じる電子分極は、双極子の振動現象を引き起こす。次に、照射される真空紫外領域の単一アト秒パルス(パルス幅: 660 as、中心光子エネルギー: 20 eV)は、近赤外パルスにより励起された伝導帯の電子と価電子を同時に高エネルギーの伝導帯へと励起する。この価電子帯と伝導帯からの 2 つの遷移は、量子干渉効果(量子ビート)を作り吸収分光により検出することができる。結果として、単一アト秒パルスと近赤外フェムト秒パルスの時間掃引により、価電子帯と伝導帯間で生じる双極子振動を観測することが可能となる。

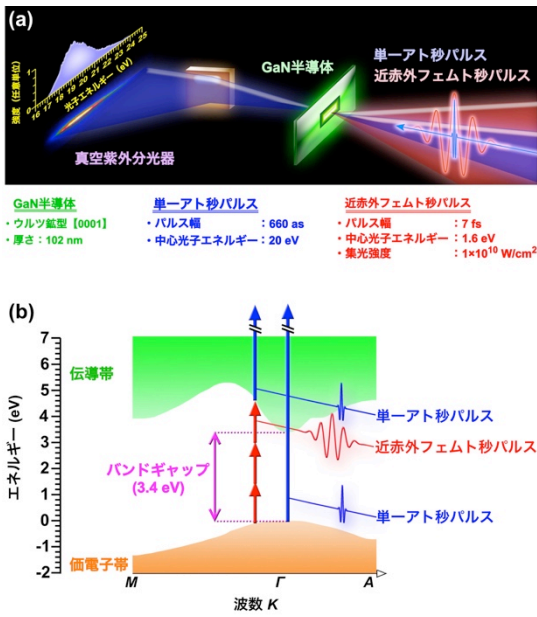


図 2 GaN 半導体を用いたペタヘルツ光学動作実験。(a) 過渡吸収分光の概要図。GaN 半導体のエネルギー準位図。

[課題 3] 本課題では、これまで未開領域であった内殻電子の双極子応答(双極子振動、双極子位相、緩和時間)計測の実証実験を行う。図 3a、b に実験概要図およびネオン原子のエネルギー準位図を示す。極端紫外領域の単一アト秒パルス(パルス幅: 192 as、中心光子エネルギー: 45 eV)は、ネオン原子の内殻電子の遷移[2s-3p]を誘起する。この遷移は自動電離と呼ばれ、ネオン原子の基底準位 $[2s^2 2p^6]$ から非占有外殻準位 $[2s^2 2p^6(^2S_{1/2}) 3p]$ への遷移過程を示す。

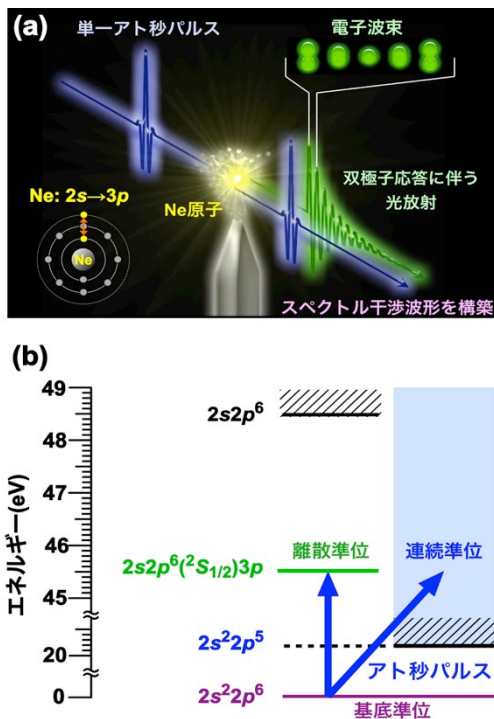


図 3 内殻電子の双極子応答計測実験。(a) 実験概要図。ネオン原子のエネルギー準位図。

遷移エネルギーは 45.5 eV に相当する。この電子遷移によって作られる双極子放射のパルスと、ネオン原子を透過した単一アト秒パルスが作るスペクトル干渉波形を計測する。このスペクトル干渉波形には、内殻電子の遷移に伴う双極子応答の情報が全て含まれている。このスペクトル干渉波形から、単一アト秒パルスの情報を差し引くことによって、内殻電子の作る双極子応答の抽出が可能となる。

4. 研究成果

[課題 1] アト秒コヒーレント制御を可能とする周波数可変の単一アト秒パルス発生を行った。図 4 に DOG 法により発生された単一アト秒パルスのスペクトルの観測結果を示す。真空紫外 (17 eV) から、水の窓領域と呼ばれる炭素 K 殻吸収端 (284 eV) までの領域で発生可能であることが分かる。各スペクトルは、低エネルギー側(左側)からクリプトン(赤線)、アルゴン(青線)、ネオン(緑線)、ヘリウム(ピンク線)の希ガス原子の種類を変えることにより発生される[4, 5]。この超広帯域の白色スペクトルは様々な物質の内殻電子励起を可能とする。本研究では、時間特性を評価するために、アト秒ストリーク法を用いて計測を行った。まず、評価すべきアト秒パルスをネオン原子に照射し、光電子を発生させる。同様に、時間同期した近赤外フェムト秒パルスをネオン原子に照射し、光電界によって光電子に運動量シフトを与える。計測された 17-24 eV (真空紫外: VUV) と 30-55 eV (極端紫外: XUV) の領域におけるアト秒ストリーク波形を、図 4 下図に示す。パルス幅は 660 as と 192 as である。これらの単一アト秒パルスを後述する応用実験に使用する。

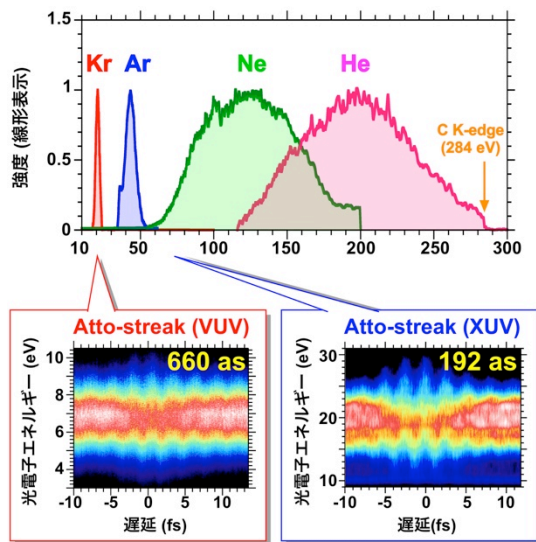


図 4 DOG 法を用いた周波数可変型の単一アト秒パルス発生。上図: 各周波数領域におけるスペクトル。下図: 真空紫外および極端紫外領域パルスに対するアト秒ストリーク波形。

[課題 2] 本課題では、真空紫外単一アト秒パルス (17-24 eV、660 as) を用いて窒化ガリウム半導体内部の光誘起に伴う電子の振動現象 (双極子振動) を計測した[6]。図 5a に過渡吸収分光の結果を示す。この相対吸光度 (ΔOD) は、近赤外パルス (1.6 eV) の照射が有り無しにより変化した吸光度を示している。図 5b にエネルギー領域を積算したラインプロファイルを示す。図 5b の上図の緩やかな緩和曲線は、電子が価電子帯から伝導帯へと遷移するポピュレーションを示し、その緩和時間は近赤外パルスのパルス幅 (7 fs) と、ほぼ同値である。図 5b の下図は、より遅延時間の範囲を狭めた領域を示し、詳細な双極子振動を示す。この振動周期は 860 as に達し、周波数は 1.16 PHz に相当する。GaN 半導体内部で生じる双極子振動は、その振動周期が短く、これは近赤外パルスの 3 光子過程 (4.8 eV) により誘起された振動周期に相当する。この周期は、過去に固体物質において観測された振動現象の中で、最も高い周波数である。このような半導体電子系が有する超高周波応答は、将来の時間領域における信号処理技術の高速化に応用できる可能性があり、また半導体の新たな光機能性を実現する上で重要な知見になると考えられる。

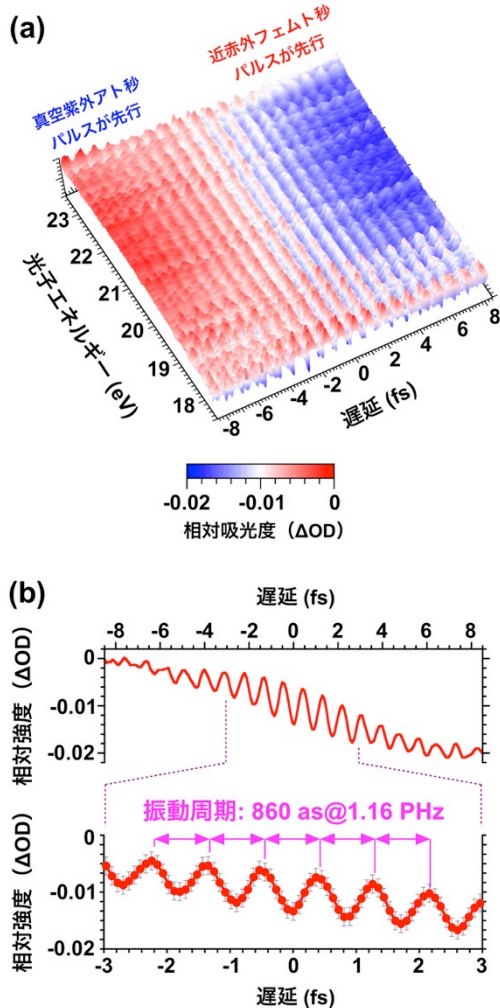


図 5 GaN 半導体を用いた過渡吸収分光。(a) 過渡吸収分光波形。(b) ラインプロファイル。

[課題 3] 本課題では、未開領域である内殻電子の双極子応答計測の実証実験を行う[5]。単一アト秒パルスをネオン原子に照射し、透過したアト秒パルス及び内殻電子が作る双極子応答からの光放射が構築するスペクトル干渉波形を計測する (図 6a)。この干渉波形を、スペクトル位相干渉法 (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction: SPIDER 法) を用いて解析を行う。(1) スペクトル干渉波形をフーリエ変換し、単一アト秒パルスと双極子放射の時間成分を表記する。(2) アト秒パルス成分は、内殻電子の緩和時間よりも圧倒的に短いため、時間フィルターにより取り除く。

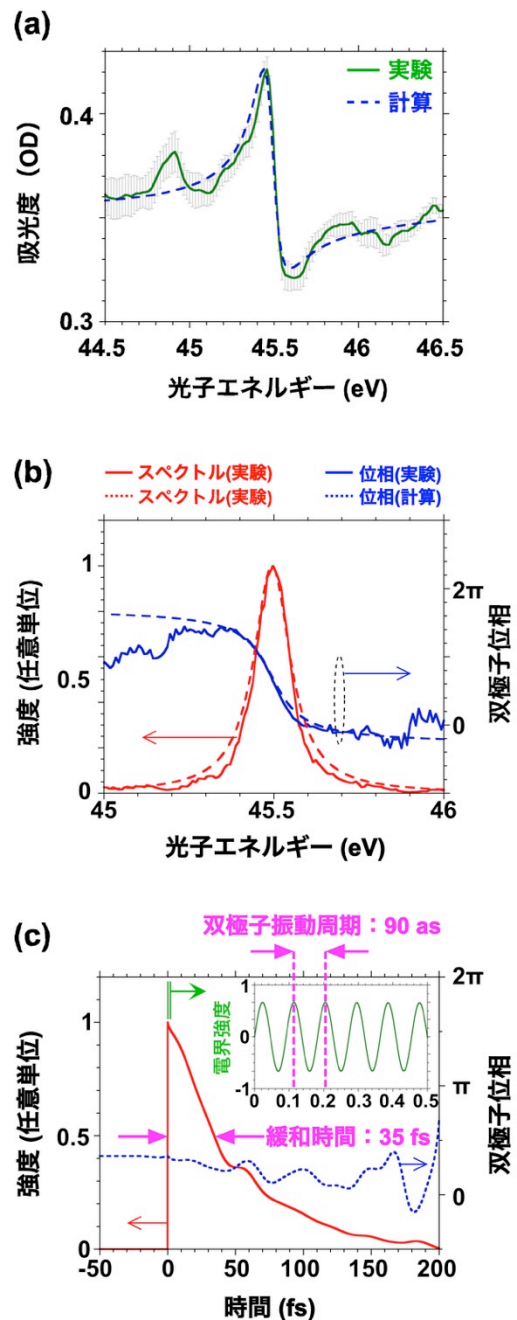


図 6 内殻電子の双極子応答計測 (Ne 原子)。(a) スペクトル干渉波形。(b) 再構成されたスペクトルおよび双極子位相。(c) 再構成された時間波形、双極子位相、電界。

(3)再度、フーリエ変換を行い双極子振動のスペクトル波形および位相を求める。(4)求めたスペクトルと位相を基に再びフーリエ変換を行い、双極子放射の振動周期、位相、緩和時間を導出する。図 6b、c にスペクトルおよび時間領域における双極子応答特性を示す。結果として、緩和時間は 50.6 fs、この双極子の振動周期は 90 as であることが求まる。本手法は、原子のみならず、分子や個体にも応用可能であり、またシュタルク効果やラマン効果といった双極子の位相シフトを伴うダイナミクス計測にも原理上、応用可能である。未知領域である内殻電子を明らかにする本成果は、新たな化学反応制御や高速緩和時間を利用した極限的高速デバイス開発にも繋がると期待される。

参考文献

- [1] F. Krausz et al., Rev. Mod. Phys. 81, 163 (2009).
- [2] H. Mashiko et al., Phys. Rev. Lett. 100, 103906 (2008)
- [3] K. Zhao et al., Opt. Lett. 37, 3891 (2012)
- [4] H. Mashiko et al., App. Phys. Lett. 102, 171111 (2013)
- [5] H. Mashiko et al., Nature commun. 5, 5599 (2014)
- [6] H. Mashiko et al., Nature Phys. (online published 2016)

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件:筆頭 3 件、共著 1 件)

- [1] **H. Mashiko**, K. Oguri, and T. Sogawa, "Attosecond pulse generation in carbon K-edge region (284 eV) with sub-250 μ J driving laser using generalized double optical gating method," Appl. Phys. Lett. 102, 171111 (2013). 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4803936>
- [2] **H. Mashiko**, T. Yamaguchi, K. Oguri, A. Suda, and H.Gotoh, "Characterizing inner-shell with spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction," Nature commun. 5, 5599 (2014). 査読有 DOI: 10.1038/ncomms6599
- [3] K. Hitachi, A. Ishizawa, O. Tadanaga, T. Nishikawa, **H. Mashiko**, T. Sogawa, and H. Gotoh "Frequency stabilization of an Er-doped fiber laser with a collinear 2f-to-3f self-referencing interferometer," Applied Physics Letters, 106, 231106 (2015). 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.4922553>
- [4] **H. Mashiko**, K. Oguri, T. Yamaguchi, A. Suda, and H.Gotoh, "Petahertz optical drive with wide-bandgap semiconductor," Nature Phys. (online published 2016). 査読有 DOI: 10.1038/nphys3711

[学会発表] (計 26 件:筆頭 16 件、共著 10 件)

- [1] (招待講演) **H. Mashiko**, K. Oguri, T. Sogawa, "Optimization of attosecond pulse in

carbon k-edge (284 eV) with generalized double optical gating," The 60th spring meeting of the Japan society of applied physics and related societies, 28P-D2-7, Kanagawa institute of technology (Kanagawa), March 27-30, 2013.

- [2] (招待講演) **H. Mashiko**, "Isolated attosecond pulse generation with 140 eV bandwidth and manipulating autoionization process in atomic neon," The 6th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation (AWCXR 2014), Shanghai Institute of optics and fine mechanics (Shanghai), China, January 14, 2014.

- [3] (招待講演) **H. Mashiko**, K. Oguri, T. Yamaguchi, A. Suda, and H.Gotoh, "Characterizing ultrafast dipole dynamics with isolated attosecond pulse" The Sino-German symposium on attosecond photonics 2015 (SGSAP 2015), Yingyuan hotel (Shanghai), China, November 16-18, 2015.

- [4] (招待講演) **H. Mashiko**, "Characterizing dipole response with inner shell using isolated attosecond pulse," The 6th ultrafast optical electronics symposium, Tokyo Univ. (Kashiwa), January 16, 2015.

- [5] (招待講演) **H. Mashiko**, K. Oguri, T. Yamaguchi, A. Suda, and H.Gotoh, "Observation of ultrafast dipole dynamics using isolated attosecond pulse" The 36th annual meeting of the laser society of Japan, A-11p-3, Meijo Univ. (Nagoya), January 11, 2016.

[その他]

- [1] Nature Phys. 特集記事"News and Views" 著者: Oliver D. Mucke, 題目: Petahertz electronics: pick up speed DOI: 10.1038/nphys3746
- [2] NTT 報道発表記事 題目: アト秒時間で振動する半導体の電子運動観測に初めて成功 <http://www.ntt.co.jp/news2016/1604/160411b.html>
- [3] NTT 報道発表記事 題目: 世界最速レベルのシャッタースピードで高速で動く電子のストロボ撮影に成功 <http://www.ntt.co.jp/news2014/1412/141216a.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

増子 拓紀 (Hiroki Mashiko)

日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員
研究者番号: 60649664