

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790063

研究課題名(和文) 高強度赤外線による軟X線アト秒パルス光発生とその計測

研究課題名(英文) Generation of soft X-ray attosecond pulses by use of intense infrared pulses and their characterization

研究代表者

石井 順久 (Ishii, Nobuhisa)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：40586898

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究において、波長1600 nm、エネルギー0.55 mJ、パルス幅10フェムト秒、繰り返し周波数1 kHzの出力をもつ高安定な光パラメトリックチャープパルス増幅器を用いて、軟X線領域にわたる高次高調波発生実験を行った。また、世界で初めて、水の窓領域での電場波形依存高次高調波発生に成功した。この観測により、軟X線アト秒パルス発生を間接的に示すことができた。またこの軟X線高調波を測定するため光パラメトリックチャープパルス増幅器の出力増強を行い、これによって軟X線アト秒パルス計測(光電子分光)ならびに超高速軟X線吸収分光が可能となり、現在鋭意アト秒パルス計測の実験を行っている。

研究成果の概要(英文)：In this research, we have developed and applied an optical parametric chirped-pulse amplifier, which is capable of delivering 0.55 mJ, 10 fs infrared pulses with a repetition rate of 1 kHz at 1600 nm to generate high harmonics in the water window. The spectra of soft x-ray radiation exhibit the clear dependence on the electric waveform of the sub-two-cycle infrared pulses. The cutoff of soft x-ray harmonics reaches 325 eV, which is well beyond the carbon K edge. The waveform dependence indicates the generation of isolated attosecond soft x-ray pulses. Furthermore, we have upgrade the parametric amplifier and the millijoule infrared pulses from the upgraded light source generate bright soft x-ray radiation at the carbon K edge. This yield enhancement is necessary for the characterization of the attosecond soft x-ray pulses based on time-resolved photoelectron spectroscopy and the demonstration ultrafast soft x-ray absorption spectroscopy, which we are working on.

研究分野：物理学

キーワード：アト秒パルス発生 軟X線高調波 超高速軟X線分光

1. 研究開始当初の背景

チタンサファイアレーザーの進展と超高速分光法の研究により、1999年にノーベル化学賞が2005年にノーベル物理学賞がレーザーの関連分野で授与された。近年のレーザー技術は驚異的な速さで進歩を遂げていて、2000年以降、電場を数サイクルしか含まない超短パルスの発達と高次高調波発生による波長変換により極端紫外領域でアト秒パルスの発生が可能となった。アト秒パルスは吸収分光にも応用されクリプトン原子の電子波束の観測も行われている。現状のアト秒パルスの光子エネルギーは100 eV以下で、これはチタンサファイアレーザーの波長800nmで制限されている。波長を2倍にすればアト秒パルスの限界光子エネルギーは400 eV程度まで広がると考える。近年はこの方式により高エネルギーアト秒パルスのための赤外レーザーの開発が盛んになっている。

2. 研究の目的

申請者が主体となって開発した、電場波形一定高強度赤外サブ2サイクルレーザーを用いて水の窓にいたる軟X線領域で高次高調波発生実験を行い、世界で初めて水の窓領域(280 - 540 eV)で電場波形依存する高次高調波発生を確認する。この電場依存する高次高調波発生から、水の窓領域でアト秒パルス発生が可能となることが示される。当研究ではさらなる発展を目指し、水の窓領域を含む軟X線での孤立アト秒パルス発生とその計測を行う実験を目標とする。アト秒パルスを用いた科学は、電子の運動の実時間分光ならびに生体の時間分解イメージング等があり、次世代の最先端研究分野となっていくと思われる。本申請では、長波長の電場波形が安定化した赤外レーザーにより、高光子エネルギー(100 - 300 eV)におけるアト秒パルス発生とその長周期レーザーによる時間分解幅を広げるパルス計測を目指す。

3. 研究の方法

(1): 赤外レーザーを用いた水の窓領域の高次高調波発生と其の赤外電場依存性。

申請者が主体的に開発とオペレーションを担当している、赤外レーザーと簡易高次高調波発生系を用いて水の窓電場波形依存高次高調波発生実験を行う。これによって、水の窓領域でのアト秒パルス発生が可能であるかを判断することができる。現状はX線分光器による測定は時間がかかっており、アト秒ストリーク法に用いる光電子分光は原子に光を当てて出てくる電子を捉え、その角度とエネルギーを分解する間接的な測定手段であるので、さらに高調波の光量を増す必要がある。この赤外OPCPAの増強と改良については別のプロジェクトによりサポートされており、所属研究室で実行途中である。

(2): 赤外OPCPAの増強と高フラックス水の窓高次高調波発生とその軟X線高調波スペクトルの赤外励起電場依存性の検証。

赤外OPCPA増強により、高フラックス高次高調波発生が見込まれ、そのための真空系設置を開発する。赤外OPCPA増強により緩やかな集光系で高次高調波発生を行うために、光量増大を目指し長い相互作用長を有する高圧ガスセルの製作を行う。高圧ガスセルによって高調波発生を行うことによってフラックスの向上が見込まれる。新たな低流量の高圧ガスセルと専用高調波発生チャンバーとルーツポンプまたはドライポンプ等を組み合わせることによって更なる背圧をかけられるように設計する。

(3): 小型軟X線分光器を備える軟X線ビームライン建設と、TOF型光電子エネルギー計測装置を含む光ストリーク用ビームライン設置。

現在は大型の商用製品である軟X線分光器を用いて水の窓領域高次高調波を測定している。アト秒パルス測定するためには光電子分光を用いるために、光電子分光器と既存のX線分光器の両立が不可能である。発生した軟X線をモニターするために小型軟X線分光器が必要で、これを光電子分光チャンバー内に納める。軟X線を反射させ赤外線とのクロスコリレーションをとるためのビームラインをチャンバー内にセットアップする。また他の光学素子ならびに遅延時間をつける真空対応ステージ等が必要となる。これらを光ストリーク用(兼光電子分効用)チャンバーにセットアップする。ターボポンプについては既存物を流用する。ガスを導入しガスに軟X線と赤外線をあててきた光電子のエネルギーを測定するためにTime of Flight型光電子分光装置を備える。最初はTOFからはじめ、電子レンズ等の改良を行うことを想定している。TOFにおいて電子カウントのバックグラウンドが大きい可能性があり、その際には高調波発生チャンバーとストリークチャンバーの間に差動排気を設けて真空を改善する。

4. 研究成果

(1): 赤外レーザーを用いた水の窓領域の高次高調波発生と其の赤外電場依存性。

図1は赤外OPCPAを軟X線高次高調波発生に用いて得られた軟X線放射のスペクトルである(黒線)。この放射はネオンを用いており、炭素を含むフィルターを挿入することにより、炭素のK吸収端(284 eV)の位置を同定できる。黒線のスペクトルからわかるように、高調波のカットオフは350 eV程度に達しており、これは800 nmのチタンサファイアレーザーを用いたときの約4倍程度に伸張されている。さらにこの軟X線高調波のスペクトルを赤外レーザーの電場波形を変えつつ測定したものが、図2である。

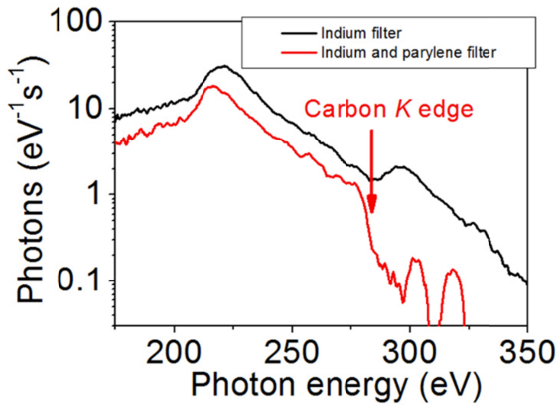


図1：軟X線スペクトル(黒線)と炭素を含むフィルターを通した後のスペクトル(赤線)。284 eVでの急峻な九折は炭素のK吸収端によるものである。

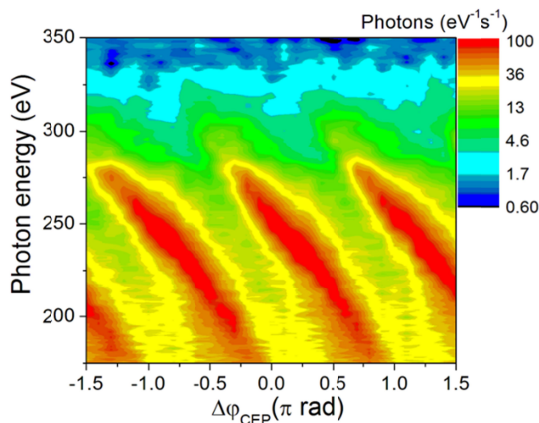


図2：赤外レーザー電場依存する軟X線スペクトル。X軸は電場の包絡線とキャリア波のタイミングの違いを相対位相(搬送波包絡線位相)として定義したものである。

図2は赤外レーザーの電場に依存する軟X線スペクトルであり、X軸は電場の包絡線とキャリア波のタイミングの違いを相対位相(搬送波包絡線位相)として定義したものである。この電場依存性から、特定の電場波形においては単一のアト秒軟X線パルスが生成していることが間接的に証明でき、この実験は、世界で初めてアト秒軟X線パルスの生成の証明である。

(2)： 赤外 OPCPA 増強と高フラックス水の窓高次高調波発生。

軟X線光電子、又は、吸収分光のためには軟X線の高光量が欠かすことができない。赤外 OPCPA 増強により、高フラックス高次高調波発生が見込まれる。2014 年末に赤外 OPCPA 増強を完了した。結果として、2 サイクル以下のパルス幅を持つ赤外パルスのエネルギーを3倍に増強することができた。これにより、現在高光量軟X線高調波発生実験と其の赤外電場依存性の測定を行っているところである。図3は増強した赤外 OPCPA によって行った光量増大測定実験の結果を示している。

黒線は増強後の軟X線強度スペクトルであり、赤線は炭素を含むフィルターを挿入して得たスペクトルである。青線は OPCPA 増強前の赤外光源によって行われた高調波発生実験における典型的な高調波スペクトルである。これらから約35倍程度の軟X線光量増大を観測した。またこの高光量軟X線によって炭素K吸収端近傍の微細構造の観測に成功している。これはレーザーをベースとした軟X線光源では世界で2番目の結果であり、世界初の結果に比べて観測時間が1/10に短縮された。

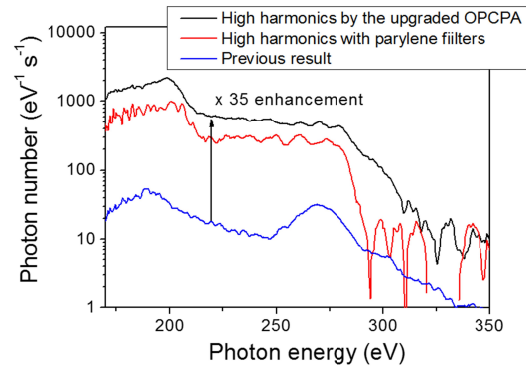


図3：軟X線増強実験結果、赤外 OPCPA 増強後の軟X線強度スペクトル(黒線)と炭素を含むフィルターを通した後のスペクトル(赤線)。青線は増強前の赤外 OPCPA による軟X線高調波スペクトルである。これらから約35倍程度の軟X線光量増大を観測した。

(3)： 小型軟X線分光器を備える軟X線ビームライン建設と、光ストリーク用ビームライン設置。

現在発生した軟X線をモニターするために小型軟X線分光器を製作中であり、すぐに完了する見込みである。これを近日中に光電子分光チャンバー内に納める。軟X線を反射させ赤外線とのクロスコリレーションをとるためのビームラインをチャンバー内にセットアップした。他の光学素子ならびに遅延時間をつける真空対応ステージ等を備え、光ストリーク用チャンバーにセットアップした。軟X線と赤外線をあててきた光電子のエネルギーを測定するために Time of Flight 型光電子分光装置を設置した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計6件)

K. Kitano, N. Ishii, T. Kanai, and J. Itatani, "Selecting rotational two-level coherence in polar molecules by double terahertz pulses", Phys. Rev. A 90, 041402(R) (2014). DOI: 10.1103/PhysRevA.90.041402

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 117, 941-946 (2014).
DOI: 10.1007/s00340-014-5912-0

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: At. Mol. Opt. Phys. 47, 204011 (2014).
DOI: 10.1088/0953-4075/47/20/204011

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 Communications 5, 3331 (2014).
DOI: 10.1038/ncomms4331

〔学会発表〕(計 17 件)

石井順久、金島圭佑、金井輝人、渡部俊太郎、板谷治郎
「BIBO-OPCPAによるサブ2サイクルミリジュール赤外パルス発生」
第 62 回応用物理学春季学術講演会、
2015 年 3 月 12 日
東海大学湘南キャンパス(神奈川県・平塚市)。

石井順久、金島圭佑、金井輝人、渡部俊太郎、板谷治郎
「サブ 2 サイクル位相保持赤外光源の高出力化」
第 75 回応用物理学秋季学術講演会、
2014 年 9 月 19 日
北海道大学(北海道・札幌市)。

H. Geiseler, N. Ishii, K. Kaneshima, T. Kanai, J. Itatani,
“ Probing Elastic Rescattering through Half-Cycle Cutoffs in Above-Threshold Ionization Spectra, ”
19th International Conference on Ultrafast Phenomena,
July 9 (Wed), 2014,
Okinawa Convention Center, Ginowan, Okinawa, Japan.

N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani,
“ Generation of Isolated Soft X-Ray Pulses Around the Carbon K-Edge Using CEP-Stabilized Few-Cycle IR Pulses, ”
19th International Conference on Ultrafast Phenomena,
July 9 (Wed), 2014,

Okinawa Convention Center, Ginowan, Okinawa, Japan.

N. Ishii, (Invited)

“ Isolated Attosecond Continua in the Water Window via High Harmonic Generation using a Few-cycle Infrared Light Source, ”
Conference on Lasers and Electro-Optics, STh3E, 11 June 2014, San Jose, CA, USA.

H. Geiseler, N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, and J. Itatani,
“ Extraction of Elastic Scattering Cross Sections from Half-Cycle Cutoffs in Photoelectron Spectra, ”
Conference on Lasers and Electro-Optics, FTu1D, 9 June 2014, San Jose, CA, USA.

石井順久、金島圭佑、北野健太、松本由幸、金井輝人、渡部俊太郎、板谷治郎
「高強度 2 サイクル赤外ドライバーによる電場波形依存水の窓高次高調波発生」
レーザー学会学術講演会第 34 回年次大会、
2014 年 1 月 20 日 - 22 日、北九州国際会議場(福岡県・北九州市)。

N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani,
“ Generation of isolated attosecond continua in the water window using a CEP-locked, few-cycle IR pulses from a BiB306 OPCA system, ”
4th International Conference on Attosecond Physics,
July 8 - 12, 2013
Paris, France.

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 a Few-Cycle Infrared Light Source, ”
Conference on Lasers and Electro-Optics Europe,
12-16 May 2013,
Munich, Germany.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石井 順久 (ISHII, Nobuhisa)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号 : 40586898