

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔平成29年度研究進捗評価用〕

平成26年度採択分
平成29年3月14日現在

単一アト秒パルスの高出力化によるアト秒電子ダイナミクス計測の確立

Generation of intense isolated attosecond pulses
and their application to attosecond electron
dynamics measurement

課題番号：26220606

緑川 克美 (MIDORIKAWA KATSUMI)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・領域長



研究の概要

キャリア・エンベロープ位相が安定化された複数のフェムト秒高エネルギーパルスの合成法を開発し、これを用いて高強度の単一アト秒パルスの発生する。そして、さらにその波長域をサブ keV 領域にまで拡張するとともに、リング型共振器内高次高調波発生を用いた新しい超高繰り返しアト秒パルス光源の基盤技術を開発し、アト秒科学の先端を切り開く。

研究分野：応用物理学、光量子科学

キーワード：量子エレクトロニクス、非線形光学、アト秒科学、超高速光科学

1. 研究開始当初の背景

物質中の電子の動きを捉えることができるアト秒パルスレーザーは、物理学や化学のみならず生物・医科学等の分野においても今後必須のツールとなると考えられる。2001年にアト秒パルスおよびパルス列の発生が観測されて以来、その発生・計測法ならびに利用は、急速に発展してきたが、未だに波長域、エネルギー、平均出力等は十分ではなくその利用範囲を制限している。特に、単一アト秒パルスに関しては、その強度および繰り返し速度は、目標となる計測に必要なとされるレベルには達していない。

2. 研究の目的

本研究では、我々がこれまで開発してきた2波長励起による高強度の単一アト秒パルスの発生法をさらに高度化し、その波長域をサブ keV 領域にまで拡張するとともに、リング型共振器内高次高調波発生を用いた新しい超高繰り返しアト秒パルス光源を開発し、アト秒科学の先端を切り開くことを目的とする。

3. 研究の方法

上記の目的を達成するために、以下の4つの課題について研究を行う。

(1) 高出力単一アト秒パルスの波長域の拡大：基本波となるフェムト秒チタンサファイアレーザーのキャリア・エンベロープ位相安定化(CEP)および高出力化と平行して、これを励起光としたダブルチャープパラメトリック

増幅法(DC-OPA)の高エネルギー化を行い、高エネルギーフェムト秒赤外パルスによるサブ keV の高調波発生を行う。

(2) 単一アト秒パルスの安定化と高出力化：これまで高繰り返しレーザーで用いられたフィードバック法とは異なる手法の低繰り返し高エネルギーレーザーのための CEP 安定化技術を開発し、3波長合成レーザーを用いた単一アト秒パルスの発生を行う。

(3) アト秒ポンプ-プローブ法によるアト秒電子ダイナミクスの計測：多電子励起状態のダイナミクスについてシミュレーションモデルを開発し、可能性のある実験条件を探索し、その結果をもとに単一アト秒パルスによる観測実験を行う。

(4) MHz 級超高繰り返しアト秒パルスの発生：Thin-Disk 媒質を用いたリング型共振器内高次高調波発生により、MHz 級の超高繰り返しアト秒パルス光源の基盤技術を開発する。

4. これまでの成果

これまで高次高調波を用いてサブ KeV 領域のコヒーレント軟 X 線の発生が報告されているが、実際に利用できる波長は10nm(約100eV)程度までであった。これは、数100eVの高調波の発生には、赤外波長のレーザーが必要であり、高次高調波への変換効率が極端に低くなることとそのようなフェムト秒赤外レーザーのエネルギーが mJ 程度に制限されていたことが大きな要因であった。そこで、この問題を解決するために、DCOPAによる

赤外波長（シグナル光：1.4 μm ，アイドラー光：1.9 μm ）のエネルギー拡大則を検証した。実験ではTypeIIの BBO結晶を2段に配置した。図1に示すようにDCOPA出力は、励起レーザーのエネルギーに比例して増加し、励起レーザーエネルギー700 mJのとき最大エネルギー210mJがえられた。この時、シグナル及びアイドラー光のエネルギーは、それぞれ120 mJと90 mJであった。さらに、これらをプリズム圧縮器を用いて圧縮した結果、効率85%で、ほぼフーリエ変換限界の約40 fsおよび50 fsのパルスが得られた。

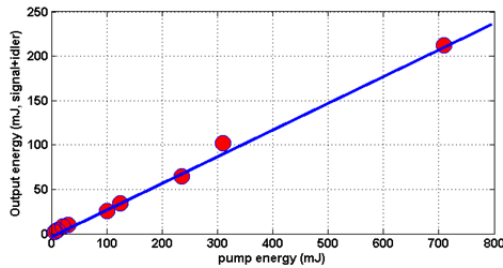


図1 DCOPAのエネルギー拡大則の実証

一方、高エネルギーフェムト秒3波長合成レーザー（シンセサイザー）の開発においては、まず、基本波レーザーである400 mJで、パルス幅は25fs、繰り返し10 HzのチタンサファイアレーザーのCEPの安定化を行った。その結果、10Hzの繰り返し動作で670 mrad(RMS)のCEP安定性を達成した。この時の、パルス幅は25 fsであり、ピークパワーは16 TWにまで達した。これにより、初めて10 TWを超えるパルスでのCEP安定化技術が確立された。

また、アト秒電子ダイナミクスの計測においては、シミュレーションモデルを開発した。その結果、パルス幅 600 fs、光子エネルギー約 30 eV の XUV 光を 10^{15} W/cm^2 の強度で He 原子に集光し 2 電子励起した後、それと同じ XUV 光のプロープパルスの遅延時間を変えながら波長 40.8eV の XUV 光の変化を観測することにより、目標とする 2 電子の相関運動がサブフェムト秒の精度で得られることが明らかになった。さらに、この実験を実現するために、新たに XUV 多層膜鏡の設計を行った。

5. 今後の計画

アト秒パルスの波長域の拡大に関しては、DCOPAからの100mJ級、約40fsの赤外パルスを高次高調波発生装置に導入し、NeあるいはHeをターゲットとして、“水の窓”波長領域の高次高調波を得る。単一アト秒パルスの高出力化については、3波長合成パルスを用い発生したアト秒パルスのアト秒ストリーキングの計測実験を計

画している。また、共振器内高次高調波発生においては、Thin-Disk用新規レーザー材料として、あらたに有望視されているC ALGO等の材料を試作し、その光学特性の評価を行う。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

1. Y. Fu, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, “Indirect high-bandwidth stabilization of carrier-envelope phase of a high-energy, low-repetition-rate laser,” *Opt. Exp.* 24, 13276-13287 (2016).
2. E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Mücke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, “Nonlinear Attosecond Metrology by Intense Isolated Attosecond Pulses,” *IEEE Sel. Topics in Quantum Electron.* 21, 8800112 (2015).
3. Y. Fu, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, “High-energy infrared femtosecond pulses generated by dual-chirped optical parametric amplification,” *Opt. Lett.* 40, 5082-5085 (2015).
4. T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, “Direct observation of an attosecond electron wave packet in a nitrogen molecule,” *Science Advances* 1, e1500356 (2015).
5. 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).
6. 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,” *Nat. Commun.* 6, 8197 (2015).
7. 日本分光学会賞「高次高調波発生とアト秒科学に関する研究」（2015）.

ホームページ等

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