

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」
平成 18 年度採択研究代表者

渡部 俊太郎

東京大学物性研究所
先端分光研究部門・教授

高強度光電界による電子操作技術の開拓

1. 研究実施の概要

キャリアエンベロープ位相(CEP)が制御された 5 フェムト秒テラワット級の OPCPA(光パラメトリックチャープパルス増幅)システムを開発し、サブ 100 アト秒パルスを発生し、光波合成によって生成した任意電場波形と組み合わせ、アト秒オシロスコープを開発することを目的としている。これによりアト秒時間分解分光の確立と電子操作を目指している。

【物性研グループ】

物性研では、引き続き CEP を制御した 5 fs、サブテラワット OPCPA の開発を行った。ポンプレーザーの改良により出力のパルスエネルギーを 2.7 mJ まで増加でき、サブテラワットに到達した。また、CEP の任意制御も行った。以上で、OPCPA の開発がほぼ完了したことになる[原著論文、物性研(1)]。また、OPCPA による軟 X 線サブ 100 アト秒パルス発生のための前段階として、2 色電場による高次高調波実験を行った。相対位相を制御した基本波と第 2 高調波を同時に希ガスに照射し、軟 X 線領域でのコンティニューム(広帯域スペクトル)を発生させた。更に、発生する高調波の、2 色電場の相対位相に対する依存性を測定することにより、2 色電場を用いた高次高調波発生における電子の量子経路の選択に、世界で初めて成功した[原著論文、物性研(2)]。現在は、開発した OPCPA を用いてサブ 100 アト秒高調波パルス発生の予備実験を行っているが、既に水の窓領域(2.3-4.4 nm)の短波長まで達する広帯域高調波を発生することに成功し、更に水の窓領域近くでの高調波スペクトルが CEP に依存して変化することも確認できた。

【産総研グループ】

産総研では、多波長位相同期パルスのフーリエ合成による電界波形の完全に制御された高強度任意波形レーザーの開発を第一目標に取り組んでいる。平成 20 年度は、パラメトリック増幅励起光源としての Yb ファイバレーザー増幅器において、パルス圧縮及び第二高調波変換を

行った。パルス圧縮の妨げとなっていたファイバー中の非線形効果を抑制するために、チャープパルス増幅法と大口径ファイバーを用いることによって、繰り返し 80MHz において、圧縮後 25W でパルス幅 100fs まで圧縮できた。さらに、第二高調波変換を行い、変換効率約 40% で 5.6W の出力を得た。さらなる高ピーク強度を得るために、繰り返し 800kHz のシステムを開発し、圧縮後 5 μ J で 300fs のパルスを得、第二高調波として 1 μ J 以上を得た。また、同時発生周波数混合過程の干渉を利用して、フーリエ合成による任意電界波形を低強度領域で測定する方法を確立し、位相同期した 3 色パルスのフーリエ合成波形の計測を行った。現在、パラメトリック増幅による任意電界波形の高強度化を試みており、来年度以降、電界波形に依存した高次非線形現象の観測とそれによる電界の直接測定にも取り組む予定である。

2. 研究実施内容(文中にある参照番号は 4.(1)に対応する)

【物性研グループ】

(A) 5 フェムト秒テラワット級 OPCPA の開発

引き続き、CEP を制御した 5 fs サブテラワットの OPCPA システムの開発を行った。平成 19 年度までの研究で、既に 1.7 mJ のパルスエネルギーを得ていたが、平成 20 年度の研究により、それを 2.7 mJ まで増加させた。その目的のために、中心波長 900 nm の狭帯域チタンサファイアレーザーを改良しパルスエネルギーを 20 mJ まで増加させ、それを二倍波に変換することで 15 mJ、450 nm のパラメトリック増幅(OPA)用ポンプパルスを得ている。また、共振器の CEP を安定化し、更に OPCPA 出力の CEP を評価することで、出力の CEP 任意制御を実現した。以上の成果により、CEP 制御 5 fs サブテラワットの OPCPA システムのスペック目標を完全に達成し、その開発がほぼ完了した。この OPCPA は、従来の単一アト秒パルス発生光源である中空ファイバー出力の 5-10 倍のパルスエネルギーを達成しており、また、出力電場波形の CEP・分散を自在に制御できる。

(B) 2色電場による高次高調波発生における、電子の量子経路選択

単一アト秒パルスを発生させるためには、本来ならば励起レーザーの半サイクルごとに繰り返される高調波発生過程での電子の量子経路を何らかの形で制限し、ある半サイクルに限定して高調波を発生させる必要がある。つまり単一アト秒パルス発生のためには、半サイクル内で十分に電場強度が変わりえる数サイクルパルス(800 nm 中心で 5fs 程度のパルス幅)が要求されるが、これは非常に厳しい条件である。この条件を緩和しサブ 10fs パルスによっても単一アト秒パルスを発生させることができるようになれば、サブ 100 アト秒パルス発生が飛躍的に容易となる。そこで、既存のチタンサファイアレーザーを用いた2色電場による高調波発生の実験を行った。

相対位相を制御した基本波と第 2 高調波とを同時に希ガスに照射することで、基本波のみの場合では単一であった高調波発生量子経路を、2色電場によって 2 つの量子経路に分離させ、それぞれの経路の高調波に対する寄与を世界で始めて観測した。この方法により、2色電場を用い更に特定の相対位相を選択することによって、軟 X 線領域単一アト秒発生を

サブ 10fs のパルスによって発生させることが出来ることを実証した。

(C)サブ 100 アト秒高調波パルス発生への予備実験

開発した OPCPA を用いてサブ 100 アト秒高調波パルス発生の予備実験を行った。その結果、水の窓領域まで達する広帯域高調波を発生することに成功し、それを時間的に圧縮すればサブ 100 アト秒パルスが得られることを確認できた。更に、水の窓領域近くにおいて、発生する高調波のスペクトルが CEP に依存して変化することも確認できた。以上の予備実験の結果は、CEP の最適化制御により、サブ 100 アト秒の単一パルスが確かに発生できることを意味している。

【産総研グループ】

産総研では、多波長位相同期パルスのフーリエ合成による電界波形の完全に制御された高強度任意波形レーザーの開発を第一目標に取り組んでいる。平成 19 年度までに、パラメトリック増幅の励起光源として、Yb ファイバレーザー増幅器を用いて、繰り返し 6MHz 及び 80MHz において、平均出力 30W を得ていた。平成 20 年度は、パルス圧縮と第二高調波変換を行い、パラメトリック増幅による任意波形の高強度化を目指して研究を行った。

(A)任意電界波形の高強度化

パルス圧縮を行うためには、ファイバー中の非線形効果が妨げとなっていたため、今年度は増幅前にストレッチャーを置くチャープパルス増幅法を適用し、さらに大口径 Yb ファイバーを用いることによって、非線形効果による自己位相変調を抑制した。繰り返し 80MHz において、発振器からのフェムト秒パルスをファイバストレッチャーによりいったん 20ps まで延伸し、コア径 25 ミクロンの Yb ファイバを用いて、平均出力 35W まで増幅し、圧縮後 25W でパルス幅 100fs まで圧縮することに成功した。その後、励起光源として用いるために、LBO に通して、第二高調波変換を行い、基本波 13.7W に対して、出力 5.6W の第二高調波が得られ、変換効率 40%程度を達成した。

さらなる高ピーク強度を得るために、繰り返し 800kHz のシステムを開発した。グレーティングストレッチャーで 300ps 程度まで延伸し、パルスの間引きに伴う出力低下を補うため、多段構成の増幅器を用いた。さらにコア径 40 ミクロンの Yb ファイバーを用いて、最終増幅出力で 20W 以上、パルスエネルギーとして 25 μ J を得た。大口径ファイバの採用とストレッチ幅の増大により自己位相変調は抑制され、グレーティング圧縮器により 5 μ J、300fs の圧縮パルスが得られた。LBO に通して、第二高調波変換を行い、1 μ J のパルスが得られた。現在は、このパルス光源を励起光として、パラメトリック増幅による任意電界波形の高強度化を試みている。来年度以降、電界波形に依存した高次非線形現象の観測とそれによる電界の直接測定に取り組む予定である。

(B) 低強度領域でのフーリエ合成任意電界波形の計測

また、フーリエ合成による任意電界波形を低強度領域で測定する手法として、同時発生周波数混合過程の干渉を利用した方法を確立した。タイミングと光波位相の同期した 2 波長フェ

ムト秒レーザー発振器からの 2 色のフェムト秒パルスに一方の 2 倍波を加えて、周波数比 $2\omega:3\omega:4\omega$ の合計 3 色のパルスを用意する。フーリエ合成点に薄い非線形結晶を配置すると、 $2\omega+4\omega$ の和周波過程と $3\omega \times 2$ の第二高調波過程が同時に発生し、両方の周波数混合波の波長がともに 6ω となることから、干渉が生じる。この干渉を測定することにより、3 色パルスの相対位相関係を決定することが可能となる。さらに、非線形結晶の位相整合角を変化させることにより、 $2\omega \times 2$ の第二高調波と 4ω 自身の干渉を得ることもでき、それらの位相関係の測定結果と別に測定された振幅情報を合わせて、合成波の電界波形を決定することができた[原著論文、産総研(2)]。電界波形の直接測定は、(A)の高強度化が待たれるが、電界波形に依存した現象と実際の波形との関連を探る上で有用な情報となる。

3. 研究実施体制

(1)「物性研」グループ

①研究分担グループ長： 渡部 俊太郎(東京大学、教授)

②研究項目

5 フェムト秒サブテラワットOPCPAシステムの開発
サブ 100 アト秒パルスの発生とアト秒時間分解分光

(2)「産総研」グループ

①研究分担グループ長： 鳥塚 健二(産業技術総合研究所、副部門長、グループリーダー)

②研究項目

OPO によるサブフェムト秒任意光電場波形生成とその計測
OPA 用光学素子開発及び位相制御

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表 (原著論文)

(1)「物性研」グループ

1. S. Adachi, N. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and S. Watanabe, "5-fs, multi-mJ, CEP-locked parametric chirped-pulse amplifier pumped by a 450-nm source at 1 kHz," *Optics Express*, Vol. 16, Issue 19, pp. 14341-14352 (2008)
2. N. Ishii, A. Kosuge, T. Hayashi, T. Kanai, J. Itatani, S. Adachi, and S. Watanabe, "Quantum path selection in high-harmonic generation by a phase-locked two-color field," *Optics Express*, Vol. 16, Issue 25, pp. 20876-20883 (2008)
3. C. Chen, G. Wang, X. Wang, Y. Zhu, Z. Xu, T. Kanai, S. Watanabe, "Improved Sellmeier equations and phase-matching characteristics in deep-ultraviolet region of $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ crystal," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 44,

Issue 7-8, pp. 617-621 (2008)

4. K. Ishizaka, R. Eguchi, S. Tsuda, A. Chainan, T. Yokoya, T. Kiss, T. Shimojima, T. Togashi, S. Watanabe, C. Chen, Y. Takano, M. Nagao, I. Sakaguchi, T. Takenouchi, H. Kawarada, S. Shin, "Temperature-dependent localized excitations of doped carriers in superconducting diamond," *Physical Review Letters*, Vol. 100, Issue 16, pp. 166402 (2008)
5. M. Matsunami, R. Eguchi, T. Kiss, K. Horiba, A. Chainani, M. Taguchi, K. Yamamoto, T. Togoshi, S. Watanabe, X. Wang, C. Chen, Senba, H. Ohashi, H. Sugawara, H. Sato, H. Harima, and S. Shin, "Anomalous duality of $4f$ electrons in filled skutterudite $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$," *Physical Review Letters* 102, 036403 (2009)
6. 足立 俊輔、渡部 俊太郎「パラメトリックチャープパルス増幅による、数サイクルテラワット級搬送波位相制御光源の開発」*レーザー研究*、37巻6号 (2009) (accepted)

(2) 「産総研」グループ

1. X. Zhou, D. Yoshitomi, Y. Kobayashi and K. Torizuka, "Generation of 28-fs pulses from a mode-locked ytterbium fiber oscillator," *Optics Express*, Vol. 16, No. 10, pp. 7055-7059 (2008).
2. D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, and K. Torizuka, "Characterization of Fourier-synthesized optical waveforms from optically phase-locked femtosecond multicolor pulses," *Optics Letters*, Vol. 33, Issue 24, pp. 2925-2927 (2008).
3. 吉富 大「アト秒精度光電場波形制御」*応用物理* 2009年2月号, pp 141

(2) 特許出願

平成20年度 国内特許出願件数：0件 (CREST 研究期間累積件数：0件)