

「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、昨年度までの研究により開発したキャリア・エンベロープ位相(CEP)を制御したTW級OPCPA(光パラメトリックチャープパルス増幅)システム(5.5 fs、2.7 W、1 kHz)の出力光を、パルスガスジェット中に集光することにより、著しいブルーシフトを観測し、更に短いサブ4 fsのパルスを得ることに成功した。この光源を用いて水の窓領域での高調波発生実験ならびに世界最短波長での高調波のCEP依存性の観測を行った。各種薄膜フィルターを用いることにより水の窓領域である~300 eVの高調波を確認した。また現在CEP依存性が確認されている13 nmよりはるかに短波長の軟X線領域(7 nm、180 eV近傍)でCEP依存性を観測した。これと改良した4fsレーザーを用いて180eV近傍で高調波を発生することにより、孤立サブ100アト秒パルスが可能となる。

### 【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。前年度までに、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、パルスエネルギー5μJの基本波と1μJの第二高調波パルス光源が得られていた。今年度は、チャープパルス増幅のストレッチ幅の増大と大

口径ファイバを用いたパワー増幅器の追加により、10 倍のパルスエネルギー $50\mu\text{J}$  への高出力化に成功した。また、ファイバレーザーの第二高調波を励起光源としたパラメトリック増幅による任意波形の高強度化に着手した。任意波形光源の一成分であるチタンサファイアレーザーに対して、100 倍程度の増幅を確認することができた。また、エンハンスメント共振器を用いた高繰り返しパルスによる高効率波長変換により、出力 1W の高繰り返し紫外パルス光源を実現した。今後はさらに、任意波形光源をマイクロジュールレベルまで増幅し、高強度電界波形の合成技術の確立と電界波形に依存した現象の観測による波形の直接測定をめざす。

## § 2. 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
  - (ア) 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
  - (イ) OPA用光学素子開発及び位相制御

## § 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する)

### 【物性研グループ】

#### (A) CEP 制御 TW 級 OPCPA 光源

昨年度までの研究により開発した、CEP制御TW級OPCPAシステム(7 fs、2 mJ、1 kHz)の出力光<sup>6)</sup>を希ガス(Ar)セルに集光することで、出力スペクトルの更なる広帯域化を実現した(下図左、赤線、フーリエ限界パルス幅 : 3.5 fs)。スペクトル拡がりが増加していることから、イオン化に伴う自由電子の生成による自己位相変調効果が主に寄与していると推測できる。また、希ガスセルのスループットが、希ガスのあり/なしで変化しなかったことから、自己収束効果やプラズマ生成によるビームの発散効果は小さく、スペクトル拡がりのみが実現されていることが分かった。このスペクトルブロードニング法は、従来のホローコアファイバーを用いた方法と比較して、エネルギースケールビリティがある点、そして希薄な希ガスを用いているのでその後の再圧縮が容易な点等、

これまででない特性を備えている。第二高調波自己参照法(SHG-FROG)によりパルスを評価し、チャープ鏡、ウェッジガラス対を用いてパルスの最適化を行うことで、3.8 fsのパルス幅を得た(図1右)<sup>9)</sup>。

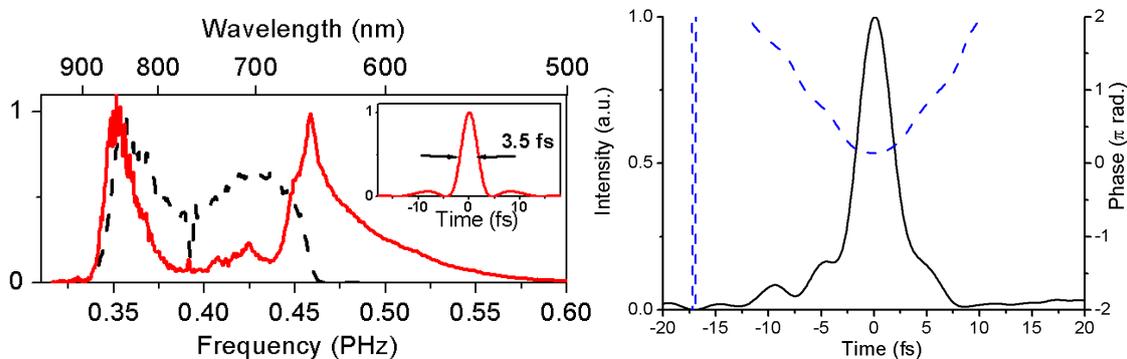


図1. 左、OPCPAからのスペクトル(黒点線)と非線形効果によりブロードニングしたときのスペクトル(赤実線)、右、再圧縮後の時間波形

#### (B) サブ 100 アト秒高調波パルス発生実験

当研究室において開発したOPCPAを用いたレーザーシステム(CEP安定化、1 kHz、2.7 mJ、5.5 fs、750 nm)を用いて水の窓領域の高次高調波発生の実験ならびに世界最短波長での高調波のCEP依存性の観測を行った<sup>7)</sup>。X線分光器並びに各種フィルターにより、水の窓の入り口である280 eVにおいて、高調波が発生していることを確認した。高調波は少なくとも300 eV程度までスペクトル成分が存在することが分かった。ただしCEPの効果はこのスペクトル領域では観測することは難しく、高調波強度の強い軟X線領域(180 eV、7 nm近傍)でのCEP観測を行った。この領域であっても、現在CEP依存性が検証されている極端紫外域(13 nm近傍)よりはるかに高エネルギー側であり、高調波のCEP依存性が確認することが出来る世界最短波長となる。図2は高調波のCEP依存性を示しており、CEPを保存、並びにコントロールしながら、高調波発生の実験を行うことが出来ることを確かめた。これと、改良した4fsレーザーにより、この波長域での孤立アト秒パルス発生が可能となる。

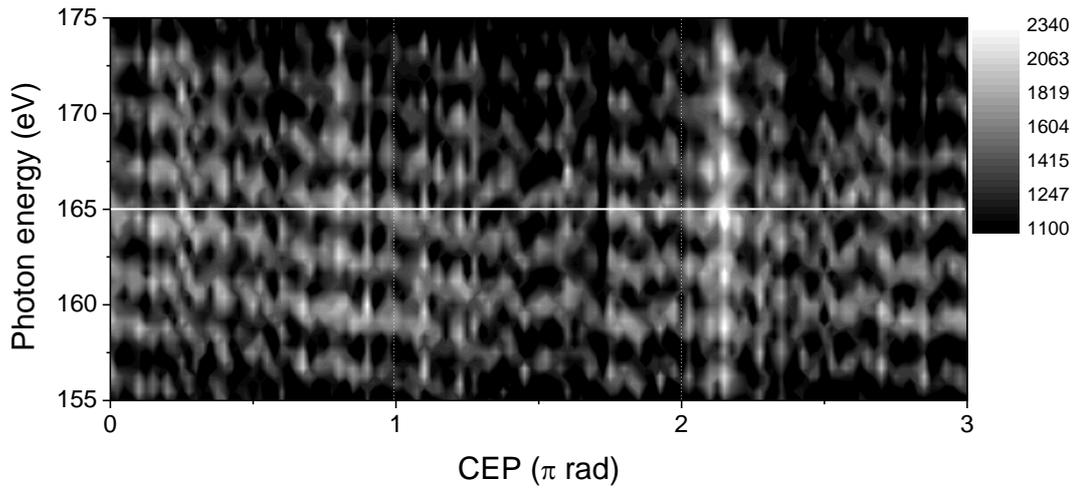


図 2. 高調波スペクトルの CEP 依存性

### (C) 固体光電子分光の研究

物性研辛研究室と共同開発した超高分解能光電子分光装置を用い、新奇超伝導体の電子状態を調べた。<sup>3,4,5,8)</sup>

#### 【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。前年度までに、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、パルスエネルギー $5\mu\text{J}$ の基本波と $1\mu\text{J}$ の第二高調波パルス光源が得られていた。今年度は、(A)Ybファイバレーザーのさらなる高出力化、(B)パラメトリック増幅による任意電界波形の高強度化、(C)エンハンスメント共振器による高繰り返し紫外パルス発生について、研究を行った。

#### (A)Ybファイバレーザーの高出力化

前年度のレーザーシステムでは、シード光不足と非線形効果によるパルス波形歪によってパルスエネルギーが制限されていた。今年度は、非線形効果抑制のために、ストレッチ幅を1nsまで伸ばし、さらに大口径(70ミクロン)のファイバを用いたパワー増幅器を追加した構成として、さらなる高出力化を図った。その結果、繰り返し0.4MHzにおいて、パルスエネルギーとして前年度の10倍の $50\mu\text{J}$ を得ることに成功した(図3)。パルス幅は、ほぼフーリエ限界で1.1psである。

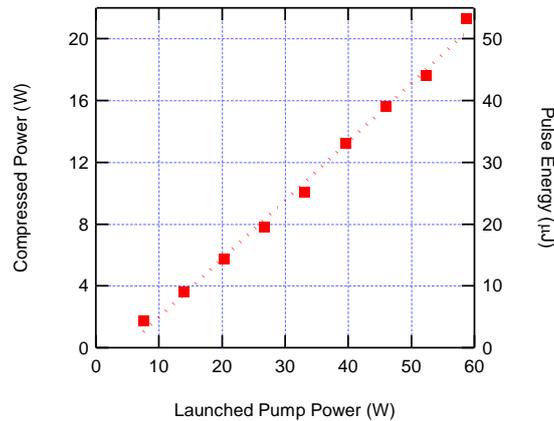


図 3. Yb ファイバレーザの出力特性

(B) パラメトリック増幅による任意電界波形の高強度化

前年度のシステムの第二高調波(パルスエネルギー $1\mu\text{J}$ )を励起光源として、任意波形光源の成分である波長  $850\text{nm}$  のチタンサファイアレーザー光をシードとしたパラメトリック増幅を行った。励起光とシード光を非線形結晶 BBO に同軸入射した。パルス幅の差異をなくして高効率に増幅を行うために、シード光をチャープさせてパルス幅を伸ばし(パラメトリックチャープパルス増幅)、100 倍程度の増幅を確認した。今後、本年度に高出力化したシステムからの励起光を用いて、マイクロジュールレベルまでの高強度化をめざす。

(C) エンハンスメント共振器による高繰り返し紫外パルス光発生

(B)の実験と並行して、エンハンスメント共振器で蓄積・増強された高繰り返し励起パルスを用いたパラメトリック増幅法を試みている。本方法では、低繰り返しの間引きとパラメトリック増幅を同時に行うことができるという利点がある。今年度は、予備段階として、エンハンスメント共振器内での高効率な第二高調波発生を行った。繰り返し  $100\text{MHz}$  の Yb ファイバレーザ増幅光(出力  $11.6\text{W}$ )の第二高調波(出力  $4\text{W}$ )をエンハンスメント共振器に注入する。共振器の鏡をピエゾで精密制御して、共振器縦モードを入射光の縦モードに一致させるよう同期制御を行うことにより、共振器内の光強度を増強させることが可能である。共振器内に非線形結晶(BBO)を配置し、第二高調波(Ybファイバーの4倍波、波長  $258\text{nm}$ )を高効率に発生させることができ、平均出力で  $1\text{W}$  を得た。変換効率では  $25\%$  を得た。基本波との交差相関により測定されたパルス幅は  $255\text{fs}$  である。 $100\text{MHz}$  高繰り返し領域でフェムト秒の紫外光源としては、知りうる限り最高出力である。

## § 4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報

- (1) Teruto Kanai, Xiaoyan Wang, Shunsuke Adachi, Shuntaro Watanabe, and Chuangtian Chen “Watt-level tunable deep ultraviolet light source by a KBBF prism-coupled device” *Optics Express*, Vol. 17, No. 10, 8696-8703 (2009), DOI: 10.1364/OE.17.008696
- (2) Yun Zhang, Yusuke Sato, Nobuyoshi Watanabe, Risky Ananda, Yoshiko Okada-Shudo, Masayohi Watanabe, Masaharu Hyodo, Xiaoyang Wang, Chuangtian Chen, Teruto Kanai, and Shuntaro Watanabe “Generation of quasi-continuous-wave vacuum-ultraviolet coherent light by fourth-harmonic of a Ti:sapphire laser with KBBF crystal” *Optics Express*, Vol. 17, No. 10, 8119-8124 (2009), DOI: 10.1364/OE.17.008119
- (3) Shunsuke TSUDA, Takayoshi YOKOYA, Takayuki KISS, Takahiro SHIMOJIMA, Kyoko ISHIZAKA, Shik SHIN, Tadashi TOGASHI, Shuntaro WATANABE, Chengqian ZHANG, Chuangtian CHEN, Izumi HASE, Hiroyuki TAKEYA, Kazuto HIRATA, and Kazumasa TOGANO “Strong-Coupling Superconductivity in Noncentrosymmetric Superconductor  $\text{Li}_2\text{Pd}_3\text{B}$  by Sub-meV Photoemission Spectroscopy” *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 78, No. 3, 034711-1-4 (2009), DOI: 10.1143/JPSJ.78.034711
- (4) K. Ishizaka, R. Eguchi, S. Tsuda, A. Chainani, T. Yokoya, T. Kiss, T. Shimojima, T. Togashi, S. Watanabe, C.-T. Chen, Y. Takano, M. Nagao, I. Sakaguchi, T. Takenouchi, H. Kawarada, and S. Shin, “Reply to: PRL 100, 166402 (2008) Temperature dependent localized excitations of doped carriers in superconducting diamond” *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 102, No. 19, 199702-1 (2009), DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.199702
- (5) T. Shimojima, K. Ishizaka, Y. Ishida, N. Katayama, K. Ohgushi, T. Kiss, M. Okawa, T. Togashi, X.-Y. Wang, C. -T. Chen, S. Watanabe, R. Kadota, T. Oguchi, A. Chainani, S. Shin “Orbital-dependent modifications of electronic structure across magneto-structural transition in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ” *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 104, 057002 (2010), DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.057002
- (6) 足立 俊輔、渡部 俊太郎「パラメトリックチャーブパルス増幅による、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*、Vol.37, No. 6, 420-424 (2009)
- (7) 石井順久、渡部俊太郎「高次高調波の短波長化と軟 X 線アト秒パルス発生」*レーザー研究*、Vol. 37, No. 12 (2009)
- (8) M. Taguchi, A. Chinani, M. Matsunami, R. Eguchi, Y. Takata, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, S. Tsuda, S. Watanabe, C.-T. Chen, Y. Senba, H. Ohashi, K. Fujiwara, Y. Nakamura, H. Takagi, and S. Shin “ Anomalous State Sandwiched between Fermi Liquid and Charge Ordered Mott-Insulating Phases of  $\text{Ti}_4\text{O}_7$ ” *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 104, 106401-1-4(2010), DOI:10.1103/PRL. 104. 106401
- (9) S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe “1.2-mJ,

sub-4-fs source at 1 kHz from an ionizing gas” *Opt. Lett.*, Vol.35, No. 7, 980-983 (2010), DOI: 10.1364/OL.35.000980

- (10) S. Adachi, N. Ishii, Y. Kobayashi, Y. Nomura, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe “Carrier envelope phase control of few-cycle parametric chirped-pulse amplifier” *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 49, No. 3, 032703 (2010), DOI: 10.1143/JJAP.49.032703