

「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 副所長/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

位相制御された 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。

物性研ではキャリアエンベロップ位相(CEP)を制御した 5 fs、サブテラワット OPCPA の開発を行った。前年度までに到達したパルス幅は 6.4 fs、平均出力は 1.2 W であった。パルス幅を短縮するために、OPCPA の励起波長を 400 nm から 450 nm に変えた。発振器の波長にあわせ、より広い増幅帯域を得るためである。これにより 5.5 fsまでパルス幅を短縮した。また励起エネルギーを 6 mJ から 7.5 mJに増強し、励起光の背景光を除去するなどの改良により 1.7 W の平均出力を得た。さらに励起光を 14 mJに増強することにより、3 W 以上の出力が見込める段階にある。CEP 制御は産総研の協力のもとに行い、ほぼ目標を達成しつつある。これを用いてサブ 100 アト秒を発生するためのチェンバーと光電子分光器を準備した。

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として取り組んでいる。平成19年度は、位相同期多波長パルスの増幅用励起光源として高平均出力Ybファイバレーザー増幅器の開発を行った。まず、シード光として、ファイバレーザーでは世界最短のパルス幅 28 フェムト秒のYbファイバ発振器を開発し、Ybファイバ増幅器により、繰り返し6MHz 及び 80MHz において、平均出力30Wを得ており、その一部を 120 フェムト秒まで圧縮することに成功した。発振器と多波長パルスとの間のタイミング同期を 3 フェムト秒の精度で実現した。また、物性研のOPCPA用発振器の高精度な位相制御を実現した。今後はYb増幅器による増幅光を波長変換し、OPAの励起に用いて、多波長パルスの高強度化をめざす。

## 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】

平成18年度の研究により、サブ7fs、1.2 mJ の OPCPA 出力を、1kHz の高繰り返しで得ることに成功した。平成19年度は、その OPCPA 出力の更なる短パルス化、高出力化、更にキャリアエンベロープ位相の制御を目指して研究を行った。図1に、システムの概略を示す。

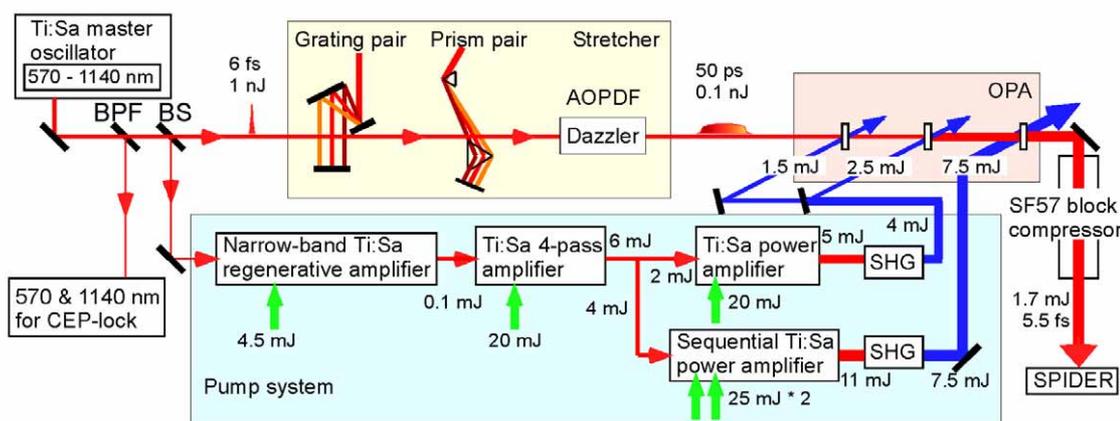


図1 システム概略

昨年度のシステムでは、チタンサファイアレーザー(800 nm)の2倍波(400 nm)を OPA のポンプ源としていたが、この場合、OPA の増幅帯域(520-750 nm)と、シード光として用いたチタンサファイア共振器の帯域(650-1000 nm)との重なりが悪いため、結果として OPCPA 出力パルスの帯域が制限されてしまうという欠点があった。我々は、ポンプ光の波長を長波長側にシフトさせることにより OPA の増幅帯域をも長波長側にシフトさせることができるという着想を得、実際にチタンサファイアレーザーの波長を 900 nm に変更し、その2倍波(450 nm)をポンプ光とした。その結果、OPCPA 出力の大幅な広帯域化に成功した。パルス圧縮後のパルス幅は 5.5fs となり、当初掲げていた「5 フェムト秒」の目標を達成することに成功した。またこれは、我々が昨年度に達成したOPCPAの世界最短パルス幅(6.4fs)を自ら更新したこともなっている。

次に高出力化については、チタンサファイアレーザーシステムのプリパルス抑制、またポンプ光パルス幅の最適化(100 ps→75 ps)等を行い、①チタンサファイア出力(900 nm)→2倍波(450 nm)、②2倍波→OPCPA 出力、の両段の変換効率を向上させることに成功した。その結果、出力エネルギーは 1.7mJ となり、パルス幅が 5.5fs であることと合わせると、パルスの尖頭強度は 0.31TW となっており、当初の「テラワット級」の目標も達成できた。それに加えて現在、チタンサファイアレーザーシステムの更なる高出力化も行っており、既にポンプ光(450 nm)出力強度を 7.5mJ→14mJ と大幅に増強できた。この場合、予想される OPCPA 強度は 3mJ を上回っている [2, 4]。

第3に、チタンサファイア共振器波長域の両端(1140 nm、570 nm)を用いて f-2f 干渉を行い、共

振器のキャリアエンベロープ位相(CEP)の制御を行った。干渉のビート信号の S/N 比は 35dB と非常に高く、これを用いて共振器の CEP を1時間以上の長時間に渡って制御することに成功した。更に、OPCPA システム全体の CEP が制御されていることも、外部干渉計により確認できた。

サブ 100 アト秒パルスの計測のために、光電子の収集角(60 度)の大きい光電子分光器を購入し、動作を確かめた。またサブ 100 アト秒計測のための光学部品やチェンバーを準備した。

また中国科学院 Chen 教授と共同開発した狭帯域 VUV 光源を用いた超高分解光電子分光により、物性研辛研究室と共同し、超伝導体の物性研究を行った [1, 3, 5~10]。

### 【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として取り組んでいる。本年度は、パラメトリック増幅による多波長パルスの増幅用の励起光源として、高繰り返し高平均出力 Ybファイバレーザー増幅器の開発を行った。シード光となる Ybファイバ発振器の開発及び多波長パルスとのタイミング同期についても成果が得られた。

前年度は Yb 増幅器のシード光としてチタンサファイアレーザーをフォトニック結晶ファイバで波長変換した光を用いたが、出力が弱く、さらなる高出力化には ASE が問題となっていたため、本年度は独自に Ybファイバレーザー発振器を開発した。波長 1000 nm-1120 nm の広帯域なスペクトルが得られ、パルス幅としてファイバレーザーでは世界最短の 28 フェムト秒が得られた(図2)[1]。

多波長パルスの増幅を目的として、多波長パルスの源であるチタンサファイアレーザーと Yb 発振器のタイミング同期を行った。チタンサファイアレーザーを Yb 発振器に注入し、非線形効果を用いて、受動的なタイミング同期を行った結果、和周波相関の揺らぎから測定したタイミングジッターは 3 フェムト秒であり、増幅には十分な同期精度が得られた(図 3)。

Yb 発振器をシード光として、高平均出力 Yb レーザー増幅器で増幅を行った。前年度(11W)に比べて高出力化を実現し、30W 以上の平均出力を得ることに成功

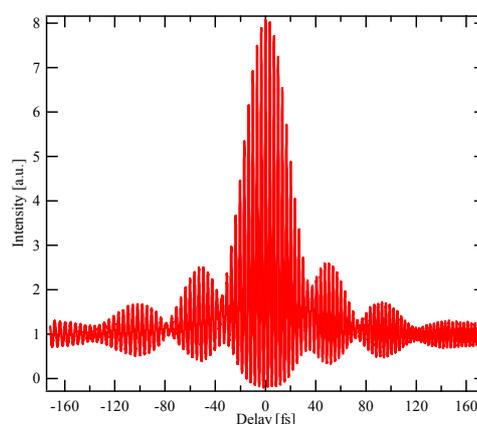


図2 Yb 発振器の出力パルス

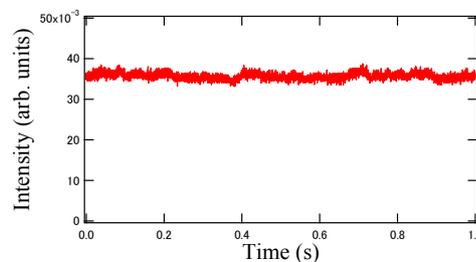


図3 同期タイミングジッター

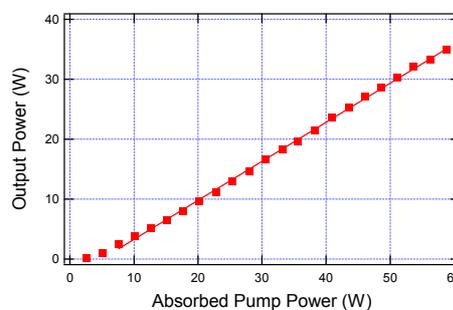


図4 Yb 増幅器の出力特性

した(図 4)。繰り返し80MHz では、現在、一部をパルス圧縮することにも成功しており、パルス幅120フェムト秒が得られている。また、繰り返し6MHz でも同様の出力が得られ、パルスエネルギー5 $\mu$ J が得られている。今後、波長変換を行い、励起光源として用いることにより、多波長パルスのパラメトリック増幅により高強度化を図る予定である。

### 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(東京大学物性研究所、副所長、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) K. Ishizaka, R. Eguchi, S. Tsuda, T. Yokoya, A. Chinani, T. Kiss, T. Shimojima, T. Togashi, S. Watanabe, C.-T. Chen, C.Q. Zhang, Y. Takano, M. Nagao, I. Sakaguchi, T. Takenouchi, H. Kawarada, and S. Shin “Observation of a Superconducting Gap in Boron-Doped Diamond by Laser-Excited Photoemission Spectroscopy” Phys. Rev. Lett., Vol. 98, 047003-1-4 (2007)
- 2) S. Adachi, H. Ishii, T. Kanai, N. Ishii, A. Kosuge, and S. Watanabe “1.5 mJ, 6.4 fs parametric chirped-pulse amplification system at 1 kHz” Optics Letters, Vol. 32, No. 17, 2487-2489 (2007)
- 3) T. Shimojima, Y. Shibata, K. Ishizaka, T. Kiss, A. Chainani, T. Yokoya, T. Togashi, X.-Y. Wang, C. T. Chen, S. Watanabe, J. Yamaura, S. Yonezawa, Y. Muraoka, Z. Hiroi, T. Saitoh, and S. Shin “Interplay of Superconductivity and Rattling Phenomena in  $\beta$ -Pyrochlore  $\text{KOs}_2\text{O}_6$  Studied by Photoemission Spectroscopy” Phys. Rev. Lett., Vol. 99, 11703-1-4 (2007)

- 4) X. Zhou, H. Lee, T. Kanai, S. Adachi, S. Watanabe “An 11-fs, 5kHz optical parametric/Ti:sapphire hybrid chirped pulse amplification system” *Appl. Phys. B*, Vol. 89, No. 4, 559-563 (2007)
- 5) S. Tsuda, T. Yokoya, T. Kiss, T. Shimojima, S. Shin, T. Togashi, S. Watanabe, C.Q. Zhang, C.T. Chen, S. Lee, H. Uchiyama, S. Tajima, N. Nakai and K. Machida, “Sub-meV resolution photoemission study on carbon substituted  $\text{MgB}_2$ ” *PHYSICA C: Superconductivity* Vol. 460-462, Part 1, 80-83 (2007)
- 6) T. Baba, T. Yokoya, S. Tsuda, T. Kiss, T. Shimojima, K. Ishizaka, S. Shin, H. Takeya, K. Hirata, T. Togashi, C. Zhang, C.T. Chen, S. Watanabe, “Laser-photoemission study of antiferromagnetic superconductor  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ” *PHYSICA C-Superconductivity and its applications*, Vol. 460, 634-635 (2007)
- 7) T. Baba, T. Yokoya, S. Tsuda, T. Kiss, T. Shimojima, K. Ishizaka, H. Takeya, K. hirata, T. Watanabe, M. Nohara, H. Takagi, N. Nakai, K. Machida, T. Togashi, S. Watanabe, X.-Y. Wang, C. T. Chen and S. Shin, “Bulk electronic structure of the antiferromagnetic superconducting phase in  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ” *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 100, 017003-1-4 (2008)
- 8) T. Kiss, T. Shimojima, K. Ishizaka, A. Chainani, T. Togashi, T. Kanai, X.-Y. Wang, C.-T. Chen, S. Watanabe, and S. Shin, “A versatile system for ultrahigh resolution, low temperature, and polarization dependent Laser-angle-resolved photoemission spectroscopy” *Review of Science Instruments* 79, 023106-1-7 (2008)
- 9) C. T. Chen, T. Kanai, X. Y. Wang, Y. Zhu, and S. Watanabe “High-average-power light source below 200 nm from a  $\text{KBe}_2\text{Bo}_3\text{F}_2$  prism-coupled device” *Optics Letters*, Vol. 33, No. 3, 283-284 (2008)
- 10) K. Ishizaka, T. Kiss, S. Izumi, M. Okawa, T. Shimojima, A. Chinani, T. Togashi, S. Watanabe, C.-T. Chen, X. Y. Wang, T. Mochiku, T. Nakane, K. Hirata and S. Shin “Doping-dependence of nodal quasiparticle properties in high- $T_c$  cuprates studied by laser-excited angle-resolved photoemission spectroscopy” *Phys. Rev. B* 77 064522 (2008)

(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* (submitted).