

渡部 俊太郎
東京理科大学 総合研究機構教授

「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

(A) 理科大・物性研グループ

物性研グループは光パラメトリック増幅(OPCPA)システムの開発、および、OPCPA からの高エネルギー超短パルスレーザーを用いた水の窓領域の搬送波包絡線位相依存する高次高調波ならびに孤立アト秒発生を目標としている。前年度に行った課題は OPCPA システムを用いた初めての水の窓領域のコヒーレント光発生、並びに、ドライブレザーの搬送波包絡線位相に依存する軟 X 線領域の高調波の観測であった。これらは全体として成功したが、同時に孤立アト秒パルス発生に必要なドライブレザーへの要求が高まり、更なる OPCPA システムの改良が必要となった。具体的には OPCPA システムの真空内での更なる短パルス化であり、真空中のガスターゲット内でのスペクトル広帯域化を用いて、mJ を越えるレーザーではもっとも短いパルス幅を発生することができた。また同時に、より短いアト秒パルスを計測するために不可欠な長周期アト秒パルスプローブ法を確立するために、差周波発生という技術を用いて、波長の長い電場を発生することに成功した。この差周波の出力を、バンド幅を保ったまま、OPA 増幅により高エネルギー化することに成功した。この発生した出力のスペクトルはオクターブ幅(1100 - 2200 nm)を有しており、これ自体でも近赤外より短い波長での高次高調波発生ならびに超短パルス軟 X 線発生を達成することが出来る。我々はこれらの技術を元にさらに研究を進めており、最終的にはこれらの OPCPA システムとその改良により、もっとも波長の短い領域における世界最短孤立アト秒パルスを発生することを目指す。

また開発した高次高調波を用い、100 fs 以下の分解能で軟x線固体光電子分光を初めて実証した。

(B) 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。前年度までに得られたパルスエネルギー50 μJ の Yb ファイバレーザー増幅システムを励起光源として用いて、今年度は、多色パラメトリック増幅による多波長位相同期パルス(任意波形レーザー)の高強度化を試みた。現在、2 色の

光でサブ μJ の増幅パルスが得られている。また、安定した増幅を得るために、シード光となる多波長パルス光と励起光となるファイバレーザ光の間で、8 時間以上安定な高精度タイミング同期を実現した。一方、新しい方法として、エンハンスメント共振器を用いたパラメトリック増幅を試み、その予備段階として、ファイバレーザ第二高調波のエンハンスメント共振器への蓄積を検証した。今後、サブ μJ の多色パルスを電界合成する技術を確立し、電界波形に依存した現象の観測による電界波形の直接測定、及び任意電界による電子波束制御の可能性を探る。

§2. 研究実施体制

(1)「理科大」グループ(研究機関別)

①研究分担グループ長: 渡部俊太郎(東京理科大学、教授)

②研究項目

- 近赤外 OPCPA による高調波発生ならびにイオン化したガスにおけるパルス圧縮
- 長周期ストリーク用光源開発のための差周波発生並びに増幅、パルス圧縮方法の開発
- 高次高調波の固体光電子分光への応用

(2)「物性研」グループ(研究機関別)

①研究分担グループ長: 板谷 治郎(東京大学物性研究所、准教授)

②研究項目

- 近赤外 OPCPA による高調波発生ならびにイオン化したガスにおけるパルス圧縮
- 長周期ストリーク用光源開発のための差周波発生並びに増幅、パルス圧縮方法の開発
- 高次高調波の固体光電子分光への応用

(3)「産総研」グループ(研究機関別)

①研究分担グループ長: 鳥塚 健二 (産業技術総合研究所、光技術研究部門、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

§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)

(A) 理科大・物性研グループ

前年度に行った課題(OPCPA システムを用いた初めての水の窓領域のコヒーレント光発生、並びに、ドライブレーザーの搬送波包絡線位相に依存する軟 X 線領域の高調波の観測)からのフィードバックを OPCPA ドライバーレーザーに生かし、アト秒パルス発生に必要なシステムの改良ならびにアト秒パルス計測のための予備実験を行った。具体的には OPCPA システムの真空内での更なる短パルス化であり、真空中のガスターゲット内でのスペクトル広帯域化を用いて、mJ を越えるレーザーではもっとも短いパルス幅を発生することができた。またより短いアト秒パルスを計測するために不可欠な長周期アト秒パルスプローブ法を確立するために、差周波発生という技術を用いて、中赤外領域の波長の長い電場を発生することに成功した。この差周波の出力を、バンド幅を保ったまま、OPA 増幅により高エネルギー化することに成功した。この発生した出力のスペクトルはオクターブ幅(1100 - 2200 nm)を有しており、これ自体でも中赤外領域での最短サイクルパルス発生を達成することが出来、かつ高強度物理のドライバーとして非常に有望なレーザーとなっている。

(A-1) イオン化した気体内のスペクトル広帯域化を用いた 3.8 fs, 1.2 mJ, 1 kHz, 750 nm 近赤外パルス発生¹⁾

前年度に行ったドライブレーザーの搬送波包絡線位相に依存する軟 X 線領域の高調波の観測により、従来開発した OPCPA 系のままではパルス幅が長く、それ単体では孤立アト秒パルスを発生することが困難であることが判明した。このため、高調波発生実験中に観測されたスペクトル広帯域化に注目し、このイオン化している気体(アルゴン)中の広帯域化と合わせて、チャープミラーペアーを用いた真空中でのパルス圧縮に成功した。この世界にも新しい方法によって 3.8 fs, 1.2 mJ のパルスが得られた。このパルスは mJ レベルではもっとも短く、これを用いた搬送波包絡線位相敏感高調波発生実験を行い、ヘリウムを用いた高調波発生における 180eV 程度のカットオフエネルギー近傍でのコンティニュームを観測するために実験を計画しているところである。このコンティニュームが発生すれば世界最短波長のアト秒パルス発生を示唆しており、世界最短波長、最短パルス幅のアト秒パルス発生に結びつく。

(A-2) OPCPA からの出力パルスの搬送波包絡線位相の安定化実験²⁾

搬送波包絡線位相に依存する軟 X 線領域の高調波の解析に基づいて、ドライブレーザーの搬送波包絡線位相がショットごとに完全に安定化しているわけではないことが明らかになった。これを改善するためにオシレーター励起レーザーから始まり、OPCPA 各所において搬送波包絡線位相の安定化の程度を評価した。これは OPCPA システムにおいてははじめての系統的な搬送波包絡線位相の安定化の検証であり、これなしでは OPCPA の搬送波包絡線位相安定化を完全に

行うことは出来なかった。これにより、搬送波包絡線位相が一般のチャープパルス増幅とパルス圧縮を組み合わせた系と同程度に安定化され、アト秒パルス発生のためのドライバーレーザーとしての条件を完全に満たすことが確認された。

(A-3) BIBO 結晶と 800 nm レーザーを用いた、搬送波包絡線位相自動安定化オクターブ差周波光の光パラメトリック増幅³⁾

現在極端紫外光パルスの最短幅は 80 アト秒に達しており、その計測は光ストリーク法という電場敏感なクロスコリレーションの一種で行っている。この光ストリーク法は、現在のところ、極端紫外光と 800 nm のレーザーのクロスコリレーションで行われている。しかし、この方法では現在の最短パルス幅 80 アト秒程度が測定の限界であり、測定方法が最短パルス幅の計測を妨げている。このため我々は超短パルス出力の差周波をとり、高エネルギーの中赤外光を発生させ、これをアト秒パルスのストリーク電場として用いることにより、より短いアト秒パルスを計測できることに着目し、予備実験を行った。チタンサファイアの出力をフィラメンテーションで広帯域化した後その青成分と赤成分の差周波成分を生成することにより、オクターブ以上に広いスペクトルを有する中赤外光の発生に成功した。この差周波発生の特長は自動的に差周波の搬送波包絡線位相が安定化することにある。ただし出力は 100 nJ にとどまりストリーク電場に使用できないために残りのチタンサファイアレーザー (800 nm) と BIBO という特殊な結晶を用いることにより、オクターブスペクトルを保ったまま増幅することに成功した。現在のところ 10 μ J の出力が得られている。これは単色励起 OPA における最大バンド幅の増幅であり、これ自体をドライブレーザーとして考えることも出来る。測定可能な最短パルス幅は 20 アト秒以下であり、これは現在の最短パルス幅の 1/4 である。また更なる増幅をした後この中赤外光を用いることにより、高調波のカットオフは水の窓の入り口 (284 eV) をはるかに越え、keV に達する可能性がある。この実験により、長周期ストリークの電場発生が足がかりとなり、かつ今後の発展を望めるドライブレーザーへの新たな可能性を見出した。

(A-4) 高次高調波の固体光電子分光への応用

チタンサファイアレーザーの 2 倍波とその 19 次高調波 (60 eV) をポンププローブとし、TaS₂ の光誘起相転移の時間分解光電子分光を行った⁵⁾ (物性研辛研との共同研究)。これは 100 fs 以下の分解能で行われた軟x線分光の最初の例であり、注目を浴びた。また固体光電子分光用準CW光源を開発した⁴⁾ (物性研小林研との共同研究)。

(B) 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。前年度までに得られたパルスエネルギー 50 μ J の Yb ファイバレーザー増幅システムを励起光源として用いて、今年度は、多色パラメ

リック増幅による多波長位相同期パルス(任意波形レーザー)の高強度化を試みた。また、安定した増幅を得るために、シード光となる多波長パルス光と励起光となるファイバレーザー光の長期安定な高精度タイミング同期を実現した。一方、新しい方法として、エンハンスメント共振器を用いたパラメトリック増幅を試み、その予備段階として、ファイバレーザー第二高調波のエンハンスメント共振器への蓄積を検証した。

(B-1) チタンサファイアレーザーとファイバレーザーの長期安定高精度タイミング同期

多波長位相同期パルスの一色であるチタンサファイアレーザーと Yb ファイバレーザーの長期安定高精度タイミング同期を行った。チタンサファイアレーザー光を Yb ファイバレーザーの発振器内に注入し、受動的なタイミング同期を行う。同期精度を発振器及び各増幅段、パラメトリック増幅の各箇所と和周波の揺らぎを計測することで評価した。タイミングジッター(周波数 1 Hz~0.2 MHz)は、発振器において、1.4 fs であり、増幅系の光路揺らぎにより、パラメトリック増幅の地点においては、42 fs となっていたが、パラメトリックチャープパルス増幅におけるパルス幅(1ps 程度)に比べて、問題とはならないレベルであることが分かった。長時間安定性に関しては、8 時間以上の安定性を確認した⁷⁾。

(B-2) 多色パラメトリック増幅により任意波形レーザーの高強度化

多波長位相同期パルスの多色パラメトリック増幅による任意波形レーザーの高強度化を行っている。まず、パルスエネルギー 50 μJ の Yb ファイバレーザーからの基本波を第二高調波変換し、18 μJ の励起パルスを得た。これらのうち、約 5 μJ ずつを 3 色の位相同期パルス(2ω 、 3ω 、 4ω)の励起光に用いる計画である。現在のところ、波長 850 nm(3ω)と波長 637 nm(4ω)の 2 色パルスの増幅に成功している。増幅率としては、それぞれ 1000 倍、30000 倍(ダブルパス)を得ており、パルスエネルギーとしてはどちらも 0.25 μJ 程度(変換効率 5%程度)となっている。増幅前に回折格子でパルス幅をストレッチし、増幅後 SF57 ガラスブロックでパルス圧縮を行うパラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)の手法を用いており、 3ω 、 4ω の 2 色に対して、それぞれ、130 fs、270 fs まで圧縮できている。波長 1275 nm(2ω)のパルスの増幅を現在、進めている。

(B-3) エンハンスメント共振器を用いたパラメトリック増幅

新しい方法として、エンハンスメント共振器に励起光を蓄積して、パラメトリック増幅を行う手法を試みている。Yb ファイバレーザーの第二高調波を入射カプラーよりエンハンスメント共振器に入射し、共振器長を Yb ファイバ発振器の繰り返し周波数でロックすることにより、共振器に蓄積させ、内部平均光強度の増強を実現できる。共振器内部ロスの抑制と入射カプラー透過率の最適化により、最大増強率 43 が得られ、最大内部パワーでは 160W を得た。パルスエネルギーとしては、1.6 μJ に相当する。今後、共振器内の集光部分に非線形結晶を入れ、外から低繰り返しシード光を非同軸で入射させ、パラメトリック増幅を試みる⁶⁾。

§4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

- [1] 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, pp. 980-983, (2010) (DOI: 10.1364/OL.35.000980)
- [2] 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, 032703-1-4 (2010) (DOI: 10.1143/JJAP.49.032703)
- [3] N. Ishii, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, “Carrier-Envelope-Phase-Preserving, Octave-Spanning Optical Parametric Amplification in the Infrared Based on BiB3O6 Pumped by 800 nm Femtosecond Laser Pulses,” *Appl. Phys. Express*, 4 (2011) 022701-1-3 (DOI: 10.1143/APEX.4.022701)
- [4] N. Kuse, N. Yutaka, A. Ozawa, M. Kuwata-Gonokami, S. Watanabe, and Y. Kobayashi, “Self-compensation of third-order dispersion for ultrashort pulse generation demonstrated in an Yb fiber oscillator,” *Opt. Lett.* 35, 3868-3870 (2010). (DOI:10.1364/OL.35.003868)
- [5] K. Ishizaka, T. Kiss, T. Yamamoto, Y. Ishida, T. Saitoh, M. Matsunami, R. Eguchi, T. Ohtsuka, A. Kosuge, T. Kanai, H. Takagi, S. Watanabe, and S. Shin, “Femtosecond core-level photoemission spectroscopy on 1T-TaS₂ using a 60-eV laser source” *Phys. Rev. B* 83,081104-1-4(R) (2011) (DOI:10.1103/PhysRevB.83.081104)
- [6] Xiangyu Zhou, Dai Yoshitomi, Yohei Kobayashi, and Kenji Torizuka, “1 W average-power 100 MHz repetition-rate 259 nm femtosecond deep ultraviolet pulse generation from ytterbium fiber amplifier,” *Optics Letters*, vol. 35, No. 10, pp.1713-1715, 2010 (DOI:10.1364/OL.35.001713)
- [7] Dai Yoshitomi, Xiangyu Zhou, Yohei Kobayashi, Hideyuki Takada, and Kenji Torizuka, “Long-term stable passive synchronization of 50 μ J femtosecond Yb-doped

fiber chirped-pulse amplifier with a mode-locked Ti:sapphire laser,” *Optics Express*, vol. 18, No. 25, pp.26027-26036, 2010 (DOI:10.1364/OE.18.026027)