

## 1 keV領域での高次高調波発生とアト秒軟X線分光への展開

High harmonic generation in the 1-keV region and their application to attosecond soft-X-ray spectroscopy

板谷 治郎 (ITATANI JIRO)

東京大学・物性研究所・准教授



### 研究の概要

赤外域で位相制御された高強度極短パルスレーザーを開発し、高次高調波発生で得られるコヒーレント短波長光の波長域を、極紫外（光子エネルギー200eV以下）から軟X線まで拡大します。得られた軟X線パルスを用いて、気相の原子・分子だけでなく凝縮系も対象としたアト秒軟X線分光法を開拓します。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用工学・量子光工学

キーワード：量子エレクトロニクス

### 1. 研究開始当初の背景

高強度レーザー技術の進展によって、「高次高調波」と呼ばれるコヒーレントなアト秒パルス光の発生が近年になって実現されました。しかし、アト秒パルス光の実用的な波長領域は10ナノメートル前後に止まっています。これは、高次高調波の最短波長がレーザー波長の二乗に反比例しており、従来型の高強度レーザー光源の波長は可視域から近赤外域にあるためです。より長い波長領域（赤外から中赤外）での高強度レーザーは長く望まれていた光技術ではありますが、そのための手法は確立していませんでした。

### 2. 研究の目的

本研究では赤外線領域における新規な高強度超短パルスレーザー光源を開発することによって、従来型レーザー光源による短波長限界の壁を打破し、高次高調波の波長域を1ナノメートル程度（光子エネルギー1keV程度に相当）まで拡大させます。それによって、アト秒精度の時間分解能をもつ超高速軟X線分光法を実現させます。光子エネルギー1keV付近までの軟X線は物質との相互作用が強く、軽元素や遷移金属元素の吸収端をカバーしているという特徴があります。この特徴を利用して、特定の元素を含む物質の励起状態の動的過程を、フェムト秒からア

ト秒という極めて短い時間精度で観測する手法を実現させます。特に、気相分子を対象としてアト秒分光法の実証実験を進めながら、未踏分野である凝縮系を対象としたフェムト秒からアト秒領域での超高速分光法の確立を目指します。

### 3. 研究の方法

申請者らが近年原理実証に成功した、赤外領域での超広帯域チャープパルス光パラメトリック増幅法に基づき、中心波長1600nmの高強度赤外レーザー光源を開発しています。本光源は、チタンサファイアレーザー発振器と増幅器をベースとしたものであり、この出力光を波長変換後に光パラメトリック増幅することによって、単一サイクルに近い極限的な高強度超短パルス光を発生させます。また、超高速分光への応用として重要な、高い繰り返し（1kHz）と高度な位相制御性を実現させます。この光源を用いることによって、光子エネルギー0.5keV程度までのコヒーレントなアト秒軟X線パルスを発生させます。このアト秒軟X線パルスを用いて気相分子を対象としたアト秒光電子分光を行い、気相分子の光励起に伴う電子緩和過程の解明を行います。さらに、気相分子のアト秒分光で確立した実験手法を凝縮系に拡大し、フェムト秒からアト秒領域での時

間分解光電子分光および吸収分光を実現させます。

さらに、高次高調波の波長域を光子エネルギー1keV程度まで拡大させるために、波長3000nm付近の高エネルギー中赤外チャープパルス光パラメトリック増幅器を開発し、遷移元素などの吸収分光を目指します。

#### 4. これまでの成果

BIBO結晶を用いた超広帯域チャープパルス光パラメトリック増幅システムを開発し、位相安定でパルスエネルギー0.5mJ、パルス幅9fsの出力を達成しました。このパルス幅の中には、光電場の振動は2サイクル以下しか含まれておらず、極限的に制御された光電場波形といえます。この光源を用いることにより、高次高調波の光子エネルギー範囲が330eVまで拡大しました。また、スペクトルに現れる「ハーフサイクルカットオフ」と呼ばれる構造がシミュレーションとよく一致することから、アト秒オーダーの軟X線パルスが炭素のK吸収端付近で発生していることが推測されています。

また、原子や分子のアト秒スケールのダイナミクスを観測するための要素技術として、高強度テラヘルツ電磁場による分子の配向と、数サイクルの高強度光電場でイオン化する電子の光電子スペクトルの測定を行いました。直線偏光の高強度赤外光電場中で光電子は振動運動をしますが、そのさいに親イオンに衝突して弾性散乱されます。この散乱電子のもつ運動エネルギーが、電子の衝突するタイミングとアト秒精度で同期していることを見出しました。

#### 5. 今後の計画

今後はレーザーの高出力化などのアップグレードを進めながら、気相原子・分子のアト秒からフェムト秒の分光手法の開発をすすめます。また、固体にフェムト秒のレーザーパルス（ポンプ光）とアト秒の軟X線パルス（プローブ光）を照射できるビームラインを開発し、超高速軟X線吸収分光の確立を目指します。

#### 6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

1. C. Zhou, T. Seki, T. Kitamura, Y. Kuramoto, T. Sukegawa, N. Ishii, T. Kanai, J. Itatani, Y. Kobayashi, and S. Watanabe, "Wavefront analysis of high-efficiency, large-scale, thin

transmission gratings", *Opt. Express* 22, 5995-6008 (2014).

2. N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses", *Nature Commun.* 5, 3331-1-6, (2014).
3. K. Kitano, N. Ishii, N. Kanda, Y. Matsumoto, T. Kanai M. Kuwata-Gonokami, and J. Itatani, "Orientation of jet-cooled polar molecules with an intense single-cycle THz pulse", *Phys. Rev. A* 88, 061405(R)-1-5 (2013).
4. N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 1.6  $\mu\text{m}$  from a  $\text{BiB}_3\text{O}_6$  optical parametric chirped-pulse amplifier", *Opt. Lett.* 37, 4182-4184 (2012).
5. N. Ishii, S. Adachi, Y. Nomura, A. Kosuge, Y. Kobayashi, T. Kanai, J. Itatani, and S. Watanabe, "Generation of soft x-ray and water window harmonics using a few-cycle, phase-locked, optical parametric chirped-pulse amplifier", *Opt. Lett.* 37, 97-99 (2012).
6. N. Ishii, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "CEP-preserving, octave-spanning OPA in the infrared based on  $\text{BiB}_3\text{O}_5$  pumped with 800-nm laser pulses", *Appl. Phys. Express*, 4, 022701-1-3 (2011).

ホームページ等

<http://itatani.issp.u-tokyo.ac.jp/index.html>

[jjitatani@issp.u-okyo.ac.jp](mailto:jjitatani@issp.u-okyo.ac.jp)