



## 次世代高強度赤外レーザーによる「水の窓」領域のコヒーレント軟 X 線パルス発生に成功 —軟 X 線領域でのアト秒分光へ—

### 1. 発表者:

石井 順久 (東京大学物性研究所 助教)  
金島 圭佑 (東京大学理学系研究科物理学専攻 修士課程)  
北野 健太 (東京大学物性研究所 学振特別研究員)  
金井 輝人 (東京大学物性研究所 技術専門職員)  
渡部 俊太郎 (東京理科大学総合研究機構 教授)  
板谷 治郎 (東京大学物性研究所 准教授)

### 2. 発表のポイント:

- 光電場の振動の二周期以下の持続時間をもつ高強度赤外パルス光源の開発に成功
- 高強度赤外光パルスを希ガスに集光することにより、「水の窓」領域(注 1)での単一コヒーレント軟 X 線パルス発生に成功
- 軟 X 線領域でのアト秒分光(注 2)の実現への第一歩

### 3. 発表概要:

光子の吸収によって引き起こされる非平衡状態は、熱的な平衡状態では到達できない選択的な高い励起状態にあり、さまざまな超高速の緩和過程を経て、もとの基底状態に戻ったり、あるいは新しい状態に変化したりします。このような一連の変化する過程を観測することは、光と物質との相互作用の素過程の理解に役立つだけでなく、光合成や光触媒、太陽電池などの光を利用した物質機能のより深い理解につながります。特に電子の励起に伴う緩和過程の時間スケールは、フェムト秒( $\sim 10^{-15}$  秒)からアト秒(注 2) ( $\sim 10^{-18}$  秒)にありますが、可視域のフェムト秒レーザーを用いた実験では時間分解能が 10 フェムト秒程度( $10^{-14}$  秒)であり、励起過程に伴う電子状態の変化を直接観測することは困難でした。

これまでに、高強度レーザーを原子や分子に集光して得られる「高次高調波」(注 3)と呼ばれるコヒーレントな短波長光を用いて、極紫外(光子エネルギー  $< 200$  電子ボルト)でのアト秒パルス光発生が実現しており、原子や分子のアト秒分光法が進展しています。もし高次高調波の波長域を極紫外から軟 X 線へ広げることができれば、放射光で広く用いられている「元素の吸収端」を利用した軟 X 線分光をコンパクトなレーザー装置で実現出来ることになり、元素選択性を備えた新しい超高速分光手法が期待できます。

東京大学物性研究所の板谷准教授らは、東京理科大学総合研究機構の渡部俊太郎教授と協力して、中心波長 1.6  $\mu\text{m}$ 、パルスエネルギー 0.55 mJ、パルス幅 10 フェムト秒、繰り返し周波数 1 kHz の出力をもつ次世代赤外光源の開発に成功しました。この光源の大きな特徴は、パルスの持続時間がきわめて短く、光パルスを構成する光電場が数周期の振動のみからなっており、その電場波形が完全に制御されていることです。この新型光源を用いて高次高調波発生実験を行い、世界で初めて、「水の窓」と呼ばれる軟 X 線領域で、光の電場波形に敏感なコヒーレント軟 X 線発生を観測しました。この成果は、軟 X 線領域での孤立単一アト秒パルス発生を間接的に示すものであり、軟 X 線領域でのアト秒分光法の実現につながる重要なステップといえます。

本研究の成果は、Nature Communications (2月18日付)に掲載されました。

#### 4. 発表内容:

##### ① 研究の背景と問題点

1990年代以降、チタンサファイアレーザー(注4)を用いた高強度レーザー技術が飛躍的に発展しました。チタンサファイアレーザーからの高強度光パルスを原子に集光すると、「高次高調波」と呼ばれるコヒーレントな短波長光が発生します。2001年に高次高調波による極紫外でのアト秒パルス光発生が実現し、その応用実験が盛んに行われるようになりました。しかし、アト秒パルス光発生から10年以上経った現在でも、アト秒パルスの光子エネルギーは極紫外に留まっています。この限界は、チタンサファイアレーザーの発振波長が近赤外(波長 0.8  $\mu\text{m}$ )にあるためです。より長波長の高強度超短パルスレーザーを実現出来れば、アト秒パルスの波長域を極紫外から軟 X 線へと拡大できることは理論的には予想されていました。しかし、波長の長い次世代赤外光源はさまざまな技術的困難から実現されていませんでした。

##### ② 研究内容

東京大学物性研究所板谷研究室では、東京理科大学総合研究機構の渡部俊太郎教授と協力し、中心波長 1.6  $\mu\text{m}$ 、パルスエネルギー0.55 mJ、パルス幅 10 フェムト秒、繰り返し周波数 1 kHz の出力をもつ高安定な光パラメトリックチャープパルス増幅器(注5)の開発に成功しました(図 1a 参照)。この光源の大きな特徴は、パルスの持続時間がきわめて短く、光パルスを構成する光電場が 2 周期以下の振動のみからなっており、その電場波形が完全に制御されている(キャリア・エンベロープ位相(注6)が一定である)ことです(図 1b, 図 1c 参照)。電場波形が完全に制御された高強度赤外光パルス光源は世界でも珍しく、また信頼性や安定性の問題から、実際に電場波形を保存したまま高次高調波発生に成功した例はありません。この次世代赤外光源を用いて、世界で初めて、「水の窓」と呼ばれる分光応用上重要なスペクトル領域で、赤外光の電場波形に敏感なコヒーレント軟 X 線高調波を観測しました。得られた高次高調波のスペクトルを図 2 に示します。軟 X 線パルスのスペクトルは光子エネルギー325 eV 程度まで続いており、炭素を含む薄膜フィルターを光路に入れることにより、炭素の K 吸収端(光子エネルギー284 eV)を明瞭に観測することができました。

これまでに世界でもいくつかの研究グループによって軟 X 線領域での高次高調波発生の報告はありましたが、発生した軟 X 線の時間コヒーレンスの有無は実験的に確認されていませんでした。今回の実験では、図 3a に示されるように、軟 X 線領域の高次高調波が高強度赤外光電場の波形に強く依存することが見いだされました。図 3b は理論的に計算された高次高調波スペクトルの電場波形依存性を示しており、実験と理論が非常に一致を示しています。この高次高調波の電場波形依存性に関する実験と理論計算の合致から、発生した軟 X 線の時間コヒーレンスが保たれていることがわかります。観測されたスペクトル強度(スペクトル幅 75 eV)と理論が予想するスペクトル位相との対応関係により、発生した軟 X 線パルスは図 3c に示すようなアト秒パルスであることが予測されます。この成果は、軟 X 線領域でのアト秒パルス発生とその分光応用につながる重要なステップです。

##### ③ 社会的意義・今後の予定など

今後は、赤外光源の高強度化と合わせて、発生した軟 X 線パルスの時間波形を計測し、アト秒パルス発生の実証を行う予定です。それと同時に、酸素の K 吸収端(波長 2.3 nm)を目指してより短波長領域での軟 X 線パルス発生も目指します。アト秒軟 X 線パルスの分光応用として、軟 X 線領域でのアト秒から数フェムト秒領域の超高速分光法の確立を目指します。軟 X 線領域は元素選択性が高いため、物質を構成する特定元素の化学結合等の電子状態とその変化を、直接観測する手法につながると期待できます。

近年、X 線自由電子レーザー(XFEL)に代表されるように、大型放射光施設において X 線領域での非線形分光や超高速分光が盛んになっています。本研究で開発された高次高調波光源は XFEL と異なる光の性質をもつことから、今後の短波長域での分光手法の発展において、相補的な役割を果たしていくことが期待されます。

## 5. 発表雑誌:

発表雑誌:「Nature Communications」(2月18日)

論文タイトル:Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses

著者:Nobuhisa Ishii, Keisuke Kaneshima, Kenta Kitano, Teruto Kanai, Shuntaro Watanabe, and Jiro Itatani

DOI番号:10.1038/ncomms4331

アブストラクト: <http://www.nature.com/ncomms/2014/140218/ncomms4331/full/ncomms4331.html>

## 6. 問い合わせ先:

東京大学物性研究所板谷研究室

助教 石井順久 [ishii@issp.u-tokyo.ac.jp](mailto:ishii@issp.u-tokyo.ac.jp)

准教授 板谷治郎 [jjtatani@issp.u-tokyo.ac.jp](mailto:jjtatani@issp.u-tokyo.ac.jp)

TEL: 04-7136-3535

FAX: 04-7136-3552

## 7. 用語解説:

(注1) 水の窓

炭素の K 吸収端(光子エネルギー284 eV、波長 4.4 nm)から、酸素原子の K 吸収端(光子エネルギー540 eV、波長 2.3 nm)の間の軟 X 線に存在するスペクトル領域。このスペクトル領域では、水分子が軟 X 線をほとんど吸収しない一方で、炭素原子が強く軟 X 線を吸収するので、水和した生体分子を直接観測することが古くから期待されている。

(注2) アト秒

$1.0 \times 10^{-18}$  秒。1 アト秒と1秒の比は1秒と317億年(宇宙の年齢の倍)の比に等しい。水素の 1S 軌道を電子が一周する時間は約150アト秒。アト秒パルスによって電子の実時間運動が追跡可能となる。

(注3) 高次高調波

高強度レーザーパルスを原子や分子に  $10^{14} \text{W/cm}^2$  以上の強度で集光することによって得られる広帯域短波長光。時間的にも空間的にもコヒーレント(可干渉性をもつ)という性質から、可視域の光電場の一周期よりも短いアト秒領域の極短パルス発生手法として利用することが出来る。

(注4) チタンサファイアレーザー

サファイア結晶中にチタンの三価イオンを添加したレーザー結晶。近赤外域(波長 0.8  $\mu\text{m}$ )付近で広い利得帯域を示し、超短パルスの発生と増幅に広く用いられている。

(注5) 光パラメトリックチャープパルス増幅法

反転対称性を持たない光学結晶中を伝搬する光波同士が非線形に結合し、エネルギーのやりとりを行う過程を利用して、光を増幅する手法を光パラメトリック増幅法と呼ぶ。このうち、とくに、結晶が励起光によって損傷しないよう、伝搬する光パルスの時間幅が広がるように操作させる手法。従来のレーザー増幅とは異なり、レーザー媒質の反転分布を利用していないため、結晶の角度や入射パルスの波長などを適切に選択することによって、赤外領域で広帯域な利得帯域をもつことができる。

(注6) キャリア・エンベロープ位相

光パルスは、振動する光電場(搬送波)と、その包絡線から構成されている。電場振動の包絡線と、内部の振動電場との時間的なずれを、キャリア・エンベロープ位相と呼ぶ(図 1b, c 参照)。キャリア・エンベロープ位相を固定すると、全く同じ光電場から構成される光パルスを発生させることができる。

8. 添付資料:

図 1: 開発された次世代高強度赤外レーザー。(a)光パラメトリックチャープパルス増幅器を用いた赤外光源の概略図。(b, c)出力パルス波形。(b)と(c)は同一包絡線で電場波形の異なる二つの出力例。

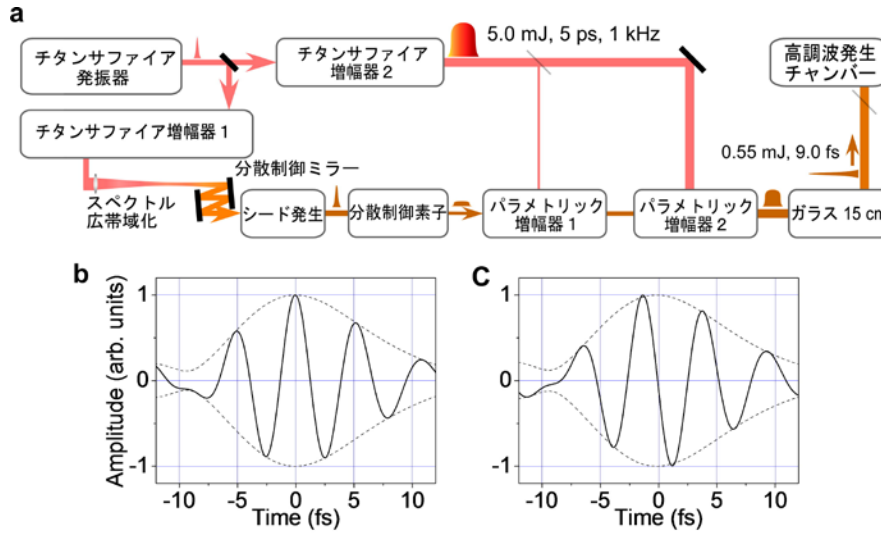


図 2: 炭素 K 吸収端付近での軟 X 線スペクトル

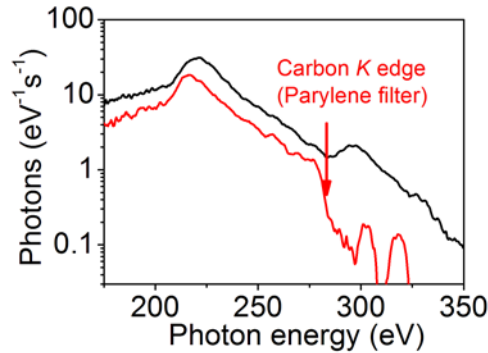


図 3: キャリア・エンベロープ位相を変化させたときの高次高調波のスペクトル変化。(a) 実験的に観測された軟 X 線パルスのスペクトル。(b) 量子力学的な計算で予測されるスペクトル。(c) 予測される軟 X 線パルスの時間波形(黒線)と、位相補償された場合のフーリエ限界パルスの時間波形(赤線)。

