

共有する緩やかな連携をしながら、高次高調波発生のための装置開発を進めました。4月には分子研を卒業した北野健太氏が物性研ポスドクとして板谷研に参加することとなりました。

当時の大きな課題は、新しい研究グループとして次世代の高強度レーザー光源開発をどうするか、ということでした。特に、旧渡部研が最後に開発した光パラメトリックチャープパルス増幅法(Optical Parametric Chirped Pulse Amplifier; OPCPA)に基づく高強度レーザー光源は、極短パルス化や位相安定化を進める上で非常に有効な手法と思いましたが、そのままでは余りに複雑なシステムであり、開発者の足立助教(当時)なしでは定常的なオペレーションは難しく思われました。その足立氏は、2010年8月に京都大学へ准教授として転出しました。この光源の問題をさらに難しくしていたのは、出力波長がチタンサファイアレーザーとほぼ同じ近赤外域にあることであり、成熟したチタンサファイアレーザー技術に対してサイエンスの優位性をなかなか見出だせないことでもありました。そこでOPCPAの専門家である石井氏と、我々の強みであるチタンサファイアレーザー技術をベースとしたOPCPA光源で赤外域を狙うことを検討することにしました。チタンサファイアレーザーを用いた高次高調波では、レーザー波長が可視から近赤外にあるため、最大光子エネルギーが極紫外域(100~200 eV前後)にとどまっています。それに対して、赤外域での高強度レーザーを実現できれば、高次高調波の光子エネルギー範囲を軟X線領域(200 eV~1 keV)まで拡大でき、より短いアト秒パルス発生だけでなく、吸収端を利用した新しい超高速分光手法としても期待できます。長波長レーザーを用いた方が短波長の高次高調波を発生出来る、というのは逆説的に思われるかもしれませんが、その理由は長波長の光電場ほど半周期の間に長時間、電子加速を行えるためです(高次高調波発生では、加速された電子の運動エネルギーが再結合過程で光子のエネルギーに変換されます)。このような認識は、高強度レーザーのコミュニティで広く共有されていた問題意識だったと思いますが、技術的に成熟したチタンサファイアレーザーと同等の安定性や制御性を実現しなければ単なる光源の原理実証に終わってしまうことになり、なかなか着手しにくい研究テーマでした。そもそもOPCPA法は、時間的に伸長したチャープパルスで光パラメトリック増幅を行うという手法であり、反転分布に基づく光増幅とは異なり、非線形光学結晶中での位相整合条件によって利得帯域が決められるため、様々な配置の可能性があります。そこで、チタンサファイアレーザーの波長可変性を利用したOPCPA光源として、波長740 nm励起のBBO結晶を用いたものと、波長800 nm励起のBIBO結晶を用いた二つの手法を検討しました。石井氏が中心となって、二種類の結晶を用いた光パラメトリック増幅を実際に試したところ、BIBO結晶を用いた光パラメトリック増幅で1オクターブ近い超広帯域増幅を確認出来ました。ほどなくして、この超広帯域増幅において光パルスを構成する電場の法絡線と搬送波の位相(Carrier-envelope phase ; CEP)が保たれていることも実験的に示すことが出来ました。これらの結果は、数サイクルの電場波形から構成される高強度極短パルスを赤外域で増幅できることを示しており、ここに至り、赤外域での高強度超短パルスレーザーを開発しようとする機運が一気に高まりました。

新しい高強度赤外レーザー光源の開発は、先進的で非常に魅力的な研究プロジェクトでしたが、既存装置を利用したとしても、物性研の内部予算では明らかに不十分でした。そこで2010年4月の段階では、光源開発の上で律速となる重要な装置を先行手配して、とにかく新光源の開発に着手することにしました。その後、本郷の五神真教授と理研の緑川克美主任研究員が中心となって提案した最先端研究基盤事業「コヒーレント光科学研究基盤の整備」が採択され、その資金の一部で物性研の光源開発の一部とインフラ整備を進められることになりました。本開発に当たっては、世界の有力グループに応用面でも負けないよう、単なる光源の原理実証にとどまらず、高い安定性をもった完成度の高いシステムをめざすことにしました。そのため2010年度中は、安定な光増幅を実現するための装置設計とその検証や、温度安定化された装置環境といった要素技術の開発に集中しました。その後、2011年には科研費の基盤研究Sが認められ、利用研究を見据えた本格的な光源開発を開始することができました。

この高強度赤外レーザー光源の開発は、2011年3月11日の東北大震災が大きな契機ともなっています。震災当時は、なんとか稼働しはじめた極紫外ビームラインで高次高調波発生実験を行っていました。実験室の被害がほとんどなかったことは不幸中の幸いでしたが、柏の葉地区は輪番停電の対象となり、厳しい節電が要請されました。なんとか実験を続けてはみたものの、3月末の時点で続行は困難と判断せざるを得ない状況となりました。継続的な実験が出来ないのであれば、断片的な努力であっても前進できる新規光源開発に注力したほうがよいと判断し、実験は中止としました。運用していた高強度チタンサファイアレーザーシステムは解体し、高強度赤外レーザー光源を開発するスペースを作りました。物性研の高強度レーザー群が設置されている極限レーザー実験室は床面積約500 m²の大容量クリーンルームですが、消費



5. 現在の研究テーマ

現在、板谷研では稼働中の高強度レーザー光源を用いた超高速分光と、新光源とその利用技術の開発などに関する研究が行われています。以下に研究テーマを紹介します。

5.1. 高強度極短パルスレーザー光源の開発と、アト秒軟 X 線パルス発生

高強度レーザー光源としては、赤外から中赤外域の光源の開発を進めています。現在、BIBO 結晶を用いた OPCPA 法に基づく位相制御された高強度極短パルス赤外レーザー光源(中心波長 1.6 ミクロン、パルス幅 10 フェムト秒、繰り返し 1kHz)が稼働しており、光子エネルギー330eV までの軟 X 線発生が実現しています。この光源を用いて、強レーザー電場中で起こる電子線散乱や、軟 X 線領域でのアト秒パルス発生、超高速軟 X 線分光を目指した実験と装置開発を進めています。また、より高い光子エネルギーの軟 X 線発生を目指して、中赤外域での高強度超短パルスレーザー光源(波長 3 ミクロン)の開発も進めています。

5.2. 高次高調波発生の物理と、超高速分光への応用

高次高調波の発生機構では光電子波束の運動が大きな役割を担っており、それをうまく利用することによって光波と電子波の相互作用を利用した新奇な実験手法(たとえば、原子内の電子波動関数の構造やダイナミクスに関する計測など)の実現が期待されています。そこで、高次高調波の発生機構をより深く理解するための理論的および実験的な取り組みを行っています。また、辛研、松田巖研との協力の下で、高次高調波を用いた極紫外領域の超高速分光実験やビームラインの開発も行っています。

5.3. 高強度テラヘルツ波の発生と、分子・光電子の運動制御への応用

高強度テラヘルツ波は、1 ピコ秒程度の持続時間をもつ高強度電磁場であり、プローブとしての分光応用だけでなく、電子の運動や分子回転、固体中の素励起を制御するなどの、さまざまな応用が期待されています。板谷研では、分子の回転状態をコヒーレントに制御する実験を行い、非対称な分子の頭と尻尾を区別した「分子配列(molecular orientation)」を実現することができました。今後は、原子や分子のイオン化に伴って発生する光電子の運動制御に応用し、新しい時間分解分光手法に発展させたいと考えています。

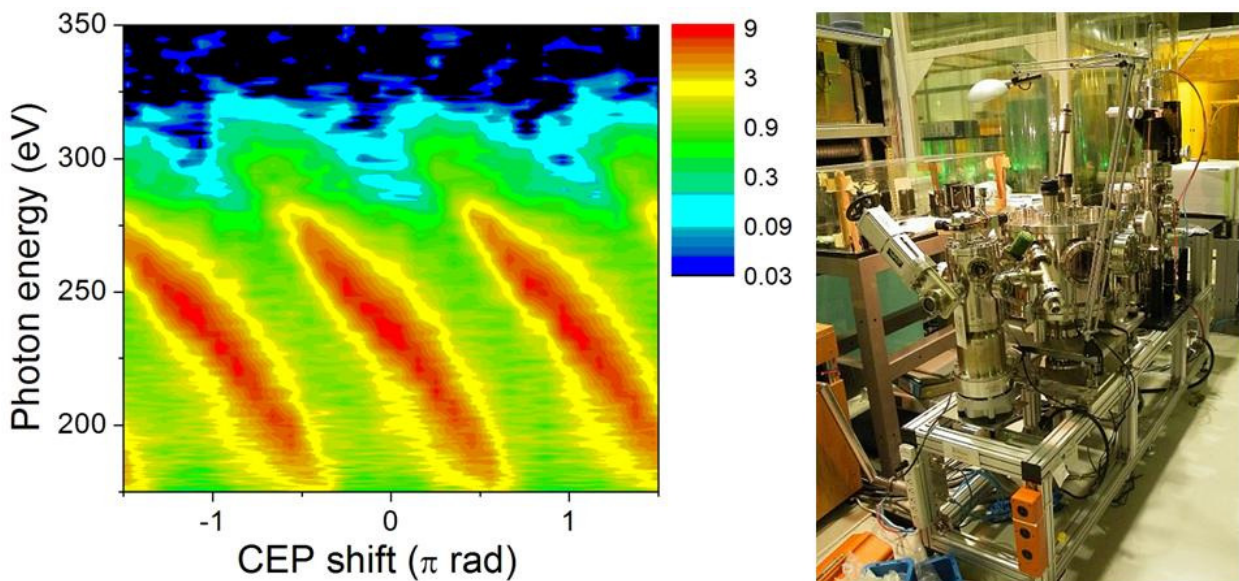


図 3: (左)高強度赤外レーザーで発生した「水の窓」領域の高次高調波のスペクトル。横軸は高強度レーザーパルスの電場の法絡線に対する搬送波の位相(CEP)。(右)辛研・松田巖研と協力して開発したフェムト秒極紫外吸収分光ビームライン。

6. おわりに

私の目指している研究の方向性は、先端的な高強度超短パルスレーザーを用いて、誰もまだ見ていない物質と光の相互作用を実現し、その物理現象を工学的に利用して新しい実験手法を作り出すことです。1960年のレーザーの発明以来、高強度レーザーや超短パルスレーザーに関する光技術は進化しつづけており、今後10年以上わたって新たな技術が生まれ、新しい現象の発見や新しい実験手法の考案につながっていくと考えています。そのため、光源の優位性はきわめて重要であり、研究室内の高強度レーザーの多くの部分は市販品に依存せず自主開発するようにしています。また、「物性研」という物質科学の研究所での光源開発としては、波長域としてはテラヘルツから軟X線まで、時間スケールとしてはフェムト秒からアト秒へと、超高速分光を周波数と時間の二つの領域で拡大していくことが重要と思っています。周波数と時間領域の拡大は、光という電磁場の波形を極限的に制御する方向へつながります。また、様々な波長域での光強度の拡大も重要です。分光の対象としては、原子から分子へ、分子から固体へと複雑な系へ進んでいくのは必然であり、分光を「単なる測定」から「対象の系を光で巧妙に操作する」とする観点を大事にして研究を続けたいと考えています。振り返ってみると、物性研に着任してからの五年余りで、先端的な光源という「立ち位置」を作るために必死に装置開発を進めて、なんとか方向性が見えてきたところという気がします。これまでの研究室のスタートアップで有形無形のご支援をくださった方々や研究協力者の方々、裏方として支えて頂いた秘書の五十嵐さんを始めとする事務の方々に、この場を借りて御礼申し上げます。

参考文献

- [1] N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "Sub-two-cycle, CEP-stable, intense optical pulses at 1.6 μm from a BIBO OPCPA," *Opt. Lett.* **37**, 4182 (2012).
- [2] 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 (2012).
- [3] K. Kitano, N. Ishii, and J. Itatani, "High degree of molecular orientation by a combination of THz and femtosecond laser pulses," *Phys. Rev. A* **84**, 053408 (2011).
- [4] C. Zhou, T. Seki, T. Sukegawa, T. Kanai, J. Itatani, Y. Kobayashi, and S. Watanabe, "Large-Scale, High-Efficiency Transmission Grating for Terawatt-Class Ti:sapphire Lasers at 1 kHz," *Applied Physics Express* **4**, 072701 (2011).
- [5] N. Ishii, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, "CEP-preserving, octave-spanning OPA in the infrared based on BIBO pumped with 800-nm laser pulses," *Applied Physics Express* **4**, 022701 (2011).
- [6] 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.* **35**, 980 (2010).
- [7] S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe, "Carrier-envelope phase control of few-cycle parametric chirped-pulse amplifier," *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 032703 (2010).
- [8] N. Ishii, A. Kosuge, T. Hayashi, T. Kanai, J. Itatani, S. Adachi, and S. Watanabe, "Quantum path selection in high-harmonic generation by a phase-locked two-color field," *Opt. Express* **16**, 20876 (2008).
- [9] S. Adachi, N. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and S. Watanabe, "5-fs, multi-mJ, CEP-locked parametric chirped-pulse amplifier pumped by a 450-nm source at 1 kHz," *Opt. Express* **16**, 14341 (2008).