

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」
研究課題「高強度光電界による電子操作技術の開拓」

研究終了報告書

研究期間 平成 18 年 10 月～平成 24 年 3 月

研究代表者：渡部 俊太郎
東京理科大学 総合研究機構、教授

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

代表者は 2005 年第 5 回超高速光学/第11回高強度短波長光源の応用合同国際会議(UFO/HFSW2005)を奈良で開催した。この分野の著名な研究者が参加したが、その中心テーマは(1)高調波によるアト秒パルスの発生、(2)絶対位相(キャリアーエンベロップ位相(CEP))の制御、(3)光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)であった。

このプロジェクトはいわば、この 3 大テーマを結合した大胆なものである。このようなプロジェクトを単独でこなせるグループはなく、必然的に連合チームを組まざるを得ない。東大物性研究所渡部研と産総研鳥塚グループの連携はこの会議が出発点であった。

当初物性研はチタンサファイアレーザーの 2 倍波パルス(サブ 10fs)を用い、860 アト秒パルスを発生し、自己相聞法による測定に初めて成功した。産総研では CEP を制御したモード同期チタンサファイア(3w)とパラメトリック発振器(OPO 出力) ω 、 2ω およびこれらの倍波(4ω 、 5ω 、 6ω)からなるサブハーモニックスの光電場合成を行っていた。

これを受けてこのプロジェクトのテーマは(1)CEP 制御した TW 級 OP CPA の開発、(2)これを用いた 10nm—水の窓領域でのサブ 100 アト秒発生、(3)高出力ファイバーレーザーの開発と多波長光源の OP CPA による μ J 級任意電場波形の生成、(4) (2)と(3)によるアト秒オシロスコープと電子操作であった。

(1)では産総研が CEP 制御を担当し、OP CPA を物性研が開発した。両グループの共同研究が機能し、OP CPA では最短パルス(5fs)と最高平均出力(2.7W)を達成し、パルスガスジェット中の自己位相変調を用いて 3.8fs を得た。(2)では水の窓領域の高調波の発生に成功し、また世界で初めて 10nm 以下で高調波の CEP 効果を観測した。(3)ではモード同期ファイバーレーザー発振器から最短パルス(28fs)の発生に成功した。またファイバーレーザー CPA により 25W まで増幅し、2 倍波を OP CPA の励起光源として使用した。OP CPA の出力は 3 波長(2ω 、 3ω 、 4ω)でサブ μ J が得られた。

(4)に関しては機能を分けて分担することを中間評価の段階で行った。(4)ではアト秒オシロスコープ(アト秒電子操作)と任意電場波形の測定の機能がある。前者の任意波形電場のかわりに赤外のサイン波を使うことにした。赤外光だと、周期が大きいとため掃引時間が長く取れる上に、電子をドライブする力が波長の 2 乗に比例して大きくなる。ただし CEP の制御は必要である。この方針に沿ってスーパーコンティニュームの差周波の OP CPA により CEP 制御された赤外光の発生に成功した。また 8.2 fs へのパルス圧縮を行い高調波発生を行って、カットオフ領域のコンティニュームを観測した。これにより、ストリーク法によりアト秒パルスが観測でき、アト秒オシロスコープが可能となる。また任意電場波形の測定はまず 2ω 、 3ω 、 4ω を選び ($2\omega+4\omega$) と ($2\times 3\omega$)、($2\times 2\omega$) と 4ω の干渉から光源の合成波形を再構築することに成功した。またより一般的には多光子イオン化領域の量子干渉効果を利用した測定を試みている。

以上まとめると、本研究のテーマは時宜を得たものと考ええる。また物性研と産総研グループの連合チームは相補的で自然なものであった。一部数値目標が未達成のものもあるが、計画の大胆さからすれば、満足すべき成果が上がったと考える。

(2) 顕著な成果

1. 世界最先端光パラメトリック増幅(OPCPA)システムの開発

概要: 高エネルギー超短パルス近赤外 OP CPA システムの開発し、近赤外 OP CPA システムの世界最短パルス幅ならびに最高出力を得た。長周期ストリークのため、赤外域でオクターブスペクトルを有する OP CPA システムを開発し、最短パルスを得た。いずれも CEP が制御されている。

2. 世界最高エネルギーでのアト秒パルス発生のための CEP 依存高次高調波発生

概要: 高繰返し OP CPA を用いた世界で始めての高強度物理実験を行い、世界最高

エネルギーの軟 X 線領域において、高次高調波の CEP 依存性を観測した。水の窓領域の高調波を観測した。赤外 OPCPA を作成し、高次高調波のコンティニュームを観測してアト秒パルスが可能となった。またアト秒パルス発生のための 2 色電場における高調波発生実験を行った。

3. 高強度任意光電界波形レーザーシステムの構築

概要：位相同期多色パルスを発生する任意光電界波形レーザーを高強度化するために、高精度にタイミング同期した高出力ファイバレーザーシステムを開発し、これを励起光源とした多色パラメトリック増幅を用いて、高強度の任意光電界波形レーザーシステムを構築した。

§ 2. 研究構想

(1) 当初の研究構想

2000 年に入って、超短パルス分野では、二つの画期的進展があった。アト秒パルスの発生とキャリアエンベロップ位相 (CEP) の制御である。本研究は両者を結びつけ、なおかつアト秒領域での電子操作を目指すものであった。

物性研では 2004 年チタンサファイアレーザーの 2 倍波パルス (8 fs) を用いて 28 eV (44 nm) において、アト秒パルスを発生し、2 光子イオン化を用いた自己相関法によって初めて測定した。2006 年には周波数分解光ゲート (FROG) 法により、860 アト秒パルスの波形と位相を同時決定した。更なる短パルス化のためには、CEP 制御したより短パルスの励起レーザーが必要であった。このために CEP 制御 OPCPA の開発を提案した。またサブ 100 アト秒パルス発生に際し、サイクル制限をクリアするため、10 nm から水の窓の領域の高調波を用いることは自然の流れであった。

産総研では世界に先駆けて、レーザーパルスのタイミングや光波位相を精密に制御する研究に着手し、パルスのタイミング及び光波位相の精密制御技術確立してきた。これらの基盤技術の強みを生かして、本研究では、可視～近赤外の超広帯域にわたる複数の異波長パルス相互のタイミング・光波位相を高精度に同期制御し、コヒーレントに電界合成を行うことによって、光の周波数領域 (アト秒時間領域) で矩形波・鋸歯波といった正弦波とは異なる任意の電界波形を生成する技術 (光ファンクションジェネレータ) を確立することをめざした。さらに、任意電界波形を広帯域パラメトリック増幅により高強度化することによって、アト秒時間領域で電子を電界により任意に操作する技術確立することをめざすことにした。

物性研のめざす軟 X 線領域のサブ 100 アト秒パルス発生と産総研の任意波形光電界を組み合わせることで、前人未到の超高時間分解能で物質中の超高速な電子のダイナミクスをプローブしたり、制御したりすることが可能になると期待できる。光電界で物質内の電子を任意に高速に操作できるようになれば、光による化学反応制御・電流の制御・電子放出の制御といった物質科学への幅広い波及効果が期待できると考えられた。

(2) 新たに追加・修正など変更した研究構想

アト秒パルスにより、瞬時に発生した電子を強い光電界で掃引する「アト秒オシロスコープ」は、掃引電界がサイン波であっても実現できる。掃引時間を長くするためには、周期の長い赤外光がよく、またその方が電子をドライブする力が強い。この考えに沿って赤外域 (1.5 μm) で CEP 制御された OPCPA 装置の開発に成功した。これは今後のトレンドとなろう。

高出力真空紫外・極端紫外高調波は光電子分光に使われ、物性分野に革新をもたらし、「レーザー光電子分光」という言葉を定着させた。7 eV の準 CW 光光源は超高分解能光電子分光に、60 eV 光源は時間分解光電子分光に使われた。

任意波形光源の高強度化のための増幅用励起光源という位置づけの為、当初はあまり研究的には重要視していなかった Yb ファイバレーザーだったが、初期の段階で世界最短

パルス発振に成功するという予期せぬ成果が得られ、また、この種のレーザーへの学会や産業界の関心が急速に高まっていた時期でもあったため、ファイバレーザーの性能向上に関する研究には当初予定より時間をかけて行う結果となった。本来の目的と計画にとっても、Yb ファイバレーザーの予想以上の性能発揮によって、多波長の同時パラメトリック増幅がスムーズに進行し、プラス面は大きかった。

§ 3 研究実施体制

(1)「理科大」グループ

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
渡部 俊太郎	東京理科大学総合研究機構	教授	H22.4～
周 春	同上	ポストドクトラル 研究員	H22.7～

② 研究項目

- 高効率透過型グレーティングを用いたTW級レーザーの開発と高出力高調波発生

(2)「物性研」グループ

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
渡部 俊太郎	東京大学物性研究所	教授	H18.10～H22.3
板谷 治郎	同上	准教授	H23.4～
金井 輝人	同上	技術専門職員	H18.10～
足立 俊輔	同上	助教	H18.10～H22.6
石井 順久	同上	助教	H19.1～
小菅 淳	同上	特任研究員	H20.4～H21.3
野村 雄高	同上	特任研究員	H20.9～H22.8
北野 健太	同上	特任研究員	H22.4～

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

(3)「産総研」グループ

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
鳥塚 健二	産業技術総合研究所 電子光技術研究部門	グループリーダー	H18.10～
吉富 大	同上	研究員	H18.10～
高田 英行	同上	主任研究員	H18.10～

小林 洋平	同上	主任研究員	H18.10～H20.8
周 翔宇	同上	産総研特別研究員	H19.4～H23.3

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 研究実施内容及び成果

4. 1 OPCPA システム開発とアト秒パルス発生(理科大、物性研究所 渡部、板谷グループ)

(1)研究実施内容及び成果

(1-1) OPCPA システム開発とアト秒パルス発生

近年高強度超高速パルスレーザーの目覚ましい発展とそれを用いた高次の非線形効果(高次高調波発生)により、XUV 並びに軟 X 線領域のコヒーレント光発生、数サイクルレーザーパルスの電場波形制御、並びに波形制御された高強度数サイクルレーザーパルスと高次高調波発生を組み合わせることで可能となった、孤立アト秒の発生など、超高速レーザー技術並びに、電子の光電場による運動制御など新たな分野が開拓されつつある。物性研においては過去既存のレーザー技術によりアト秒パルス発生とパルス計測などに強みを発揮しており、本研究において、新たなレーザー技術を用いることによって、より高強度の数サイクルレーザーパルス発生システムを開発し、更なるアト秒パルス幅の短縮、軟 X 線におけるアト秒パルス発生とそれを用いた電子の運動制御、ならびにアト秒の時間スケールにおける実時間分光への応用などを旨とする。また産総研の開発分担である、異なる任意の電界波形を生成する技術(光ファンクションジェネレータ)とあわせることにより、電磁波領域における電気オシロスコープと同様の働きをするアト秒からフェムト秒の時間領域における光オシロスコープの実証とアト秒時間領域で電子を電界により任意に操作する技術を確立することを目指す。

(1-2) 光パラメトリックチャープパルス増幅を用いた、電場波形の制御された TW 級数サイクルレーザーパルス発生システム開発

OPCPA の開発に際して、実現すべき性能を以下のように定めた。(1)数サイクルパルス(~ 5 fs) (2)パルスエネルギー数 mJ (3)搬送波位相(CEP)制御 (4)レーザー繰り返し 1kHz。これらは全て、高強度 100 アト秒パルス発生という応用面から要請される。OPCPA システムの全体図を図1に示す。1オクターブ以上の超広帯域出力スペクトルを持つ共振器(Ventec OS ver., Nanolayers GmbH)をマスターレーザーとして採用している。まずその広帯域スペクトルのうち 570 nm 及び 1140 nm の成分を取り出して(図中 BPF)、f-to-2f 干渉計による共振器の

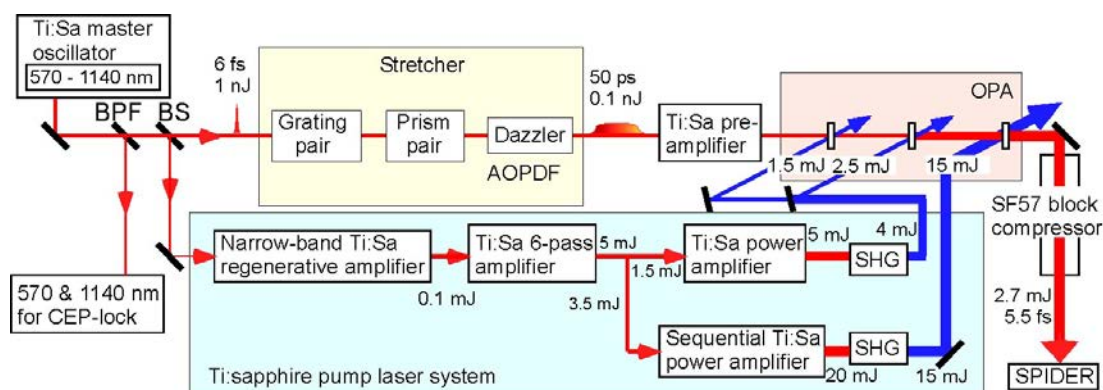


図1. 開発したサブTW-OPCPAシステム

CEP 安定化に用いる。それ以外のスペクトル成分のうち、大部分は OPA の種光としてストレッチャーシステムへと送られ、また一部($\sim 4\%$ 、図中 BS)は Ti:Sa 増幅によるポンプシステムに送られる。

Ti:Sa 増幅によるポンプシステム[図1下部中央]の初段は、狭帯域再生増幅器である。この段で、0.1 mJ 程度まで増幅すると同時に、スペクトル狭帯域化によるパルス伸長も行う。再生増幅器の共振器内には、厚さが 1:4:16 の比を持つ三枚の複屈折フィルタ(BRF)、及びソリ

ッドエタロン(FSR $\sim$ 500 GHz、フィネス2.8 @ 900 nm)が挿入されている。これらの波長選択素子により 900 nm の中心波長で約4GHz の帯域内でのみ、注入された共振器出力が増幅され、再生増幅(約 30 往復)後にはパルス幅が約 100 ps になる。引き続いて、Ti:Sa の多段増幅器、単段増幅器により 5 mJ 及び 20 mJ の基本波(900 nm)出力を得、これらを LBO 結晶(1 cm)によりそれぞれ 4 mJ 及び 15 mJ の二倍波(450 nm)出力へと波長変換した。Ti:Sa 増幅パルスの安定性は、ショットごとの rms エラーの値で 0.6 % (基本波)、0.9 % (二倍波)の値を得た。

OPA の種光のストレッチャーシステムは、回折格子対(1200 gr./mm)、プリズム対(SF57)から成っており、負分散により 50 ps 程度まで伸長される。この負分散は、OPA 後のコンプレッサーとしてのガラスブロック(SF57、25 cm)中での正分散で補償される。また、音響光学分散制御素子(Dazzler)も併用することで、50 ps に伸長されたパルスを 5 fs 程度まで再圧縮することを可能にしている。ストレッチャーシステムの各素子(回折格子対、プリズム対、Dazzler)のスループットはそれぞれ、60 %、60 %、30 %であり、よってストレッチャー全体のスループットは約 10 % (伸長後の種光のパルスエネルギーに直すと 0.1 nJ)である。

三段からなるパラメトリック増幅部において、結晶は広帯域(650–930 nm)両面反射防止コートされた 5mm 厚の type-1 BBO を用い、パラメトリック増幅における非同軸角、位相整合角はそれぞれ、3.0° (結晶内で)、27.3° であった。三段の内、始めの二段は前置増幅であり、一段当たり 10^3 程度の利得になるようにポンプ光のフルーエンスを調整している。単段での利得をこの程度に抑えつつ増幅を未飽和領域で動作させることで、前置増幅におけるシグナル光とパラメトリック発生光の比を高く保っている。このことは、三段目のパワー増幅段で(OPG でなく)シグナル光にエネルギーを受け渡すためには非常に重要である。種光は二段の前置増幅段で 0.1 nJ $\rightarrow$ 0.1 $\cdot$ J $\rightarrow$ 0.1 mJ のように増幅され、最後のパワー増幅段(ポンプ光パルスエネルギー 15 mJ)で 2.7 mJ まで増幅された。パワー増幅段でのポンプ $\rightarrow$ シグナルの変換効率は約 17 %であり、またパラメトリック増幅パルスの安定性は、ショットごとの rms エラーの値で 1.5 %であった。この値は、パラメトリック増幅パルスとしては非常に優れており、チタンサファイア増幅システムの安定性に比肩するものである。

パラメトリック増幅後、出力パルスは前述のガラスブロックで時間的に圧縮される。時間圧縮の最適化のために、SPIDER 測定(スペクトル干渉を用いたスペクトル位相の測定法)を行った。この測定で得られるスペクトル位相情報を Dazzler にフィードバックすることで、出力パルス幅を最短にした。その結果、スペクトル位相は出力スペクトル帯域(>130 THz)に渡ってほぼ平坦であり、再構築されたパルス幅は 5.5 fs であった。この値は、スペクトル強度から計算されるフーリエ変換限界パルス幅とほぼ一致しており、スペクトル位相の最適化が非常によく動作していることが分かる。

共振器の CEP 安定化については、先述の通り出力スペクトルのうち 570 nm 及び 1140 nm の成分を用いた f-to-2f 干渉により行った。これにより OPCPA の種光の CEP は安定化され、またパラメトリック増幅過程では CEP は変化しない。そのため原理的には、共振器の CEP 安定化のみで OPCPA 出力の CEP は安定化される。ところが実際は、パルス伸長・再圧縮過程、及びパラメトリック増幅過程自体において CEP が変動されうするため、最終的に得られた出力パルスに対する CEP の評価が不可欠である。そこで、パルス圧縮後の出力の一部を切り出し、石英ガラスに集光してスペクトルを 1 オクターブ(500–1000 nm)以上に広げた上で、新たな f-to-2f 干渉計により CEP を評価したその結果、共振器の CEP 安定化のみで(=追加で CEP の安定化フィードバックを導入することなく)、30 秒にわたって CEP が(実際の応用を考えても)十分に安定化されていることが分かった。CEP のゆっくりしたわずかな変動の補償と、任意値への制御のために、石英ガラスウェッジ基板対を用い、OPCPA の CEP 任意制御が実現できた。

以上まとめると、パルスエネルギー 20 mJ、中心波長 900 nm の狭帯域 Ti:Sa レーザーを建設し、二倍波に変換することで 15 mJ の 450 nm の OPA ポンプパルスを得た。OPCPA の種光は、回折格子対・プリズム対から成る負分散ストレッチャーにより伸長され、三段の OPA により増幅された後、ガラスブロックのコンプレッサーにより再圧縮された。共振器の CEP を安

定化し、更に OPCPA 出力の CEP を評価することで、出力の CEP 任意制御を実現した。この OPCPA は、従来の単一アト秒パルス発生光源である中空ファイバー出力の 5-10 倍のパルスエネルギーを達成しており、また、出力電場波形の CEP・分散を自在に制御できる。以上のような CEP 制御マルチミリジュール2サイクルレーザーパルスは、高調波発生によるアト秒パルス発生用光源として理想的である。

参考文献

原著論文: (6),(8),(15),(23),(24)

(1-3) OPCPA を用いた CEP 制御高強度数サイクルレーザーパルスによる水の窓領域における高次高調波発生と孤立アト秒発生のために必要な高次高調波発生の CEP 効果の検証

アト秒最短パルスは高調波の短波長化によって実現する。このため上記で述べた CEP 制御高強度数サイクルレーザーパルスを用いて、水の窓領域と呼ばれる 4.4 nm から 2.3 nm における領域の高次高調波発生実験を行った。OPCPA からの出力を高調波発生用真空チャンバー(図 2)に導入した。

レーザービームを凹面反射鏡で 1 kHz の He ガスジェットに集光した(集光強度は約 $2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$)。発生した高調波は X 線分光器(SXR-II-1, Hettrick Scientific)によって分光し、蛍光スクリーン付マイクロチャンネルプレートによって検出した。測定したスペクトルを図 3 に示す。銀、アル

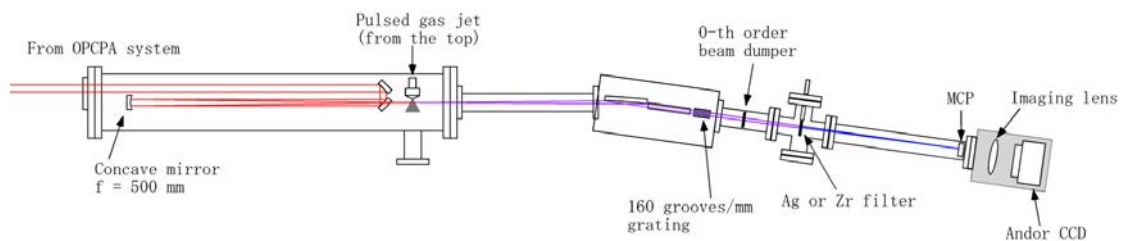


図2. 高次高調波発生系並びに計測系

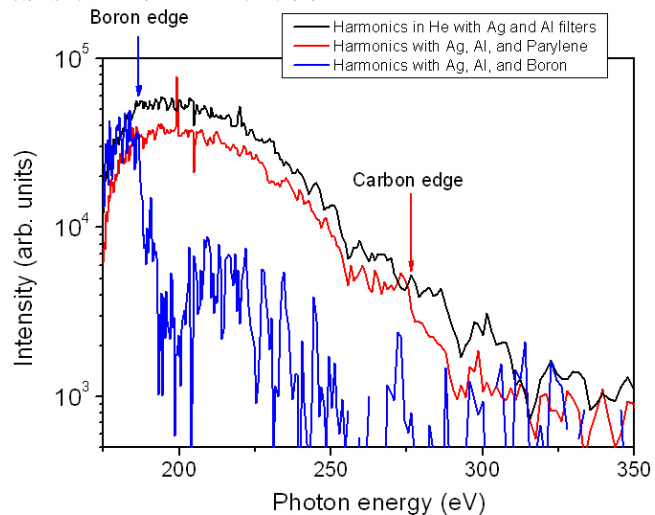


図3. 水の窓領域における高次高調波のスペクトル

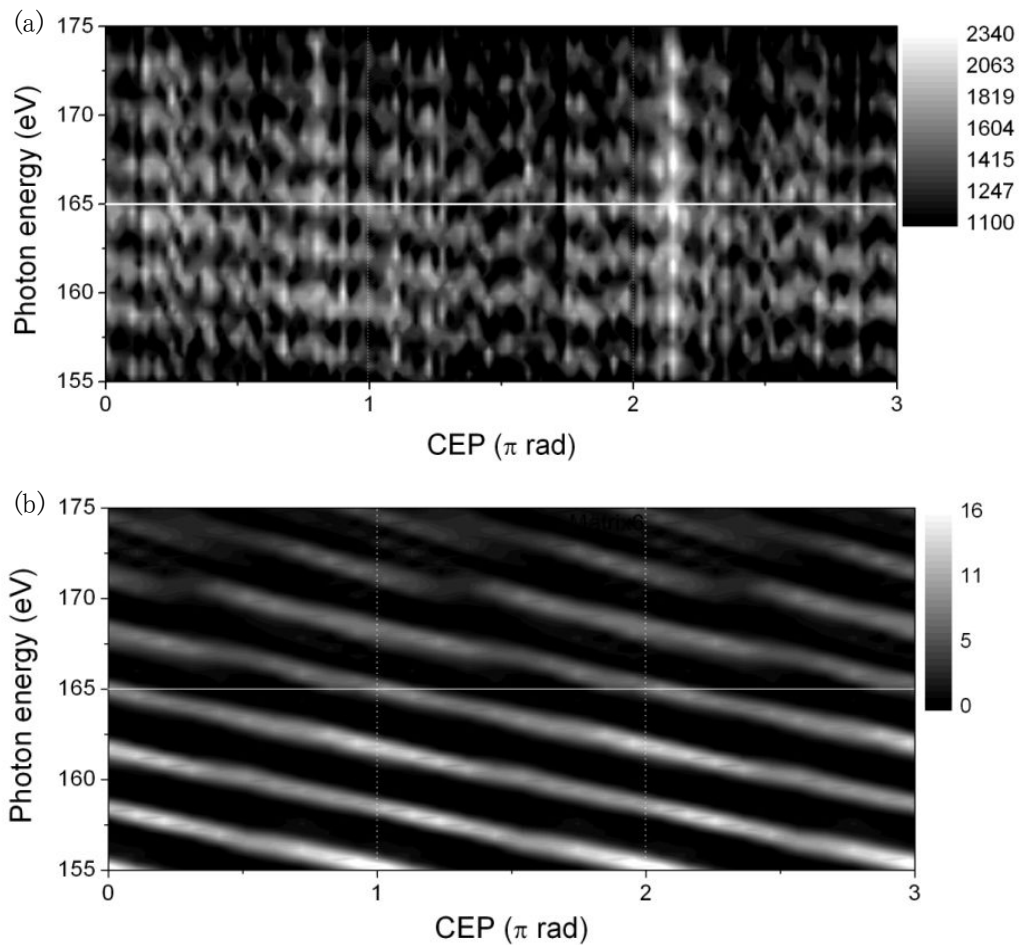


図4. プラトー領域における高次高調波のスペクトル (a): 実験結果、(b): 計算結果

ミ、パリレンフィルターを挿入したスペクトルを図 3 に赤線で示した。280 eV にパリレンフィルターの炭素吸収端がはっきりと観測できる。パリレンを抜いたスペクトルを図6に黒線で示しているが、これから300 eV 程度まではっきりとスペクトル成分が存在することがわかる。銀、アルミ、ホウ素フィルターを挿入したスペクトルを図 3 に青線で示した。ホウ素は、炭素の吸収端と共に、分光器の波長校正に用いている。これは、OPCPA からの出力を用いた、初めての強レーザー物理の実験である。ただしこの実験ではカットオフの領域における CEP の効果を観測することは出来なかった。これは積算時間が長く、CEP の効果を見るには SN 比が十分でなかったためである。このため、CEP 効果を観測するために少し低エネルギー領域での高調波の実験を行った。基本波の CEP はカットオフ近傍の高調波のスペクトルのみではなく、カットオフより少し低エネルギー側の、各次数のピークからなる変調のかかったスペクトル部分にも影響を与える。水の窓領域での高調波発生実験の際には CEP 依存性が見ることが出来なかったが、高調波強度の強い軟 X 線領域(180 eV, 7 nm 近傍)での CEP 観測を行った。この領域は、現在 CEP 依存性が検証されている極端紫外域(13 nm 近傍)よりさらに高エネルギー側であり、高調波の CEP 依存性を確認することが出来る最短波長となる。図4(a)はカットオフからやや低エネルギー側の高調波スペクトルの CEP 依存性の測定結果である。高調波のコムは π 周期で CEP 依存しており、後述の計算結果と非常に良い一致を示している。これにより、製作した OPCPA 系は CEP が増幅中に保存しており、チャンバー内の相互作用まで CEP が保たれていることが確認することが出来る。この実験は最短波長域での高調波の CEP 依存性の観測である。この少し高エネルギー側にカットオフが存在するはずでありカットオフにコンティニュームと呼ばれる変調が少ない連続スペクトル成分が存

在するはずである。図4(b)は強電場近似を用いて計算した高調波スペクトルの CEP 依存シミュレーションである。カットオフエネルギーは 215 eV と計算でき、図4(b)では、それより少し低エネルギー側の高調波の CEP 依存性を示した。サイクル数の多いレーザーを用いて高調波発生を行うと、必ず基本波の奇数次に高調波のコムが発生することになるが、数サイクルレーザーを用いて発生した高調波は奇数次のCOMのスペクトル幅が広く、隣の次数と重なり、CEP の値によって隣の次数との位相関係が異なり、干渉することになる。このために高調波の変調は CEP 依存を示す。

まとめると、本研究において開発した OPCPA を用いたレーザーシステム(CEP 安定化、1 kHz、2.7 mJ、5.5 fs、750 nm)を用いて水の窓領域の高次高調波発生の実験、ならびに世界最短波長での高調波の CEP 依存性の観測を行った。既存のアト秒発生の実験が行われているエネルギー領域より約 2 倍以上高いエネルギー領域においての高調波の CEP 依存性の確認を行ったが、これはより短波長のアト秒パルス発生、並びに軟 X 線領域のアト秒パルス発生を可能にするために必要である。

現在 OPCPA からのパルス幅をさらに圧縮するシステムを導入中であり、これにより最短で 4 fs をきるパルスが生成できている。この改良により、少なくとも今回 CEP 依存性が観測された軟 X 線領域または、さらに短波長の水の窓領域で、カットオフでのコンティニュームの確認が可能となる。そしてコンティニュームを取り出すことによって、孤立アト秒のパルス発生が自然と行われて、ストリーク法によりパルス幅を計測できると考えられる。この領域はアト秒発生としては最短波長領域になり、さらに最短アト秒パルスの発生を視野に入れることが出来る。

参考文献

原著論文: (2),(3),(4),(16),(35),(36)

(1-4) 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

前述し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 系のみ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い。

近赤外 OPCPA の目標は CEP 制御 TW 級 OPCPA の開発であり、この分野において最短パルス(5.5 fs)、最高エネルギー(2.7 mJ)を達成したのみならず、パルスガスジェット中の非線形効果によりサブ 4fs のパルスを得ることに成功し、完全に目標を達成した。この結果を図 5 に示す。

また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の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初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

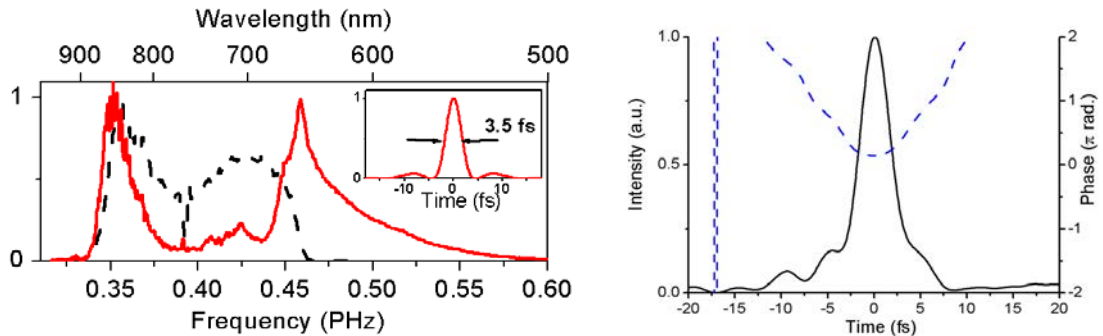


図 5. 左、OPCPA からのスペクトル(黒点線)と非線形効果によりブロードニングしたときのスペクトル(赤実線)、右、再圧縮後の時間波形

秒パルス発生のためのドライバレーザとしての条件を完全に満たすことが確認された。

今後カットオフコンティニュームの CEP 依存性を観測し、適切な金属フィルターで分離したスペクトルからサブ 100 アト秒パルスを発生し、ストリーク法で測定する予定である。CREST 期間内に最終目標であるサブ 100 アト秒パルス発生を達成することを目標としている。現在のところまでに、CEP 依存した高調波発生実験は行っており、また OPCPA の短パルス化によって高調波カットオフ近傍においてコンティニュームが発生するのは自明であり、あとは自動的にアト秒パルス計測ストリークを行うことによってアト秒パルスの発生ならびに計測が可能となると考えている。また適切な厚みの金属薄膜を用いることによって(我々のように最高エネルギー領域におけるアト秒パルス発生は世界初であるが、銀フィルターを用いることによってアト秒パルスのスペクトル位相制御が可能になると計算されており、CREST の残り期間において実行する予定である。

参考文献

原著論文: (23), (24)

(1-5) 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

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。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として非常に有望なレーザーとなっている。

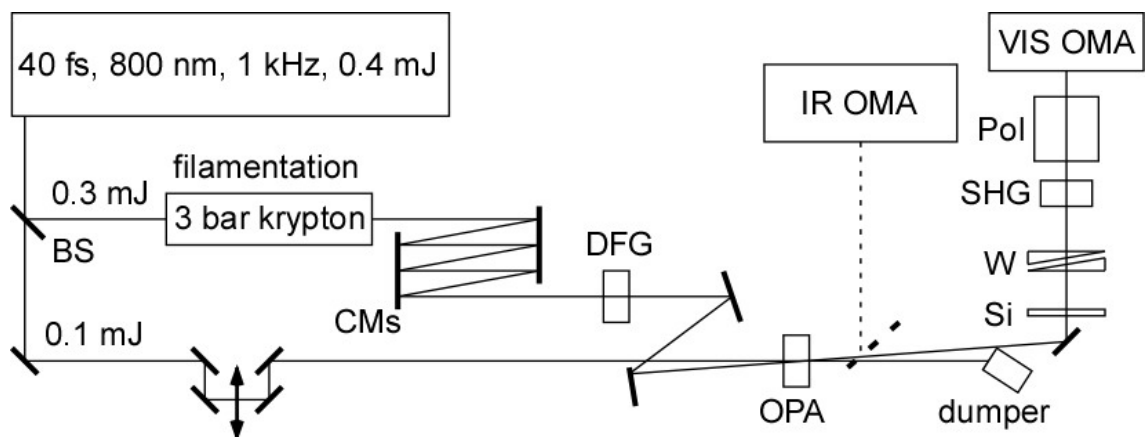


図6. オクターブ超短赤外パルス発生の実験系

実験の概念図を図6に示した。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。この差周波発生の利点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え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。赤外 OPCPA 出力のスペクトルを図7に示した。オクターブ OPA のシード光スペクトル(青点線)、OPA 増幅後のスペクトル(黒実線)、OPA の計算したスペクトル(赤破線)をそれぞれプロットしている。この出力をフーリエ変換したパルスは最短で6.8 フェムト秒の時間幅を有しており、この波長領域で世最短パルス幅を達成することになる。

この増幅方法は単色励起 OPA における最大バンド幅のシード光を増幅でき、これ自体をドライブレザーとして考えることも出来る。現在のところ新たなドライバレーザーならびにより短いアト秒パルス発生のために必要な要素として CREST の枠組みと平行して研究開発を行っているところである。主にはパルスの時間幅を圧縮するならびにエネルギーを増強することを行っている。エネルギー増強ならびに短パルス化によって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。水の窓領域の軟 X 線が、加速器や放射光施設とくらべ、よりコンパクトな光源によって発生することによって、生体の実時間分光ならびにイメージングへの応用実験が非常に簡便になり、大きなインパクトを他分野に与える波及効果も見込める

またこの赤外光をアト秒パルス測定に必要なストリーク電場として使用可能であり、現在のイオン化によって制限されている電子の運動エネルギーのストリーク量をより大きく取ることができ、短いアト秒パルスを測定可能になる。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。この実験により、長周期ストリークの電場発生の足がかりとなり、かつ今後の発展を望めるドライブレザーへの新たな可能性を見出した。

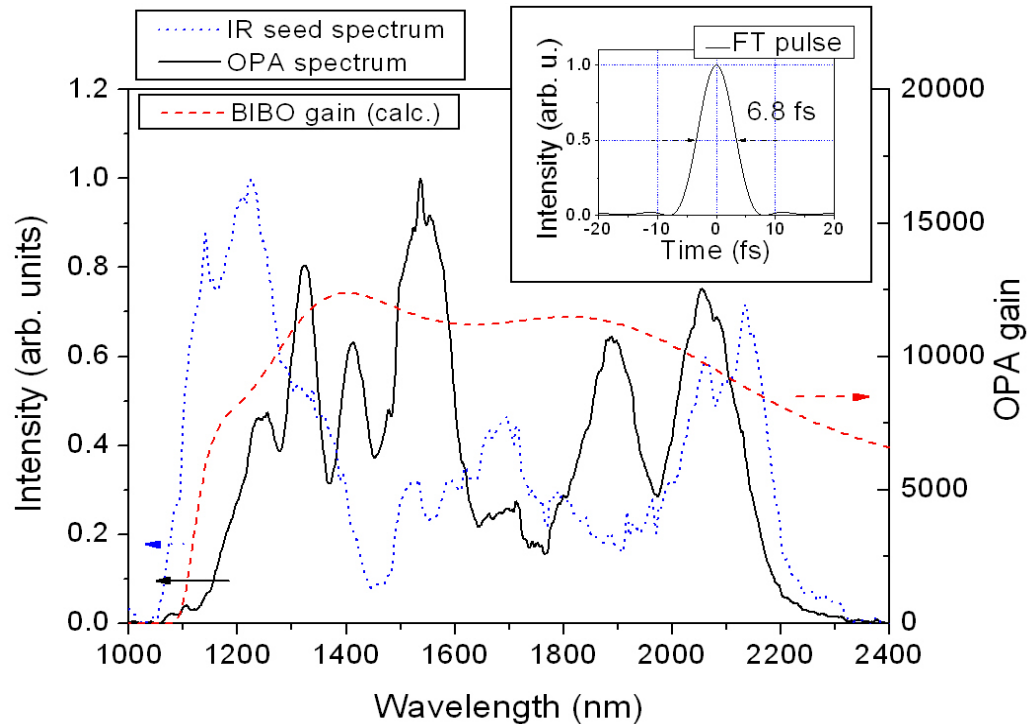


図7. オクターブ OPA のシード光スペクトル(青点線)、OPA 増幅後のスペクトル(黒実線)、OPA の計算したスペクトル(赤破線)

この赤外 OPCPA の出力の高強度レーザー物理実験への応用を検討するうえで重要な要素が前述した搬送波包絡線位相である。この赤外 OPCPA は差周波発生によって種光を生成しているわけであるが、この差周波発生方法によって搬送波包絡線位相が安定化するという報告がなされており、この系において実際搬送波包絡線位相がロックしているかどうかを観測することは非常に興味深いことである。なぜならばもし位相が差周波発生時において安定化され、かつ光パラメトリック増幅の過程において保存されていれば自動的にその出力を用いて搬送波包絡線位相依存する実験を行うことが出来る。アト秒パルス発生もその一つであり、軟X線領域の孤立アト秒パルス発生を視野に入れることが出来る。このため OPCPA からの出力を非線形 f -to- $2f$ 干渉計によって測定した。測定はシリコン基板をポンプ光のブロックならびに第2高調波発生まへの f と $2f$ スペクトルに時間差をつけるために挿入した。またそののちに搬送波包絡線位相をコントロールするためのガラスウェッジ対、第2高調波発生のための BBO 結晶ならびに偏光をそろえるためにポラライザーを挿入した。スペクトルの測定は可視、近赤外を検出できるマルチチャンネルシリコン分光器を用いた。我々の開発している赤外 OPCPA はオクターブの増幅帯域を持っており、 f -to- $2f$ 干渉計におけるノイズの原因であるスペクトル広帯域化を省くことに成功した。これにより、我々の系では、より正確な搬送波包絡線位相を決定することが出来ると考えている。 f -to- $2f$ 干渉計によって測定された干渉フリンジを図8(a)に示す。波長が 1000 - 1100 nm において干渉フリンジが観測された。この干渉縞の信号の安定性を測定するために 200 秒以上にわたって測定した。測定結

果を図8(b)示す。ここから長期間にわたって干渉の縞模様の位置が変わらないことが観測されており、赤外 OPCPA の出力の搬送波包絡線位相が安定に保たれていることが分かる。この測定時には外部でのコントロールはしておらずフリーランの状態で行っている。またこの干渉信号が搬送波包絡線位相することを確認するために、 f -to- $2f$ 干渉計に入っている石英ガラスウェッジの挿入量を変化させることにより、搬送波包絡線位相を変化させ、干渉縞が変化することを観測した。その結果を図8(c)に示す。

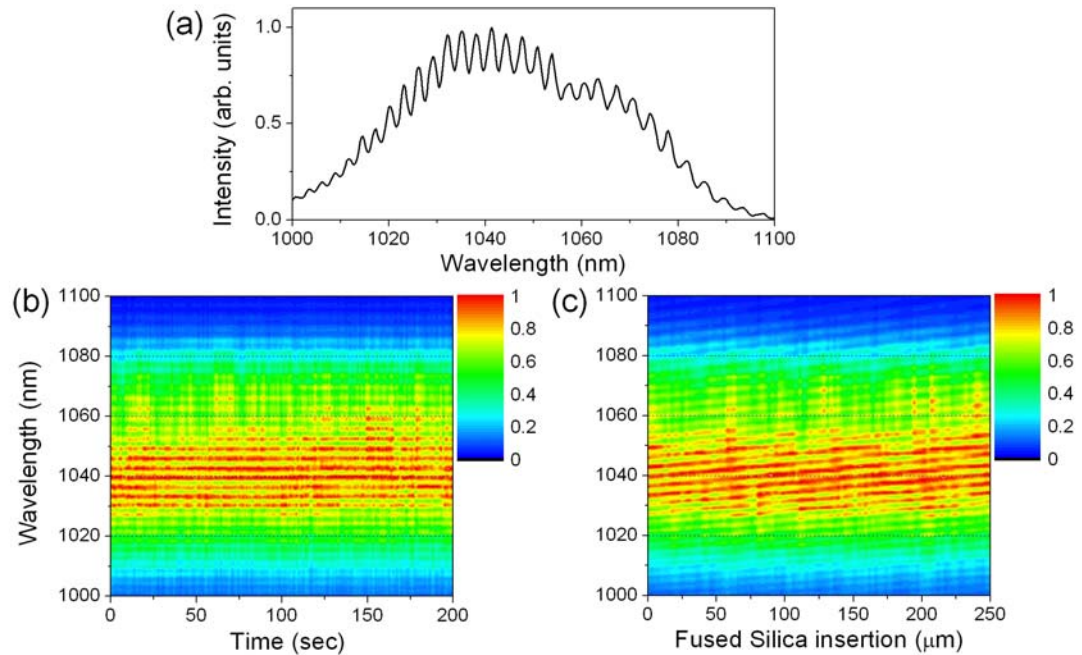


図8. F-to2f 干渉系で測定した搬送波包絡線位相保持を示すスペクトログラム。

(a): 波長 1050 nm 付近の f -to- $2f$ 干渉系から得られた干渉信号。

(b): 干渉信号の安定度測定 (200 秒測定)。

(c): 信号が搬送波包絡線位相依存しているのを確かめるため、ウェッジ基板の挿入量を変えて測定した干渉スペクトログラム。

干渉信号のフリンジが石英ウェッジを変化させると同時に変化していることがわかる。また石英の分散関係から搬送波包絡線位相の変化量が計算することが出来るが、この値は実験値と非常に一致を示した。これからこの波長領域で観測された干渉信号は搬送波包絡線位相によるものと結論付けることが出来、またその結果差周波発生、OPCPA 過程において赤外短パルスの搬送波包絡線位相が安定に保たれていることが証明された。またこれからこの赤外オクターブパルスは搬送波包絡線位相が安定化させており、赤外長周期ストリーク電場としてのみならず、より高強度化させ、高次高調波等の高強度物理実験のドライバレーザに使えるめどが立ったといえる。近赤外 OPCPA を用いたアト秒パルス発生ならび計測と同時に、この赤外 OPCPA をレーザ開発の中心にすえ、研究を行なっていく予定である。

参考文献

原著論文: (25)

(1-6) 2色電場による高次高調波発生における、電子の量子経路選択

単一アト秒パルスを発生させるためには、本来ならば励起レーザの半サイクルごとに繰り返される高調波発生過程での電子の量子経路を何らかの形で制限し、ある半サイクルに

限定して高調波を発生させる必要がある。つまり単一アト秒パルス発生のためには、半サイクル内で十分に電場強度が変わりえる数サイクルパルス(800 nm 中心で 5fs 程度のパルス幅)が要求されるが、これは非常に厳しい条件である。この条件を緩和しサブ 10fs パルスによっても単一アト秒パルスを発生させることができるようになれば、サブ 100 アト秒パルス発生が飛躍的に容易となる。そこで、既存のチタンサファイアレーザーを用いた2色電場による高調波発生の実験を行った。

実験系を図 9 にまとめた。図9(A)は 2 色電場による高調波発生実験の概要を示す。図9(B)は用いた 2 色マイケルソン干渉計と実験のレーザーのパラメーター。図9(C)は用いた真空装置で、高調波発生ならびに検出を行うシステムの概要図である。

相対位相を制御した基本波と第 2 高調波とを同時に希ガスに照射することで、基本波のみの場合

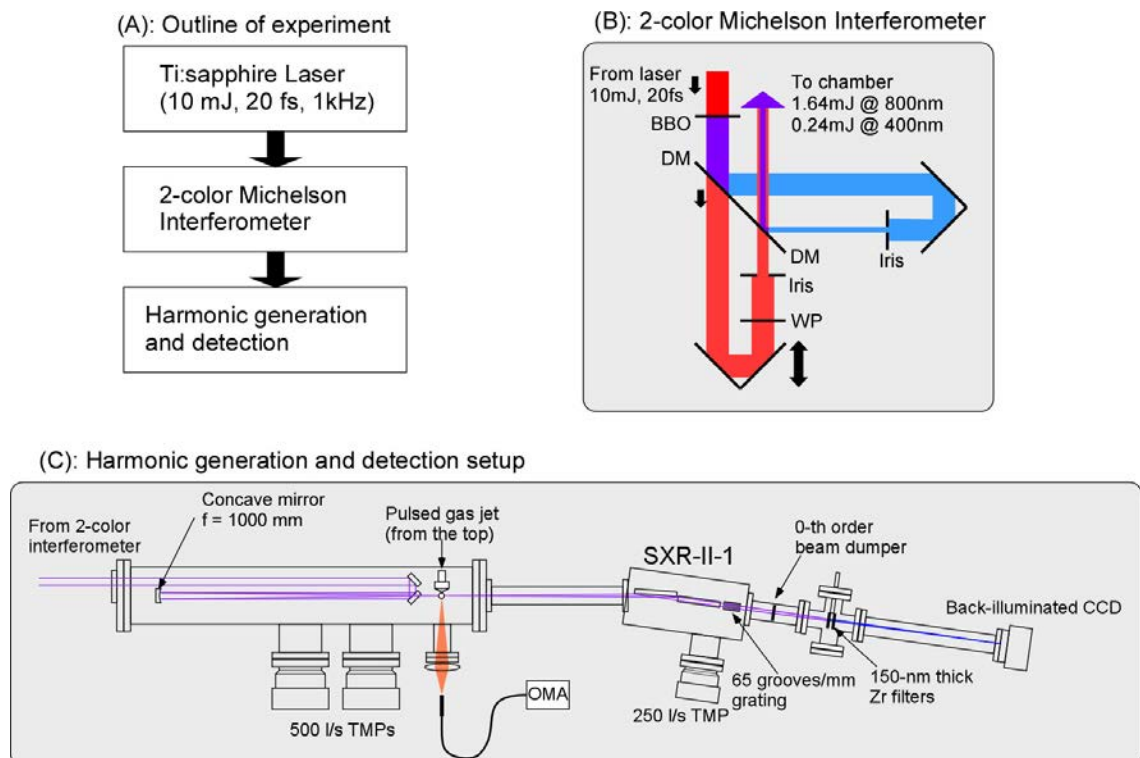


図 9.(A):2 色電場による高調波発生実験の概要。(B) 2 色マイケルソン干渉計と実験に用いたレーザーのパラメーター。(C)高調波発生、検出系

では単一であった高調波発生量子経路を、2色電場によって 2 つの量子経路に分離させ、それぞれの経路の高調波に対する寄与を世界で始めて観測した。

この結果を図 10 に示す。図 10 の(1)は 2 色電場間の相対位相を変化させたときの実験で得られた高調波スペクトルを 2 次元プロットしたものである。これから分かることはカットオフが 2 色電場の位相に応じて変化しており、また図10(3)に抜き出した各位相点における高調波スペクトルから分かるように、今まで解明されていなかった、2 段階に変化した高調波スペクトルを世界で始めて観測することに成功した。特に(3)の B 点における高調波スペクトルにそれが顕著に現れている。この二つは Upper branch と Lower branch から発生する高調波が区別されて現れており、存在はそれまで予想はされていたものの、観測されたのは初めてである。またシミュレーション結果である図 10(2)ならびに(4)ともに良い一致を示している。実験結果ならびにシミュレーションからこの高調波の変化は Upper branch と Lower branch のそれぞれの量子経路からの寄与を、Branch が生成する時刻の電場強度が 2 色電場によ

って変化させることによって、制御しているということが証明された。これにより 2 色の電場を入れることにより、2 色電場間の干渉効果によりアト秒パルス発生のためのレーザーの条件を劇的に緩和させることが出来ることを見出した。

制御した基本波と第 2 高調波とを同時に希ガスに照射することで、基本波のみの場合では単一であった高調波発生の量子経路を、2 色電場によって 2 つの量子経路に分離させ、それぞれの経路の高調波に対する寄与を世界で始めて観測した。この方法により、2 色電場を用い更に特定の相対位相を選択することによって、軟 X 線領域単一アト秒発生をサブ 10fs のパルスによって発生させることが出来ることを実証した。

参考文献

原著論文 (1)、(16)、(35)

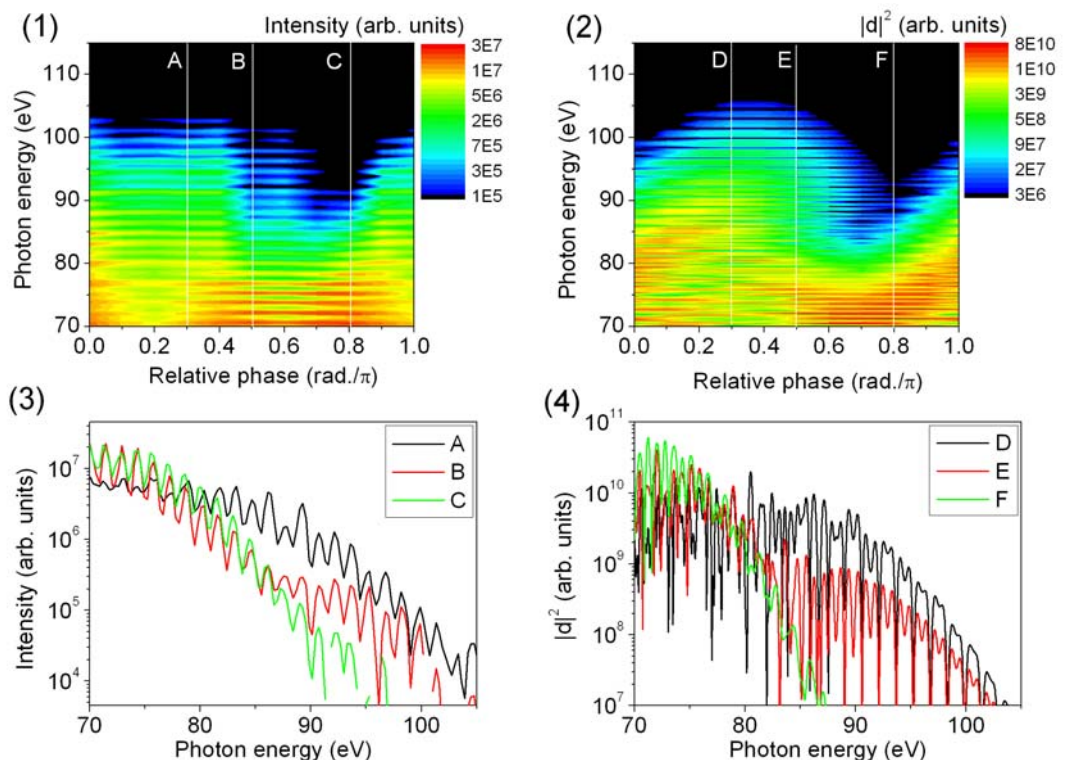


図 10. (1): 2 色電場間の相対位相と高調波スペクトル(実験結果) (2) 2 色電場間の相対位相と高調波スペクトル(シミュレーション結果) (3). (1)の各点における高調波スペクトル (4). (2)の各点における高調波スペクトル

(1-7) 真空紫外・極端紫外高調波を用いた固体光電子分光

高次高調波は物性研究のためにも有用であることが最近実証された。物性研では、辛研究室と共同でこの未踏の分野を切り開いてきた。まず真空紫外域(7eV)の準CW光源(80 MHz)を開発し、超高分解能光電子分光に供した。超高分解能光電子分光のためには、空間電荷による分解能の低下を防ぐため、CWもしくは準CW光源が必要とされる。産業用の10ピコ秒350 nm 光源(モード同期 Nd: YVO₄ レーザーの3倍波)の2倍波を新しく開発された非線形結晶KBBFを用いて発生させた。これを用いて最初 350 μ eV その後 100 μ eV の分解能が得られた。放射光を用いた場合と比べ1桁改善された。また産業用レーザーを使ったため、数日間連続運転してもスペクトルも出力も変化しない。比較的低エネルギーのため、固体への侵入長が長く、表面状態によらず、バルクの性質が分かる特徴もあった。この光源と低温装置と高分解能分光器の組み

合わせで、多くの新奇超伝導体のフェルミレベル近傍の電子状態が解明された。その結果 Science 1編、Physical Review Letters 12編を含め、28編の論文が発表され、「レーザー光電子分光」という言葉を定着させた。

最近高次高調波を用いた時間分解分光を辛研究室と共同で行った。図11にポンププローブ時間分解分光システムを示す。ポンプ光はチタンサファイアレーザーの2倍波 (3.1 eV) で、プローブ光はその19次高調波 (60 eV) である。3.1 eV 光源を二つに分け相互遅延をつけて一方をポンプ光に、他方を高調波の励起光として使用する。高調波は励起光を完全に切るため、アルミフィルターを通し、固体試料に集光する。ポンプ光はアルミフィルターの後のミラーで試料上に集光する。この装置を用いて TaS₂ の光誘起相転移の時間分解を試みた。TaS₂はポンプ光によって相転移し、構造変化により内殻準位がシフトする。このシフトを遅延を変えつつ、プローブ光による光電子スペクトルを観測した。格子振動による振動を繰り返しながら、数百フェムト秒で減衰していく様子が分った。このような分解能 (100 fs) の実験は相互ジッターのため、レーザーと放射光や自由電子レーザーの組み合わせではできない。

参考文献

光源関係、原著論文: (11)、(14)、(20)、(21)、(31)、(32) 固体光電子分光関係、原著論文: (5)、(7)、(9)、(10)、(12)、(13)、(19)、(22)、(27)、(33)、(34)

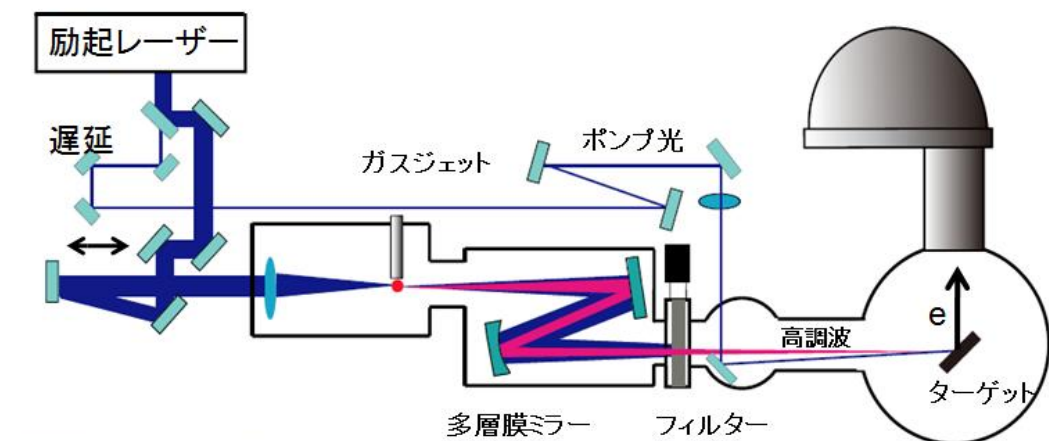


図11. ポンププローブ光電子分光法

(1-8) 高効率大型透過グレーティングの開発とコンパブとTW級チタンサファイアレーザーへの適用

高効率グレーティングとして、普通は金コートの反射型が用いられる。しかし高エネルギーパルスに対して損傷閾値が低いだけでなく、高平均出力で使用すると経時劣化が見られる。これに対し誘電体多層膜を使ったグレーティングでは、これらの問題は解決されるが、スペクトルバンドが狭い。これに対し透過型グレーティングはこれらの欠点をカバーできるものの、大型のものがないため、TW級レーザーには使えなかった。最近キャノンと共同で大型のグレーティングの試作と評価を行った。グレーティングは合成石英基板に矩形の溝を刻む普通のタイプで、溝本数は 1250 本/mm である。図12に Duty (溝周期に対する幅の割合)と溝深さをパラメーターとする回折効率の計算値を示す。最大98%が期待できるが、今回の試作品は最適地からややずれて93%程度である。製作されたグレーティングの断面のSEM写真を図13に示す。製作は光リソグラフィーを用いて行われ、最大サイズは 140mmx40mm(厚み1mm)であった。スペクトル応答は溝方向の偏光に対し、750nmから850nmにわたりフラットで、効率は全域で90%以上であった。このグレーティングを圧縮器に組み込んだ1

kHzのチタンサファイアCPAシステムにおいて、圧縮効率70%以上で10mJ、20 fs、0.5 TWが得られた。このシステムは1.2mx3mの光学台に収まり、コンパクトで使いやすいものとなった。

参考文献 原著論文: (30)

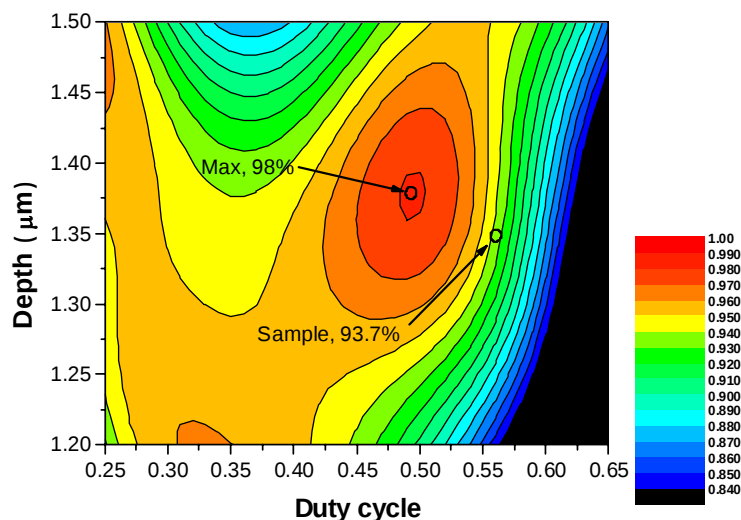


図12 溝 duty と溝深さをパラメーターとした回折効率の計算

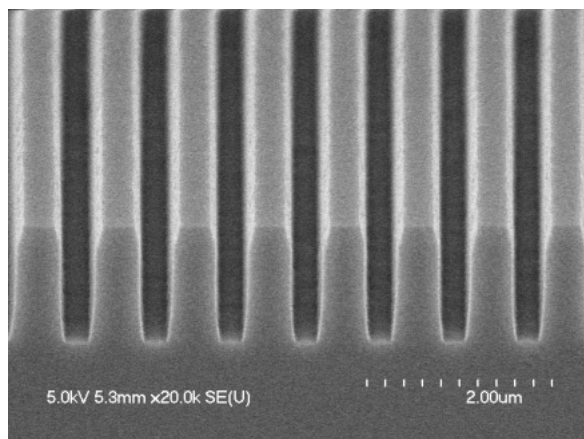


図13グレーティング溝断面 SEM 写真

(2)研究成果の今後期待される効果

近年の高強度チタンサファイアレーザー技術の成熟に伴い、高次高調波によるアト秒光科学は劇的な進展を遂げている。光源技術だけでなく計測技術に関しても、「アト秒ストリーク法」と呼ばれるアト秒測定手法が原型となり、光電子分光法に基づくアト秒計測手法が広く行われるようになりつつある。これらの進展の結果、これまでに80アト秒という世界最短パルスが独グループによって得られている。100アト秒以下の極短アト秒光パルス発生は米独伊のグループで成功しているが、その光子エネルギーは 100eV 付近の極短紫外域にある。これらのアト秒光パルスの利用技術について、日本だけでなく欧州、米国、カナダの有力グループが発生方法と測定手法のアイデアを競っており、アト秒光科学という一分野が形成されている。

高次高調波は、トンネルイオン化で発生する光電子の原子分子への衝突によって発生する。そして、高調波の光子エネルギーは衝突電子の運動エネルギーにほぼ等しく、レーザー波長の二乗に比例している。そのため、長波長レーザーを使えば高調波の短波長化が可能となることは早くから知られていた。しかし、赤外光での高調波発生は日米欧の数グループで試みられているに過ぎない。その理由は、チタンサファイアレーザーで実現された高度な光制御(サブテラワット級のピーク出力、数サイクルのパルス幅、キャリア・エンベロープ位相の制御、1kHz 以上の高い繰り返し)を他波長で実現する手法が、未だ確立していないためである。

われわれの開発した近赤外 OPCPA ならびにこれから開発を行う赤外 OPCPA 高強度レーザーを用いて、光子エネルギー100eV 付近の高次高調波だけでなく、1keV までの光子エネルギーをもつ高次高調波を用いた研究が行われるようになると思われる。例えば、光子エネルギー40～400 eV においては生体にとって重要な軽元素の L 吸収端が存在する。また500eV～1100 eV には、物性応用として重要な3d 遷移金属の L 吸収端が存在する。これらの吸収端を利用することにより、元素選択性を利用したフェムトからアト秒領域の軟X線時間分解吸収分光や内殻励起光電子分光あるいはコヒーレントイメージングへの道が拓かれる。

高強度レーザーをもちいた物理いわゆる「高強度場物理学」に関しては、強レーザー場中の電子の運動エネルギーは 1keV まで達するため、1keV の電子が原子や分子に衝突する過程をアト秒制御で制御・追跡することが原理的に可能となる。それによって、アト秒電子波束の衝突に伴う内殻電子のイオン化のアト秒分光など、原子分子内の多電子相関ダイナミクスに関する新しい実験手法を呈示することが期待出来る。

コヒーレントな極短パルス短波長光である高次高調波をさらに短波長化して、実用的な光子エネルギー範囲を 100eV から 1keV 程度まで約一桁拡大し、物質科学への展開を図ろうとするものである。高次高調波の短波長化を実現するためにまず、赤外域(中心波長1.6 μ m)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。この光源を用いることによって、現在チタンサファイアレーザーの波長によって制限されている高調波の最大光子エネルギーを約4倍拡大し、光子エネルギー1keV に到達する高次高調波を発生させる。得られた軟X線領域の高調波を用いてフェムト秒からアト秒精度の時間分解能を持つ光電子分光法と吸収分光法を実現させることができるとされる。

4. 2 光パルス合成による任意光電場波形生成とその計測(産総研グループ) (1)研究実施内容及び成果

任意電界波形用の多色パルス光源には、チタンサファイアレーザー光をポンプ光とするフェムト秒パラメトリック発振器のポンプ・シグナル・アイドラー及びその混合周波からなる合計6色の光パルスを能動制御によって、高精度に光波位相同期したものをを用いる。高精度な位相同期制御は、プロジェクト開始前から既に実現している。本プロジェクトでは、まず、任意波形光源の高強度化を行うために、任意波形光源にタイミング同期した励起光源として Yb ファイバレーザーシステムの開発を行い、続いて、この励起光源を用いたパラメトリック増幅により任意波形光源の高強度化を行う。多色パルスの電界合成技術を確認し、光イオン化・光電子放出などの電界依存現象により合成された任意電界波形の効果を検証するとともに、電界波形の計測手法を確認する。さらに、物性研のサブ 100 アト秒パルス光源と組み合わせて、アト秒領域での電子操作の可能性を追求する。図 14 に研究計画の概略図を示す。

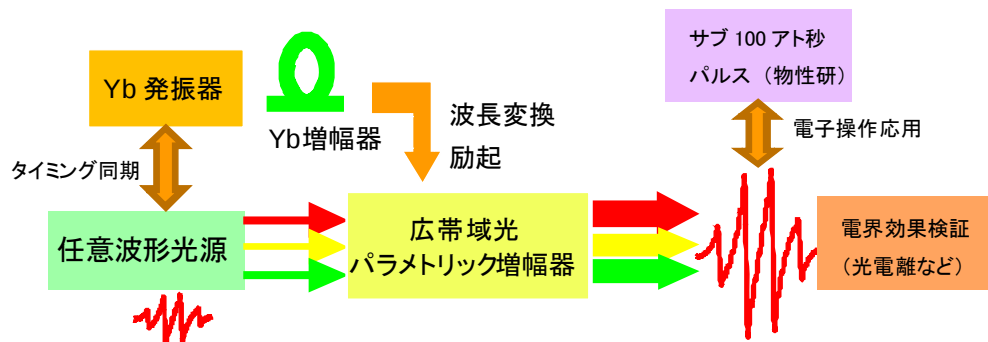


図 14 産総研グループの研究計画の概略

現在までに、以下の 5 項目について研究を行ってきた。

- (1) 任意波形光源の増幅用励起光源としての μJ 級 Yb ファイバレーザ増幅器の開発
- (2) 励起光源と任意波形光源の高精度なタイミング同期技術の確立
- (3) パラメトリック増幅を用いた任意波形光源の高強度化
- (4) 任意波形光源の電界波形計測手法の確立
- (5) 任意波形光源系とアト秒パルス発生系のシステム同期(理科大・物性研と共同)

以下に、各項目について簡潔に成果を述べる。

(1) 任意波形光源の増幅用励起光源としての μJ 級 Yb ファイバレーザ増幅器の開発

(1-1) 28 フェムト秒 Yb ファイバレーザ発振器の開発

任意電界波形の高強度化のための増幅励起光源として、高繰り返し高平均出力フェムト秒 Yb ファイバレーザシステムを開発した。まず、その発振器として、Yb ファイバレーザモード同期発振器を開発した。図 15 に発振器の構成を示す。リング型共振器構成で利得領域には長さ 30cm の Yb ファイバを用い、波長板を組み合わせ、非線形偏波回転によるモード同期パルス発振を行う。回折格子対(溝本数 600 本/mm)により、共振器内の分散補償を行っている。図 16 に示すような波長 1000 nm–1120 nm の広帯域なスペクトルが得られた。複数の材質のプリズム対で外分散補償を試した結果、SF14 ガラスのプリズムで 2 次・3 次分散をうまく補償することができ、ファイバレーザでは世界最短のパルス幅 28fs のパルスが得られた。図 17 に自己相関波形を示す。動作は非常に安定で一週間以上の連続動作を確認している。

参考文献

原著論文: (17)、(26)

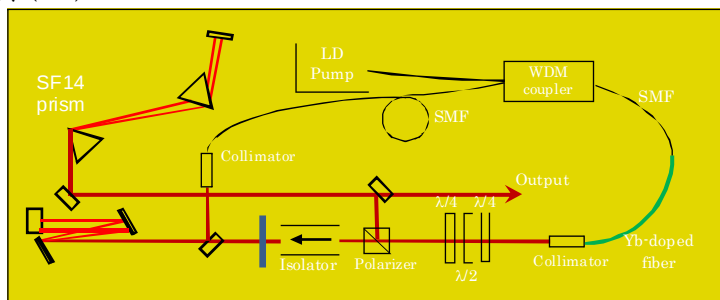


図 15 Yb ファイバ発振器の構成

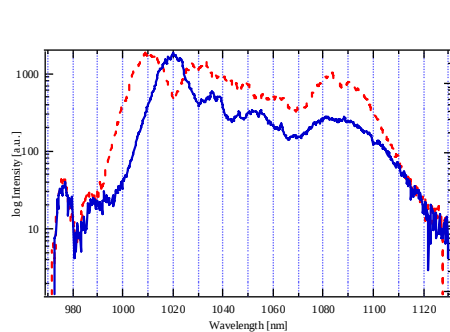


図 16 発振器の出力スペクトル

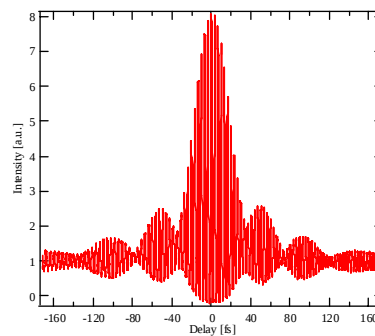


図 17 発振器の自己相関波形

(1-2) 25W, 80MHz, 100 フェムト秒 Yb ファイバチャープパルス増幅システムの開発

(1-1)の発振器光をシード光として、80MHz 高繰り返しファイバレーザ増幅システムを開発した。図 18 に構成を示す。ファイバ中の非線形効果を抑制するために、ファイバストレッチャーで 20ps までパルス幅を伸ばし、コア径 25 ミクロンの Yb ファイバを用いて、平均出力 35W まで増幅した(図 19)。溝本数 1000 本/mm の透過型回折格子対でパルス幅 100fs まで再圧縮し、出力 25W の出力が得られた。回折格子対は、正の 3 次分散を持つため、この効果を相殺するために、ファイバストレッチャーにおいて、負の 3 次分散を持つ特殊なファイバ(住友電工)を用いることにより、効果的なパルス圧縮が実現できている。

参考文献

原著論文: (28)

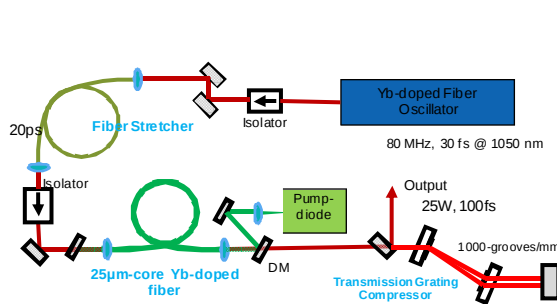


図 18 80 MHz ファイバ増幅器の構成

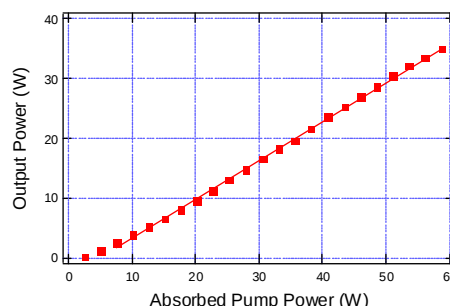


図 19 80 MHz ファイバ増幅器の出力特性

(1-3) 50 μ J, 0.4MHz, 700 フェムト秒 Yb ファイバチャープパルス増幅システムの開発

さらなる高ピーク強度を得るために、繰り返しを低くした 0.4MHz のシステムを開発した。低繰り返しと言っても、従来の固体レーザ増幅器では実現できない高い繰り返しである。図 20 に構成を示す。(1-2)に比べて、非線形効果がさらに顕著になる領域であるため、回折格子ストレッチャーで 1ns 程度まで延伸し、パルスの間引きに伴う出力低下を補うため、多段構成の増幅器を用いた。コア径 10 ミクロンの Yb ファイバ前置増幅器を用いて、40MHz で 1W まで増幅した後、音響光学変調器を用いたパルス選択器により、0.4MHz でパルスの間引き。コア径 40 ミクロンの前置増幅器で 2W まで増幅し、さらに、コア径 70 ミクロンの大口径ロッド型 Yb ファイバを用いた主増幅器により、最終増幅出力で 34W、パルスエネルギーとして 86 μ J を得た。図 21 に主増幅器の出力特性を示す。増幅パルス回折格子対の圧縮器により、圧縮した。50 μ J, 690 fs の圧縮パルスが得られた。

図 22 は、FROG 測定により得られた圧縮後のパルス時間波形(赤)である。パルス裾にあるベデスタル形状は、増幅出力が大きい時にのみ現れるため、ファイバ内の非線形効果によるものと考え、非線形シュレディンガー方程式を用いた数値計算を行った。増幅ファイバ内の空間・時間に依存した電場振幅 $A(z,t)$ の変化は、以下の非線形シュレディンガー

方程式に支配される。

$$\frac{\partial A}{\partial z} = -i \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \frac{\beta_3}{6} \frac{\partial^3 A}{\partial t^3} + i \gamma |A|^2 A + \frac{g}{2} A$$

ここで、 β_2 は2次分散、 β_3 は3次分散、 γ は非線形係数、 g は利得である。計算結果は図9の青の波形で示した通りで、実験結果とよく一致しており、ペDESTAL波形が非線形効果によるものであることが確認できた。

参考文献

原著論文: (29)

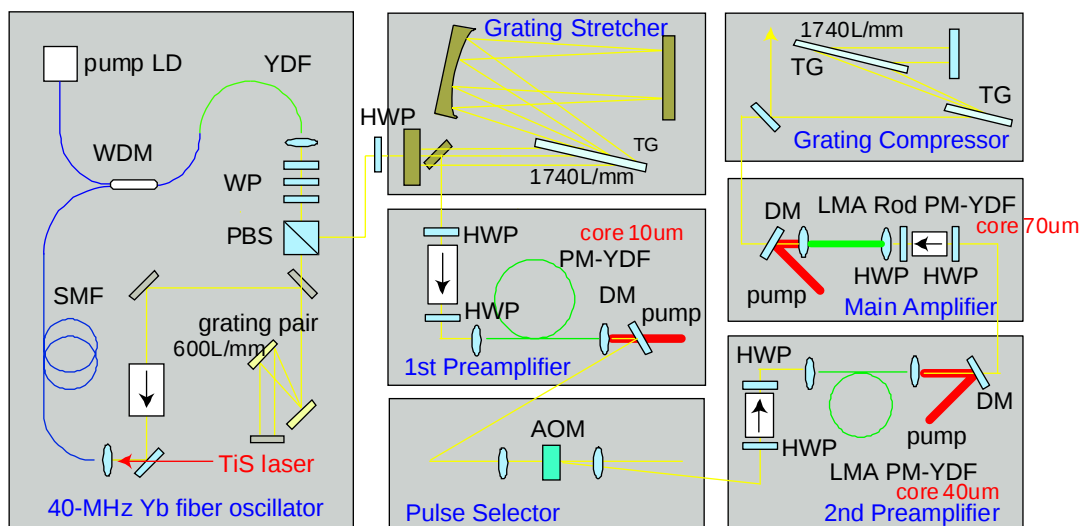


図 20 0.4MHz 50 μ J ファイバ増幅システムの構成

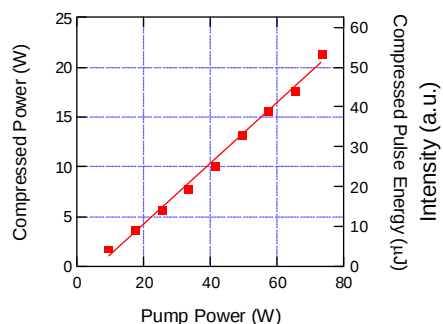


図 21 主増幅器の出力特性

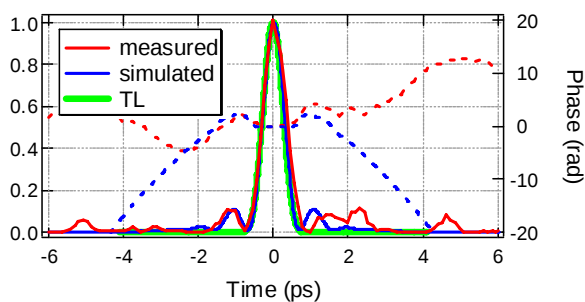


図 22 圧縮後パルスの時間波形(測定と計算)

(1-4) 第二高調波変換による増幅用励起光の発生

パラメトリック増幅の励起光源として用いるために、80 MHz、0.4MHz の両方の繰り返しにおいて、非線形結晶 LBO に通して、第二高調波変換を行った。80 MHz において、基本波 13.7 W に対して、出力 5.6 W の第二高調波が得られ、変換効率 40%程度を達成した。また、0.4 MHz においては、変換効率 34 %で、18 μ J のパルスが得られた(図 23)。図 24 の自己相関波形から、パルス幅は 1.2ps と見積もられる。この出力は、パラメトリック増幅でサブ μ J 級の任意電界波形増幅を行うための励起光源として利用する。

参考文献

原著論文: (28)、(29)

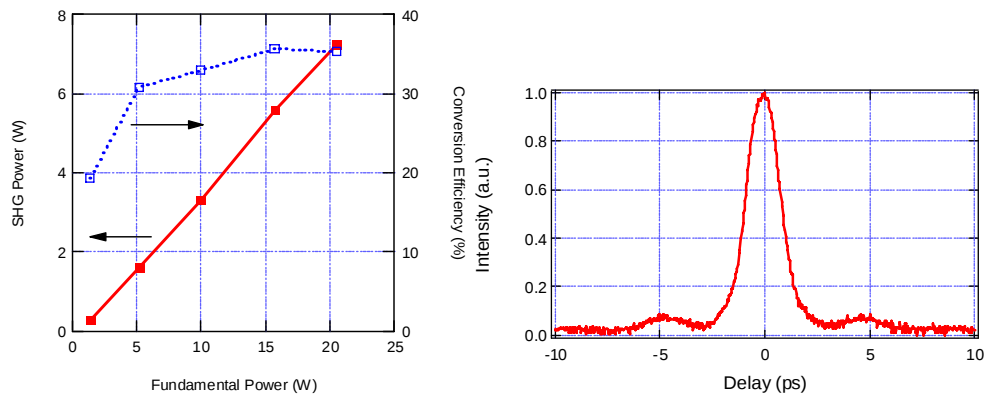


図 23 0.4 MHz における第二高調波変換特性 図 24 第二高調波パルスの自己相関波形

(2) 励起光源と任意波形光源の高精度なタイミング同期技術の確立

(2-1) 光注入による受動的な長時間安定高精度タイミング同期システム

任意波形光源の増幅を行うためには、励起光源との間に高精度なタイミング同期を行う必要がある。図 25 のように、任意波形光源の多色パルスの一成分であるチタンサファイアレーザー光を Yb ファイバレーザ発振器のファイバに注入することにより、受動的なタイミング同期を行った。ファイバ中で入射パルスによる相互位相変調を受け、波長シフトが起き、共振器内分散に応じて、共振器の周回時間が変化する。入射パルスの前半部で重なる場合と後半部で重なる場合で波長シフトの方向が逆転するため、負に設定された共振器内分散とあいまって、タイミング誤差に対する負帰還が生じ、受動的に同期される。

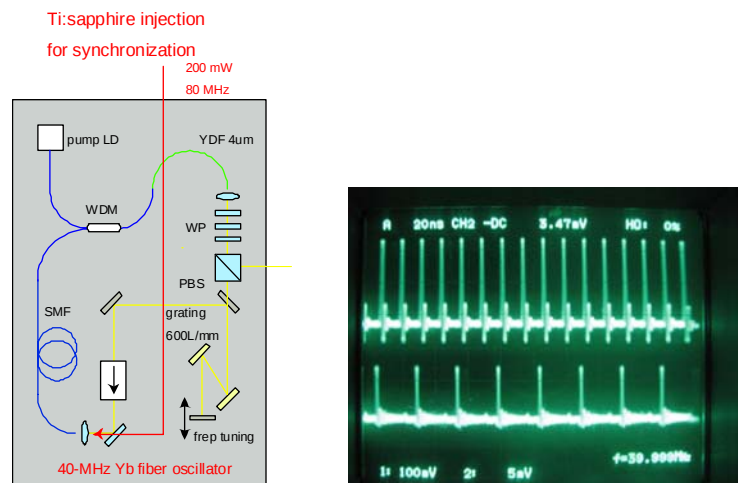


図 25 タイミング同期の構成 図 26 同期パルス列(上:チタンサファイア、下:ファイバ)

図 26 に示すとおり、チタンサファイアレーザー(80MHz)と Yb ファイバレーザ(40MHz)のパルス列が完全にタイミング同期していることが分かる。図 27 は、両レーザーの繰り返し周波数を長時間にわたり測定した結果を示し、8時間以上にわたって、タイミング同期が維持されている様子が分かる。また、図 28 は、和周波光の揺らぎから測定されたタイミングジッターの周波数スペクトルを示す。1Hz から 0.2MHz まで積分したタイミングジッターは、1.4 fs であり、きわめて高精度なタイミング同期が実現されている。

参考文献

原著論文: (29)

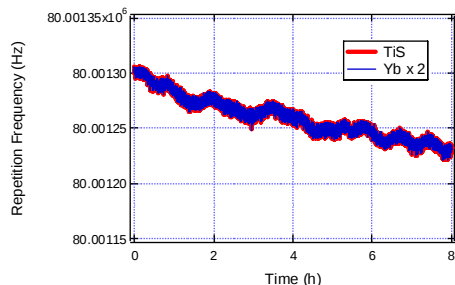


図 27 同期の長時間安定性

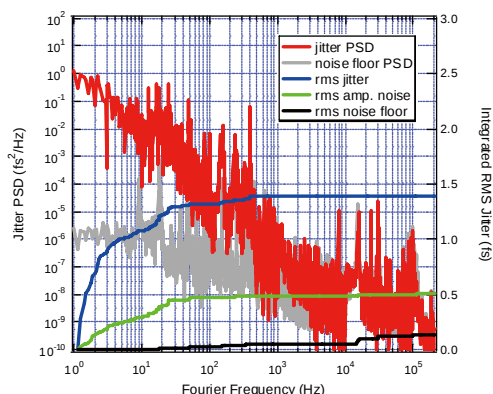


図 28 タイミングジッターの周波数スペクトル

(2-2) パラメトリック増幅地点における励起光とシード光の間のタイミングジッター評価

パラメトリック増幅(詳細は次節に後述)によるアイドラ光の揺らぎを測定することにより、増幅地点における励起光とシード光の間のタイミングジッターを評価した。図 29 は、タイミングジッターの周波数スペクトルを示す。1Hz から 0.2MHz (ナイキスト周波数) まで積分したタイミングジッターは 42 fs である。(2-1)の結果に比べて、ジッターが増えた要因を探るため、ファイバ増幅器の各点におけるジッターを測定した結果を光路長に対してプロットしたものを図 30 に示す。おおむね、光路長に対して線形に増加している様子が分かり、おもに環境由来による光路長揺らぎが原因であることが推測される。しかし、このジッターの値自体は、パルス幅に比べて十分小さいため、パラメトリック増幅にはそれほど影響を与えないレベルである。

参考文献

原著論文: (29)

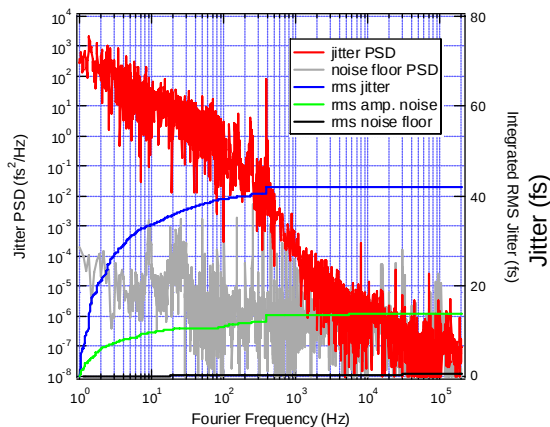


図 29 タイミングジッターの周波数スペクトル

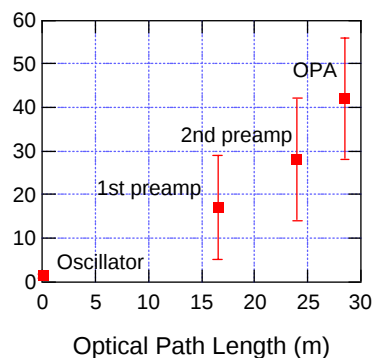


図 30 各点におけるジッターの変化

(3) パラメトリック増幅を用いた任意波形光源の高強度化

(1-4)で得た $18 \mu\text{J}$, 0.4MHz の励起パルスを用いて、多色チャープパルスパラメトリック増幅による任意波形光源の高強度化を行った。任意波形光源であるパラメトリック発振器から発生する多色パルスのうち、シグナル(2ω 、波長 1275 nm)・ポンプ(3ω 、波長 850 nm)・シグナルの第二高調波(4ω 、波長 637 nm)の周波数比2:3:4となる3色パルスに対して、励起光約 $5 \mu\text{J}$ ずつを用いて、増幅を行った。図 31 に、システムの構成を示す。

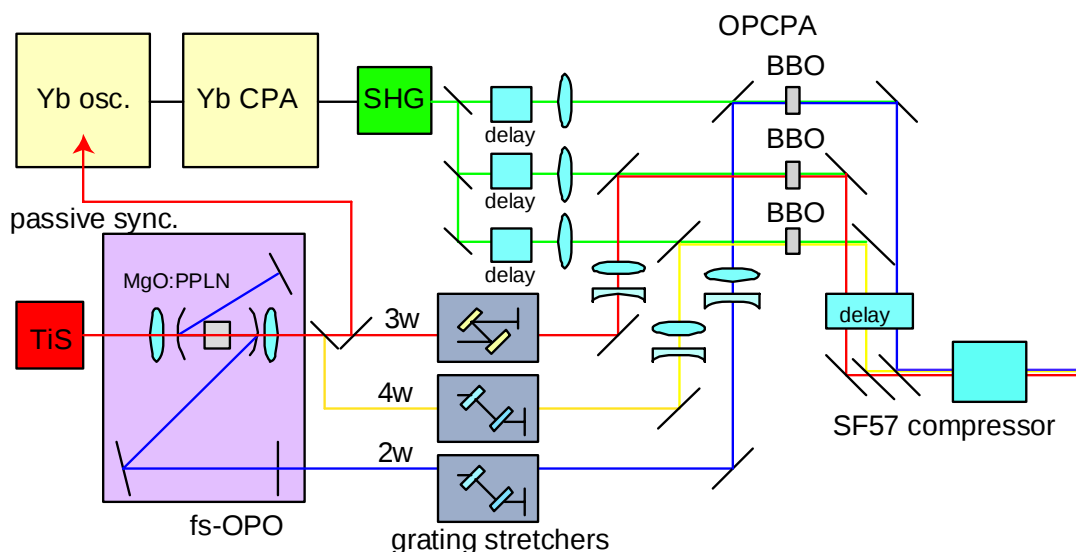


図 31 多色チャープパルスパラメトリック増幅システムの構成

励起パルス幅と合わせるために、3色のシードパルスをそれぞれ、回折格子対によるストレッチャーを用いて延伸し、非線形結晶 BBO に励起光と同軸に集光する。増幅後は、SF57 ガラスブロック(長さ 10cm)を用いて、再圧縮を行う。3 ω については、厚さ 3mm の BBO を用いたシングルパス増幅で励起パルスエネルギー 5 μ J に対して、940 倍の増幅が得られ、パルスエネルギー 0.26 μ J を得た。図 32、図 33 に増幅パルスの時間波形とスペクトルを示す。変換効率は 5.2% であり、ほぼフーリエ限界まで圧縮したパルス幅は 130 fs であった。2 ω 、4 ω については、シード光パワーが弱いため、ダブルパス増幅を行った。2 ω については、厚さ 3mm の BBO を用いたダブルパス増幅で励起パルスエネルギー 6 μ J に対して、2300 倍の増幅が得られ、パルスエネルギー 0.13 μ J を得た。図 34、図 35 に増幅パルスの時間波形とスペクトルを示す。変換効率は 2.2% であり、ほぼフーリエ限界まで圧縮したパルス幅は 140 fs であった。4 ω については、厚さ 5mm の BBO を用いたダブルパス増幅で励起パルスエネルギー 4 μ J に対して、29000 倍の増幅が得られ、パルスエネルギー 0.25 μ J を得た。図 36、図 37 に増幅パルスの時間波形とスペクトルを示す。変換効率は 6.3% であり、ほぼフーリエ限界まで圧縮したパルス幅は 270 fs であった。

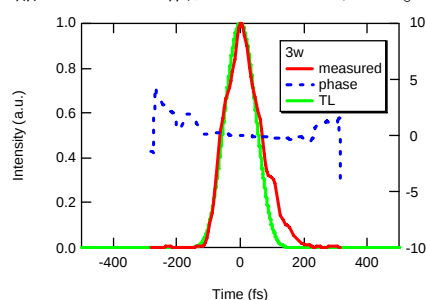


図 32 3 ω 増幅光パルスの時間波形

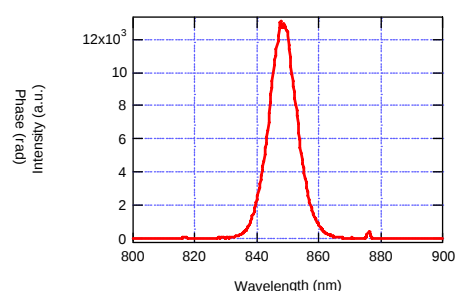


図 33 3 ω 増幅光パルスのスペクトル

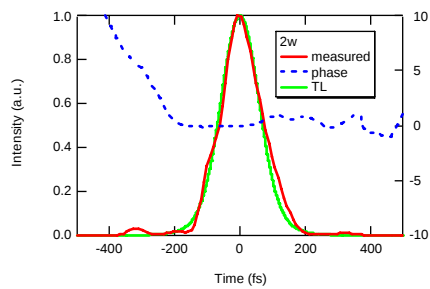


図 34 2ω 増幅光パルスの時間波形

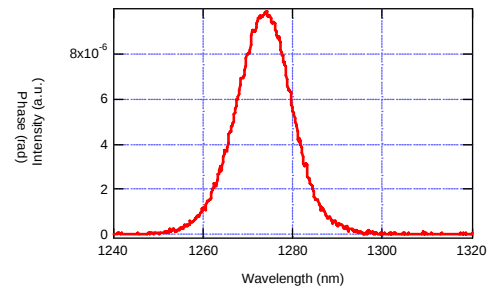


図 35 2ω 増幅光パルスのスペクトル

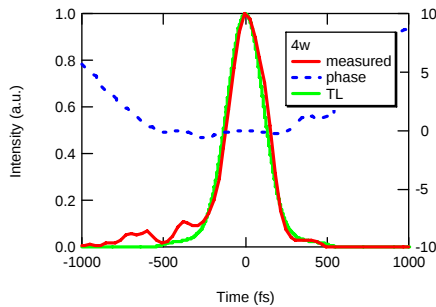


図 36 4ω 増幅光パルスの時間波形

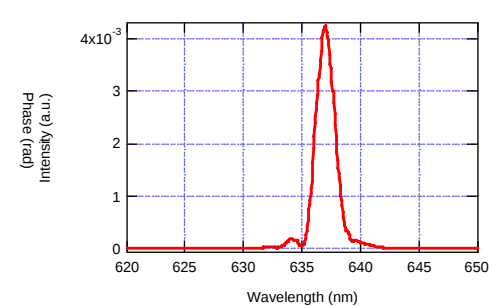


図 37 4ω 増幅光パルスのスペクトル

以上のように、周波数比 2:3:4 の 3 色パルスを合成電界の直接検証に必要なサブ μJ レベルまで増幅し、数 100fs のパルス幅に圧縮することに成功した。

(4) 任意波形光源の電界波形計測手法の確立

(4-1) 同時発生周波数混合光の干渉による合成電界波形計測手法の確立

究極的には、高強度化した後、光電離・光電子放出などの電界依存現象を観測し、それにより任意電界波形の効果を検証すると同時に、電界波形計測の手法を確立することが本研究のねらいの一つであるが、低強度領域においても波形を見積もることができる方法として、同時発生周波数混合光の干渉を用いる方法を確立した。多色パルス間の相対位相を正確に計測し、電界波形を再構築する。再構築そのものは単純な計算で行えるが、電界合成点での各色成分の相対位相を正確に測定するには工夫が必要である。図 38 に示す通り、周波数比 $2\omega:3\omega:4\omega$ の合計 3 色のパルスの合成点での相対位相を周波数混合過程の干渉を利用することによって測定した。合成点に薄い非線形結晶を配置すると、 $2\omega+4\omega$ の和周波過程と $3\omega \times 2$ の第二高調波過程が同時に発生し、両方の周波数混合波の波長がともに 6ω となることから、干渉が生じる。この干渉を測定することにより、3 色パルスの相対位相関係を決定することが可能となる。さらに、非線形結晶の位相整合角を変化させることにより、 $2\omega \times 2$ の第二高調波と 4ω 自身の干渉を得ることもでき、それらの位相関係の測定結果と別に測定された振幅情報を合わせて、合成波の電界波形を決定することができた。

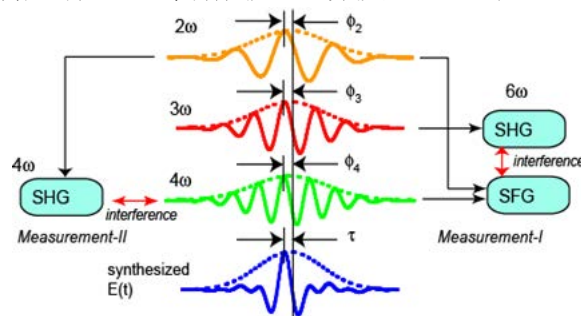


図 38 測定法の原理図

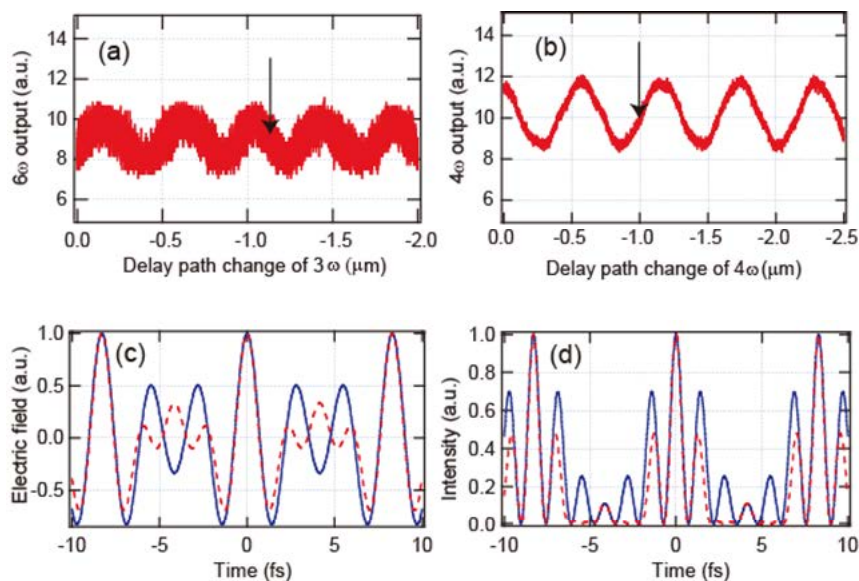


図 39 (a) $2\omega + 4\omega$ と $3\omega \times 2$ (b) $2\omega \times 2$ と 4ω の干渉波形。
(c)再構築電界波形 (d)再構築強度波形

図 39 (a),(b)はそれぞれの混合過程における干渉波形である。矢印で示した位相に調整した時の再構築された合成電界波形及び強度波形を(c),(d)に示した。

参考文献

原著論文: (18)

(4-2) 多光子イオン化過程の干渉による電界波形効果の検証と波形の直接測定へ

電界波形依存効果の検証とそれによる波形の直接測定をめざして、多光子イオン化過程の干渉の観測を行うべく、準備をすすめている。さまざまな量子経路を通った多光子イオン化過程の干渉により、角度分解光電子スペクトルに各色の相対位相の効果が表れることが理論的に予測されている(図 40)。実験では、3色のパルスを合成して、希ガスなどに集光し、多光子イオン化によって、ある一定の角度に放出された光電子の運動エネルギー分布を測定する予定である。そのために、飛行時間型光電子分光器の設計及び製作を現在、行っている。

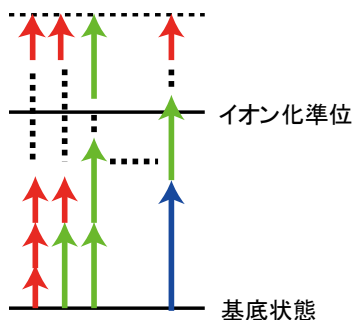


図 40 多光子イオン化過程の干渉の原理図

(5) 任意波形光源系とアト秒パルス発生系のシステム同期(理科大・物性研グループと共同)

理科大・物性研グループで開発されているアト秒パルス発生システムと産総研における高強度任意波形光源を融合して、アト秒領域における電子操作技術を開拓するために、両システムの高精度なタイミング及び位相同期制御が不可欠である。理科大・物性研グルー

プのアト秒パルス発生システムと産総研グループの任意波形光源は、ともにチタンサファイアレーザーを基準としているため、2系統のチタンサファイアレーザー同士のタイミング同期及び位相同期制御の技術を開発することで、全体システムの実現可能性を実証することができる。現在、受動モード同期チタンサファイアレーザー発振器に対して、光非線形性を利用した受動的制御により、アト秒精度のタイミング及び位相の同期をめざして、研究を進めている。

(2)研究成果の今後期待される効果

本研究で開発した任意電界波形発生技術は、複数レーザーの精密制御に基づき、光の振動周期以内であるフェムト秒からアト秒に至る時間領域において、超高速に変化する任意の電界時間波形を合成する技術である。特に我々が、増幅された光パルスにおいても光波合成可能なレーザーシステムを実現したことで、一般に高光強度を必要とする瞬時電界の関与する諸現象において、計測や新機能発現の観点から電子を光で操作する研究が大きく促進されることが期待される。例えば、金属などの固体表面からは光の電界波形を直接反映した電子放出がおこるとされ、これまでも計算科学的な研究がなされているが、本研究の成果をうけて、従来は存在しなかった人為的な光電界波形によって、意図的に放出や運動を操作するような実験が計画されるようになるであろう。無機・有機の電子材料やライフ分野の高分子まで、幅広い物質の電子状態の解析などに、新しい発想の計測を通して貢献が期待できる。また、半導体光電子材料においては、これまでも多波長光の位相関係を利用して量子干渉で電流方向を操作する実験が報告されている。任意電界波形の生成装置は、はるかに多機能な光誘起電流の制御によって新しい光電子デバイス機能の発現を目指す研究にも適用されるであろう。もちろん、本成果の増幅技術(nJ から μ J)をさらに mJ 級までステップアップすることで、自由原子・分子のイオン化や高次高調波に基づいたいわゆるアト秒科学の研究に利用する方向にも、確実に技術と研究は進むと思われる。

視点を変えれば、任意電界波形発生光源は超広帯域で位相と強度が制御されたコヒーレント光源でもある。化学反応における反応経路の選択や、物質中の光誘起現象の高効率化といったコヒーレント操作の分野でも、電子遷移から振動回転遷移まで一括した操作を可能とすることで新機能発現や効果の向上を期待できる。

開発成果を要素技術としてみても、波形合成の為に異波長レーザー間の高精度なタイミング・位相同期技術は、帯域拡大によるレーザーの短パルス化、高精度クロック信号の遠隔地伝送、加速器実験施設などにおけるタイミング同期など、さまざまな分野に応用が期待されている。また、周波数領域でこの技術を見ると、光周波数の高精度計測や次世代の光原子時計の確立に欠かせない周波数コム技術としても利用可能であり、波及効果は大きい。

最後に、本研究で開発した Yb ドープファイバレーザーのシステムは、旧来の超短パルスレーザーに比べ、高繰り返し・高平均出力性に加えて、さらに簡便で低コスト、低消費電力といった利点も兼ね備えており、近年、加工用途など産業技術としても、非常に重要な役割を果たしつつある。本研究で開発したシステムは、パルスエネルギー・繰り返し周波数・パルス幅などにおいて、加工・改質用途にも充分適用できる特性をもっており、今後は高品位な光電子部品加工などへの応用も視野に入れて、研究を進めたいと考えている。

§ 5 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内(和文)誌 件、国際(欧文)誌 37 件)

- 1) T.Liu, T.Kanai, T. Sekikawa, and S. Watanabe “Significant enhancement of high-order harmonics below 10 nm in a two-color laser field” Phys. Rev. A, 73, 063823-1-8 (2006)
- 2) A. Kosuge, T. Sekikawa, X. Zhou, T. Kanai, S. Adachi, and S. Watanabe, “Frequency-Resolved Optical Gating of Isolated Attosecond Pulses in the Extreme Ultraviolet” Phys. Rev. Lett. , Vol. 97, 263901-1-4 (2006)
- 3) T. Nakajima and S. Watanabe “Phase-dependent excitation and ionization in the multiphoton ionization regime”, Optics Letters, Vol. 31, No. 12, 1920-1922 (2006)
- 4) T. Nakajima and S. Watanabe “Effects of the Carrier-Envelope Phase in the Multiphoton Ionization Regime” Phys. Rev. Lett. , Vol. 96, 213001-1-4 (2006)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) 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 β -Pyrochlore KOs_2O_6 Studied by Photoemission Spectroscopy” Phys. Rev. Lett., Vol. 99, 11703-1-4 (2007)
- 8) 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)
- 9) 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)
- 10) 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)
 - 11) 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)
 - 12) 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)
 - 13) K. Ishizaka, R. Eguchi, S. Tsuda, A. Chainani, T. Yokoya, T. Kiss, T. Shimojima, T. Togashi, S. Watanabe, C.-T. Chen, Y. Takano, M. Nagao, I. Sakaguchi, T. Takenouchi, H. Kawarada, S. Shin “Temperature-dependent localized excitations of doped carriers in superconducting diamond” *Phys. Rev. Lett.* , Vol. 100, 166402 (2008)
 - 14) Chuangtian Chen, Guiling Wang, Xiaoyang Wang, Yong Zhou, Zuyan Xu, Teruto Kanai, and Shuntaro Watanabe “Improved sellmeier equations and phase-matching characteristics in deep-ultraviolet region of $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ Crystal” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Vol. 44, No. 7 (2008)
 - 15) 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*, Vol. 16, No. 19, 14341 (2008)
 - 16) 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,” *Optics Express*, Vol. 16, Issue 25, pp. 20876-20883 (2008)

- 17) X. Zhou, D. Yoshitomi, Y. Kobayashi and K. Torizuka, "Generation of 28-fs pulses from a mode-locked ytterbium fiber oscillator," *Optics Express*, Vol. 16, No. 10, pp. 7055-7059 (2008).
- 18) D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, and K. Torizuka, "Characterization of Fourier-synthesized optical waveforms from optically phase-locked femtosecond multicolor pulses," *Optics Letters*, Vol. 33, Issue 24, pp. 2925-2927 (2008).
- 19) M. Matsunami, R. Eguchi, T. Kiss, K. Horiba, A. Chainani, M. Taguchi, K. Yamamoto, T. Togoshi, S. Watanabe, X. Wang, C. Chen, Y. Senba, H. Ohashi, H. Sugawara, H. Sato, H. Harima, and S. Shin, "Anomalous duality of $4f$ electrons in filled skutterudite $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$," *Physical Review Letters* 102, 036403-036406 (2009)
- 20) Teruto Kanai, Xiaoyan Wang, Shunsuke Adachi, Shuntaro Watanabe, and Chuangtian Chen "Watt-level tunable deep ultraviolet light source by a KBBF prism-coupled device" *Optics Express*, Vol. 17, No. 10, pp. 8696-8703 (2009)
- 21) Yun Zhang, Yusuke Sato, Nobuyoshi Watanabe, Risky Ananda, Yoshiko Okada-Shudo, Masayoshi Watanabe, Masaharu Hyodo, Xiaoyang Wang, Chuangtian Chen, Teruto Kanai, and Shuntaro Watanabe "Generation of quasi-continuous-wave vacuum-ultraviolet coherent light by fourth-harmonic of a Ti:sapphire laser with KBBF crystal" *Optics Express*, Vol. 17, No. 10, pp. 8119-8124 (2009)
- 22) Shunsuke TSUDA, Takayoshi YOKOYA, Takayuki KISS, Takahiro SHIMOJIMA, Kyoko ISHIZAKA, Shik SHIN, Tadashi TOGASHI, Shuntaro WATANABE, Chengqian ZHANG, Chuangtian CHEN, Izumi HASE, Hiroyuki TAKEYA, Kazuto HIRATA, and Kazumasa TOGANO "Strong-Coupling Superconductivity in Noncentrosymmetric Superconductor $\text{Li}_2\text{Pd}_3\text{B}$ by Sub-meV Photoemission Spectroscopy" *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 78, No. 3, 034711-1-4 (2009)
- 23) 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)
- 24) 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 (2010)

- 25) 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, 022701 (2011)
- 26) 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)
- 27) 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. B83,081104(R) (2011)
- 28) 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)
- 29) 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)
- 30) C. Zhou, T. Seki, T. Sukegawa, T. Kanai, J. Itatani, Y. Kobayashi, and S. Watanabe, "Large-scale, high-efficiency transmission grating," Appl. Phys. Express 4-7, 072701, 1-3(2011) (DOI:10.1143/APEX.4.072701)
- 31) Y. Nomura, Y. Ito, A. Ozawa, X. Wang, C-T. Chens, S. Shin, S. Watanabe, and Y. Kobayashi, "Coherent quasi-cw 153 nm source at 33 MHz repetition rate," Opt. Lett. 36, 1758-1760 (2011) (DOI:10.1384/OL.36.1758)
- 32) Y. Zhang, N. Watanabe, Y. Okada-Shundo, M. Watanabe, M. Hyodo, X. Wang, Y. Zhu, C-T. Chen, T. Kanai, and S. Watanabe,

- “Generation of quasi-cw deep ultraviolet light below 200 nm by two successive cavity enhanced second harmonic generation,” Jpn.J. Appl. Phys. 50, 042703,1-4(2011)(DOI:10.1143/JJAP.50.042703)
- 33) T. Shimojima ,F. Sakaguchi,K. Ishizawa, T. Kiss, M. Okawa, t. Togashi, C. T. Chen, S. Watanabe, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, K. Ohgushi, S. Kasahara, T. Terashima, T. Shibauchi, Y. Matsuda, A. Chainani, and S.Shin “Orbital-independent superconducting gaps in iron pnictides,” Science,332,564-567(2011)(DOI:10.1126/science.1202150
 - 34) Y. Ishida, H. Kanto, A.Kitakawa, Y. Taniguchi, Y. Ito, Y. Oka, K. Okazaki, W. Malaeb, M.Mulazzi,M. Okada, S. Watanabe, C. T. Chen, M. Kim, C. Bell, Y. Kozuka, H. Y. Hwang, Y. Tokura, and S. Shin “Common Origin of the Circular-Dichroism Pattern in Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy of SrTiO₃ and Cu₂Bi₂Se₃”, PHYSICAL REVIEW LETTERS, 107 077601-1 - 4(2011) (DOI:10.1103/PhysRevLett.107.077601)
 - 35) N. Ishii, S. Adachi, Y. Nomura, A. Kosuge, 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. Vol. 37, No. 1, pp 97-99 (2012).
 - 36) 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).
 - 37) H. Sone, D. Yoshitomi, X. Zhou, Y. Harada, S. Nakamura, F. Abrishamian, R. Kasahara, K. Kikuchi, and K. Torizuka, “Spectra and phases of supercontinuum pulses generated in tapered fiber and photonic-crystal-fiber with low dispersion,” Rev. Laser Eng. Vol. 39, No. 11, pp. 862-865 (2011).

(2) その他の著作物(総説、書籍など)

- 1) 吉富大、宮本直樹、関川太郎、金井輝人、渡部俊太郎 “アダプティブ光学素子を用いた高輝度軟 X 線発生” 光アライアンス、Vol. 17, NO. 1, 30-34 (2006)
- 2) 渡部俊太郎、足立俊輔 “超短パルス発生技術の進展”応用物理、第 76 巻、第 2 号, 115-124 (2007) (応用物理学会論文賞受賞)

- 3) 渡部俊太郎“「アト秒物理最前線」特集号によせて”、レーザー研究、36-1、4 (2008)
- 4) 小菅淳、渡部俊太郎“極端紫外単一アト秒パルス光の波形・位相同時測定”、レーザー研究、36-1、12-17 (2008)
- 5) 足立 俊輔、渡部 俊太郎「パラメトリックチャープパルス増幅による、数サイクルテラワット級搬送波位相制御光源の開発」レーザー研究、Vol.37, No. 6、420-424 (2009)
- 6) 吉富 大「アト秒精度光電場波形制御」応用物理 第 78 巻、第 2 号、141 (2009)
- 7) 石井順久、渡部俊太郎「高次高調波の短波長化と軟 X 線アト秒パルス発生」レーザー研究、Vol. 37, No. 12 (2009)
- 8) 渡部俊太郎、「アト秒パルス研究の最新動向」、OPTRONICS、No352、PP164-166、(2011)
- 9) 石井 順久、渡部 俊太郎「光パラメトリック増幅レーザーによる搬送波包絡線位相敏感 X 線高次高調波発生：X 線アト秒パルス発生へ」、OPTRONICS、No352、pp178-183 (2011)
- 10) 渡部 俊太郎「アト秒光科学—短波長短パルス極限を目指して」光アライアンス 22巻、11号 14-18 (2011)

(3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

① 招待講演 (国内会議13件、国際会議9件)

- 1) S. Watanabe, T. Sekikawa, A. Kosuge, and T. Kanai “Attosecond pulse characterization by XUV nonlinear optics” Conference on Lasers and Electro-Optics, CFF3, Optical society of America (Long Beach, May, 2006) (invited)
- 2) K. Torizuka, “Timing and Phase Stabilization of Ultrashort Light Pulses,” The 19th Annual Meeting of The IEEE Lasers and Electro-optics Society (Montreal, Oct., 2006) (invited)
- 3) 鳥塚 健二「超短パルス光のパルスタイミングと位相の精密制御技術」, 第4回エクストリームフォトニクス研究会「コヒーレント光科学」(蒲郡、Nov., 2006) (invited)
- 4) S. Watanabe, “Attosecond Nonlinear Optics” International workshop and 391. WE-Heraeus-Seminar on Attosecond Physics, (Dresden, Aug. , 2007) (invited)
- 5) 渡部俊太郎 “極限紫外・軟 X 線領域におけるコヒーレント光源の現状と展望 -レーザーと放射光-” 日本物理学会年次大会(北大, 2007 年 9 月)(invited)

- 6) 吉富 大, 小林 洋平, 鳥塚 健二, 「複数のフェムト秒レーザーパルスの高精度タイミング同期」, 東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会 (仙台, Nov., 2007) (invited)
- 7) 小林 洋平, 吉富 大, 鳥塚 健二, 「アト秒光シンセサイザの研究」, 超高速光エレクトロニクス研究会 (東京, Nov., 2007) (invited)
- 8) 鳥塚 健二「光電界波形合成を目指した多波長コヒーレントパルス光源」東工大-物材機構合同研究シンポジウム, (大岡山, Feb., 2008) (invited)
- 9) 吉富 大, 大沼 岳人, 谷 修一, 青木 崇, 周 翔宇, 小林 洋平, 鳥塚 健二, 「超短パルスレーザーの精密制御技術」, 電気学会光・量子デバイス研究会 (横浜, Mar., 2008) (invited)
- 10) D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, X. Zhou, and K. Torizuka, “Fourier synthesis toward attosecond pulse generation,” International workshop on attosecond sciences (Beijing, Mar., 2008) (invited)
- 11) 渡部 俊太郎, 足立 俊輔, 「超短パルス発生技術の進展(第 30 回応用物理学会論文賞受賞記念講演)」、第 69 回応用物理学会学術講演会 (春日井, 2008 年 9 月)
- 12) S. Watanabe, “Frontier of high harmonics-toward keV x-ray and sub-50 attosecond pulses” Symposium on ultrafast intense laser science in Karuizawa (Karuizawa, Jan. 2009) (invited)
- 13) 渡部俊太郎, 「コヒーレント短波長光生成に関する先駆的研究とアト秒非線形光学への展開(第 10 回光・量子エレクトロニクス業績賞記念講演)」、第 56 回応用物理学関係連合講演会(つくば, 2009 年 3 月)
- 14) S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, A. Kosuge, J. Itatani, T. Kanai, and S. Watanabe, “CEP control of few-cycle multi-mJ OPCPA system for attosecond harmonics generation” RIKEN International Symposium on Attosecond Science (Wako, April, 2009) (invited)
- 15) N. Ishii, S. Adachi, Y. Nomura, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, T. Kanai and S. Watanabe, “High-harmonic generation in the water window using a CEP-locked few-cycle OPCPA system” RIKEN International Symposium on Attosecond Science (Wako, April, 2009) (invited)
- 16) K. Torizuka, “Attosecond timing and phase synchronization among multi-color femtosecond pulses,” The 4th International Symposium on Ultrafast Photonic Technology (ISUPT2009) , (NICT, AIST, Tohoku Univ.) (Sendai, Aug., 2009) (invited)

- 17) K. Torizuka, "Optical Field Synthesis using Multi-color Femtosecond Pulses, " Laser and Electro-Optic Society(CLEO-PR'09), (Shanghai, Sept., 2009) (invited)
- 18) 渡部 俊太郎「アト秒光科学—短パルス・短波長極限を目指して」第11回光量子科学研究シンポジウム、原研光量子センター(木津)、6月24日(2010)
- 19) 渡部 俊太郎 「アト秒光科学—短パルス・短波長極限を目指して」日本光学会年次講演会(OPJ 2010)、中央大学駿河台記念館、11月8日(2010)
- 20) 石井 順久、板谷 治郎、渡部 俊太郎「CEP 安定化 OPCPA を用いた高次高調波発生と短波長化」、レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会、電通大、2011 年 1 月10日
- 21) 渡部俊太郎(東京理科大)、「アト秒光科学—短パルス・短波長極限を目指して」 Optics and Photonics international 2011 レーザー学会特別講演、パシフィコ横浜、4 月 20 日(2011)
- 22) 渡部俊太郎(東京理科大)、「加工用光源—短波長・短パルスレーザー」Laser Tech 2011、レーザー協会セミナー、パシフィコ横浜、9 月 30 日(2011)

② 口頭発表 (国内会議 51 件、国際会議 26 件)

- 1) T. Liu, T. Kanai, S. Watanabe, T. Sekikawa "Generation of Efficient High-Order Harmonics below 10 nm in a Two-Color Laser Field" Conference on Lasers and Electro-Optics, JThD2, Optical society of America (Long Beach, May, 2006)
- 2) Kosuge, T. Sekikawa, X. Zhou, T. Kanai and S. Watanabe "Frequency-resolved optical gating of isolated attosecond harmonic pulses" Conference on Lasers and Electro-Optics, CPDA-7, Optical society of America (Long Beach, May, 2006)
- 3) 周 翔宇, 李 熙煥, 金井輝人, 足立俊輔, 渡部俊太郎、“光パラメトリック増幅を併用した超短パルスチタンサファイア増幅”応用物理学会(相模原市、2007 年 3 月)
- 4) 足立俊輔, 石井博樹, 金井輝人, 石井順久, 渡部俊太郎、“1-kHz 数サイクル高強度光パラメトリックチャープパルス増幅システムの開発(1)”(相模原市、2007 年 3 月)
- 5) 石井順久, 足立俊輔, 石井博樹, 金井輝人, 渡部俊太郎、“1-kHz 数サイクル高強度光パラメトリックチャープパルス増幅システムの開発(2)”(相模原市、2007 年 3 月)

模原市、2007 年 3 月)

- 6) 大沼岳人、谷修一、吉富大、小林洋平、横井秀樹、鳥塚健二 「 μ J 級チタンサファイアレーザーシート Yb ファイバーアンプシステムの開発」 応用物理学会(相模原市、2007. 3)
- 7) 小林洋平、吉富大、鳥塚健二 「サブ 6 fs オクターブバンド 1GHz チタンサファイアレーザー」応用物理学会(相模原市、2007. 3)
- 8) S. Adachi, H. Ishii, T. Kanai and S. Watanabe, “1.2-mJ, 1-kHz OPCPA System toward Few-Cycle Pulse” Conference on Lasers and Electro-Optics, CMK3, Optical society of America (Baltimore, May, 2007)
- 9) X. Zhou, H. Lee, T. Kanai, S. Adachi and S. Watanabe, “An 11-fs 5-kHz Optical Parametric/ Ti:sapphire Hybrid Chirped Pulse Amplification System” Conference on Lasers and Electro-Optics, CMT6, Optical society of America (Baltimore, May, 2007)
- 10) Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, M. Kakehata, H. Takada, Y. Sakakibara, H. Kataura, K. Torizuka, T. Onuma, H. Yokoi, T. Sekiguchi and S. Nakamura, “Laser-mode Dynamics Measurement and Control of Mode-locked Er-fiber Lasers,” Conference on Lasers and Electro-Optics (Baltimore, 2007.5)
- 11) D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, M. Kakehata, H. Takada, K. Torizuka, T. Onuma, H. Yokoi, T. Sekiguchi, and S. Nakamura, “Ultralow-Jitter Passive Timing Stabilization of a Mode-Locked Fiber Laser by Injection of Reference Pulses,” Conference on Lasers and Electro-Optics (Baltimore, 2007.5)
- 12) Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, T. Fortier, and S. Diddams, “Sub 6-fs Pulses Generated from a Broadband 1-GHz Ti:sapphire Oscillator,” Conference on Lasers and Electro-Optics (Baltimore, 2007.5)
- 13) Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, T. Fortier, and S. Diddams, “Sub 6-fs Pulses Generated from a Broadband 1-GHz Ti:sapphire Oscillator,” Conference on Lasers and Electro-Optics (Baltimore, 2007.5)
- 14) S. Adachi, H. Ishii, T. Kanai, N. Ishii, A. Kosuge, and S. Watanabe, “1.5-mJ, 6.4-fs OPCPA system at 1 kHz” UFO/HFSW 2007 (Santa Fe, Sep, 2007)
- 15) 足立俊輔、石井順久、石井博樹、金井輝人、渡部俊太郎 “1-kHz サブテラワット光パラメトリックチャープパルス増幅システムの開発” 応用物理学会秋季学術講演会(北海道工業大学, 2007 年 9 月)

- 16) 金井輝人、足立俊輔、渡部俊太郎、Xiaoyan Wang、Chuangtian Chen
“KBBF による真空紫外光の発生” 応用物理学会秋季学術講演会(北海道工業大学, 2007 年 9 月)
- 17) 谷 修一, 大沼 岳人, 周 翔宇, 横井 秀樹, 吉富 大, 小林 洋平, 鳥塚健二, 「28W フェムト秒 Yb ファイバーアンプシステム」, 応用物理学会(札幌, 2007.9)
- 18) 周 翔宇, 谷 修一, 吉富 大, 小林 洋平, 鳥塚 健二, 「モード同期 Yb ファイバーレーザー発振器による超短パルス発生」, 応用物理学会(札幌, 2007.9)
- 19) 足立俊輔、石井順久、石井博樹、金井輝人、小菅淳、渡部俊太郎、小林洋平、吉富大、鳥塚健二“5 フェムト秒サブテラワット CEP 制御 OPCPA システムの開発” 応用物理学関係連合講演会(日本大学(船橋), 2008)
- 20) 石井順久、林俊樹、小菅淳、金井輝人、足立俊輔、渡部俊太郎“相対位相のロックした 2 色電場による Soft X-ray 領域の高次高調波の増大効果の観測” 応用物理学関係連合講演会(日本大学(船橋), 2008)
- 21) 吉富 大, 小林 洋平, 鳥塚 健二, 「フーリエ合成波形計測のための多波長パルスの相対位相測定」 応用物理学会(船橋, 2008. 3)
- 22) 青木 崇, 吉富 大, 谷 修一, 小林 洋平, 横井 秀樹, 本間 哲哉, 鳥塚健二, 「高繰り返し高強度超短パルス Yb ファイバレーザシステムの開発」, 応用物理学会(船橋, 2008.3)
- 23) 谷 修一, 横井 秀樹, 吉富 大, 小林 洋平, 鳥塚 健二, 「エンハンスメントキャビティによるフェムト秒パルス増幅」, 応用物理学会(船橋, 2008. 3)
- 24) S. Adachi N. Ishii, H. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, S. Watanabe, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, “5-fs Multi-mJ CEP-Locked OPCPA System at 1 kHz” Conference on Lasers and Electro-Optics, CTuEE1, Optical Society of America (San Jose, May, 2008)
- 25) C. Chen, S. Watanabe, Z. Xu, “Deep-UV Harmonic Generation and Applications” Conference on Lasers and Electro-Optics, CThO5, Optical Society of America (San Jose, May, 2008)
- 26) Y. Kobayashi, X. Zhou, D. Yoshitomi and K. Torizuka, “Passive timing synchronization between Ti:sapphire laser and Yb-doped fiber laser,” Conference on Lasers and Electro-Optics, Optical Society of America (San Jose, 2008. 5).

- 27) D. Yoshitomi, Y. Kobayashi and K. Torizuka, "Relative-Phase Measurement of Multicolor Pulses for Characterization of Fourier-Synthesized Waveform," Conference on Lasers and Electro-Optics, Optical Society of America (San Jose, 2008. 5).
- 28) X. Zhou, D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, S. Tani, H. Yokoi and K. Torizuka, "Generation of Sub-30 fs Pulses from a od-Locked Ytterbium Fiber Laser Oscillator with phase Compensation," Conference on Lasers and Electro-Optics, Optical Society of America (San Jose, 2008. 5).
- 29) 足立俊輔、石井順久、金井輝人、小菅 淳、渡部 俊太郎、小林洋平、吉富大、鳥塚健二、「5フェムト秒テラワット級CEP制御パラメトリックチャープ 増幅システムの開発」、第9回光量子科学研究シンポジウム(木津、2008 年 7 月)
- 30) 石井 順久、小菅 淳、金井 輝人、板谷 治郎、足立 俊輔、渡部 俊太郎、「相対位相のロックした 2 色電場による光の高次高調波発生時の量子経路選択」、第 69 回応用物理学会学術講演会(春日井、2008 年 9 月)
- 31) 吉富 大、小林 洋平、鳥塚 健二、「同時発生周波数混合過程の干渉によるフーリエ合成波形の計測」、応用物理学会(春日井、2008. 9)
- 32) 周 翔宇、小林 洋平、吉富 大、鳥塚 健二、「80MHz 高強度超短パルス Yb ファイバーCPA 増幅システムの開発」、応用物理学会(春日井、2008. 9)
- 33) 谷 修一、横井 秀樹、吉富 大、小林 洋平、鳥塚 健二、「エンハンスメントキャビティによる 110W 超短パルス増幅」、応用物理学会(春日井、2008. 9)
- 34) 金井輝人、足立俊輔、渡部俊太郎、Xiaoyan Wang, Chuangtian Chen, 「KBBF による 1 W 級真空紫外光の発生」第 56 回応用物理学関係連合講演会(つくば、2009 年 3 月)
- 35) 渡辺信義、佐藤雄亮、金井輝人、兵頭政春、張 賛、岡田佳子、渡辺昌良、Chuang-Tian Chen, Xiao-Yang Wang, 渡部俊太郎、「KBBF 結晶を用いた準連続発生 VUV 光源の高出力化」、第 56 回応用物理学関係連合講演会(つくば、2009 年 3 月)
- 36) 足立俊輔、石井順久、野村雄高、小林洋平、小菅 淳、板谷治郎、金井輝人、渡部俊太郎、「CEP制御OPCPAによる高次高調波発生(1)、第56回応用物理学関係連合講演会(つくば、2009 年 3 月)
- 37) 石井順久、足立俊輔、野村雄高、小菅 淳、板谷治郎、小林洋平、金井輝人、渡部俊太郎、「CEP 制御 OPCPA による高次高調波発生(2):水の窓領域の高調波発生と CEP 効果、第 56 回応用物理学関係連合講演会(つくば、

2009 年 3 月)

- 38) 高田 英行、海老根 鉄也、周 翔宇、吉富 大、欠端 雅之、鳥塚 健二、
本間 哲哉、「高強度超短パルス Yb ファイバー CPA 増幅システムからの第 2
高調波発生」、応用物理学会(つくば、2009.3)
- 39) S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, A. Kosuge, J. Itatani,
T. Kanai, and S. Watanabe, "CEP control of few-cycle multi-mJ
OPCPA system for attosecond harmonics generation" Conference on
Lasers and Electro-Optics, CFN2 (p.186), Optical Society of America
(Baltimore, May, 2009)
- 40) N. Ishii, S. Adachi, Y. Nomura, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi,
T. Kanai and S. Watanabe, "High-harmonic generation in the water
window using a CEP-locked few-cycle OPCPA system" Conference
on Lasers and Electro-Optics, JThG4 (p.168), Optical Society of
America (Baltimore, May, 2009)
- 41) S. Adachi, N. Ishii, Y. Nomura, Y. Kobayashi, J. Itatani, T. Kanai,
and S. Watanabe, "Multi-mJ, sub-4-fs, CEP-controlled source at 1
kHz from an ionizing gas" UFO/HFSW 2005 (Arcachon Aug, 2009)
- 42) H. Takada , T. Ebine , M. Kakehata , K. Torizuka , and T.
Homma, "High-energy octave-band chirped mirror for an ultrashort
pulse amplification system," UltraFast Optics (UFO VII) and High
Field Short Wavelength (HFSW XIII) (Arcachon, 2009.9)
- 43) 足立俊輔、石井順久、野村雄高、小林洋平、板谷治郎、金井輝人、渡部俊
太郎、
「希ガス中のイオン化によるサブ 4fs マルチ mJ パルス発生」、応用物理学会
(富山大、2009 年.9 月)
- 44) 吉富 大、周 翔宇、小林 洋平、鳥塚 健二、「チタンサファイアレーザーに
同期した 800kHz, 5 μ J Yb ファイバー CPA システム」、応用物理学会(富山
大、2009. 9)
- 45) 周 翔宇、小林 洋平、吉富 大、鳥塚 健二、「エンハンスメントキャビティ
ーパルス増幅による 515nm 光源の開発」、応用物理学会(富山大、2009. 9)
- 46) 石井順久、北野健太、金井輝人、渡部俊太郎、板谷治郎「超短パルス光に
よる赤外差周波光発生と赤外広帯域パラメトリック蛍光の観測」第 71 回応用
物理学会学術講演会、長崎大学、2010 年 9 月 14-17 日
- 47) 野村雄高、伊藤孔明、小澤陽、Wang Xiaoyan、Chen Chuantian、辛埴、小林
洋平、渡部俊太郎「KBBF 結晶を用いた高繰返し真空紫外光源の開発」第
71 回応用物理学会学術講演会、長崎大学、2010 年 9 月 14-17 日

- 48) 伊藤孔明、野村雄高、辛埴、渡部俊太郎、小林洋平「波長可変狭線幅モード同期 Yb ファイバーレーザーの開発」第 71 回応用物理学会学術講演会、長崎大学、2010 年 9 月 14-17 日
- 49) 北野健太、石井順久、板谷治郎「高強度可視域レーザーと THz パルスによる分子配向」第 58 回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学、2011 年 3 月 25 日
- 50) 石井順久、北野健太、金井輝人、渡部俊太郎、板谷治郎「BIBO 結晶を用いた CEP 安定化オクターブ赤外 OPA」第 58 回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学、2011 年 3 月 25 日
- 51) Naoya Kuse, Makoto Kuwata-Gonokami, Yutaka Nomura, Shuntaro Watanabe, and Yohei Kobayashi, "Experimental Study of Pulse Evolution in a 30-fs Mode-Locked Yb-Fiber Oscillator," Conference on Lasers and Electro-Optics, San Jose, May 2010
- 52) Yohei Kobayashi, Yutaka Nomura, and Shuntaro Watanabe, "1.3-GHz, 20-W, Femtosecond Chirped-pulse Amplifier System," Conference on Lasers and Electro-Optics, San Jose, May 2010
- 53) 伊藤 功、中村 典雄、吉富 大、鳥塚 健二、本田 洋介、「ERL 光陰極電子銃のための Yb ファイバーレーザーシステムの開発」、日本加速器学会年会、姫路市文化センター、2010 年 8 月 4 日
- 54) 吉富 大、周 翔宇、小林 洋平、鳥塚 健二、「多色 OPCPA 励起のためにタイミング同期された 0.4MHz, 50 μ J フェムト秒 Yb ファイバレーザーシステム」、応用物理学会、長崎大学、2010 年 9 月 17 日
- 55) 伊藤 功、中村 典雄、吉富 大、鳥塚 健二、本田 洋介、「高繰り返し能動モード同期 Yb ファイバーレーザー発振器の開発」、応用物理学会、長崎大学、2010 年 9 月 16 日
- 56) 植村 禎夫、鳥塚 健二、「LD 励起カーレンズモード同期 Yb:YAG レーザーの開発 IV」、応用物理学会、長崎大学、2010 年 9 月 16 日
- 57) 周 翔宇、吉富 大、小林 洋平、鳥塚 健二、「エンハンスメントキャビティパルス増幅による 160W 517nm フェムト秒高繰り返し周波数光源の開発」、応用物理学会、長崎大学、2010 年 9 月 17 日
- 58) 曾根 宏靖、吉富 大、周 翔宇、菊地 弘祐、笠原 亮、Fatameh Abrishamian、中村 真毅、原田 康浩、鳥塚 健二、「低分散ファイバーで発生したスーパーコンティニウムパルスのスペクトルと位相」、Optics & Photonics Japan、中央大学、2010 年 11 月 8 日

- 59) 周 翔宇、吉富 大、小林 洋平、高田 英行、鳥塚 健二、「高強度超短パルス Yb ファイバーレーザーの開発」、超高速光エレクトロニクス研究会、筑波山、2010 年 12 月 3 日
- 60) 伊藤 功、中村 典雄、吉富 大、鳥塚 健二、笠原 亮、本田 洋介、「ERL 光陰極電子銃のための Yb ファイバーレーザーシステムの開発」、超高速光エレクトロニクス研究会、筑波山、2010 年 12 月 3 日
- 61) 吉富 大、周 翔宇、小林 洋平、高田 英行、鳥塚 健二、「高強度任意光電界波形発生のための多色パラメトリックチャープパルス増幅」、応用物理学会、神奈川工科大学、2010 年 3 月 25 日
- 62) 伊藤 功、中村 典雄、吉富 大、鳥塚 健二、笠原 亮、本田 洋介、「ERL 光陰極電子銃のための Yb ファイバーレーザーシステムの開発」、応用物理学会、神奈川工科大学、2010 年 3 月 25 日
- 63) Xiangyu Zhou, Dai Yoshitomi, Yohei Kobayashi, and Kenji Torizuka, “1-Watt Average-Power 100-MHz Repetition-Rate 258-nm Ultraviolet Pulse Generation from a Femtosecond Ytterbium Fiber Amplifier,” Conference on Lasers and Electro-Optics, San Jose, May 21 2010
- 64) Isao Ito, Taisuke Kawasaki, Norio Nakamura, Dai Yoshitomi, Yohei Kobayashi, Kenji Torizuka, Yosuke Honda, and Hiroshi Kawata, “Development of an Yb-Doped Fiber Laser System for an ERL Photocathode Gun,” International Particle Accelerator Conference, May 23 2010
- 65) Sadao Uemura, and Kenji Torizuka, “35-fs Pulses from a Kerr-Lens Mode-Locked Yb:YAG Laser,” EPS-QEOD Europhoton Conference, Hamburg, Aug. 31 2010
- 66) 吉富 大、周 翔宇、小林 洋平、高田 英行、鳥塚 健二、「高強度任意光電界波形発生のための多色パラメトリックチャープパルス増幅 II」、応用物理学会、山形大学、2011 年 8 月 30 日
- 67) Dai Yoshitomi, Xiangyu Zhou, Yohei Kobayashi, Hideyuki Takada, and Kenji Torizuka, “Long-term stable passive synchronization of a 50- μ J, 690-fs, 0.4-Mhz Yb-doped fiber amplifier with a mode-locked Ti:sapphire laser,” Conference on Lasers and Electro-Optics, Baltimore, May 6, 2011
- 68) N. Ishii, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, and J. Itatani, “CEP-preserving octave-spanning IR OPA using BIBO and 800-nm pump pulses,” Conference on Lasers and Electro-Optics, Optical

Society of America (Baltimore, May 3, 2011)

- 69) 石井順久(物性研、CREST)、北野健太(物性研、CREST)、金井輝人(物性研、CREST)、渡部俊太郎(理科大、CREST)、板谷治郎(物性研、CREST)「BIBOを用いた位相保持オクターブ赤外 OPCPA システム開発」第 72 回応用物理学会学術講演会、山形大学、2011 年 8 月 29 日-9 月 2 日
- 70) 周春(東京理科大)、関敬司(キャノン)、助川隆(東大物性研)、金井輝人(東大物性研)、板谷治郎(東大物性研)、小林洋平(東大物性研)、渡部俊太郎(東京理科大)「1kHz テラワット級チタンサファイアレーザー用大型高効率透過型グレーティング」応用物理学会、山形大学、8 月 30 日(2011)
- 71) 周春(東京理科大)、金井輝人(東大物性研)、王〇陽(中国科学院)、陳創天(中国科学院)、渡部俊太郎(東京理科大)「多波長サブ TW 光源」、応用物理学会、山形大学、8 月 30 日(2011)
- 72) Shinji Ito, Takashi Onose, Shuntaro Watanabe, Kanai Teruto, Kouji Kakizaki, Takashi Matsunaga, Chuangtian Chen, Yohei Kobayashi, Chun Zhou, Junichi Fujimoto, Hakaru Mizoguchi, X. Y. Wang, “A sub-Watt, line-narrowing, 193-nm solid state laser operating at 6 kHz with KBBF for injection-locked ArF excimer laser systems”. Advanced Solid state Photonics, Optical Society of America, Paper AT4A.07 (San Diego, Jan. 31,2012)
- 73) 小野瀬貴士、渡部俊太郎、伊藤紳二、金井輝人、松永隆、柿崎弘司、周春、「固体オシレータを用いた 6kHz,90W 注入同期 ArF レーザーの開発」レーザー学会、仙台、2月1日(2012)
- 74) 鳥塚 健二、「高平均出力超短パルスレーザーの現状と課題」、電子光技術シンポジウム、台場、2012 年 2 月 22 日
- 75) 曾根 宏靖、原田 康浩、中村 真毅、吉富 大、高田 英行、笠原 亮、引田 雄翔、鳥塚 健二、「低分散フォトニック結晶ファイバーを用いたスーパーコンティニウム光発生の特長」、応用物理学会、早稲田大学、2012 年 3 月 15 日
- 76) 星遼太、金井輝人、兵頭雅春、X. Y. Wang,Y. Zhu,C. T. Chen, 張 、岡田佳子、渡辺昌良「ブリュースターカット KBBF-PCD を用いた 199.5nm 光発生」応用物理学会、早稲田大学、3月17日(2012)
- 77) 石井 順久、北野 健太、金島 圭佑、金井 輝人、渡部 俊太郎、板谷 治郎、「BIBO-OPCPA を用いた 8.2fs 位相保持高強度赤外パルス発生」、応用物理学会、早稲田大学、2012 年 3 月 18 日

③ ポスター発表 (国内会議 4 件、国際会議 5 件)

- 1) 小菅 淳、「高次高調波を用いたアト秒パルス発生と計測」、第9回光量子科学 研究シンポジウム (木津、2008 年 7 月)
- 2) K. Kitano (ISSP, CREST), N. Ishii (ISSP, CREST), and J. Itatani (ISSP, CREST),“Molecular orientation by intense visible and THz optical pulses,”Conference on Lasers and Electro-Optics, Baltimore, May 1, 2011
- 3) N. Ishii (ISSP, CREST), K. Kitano (ISSP, CREST), T. Kanai (ISSP, CREST), S. Watanabe (TUS, CREST), and J. Itatani (ISSP, CREST),“Few-cycle, phase-locked, octave IR OPA using BIBO and 800-nm pump,”3rd International Conference on Attosecond Physics, Sapporo Japan, July 6 – 8, 2011
- 4) K. Kitano (ISSP, CREST), N. Ishii (ISSP, CREST), and J. Itatani (ISSP, CREST),“Molecular orientation by intense visible and THz optical pulses,”12th International Conference on Multiphoton Processes, Sapporo Japan, July 3 – 6, 2011
- 5) 北野健太(物性研、CREST)、石井順久(物性研、CREST)、板谷治郎(物性研、CREST)「フェムト秒レーザーと高強度 THzパルスによる分子配向」第5回分子科学討論会、札幌コンベンションセンター、2011 年 9 月 20 日-23 日
- 6) 笠原 亮、伊藤 功、吉富 大、中村 真毅、中村 典雄、本田 洋介、鳥塚健二、「ERL 光陰極電子銃励起用 Yb ファイバーレーザーシステムの進捗状況」、日本加速器学会、2010 年 8 月 2 日
- 7) Isao Ito, Ryo Kasahara, Shinki Nakamura, Dai Yoshitomi, Kenji Torizuka, and Norio Nakamura, “Recent progress of an Yb-doped fiber laser system for an ERL-based light source,” Energy Recovery Linac 2011 (Tsukuba, Oct. 17, 2011).
- 8) Hiroyasu Sone, Dai Yoshitomi, Xiangyu Zhou, Kosuke Kikuchi, Ryo Kasahara, Fatemeh Abrishamian, Shinki Nakamura, Yasuhiro Harada, and Kenji Torizuka, “Spectral intensities and phase distributions of supercontinuum pulses generated in low-dispersion fibers,” 21st International Conference on Optical Fiber Sensors (OFS21)(Ottawa, May 17, 2011).
- 9) 鳥塚 健二、吉富 大、高田 英行、「光ファンクションジェネレータの構築に向けた超短パルス Yb ファイバーレーザーの開発」、電子光技術シンポジウム、台場、2012 年 2 月 22 日

(4)知財出願

①国内出願 (0 件)

②海外出願 (0 件)

③その他の知的財産権

(5)受賞・報道等

① 受賞

1. 2008年 応用物理学会論文賞(解説論文賞) (渡部俊太郎、足立俊輔)
「超短パルス発生技術の進展」
2. 2009年 光・量子エレクトロニクス業績賞(宅間賞) (渡部俊太郎)
「コヒーレント短波長光発生に関する先駆的研究とアト秒非線形光学への展開」
3. 2009年 光科学技術研究振興財団研究表彰平成 20 年度(小菅淳)
「高次高調波を用いた単一アト秒パルス発生と計測」
4. 2011 年 5 月 第 35 回レーザー学会奨励賞 (足立俊輔)
「パラメトリックチャープパルス増幅における 2 サイクル・マルチリジュール・搬送波位相制御光源の開発」、

②マスコミ(新聞・TV等)報道

③その他

(6)成果展開事例

①実用化に向けての展開

②社会還元的な展開活動

§ 6 研究期間中の主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成20年3月4日	第1回 極限コヒーレント光科学 ワークショップ	東京大学理学部 化学本館5階講堂(本郷キャンパス)	63名	策定中の柏キャンパスにおける「極限コヒーレント光科学研究センター計画」について紹介し、軟 X 線, 極端紫外からテラヘルツの広い波長領域にわたるコヒーレント光源を用いた光科学の将来について展望した。

§ 7 結び

アト秒パルス発生と CEP の制御は今世紀に入って始まった分野である。これらの背後にある技術は全く別物と思えた。アト秒の発生は高調波を発生するための高出力レーザーがベースにあるし、他方 CEP 制御は周波数標準に関わる超精密技術である。実際、二つの技術は2004年ごろまで別々に発展したように見えた。ところが2006年以降アト秒パルスの更なる発展のためには CEP 制御が不可欠であることが分かった。当時物性研では CEP を制御しない光源を用いて860アト秒パルスを発生し、これを自己相関で測定していた。また産総研では OPO の励起光、シグナル光、アイドラー光とその倍波の位相を制御し、光波合成を行っていた。この2つのグループを結集し、アト秒科学の発展と合成した光波の電界の直接測定を目標としてこのプロジェクトが始まった。しかしながら世界のレスポンスは更に素早く、人員と予算の規模が10倍のプロジェクトがドイツを中心に実施された。

このような環境の下で、世界的な成果を上げることができた。レーザー開発では、繰り返し1kHz,パルス幅5fsの TW 級 OPCPA システムを開発し、10nm 以下の波長で初めて高調波の CEP 依存性を観測し、水の窓領域の高調波を発生し、当初目標に迫った。図7に,(a)OPCPA とアト秒発生測定装置の全体配置、(b)OPCPA 装置、(c) アト秒発生・測定装置の写真を示す。OPCPA ではパルス幅、出力とも世界一を記録し、OPCPA がこの分野で不可欠であることを実証した。また光波合成では、Yb ファイバーレーザーの開発を行った。発信器では最短パルスを記録し、OPO で発生した多波長パルスの OPCPA では、その励起光源にファイバー増幅システムを初めて使用した。その結果 0.4MHz の繰り返しで、3波長において各々サブ μJ の出力を得た。増幅した3波長の相互位相を測定することにより、合成した波形を再生することに成功した。

これらの世界的成果に関わらず、最短単一アト秒パルスと合成光波の電界直接測定には一歩及ばなかった。

本プロジェクトに参加した多数の助教、研究員、ポスドク、大学院生は准教授、助教、研究員として他の機関に転出し、次世代を担うこととなった。この分野の更なる発展が期待できる。



図7(a)左、OPCPA システム、右、アト秒発生・測定装置



図7(b) OPCPA 装置



図7(c) アト秒発生・測定装置