

## 3MHz の超高繰り返し高次高調波発生

### —2 波長の極端紫外超短パルス光の応用に期待—

理化学研究所（理研）光量子工学研究センターアト秒科学研究チームの神田夏輝研究員（研究当時）、アマニ・レザ研究員（研究当時）、鍋川康夫専任研究員、緑川克美チームリーダー、東京大学大学院理学系研究科の五神真教授（現総長）らの共同研究グループ<sup>※</sup>は、二つの異なる波長域の極端紫外<sup>[1]</sup>高次高調波<sup>[2]</sup>を 3メガヘルツ（MHz、1MHz は 100 万ヘルツ）の超高繰り返しで同時に発生できるレーザー光源を開発しました。

本研究成果は、時間分解光電子分光<sup>[3]</sup>など、物質の超高速運動の様子を観測するための重要なツールになると期待できます。

極端紫外波長域の高次高調波は、コヒーレンス<sup>[4]</sup>、短波長性、短パルス性などに優れていますが、繰り返し周波数<sup>[5]</sup>が低い（最大でも数十 kHz）という課題がありました。

今回、共同研究グループは、長さ約 100m の周回型レーザー共振器<sup>[6]</sup>を真空チャンバー内に組み上げました。レーザー媒質として熱交換効率の良い Yb:YAG 薄ディスク<sup>[7]</sup>を用いることで、1kW を超えるパワーで励起が可能になりました。その結果、モード同期レーザー<sup>[8]</sup>発振において、レーザーパルス光の繰り返し周波数は約 3MHz に、パルスエネルギーは従来の約 100 万倍に及ぶ 0.7mJ に達しました。共振器内 2 カ所の集光点に、それぞれネオンガスおよびアルゴンガスを吹き付けたところ、ネオンガスからは波長域 24 ナノメートル（nm、1nm は 10 億分の 1 メートル）～60nm、アルゴンガスからは波長域 50nm～115nm の極端紫外高次高調波を同時発生させることに成功しました。

本研究は、オンライン科学雑誌『*Light: Science & Applications*』（9 月 24 日号）に掲載されました。



共振器内の集光点に吹き付けたネオン（Ne）ガスからの発光

## ※共同研究グループ

理化学研究所 光量子工学研究センター アト秒科学研究チーム

研究員（研究当時） 神田 夏輝（かんだ なつき）

（東京大学大学院工学系研究科 附属光量子科学研究センター

客員研究員（研究当時））

（東京大学物性研究所 附属極限コヒーレント光科学研究センター 助教）

研究員（研究当時） アマニ・レザ（Reza Amani）

（オークランド大学 サイエンスセンター リサーチフェロー）

技師

棚橋 晃宏（たなばし あきひろ）

専任研究員

鍋川 康夫（なべかわ やすお）

チームリーダー

緑川 克美（みどりかわ かつみ）

（光量子工学研究センター センター長、

東京大学大学院理学系研究科 附属フォトンサイエンス機構 客員教授）

東京大学大学院理学系研究科 附属フォトンサイエンス機構

教授

五神 真（ごのかみ まこと）

（東京大学大学院理学系研究科 物理学専攻 教授）

技術支援

サイバーレーザー（株）

## 研究支援

本研究は、文部科学省「最先端の光の創生を目指したネットワーク拠点プログラム：先端光量子科学アライアンス（拠点代表者：五神真）」、同「革新的イノベーション創出プログラム：コヒーレントフォトン技術によるイノベーション拠点（プロジェクトリーダー：湯本潤司）」による支援を受けて行われました。

## 1. 背景

真空紫外から X 線領域<sup>[1]</sup>にわたる波長の短いコヒーレント光源<sup>[4]</sup>は、物質のさまざまな性質を理解する上で非常に有用です。例えば、「放射光」は物質の構造解析に欠かせません。しかし、物質の非常に速い時間的な変化（ダイナミクス）を観測しようとする、放射光のパルス幅は 1 ピコ秒（ps、1ps は 1 兆分の 1 秒、 $10^{-12}$  秒）よりも長いため、1ps 以下の時間分解能は得られません。

一方で、「X 線自由電子レーザー（XFEL）<sup>[9]</sup>」のパルス幅は、100 フェムト秒（fs、1fs は 1000 兆分の 1 秒、 $10^{-15}$  秒）よりも短く、またパルスエネルギーも大きいことから、XFEL は高速ダイナミクスの観測に適しています。しかし、パルスの繰り返し周波数が 10~100 Hz 程度と低いため、ポンプ・プローブ型<sup>[10]</sup>の測定ではデータ取得に時間がかかるという問題があります。

極端紫外波長域の「高次高調波」は、高強度のフェムト秒レーザーパルス光<sup>[11]</sup>を希ガスに集光することで得られ、コヒーレンス、短波長性、短パルス性などにおいて、放射光や XFEL に匹敵します。また、実験室規模の比較的小さな装置で発生可能であることも使いやすさの点で有利といえます。しかし、高次高調波の繰り返し周波数は、使用するフェムト秒レーザーパルス光の繰り返し周波数と同じであるため、これまで最大でも数十 kHz 程度でした。これは、高強度のフェ

ムト秒レーザー光を得るためには低繰り返し回のレーザー増幅器を用いることが不可欠だったためです。

そこで、共同研究グループは、高次高調波をメガヘルツ（MHz、1MHzは100万ヘルツ）以上の高繰り返しで発生できる光源の開発に取り組みました。

## 2. 研究手法と成果

共同研究グループは、繰り返し周波数を制限しているレーザーの増幅を取りやめるといふ発想の転換を行いました。増幅する前のフェムト秒レーザーパルス光（以下、パルス光）は、高繰り返しで発振するモード同期レーザー発振器から供給されますが、この発振器から高次高調波を直接発生させようというものです。

しかし、発振器ではパルスエネルギーが圧倒的に低いため、通常は高次高調波を発生できません。そこで、モード同期レーザー発振器の内部では、発振器から取り出される出力光の30倍程度のエネルギーを持つパルス光が伝搬していることに着目しました。これを用いれば、30倍の増幅光を用いることと同等になります。また、発振器の長さを通常の3m程度から100mへと33倍程度に伸ばす設計を行いました。これにより、繰り返し周波数は100MHzから3MHzへと低くなりますが、パルスエネルギーは33倍になります。

さらに、パルスエネルギーを上げるために、レーザー媒質（レーザーを発振する材料）の種類について検討しました。通常の固体レーザー媒質は数mm角の結晶であり、レンズで数十マイクロメートル（ $\mu\text{m}$ 、 $1\mu\text{m}$ は100万分の1メートル）～数百 $\mu\text{m}$ のビーム径に励起レーザーを集光して発振させます。励起パワーは1W程度です。この励起パワーを上げようとする、結晶の温度が上がってレーザー発振が不安定になります。これは、結晶の冷却が主に横方向から行われるため、熱交換の効率が悪いことに起因します。そこで、熱交換を効率良く行えるレーザー媒質として、稀少金属のイッテルビウム（Yb）を添加したYAG結晶を薄い板状に加工したYb:YAG薄ディスク（直径25mm、厚さ250 $\mu\text{m}$ ）を採用しました（図1）。このYb:YAG薄ディスクを底面から直接水で冷却します。これにより、1.22kWという励起パワーが可能になり、これまでの1000倍程度のパルスエネルギーが見込めます。

以上の設計により、 $30 \times 33 \times 1000 \approx 100$ 万倍のパルスエネルギーが得られる見通しが立ちました。

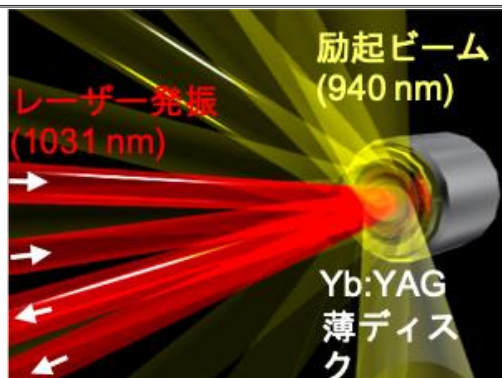


図1 Yb:YAG 薄ディスクの励起と発振の模式図

薄ディスクは後方から水冷されている。

開発したモード同期レーザー発振器の模式図を図2に示します。モード同期レーザー発振によってパルス光は、図中の矢印に従って周回型共振器<sup>[6]</sup>の中を一方方向に伝搬します。Yb:YAG 薄ディスクで反射されるときにパルス光は利得を得るため、伝搬中の損失が補われてモード同期レーザー発振が持続する仕組みです。また、パルス光が共振器を1周するのに約350ナノ秒 (ns、1nsは10億分の1秒) かかることから、パルス光は高次高調波発生用のポート1とポート2を1秒当たり約286万回 (2.86 MHz) 通過します。各ポートにおいてパルス光は凹面鏡対により集光・コリメート<sup>[12]</sup>されており、集光点にはノズルから高次高調波を発生させるための希ガスが供給されます。

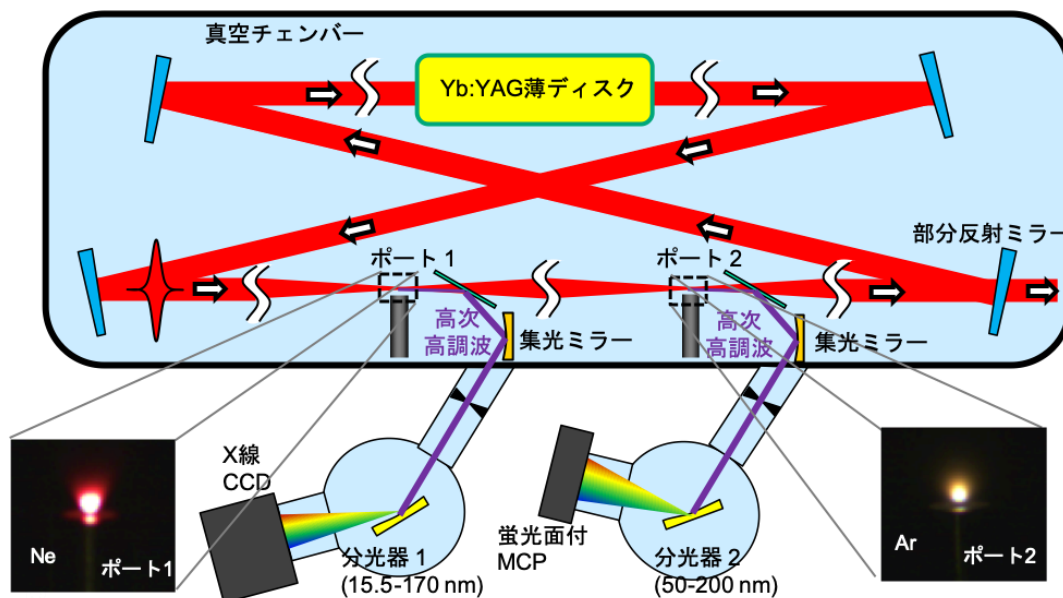


図2 開発したモード同期レーザー発振器とその共振器内高次高調波発生時の模式図

2カ所のポートに、それぞれネオン (Ne) ガスとアルゴン (Ar) ガスを供給することで、異なる波長域の高次高調波を発生できる。

モード同期レーザー発振時のパルス光のスペクトルと SHG 自己相関<sup>[13]</sup>の波形を図 3 に示します。波長のピークは約 1032nm、SHG 自己相関波形から評価されるパルス幅は 710fs であり、確かにフェムト秒レーザーパルス光が得られていることが分かります。また、部分反射ミラーからの出力パワーと反射率の値から、発振器内のパワーは 2.02kW、パルスエネルギーは 0.7mJ と見積もられました。これは、モード同期レーザー発振器でのフェムト秒レーザーパルス光のパルスエネルギーとして世界最大の値です。

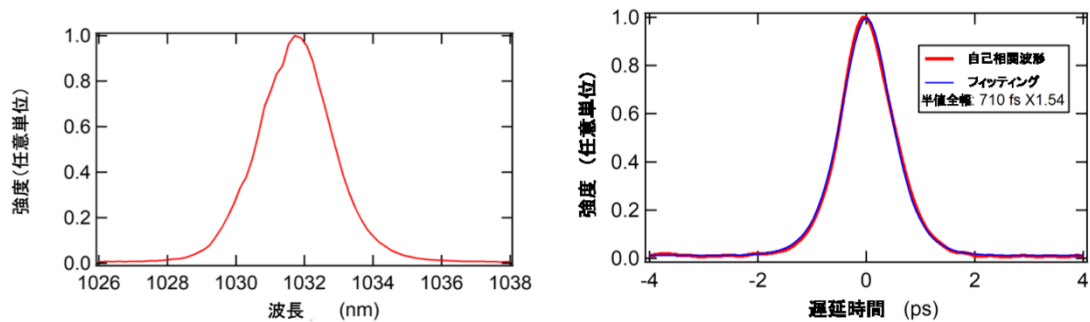


図 3 フェムト秒レーザーパルス光のスペクトル（左）と自己相関波形（右）

左：モード同期レーザー発振時のフェムト秒レーザーパルス光のスペクトルで、ピークの波長が約 1032nm であることを示す。

右：SHG 自己相関波形で、パルス幅が約 710fs であることを示す。

発振器のミラーなどの損傷を防ぐために、パルスエネルギーを 0.7mJ から 0.31mJ に落として、高次高調波を発生させました。ポート 1 の集光点にネオン (Ne) ガスを供給して高次高調波を発生したときのスペクトルを図 4 に示します。このとき、Ne ガスはパルス光による励起によって発光しますが (図 2)、高次高調波は目に見えずパルス光と同じ方向に伝搬します。これを一部反射させて分光器に導いて測定しました。

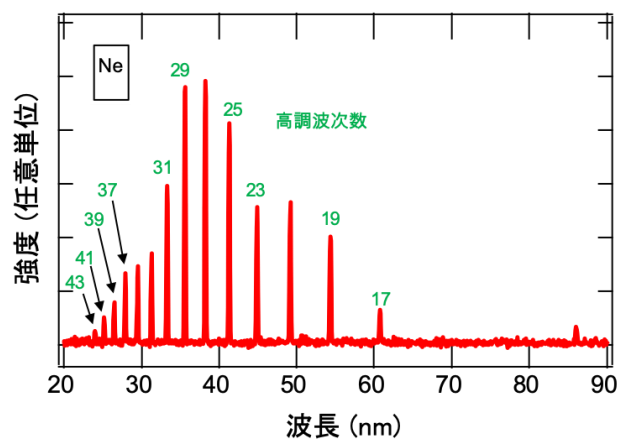


図 4 ポート 1 に Ne ガスを供給したときの高次高調波のスペクトル

17 から 43 までの次数の高次高調波が発生したことが確認された。

さらに、ポート 2 にアルゴン (Ar) ガスを供給すると、こちらからも高次高調波が発生します。二つのポートから同時に発生した 2 種類の高次高調波のスペクトルを図 5(a)に示します。ポート 1 (Ne) からの高次高調波の波長域が 24nm ~60nm 程度であるのに対し、ポート 2 (Ar) からの高次高調波の波長域は 50nm ~115nm 程度でした。このようにして、2 種類のガスターゲットから波長域の異なる高次高調波を約 3MHz という超高繰り返しで同時に発生しすることに世界で初めて成功しました。

また、高次高調波の安定性を図 5(b)に示します。これはポート 1 とポート 2 の両方に Ar ガスを供給し、ポート 1 から出力される高次高調波の各次数の強度を記録したものです。時間 105 分でポート 2 の Ar ガスを止めるまで、各次数の強度が比較的安定していることが分かります。さらに、ポート 2 の Ar ガスを止めてもモード同期は維持され、ポート 1 からの高次高調波発生は続きました。

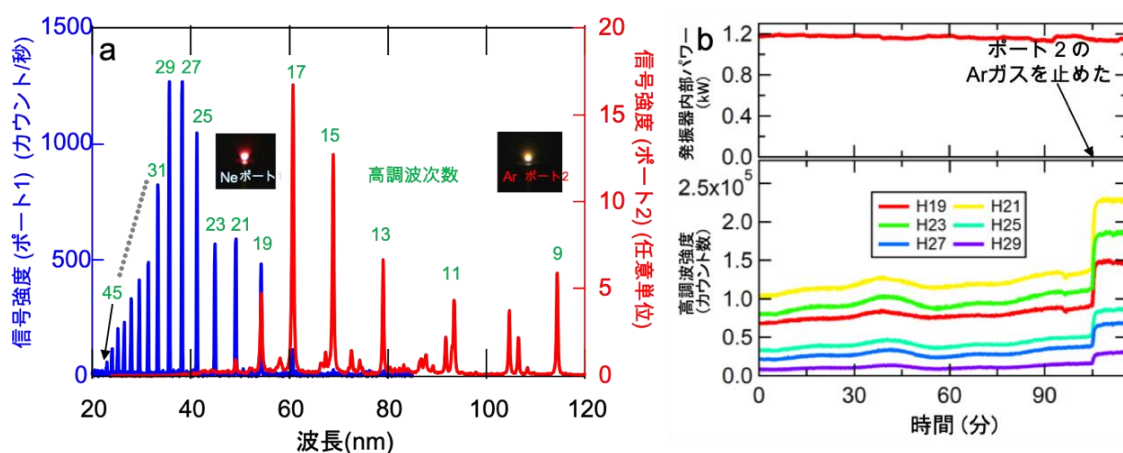


図 5 2 種類の高次高調波のスペクトル (左) と高次高調波の安定性 (右)

- (a) ポート 1 に Ne ガス、ポート 2 に Ar ガスを同時に供給したとき、それぞれのポートから出力された高次高調波のスペクトル。  
 (b) 上は、ポート 1 とポート 2 両方に Ar ガスを供給したときのモード同期レーザー発振器の内部パワー、下は、ポート 1 から出力された高次高調波の各次数の強度変化を示す。

### 3. 今後の期待

今回開発した二つの波長域の超高繰り返し高次高調波光源は、フェムト秒の時間分解能を持つ時間分解光電子分光への応用が期待できます。固体表面などの光電子分光では、真空紫外パルス光のパルスエネルギーが高すぎると空間電荷効果<sup>[14]</sup>により光電子スペクトルが歪んでしまいます。しかし、光電子スペクトルを効率良く取得するためには、真空紫外パルス光の平均パワーは高い方が有利です。すなわち、高繰り返し性能が要求されます。放射光は時間分解能が不足しており、XFEL は繰り返し低いため、これらの要求に答えるのは難しいとされています。

一方、今回開発した高次高調波光源はこれらの要求に見合った特性を持っており、パルス幅のさらなる短縮・高調波発生効率の向上といった改良を行うことで、時間分解光電子分光による物質の超高速ダイナミクスの解明に貢献すると期待できます。

#### 4. 論文情報

<タイトル>

Opening a new route to multiport coherent XUV sources via intracavity high-order harmonic generation

<著者名>

Natsuki Kanda, Tomohiro Imahoko, Koji Yoshida, Akihiro Tanabashi, A. Amani Eilanlou, Yasuo Nabekawa, Tetsumi Sumiyoshi, Makoto Kuwata-Gonokami, and Katsumi Midorikawa

<雑誌>

*Light: Science & Applications*

<DOI>

10.1038/s41377-020-00405-5

#### 5. 補足説明

##### [1] 極端紫外、真空紫外から X 線領域

光の波長が 200nm よりも短くなると、酸素の吸収によって空気中を伝搬できなくなることから、波長が 200nm よりも短い波長の光を「真空紫外光」と呼ぶ。真空紫外光の中でも、波長 30nm-100nm 程度の範囲のものを「極端紫外光」、波長 10nm 程度より短い範囲のものを「軟 X 線」と呼んで区別する場合がある。「X 線」は波長が約 1nm 以下の光を指す。

##### [2] 高次高調波

高強度の可視レーザー光を、キセノンなどの希ガスにレンズや凹面鏡を用いて集光すると、その可視レーザー光と同じ方向に複数の波長の短い光が発生する。一般に電磁波を取り扱う分野では、基本の波長の整数分の 1 の波長の電磁波が発生すると、これを「高調波」と呼ぶ。高強度の可視レーザー光により発生した波長の短い光は、可視レーザー光の波長の奇数分の 1（例えば、1/11 や 1/13）の波長になっており、またその分母に入る数が数十以上に達する場合もあることから、「高次高調波」と呼ばれている。

##### [3] 時間分解光電子分光

分子の中の電子を光で放出させ、その電子の運動エネルギーを分析する実験法を光電子分光と呼ぶ。さらに、レーザー光パルスをつつ使い、第 1 のレーザー光で分子に化学反応を起こさせ、時間差を置いた第 2 のレーザー光で電子を放出させることで、分子内の電子の運動のスナップショットを撮る手法を時間分解光電子分光と呼ぶ。

[4] コヒーレンス、コヒーレント光源

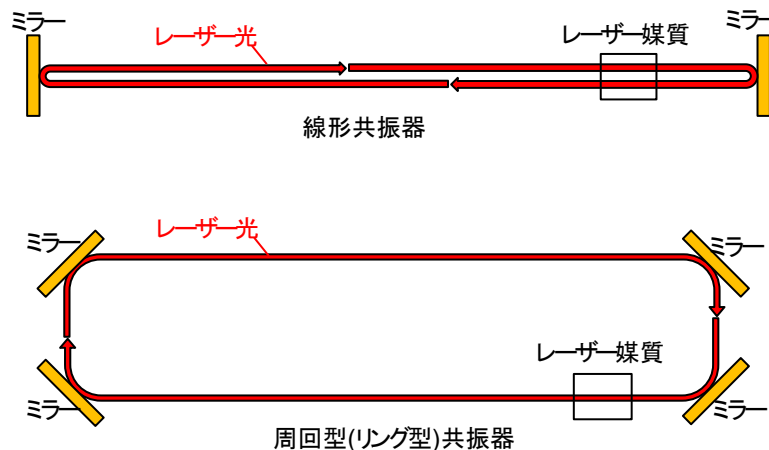
コヒーレンスとは、波と波が重なり合うとき、打ち消し合ったり、強め合ったりする性質のこと。過干渉性ともいう。コヒーレント光源とは、発振波長の位相がそろっている光源のこと。

[5] 繰り返し周波数

一定の周期で発生するパルスの1秒間あたりのパルス発生数のこと。例えば、1秒間に60個のパルスが発生する場合、繰り返し周波数は60Hzである。

[6] 周回型レーザー共振器、周回型共振器

最も簡単なレーザー発振器は、2枚のミラーの間に利得を持つレーザー媒質（レーザーを発振する材料）を置き、光がミラー間を往復する間に二度レーザー媒質を通る構成で「線形共振器」と呼ばれる。一方、光が共振器を周回し、この間にレーザー媒質を一度だけ通る構成も可能である。ここではこれを「周回型共振器」と呼んだが、一般には「リング型共振器」と呼ばれることが多い。周回型共振器では、光が周回する方向が2通り考えられるが、本研究のモード同期レーザー発振器では利得と損失のバランス設計を最適化することで、1方向のみのレーザー発振を実現している。



[7] Yb:YAG 薄ディスク

イットリウム・アルミニウム・ガーネット（YAG）結晶にイッテルビウムを添加したレーザー媒質を Yb:YAG と呼ぶ。Yb:YAG を厚さ 100 $\mu\text{m}$  から 250 $\mu\text{m}$  程度の薄いディスク状に加工したものを Yb:YAG 薄ディスクと呼ぶ。

[8] モード同期レーザー

レーザー発振器は、連続したレーザー光を出力する連続光レーザーとパルス光を繰り返し出力するパルスレーザーの2種類に大別される。パルス光の繰り返し周波数の間隔で複数の光周波数がきちんと並んだ状態（モード同期）で、パルス光が形成されているパルスレーザーをモード同期レーザーと呼ぶ。モード同期レーザーから出力されるレーザーパルス光の繰り返し周波数は、レーザーパルス光がレーザー発振器中を1周する時間の逆数である。



---

#### [9] X線自由電子レーザー (XFEL)

X線領域におけるレーザーのこと。従来の半導体や気体を発振媒体とするレーザーとは異なり、真空中を高速で移動する電子ビームを媒体とするため、原理的な波長の制限はない。XFELはX-ray Free Electron Laserの略。

#### [10] ポンプ・プローブ型

ポンプ・プローブ型は時間分解分光法の中で最も広く使われている手法。ポンプ光とプローブ光の2種類の短パルス光を利用して、ポンプ光の照射によって誘起される物質内の過渡的な超高速現象をプローブ光で観察する。ポンプ光の照射からプローブ光の照射までの時間差(遅延時間)を変化させ、さまざまな遅延時間で試料の状態を観察することで、超高速現象の時間発展を調べることが可能である。パルス光の幅が短ければ短いほど超高速な現象を追うことができる。

#### [11] フェムト秒レーザーパルス光

慣例として、パルス幅が1ps未満のレーザーパルス光はフェムト秒レーザー、あるいはフェムト秒パルス光と呼ばれる。ここではパルス光であることを明確にするために、フェムト秒レーザーパルス光と表記した。

#### [12] コリメート

ある点から広がりながら伝搬してくる光を、凹面鏡や凸レンズなどで平行に伝搬する光に変えること。

#### [13] SHG 自己相関

フェムト秒レーザーパルス光のパルス幅はあまりにも短いため、直接測定することは不可能である。そこで、フェムト秒レーザーパルス光をビームスプリッターなどによって二つに分け、それらを2倍波発生(second harmonic generation; SHG)を行うための非線形結晶中でもう一度重ね合わせる。すると、二つのパルス光が時間的に重なったとき最も強く2倍波が発生するので、二つのパルス光の遅延時間を掃引しながら2倍波強度を記録すれば、パルス幅を反映した相関信号が得られる。これをSHG自己相関と呼ぶ。一般に相関信号を得るためには、SHG以外の多くの非線形現象を利用できる。

#### [14] 空間電荷効果

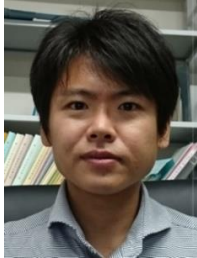
光電子が狭い空間に大量に発生すると、電子の持つ負の電荷によって互いに反発し合い、遠ざける力が働く。これを空間電荷効果と呼ぶ。空間電荷効果が著しい場合、正確な電子スペクトル測定が難しくなる。

## 6. 発表者・機関窓口

<発表者> ※研究内容については発表者にお問い合わせください。

理化学研究所 光量子工学研究センター アト秒科学研究チーム  
 専任研究員 鍋川 康夫 (なべかわ やすお)  
 研究員 (研究当時) 神田 夏輝 (かんだ なつき)  
 (東京大学大学院工学系研究科 附属光量子科学研究センター  
 客員研究員 (研究当時))  
 (東京大学物性研究所 附属極限コヒーレント光科学研究センター 助教)  
 研究員 (研究当時) アマニ・レザ (Reza Amani)  
 チームリーダー 緑川 克美 (みどりかわ かつみ)

東京大学大学院理学系研究科 物理学専攻  
 教授 五神 真 (ごのかみ まこと)



神田 夏輝



アマニ・レザ



鍋川 康夫



緑川 克美

<機関窓口>

\*今般の新型コロナウイルス感染症対策として、理化学研究所では在宅勤務を実施しておりますので、メールにてお問い合わせ願います。

理化学研究所 広報室 報道担当

東京大学大学院理学系研究科・理学部 広報室

東京大学大学院工学系研究科 広報室

東京大学物性研究所 広報室