

緑川レーザー物理工学研究室 Laser Technology Laboratory

主任研究員 緑川 克美
MIDORIKAWA, Katsumi

レーザー性能の向上とその周辺技術の発展は、常に新しい物理領域や工学応用を開拓してきた。特に、近年の超短パルスレーザーの発生及び増幅技術の進歩は目覚ましく、高強度光電場と物質の相互作用に関する研究が注目されている。当研究室では、この超短パルス高強度レーザーに関する技術の開発とその物質との相互作用の研究を基礎として、高次高調波によるコヒーレント軟X線光源に関する研究を中心に、アト秒パルスの発生と計測や軟X線領域での非線形光学現象の探索と解明に関する研究等を行っている。一方、フェムト秒パルスレーザーによるマイクロ分析チップの作成や極短波長レーザーなどの新レーザー光源を利用した難加工材料や光学材料の新しいプロセッシング技術も開発している。

1. 超短パルス高強度レーザーと物質の相互作用に関する研究

(1) サブ 10 フェムト秒高強度レーザーの開発に関する研究(緑川、鍋川、石川^{*2}、アマニ^{*6})

超短パルス高強度レーザーと物質の相互作用に関する研究、特に高次高調波発生への応用を目的としてフェムト秒高強度レーザーの開発を行っている。パルス幅を 10 フェムト秒以下にしたレーザー光を用いて高調波発生を行うと、ターゲットガスのイオン化が抑制されるので、位相整合条件を保ちながら高強度レーザー光とターゲットガスとの相互作用が可能となり、より短波長の高調波発生が効率よく行くと期待されている。また発生する高調波のパルス幅は 1fs を切る光パルス、所謂アト秒パルスとなる。従ってレーザーシステムとして目標とする仕様は 10 フェムト秒を切るパルス幅と高調波発生に十分なピーク強度である。

増幅器中のスペクトル狭帯を補償する光学素子(誘電体多層膜フィルター)については、昨年度の時点で既に幾つかの試作品に対してテスト共振器で性能試験を行っている。また、実際の増幅器で用いる高破壊閾値の広帯域チャープミラーも製作した。本年度はこれらを用いて増幅器の構築を行った。レーザーシステムの構成は以下のとおりである。パルス幅約 7fs のモード同期発振器から発生した種光を Offner 型のストレッチャーにより 200ps 程度のパルス幅に延ばし、液晶位相変調器(SLM)を用いた位相補償装置を通す。その後、種光は上記高破壊閾値の広帯域チャープミラーで構成した共振器による再生増幅器で増幅され、さらにマルチパス増幅器で増幅され、回折格子対によるコンプレッサーでパルス圧縮される。

これまでの所、再生増幅器からの出力でパルスエネルギー約 70μJ を得(繰返し 1kHz)、スペクトル幅は 200nm を超えている。また、これをマルチパス増幅するとパルスエネルギーは 30mJ を超え(繰返し 10Hz)、スペクトル幅も 200nm 近くを維持する事ができた。なお、3 種類の誘電体膜を利用した特殊コーティングの折返しミラーを、このマルチパス増幅器の為に新たに開発した。スペクトル幅自体はサブ 10 フェムト秒を得るのに十分であったが、スペクトル形状に問題があり、圧縮後のパルスに大きなベデスタルが発生する事が予想されたので、再生増幅器中の誘電体多層膜フィルターを交換・調整して、幾分狭いスペクトル幅の状態でもパルス圧縮を行った。主に高破壊閾値の広帯域チャープミラーを起源とする位相振動は位相補償器で取り除かれ、ほぼフーリエ限界に近い 12fs のパルス幅を得る事ができた。圧縮後のパルスエネルギーは 11mJ である。今後、誘電体多層膜フィルターを改良して、サブ 10 フェムト秒で 1TW のピーク強度を持つレーザーシステムを構築する予定である。

(2) 超短パルス高強度レーザーと物質の相互作用に関する研究(緑川、須田、加来^{*2}、山口^{*2}、Nurhuda^{*2}、Chen^{*3}、Sansone^{*4}、ボーマン^{*5}、金井^{*6})

中空ファイバーパルス圧縮は、10 fs以下のいわゆる数サイクル領域の高強度パルスを発生させる効果的な手段である。これまで、中空ファイバー内にガスを流すことにより光の伝搬方向に圧力勾配を設け、高強度化の問題点であった自己集束を抑制し、自己位相変調によるスペクトルの広帯域化のみを効果的に引き起こすことを可能とした。本年度は、Ti:Sレーザーシステムに改良を加えてビーム品質を改善するとともに、新たに開発したビームロック装置を用いてレーザー光と中空ファイバーの結合効率を高め、スペクトルのさらなる広帯域化と同時にその安定化を図った。その結果、中空ファイバー入射端におけるビームの揺らぎを 1 μm (rms)に抑えることが可能となり、300 nmを超える広いスペクトルを持つパルスが 2.7 mJの高いエネルギーと 1.1% (rms)の安定性と共に得られようになった。また、その後の分散補償により光電場の 2 サイクルに相当する 5.4 fsの超短パルスに圧縮することに成功した。さらに f/2.4 の非軸放物面鏡を用いてパルス圧縮後のビームを集光したところ、ほぼ回折限界のビームであることが確認された。この時、ウエストにおけるスポットサイズは 2.5 μmであり、これより集光強度は 5x10¹⁸ W/cm²に達していると見積もられた。一方、さらなる高強度化を目指して、中空ファイバーパルス圧縮を発展させた中空プラナー導波路パルス圧縮の技術開発にも着手した。

(3) 超短パルスレーザーアブレーションによる有機分子の準安定解離生成物に関する研究(小林)

パルス時間幅が振動周期よりも短い超短パルスレーザーを分子に照射すると、レーザーエネルギーが熱伝導によって散逸せずに分子の急激な内部励起が可能となるため、通常の熱的励起による化学反応ではみられないような、エネルギー的に不安定な反応中間体の過渡的な生成が期待される。特にフェムト秒レーザーアブレーション(fsLA)においては、固相分子の幅広い吸収スペクトルがレーザー波長と共鳴することによって、分子の効率良い励起が可能である。我々はフラーレン分子(C₆₀)のfsLAによって生成する炭素フラグメントイオンの質量分析から、当該イオンの準安定解離を見出した。こうした準安定解離反応の前駆体を検出・同定するとともに、その化学反応性を検討することによって、熱反応では起こらない新奇化学反応実現をめざしている。

2. コヒーレント軟X線の開発と応用に関する研究

(1) 高次高調波の発生に関する研究(緑川、高橋、金井^{*1}、清水^{*1}、沖野^{*2}、山内^{*2})

超短パルスレーザーを希ガス媒質に集光照射して得られる高次高調波は、テーブルトップサイズのコヒーレント軟X線光源として注目されている。我々は軟X線域における非線形光学研究を目的とし、それを可能にする高出力・高次高調波光源の開発を行ってきた。これまで光子エネルギー 40 eV でサブマイクロジュール、90 eV で数十ナノジュールの出力を持つ高調波発生に成功している。本年度より、更なる高調波の短波長化を目指し”水の窓”域(280 - 540 eV)の軟X線発生研究に着手して

いる。本研究では励起レーザーとして近赤外線域 (NIR) の高強度・超短パルスレーザーを開発し、レーザー場から電子が受け取るエネルギーを上昇させることで高調波の短波長化を行う。

光パラメトリック増幅 (OPA) を用いた NIR 光発生により、波長 1.4 μm においてパルス幅 60 fs、出力エネルギー 7 mJ/pulse を得ることに成功した。開発された光源は 1.2 ~ 2.1 μm の範囲で波長可変であり、全帯域で 1mJ/pulse 以上の出力が可能である。全出力エネルギー (シグナル光 + アイドラー光) は 12 mJ/pulse であり、OPA 増幅における変換効率は 30 % に達している。開発された近赤外・超短パルスレーザー光は、OPA ベースの NIR 光源として世界最高の出力エネルギーを持つ。また開発された光源を用いて高調波発生を行い、Xe 媒質において 60 eV、Ar 媒質において 120 eV の高次高調波を得ることに成功した。

(2) 軟X線アト秒パルス列の干渉実験に関する研究 (緑川、山内^{*2}、鍋川、高橋、清水^{*1}、馬^{*3}、Sougout^{*4}、English^{*4})

最近のフェムト秒高強度レーザー技術の発展と高次高調波発生に関する物理的理解の進展により、高次高調波は極端紫外 ~ 軟X線領域でのコヒーレントな高輝度光源としての地位を確立しつつある。そこで、この高次高調波を用いることにより従来の光源では不可能であった短波長領域での非線形光学現象の観測を目的として研究を行っている。また複数の次数の高調波を重ね合わせるとアト秒領域のパルス列(アト秒パルス列)が生成されるので、超高速現象を観測する光源としてもその特性を明らかにし、時間分解分光への応用を進めて行く事を目指している。

昨年度は窒素分子の 2 光子クーロン爆発を利用してアト秒パルス列のフリンジ分解自己相関測定によって、世界で始めてアト秒パルス列の電場対称性を直接観測する事ができた。この研究の成功の鍵は、(i) 2 光子クーロン爆発そのものの観測、(ii) 空間分割による 2 つレプリカアト秒パルス列の生成、そして(iii)自己相関の包絡線上に現れた干渉縞、である。このなかでも特に電場干渉が重要である事を認識したので、本年度はアト秒パルス列の電場干渉を観測し、アト秒パルス列全体の時間構造を明らかにする研究を行った。

アト秒パルス列の波長は極端紫外 ~ 軟 X 線領域にあり干渉実験は容易ではない。この波長域で透明な基板材料が無いため、通常の可視 ~ 赤外の干渉計で用いられている部分反射鏡の作成が事実上不可能である事がその理由である。我々が自己相関に用いた空間分割の手法では、集光点での干渉効果は確認できたものの、集光しなければ空間的な重なりが無いため、時間的な可干渉性を観測するのは一見難しく見える。しかしながら、2 つの高調波分離鏡の境界付近で反射されるアト秒パルス列はフレネル回折によって空間的に広がりながら伝播するので、適切な距離で空間プロファイルを観測すれば、干渉縞が現れる。2 つのレプリカアト秒パルス列間の遅延を変化させれば、この空間干渉縞も変化するので、これを記録すれば時間領域の干渉縞が得られる事になる。

実験では高調波分離鏡反射後の 2 つのレプリカアト秒パルス列を 2mm のアパーチャーを通して長軌道起源の高調波成分を取り除いた後、金属フィルターで極僅かに残っている基本波レーザー光を除き、スリットイメージ転送型のXUV分光器で、空間・スペクトルのスペクトログラムを測定した。アパーチャーから分光器までの距離は1.28mとした。分割位置に近い中心付近の空間プロファイルを抽出し、バックグラウンドノイズを取り除いた後、強度揺らぎを補正したものを遅延に従って並べていくと、時間領域の干渉波形を得る事が出来た。干渉波形の振幅から求められる可干渉時間は10フェムト秒前後であり、高調波発生に用いたチタンサファイアレーザーのパルス幅(40フェムト秒)よりもかなり短い事が分かった。また、各次数毎に干渉波形をフーリエ変換する事により、高調波のスペクトル波形が得られる。これらのスペクトル形状をXUV分光器で観測したスペクトルと比較すると、細かい形状がはっきりと見えており、通常のXUV分光器よりも分解能が高いと考えられる。なおこの結果は、我々の知る限り、極端紫外 ~ 軟X線領域で行われた初めてのフーリエ分光である。

さらに、各次数の高調波成分の干渉波形を足し合わせるとアト秒パルス列の電場干渉波形が現れた。列中のパルスの電場干渉の幅はほぼ(極端紫外の波長に対して)1周期程度にまで短くなっており、アト秒パルス列のパルス幅がフーリエ限界値で1サイクル程度にまで届く事が証明出来た。また、干渉縞の形は隣同士で反転しており、パルス幅の限界値と合わせて、アト秒パルス列の特異な性質を観測する事が出来たと言える。特に干渉波形の性質については時間領域の干渉を用いなければ直接見る事の出来ない性質である。今後この干渉法で、アト秒パルス列の発生条件等を詳しく調べる予定である。

(3) 軟X線光学素子の開発 (緑川、永田、鍋川、高橋、熊谷^{*2}、畑山^{*6})

波長 30nm 付近の高次高調波はサブ μJ レベルの出力が得られるため、応用研究において魅力的な光源となっている。ところが未だ波長 30nm 付近では高反射率かつ高光耐力の多層膜鏡は開発されていない。これまで我々がこれまで使用してきた SiC/Mg 多層膜は、製造段階で反射率が 45%と理論値の 60%より低く、高次高調波の照射と経時劣化により反射率が急激に低下することが確認された。そこで我々はより実用的な多層膜鏡の設計、製作、評価を行った。

一つは $\text{B}_4\text{C}/\text{Mo}/\text{Si}$ 、 $\text{SiC}/\text{Mo}/\text{Si}$ などをはじめとした三元多層膜鏡によるもので融点の低いMgを使用しないことで経時劣化の軽減を目的とした。もう一つは ZrN/Si 、 NbN/Si などの窒化物を用いた多層膜鏡である。窒化物は高密度であるため全ての物質の中で波長 30nm においてもっとも屈折率が低い。そのため、わずか数層で理論反射率 20%以上、反射帯域 10nm程度となりアト秒パルス用の多層膜鏡として期待できる。実際に製作した多層膜を評価したところ反射率はどの組み合わせでも理論値の半分以下となった。この原因を明らかとするため反射率を評価する波長域を 10nmまで広げた。これは、多層膜の反射率を決める各種パラメータの波長依存性が異なることを利用するためである。そして波長 15nmでの反射率から膜の表面粗さの上限を見積もったところ、これが反射率の低さの主因ではないことがわかった。そして反射率の低さの原因が B_4C 、 SiC 、 ZrN 、 NbN など融点の高い膜の密度がバルクのもの 50-70%程度であることを確かめた。これは金属と誘電体の融点の違いが成膜の最適条件の相違となって現れたためである。今後はスパッタリング条件を高密度薄膜の作製に最適化し、バルク密度比 90%以上とすることでそれぞれの目的にあった多層膜鏡の開発を進めていく。

3. 超広帯域フェムト秒レーザーを用いた非線形顕微分光法に関する研究

(1) 蛍光タンパク質の 2 光子励起蛍光の制御に関する研究 (緑川、須田、磯部^{*3}、神成^{*2}、田中^{*6})

2 光子蛍光イメージングは、生細胞の観察に欠かせない技術である。本年度は、超広帯域フェムト秒レーザーパルスの位相変調法を用いた選択的励起を含む 2 光子蛍光の制御が、FRET (蛍光共鳴エネルギー移動) イメージングやマルチカラーイメージングに有用であるかを検証した。まず、二種類の蛍光タンパク質に対して適応制御を用いることにより、各々を選択的に励起するための最適位相マスクを探索した。蛍光タンパク質 SeBFP と EGFP を用いた場合には、得られた位相マスクにより最大でコントラスト比 SeBFP : EGFP = 1 : 16、8 : 1 を得た。同様に ECFP と Venus を用いた場合には、ECFP : Venus = 2 : 1、1 : 12 を得た。さらに、最大コントラスト比の範囲内において位相変調法により、一方の蛍光タンパク質の蛍光強度を保った状態で、任意のコントラスト比を得られることも見出した。これらの結果は、生体試料に標識された蛍光タンパク質の濃度に大きく依存されることなく、FRET イメージングやマルチカラーイメージングにおける像コントラストを制御可能であることを示して

いる。

(2) 非線形フーリエ分光法に関する研究(緑川、須田、磯部^{*3}、神成^{*2}、田中^{*6}、桜井^{*5}、上場^{*6})

超広帯域フェムト秒レーザーとフリンジ分解自己相関計測を組み合わせた非線形フーリエ変換分光法は、レーザーの波長掃引を行うことなく、広帯域な分光情報を一度に取得可能な手法である。本年度は、非線形現象として4光波混合過程を用いた非線形フーリエ変換分光法において、5 fsの超広帯域パルスを用いることにより2光子電子共鳴に関するスペクトルを測定可能であるかを検討するとともに、4光波混合信号の起源(2光子電子共鳴、ラマン共鳴、非共鳴)を識別可能か検討した。理論的な解析から、2光子電子共鳴とラマン共鳴に由来するスペクトル情報が4光波混合信号による自己相関波形から得られるフーリエスペクトル内の異なる周波数帯域にそれぞれ含まれることを見出した。実証実験では、試料としてアントラセンの粉末、有機溶媒を用いることにより、2光子電子共鳴、ラマン共鳴に関するスペクトルをそれぞれ取得した。本手法を顕微分光法へ応用することにより、電子共鳴とラマン共鳴の両スペクトルを用いた分子識別能力の向上が期待される。

4. 短波長・短パルスレーザープロセッシング

(1) フェムト秒レーザーによる微生物観察用ナノ水族館の作製(杉岡、緑川、花田^{*1}、Wang^{*3}、芦川^{*6}、土本^{*6})

光学顕微鏡を用いた微生物の挙動観察に関する研究では、観察を容易にするために微生物を限られた空間内に閉じ込めつつ、実験者が要求する運動をサンプルとなる微生物に行わせるために観察場にある程度自由度を持たせることが望まれている。そこで昨年度、我々は開発を行ってきたフェムト秒レーザーによるガラス内部への3次元中空マイクロ構造作製技術を用いてミドリムシ封入用マイクロチップの作製を行った。本マイクロチップを用いることで、観察時間の大幅な短縮、微生物の3次元挙動観察に成功した。このような微生物観察用のマイクロチップを我々はナノ水族館と名付けた。本年度はマイクロニードル付きマイクロチップの作製を行い、珪藻細胞間での葉緑体集合伝達観察を行った。その結果、マイクロニードルにより珪藻中の1個の細胞のみを選択的に刺激でき、刺激を行った細胞から周囲の細胞への葉緑体集合伝達の様子を観察することに成功した。また、クリプトモナス封入用マイクロチャンネルの作製を行い、急速に遊泳するクリプトモナスの動きを擬2次元空間に閉じ込めることで、その挙動観察を試みた。

(2) フェムト秒レーザーによるGaNの3次元微細加工(杉岡、緑川、中嶋^{*3})

高強度超短パルス光を発するフェムト秒レーザーを透明材料内部に集光照射すると、焦点近傍の限定的な領域において多光子吸収が起こり、化学結合の切断、及び再結合を伴う劇的な構造変化をもたらされる。これを利用して、非晶質材料に対する3次元かつ微細な加工を目的とする研究が、これまで広く行われてきたが、ガラス以外の結晶性材料、とりわけ半導体を対象としたフェムト秒レーザー内部加工に関しては、殆ど報告されていない。本年度、我々はワイドギャップ半導体として知られるGaNを対象として、表面、及び内部にフェムト秒レーザーの集光照射による3次元微細加工の可能性を検討した。大気中にてレーザー照射の後、HCl溶液に浸漬する二段階エッチングでは、アブレーションによる加工痕の形成とエッチングによるデブリの除去がそれぞれの段階で進行する。デブリの発生は、加工痕形状の歪をもたらし、レーザー走査による連続的な加工を妨げる。一方、これを回避する目的で行った、HCl溶液中に浸漬した試料に直接レーザー照射を行うウエットエッチング支援レーザーアブレーションでは、前手法の二段階の反応が同時に起こり、加工痕形状の歪が小さくなることを確認した。現在、NA0.73の対物レンズを用いることで500 nm程度の加工解像度が得られている。またこの手法を用いることで、フェムト秒レーザーの焦点を表面から内部へと走査することにより、基板内部の加工が可能となった。表面から深さ200 μmの材料内部に、全長140 μm程度の中空チャンネル構造を形成することに成功した。GaNは屈折率が2.54と高く、本手法により3次元の周期的中空ナノ構造形成が実現すればフォトニック結晶作製に応用できる。また、GaNは青色半導体レーザー等の光デバイス形成における基板利用が可能であり、将来様々なマイクロデバイスを集積したMEMS(micro-electro-mechanical systems)やマイクロTAS(MicroTotal Analysis System)への応用も期待されることから、GaNの3次元マイクロ加工技術の確立は重要である。

^{*1}基礎科学特別研究員、^{*2}客員研究員、^{*3}協力研究員、^{*4}訪問研究員、^{*5}ジュニア・リサーチ・アソシエイト、^{*6}研修生

Novel nonlinear phenomena caused by interaction of ultrashort intense laser pulses with matters are investigated for creation of coherent x-ray sources including x-ray lasers and high-order harmonics. Nonlinear optical phenomena in the soft x-ray region and generation of ultrashort pulses in the region of attosecond seconds are pursued by use of high-order harmonics. In addition, applications of short wavelength and ultrashort laser pulses to material processing are studied.

1. Interaction of intense ultrashort laser pulses with matters

(1) Development of a sub 10-fs intense laser system

It is important to build novel ultrafast and intense laser sources because they can be applied to investigate many sorts of interactions with matters under the strong light field. In particular, the reduction of pulsewidth into sub 10-fs regime can significantly suppress the ionization of atoms interacting with the laser field, so that the photon energy of the generated high-harmonic fields from these atoms should be drastically increased by avoiding the disturbance of the phase matching condition with the ionization. Furthermore, the pulse width of the harmonic field can be shorter than 1 fs. We call this extremely short bunch of light field an attosecond pulse.

We have started to develop a new laser amplification system having a pulse duration being less than 10 fs (sub-10-fs pulse) last year. One of the significant issues for the amplification of the sub-10-fs pulse is the spectral narrowing caused by the limit of the bandwidth of the reflectivity of a high-damage-threshold (HDT) mirror and the spectral shape of the gain in the amplifier medium. Another issue is the compensation of high-order dispersions in an amplified pulse suffered from the transmitted materials during the amplification. We have solved the former issue by fabricating two kinds of specially designed optical element; a HDT chirped mirror pair and dielectric filters for the regenerative pulse shaping.

This year, we have developed a chirped pulse amplification (CPA) laser system by using these special optics. The laser system consists of a commercial Ti:S oscillator having a pulse duration of 7 fs, an Öffner type pulse stretcher which lengthens the pulsewidth into ~200 ps, and a spectral phase compensator with a spatial light modulator, two stages of amplifier chain, and the grating pair compressor. We obtain more than 200nm spectral width of the amplified pulse from the regenerative amplifier due to the wideband reflectance of the HDT chirped mirrors composing the cavity of the amplifier and an optimized design of the filter for the regenerative pulse shaping. The output pulse from the regenerative amplifier with an energy of ~70 μ J was further amplified in the second Ti:sapphire crystal with a multi-pass configuration. We have developed novel folding mirrors with HDT and low dispersion by adopting three kinds of dielectric materials for this multi-pass amplifier. The resultant energy of the amplified pulse exceeds 30 mJ and the spectral width can nearly reach 200 nm. In spite of the successful amplification of the broadband pulse in the sub 10-fs regime, the spectral shape was not appropriate for suppressing pedestals arising near the main peak of the pulse. Thus, we have somewhat reduce the spectral width by adjusting the filter in the regenerative amplifier and compressed the amplified pulse from the multi-pass amplifier with the grating pair compressor. High-order dispersion arising from the optical elements in the amplifier and the phase modulation originating from the group-velocity-dispersion oscillation of the HDT chirped mirrors were eliminated by the spectral phase compensator. The resulting pulse width of 12-fs is the shortest in the amplified pulses with the CPA system of Ti:sapphire laser with an energy of more than 10 mJ. We will improve the dielectric filter for futher shortening of the pulse width in the sub 10-fs regime.

(2) Interaction of intense ultrashort laser pulses with materials

Hollow fiber pulse compression is a powerful technique to generate intense sub-10 fs pulses, which are so called few-cycle pulses. We demonstrated that a pressure-gradient hollow fiber technique enables to broaden the spectrum of intense femtosecond pulses without self-focusing which limits the energy scaling. In order to further broaden the spectrum with high stability, we improved the beam quality of our Ti:S laser and enhance the coupling efficiency between the input beam and the hollow fiber using a newly developed beam-lock system. As a result, the beam fluctuation at the fiber entrance was successfully stabilized within 1 μ m (rms), resulting in spectral broadening in excess of 300 nm with a pulse energy of 2.7 mJ and an energy stability of 1.1% (rms). After dispersion compensation, the pulse duration was as short as 5.4 fs, which corresponds to two cycles of the optical field. Then, we focused the beam after pulse compression using an $f/2.4$ off-axis parabolic mirror and found that the beam was focused to a nearly diffraction-limited spot size. From the spot size of 2.5 μ m at the waist position, the focused intensity was evaluated to be 5×10^{18} W/cm², which enables one to study laser-matter interactions in the relativistic regime. Moreover, we started to develop a gas-filled planar waveguide for the generation of few-cycle pulses with an unprecedented peak power.

(3) Reasearch on unstable fragment ions produced by femtosecond laser ablation of solid molecules

By ablating solidified molecules with ultrashort laser pulses, we observe the production of unstable molecular fragment ions, which have never observed in ablation with laser pulses longer than the phonon coupling time of a molecule. The characteristics of femtosecond laser ablation (fsLA) have been revealed in the series of experiments for fullerene C₆₀ molecule. Observation of the metastable fragment ions in the time-of-flight analysis indicates that the unstable intermediates are produced just after fsLA of C₆₀ and they dissociate during their flight.

2. Generation and application of intense coherent soft x-ray pulses

(1) High-order harmonic generation

High-order harmonic generation (HHG) using an ultrashort high-peak power laser is a powerful method for generation of extreme-ultraviolet and soft x-ray light. In previous works, we focused on increasing the output harmonic energy to realize nonlinear optics experiments in soft x-ray region. Thus, we succeeded the generation of 0.3 μ J soft x-ray radiation at the 27th harmonic (40 eV) in Ar, and 50 nJ at the 59th harmonic (92 eV) in Ne. This year, we have started to develop a new IR laser system with the aim of extending the harmonic energy to "water window" (280 eV) region. Since the ponderomotive energy is proportional to not only the linear of the pump laser intensity (I) but also the square of the driving laser wavelength (λ^2), a longer-wavelength intense infrared laser allows generating higher-energy harmonic photons.

High-energy IR source is accomplished in two-stage optical parametric amplification (OPA) with type-II BBO crystal.

Output energy exceeding 7 mJ with 60 fs pulse width is achieved at a signal wavelength near 1.4 μm . Total output energy (signal + idler) of 12 mJ is recorded with 30 % conversion efficiency. To our knowledge these are the highest energy and peak power pulses ever produced 1.2 ~ 2.1 μm region by the ultrafast OPA scheme. Using the developed high-energy 1.4 μm OPA pulses, we have performed a proof-of-principle HHG experiment for Xe and Ar. We have successfully generated the 60 eV harmonics in Xe and the 120 eV harmonics in Ar under the phase-matched conditions, respectively.

(2) Interferometry of an attosecond pulse train in soft X-ray region

Recent progress of the research for investigating interactions of an intense femtosecond laser field with a matter enables us to generate an intense XUV light pulse as a harmonic field. We study the distinct features appeared in nonlinear interactions induced with the harmonic fields in order to find the novel phenomena. In particular, extremely short bunches of the light pulse formed with the Fourier synthesis of harmonic fields, which is so-called attosecond pulse train (APT), is one of the most interesting research topics in laser science because it can be useful to reveal ultrafast dynamics of matter. We demonstrated the interferometric autocorrelation measurement of an APT by utilizing the two-photon double ionization of nitrogen molecule last year. The key features of this experiment are (i) observation of the two-photon Coulomb explosion of nitrogen molecule, (ii) the generation of the replica pulses by spatial split of the measured APT, and (iii) interferometric fringes appearing on the correlation envelope. In particular, the time translation symmetry of the interferometric fringes proved the conclusive evidence of the phase-locking of high harmonic fields and manifested the origin of the high-harmonic generation from an electron.

We recognized the importance of the interference of an APT in time domain from this result, hence, we investigated the full characteristic of the temporal coherence of the APT this year. The most significant issue for the interferometry of the APT is how we make the two replica of the APT to be interfere, because we cannot use any partial mirrors, which are conventionally used in an interferometer for visible~infrared light field, due to the lack of transparent substrate materials in the XUV~soft X-ray region. Although the spatial split setup in our autocorrelation measurement of the APT does not seem, at a glance, to yield linear interference fringes without spatial overlap of two replicas, it is feasible for observing the interference in time domain owing to the fact that the spatial fringes, which is caused by the superposition of the diffracted two replicas from the boundaries of the beam separator mirrors, move with the change of delay.

In the experiment, the reflected harmonic fields from the two harmonic separator mirrors go through an aperture with a diameter of 2 mm to eliminate the undesired portion of the harmonic fields originating from the so-called long-trajectory electrons, and then they are filtered with a thin metal film, the material of which is chosen so that a relevant range of XUV or soft X-ray light can be observed, to remove the remaining pumping laser field. The spatial profile and the wavelength of each harmonic field are measured using an XUV/soft X-ray spectrograph placed 1.28 m away from the aperture. We obtained the temporal interference fringes by extracting the central part of the spatial fringes of each harmonic fields at each delay time with an appropriate subtraction of noise and the compensation of the intensity fluctuation. We determined that the coherence time of each harmonic field should be within a range of ~10 fs, which is much shorter than the pulse width of the driving laser field (40 fs), from the measured interference fringes. The Fourier transform of each interference trace exhibited the exact spectrum of the harmonic field, the resolution of which was expected to be higher than that of the XUV spectrograph, because we observed the modulation of the spectrum in detail that could not be found in the the XUV spectrograph. This is, to the best our knowledge, the first demonstration of Fourier spectroscopy of the XUV~soft X-ray light without using half mirrors.

In addition to the notable result of the Fourier spectroscopy, the fringe traces themselves gave us the significant information concerning the intrinsic property of the APT electric field. The sum of the interference traces of all the harmonic fields revealed the short bunches of fringes, the width of which nearly attained the single-cycle period of XUV light, showing the potential to form the single-cycle pulse train at the Fourier limit. We also found that the phase of the fringe in a bunch was π -flipped to that of the next bunch. These were the peculiar characteristics of the APT field and could not be directly observed without time-domain interferometry.

We will investigate further detail of the APT field under the various conditions with this spectroscopic method.

(3) Development and evaluation of extreme ultraviolet optics

High-order harmonics (HHs) are attractive sources for many applications, because the generation of HHs with sub-microjoule level energy has been successfully demonstrated around 30-nm. But high reflectance mirror around 30-nm with high thermal and radiation stability has not been realized yet. The measured reflectivity of SiC/Mg multilayer mirror is about 45% even immediately after manufacturing though the theoretical reflectivity of the mirror reaches 60% at 30 nm. The reflectivity of the mirror decreases remarkably by the aged deterioration and the irradiation of HHs. We develop and evaluate practical multilayer mirrors for a wavelength of around 30-nm. One is B₄C/Mo/Si or SiC/Mo/Si multilayer mirror to avoid aged deterioration by not using Mg. The other is ZrN/Si or NbN/Si multilayer mirror using nitride materials. Because bulk densities of these nitride materials are high, refractive indices are lowest in materials around 30-nm. As a result, a potential reflectance of 20% with bandwidth of 10nm based on theoretical calculations can be achieved with only a few layers. The mirrors will be useful for attoscience. But measured reflectance of these mirrors is less than half of theoretical one. To clarify the cause that reflectance is low, reflectance measurement was done between 10 nm and 34nm because of the difference of wavelength dependence of various parameters contributing to reflectance. The upper limit of the surface roughness of the mirror was calculated from measured reflectivity at 15-nm. We found that this is not a main factor of low reflectivity but the low density of the compound, which was only about 50-70% of the bulk density. We will optimize the sputtering conditions for compounds to increase the density of the thin film to 90% of its bulk density to achieve the high reflectance and broad bandwidth.

3. Nonlinear optical microspectroscopy using ultrabroadband femtosecond laser

(1) Control of two-photon excitation of fluorescence proteins

Modulating the spectral phase of an ultrabroadband laser pulse, we controlled the two-photon fluorescence signals of

fluorescent proteins. First we achieved the selective excitation of EGFP or SeBFP by adaptive control to maximize or minimize the fluorescence intensity ratio of SeBFP/EGFP. The maximum and minimum ratio of SeBFP : EGFP were 8 : 1 and 1 : 16, respectively. In the case of a pair of ECFP and Venus, we obtained the fluorescence intensity ratio of ECFP : Venus to be 2 : 1 and 1 : 12. Moreover, we also achieved the arbitrary intensity ratio ranging from the maximum ratio to the minimum ratio. These results suggest that the image contrast of a multi-labeled sample can be controlled by modulating the spectral phase of an ultrabroadband pulse without depending on the concentration of fluorescent proteins in the sample.

(2) Nonlinear Fourier-transform spectroscopy

Combining the use of 5-fs ultrabroadband pulse with nonlinear Fourier-transform spectroscopy (FTS) by four-wave mixing (FWM) signal, we identified the origin of FWM signal. From a theoretical analysis of FWM-FTS, we found that in a Fourier power spectrum obtained by the Fourier-transform of an interferometric autocorrelation signal, there were frequency components that indicated the effects of two-photon electronic (TPE) resonance and Raman resonance. By employing theoretical analysis, we experimentally demonstrated that FWM spectra under TPE resonance and Raman resonance were obtained from an anthracene powder and an organic solvent, respectively. By using both Raman and TPE spectra, we expect that the capability to identify molecules will be improved dramatically.

4. Short wavelength and short pulse width laser processing

(1) Fabrication of nano-aquarium for dynamic observation of microorganisms by femtosecond laser

An optical microscopic system with high speed camera is a very common tool for dynamic analysis of aquatic microorganisms. For high efficiency observation, a microchip that can limit the moving direction of microorganisms has been urgently required by cell biologists since microorganisms swim with high speed in any directions. For this reason, nano-aquarium that is a microchip for observation of microorganisms was fabricated by femtosecond laser direct writing technique which we have developed. The use of the microchip has some advantages over the conventional observation method using a glass slide or a petri dish, those are, a major reduction of observation time, control of the motion of the microorganisms and the ability to carry out 3-D observation. This year, we have fabricated a microchip in which a movable glass needle is integrated for observation of chloroplast assemblage in a diatom called *Pleurosira laevis*. The microchip enables us to successfully stimulate only one of the cells of *Pleurosira laevis* and thereby observe the transmission of the chloroplast assemblage from the stimulated cell to the adjacent cells. In addition, we have fabricated a planer microchannel which can confine the moving direction of the cryptomonas, which swims with extremely high speed under certain conditions, in a pseudo-2D space.

(2) Three-dimensional (3D) micro and nano fabrication of GaN by femtosecond laser

Femtosecond laser can perform internal modification of transparent materials due to multiphoton absorption. This feature has been widely used for three-dimensional microfabrication inside glass. Few works on semiconductors, however, have been reported. Therefore, we tried to investigate 3D micro and nano fabrication of wide-bandgap semiconductor GaN using femtosecond laser in this year. Nanometer scale crater is successfully formed by wet chemicals-assisted fs laser ablation, in which the laser beam is focused on single-crystal GaN substrates in an HCl acid solution, This method can efficiently remove the ablation debris due to chemical reaction, resulting in high quality ablation. On the other hand, the two-step processing method, i.e., irradiation with fs laser in air followed by wet etching, distorts the shape of crater because of the residual debris. The wet chemicals-assisted fs laser ablation method achieves the resolution as small as approximately 500 nm by using high NA (0.73) objective lens. We have also demonstrated formation of 140- μ m-long hollow channels embedded in single-crystal GaN using this method. 3D micro and nano fabrication technique of GaN has great potential to be applied for manufacture of photonic crystal devices and of high-functional microchip devices in which microlaser, microphotodetector, microfluidics, micromechanics, and so on are integrated.

Research subjects

1. Interaction of ultrashort high intensity laser pulses with matters
2. Generation of intense coherent soft x-ray
3. Nonlinear optics in the soft x-ray region
4. Generation and measurement of attosecond pulses
5. Microfabrication by hybrid laser processing with short wavelength and ultrashort laser pulse

Members of Laser Technology Laboratory

Head

Dr. Katsumi MIDORIKAWA

Members

Dr. Akira SUDA

Dr. Koji SUGIOKA

Dr. Yutaka NAGATA

Dr. Yasuo NABEKAWA

Dr. Eiji TAKAHASHI

Dr. Toru KOBAYASHI

Dr. Toshihiko SHIMIZU *1

Dr. Tsuneto KANAI*1

Dr. Yasutaka HANADA*1
Dr. Yu OISHI*2
Dr. Shinichiro HAYASHI*2
Dr. Zhongke WANG*2
Dr. Jianfang CHEN*2
Dr. Ri MA*2
Dr. Keisuke ISOBE*2
Dr. Seisuke NAKASHIMA*2

*1 Special Postdoctoral Researcher *2 Contract Researcher

Visiting Members

Dr. Sung Hak CHO (Korea Inst. of Machinery & Materials)
Dr. Elizabeth M.L. ENGLISH (JSPS)
Prof. Kenichi ISHIKAWA (School Eng., Univ. Tokyo)
Dr. Masanori KAKU (Fac. Eng., Univ. Miyazaki)
Prof. Fumihiko KANNARI (Fac. Sci. Technol., Keio Univ.)
Prof. Kodo KAWASE (School Eng., Nagoya Univ.)
Prof. Hiroshi KUMAGAI (Fac. Eng., Osaka City Univ.)
Prof. Muhammad NURHUDA (Fac. Sci., Brawijaya Univ.)
Prof. Minoru OBARA (Fac. Sci. Technol., Keio Univ.)
Dr. Tomoya OKINO (School Sci., Univ. Tokyo)
Prof. Giuseppe SANSONE (Politecnico di Milano)
Dr. Sebastien SOUGOUT (Univ. ParisSud)
Prof. Takanori SUZUKI (Dept. Appl. Phys., National Defense Academy)
Prof. Koichi TOYODA (Fac. Indust. Sci. Technol., Tokyo Univ. Sci.)
Prof. Shigeru YAMAGUCHI (Fac. Sci., Tokai Univ.)
Prof. Kaoru YAMANOUCHI (School Sci., Univ. Tokyo)

Trainees

Mr. Abdolreza AMANI EILANLOU (School Eng., Univ. Tokyo)
Mr. Yoshihito ASHIKAWA (School Eng., Tokyo Denki Univ.)
Mr. Samuel BOHMAN (Fac. Sci., Tokai Univ.)
Mr. Takuya KANAI (Fac. Sci., Tokai Univ.)
Mr. Yasuhiro KANBA (Fac. Sci., Tokai Univ.)
Mr. Masatoshi HATAYAMA (Grad. School Sci. Eng., Saitama Univ.)
Mr. Norimasa SAKURAI (Grad. School Sci. Eng., Saitama Univ.)
Mr. Masahiro TANAKA (Fac. Sci. Technol., Keio Univ.)
Mr. Takayoshi TSUCHIMOTO (Fac. Indus. Sci. Technol., Tokyo Univ. Sci.)