

# 真空紫外光周波数コム発生とその応用

小澤 陽・小林 洋平

## VUV Frequency Comb Generation and Its Applications

Akira OZAWA and Yohei KOBAYASHI

Frequency comb has been an indispensable tool in the field of frequency metrology for high precision spectroscopy of atomic or molecular targets. High precision spectroscopy with frequency comb has been investigated in visible to infrared wavelength region. Recent advance in vacuum ultraviolet (VUV) frequency comb makes it possible to extend frequency metrology into VUV. While it has been a big challenge to develop narrow linewidth CW-laser in VUV region suitable for spectroscopy, VUV frequency comb would be utilized as a quasi-CW coherent light source for spectroscopy and laser cooling. Application to optical clocks with VUV-transition can also be envisioned. Current progress in VUV frequency comb generation and its applications is discussed.

**Key words:** frequency comb, high precision spectroscopy, high harmonic generation

光周波数コムの実現により可視から赤外領域における光周波数を直接RF領域に変換し、精密に光周波数をRF標準と比較することが可能となった。実際に光周波数コムは原子や分子の精密分光実験に応用され、たとえば、水素単原子の1s-2s遷移においては約122 nmの遷移エネルギーを数Hzという絶対周波数精度で決定することが可能となっている<sup>1)</sup>。光周波数コムの発生法はさまざまなものがあるが、モード同期レーザーによって発生したコヒーレントなパルス列を用いるのが一般的である。このため、通常は、光周波数コムを使用できる波長はモード同期レーザーの発振可能な波長領域、およびその波長変換により得られる波長に限られる。Ti:sapphireレーザー、Yb, Erファイバーレーザー等の広く使われているモード同期レーザーは可視や赤外の領域で発振するため、結晶を用いた波長変換により紫外の領域で周波数コムを発生する試みがなされてきた<sup>2,3)</sup>。一方で、結晶では到達できないような真空紫外の領域においては共振器内高次高調波発生の方法による波長変換が有力である。このようにして発生した紫外光周波数コムにより、真空紫外の領域の精密分光が可能になる。例えば、水素やヘリウム等の単純な原子は基底状態からの多くの真空紫外域の遷移をもち、これらの原子の遷移周波

数を精密に決定することは、基本的な量子力学の枠組みの検証実験につながる。また高強度の真空紫外周波数コムを発生させることは、光コム一本を用いることで、真空紫外域に擬似CWレーザーを開発したことに相当する。これは周波数コムそのものを励起光源として用いる精密分光測定に応用できるのみでなく、レーザー冷却や磁気光学トラップへの応用も期待できる。特に炭素や酸素といった身近な原子はその冷却遷移が真空紫外領域にあり、紫外周波数コムのコム一本を用いた冷却が実現すれば、基本的な有機化学反応を冷却原子を用いて調べることも可能になると考えられる。

### 1. 光周波数コムによる精密分光実験と紫外光周波数コム

実際の原子や分子の精密分光において、光周波数コムは励起用のレーザーの周波数測定の手法として用いられる場合と、励起用レーザーそのものとして用いられる場合がある。前者の測定においては、ターゲットとなる遷移が狭線幅CWレーザーにより励起され、その光周波数が光周波数コムをリファレンスとして測定される。高性能なCWレーザーを励起光源として用いる精密分光は、励起光源の線

幅、パワーの観点から優れた手法であるが、対象となる遷移波長によっては、十分に高性能なCWレーザーが存在しない場合がある。例えば、波長200 nm以下という真空紫外領域においては、直接レーザーを共振させることができるようなゲイン媒質は限られている。また非線形過程を用いた波長変換により紫外光を得ようとしても、ピーク強度が低い連続光であるため、十分な変換効率を得るためには特別な工夫が必要となる。

このような、直接CWレーザーを得にくい真空紫外の波長領域において精密分光を行うための手法として、周波数コム直接励起による分光法が有力視されている。光周波数コムは周波数領域において櫛(くし)状のスペクトルをもち、このコム一本の線幅は光周波数コムの安定性によっている。光周波数コムそのものを安定なRF標準または安定共振器により安定化し、十分線幅の小さい光周波数コムが得られた場合、これらのコム一本一本は絶対周波数が校正されたあたかもCWレーザーとして分光に用いることができる。さらにこれらの各モードは、光周波数コムの繰り返し周波数やオフセット周波数をコントロールすることで、自由に変化、掃引させることができる。ターゲットとなる遷移に周波数コムを照射し、コムの一本を用いて対象の遷移を掃引することで、あたかも先ほどのCWレーザーを励起レーザーとして分光をする場合と同様に分光が行えることになる。この方法はコムのモード一本を励起光源として用いるため、モード一本あたりのパワーが重要となる。繰り返し周波数を高めたり、高平均出力のコムを用いることでモードパワーを高め、実際にコム一本を用いた原子の精密分光が実現されている<sup>4)</sup>。このコムを直接用いた精密分光(DFCS: Direct Frequency Comb Spectroscopy)の最大の利点は、コムがパルスレーザーであることを生かした波長変換を用いることができる点である。パルスレーザーはCWレーザーに比べ同じ平均パワーでもピーク電場強度を何桁も高めることができ、高い効率で非線形波長変換を行うことができる。紫外領域への波長変換は、ガスの非線形性(四光波混合)を用いたもの、非線形結晶、高次高調波発生によるものがある。ガス中の四光波混合は媒質として用いる原子の共鳴を用いることで変換効率を高めることができ、希ガスやHg, Mg等の原子ガスを用いて200 nm以下の真空紫外光の発生が行われてきた。一方で、この手法は目的となる波長を得るのに多数の波長のレーザーを準備しなければならず、装置が複雑になり安定な運用が困難であったり、また効率も低い。非線形結晶を用いた波長変換は、得られる波長が結晶の透過波長で制限されるといった困難があるが、近年、真空紫外域での透過率を高める

ことに特化した特殊な結晶を用いることで、153 nmという非常に短い波長への高効率波長変換が実現されている<sup>2)</sup>。高次高調波発生による波長変換は、非常に高いピーク強度の光周波数コムが必要となる半面、真空紫外から軟X線領域にわたる超短波長において光周波数コムを発生できる可能性がある。紫外周波数コムを用いることで、直接周波数コム分光(DFCS)の手法を応用することにより、従来分光用のCWレーザーがあり得なかったような領域においても、精密分光が可能になってきている。本年初め、CingözらはYbレーザーを用いた外部共振器内高次高調波発生により紫外周波数コムを発生し、実際にAr, Neの精密分光実験に応用した<sup>5)</sup>。

## 2. 外部共振器内高次高調波発生による波長変換

高次高調波発生は単原子ガスや分子ガスに高強度の光電場を照射した際に、基本波となる元の光周波数の奇数倍の光周波数をもつ高調波が発生する非線形現象である<sup>6)</sup>。ガスとしては、通常分極率が大きい単原子ガスである希ガスが用いられる。高次高調波発生は3-Step-Model<sup>7)</sup>で知られるように光電場により大きく変形を受けた原子ポテンシャル中の電子の運動に起因するものであるため、実用的な効率で高次高調波を発生するには、電子が原子核から感受する電場に相当する程度の非常に高いピーク電場強度( $>10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>)を必要とする。通常の高次高調波発生の研究においては、このような高いピーク強度を得るためにkHz~Hz程度といった低い繰り返し周波数で、高いパルスエネルギーを得る手法が用いられる。一方で、光周波数コムの波長変換に高次高調波発生を用いる場合、低い繰り返し周波数はコムの歯の間隔が狭い密なコムに相当し、コムとしての実用上、不便である。光周波数コムとしての応用に耐える数MHz以上という高繰り返しを保ちつつ、高次高調波発生に必要なピーク強度、すなわちパルスエネルギーを得なければならないという点が、高次高調波発生を用いた紫外光周波数コム発生における最も困難な点である。仮にパルス時間幅が一定の条件で1 kHzと10 MHzの繰り返し周波数における高次高調波発生を比較してみた場合、10 MHzの繰り返し周波数においては、同じパルス強度を得るために平均パワーを10000倍にしなければならない。高い繰り返し周波数においてこのような高い平均パワーを得て、高次高調波発生を実現する手法のひとつとして、共振器内高次高調波発生(intra-cavity high harmonic generation)の方法が開発されてきた。共振器内高次高調波発生においては、モード同期レーザーの出力(シード光)を空の外部共振器内に閉じ込め、パルス間のコヒーレ

ントな重ね合わせにより共振器内部で高平均パワー、高パルス強度を実現する。外部共振器長は入射したパルスが共振器内を一周し、入射ミラーに戻ってくる際に次にキャビティに入射するパルスと強めあうように干渉するよう、共振器長が調整されている。このとき、オシレーターからのパルス列は次々と共振器内に蓄積されていき、共振器内ロスと入射パワーで決まる平衡状態に達する。共振器長は外部環境により常に揺らいでいるため、アクティブなフィードバックを行い、共振器長を制御する。また共振器を一周したパルスが共振器内の分散によりチャープしてしまうと、共振器内部のスペクトル、パワーが損なわれる。一般的により短いパルスを共振器に閉じ込めようとするほど、精密な共振器内分散を補正する必要がある。場合によっては分散補償チャープミラーが使用される。周波数領域で考えると、パルスレーザーを外部共振器に入射することは、シード光のコム構造と外部共振器の周波数モードをブロードバンドに一致させることに対応する。揺らぎ等の影響は無視し外部共振器の周波数モードを固定して考えた場合、シード光のコムの間隔（繰り返し周波数）とオフセット周波数をうまく外部共振器のモードと合わせるように調整することで、コムの周波数モードの一本一本を外部共振器にカップルできる。また、シード光のコムは等間隔の構造をもつため、外部共振器も等間隔の周波数モードをもつ必要がある。これは、共振器内部の分散補償を周波数領域で考えたことに相当する。うまくシード光を共振器にカップルできると、共振器内部の平均パワー、パルス強度はシード光の数百倍に達する。共振器内部に集光ミラーを設置することで、集光点において高次高調波発生に十分な高いピーク強度が数百 MHz という高い繰り返し周波数で得ることができる。理想的な条件では共振器内のパルス幅とシード光のパルスは位相、パルスエンベロープともにシードパルスと同じであるため、共振器内のパルス列も周波数領域でコム構造を形成していると考えられる。共振器内高次高調波発生によって発生した紫外光周波数コムは、実際の応用のためには共振器外部に取り出す必要がある。取り出しの方法としてはさまざまなものが検討されてきたが、現時点で実用されているものはブルースター板を用いたものと回折格子ミラーによるものである<sup>8,9)</sup>。前者は基本波に対して透明な板をブルースター角で共振器内部に入れる。このブルースター板は基本波に対しては99.9%以上の高い透過率をもつが、屈折率の波長依存性により、発生した真空紫外光に対しては数~数十%の取り出し効率をもつ。回折格子ミラーはキャビティを構成するミラー表面に回折格子をエッチングしたもので、発生した紫外コムを

回折により基本波とは異なる方向に出射する。回折格子ミラーはブルースター板の方法に比べて非線形性や共振器内部分散の問題が少ない半面、取り出された紫外コムに空間色分散が生じる。

### 3. Yb ファイバーレーザーを用いた外部共振器内高次高調波発生

最初の外部共振器内高次高調波発生は Ti:sapphire レーザーをシード光として行われ<sup>8,10)</sup>、実際に100 MHz を超える高繰り返しで真空紫外光が発生できることが示された。外部共振器内高次高調波発生を行う場合、元のシードレーザーをもともとより高出力にしておくことで、さらに外部共振器内部パワーを高めることができ、より高効率で高次の高調波発生が期待できる。Ti:sapphire レーザーに変わるよりハイパワーなシード光源として、近年、Yb ドープされたファイバーオシレーターおよび増幅器のシステムが用いられてきた。

Yb ドープファイバーを用いたオシレーターは波長1030 nm 付近にゲインのピークをもち、共振器中の分散をうまく調整することで28 fs という超短パルスの発生が可能である<sup>11)</sup>。また、同じく Yb ドープされた大口径のファイバーを用いた増幅器を用いることで、数十ワットの平均出力をもつ高出力高繰り返しパルス光源を構成することができる。増幅器から得られた出力はパルス時間幅については sub-200 fs と、Ti:sapphire レーザーには及ばない。一方で、外部共振器を50 fs を切るような超短パルスで駆動することは、先に述べた共振器内分散補償の点から困難である。このため、Ti:sapphire レーザーの sub-20 fs の超短パルスを得られるという特性は、外部共振器内高次高調波発生においてはあまりメリットとならない。Yb ファイバーレーザーおよびファイバー増幅器の系は、100~200 fs という外部共振器を駆動しやすいパルス幅を得つつ、きわめて高い平均パワー、パルス強度を達成できることから、高次高調波発生のための外部共振器を駆動するには適した光源といえる。図1に、筆者らの研究室で開発された Yb ドープファイバーレーザー、および外部共振器内高次高調波発生システムを示す。Yb ファイバーオシレーターの出力(10 mW)は特殊ファイバーを用いて、数 ps のパルス幅にまでストレッチされる。これにより後段の増幅器内部での非線形相互作用、ダメージを防ぐ。ストレッチされたパルス列は、ブリアンプにより200 mW 程度にまで増幅されたのち、パワーアンプに入射する。パワーアンプではフォトリッククリスタル構造をもつ1.2 m 長のダブルクラッド Yb ドープファイバーが最大160 W の平均出力の LD

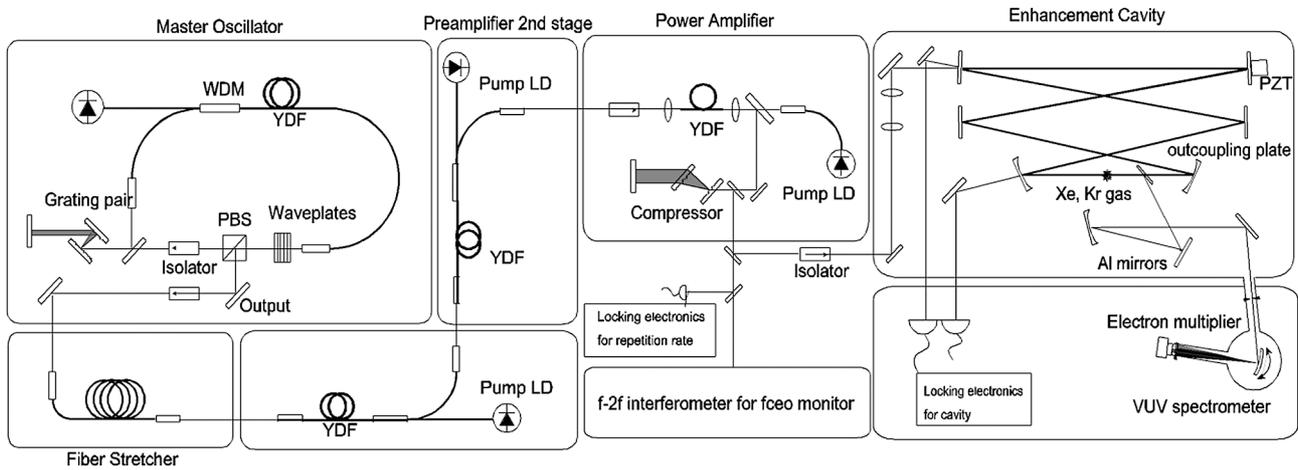


図1 Yb ファイバーレーザーによる共振器内高次高調波発生へのセットアップ。

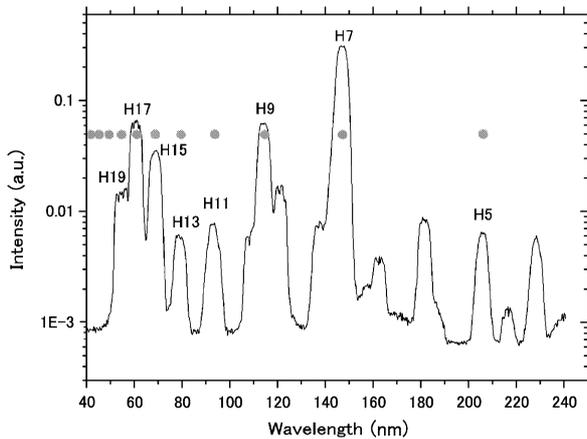


図2 80 MHz 繰り返し外部共振器内高次高調波発生により得られた高調波スペクトル。

によりポンプされており、優れたビーム形状を保ちつつ最大 60 W にまで増幅される。透過型グレーティングによる圧縮後、sub-200 fs のパルス幅を得ることができる。増幅されたパルス列は高次高調波発生のため、外部共振器に入射する。外部共振器は 5 枚の高反射ミラーと 0.4% の透過率をもつ入射ミラーからなる。15 W を外部共振器に入射させたとき、共振器内部パワーは 3 kW に達し、共振器内部の集光点において  $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  を超えるピーク電場強度を得ることができる。図 2 に、得られた高次高調波のスペクトルを示す。共振器からの紫外光の取り出しには、先述したブルスター板の手法を用いた。最大次数 19 次までの高調波が観測されており、54 nm までの紫外光が発生していることが確認できる。短波長側のスペクトルは現在、分光器への入射ミラーとして使用しているアルミミラーの反射率により制限され、外部共振器自体からはより高次の高調波が発生しているものと期待される。各次数の高調波は単一ピーク的なスペクトル形状をしているが、こ

れは使用した分光器の分解能によるもので、このスペクトル内部に繰り返し周波数 (80 MHz) の間隔でコム構造があるはずである。共振器外部に取りだされた 7 次高調波の平均パワーは、およそ  $1 \mu\text{W}$  である。

#### 4. 紫外周波数コムへの応用

発生した紫外周波数コムはさまざまな応用が考えられる。光電子分光においては励起光として高エネルギーの紫外光を使うことで、エネルギーバンドキャップのより広い物質を、より広い波数空間において調べることができる。一方で、低い繰り返し周波数のパルス紫外光源を用いた場合、1 パルスあたりに発生する光電子数が増え、電子間のクーロン相互作用により光電子エネルギー、空間分解能に影響を与える。このため、高繰り返し紫外光源は高分解能、高カウントレートの紫外光電子分光用光源として優れていると考えられる。さらに、その短いパルスを生かして、時間分解測定への応用も可能である。紫外周波数コムを用いた精密分光実験の応用例として、図 3 に筆者らの研究室でのキセノン原子の精密分光のセットアップを示す。キセノン原子は基底状態から第一励起状態への遷移エネルギーが 8.4 eV (147 nm) と真空紫外域にある。この遷移はちょうど Yb ファイバーレーザーシステムの 7 次高調波に対応している。また、キセノン原子の同位体シフトや超微細構造の測定は、重い原子系における原子核-電子相互作用を調べることにつながり、ハートリー・フォック法を用いた電子波動関数の近似計算の実験的検証となる。キセノン原子は室温で 2.7 GHz 程度のドップラー広がりをもつ。図 3 に示すように細くコリメートされたキセノン原子ビームを生成し、これと直交するように励起光と相互作用させることで、実効的なドップラー広がりを抑え、ほぼ自然幅

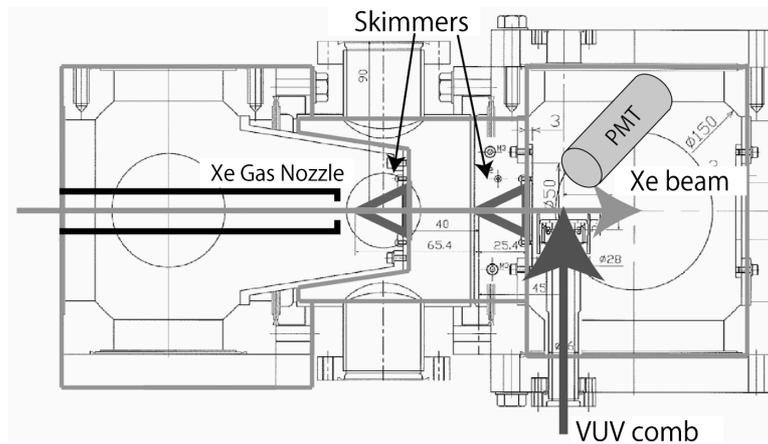


図3 キセノン原子分光のセットアップ.

(45 MHz) の分解能を得ることができる。励起されたキセノン原子の蛍光は真空紫外域に感度をもつ光電子増倍管により高感度に検出される。将来的には光コム一本を対象の遷移の周りでスキャンし、キセノン原子の精密分光を行う予定である。

外部共振器による紫外周波数コム発生最初のデモンストレーションが行われてから7年たち、ようやく発生した紫外コムを応用実験に用いることができるようになってきた。すでに次数あたり数十 $\mu\text{W}$ に至る平均パワーの紫外コムも発生され<sup>12)</sup>、ますます応用範囲は広がるものと思われる。特に精密分光の分野では、紫外周波数コムを用いることで、従来測定不可能であったさまざまな遷移が研究対象となり、基礎物理への貢献が期待される。さらに、非常に高次かつハイパワーの高調波発生により、アト秒や高強度物理の実験が、従来とは比較にならないような高繰り返しで行うことができるようになってると期待される。本記事ではおもに外部共振器内高次高調波発生について述べたが、超高平均出力高繰り返しレーザーを用いてシングルパスでMHzを超える繰り返しの高調波発生も行われており<sup>13)</sup>、将来的に実用的な紫外コムの発生に至るかが興味あるところである。

## 文 献

- 1) C. G. Parthey, A. Matveev, J. Alnis, B. Bernhardt, A. Beyer, R. Holzwarth, A. Maistrou, R. Pohl, K. Predehl, T. Udem, T. Wilken, N. Kolachevsky, M. Abgrall, D. Rovera, C. Salomon, P. Laurent and T. W. Hänsch: "Improved measurement of the hydrogen 1S-2S transition frequency," *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011) 203001.
- 2) Y. Nomura, Y. Ito, A. Ozawa, X. Wang, C. Chen, S. Shin, S. Watanabe and Y. Kobayashi: "Coherent quasi-cw 153 nm light

source at 33 MHz repetition rate," *Opt. Lett.*, **36** (2011) 1758-1760.

- 3) E. Peters, S. A. Diddams, P. Fendel, S. Reinhardt, T. W. Hänsch and Th. Udem: "A deep-UV optical frequency comb at 205 nm," *Opt. Express*, **17** (2009) 9183-9190.
- 4) D. C. Heinecke, A. Bartels, T. M. Fortier, D. A. Braje, L. Hollberg and S. A. Diddams: "Optical frequency stabilization of a 10 GHz Ti:sapphire frequency comb by saturated absorption spectroscopy in 87rubidium," *Phys. Rev. A*, **80** (2009) 053806.
- 5) A. Cingöz, D. C. Yost, T. K. Allison, A. Ruehl, M. E. Fermann, I. Hartl and J. Ye: "Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet," *Nature*, **482** (2012) 68-71.
- 6) J. G. Eden: "Review High-order harmonic generation and other intense optical field-matter interactions: review of recent experimental and theoretical advances," *Prog. Quant. Electron.*, **28** (2004) 197-246.
- 7) M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier and P. B. Corkum: "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields," *Phys. Rev. A*, **49** (1994) 2117-2132.
- 8) C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz and T. W. Hänsch: "A frequency comb in the extreme ultraviolet," *Nature*, **436** (2005) 234-237.
- 9) D. C. Yost, T. R. Schibli and J. Ye: "Efficient output coupling of intracavity high harmonic generation," *Opt. Lett.*, **33** (2008) 1099-1101.
- 10) R. Jason Jones, K. D. Moll, M. J. Thorpe and J. Ye: "Phase-coherent frequency combs in the vacuum ultraviolet via high-harmonic generation inside a femtosecond enhancement cavity," *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005) 193201.
- 11) X. Zhou, D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, K. Torizuka: "Generation of 28-fs pulses from a mode-locked ytterbium fiber oscillator," *Opt. Express*, **16** (2008) 7055-7059.
- 12) J. Lee, D. R. Carlson and R. J. Jones: "Optimizing intracavity high harmonic generation for XUV fs frequency combs," *Opt. Express*, **19** (2011) 23315-23326.
- 13) S. Hädrich, M. Krebs, J. Rothhardt, H. Carstens, S. Demmler, J. Limpert and A. Tünnermann: "Generation of  $\mu\text{W}$  level plateau harmonics at high repetition rate," *Opt. Express*, **19** (2011) 19374-19383.

(2012年4月20日受理)