混合ガスを用いた高次高調波発生： アト秒ダイナミクスの観測と制御

高橋 栄治, 金井 恒人, 緑川 克美

理化学研究所 緑川レーザー物理工学研究室 (〒351-0198 埼玉県和光市広沢2-1)

High-Order Harmonic Generation by Using Mixed Gases Target : Measurement and Control of Ultrafast Attosecond Dynamics

Eiji J. TAKAHASHI, Tsuneto KANAI, and Katsumi MIDORIKAWA

RIKEN Laser Technology Laboratory, 2-1 Hirosawa, Wako-shi, Saitama 351-0198

(Received August 9, 2007)

We present the two experimental results of high-order harmonic generation (HHG) using mixed gases target, one is the dramatic enhancement effect, and the other is the destructive and constructive interference of HHG. The dramatic enhancement effect was realized by simultaneous irradiation of XUV attosecond pulse train (APT) to assist optical field ionization. The harmonic yield generated from He atoms increased by a factor of 4×10^3 with booster APT from Xe atoms. And also, the destructive and constructive interference of HHG in a mixed gas of He and Ne facilitate the coherent control of HHG. The observed interference modulation was attributed to the difference between the phases of the intrinsically chirped harmonic pulses from He and Ne, which leads to a novel method for broadband measurement of the harmonic phases. The mixture gas system is an attractive medium not only to control HHG but also to observe ultrafast dynamics of electrons and molecules.

Key Words: Ti:sapphire laser, Chirped pulse amplification, Ultrafast, Attosecond pulse, High-order harmonic generation

1. はじめに～高次高調波によるアト秒パルス発生と応用

高次高調波は1987年にその発生が確認されて以来^{1,2)}, この20年間様々な角度から研究が進められてきた. 高次高調波はXUVから軟X線域において時間的・空間的コヒーレンスを有する光源であり, アト秒領域の光パルスを発生できる唯一の手法として位置づけられている³⁻¹⁰⁾. 最近では, 時間幅130 as¹⁰⁾のシングルアト秒パルス(single attosecond pulse: SAP)や, 複数本の高調波スペクトルを利用しパルス列(attosecond pulse train: APT)として320 as⁷⁾の光パルスが実験的に得られている. 特に高調波の高出力化研究¹¹⁻¹³⁾とXUV光学素子開発の進展により, アト秒領域での非線形現象の観測が可能になり, さらにそれを利用した自己相関法によるアト秒パルスの観測も行われるようになってきている. これまでアト秒パルスの時間幅評価には, RABITT (Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transition)¹⁴⁾や, 光電子スペクトルの角度依存性³⁾を利用した計測が行われてきた. しかしながら評価途中に計算による仮定が入る事や, 複雑なデータ解析が必要な事から, その結果に対して議論が多かった. 自己相関法における強度相関計測

では位相が決定できず, 振幅に対して波形を仮定するという曖昧さが残るものの, アト秒発生機構に対する深い知識やモデルによる仮定を必要とせずパルスの時間幅を評価することができる. さらに近年ではFROG (Frequency-Resolved Optical Gating)法を用いたSAPの波形・位相の同時決定や, 2光子超しきイオン化の電子スペクトルに現れるモード分解した自己相関波形からAPTの位相情報を取り出すPANTHER (Photoelectron Analysis with Non-resonant Two-photon ionization for Harmonic Electric-fields Reconstruction), といった手法によりアト秒パルスの位相を含めた特性評価が行われるようになってきている^{7,10,15)}. (参考文献10はFROG-CRAB (Complete Reconstruction of Attosecond Bursts)という手法で計測が行われているが, モデルによるシミュレーションが含まれているためFROGの持っている一意性に欠けている点に注意が必要である).

一方, 理論計算¹⁶⁾や計測結果がもたらす情報から高調波により発生したアト秒光パルスの性質が徐々に明らかにされつつある. 次のステップとして, これら極限的な短パルスXUV光を如何に応用するかが重要な課題となる. 自己相関を基礎とするアト秒パルス計測は, 原子・分子を非線形媒質として用いている事からXUV光の非線形光学研

究¹⁷⁻¹⁹⁾の対象として興味深い。またSAPを用いればpump-probeを基礎とする超高速時間分解分光にも貢献できるであろう^{20,21)}。これに関連してIR光とSAP(もしくはAPT)を原子・分子に同時照射することにより、高調波発生量子軌道選択²²⁾や高効率化²³⁻²⁵⁾、イオン化ゲートを利用したSAP発生²⁶⁾、イオン化プロセスのアト秒精度コントロール²⁷⁾といった新たな応用が提案されている。これらのアイデアは高調波発生の時間周波数特性を単一原子レベルで操作するという点に大きな特徴があり、高調波出力の高出力化^{11,12)}やアト秒パルスの発生制御という点においても興味深い。また高次高調波発生により直接アト秒パルスが得られたことは、その発生機構の中に同程度の時間分解能をもつ超高速現象が存在することを示している。近年、この高次高調波の発生機構そのものを利用した分子構造の新しい超高速撮影法が脚光を浴びており、レーザー場内の分子運動に関して新たな知見が得られるようになってきている²⁸⁻³²⁾。この手法の最大の特徴はアト秒の時間分解能で分子構造の変化を追跡できる点であるが、その時間分解能(～100 as)は理論的に見積もられた値を仮定する必要がある曖昧さが残っている。

2. 新しい高調波発生媒質

一般に高調波発生には原子・分子の単一媒質が用いられている。単一媒質を用いたアト秒パルス研究は、発生機構の解明や高効率化といった数多くの情報を我々に与え、大きな成功を収めている。一方我々の研究室では、新たな高調波発生媒質として複数媒質を混合したガスを用いる事を提案し、アト秒パルスの発生制御とアト秒ダイナミクスの計測を行っている。混合媒質を用いることで発生効率の向上や、単一媒質の際には得られなかった電子ダイナミクスの情報を簡易に得ることができる。本解説では、混合ガス媒質を利用したアト秒パルス発生制御の一例として本研究室で実験的に実証された高調波の飛躍的増大機構(Dramatic enhancement, 以降DEと呼ぶ)²³⁻²⁵⁾について紹介したい。また高調波による分子構造の超高速撮影法において問題になっていた電子波束の運動時間(<1 fs)を、混合ガス媒質を用いて直接計測した結果についても紹介する。まず3章で混合ガスからの高調波発生モデルを概観する。DE及び電子波束の観測は一つの発生モデルを用いて説明することができる。次に4章ではDE効果を、5章では電子波束の運動時間計測の実験結果を紹介する。

3. 混合ガス中における高次高調波発生の基礎理論

最初に混合ガスから発生する高調波の発生モデルを概観する。気体1, 2とその混合気体からの高調波スペクトル, $P_1(\omega)$, $P_2(\omega)$, $P_{1+2}(\omega)$ を考える。これらの間には線形な関係式, $P_{1+2}(\omega) = P_1(\omega) + P_2(\omega)$ は成り立たない。その第一の理由は高次高調波のコヒーレンスにある。 $P_{1+2}(\omega)$ には各成分からの高調波が重ね合わせの原理に従ってコヒーレントに足し合わされる。一般には、この干渉効果の他に、高次高調波の再吸収、高調波と基本

波の位相整合等の過程が影響を及ぼす。混合気体中の高次高調波の伝搬方程式のソース項に、その原子・分子中の電子の運動を記述するSFA(Strong Field Approximation)理論³³⁾を組み込んで解析的に積分すると³⁴⁾、混合気体におけるスペクトル $P_{1+2}(\omega)$ は

$$\begin{aligned} P_{1+2}(\omega_q) &\propto I_{\text{gen}}(\omega_q) \times I_{\text{prop}}(\omega_q) \\ I_{\text{gen}}(\omega_q) &= (\rho_{\text{tot}} L)^2 \left| \langle d(\omega_q) \rangle \right|^2 \\ I_{\text{prop}}(\omega_q) &= \frac{[2L_a(q)]^{-2} + \pi^2 L_c^{-2}(q)}{1 + e^{-L_a^{-1}(q)} - 2 \cos[\pi L_c^{-1}(q)] e^{-[2L_a(q)]^{-1}}} \end{aligned} \quad (1)$$

と表される。ここで、 $\omega_q = q\omega_0$, $\rho_{\text{tot}} = \sum_i \rho_i$ (ρ_i は気体*i*の密度) L は媒質長、 $\langle \dots \rangle$ は密度による重み付き平均を表す。例えば、 $r_i = \rho_i / \rho_{\text{tot}}$ として、 $\langle d \rangle = \sum_i r_i d_i$ である。 $L_a(q) = [2\rho_{\text{tot}} L \lambda_0 r_e \langle f_2 \rangle / q]^{-1}$ は規格化された吸収長、 $\lambda_0 = 2\pi c / \omega_0$, r_e は古典電子半径、 f_2 は散乱因子の虚数成分、 $L_c(q) = \pi / (\Delta k_{\text{tot}}(\omega_q) L)$ は規格化されたコヒーレンス長、 $\Delta k_{\text{tot}} = k_q - qk_0$ 。ここで、 k_q と k_0 はそれぞれ*q*次高調波と基本波の波数ベクトルである。式(1)における第1項、 $I_{\text{gen}}(\omega_q)$ 、は高次高調波の発生を表す。

$$\begin{aligned} I_{\text{gen}}(\omega_q) &= \rho_1^2 |d_1(\omega_q)|^2 + \rho_2^2 |d_2(\omega_q)|^2 \\ &\quad + 2\rho_1 \rho_2 |d_1(\omega_q)| |d_2(\omega_q)| \cos \Delta\varphi(\omega_q). \end{aligned} \quad (2)$$

ここで、 $\Delta\varphi(\omega_q) = \varphi_2(\omega_q) - \varphi_1(\omega_q)$ は、気体1, 2から発生した高調波の相対位相であり、相対位相の大きさに従って干渉することが分かる。さらに、高調波のthree-step modelによると、この相対位相は電子の超高速運動と密接に関わっている。一方、式(1)における第2項、 $I_{\text{prop}}(\omega_q)$ 、は高次高調波の伝搬効果を表し、混合気体における高次高調波発生の高出力化の指針を与える。

さて、発生した高次高調波の光子密度が基本波の光子密度と比べて十分に小さい場合、単原子応答、 $d_i(\omega_q)$ は基本波に対する応答で十分よく記述出来る。従って、Fig. 1におけるRegion 1に現れる干渉を観測することで、基本波

Fig. 1 A schematic diagram illustrating the two regions of HHG in a nonlinear medium composed of two gases, 1 and 2 ($I_p^1 < I_p^2$). Dashed and solid line indicate harmonic spectra from unmixed gases 1 and 2, respectively. While interference always takes place where the two spectra are superposed, DE can be clearly observed in the interference-free region, where HHG in the gas 1 with lower ionization potential I_p^1 is suppressed due to the cutoff law of HHG.

に対する応答を観測することが出来る。一方、高次高調波の光子密度が基本波の光子密度に対して無視できない場合、一方の媒質で発生した高調波自身が他方の媒質における高調波発生メカニズムそのものに影響を与える。しかし、Region 1においては常に高調波の干渉が起るため、干渉効果との分離が難しい。従って、高調波のカットオフ則により現れるinterference-freeなRegion 2に注目する。本解説4章で紹介する高調波のDE効果はRegion 2で観測され、5章で紹介する電子波束の運動時間情報はRegion 1の干渉情報から得ている。

4. 高調波発生におけるDE機構

4.1 DE効果とは？

高調波の発生機構はP. Corkumによって提案されたthree-step model³⁵⁾により理解することができる。最初のステップにおいて、光電場により原子(もしくは分子)のクーロンポテンシャルが歪められ、トンネルイオン化とよばれる現象が起こる。次にイオン化された電子は光電場により加速を受け、再び親イオンと再結合することで高調波を発生する。最初のステップにおいて、電子がクーロン障壁をトンネルできる確率は障壁の厚み(深さ)に依存する。つまりレーザー場が弱い場合はクーロン障壁がほとんど下がらず、その結果、高調波発生に関与できる電子の個数が減少し、高調波の発生効率が減少することになる。DE機構とは外部からXUV光を照射することで電子を仮想準位に励起し(実励起でもよい)、電子がトンネルするクーロン障壁の実効的な厚みを低下させイオン化確率を増加させることにより、高調波の発生効率を増加させるというアイデアである。ここで注意したいのは、本現象は高調波を発生させるIR光の強度が十分弱い場合のみ効果的であるという事である。高強度のIR光を使用して、そのパルスのみでクーロン障壁が十分におしきげられるような場合においては、外部よりXUV光を入射してもほとんど効果はない。本実験で対象とするHe原子におけるDE機構を考えた場合、計算結果より $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 以上の相互作用強度においてはDE機構は効果的ではなくなると予想される。

高調波の励起強度を十分下げた場合、DE効果の効率を決定するのは外部よりシードするXUV光の光子エネルギー(波長)とフォトン数(強度)となる。最初のDEの実証実験はシード用のXUV光を前もって発生させ、その後IR光と同時に媒質に照射することで行われた^{36,37)}。しかしながら実験装置の構成上の問題から、得られた増幅効率は3倍程度であり(“Dramatic”にはほど遠い)、DE機構の決定的な実証には至っていない。そこで我々はXeとHeを混合した媒質を用い、混合ガス中のXeから発生する高調波(APT)をシード光としてHe高調波の高効率発生を試みた。

4.2 実験結果と考察

実験ではフェムト秒チタンサファイアレーザーシステムから出力された光パルス(パルス幅 $\sim 30 \text{ fs}$, 中心波長

$\sim 800 \text{ nm}$)を集光レンズ($f = 5000 \text{ mm}$)によりガスセル(セル長 $L = 1 \sim 140 \text{ mm}$)中に満たしたXeとHeの混合ガスに集光し高次高調波を発生させた(Fig. 2)。集光強度は $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ とし、媒質長さは 120 mm とした。発生した高次高調波を斜入射分光器で分光し、マイクロチャンネルプレートと組み合わせた蛍光スクリーンの画像をCCDカメラで撮影することにより解析した。

混合ガス中(Xe + He)にレーザー光を集光すると両ガスから高調波が発生する。各ガスから発生する高調波の発生次数は $I_p + 3.2U_p$ の関係式³⁵⁾から見積もることが可能である。ここで I_p は媒質のイオン化ポテンシャル、 U_p はレーザー光のボンデロモティブポテンシャルである。関係式に従うと、Xe高調波は21次(31.1 eV)、He高調波は31次(43.5 eV)のカットオフエネルギーになると評価できる。また $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ の強度下で発生する高調波は、イオン化しきい値が低く非線形感受率が高いXeガスからのものがほとんどであり、Heからの発生効率は圧倒的に低くなる。結果、Heからの高調波発生にDE機構が効果的に働く状況を実現することが出来る。

Fig. 3に励起光(800 nm)とXeから発生した11~23次の高調波によって形成されるAPTの相対位相関係を示す。APTはthree-step model³⁵⁾から各次数の光が放出される基本波の位相を計算し、その分だけ各次数の位相をずらして足し合わせることで得た。本実験では長尺化した媒質を使用しているため、短軌道による再結合位相のみを考慮している¹⁶⁾。Xeから発生した高調波によって構成されるAPTは、自動的にHeガスに一光子吸収され、Heからの高調波発生をアシストすることでDE機構が実現される。つまり3章で述べたように、Xeで発生した高調波自身がHeの高調波発生そのものに影響を与えるようになる。一光子吸収による仮想準位からのイオン化ポテンシャル

Fig. 2 Experimental setup.

Fig. 3 Relative phase between APT and IR beam (800 nm). A recombination phase of HH is estimated by using three-step model.

は、 $24.6(\text{eV}) - q\hbar\omega_0$ で与えられる．ここで q は高調波次数， ω_0 は励起光の周波数である．Xeから発生した全ての高調波はHeに吸収されるが，DE機構として有効に働くのは11次以上の成分となる． $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ の励起強度において9次以下の光子エネルギーのアシストでは，トンネルイオン化が十分に起きないのがその理由である．本手法ではAPTとIR光の相対位相が自動的に決定されるため外部コントロールができない点が問題ではあるが，簡易にDE機構が再現でき，さらに媒質の光軸方向全体でアシストが起こることから，高効率な増幅が期待できる．

HeとXeの混合ガスから発生する典型的な高調波スペクトルをFig. 4に示す．混合ガスの構成比は $P_{\text{Xe}}/P_{\text{He}} = 0.04$ であり，ガス圧は8 Torrとした．つまり混合ガスは，Heガスを7.68 Torr，Xeガスを0.32 Torr含有している．前述したようにDEによるアシスト効率は，シードとなるXUV光の光子数に依存する．そこでXe高調波を高効率に発生できるように，Xeガスがイオン化しない条件でレーザー強度($\sim 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$)を決定した．Fig. 4(a)の計測では，80 nm以上の高調波信号を低減するため厚さ400 nmのAlフィルターを挿入してスペクトルを得ている．また比較検討のため，同一強度下において7.68 TorrのHeガス単体，及び0.32 TorrのXeガス単体から発生した高調波スペクトルも図中に示した．Xeガス単体(0.32 Torr)において最大25次までの高調波スペクトルが観測されており，このXe高調波が混合ガスにおけるシードAPT光として機能する．25次

Fig. 4 Experimentally obtained harmonic spectra (a) with and (b) without Al filter. Solid, dotted and dashed line correspond to the harmonic spectra from the mixed gas, He, and Xe, respectively. The inset shows the measured far-field spatial profile of the 27th harmonic in 8 Torr $\eta = 0.04$ mixed gas. Open and solid circles show the intensity of numerical results in He HHG and DE HHG, respectively.

以降にも信号が観測されているが，分光器内の散乱光によるノイズシグナルであり，高調波スペクトルではないことに注意されたい．Heガス単体(7.68 Torr)の場合，高調波スペクトルが観測されていないのに対して，混合ガス媒質からは最大33次までの高調波シグナルが観測されている．混合ガスからの高調波シグナルには，Xeからのシード高調波シグナルも含まれていることから，25次以下のスペクトル強度に対してはDE効果を議論することができない．一方，27次以降のシグナルはXe単体の場合では観測されていないことから，DE効果を伴うHeからの高調波発生スペクトルであると判断できる．イオン化ポテンシャルが大きく異なるHeとXeガスを混合媒質として用い，高調波のカットオフエネルギーを10 eV以上差をつけたのは，観測シグナルを見分けるためでもある．Fig. 4(a)のinsetは27次高調波の一次元の遠視野像であり，ビーム広がり角0.4 mrad(FWHM)の低発散ビームが得られている．一方，He単体から発生した27次高調波の広がり角は0.65 mradであった．この発散角の違いは高調波発生部における発生断面積が混合ガス媒質の場合の方が2倍程度大きいことを示している．

次にDE効果による増幅率を決定する為，Alフィルターを抜き高調波スペクトルを計測した(Fig. 4(b))．得られた二つのスペクトル強度を比較することで，Heガス単体と比較して27次高調波(29.6 nm)で 4×10^3 倍の増幅を得ることが出来た．また時間依存のシュレディンガー方程式(Time-Dependent Schrödinger Equation : TDSE)の数値解析を用いて実験結果の妥当性を検討した．TDSEによる解析では，実験的に評価されたAPTの強度($1 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$)及びIR光との相対位相関係(Fig. 3)を使用した．Fig. 4(b)に計算結果を示した．実験結果と比較しやすいように計算結果の27次強度と実験値で得られた27次の強度が同一値で対応するように規格化している．またエラーバーはシードAPT強度の評価の誤差($10^{10} \sim 10^{11} \text{ W/cm}^2$)に対応している．伝搬効果を取り込んでいない単一原子を対象とした数値計算ではあるが実験とおおよそ一致しており，計算からも実験結果の妥当性が確認された．観測された増幅は断面積増加分による効果も含んでいるが，これを考慮しても増幅率よりDE効果の方がより効果的に働いていると結論づけられる．上記の結果より $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ の強度下において混合ガスを使用することで大幅な(“Dramatic”)高調波の効率改善が得られ，DE効果を実験的に実証する事に成功した³⁸⁾．

5. 混合ガスを用いたアト秒電子波束の運動時間計測

冒頭で紹介した様に，近年，高次高調波の発生過程そのものを用いた分子の新しい構造解析法が脚光を浴びている²⁸⁻³²⁾．この手法の最大の特徴はアト秒の時間分解能で分子の構造変化を追跡できる事である．しかしながら，本手法の時間分解能($\sim 100 \text{ as}$)に対応する電子波束の運動時間を実験的に実証した例はなく，理論的に見積もられた値を仮定しなければならないという問題があった．本章では，混合ガスを用いる事で初めてレーザー場中にお

ける電子波束の運動時間の測定に成功したので、その結果について紹介する。

5.1 実験結果と考察

実験装置はFig. 2と同一のものをを用い、HeとNeの混合ガスを媒質として使用した。ガスセルを用いて、媒質の状態(媒質の長さ、各ガスの密度(分圧)等)を精密に制御することで、厳密な議論が初めて展開できる。本装置では励起光の集光に伴う幾何学的な位相不整合量とガス媒質の分散による負の位相不整合量を相殺させることで位相整合条件を満たしている。混合ガス全体に対するNeガスの組成比 r_{Ne} と全圧 $p_{\text{tot}} = p_{\text{He}} + p_{\text{Ne}}$ を変えながら、Fig. 1のRegion 1における高調波スペクトルの変化を観測した。

Fig. 5に13.5 TorrのHeガス、及び1.5 TorrのNeガス、15.0 Torrの混合ガス(Neガス濃度 $r_{\text{Ne}} = 10\%$)において発生した高次高調波スペクトルを示す。ここで、23次から35次高調波スペクトルの隣に現れているスペクトルは45次から71次高調波の2次回折光によるものである。混合ガスを用いることで13.5 TorrのHeガス及び1.5 TorrのNeガスからの高次高調波を「重ね合わせ」ことができ、その結果29次近傍におけるdestructive interference(DI), 51次近傍におけるconstructive interference(CI)が起きていることが分かる。特にFig. 5のinsetに示されているように、混合気体中の29次高調波発生はDIによりほぼ完全に抑制されている。

観測されたCI及びDIの物理的起源を明らかにするため、高次高調波の伝搬方程式と原子・分子中の電子の運動を記述するSFA理論³³⁾を組み合わせ、混合気体中の高次高調波発生の解析的理論モデルを構築した(3章を参照)。混合気体から得られる高次高調波強度は各気体の単原子(分子)応答の重みつき重ね合わせと、高調波が媒質中を伝搬する際の散乱効果の積でよく表される。Fig. 5の実験結果から単原子応答における高調波の位相差を求めることが可能となる。単原子(分子)応答における各気体からの高調波の位相 $\phi_i(\omega_q)$ は、電子の連続状態における作用の停留値 S^s が重要な役割を果たす：

$$S^s = \tau^s I_p + \left[\tau^s - 2(1 - \cos \tau^s) / \tau^s - C(\tau^s) \cos(2t^s - \tau^s) \right] U_p, \quad (3)$$

ここで、 τ^s は電子のexcursion time, t^s は電子の再結合時

Fig. 5 The harmonic spectra from a 13.5 torr He gas (dashed line), a 1.5 torr Ne gas (dashed-dotted line), and the mixture of them (solid line). Inset shows the enlarged illustration of the spectra, where DI takes place. The medium length was set to be $L \sim 130$ mm.

刻, U_p はポンデロモータイブポテンシャル, $C(\tau) = \sin(\tau) - 4\sin^2(\tau/2)/\tau$. また量子力学的効果により τ^s は複素数になるため, excursion time を $\tau = \text{Re}(\tau^s)$ と定義する。多くの文献で混乱がみられるが、古典力学のthree step modelに従って求めたexcursion timeは誤った値を与えることに注意する必要がある。実際、古典力学を用いた値ではFig. 6を再現しない。式(3)において、 U_p に比例する項はいわゆるintensity-dependent phaseと呼ばれ、位相整合を利用した高次高調波発生の制御の可能性などから、盛んに研究されてきた。一方、 I_p に比例する項についての研究は皆無であった。本研究において、この項を利用して高調波発生を制御することが初めて実証された³⁴⁾。

2つの代表的な電子軌道の中から短軌道を選択し、He原子とNe原子の様にイオン化ポテンシャルの差が小さい場合には高調波の位相差 $\Delta\Theta$ は

$$\Delta\Theta \sim \tau \Delta I_p, \quad (4)$$

でよく表される。つまり、観測されたCI及びDIは高次高調波発生を引き起こす電子のexcursion time τ と混合ガスを構成する原子や分子のイオン化ポテンシャルの差 ΔI_p の積により表される。従って、 ΔI_p が異なる原子や分子を用いることによって、フィルター等を用いずに干渉効果により高次高調波のスペクトル形状を直接制御することができる。また、式(4)において、 $\Delta\Theta$ と ΔI_p は観測可能な物理量であることに注目する。つまり、逆問題として高調波スペクトルにおける干渉パターンを観測することにより、唯一の未知の物理量であったexcursion time τ の測定が可能となる。例えばDIが起きている29次高調波発生に寄与する電子のexcursion time τ は690 asと決定される(Fig. 6)。Fig. 5から6への詳しい導出過程は参考文献³⁴⁾を参照して頂きたい。

さらに本モデル(式1)により、混合ガスにおける高次高調波発生の最適化条件が解析的に導出される：

$$\begin{aligned} \Delta\Theta &\sim 0 \\ 3L_a(q) &< 1 \\ 5L_a(q) &< L_c(q). \end{aligned}$$

ここで、 $L_a(q)$, $L_c(q)$ はそれぞれ混合気体における q 次

Fig. 6 The experimentally determined relative phases of harmonics and the corresponding excursion time τ_1 as a function of harmonic order (squares). The error bars are about the sizes of the symbols for the experimental data. Theoretically obtained curve are also shown by the solid line.

Fig. 7 Harmonic spectra from the optimized He-Ne gas ($r_{\text{Ne}} = 35\%$ and $p_{\text{tot}} = 14.0$ torr; solid line) and the optimized pure Ne gas ($p_{\text{Ne}} = 9.1$ torr; dashed line). The medium length was set to be $L \sim 130$ mm.

高調波の規格化された吸収長，コヒーレンス長である。後半の二つの式はConstant等によって示されている単一ガスにおける最適化条件(吸収限界条件)³⁹⁾の自然な拡張となっている。得られた最適化条件に従い55次から65次高調波の波長域において高次高調波のパルスエネルギーを最適化した結果，Neガスから発生するパルスエネルギー¹²⁾と同等程度の出力を得ることに成功した。またNe原子単体を用いた場合に比べ，イオン化が抑制されたことによりカットオフが増大する事が観測された(Fig. 7)。Fig. 7において混合ガスからの高調波スペクトルが低次側にシフトしているのは媒質のイオン化が抑制された事を示している。

6. まとめと今後の展望

本解説では，高調波発生媒質として“混合ガス”を用いる事を新たに提案し，その結果可能になるアト秒研究関連のアプリケーションを紹介した。DE効果は最初のトンネルイオン化プロセスをXUVの一光子吸収によりアシストし，低い励起レーザー強度でも高い変換効率を実現できる点にメリットがある。一つの応用としては，モード同期レーザー発振器を用いた内部キャビティー高調波発生への利用が考えられる。オシレーターを用いた内部キャビティー高調波発生は，光周波数標準における周波数コムのXUV域への拡張方法として注目を集めている^{40,41)}。しかしながら高繰り返し率のオシレーターを使用するため，発生する高調波は弱く，利用できる次数も低い事が一つの問題であった。DE効果を利用する事で，パルスエネルギーの低いオシレーターでも高効率な高調波発生が可能になると期待できる。

また混合ガスを用いた実験結果により，光電場中での電子の運動をアト秒精度で捕らえることに成功した。さらに最近では，混合ガスの方に分子を用いることにより，高調波スペクトルに分子の構造変化が実際にアト秒の時間分解能で転写されることが示された⁴²⁾。これらの研究により，高次高調波発生を用いた構造解析法²⁸⁻³²⁾の基礎が確立されただけでなく，位相という新しい物理量を用いた複眼的な解析が可能となった。分子を含む混合ガス⁴²⁾を用いて高調波を発生させることで，超高速現象に対する私達の理

解が飛躍的に深まることが期待される。

超短パルスレーザーによる高次高調波発生が確認されて以後，発生機構に関する様々な研究が行われ，四半世紀近く経過した現在ではアト秒科学という新しい研究分野を創成するまでになっている。フェムト秒レーザーは学術的にも産業的にも多岐に亘って使用されており，現在のテクノロジーを支える上で必要不可欠なものになっている。アト秒パルスがフェムト秒レーザーなみに多方面に利用されるインパクトある光源になりえるかは不明だが，極限的な時間分解能を有する光源である事だけは間違いない。アト秒パルスの更なる短パルス化，短波長化も必要だが，ただの現象論で終わらず幅広く使用されるツールとなるためにも“アト秒パルスでのみ可能になる研究領域”が数多く開拓される必要がある。

本稿で紹介した研究は，多くの方々との協力の元に行われた。関係各位に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes: *J. Opt. Soc. B* **4** (1987) 595.
- 2) M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus: *J. Phys. B* **21** (1988) L31.
- 3) M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz: *Nature* **414** (2001) 509.
- 4) P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte, and G. D. Tsakiris: *Nature* **426** (2003) 297.
- 5) T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai, and S. Watanabe: *Nature* **432** (2004) 605.
- 6) Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006) 083901.
- 7) Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 153904.
- 8) A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hansch, and F. Krausz: *Nature* **421** (2003) 611.
- 9) R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz: *Nature* **427** (2004) 817.
- 10) G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. D. Silvestri, and M. Nisoli: *Science* **314** (2006) 443.
- 11) E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. A* **66** (2002) 021802.
- 12) E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, H. Mashiko, H. Hasegawa, A. Suda, and K. Midorikawa: *IEEE J. Selct. Top. Quantum Electron.* **10** (2004) 1315.
- 13) D. Yoshitomi, T. Shimizu, T. Sekikawa, and S. Watanabe: *Opt. Lett.* **27** (2002) 2170.
- 14) P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini: *Science* **292** (2001) 1689.
- 15) A. Kosuge, T. Sekikawa, X. Zhou, T. Kanai, S. Adachi, and S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.* **97** (2006) 263901.
- 16) P. Antoine, A. L'Huillier, and M. Lewenstein: *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996) 1234.
- 17) Y. Nabekawa, H. Hasegawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005) 043001.
- 18) T. Okino, K. Yamanouchi, T. Shimizu, K. Furusawa, H. Hasegawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: *Chem. Phys. Lett.* **432** (2006) 66.
- 19) N. Miyamoto, M. Kamei, D. Yoshitomi, T. Kanai, T. Sekikawa, T. Nakajima, and S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004) 083903.

- 20) M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz: *Nature* **419** (2002) 803.
- 21) M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, A. J. Verhoef, V. Yakovlev, M. F. Kling, J. Rauschenberger, N. M. Kabachnik, H. Schroder, M. Lezius, et. al: *Nature* **446** (2007) 627.
- 22) K. J. Schafer, M. B. Gaarde, A. Heinrich, J. Biegert, and U. Keller: *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 023003.
- 23) K. Ishikawa: *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 043002.
- 24) K. L. Ishikawa: *Phys. Rev. A* **70** (2004) 013412.
- 25) K. Schiessl, E. Persson, A. Scrinzi, and J. Burgdörfer: *Phys. Rev. A* **74** (2006) 053412.
- 26) K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. A* **75** (2007) 021801.
- 27) A. D. Bandrauk and N. H. Shon: *Phys. Rev. A* **66** (2002) 031401.
- 28) J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve: *Nature* **432** (2004) 867.
- 29) T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai: *Nature* **435** (2005) 470.
- 30) T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai: *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007) 053002.
- 31) N. L. Wagner, A. Wüest, I. P. Christov, T. Popmintchev, X. Zhou, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn: *Proc. Nat. Acad. Sci. U. S. A* **103** (2006) 13279.
- 32) S. Baker, J. S. Robinson, C. A. Haworth, H. Teng, R. A. Smith, C. C. Chiriă, M. Lein, J. W. G. Tisch, and J. P. Marangos: *Science* **312** (2006) 424.
- 33) P. Salières, B. Carré, L. L. Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milošević, A. Sanpera, and M. Lewenstein: *Science* **292** (2001) 902.
- 34) T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. Lett.* **98** (2007) 153904.
- 35) P. B. Corkum: *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993) 1994.
- 36) J. Biegert, A. Heinrich, C. P. Hauri, W. Kornelis, P. Schlup, M. Anscombe, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, and U. Keller: *Laser Phys.* **15** (2005) 899.
- 37) A. Heinrich, W. Kornelis, M. P. Anscombe, C. P. Hauri, P. Schlup, J. Birgert, and U. Keller: *J. Phys. B* **39** (2006) S275.
- 38) E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007) 053904.
- 39) E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, C. Dorrer, C. L. Blanc, F. Salin, and P. Agostini: *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999) 1668.
- 40) C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz, and T. W. Hänsch: *Nature* **436** (2005) 234.
- 41) R. J. Jones, K. D. Moll, M. J. Thorpe, and J. Ye: *Phys. Rev. Lett.* **94** (2005) 193201.
- 42) T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: in *Technical Digest of Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference, Baltimore, 2007 pp.* (Optical Society of America, Washington, D.C., 2007), JThD36.

レーザーワード

高次高調波発生 (high-order harmonic generation)

高強度・超短パルスレーザーを希ガス等に集光することにより励起される波長変換プロセス。非線形結晶を用いた低次の波長変換と異なり、高次成分(非摂動論的領域)においてプラトーと呼ばれる強度が一定になる波長領域を持つ。発生した高次高調波はプラズマ等の発光現象とは異なり、ポンプレーザーの品質を受け継ぎ、高い空間

コヒーレンスと超短パルス性を有する。発生波長域は極端紫外から軟X線域にわたり、1 keVを越すコヒーレントX線が得られるまでになっている。また近年では、その広いバンド幅を生かしてアト秒パルスの発生、計測研究に応用されている。

(高橋 栄治)