

平成21年 5月25日現在

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2007～2008

課題番号：19686006

研究課題名(和文) アト秒軟エックス線パルスの発生と計測に関する理論的研究

研究課題名(英文) Theoretical study on attosecond soft X-ray pulse generation and measurement

研究代表者

石川 顕一 (ISHIKAWA KENICHI)

独立行政法人理化学研究所・臓器全身スケール研究開発チーム・上級研究員

研究者番号：70344025

研究成果の概要：中赤外レーザーを用いたより短波長のアト秒パルス発生にとって重要な、高次高調波発生の基本波長依存性を、800～2000nm の範囲について、時間依存シュレーディンガー方程式の直接シミュレーションによって研究した。高調波収量は、グローバルには波長のマイナス5乗程度でスケールすること、詳細に見ると10以上の量子経路の干渉により高調波収量ははげしく振動すること、極端紫外光パルスを付加すると波動関数の初期広がりなどの効果でスケールリングが大幅に緩やかになることなどの、重要な成果を挙げた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	4,500,000	1,350,000	5,850,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学

キーワード：高性能レーザー、量子エレクトロニクス、計算物理、高次高調波発生

## 1. 研究開始当初の背景

極端紫外(XUV)および軟エックス線領域での新しいパルス光源の代表として高次高調波(HHG)があげられる。これは、フェムト秒レーザーパルスに照射された原子から波長変換によって発生する奇数次の倍波(波長が奇数分の1の光)のことである。高調波は高い空間コヒーレンスと超短パルス性を兼ね備えた高品質の光源であり、発生波長領域は真空紫外から水の窓領域(2～4 nm)までの広範囲にわたっている。

2001年にウィーン工科大学(当時)のKrauszのグループがHHGによりパルス幅

が1フェムト秒を切るアト秒軟エックスパルスの発生に成功し、「アト秒科学」という新領域が急速に進展するものと期待されたが、研究開始当初においてはアト秒パルス発生に成功したのは世界でもごく少数の研究グループに限られていた。

一方、より短波長の高調波・アト秒パルスの発生を目的に、光パラメトリックチャープパルス増幅などを用いた中赤外領域のハイパワーレーザーの開発が進み、高次高調波発生の基本波長依存性の解明が求められていた。

## 2. 研究の目的

そこで本研究は、新しい原理に基づくアト秒シングルパルスの発生と計測の方法を理論・数値シミュレーションによって研究することを最終目的とし、特に、高次高調波発生の基本波長依存性、XUV パルス付加によるその制御について検討することを目的とした。

## 3. 研究の方法

高強度レーザー場中における原子の応答の計算に、時間依存シュレーディンガー方程式(TSDE)の直接解法を用いる。最外殻電子の運動のみを考慮する single active electron (SAE) 近似での TDSE を Peaceman-Rachford 法を用いて数値的に解き、波動関数の時間発展から双極子モーメントや発生する高調波スペクトルなどの観測量を計算する。

## 4. 研究成果

### (1) 高次高調波発生の基本波長依存性

高次高調波発生はこれまでおもに波長 800nm 前後のチタンサファイアレーザーで行われており、安定した出力の高調波は波長 13 nm 以上にとどまっている。標的原子のイオン化ポテンシャル  $I_p$ 、ポンデロモティブエネルギー  $U_p$  を用いて、発生する高調波の光子エネルギーの最大値  $E_c$  (カットオフ) は  $E_c = I_p + 3.17U_p$  と表される。 $U_p$  は基本波長の 2 乗に比例するので、水の窓領域 (2~4 nm) や keV 領域の高調波の発生をめざし、OPCPA 等による中赤外高強度レーザーの開発が国内外で進められている。そのためには、従来の 800nm 付近の波長領域と比べて、高次高調波の発生効率がどの程度変わってくるのかが重要な鍵を握ることになる。これに関して、本研究では、高次高調波発生の詳細な基本波長依存性のパイオニア的研究を行った。

中赤外レーザーによる高次高調波発生を目指す実験研究者にとって大きな関心事は、波長 800nm 付近と波長 1.5 ミクロンあるいは 2 ミクロン付近では発生効率がどれくらい違うのかということであろう。そこで、20~50eV の範囲の高調波収量の域的な基本波長依存性を調べた。水素原子の場合の結果を Fig. 1 に正方形のマーカで示す。この 50nm おきに計算した結果によると、おおむね波長のマイナス 5 乗でスケールしていることが分かる。また Ar についてもマイナス 5.5 乗のスケールを得ている。

ではなぜこのようなスケールになるのであろうか。よく知られているように、高次高調波発生メカニズムは 3 ステップモデルで説明される。すなわち①トンネル電離した電子が②レーザー電界中で振動運動をし、親イオンの位置に戻ってくる際に③再結合して光子を放出する。トンネル領域では①

は波長にあまり依存しない。②は波束の広がりから  $\lambda^{-3}$ 。③についてはカットオフがのびるほど決められた光子エネルギーの範囲の収量は  $\lambda^{-2}$  で変化する。これらを合わせてマイナス 5 乗スケールになると考えられる。

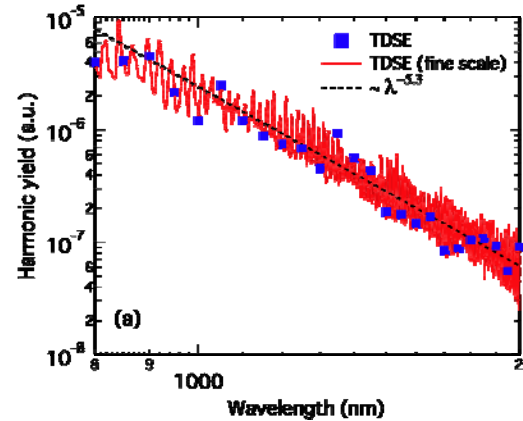


Fig. 1 ピーク強度  $1.6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> の 8 サイクルフラットトップパルスによる水素原子からの 20~50eV での高次高調波発生収量の、基本波長依存性。50 nm ピッチで計算した結果を正方形のマーカで、1 nm ピッチの詳細な計算の結果を実線でしめす。破線は、累乗則によるフィッティング。

Fig. 1 の正方形のマーカをよく見ると、高調波収量はスケール則にきれいに従っているわけではなく、上下にばらついていることに気付く。数値計算の結果であるから「実験誤差」ではすまされず、このふらつきには何らかの意味があるはずである。そこでより細かいピッチ (1nm ピッチ) での計算を行った。その結果を Fig. 1 に実線で示す。収量は波長と共になめらかに変化するのはなく大きく振動することが分かる。特に基本波長 2 ミクロン付近では、基本波長が 3nm 変わるだけで収量が 5, 6 倍変化することが分かる。

この驚くべき振動の原因は何であろうか。すぐ頭に浮かぶのは、ショートトラジェクトリーとロングトラジェクトリーの干渉であろう。そこで我々は Lewenstein モデルにおける鞍点解析 (SPA) を行い、その結果として、再結合軌道 (トラジェクトリー) の数を増やすにつれて、それらの位相の干渉によって TDSE で求めた振動の振幅と周期がよく説明できることを示した。ここで注意しないといけないのは 10 を超えるトラジェクトリーが寄与していることである。従来、最も短い 2 つのトラジェクトリー (ショートとロング) の寄与がほとんどであると考えられてきたが、実際には意外なことに高次のトラジェク

トリーからの寄与も重要であり、基本波が長波長の場合に特にその傾向が顕著であることを明らかにした。ここで用いているパルスの時間波形は、8サイクルフラットトップであり、スペクトル幅は中心波長の10%以上である。すなわち、Fig. 1の横軸は、単色光の

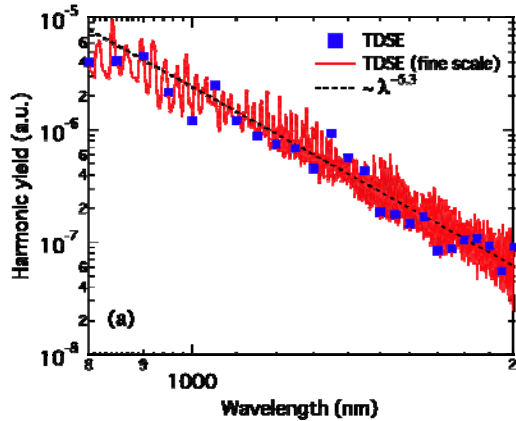


Fig. 2 いくつかの異なるピーク強度の8サイクルフラットトップパルスによる水素原子からの20~50eVでの高次高調波発生収量の基本波長依存性(1000~1100 nm)を、チャンネルクロージング数  $R$  を横軸にプロットしたもの。

波長ではなく広いスペクトルの中心波長であり、スペクトル幅よりはるかに細かい周期の振動が見られるというのは特筆すべきことである。

次に浮かぶ自然な疑問は「何が振動の周期を決めているか」である。そこで、波長かわりに、チャンネルクロージング数  $R = (U_p + I_p)/h\omega$  を横軸にとってプロットし直してみる。これはポンドロモティブエネルギーだけシフトしたイオン化ポテンシャルを超えて電離するのに必要な光子数を表す無次元数である。いくつかのピーク強度に対するプロットを Fig. 2 に示す。振動の周期は  $R$  の値がちょうど1だけ変化するのに対応していることが分かる。しかも  $R$  を用いて波長依存性を表すと、ピークの位置や依存性カーブの構造も、基本波強度にあまり依存しないことが分かる。なお、高強度場近似(SFA)ではピークの位置は  $R$  の整数値になるのだが、Fig. 2 に示す TDSE の結果ではそうになっていない。検討の結果、このピークシフトは、SFA では無視されているクーロンポテンシャルの長いテールが電子の運動に及ぼす影響によるものであることを見出した。

(2) ブースターXUVパルス同時照射下での基本波長依存性

さらに、高次高調波発生の基本波長依存性をあやつるために、ブースターXUVパルスを同時照射した場合の依存性を調べている。ポ

ンドロモティブエネルギーと電離度が一定になるように基本波とブースターパルスを調節すると、驚異的なことに、高調波収量は基本波長  $\lambda$  にほとんど依存しないことを見出している (Fig. 3)。また、そのメカニズムとして、ブースターパルスによって励起

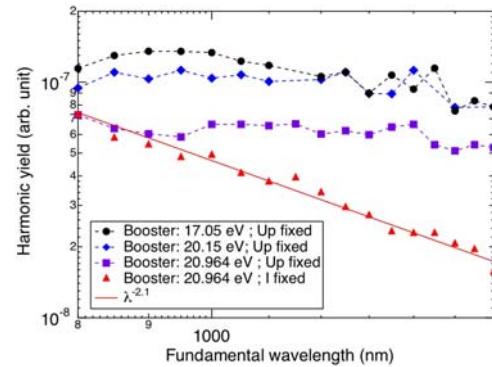


Fig. 3 いくつかの異なる光子エネルギーのブースターXUVパルスを同時照射し、 $U_p$  を一定に保った場合と、基本波強度を一定に保った場合 ( $\blacktriangle$ 、累乗則によるフィッティングを実線で示す) の波長依存性。

される状態の波動関数が当初より空間的に広がっているため、時間経過による波束の広がりが相対的に弱められることが一因であること、および、励起状態のイオン化ポテンシャルが小さいことも関係していることを突き止めた。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

- ① K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, and J. Burgdörfer, Fine-scale oscillations in the wavelength and intensity dependence of high-order harmonic generation: Connection with channel closings, *Phys. Rev. A* 79, 033411 (2009). 査読有り
- ② E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, Coherent water window x-ray by phase-matched high-order harmonic generation in neutral media, *Phys. Rev. Lett.* 101, 253901 (2008). 査読有り
- ③ A. A. Eilanlou, Y. Nabekawa, K. L. Ishikawa, H. Takahashi, and K. Midorikawa, Direct amplification of terawatt sub-10-fs pulses in a CPA system of Ti:sapphire laser, *Opt. Express* 16,

13431-13438 (2008). 査読有り

④ K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson, and J. Burgdörfer, Wavelength dependence of high-harmonic generation from ultrashort pulses, *J. Mod. Opt.* 55, 2617-2630 (2008). 査読有り

⑤ 石川 顕一「アト秒現象の理論」レーザー研究 36, 25-30 (2008) 査読有り

⑥ K. Schiessl, K. L. Ishikawa, E. Persson, and J. Burgdörfer, Quantum path interference in the wavelength dependence of high-harmonic generation, *Phys. Rev. Lett.* 99, 253903 (2007). 査読有り

[学会発表] (計 15 件)

① K. L. Ishikawa, Wavelength-dependence of high-harmonic generation, Ultra-Fast Dynamic Imaging of Matter II (UDIM09), Ischia Island, Naples, Italy, April 30-May 3, 2009.

② K. L. Ishikawa, Atoms in ultrashort intense laser and XUV pulses, 5th ADLIS (Advanced Light Sources) Workshop, Munich, Germany, March 2-4, 2009.

③ 石川 顕一, K. Schiessl, E. Persson, J. Burgdörfer, “高次高調波発生の波長依存性”、レーザー学会学術講演会第 29 回年次大会、徳島大学、2009. 1. 10-12

④ K. L. Ishikawa, Wavelength-dependence of high-harmonic generation, 38th Winter Colloquium on The Physics of Quantum Electronics, Snowbird, Utah, USA, January 6-10, 2008.

⑤ K. L. Ishikawa and E. J. Takahashi, Dramatic enhancement of high-order harmonic generation, 2nd Asian Workshop on Generation and Applications of Coherent XUV and X-ray Radiation (AWCX), Wako, Japan, June 1, 2007.

⑥ K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, and J. Burgdörfer, Quantum path interference in the wavelength dependence of high-harmonic generation, Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS) 2008, JFF5, San Jose, USA, May 4-9, 2008.

⑦ A. A. Eilanlou, Y. Nabekawa, K. L. Ishikawa, H. Takahashi, and K. Midorikawa, Direct amplification of 12 fs pulses in a terawatt class CPA laser system, Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS) 2008, JThB4, San Jose, USA, May 4-9, 2008.

⑧ K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Single attosecond pulse

generation using a seed harmonic pulse train, European Conference on Lasers and Electro-Optics and the International Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-IQEC) 2007, CG3-5-TUE, Munich, Germany, June 17-22, 2007.

⑨ K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Single attosecond pulse generation using a seed harmonic pulse train, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2007, JTuD3, Baltimore, USA, May 6-11, 2007.

⑩ アマニイランル、鍋川康夫、石川 顕一、高橋浩之、緑川克美、“テラワット級サブ 10 fs レーザーシステムの開発 (III)” 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会、日本大学理工学部船橋キャンパス、2008. 3. 27-30

⑪ 石川 顕一、K. Schiessl, E. Persson, J. Burgdörfer, “高次高調波発生の波長依存性 (2)” 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会、日本大学理工学部船橋キャンパス、2008. 3. 27-30

⑫ 石川 顕一、K. Schiessl, E. Persson, J. Burgdörfer, “高次高調波発生の波長・強度依存性” 日本物理学会第 63 回年次大会、近畿大学本部キャンパス、2008. 3. 22-26

⑬ 石川 顕一、Fabien Quéré, “イオン化閾値近傍での FROG-CRAB” レーザー学会学術講演会第 28 回年次大会、名古屋国際会議場、2008. 1. 30-2. 1

⑭ アマニイランル、鍋川康夫、石川 顕一、高橋浩之、緑川克美 “テラワット級サブ 10 fs レーザーシステムの開発 (II)” 2007 秋季第 68 回応用物理学学会学術講演会、北海道工業大学、2007. 9. 4-8

⑮ 石川 顕一、高橋佑也、“高次高調波発生の波長依存性” 2007 秋季第 68 回応用物理学学会学術講演会、北海道工業大学、2007. 9. 4-8

[その他]

ホームページ等

<http://ishiken.free.fr>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

石川 顕一 (ISHIKAWA KENICHI)

独立行政法人理化学研究所・臓器全身スケール研究開発チーム・上級研究員

研究者番号：70344025