

平成23年 5 月 10 日現在

機関番号： 82401
研究種目： 基盤研究(A)
研究期間： 2008～2010
課題番号： 20246023
研究課題名(和文) 原子・分子のアト秒ダイナミクスの研究
研究課題名(英文) Attosecond dynamics of atoms and molecules

研究代表者

緑川 克美 (MIDORIKAWA KATSUMI)
独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー物理工学研究室・主任研究員
研究者番号： 40166070

研究成果の概要(和文)：

本研究では、高強度の単一アト秒パルス発生を目的として、5fs でテラワット級の高強度を有するレーザー光源を実現するとともに、従来のマルチサイクルレーザーを用いて単一アト秒パルスを得る新手法を提案し、その有効性を実証した。また、それらの光源開発と並行して、高次高調波の超広帯域性を利用したアト秒非線形フーリエ分光法や混合ガスからの高次高調波を用いて原子・分子におけるアト秒領域の超高速ダイナミクスを観測するヘテロダイン干渉法を開拓した。

研究成果の概要(英文)：

For generating a single attosecond pulse, we have proposed and demonstrated two-color multicycle laser field synthesis and also developed 5fs-Terawatt class Ti:sapphire laser system. In parallel with those works on the light sources, we have explore the use of attosecond pulse train and high harmonic generation to investigate attosecond dynamics in atoms and molecules.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	11,500,000	3,450,000	14,950,000
2009年度	10,500,000	3,150,000	13,650,000
2010年度	12,000,000	3,600,000	15,600,000
総計	34,000,000	10,200,000	44,200,000

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：

- ① 高性能レーザー ② 量子エレクトロニクス ③ 非線形光学 ④ アト秒パルス
⑤ 原子・分子

1. 研究開始当初の背景

高次高調波は、現時点では、極端紫外から軟X線(以下XUV)領域において非線形光学現象を引き起こすことができるような強力な

アト秒パルスを発生可能な唯一の光源であるばかりでなく、高次高調波の発生自体が原子・分子内で起こるアト秒領域の超高速現象の観測を可能とする非常にユニークな物理現象でもある。

従来の超高速分光は、多かれ少なかれ非線形光学過程を利用しているものがほとんどであり、非線形光学を駆使した手法が時間領域の新しい分光法を開拓してきたといっても過言ではない。アト秒領域においても同様の事が期待される。しかし、波長が短くなるとともに非線形な相互作用の断面積は急激に減少するため、最近の XUV 光源の進歩をもってしても現状では、ようやく 2 光子過程が観測される程度である。しかし、これは非常に大きな進歩である。レーザーの発明後、間もなく 1961 年に第二高調波の発生と 2 光子吸収の観測に端を発して、非線形光学という当時では全く新しい研究分野が急速に開拓されたことは周知の通りである。その結果、レーザー光の応用分野が基礎科学から産業応用にまで飛躍的に拡大したことは事実である。また、非線形光学自体が、それまで考えられていたよりも遥かに多様な物理現象を含んでいることも明らかになった。

一方、高次高調波の発生は、それ自体が基本波レーザーの 1 サイクル内で起こる超高速現象であり、この時、光電場中で振動する電子波束はアト秒の精度で親原子あるいは分子イオンと相互作用し、高調波スペクトルには瞬間的な原子・分子の量子状態が反映される。逆に言えば、高調波の発生自体を通して、発生媒質である原子・分子の超高速な量子状態の変化をアト秒精度で観測することが可能である。

2. 研究の目的

本研究では、これまでの研究成果をさらに発展させ、我々の開発した高次高調波光源を用いて極端紫外から軟 X 線領域における原子および分子の非線形相互作用とアト秒ダイナミクスに関する研究を推進し、アト秒非線形光学とも呼ばれる未踏の光科学領域を開拓する。具体的には、i) 高強度の単一アト秒パルスを生ずるための励起光源のおよび 2 波長励起の開発と ii) アト秒パルス列および混合ガス等の原子・分子のアト秒ダイナミクス解明のための新手法の開拓を行う。

3. 研究の方法

1) 5mJ, 5fs CEP (搬送波位相) 安定化レーザーの開発

中空ファイバーパルス圧縮は高強度数サイクルパルスを生ずる有効な手段として広く利用されており、容易に 5 fs 程度の超短パルスが得られるものの、そのエネルギーは 1 mJ 程度が限界であった。我々は、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つくり、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広帯域化のみを効果的に引き起こすことを可能とした。また、これらの開発と並

行して、フィードバック制御や振動対策等を施すことによりチタンサファイアレーザーシステムの搬送波包絡線位相 (CEP) の安定化を行った。

2) 2 波長励起による単一アト秒パルスの発生

高次高調波はアト秒領域の光パルスを得る手法として注目を集めているが、未だその発生・計測のハードルは高い。特に非線形光学研究等の高い光子場強度を必要とする研究に単一アト秒パルスを応用するには、アト秒パルス自身の高出力化が必要となるが、励起レーザーに対して高度な技術力が要求されるため高出力化研究はほとんど進んでいない。そこで本研究では、赤外波長域のレーザーパルスを用いて容易に単一アト秒パルスを生ずさせ、且つ高出力化を可能とする新規手法の開発を行った。

単一アト秒パルスを得るには、高調波発生に関与する電場のサイクル数制限する (超短パルス化を行う) 必要がある。そこで本手法では、パルス幅 30 fs、波長 0.8 μm の基本波レーザー光に対して弱い長波長の赤外レーザー光 (1.6 - 1.2 μm) を合成することでパルスのピーク近傍で 5fs のパルスと等価な電場を生ずさせることにより、従来のマルチサイクルレーザーを用いて単一アト秒パルスを実現する。

3) アト秒非線形フーリエ分光法

高次高調波からのアト秒パルスによる時間分解計測に関する研究が注目される一方で、そのもう一つの特徴であるスペクトルの超広帯域性に関しては利用法がほとんど開拓されていない。本研究では、このスペクトルの超広帯域性に注目して XUV 領域の非線形フーリエ分光法を開発した。実験は、アト秒パルス列を分子に照射して起こる 2 光子二重電離により解離生成したイオン信号を用いたフリンジ分解自己計測法をベースにしている。実験では、Xe ガスを媒質として発生した高次高調波ビームを分割された Si 基板を介して空間的に 2 分割し、片方のビームに時間遅延をつけた後、SiC 凹面鏡でターゲット分子に照射する。そして、生成されたイオンおよび解離フラグメントの時間変化を、時間遅延を変化させながら測定する。はじめに、CO₂ 分子と飛行時間型イオンエネルギー検出器を用いて、その原理実証を行った後、より詳細な分子ダイナミクスの解明のため 2 次元のイオン運動量計測が可能な VMI (Velocity Map Imaging) 検出器を新たに開発し、D₂ 分子の解離ダイナミクスの解明を行った。

4) 混合ガスからの高次高調波によるアト秒ダイナミクスの観測

高次高調波はアト秒パルスの光源という地位からさらにもう一步発展し、原子や分子の構造やそのダイナミクスをアト秒の精度で直接的に観測する手法としての地位を得つつある。しかし、従来の研究においては実験的に観測される高調波のスペクトル強度の情報のみを議論しており、もう一つの重要な情報であるスペクトル位相については測

定されておらず仮定が必要であった。そこで我々は高次高調波発生において混合ガスを用いることにより、発生する高調波のスペクトルの干渉を利用して高調波の位相が測定できることを提案し、そこから電子波束の運動をアト秒精度で計測できることが実証した。本研究では、この手法を分子系に適用し、D2およびCO₂分子の振動ダイナミクスや構造を計測することに成功した。

実験では、フェムト秒チタンサファイアレーザーからの基本波パルス混合ガセル中に集光し、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 CCD カメラを用いて観測している。ターゲットにガセルを用いることで精密に媒質の状態を制御できることで実験結果を定量的に解析することを可能なる。

4. 研究成果

1) 5mJ, 5fs CEP 安定化レーザーの開発

中空ファイバー中での自己位相変調によるスペクトルの広帯域化の際に問題となるのが、媒質のイオン化である。我々は当初 Ne を媒質としたの実験において、5.4 fs、2.7 mJ の高強度超短パルスの発生を実証した。この時、さらなる高強度化を制限する要因はファイバー内で生じるイオン化であり、Ne では大旨 2×10^{14} W/cm² がその強度閾値であった。そこで、Ne に代わってイオン化ポテンシャルの高い He を用いて、さらなる高強度化を進めた。その結果、Ti:S レーザーシステムから発生した 25 fs、9.5 mJ の出力パルスを圧力勾配中空ファイバーに入射してスペクトルを広げた後、分散補償鏡を用いて 5.0 fs、5.0 mJ のパルスに圧縮することに成功した。

一方、このような高強度を有するレーザーシステム (5.0 fs, 5.0 mJ, 1 kHz) においては装置が大型化するため光学素子の振動が CEP の安定性に深刻な影響を与えるという問題があった。我々は、レーザーシステムにおける振動の制御を徹底するとともに、2 つのいわゆる f -to- $2f$ 干渉計を用いた active なフィードバック制御を行い、テラワット級の数サイクルレーザーパルスの CEP の安定化に成功した。CEP の揺らぎは 250 mrad 以下に抑えることが出来た。次に、このパルスを高次高調波発生用真空チェンバーに導き、アルゴンガス (60 Torr) を非線形媒質として連続スペクトルを得られる CEP の値が存在すること、離散スペクトルの位置が CEP に依存することを実験的に確かめた。そして非線形媒質としてネオンガスを用い、波長 13 nm 近傍における高次高調波発生位相整合条件と吸収限界条件が同時に満たされる実験条件を見だし、単一アト秒パルスの発生を示す連続スペクトルに発生に成功した。

2) 2 波長励起による単一アト秒パルスの発

生

まずはじめにモデル計算より、1400 - 1300 nm 程度の IR 波長を合成することで高調波の複数バーストポイントを抑制し、カットオフ近傍で効率よく単一アト秒パルスが得られる条件を見いだす事に成功した。計算機モデルの指針に従い、実験では 30 fs の基本波 (800 nm) レーザーとパラメトリック増幅器により発生した 40 fs の赤外レーザー光 (1300 nm) を時間・空間的に合成した 2 色パルスを用いて、カットオフ近傍で高調波スペクトルの広帯域化を試みた。二色レーザーパルスを集光強度は 1.2×10^{14} W/cm²、強度比 10 % で Ar ガスに集光した場合、カットオフがより短波長側へシフトするとともに、その近傍では連続的なスペクトルが得られた。それに対し、低次成分において不連続構造が得られたが、それらは基本波レーザー光と赤外レーザー光の差周波および和周波にもとづき高調波であることが計算結果との比較から明らかになった。実験では CEP が固定されていないため、ショット毎にスペクトル構造が揺らぐが、高い確率でカットオフ近傍において連続スペクトルを得ることに成功している。本方式では 30 fs 程度の 800 nm 光をメインのポンプ光として用いていることから、レーザーエネルギーの高出力化が容易であり、結果、高強度の連続高調波スペクトル (単一アト秒パルス) を得ることが可能であると結論された。

3) アト秒非線形フーリエ分光法

測定されたイオンの時間変化は、CO₂²⁺イオンを除いて基本波の半周期にあたる約 1.33fs ごとに顕著なピークが現われており、アト秒パルス列を形成する高調波の非線形吸収によりこれらのイオンが生成されていることが予測された。これら時間領域で得られたデータを説明するために、それをフーリエ変換し周波数領域のスペクトルを得た。その結果から、CO₂²⁺イオンのみに基本波の大きな信号が現われており、その生成には基本波が大きく関与していることがわかった。CO₂²⁺イオンの生成エネルギーは 38.88 eV であり、分光器で観測された最高次の 21 次高調波でも 1 光子では到達できない。したがって、その生成には 2 光子以上の関与が考えられる。まず 13 次に大きなピークが現われるのは、38.8 から 41.3 eV の間に存在する準安定状態のためであり、そのエネルギーは 13 次光の 2 光子に対応する。この場合、11 次と 15 次の組み合わせでも到達エネルギーは同じであるため 11 次と 15 次の組み合わせによる吸収を示す小さなピークが現われている。一方、基本波の関与は (11+13+1) 次あるいは (13+15-1) 次のような 3 光子過程の寄与を考えると、時間領域の波形において半周期ごとのピークが顕著には現われないことについても説明がつく。これに対して 2 次および 4 次という高調波間の差周波が顕著に現われた C⁺、O⁺、および CO⁺イオンは、主に高調波の 2 光子過程により生成されているのがわかる。例えば、C⁺イオンの場合は 9+11 次、9+13 次、および 11+13 次の組み合わせが考えられる。このように高強度

のアト秒パルス列を利用することにより広帯域にわたって、分子の非線形吸収による解離イオン化過程を解明する事が可能である事が初めて示された。ここでは基本波として波長 800nm のチタンサファイアレーザーを用いているので高調波のエネルギー間隔は 3.1eV と大きい、例えばパラメトリック発振/増幅器を用いて 2.4 μm 光に変換すれば高調波のエネルギー間隔は約 1eV となり、より詳細な機構の解明が可能になる。このような非線形吸収による解離過程が解明されれば、逆に照射する高調波の次数等を制御することにより特定の解離チャンネルのみを選択的に励起し、解離生成物の割合を制御することも可能になるものと考えられる。

さらに、VMI検出器を導入しイオンの速度マップ画像はイオン化/解離パスの違いに応じて分解することにより、それぞれのパスでのアト秒パルスと D_2 分子との相互作用の特徴を明らかにすることに成功した。

まず、 D_2 がアト秒パルスを吸収して生じた D^+ イオンの速度マップ画像から D^+ イオンの運動量分布が再構築される。運動量分布の中に、三日月状の構造が1.4eVの等エネルギー円上にはっきりと現れた。また、この円の内外にも同様な構造を観測されえた。2つのアト秒パルス列のレプリカ間の遅延を掃引しながら、このイオンの速度マップ画像を記録していくと、各画像のピクセル毎にアト秒パルス列の自己相関信号が得られる。これらの自己相関信号をフーリエ変換する事によって得られた周波数成分は、速度成分に分解されたイオン毎のアト秒パルスに対する周波数応答を反映している。従って、フィルターによって必要とする周波数成分を弁別すれば、特定の周波数応答成分を持った速度分布を抽出できる訳である。この手法によって特定の周波数成分に分解された運動量分布を得た。それらはそれぞれ、基本波レーザー、3倍波、5倍波の光学周波数に対応したものである。

これら分解した運動量分布と核間距離に対する D_2 のポテンシャル曲線の情報を基に、 D^+ イオンの生成過程を明らかにする事ができた。即ち D_2 はアト秒パルスに含まれている高次高調波成分のうち、主に11次高調波を1光子吸収する事によってイオン化し、 D_2^+ イオンの電子基底状態が生成されることが明らかになった。この電子基底状態は、基本波、3倍波、5倍波の光子エネルギーが解離励起状態との差に一致する核間距離に於いて、共鳴的にこれらの光子の1光子吸収で励起され、解離に到るのである。アト秒非線形フーリエ分光法によりこの様に明確なイオン化/解離過程の分離を初めて可能になった。

4) 混合ガスからの高次高調波によるアト秒ダイナミクスの観測

高次高調波発生の原理を説明する3ステップ

モデルによれば、高調波の位相は電子の軌道運動時間で決まるため、分子を媒質とした場合、それがフェムト秒からアト秒の時間領域にあれば分子の振動や回転などの内部運動が高調波の発生に影響を与えると考えられる。そこで、 H_2 と D_2 あるいは CO_2 とKr等イオン化ポテンシャルのほぼ等しい様々な組み合わせの混合ガスを用いて、発生する高調波の干渉計測から分子の内部運動に関する情報を引き出すことを試みた。

H_2 や D_2 のような非常に軽い元素からなる分子では、振動核波束は高調波発生の1サイクル内で大きく変化することが報告されている。 D_2 分子において高調波発生の第一ステップであるトンネルイオン化がおこると、それをスタートとして一価イオンの平衡核間距離に向かって振動運動が始まる。この分子内原子の振動運動を混合ガスによるヘテロダイン干渉法を用いて観測した。

実験では、 H_2 と D_2 を封入したガスセルが用いられている。10 Torrの H_2 と D_2 ガスおよび H_2 - D_2 混合ガスにより発生した高次高調波のスペクトルは、 D_2 からの高調波の強度が H_2 ガスに比べて大きいこと示した。 H_2 分子と D_2 分子のイオン化ポテンシャルはほぼ同じであることを考慮すると、その差は原子核の慣性質量に起因する原子核のダイナミクス、すなわち、振動核波束の動きが単分子応答と伝搬効果に影響を与えていると考えられる。ガス圧を変える等で伝搬条件を変えて測定することにより、従来同じと思われていた D_2 と H_2 ではその伝搬効果が異なることが明らかになった。そこで、単分子応答について議論するために、この伝搬効果に補正をくわえ、単分子応答による位相差を求め、その次数依存性を得た。その結果と先に測定された電子の軌道運動時間を用いて、分子内の原子核のダイナミクスが100アト秒の精度で得ることに成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計12件)

1. P. Lan, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, "Optimization of infrared two-color multicycle field synthesis for intense-isolated-attosecond-pulse generation," Phys. Rev. A 82, 053413 (2010). [査読有]
2. Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino, S. Saugout, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Nonlinear Fourier-transform spectroscopy of D_2 using high-order harmonic radiation," Phys. Rev. A 82, 013421 (2010). [査読有]
3. P. Lan, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, "Wavelength scaling of efficient high-order harmonic generation by two-color infrared laser fields," Phys. Rev. A 81, 061802(R) (2010). [査読有]
4. E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Mücke, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Infrared two-color multicycle laser field synthesis for generating intense attosecond pulse," Phys. Rev. Lett. 104, 233901 (2010). [査読有]

5. S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa, "Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulse at 1 kHz using hollow fiber pulse compression," *Opt. Lett.* 35, 1887 (2010). [査読有]
6. M. Hatayama, H. Takenaka, E. M. Gullikson, A. Suda, and K. Midorikawa, "High-transmittance free-standing aluminum extreme ultraviolet filter," *Jpn. J. Appl. Phys.* 48, 122202 (2009). [査読有]
7. M. Hatayama, H. Takenaka, E. M. Gullikson, A. Suda, and K. Midorikawa, "Broadband extreme ultraviolet multilayer mirror for supercontinuum light at a photon energy of 35-65 eV," *Appl. Opt.* 48, pp. 5464-5466 (2009). [査読有]
8. P. Antoine, E. Fomouou, B. Piraux, T. Shimizu, H. Hasegawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Two-photon double ionization of helium: An experimental lower bound of the total cross section," *Phys. Rev. A* 78, 023415 (2008). [査読有]
9. S. Bohman, A. Suda, M. Kaku, M. Nurhuda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa, "Generation of 5 fs, 0.5 TW pulses focusable to relativistic intensities at 1 kHz," *Opt. Exp.* 16, pp. 16684-16689 (2008). [査読有]
10. T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Observing the attosecond dynamics of nuclear wavepackets in molecules by using high harmonic generation in mixed gases," *New J. Phys.* 10, 025036 (2008). [査読有]
11. T. Okino, K. Yamanouchi, T. Shimizu, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Attosecond nonlinear Fourier transformation spectroscopy of CO₂ in extreme ultraviolet wavelength region," *J. Chem. Phys.* 129, 161103 (2008). [査読有]
12. T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Observing molecular structure by using high-order harmonic generation in mixed gases," *Phys. Rev. A* 77, 041402(R) (2008). [査読有]

[学会発表] (計 11 件)

1. K. Midorikawa, "Recent progress on intense high harmonic generation and its application at RIKEN," International Symposium on Chirped Pulse Amplification, Quebec, Canada, Nov. 2010.
2. K. Midorikawa, "High harmonic generation by high energy OPA source", 17th International Conference on Ultrafast Phenomena, Snowmass, CO, USA, July 2010.
3. K. Midorikawa, "Nonlinear Fourier transform spectroscopy using an attosecond pulse train", Gordon Research Conference on Multiphoton

Processes, Tilton, NH, USA, June 2010.

4. K. Midorikawa, "Intense high harmonics generation and its application at RIKEN", 12th Int. Conf. on X-Ray Lasers, Gwangju, Korea, June 2010.
5. E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Infrared two-color multicycle laser field synthesis for intense attosecond pulse generation", The 7th Asian-Pacific laser symposium, Jeju Island, Korea, May 2010.
6. K. Midorikawa, "Generation of intense attosecond pulses and its application to attosecond nonlinear optics", 4th Asia Summer School and Symposium on Laser-Plasma Acceleration and Radiation, Hsinchu, Taiwan, Aug. 2009.
7. K. Midorikawa, "Generation of sub-keV harmonics and isolated attosecond pulses by an IR-OPA source", 2nd Int. Conf. on Attosecond Physics, Manhattan, Kansas USA, July 2009.
8. K. Midorikawa, "Recent progress on XUV and attosecond science in RIKEN", 2nd International Conference on Ultraintense Laser Interaction Science, Frascati, Italy, May 2009.
9. K. Midorikawa, "Recent progress on XUV and attosecond science in RIKEN", International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science, Kyoto, Japan, Nov. 2008.
10. A. Suda and K. Midorikawa, "5fs, TW pulse generation with a pressure-gradient hollow fiber", 2nd Int. Symposium on Ultrafast Intense Laser Filamentation, Paris, France, Sept. 2008.
11. T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "High-order harmonic generation in mixed gases", The 17th International Laser Physics Workshop, Trondheim, Norway, June-July, 2008.

[図書] (計 1 件)

1. K. Midorikawa, "Nonlinear interaction of intense xuv fields with atoms and molecules", Springer Series in chemical physics 94, Lectures on Ultrafast Intense Laser Science I, Springer, (2010).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

緑川 克美 (MIDORIKAWA KATSUMI)
独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー物理工学研究室・主任研究員
40166070

(2) 連携研究者

須田 亮 (SUDA AKIRA)
独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー物理工学研究室・副主任研究員
80250108

鍋川 康夫 (NABEKAWA YASUO)

独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー物
理工学研究室・専任研究員
90344051

高橋 栄治 (TAKAHASI EIJI)
独立行政法人理化学研究所・緑川レーザー物
理工学研究室・研究員
80360577