

平成 22 年 11 月 9 日現在

研究種目：若手研究(B)
 研究期間：2008～2009
 課題番号：20740235
 研究課題名（和文）分子操作技術を用いたアト秒物理学の探求
 研究課題名（英文） Quest for attosecond physics using molecular manipulation techniques

研究代表者
 金井 恒人 (Kanai Tsuneto)
 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・特別研究員
 研究者番号：00442947

研究成果の概要（和文）：

分子配向技術や混合ガスを用いた高次高調波発生の制御法を発明・応用し、アト秒パルスを計測・制御できることを実証した。また、高出力レーザーの振動制御や f -to- $2f$ 干渉計を用いたフィードバック制御を行い、テラワット級数サイクルパルスの搬送波包絡線位相を安定化した。この制御されたパルスや高次高調波発生の発生機構を用いて、いくつかの原子や分子中における電子、原子核のアト秒ダイナミクスを観測することに成功した。

研究成果の概要（英文）：

By using molecular alignment technology and inventing the method of mixed gases, I controlled the nonlinear media for high harmonic generation and demonstrated measuring and controlling the attosecond pulses. Furthermore, I stabilized the carrier envelope phase of our TW-class few-cycle laser by controlling the vibration and applying two feedback loops with f -to- $2f$ interferometers. I succeeded in observing the attosecond dynamics of electrons and nuclei in atoms and molecules with this controlled pulses and/or generation mechanism of high harmonics.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005 年度	0	0	0
2006 年度	0	0	0
2007 年度	0	0	0
2008 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2009 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学 ・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：

1. アト秒物理学, 2. 超高速科学, 3. 高次高調波,
4. 原子・分子・光物理学, 5. 分子配向技術, 6. コヒーレントコントロール,
7. 非線形量子光学, 8. 搬送波包絡線位相

1. 研究開始当初の背景

申請者が研究を開始した当初は、カナダの National Research Council(NRC)の P. Corkum

達のグループ、ドイツの Max-Planck 研究所の F. Krausz 達のグループ、イギリスの Imperial College London (ICL)の J. Marangos 達のグループなどが、

物性研究の専門家を集め、光源の応用可能性を徹底的に研究することでアト秒物理学をリードしていた。国際的な競争に勝つためには、光源技術同様その物性物理学への応用を念頭に置きながら戦略的に研究していく必要があると考えられる。

申請者は、物性物理学、理論物理学、アト秒物理学を広く研究してきた。他分野で発展してきた手法、方法論を導入するとしばしば新しい結果が得られる。実際、申請者の論文 T. Kanai, Nature **435**, 470 (2005)においては、理論物理学でよく知られた経路積分法を分子中における高次高調波の研究に導入し、国内外で高い評価を得た。また現所属において、物性研究への応用を念頭に置き混合気体を用いた新しい高次高調波発生の制御法の開発・実証に既に成功している。また、電子-格子結合が本質的である非平衡強相関系の素過程といえる、水素分子、重水素分子中の電子と原子核の相関ダイナミクスを 100 アト秒の精度で観測することにも成功し、さらに、非共鳴レーザー光による分子操作技術を用い、近赤外領域の強光子場中の振る舞いを明らかにすることに成功した。申請者の広い研究背景を生かしアト秒物理学と物性物理学の融合に向けた第一歩とするべく本研究を開始した。

2. 研究の目的

高次高調波は極端紫外・軟 X 線領域における最高の時間分解能、及び最高の輝度をもつアト秒パルス光源として確立した地位を得た。一方、物理学の二大分野の一つである物性物理学においては、従来の静的な取り扱いを超え、時間分解の手法を取り入れた研究が盛んに行われ始めている。しかし、方法論として用いられているレーザー光と放射光を同期させる手法では原理的に限界があることが分かっている。まず、物性物理学の研究に応用出来るように高次高調波の制御性を高め、高次高調波のみが **intrinsic** に持つ特長（完全な時間・空間コヒーレンス、アト秒の時間分解能、最高輝度）を生かし物性物理研究の広大な未踏領域への第一歩を踏み出す。本計画により、アト秒科学、物性物理学の潮流を世界に先駆け一つに融合することを目的とする。

3. 研究の方法

アト秒科学と物性物理学の融合を目指し、本研究は以下の 2 ステップに分けて行う。

(1) 高次高調波パルスの制御

物性物理学に応用するために、高次高調波パルスの高度化を行う。具体的には、①孤立したアト秒パルス発生、②アト秒パルスの高繰り返し化、③スペクトルの制御、を行う。そのために、レーザーシステムのさらなる高度化や、高次高調波発生の非線形媒質に混合

気体を用いる等の新手法を導入し、物性物理学を探索するのに十分な汎用性をもつ光源とする。

(2) 高次高調波発生を用いた物性研究

(1) の光源の研究を基礎とし高次高調波発生を用いた物性物理への応用の可能性を検討する。本研究計画では、物性物理における最も基礎的な過程である孤立原子・分子の光学応答を明らかにし、集団としての物性（凝縮系の物理学）を理解するための基礎とする。特に、レーザー光による分子配向技術を応用し、分子の向きを揃えた上で制御された高調波パルスを照射することにより、高調波と分子の相互作用を詳細に明らかにする。

4. 研究成果

(1) 混合気体中の高次高調波発生とアト秒物理学

私は高次高調波発生の非線形媒質に混合気体を初めて導入し、実験・理論の両面で系統的な研究を行った。混合ガス中の高次高調波発生中に必然的におこる干渉を観測することにより、高調波の位相を測定できることを実証し、原子分子のアト秒ダイナミクスが高調波の位相に自然な形で反映されることを実証した。

(1-1) 混合気体を用いた高調波位相の新しい測定法と電子のアト秒領域の運動時間の測定

高次高調波を用いてアト秒パルス発生が実現されたことは、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。従って、発生機構を応用すれば、核波束をアト秒の精度で撮影出来る。しかしながら現在までの研究においては、この手法の時間分解能（ ~ 100 as）を実証する電子波束の超高速運動の観測に成功した報告はなく、理論的に見積もられた運動時間を仮定しなければならなかった。混合ガス中の高次高調波発生において自然に現れる干渉現象を利用して高調波の位相を測定できることを実証した。次に、高調波の位相の物理的起源を考えることにより、電子波束がアト秒領域の運動をしていることを示した。

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（最大パルスエネルギー ~ 200 mJ, パルス幅 ~ 30 fs, 中心波長 ~ 800 nm）を集光鏡（ $f = 5000$ mm）により可変長定常ガスセル（セル長 $L = 1 \sim 140$ mm）中の He ガス、Ne ガス及び He と Ne の混合ガスに集光し高次高調波を発生させた。混合ガス全体に対する Ne ガスの組成比を変えながら、高次高調波スペクトルの変化を観測した。13.5 Torr の He ガス、1.5 Torr の Ne ガスからの高次高調波を重ね合わせることにより、29 次近傍における DI, 51 次近傍における constructive interference (CI) が起きていることが分かった。さらに、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 (Strong Field Approximation) 理論を組み合わせ、混合ガス中の高次高調波発生の解析的理論モデルを初めて構築した。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・分子のイオン化ポテンシャルの差 ΔI_p により表されることが明らかになった。従って、 ΔI_p が異なる原子・分子を用いることによって、フィルター等を用いずに高次高調波のスペクトル形状をコントロールできる。さらに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、高次高調波の位相および 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 と測定される。さらに本モデルにより、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。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された Ne ガスから発生する世界最高パルスエネルギーと同等程度まで増大させること、イオン化の抑制によるカットオフの増大を観測出来た。

(1-2) 混合気体中の高次高調波発生における分子の内部自由度のアト秒ダイナミクスの役割

上記の研究で混合気体中の高次高調波発生にはイオン化ポテンシャルの大きさに依存することが明らかになった。高調波の位相は電子の運動で決まるため、分子を媒質として用いた場合、高調波の位相には分子の振動や回転などの内部運動も影響を与えるはずである。従って、イオン化ポテンシャルのほぼ等しいガス（ここでは、 H_2 ガスと D_2 ガス、 CO_2 ガスと Kr ガス）を混合させ、高調波の干渉を観測すれば、分子の内部運動の正味の効果を引き出すことが出来る。

振動運動

H_2 ガスや D_2 ガス中の高次高調波発生に振動運動が現れることが理論的に予言されている。それらの分子において高調波発生の第 1 ステップであるイオン化過程が起これると、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ためである。 H_2 ガス（ガス圧 10.0 Torr）、 D_2 ガス（ガス圧 10.0 Torr）、 H_2 - D_2 ガス（ガス圧 10.0 Torr、混合比 1:1）において発生した高次高調波スペクトルを比較することにより、高調波の強度・位相の両面で分子振動を追跡できることを実証した。ここで、単分子応答と高調波の伝搬効果の効果を disentangle するため非線形媒質の精密制御が可能でガスセルを用い、 D_2 ガスと H_2 ガスにおける伝搬効果の補正を実験的に決定した。

回転運動

分子の内部運動の一つである回転運動が混合気体中の高次高調波発生に与える影響を検討した。混合気体中の分子を配向制御することで、高次高調波の位相・パルス波形を制御できることや媒質分子の構造の情報を得られることが明らかになった。(a)2.67 Torr の CO_2 ガス、(b)4.00 Torr の CO_2 と Kr の混合気体（混合比 2:1）において発生した高次高調

波スペクトルの遅延時間依存性を比較した。25 次から 33 次の高調波は(a)と(b)が相関していた。これは(a)の媒質は(b)の構成成分であることから直感的に理解できる。ところが、35-37 次高調波に対しては (a)と(b)は逆相関の関係にあった。これは、 CO_2 分子の配向状態の変化に従って、高調波の位相が劇的に変化し、Kr からの高調波と強めあう干渉をしている証拠に他ならない。逆に、媒質分子の配向状態を制御することにより、高調波のアトチャープが制御出来ることになる。さらにこの干渉の度合いから、各高調波間の相対位相を求めることができ、瞬間の CO_2 分子中の O 原子間の距離を測定することが出来るだけでなく、価電子軌道の波動関数を位相情報まで決めることが出来る。

(2) 高出力レーザーシステムの搬送波包絡線位相(CEP)の安定化と孤立アト秒パルスの発生

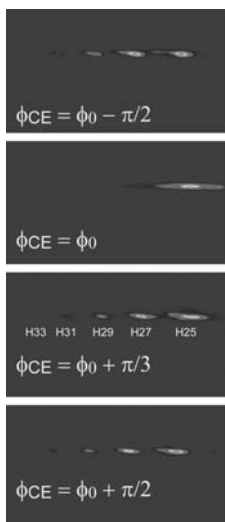


図1 CEP に依存した高調波スペクトル

孤立した高エネルギーアト秒パルスを安定して発生させるために、基本波として用いるレーザー光がその増幅過程において受ける搬送波包絡線位相(Carrier Envelope Phase, CEP)へのノイズを抑制・制御することが重要な課題である。私達のレーザーシステムの様にしてシード光に大きなチャープを導入して増幅する場合、パルスエネルギーを容易にスケールアップ出来る反面、光学素子の振動の影響を特に受けやすい。レーザーシステムにおける振動の制御と、2つの自己スペクトル干渉系(f -to- $2f$ 干渉計)を用いたフィードバック制御を行い、増幅光の CEP の安定化を行った。さらに、電場が2回しか振動しない、この極限的なパルスを用い、孤立したアト秒パルスの発生を示唆する高次高調波の連続スペクトルを得た。

まず、光学定盤上の振動と CEP の不連続性に相関があったため、まずレーザーシステム全体に3次元空気ばね式除振機構を搭載し、光学素子の振動を除いた。アナログフィードバック回路を用いてオシレータの出力の CEP を安定化し、増幅後の CEP を f - $2f$ 干渉計により観測したところ、CEP は連続的な時間発展をするようになった。CEP の時間発展をフーリエ変換したところ、主要な揺らぎ成分は数ヘルツの程度の振動成分であることがわかったため、フィードバック機構としてパソコンを用いたデジタル PID アルゴリズムを採用した。オフナー型ストレッチャーに用いられている回折格子をピエゾステージの上に載せ、システムの最終的な出力の CEP を観測しながら、回折格子の並進運動にデジタル PID アルゴリズムを用いてフィ

ードバック制御を行い、増幅光の CEP の安定化を行った。さらに、電場が2回しか振動しない、この極限的なパルスを用い、孤立したアト秒パルスの発生を示唆する高次高調波の連続スペクトルを得た。

ードバックすると、CEPの揺らぎを250 mrad以下に抑えることができた。我々が知る限り、本システム（システムの直接出力はパルス幅25 fs, パルスエネルギー13mJ, 繰返し1 kHz. 中空ファイバー圧縮後で5 fs, 5 mJ, 繰返し1 kHz）はCEPが制御されたチタンサファイアレーザーとして出力が最も高い。

図1に本レーザーシステムと圧力勾配型の中空ファイバー圧縮法を組み合わせて得た高強度数サイクルパルス（60 Torr）をガスセル中のアルゴンガス（60 Torr）に照射して得られた高次高調波スペクトルのCEP依存性を示す。連続スペクトルを得られるCEPの値が存在することと、離散スペクトルの位置がCEPに依存することがわかり、孤立した高エネルギーアト秒パルスの発生を制御出来たことがわかる。

(3) 高次高調波の非線形波長変換過程の観測

従来のアト秒物理学では、アト秒パルスをガスに集光し発生する光電子を観測している（光電子分光）。私は、類似の条件で発生する光子（非線形波長変換過程）の観測に成功した。

前節で開発した高出力チタンサファイアレーザーシステムからの出力を真空チェンバー中に配置した第一ガスセル中のキセノンガスに集光し高次高調波を発生させた。ここで、telescopeを用いて、システムを従来の半分程度にコンパクト化した。11次高調波から19次高調波までの出力は、真空紫外・軟X線用フォトダイオードを用いて計測したところ、3 mWであった。得られた高次高調波パルスと基本波のパルスを再び同軸に非線形媒質（ここでは窒素ガスとその参照ガスであるアルゴンガス）を満たした第二ガスセル中に集光し、発生する真空紫外・軟X線を斜入射分光器で分光し、X線CCDやフォスファースクリーンと組み合わせたMCPを用いて光子スペクトルを観測した。キセノンガスからの高次高調波と基本波を同時に照射した場合のみに新たな光子が発生することが観測された。この新しい光子のカットオフ位置等のスペクトル形状、光子運動量分布や参照ガス（アルゴンガス）でこの光子が観測されなかったこと、ガス圧依存性、ポンプ光強度依存性を実験的に観測し、この現象は高次高調波の非線形波長変換（4光波混合）と結論した。

本研究を応用すると特定の高調波の群速度や透過率を制御できることが期待されるほか、CEPを含む高調波と基本波の位相情報を取り出すことや、また、高調波と基本波間の遅延を変えることでCARS様の分光等が可能であると期待される。

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12件）

[1] (in Japanese) Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "High harmonic generation in mixed gases and its application to attosecond physics," *Kogaku*, 40, accepted. (査読有り)

[2] Tsuneto Kanai, Akira Suda, and Katsumi Midorikawa, "Observation of Nonlinear Wavelength Conversion Processes of High Order Harmonics," in Proceedings of The Conference on Lasers and Electro-Optics and The Quantum Electronics and Laser Science Conference International Conference on Low Temperature Physics, San Jose, 2010. (査読有り)

[3] Eiji J. Takahashi, Tsuneto Kanai, and Katsumi Midorikawa, "High-order harmonic generation by an ultrafast infrared pulse," *Appl. Phys. B* **100**, 29-41 (2010). (査読有り)

[4] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Selection Rules of the Field-Induced Recolliding Electron Spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.*, submitted. (査読有り)

[5] Samuel Bohman, Akira Suda, Tsuneto Kanai, Shigeru Yamaguchi, and Katsumi Midorikawa, "Generation of 5.0-fs, 5.0-mJ, 1-kHz pulses using hollow-fiber pulse compression," *Opt. Lett.* **35**, 1887 (2010). (査読有り)

[6] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Heterodyne Interferometry Using High-Order Harmonic Generation in Mixed Gases," *Progress in Ultrafast Intense Laser Science* **5**, 65 (2010). (査読有り)

[7] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Observing Attosecond Dynamics of Nuclear Wavepackets in Molecules by Using High Harmonic Generation in Mixed Gases," *New J. Phys.*, **10**, 025036 (2008). (査読有り)

[8] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Observing Molecular Structures by Using High Harmonic Generation in Mixed Gases," *Phys. Rev. A* **77**, 041402(R) (2008). (査読有り)

[9] Eiji J. Takahashi, Tsuneto Kanai, Kenichi L. Ishikawa, Yasuo Nabekawa, and Katsumi 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)

[10] Eiji J. Takahashi, Tsuneto Kanai, Kenichi L. Ishikawa, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "10 mJ class femtosecond optical parametric amplifier for generating soft x-ray harmonics," Appl. Phys. Lett. **93**, 041111 (2008). (査読有り)

[11] Shinichirou Minemoto, Tsuneto Kanai, and Hirofumi Sakai, "Alignment dependence of the structural deformation of CO₂ molecules in an intense femtosecond laser field," Phys. Rev. A **77**, 041401(R) (2008). (査読有り)

[12] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Heterodyne Interferometry Using High-Order Harmonic Generation in Mixed Gases and Its application to attosecond physics," The Society for Atomic Collision Research **5**, 3-10 (2008). (査読有り)

[学会発表] (計 16 件)

[国際会議]

[1] (invited) Tsuneto Kanai, Akira Suda, and Katsumi Midorikawa, "Nonlinear wavelength conversion of high order harmonics," International Conference on Coherent and Nonlinear Optics (ICONO 2010)/International Conference on Lasers, Applications, and Technologies (LAT 2010), Kazan, Russia, August 2010.

[2] Tsuneto Kanai, Akira Suda, and Katsumi Midorikawa, "Observation of Nonlinear Wavelength Conversion Processes of High Order Harmonics," San Jose, U.S.A., May 20, 2010.

[3] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Selection Rule for the Field-Induced Recolliding Electron Spectroscopy," Conference on Lasers and Electro-Optics / International Quantum Electronics Conference (CLEO/IQEC 2009), Baltimore, U.S.A., June 4, 2009.

[4] Tsuneto Kanai, Eiji J. Takahashi, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa, "Heterodyne Interferometry Using High Harmonic Generation in Mixed Gases," Conference on Lasers and Electro Optics 2008 (CLEO 2008), San Jose, May 9, 2008.

[国内会議]

[5] 金井恒人, 上場康弘, ボーマンサムエル, 金井拓也, 山口滋, 鍋川康夫, 須田 亮, 緑

川 克美, 「搬送波包絡線位相が安定化されたマルチミリジュール・数サイクルパルスを用いた高次高調波発生」第 71 回応用物理学会学術講演会(長崎市: 2010 年 9 月) .

[6] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「光放出過程と光吸収過程の双対性と高次高調波の周波数上方変換」第 57 回応用物理学関係連合講演会(平塚市: 2010 年 3 月) .

[7] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「光子スペクトルの観測による高次高調波と物質の非線形相互作用の研究」レーザー学会学術講演会第 30 回年次大会(豊中市: 2010 年 2 月) .

[8] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「光子の観測による高次高調波と物質の相互作用の研究」先端光科学研究領域「エクストリームフォトニクス研究、テラヘルツ光研究」第 I 期研究成果報告会—シンポジウム—(仙台市: 2009 年 12 月) .

[9] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「光子の観測による高次高調波と物質の相互作用の研究」第 10 回エクストリーム・フォトニクス研究会「凝縮系における量子の世界」,(蒲郡市: 2009 年 11 月) .

[10] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「高繰り返し高出力高次高調波発生システムの開発とその応用」第 70 回応用物理学会学術講演会(富山市: 2009 年 9 月) .

[11] 金井 恒人, 須田 亮, 緑川 克美, 「疑似位相整合を用いた高次高調波発生の制御」理研シンポジウム「エクストリームフォトニクスシンポジウム: 光で繋ぐ理研の基礎科学」(和光市: 2009 年 5 月) .

[12] 金井 恒人, 高橋 栄治, 鍋川 康夫, 緑川 克美, 「非線形媒質の巨視的対称性に注目した高次高調波発生の制御」, 第 56 回応用物理学関係連合講演会(つくば市: 2009 年 3 月) .

[13] 金井 恒人, 高橋 栄治, 鍋川 康夫, 緑川 克美, 「混合気体を用いた高次高調波発生とその応用」, レーザー学会学術講演会第 29 回年次大会(徳島市: 2009 年 1 月) .

[14] 金井 恒人, 高橋 栄治, 鍋川 康夫, 緑川 克美, 「多原子分子における高次高調波発生と電場誘起再衝突電子分光法の選択則」, 第 69 回応用物理学会学術講演会(春日井市: 2008 年 9 月) .

[15] (招待講演) 金井 恒人, 高橋 栄治, 鍋川 康夫, 緑川 克美, 「高次高調波を用いた原子分子のアト秒ダイナミクスの研究」, 原子衝突研究協会第 33 回研究会(札幌市: 2008 年 8 月) .

[16] 金井 恒人, 高橋 栄治, 鍋川 康夫, 緑川 克

美, 「媒質と相互作用における対称性を利用した高次高調波発生の制御」, 第 55 回応用物理学関係連合講演会 (船橋市: 2008 年 3 月) .

6. 研究組織

(1) 研究代表者

金井 恒人 (Kanai Tsuneto)

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・特別研究員

研究者番号: 00442947

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし