

極端紫外アト秒パルス発生と非線形光学

関川 太郎 <東京大学物性研究所 277-8581 柏市柏の葉 5-1-5 e-mail: sekikawa@issp.u-tokyo.ac.jp>

渡部俊太郎 <東京大学物性研究所 277-8581 柏市柏の葉 5-1-5 e-mail: watanabe@issp.u-tokyo.ac.jp>

光パルスの時間幅はフェムト (10^{-15}) 秒領域からアト (10^{-18}) 秒領域に入った。アト秒パルスは極端紫外の光で、レーザー光と原子の非線形相互作用により発生する高次高調波発生により実現されている。アト秒パルスは高調波であるため元のレーザーのコヒーレンスを受け継いでおり、期待される応用として、時間分解分光のみならず極端紫外・軟X線領域での非線形分光も挙げられる。筆者らは、高次高調波パルスを用いて極端紫外域での非線形現象の観測に成功し、その非線形過程を用いてアト秒パルスのパルス幅計測を行った。本稿ではその内容とともに、最近のアト秒パルス発生に関する研究とその応用について紹介する。

1. はじめに

1999年に「フェムト秒分光学を用いた化学反応の遷移状態の研究」でZewailがノーベル化学賞を受賞したことは記憶に新しい。フェムト秒レーザーを使って化学反応の進行過程を捉えたことに対して与えられた。フラッシュを使った瞬間写真の撮影は19世紀半ばに最初に行われ、人類は原子の動きを実時間で観測するまでに至った。時間分解能はフラッシュの時間幅によって決まる。時間分解能はレーザーの発明により飛躍的に向上し、向上の過程はモード同期・パルス圧縮・非同軸パラメトリック増幅などの超短パルス発生技術の進歩と軌を一にしている。^{1,2)} 特に、ここ10年間、チタンサファイアレーザーの開発と位相制御技術の発展には目覚ましいものがあり、現在、可視域での最短パルス幅は3フェムト秒を切る時間幅である。³⁾ この時間分解能により、光誘起反応の中間体と中間体との間の遷移状態の構造までも観測することが可能となった。²⁾

さらにパルス幅を短くすることにより、未知の現象の発見解明が期待される。ところが、3フェムト秒のパルスは、可視域の光では搬送波の一周期に近づきつつある。したがって、さらに短いパルス、すなわち、アト秒パルスを発生するには、光の周波数を高くする(波長を短くする)ことが必要となってくる。それがレーザーの高次高調波が注目されるゆえんである。実際、近年、アト秒パルス発生が報告されているが、高次高調波発生により実現されている。⁴⁻⁹⁾

また、高調波は超短パルス性と空間コヒーレンスを兼ね備えているため、集光することにより極端紫外・軟X線の高光電場を生成することができる。極端紫外・軟X線領域での非線形光学はこれまで光源がなかったため研究が全く進んでいなかったが、高次高調波の出現により可能となった。⁸⁻¹³⁾

2. 高次高調波

レーザー電場が電子を束縛するクーロン電場と同程度以上の場合、レーザー光と原子・分子の非摂動的な相互作用により、高次の次数にわたって相対強度があまり弱くならず高調波が発生する。その高調波は高次高調波と呼ばれ、強度があまり弱くならない領域をプラトー (plateau) とい

う。急速に高次の高調波が弱くなる摂動的な相互作用とは顕著に異なる現象である。高次高調波の次数の限界はカットオフ (cutoff) と呼ばれており、非線形媒質である原子・分子のイオン化エネルギーとポンデロモティブエネルギー (Ponderomotive energy)¹⁴⁾ の3倍との和になると言われている。

実験的には、フェムト秒レーザーを集光することにより束縛クーロン電場に匹敵するレーザー電場を生成することは容易にできる。1987年に最初に報告され、¹⁵⁾ 現在では硬X線である1.3 keVまで延びている。¹⁶⁾ 非線形媒質として用いる気体に通常反転対称性があるため、高次高調波は奇数次のみ発生する。高調波であるため時空間コヒーレンスを保持しており、同じ波長領域の光源である軌道放射光と比較したときの大きな特徴となっている。

高次高調波の発生モデルとしては、Corkumにより提唱

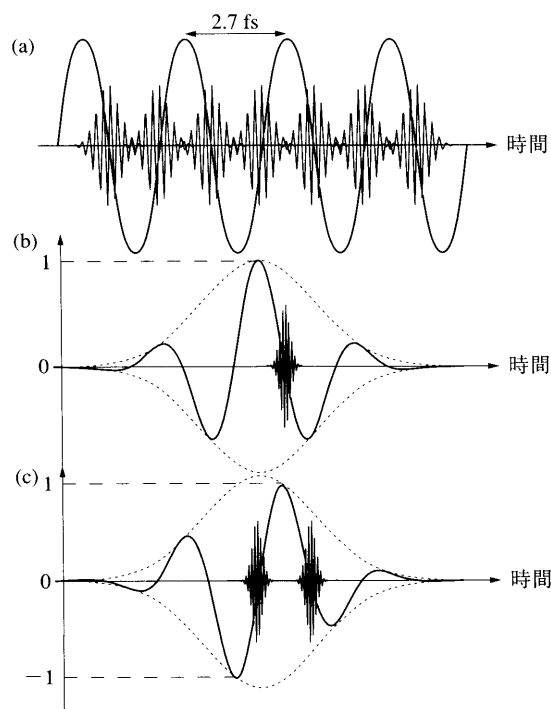


図1 レーザー電場(黒線)と高次高調波発生(青線)の時間関係。点線はレーザーパルスの包絡線。(a) 定常的なレーザーパルスの場合、高次高調波はレーザー光の半周期ごとに発生する。(b) 余弦波の場合レーザーパルスのピークでのみ高調波が発生する。(c) 正弦波の場合複数のパルスが発生する。

された「三段階モデル」が高次高調波の基本的性質をよく説明するものとして広く受け入れられている。¹⁷⁾ それによると、1) 原子に束縛された電子が光電場によりトンネルイオン化する。2) 自由になった電子が光電場下で運動エネルギーを得る。3) イオンに戻ってきた自由電子が再結合し、その際、運動エネルギーを高調波として発する。このモデルに従うと、図1(a)に示すように高次高調波はレーザー電場の半周期ごとに発生するパルス列になり、フーリエ変換して得られるスペクトルはレーザー周波数の2倍の間隔で並ぶ高調波列となる。¹⁸⁾ カットオフは電子が得る運動エネルギーの最大値で決まると考えられ、先ほど述べたカットオフの関係式が与えられる。光電場が大きいほど電子が得る運動エネルギーが高くなるため、高次の高調波が発生することが期待される。なお、次章との関係で注意していただきたいのは、図の高調波パルスは単一周波数を持つように便宜上描いてあるが、実際は第三高調波から高次の高調波まで同時に発生している。また、高調波の発生は、必ずしもレーザーの半周期内で終了しているわけではない。

3. これまでのアト秒パルス発生

ここで、これまでに報告されているアト秒パルス発生について概観する。後章で、筆者らが得た結果の特徴を明確にするためである。実験的にアト秒パルスが発生したと報告する論文は2種類に分類される。一つは2~3サイクルパルスで高次高調波の単一アト秒パルスを発生する方法。二つ目は、位相がそろった複数の次数の高次高調波を発生させることにより、アト秒パルス列を発生する方法である。それぞれについて紹介する。

3.1 単一アト秒パルス発生^{4,7,19)}

前章で紹介した三段階モデルによると、2~3サイクルパルスを使うと、パルス電場のピークにおいてのみカットオフ領域の高調波が発生する。カットオフ領域の高調波はレーザー光の半周期内で瞬時的に発生し、広帯域のスペクトルを持つ単一アト秒パルスとなることが期待される。²⁰⁾ ここで注意が必要なのは、単一パルスを発生するためには、パルスエネルギーや搬送波・包絡線 (carrier-envelope, 以下CE) 位相の固定を行う必要がある、ということである。^{7,19)} 通常、光パルスはパルス電場の包絡線で記述するが、2~3サイクルパルスでは包絡線内での搬送波の位相により電場強度が著しく変化する。そのため、カットオフの高調波を発生するための条件を一定に保つためにはCE位相とエネルギーを固定する必要がある。図1(b)と1(c)にその様子を示す。余弦波と正弦波の電場のピーク値(包絡線ではない!)が同じ場合、余弦波の場合はカットオフの高調波は単一パルスとなるが、正弦波の場合はピークが2回現れるので、二つパルスが発生する。このようなCE位相による効果は、余弦波の場合、カットオフのスペクトルが連続的なスペクトルになり、正弦波の場合、離散的になることから確認されている。¹⁹⁾ また、パルスエネルギーが、

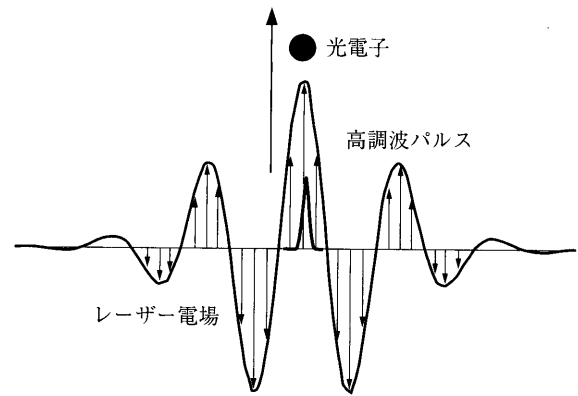


図2 測定の原理図。黒線はレーザー電場、青線は高調波パルス。黒矢印は電場の方向を示す。レーザー光と高調波が同時に原子に集光され、黒矢印方向へ光電子が飛び出す。光電子はレーザー電場により運動量の分布が $eA(t)$ シフトする。

目的とする次数を発生するのに必要なエネルギー以上に大きくても複数のパルスが発生するため、目的とする次数に応じたパルスエネルギーを設定する必要がある。これらの制約のため、得られているアト秒パルスの光量は限られており、特に、超短パルスの重要な応用分野である非線形光学へのアト秒パルスの応用には至っていない。

そのため、通常パルス幅評価に用いられる非線形光学を用いた手法では、この方法で発生したアト秒パルスを評価できない。そこでアト秒ストリークカメラという方法でパルス幅の見積もりは行われた。^{4,7,21)} 図2にその原理図を示す。チタンサファイアレーザー(波長800 nm)とその高調波を同時に原子に集光すると、原子が高調波を吸収し光電子を放出する。高調波の光子エネルギーは93 eVで基本波レーザーに比べ約61倍高いので、高調波を吸収して生成した光電子にとって、レーザー電場は断熱的に変化すると考えられる。生成した光電子は基本レーザー電場により力を受け、観測される光電子の運動量分布を $\sigma(p)$, p_i を光電子生成直後の運動量、高調波により生成された時間に依存する光電子の初期分布を $n(p_i, t)$ とすると、 $\sigma(p)$ はレーザー電場により

$$\begin{aligned} \sigma(p) &= \int_{-\infty}^{\infty} n(p_i, t) dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} n(p - eA(t), t) dt \end{aligned} \quad (1)$$

となる。ここで電子の放出方向とレーザー電場の偏光は平行であり、 e は電荷素量、 $A(t)$ は時間に依存するベクトルポテンシャルである。特に、高調波のパルス幅が基本波レーザーの周期より十分短いとき、運動量分布全体が $eA(t)$ だけシフトすると考えられる。高調波パルスと基本波パルスの遅延時間を変えて光電子スペクトル (= 光電子の運動量) をいくつか測定し、そのスペクトル変化から高調波のパルス波形は見積もられた。これまで得られた最短パルス幅は250 as⁷⁾である。また、遅延時間を連続的に変化させていくとベクトルポテンシャルの時間変化を追うことができ、発生しているパルスがレーザー1周期(2.7 fs)より十分短いことがわかる。²²⁾

3.2 アト秒パルス列の発生^{5,6,9)}

単一アト秒パルス発生時の描像が時間領域からのアプローチだったのに対し、アト秒パルス列発生は、周波数領域から考えるとわかりやすい。複数の高次高調波に注目したとき、高調波間の位相が固定されていれば、合成電場は基本波の周波数の半周期(=1/高調波間の周波数差)ごとに現れるパルス列となる。多くの次数の高調波を重ね合わせてやればアト秒パルス列が形成される。これは、高調波がレーザーの半周期ごとに発生するという Corkum のモデルを周波数領域から見たことに相当する。また、ピコ・フェムト秒レーザー発振のモード同期と全く同じことである。

したがって、実験的にアト秒パルス列の発生を確認するためには、複数の次数間の位相を測定して、位相が固定されていることを確かめればよい。その方法は以下のものである。チタンサファイアレーザーとその高調波を希ガスに集光すると、2種類の光子と相互作用して光電子を放出する2光子イオン化が起こる。その過程によって放出される光電子は、 q を奇数とすると q 次と $(q+2)$ 次の高調波の1光子吸収による光電子ピークの間、すなわち $(q+1)$ 次の位置に現れる。ところが、図3に示すように、このエネルギーを持つ光電子を生成する過程は二つあり、 q 次高調波とレーザー光子を吸収する過程と $(q+2)$ 次高調波を吸収しレーザー光子を放出する過程がある。その二つの過程の間で干渉が起こり、二つの高調波間の相対位相差 $\Delta\phi$ が一定であれば、高調波とレーザーの遅延時間 Δt に対し2光子過程により生成する光電子の量は $\cos(2\omega\Delta t + \Delta\phi)$ で変化する。ここで ω はレーザーの角振動数である。実際、干渉が観測されたため高調波間で位相が固定されていると考えられ、複数の次数間の $\Delta\phi$ を求めることにより高調波パルスの時間波形を計算できる。その結果最短パルス幅 130 as⁹⁾ のパルス列が発生していると結論された。

しかし、本当に時間領域でアト秒パルス列になっているかどうかは疑問である。時間領域から観測した例もあるが、本来信号が零になるところでも大きな信号が検出されている。⁹⁾ これは、高調波間の空間的な重なりが一様でないこ

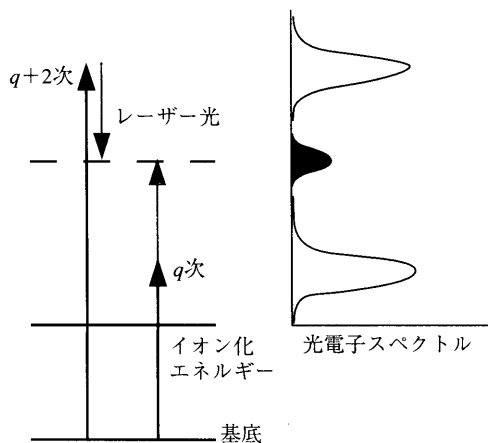


図3 高調波とレーザー光の2光子吸収のエネルギー準位と光電子スペクトル。高調波とレーザーが時間的に同時に入射すると2光子吸収が起こり、光電子スペクトルに新たなピーク(青く塗られたピーク)が現れる。

とを意味している。現段階では、大きな背景光の上にスパイクが乗っているというイメージの方が妥当であろう。また、応用面でも用途がかなり限られてくると思われる。アト秒パルスは 1.3 fs ごとに発生しており、時間分解分光で多用されるポンプ・プローブ法にそのまま使うことは難しいであろう。その点で最初に紹介した単一アト秒パルス発生の方が、今後の発展が期待できる。

4. 非線形光学のためのアト秒パルス発生時の描像

以上のような認識のもと、極端紫外・軟X線領域での非線形現象の研究を行うに十分強い単一アト秒パルス発生することが重要であると考えた。そのためには、これまでの方法とは異なるアプローチが必要になる。筆者らのこれまでの高次高調波のパルス幅測定の研究から、次のような過程でアト秒パルス発生できるのではないかと考えた。^{23,24)}

単純に非線形応答による高調波発生を考えれば、群速度不整合などが無い場合、高調波の方が基本波よりパルス幅は短くなる。フェムト秒レーザーの非線形結晶を使った波長変換の場合、非線形結晶による分散のため必ずしもそうならないが、希ガスを使った高調波の場合、希ガスの分散が小さいため問題にならない。さらに、高次高調波の場合は非線形媒質のイオン化による枯渇により高調波発生時の発生効率の大幅な低下があるため、より一層のパルス幅の短縮が見込める。実際、Christov らのモデル計算によると、25 fs のチタンサファイアレーザーで51次高調波を発生したとき、高調波パルスは基本波パルスの立ち上がりの数サイクル中に発生している。²⁵⁾ さらにパルス幅が短く短波長レーザーで高調波を発生させれば、アト秒パルスの発生が期待できる。しかも、希ガスが十分イオン化するほどのレーザー強度で高調波発生を行うため、高調波の強度も大きくなることを期待される。

図4に、筆者らが計算した9次高調波発生時の結果を示す。パルス幅が光の周波数より十分長いという仮定をしている。9次高調波に注目したのは、より高次の高調波より安定に

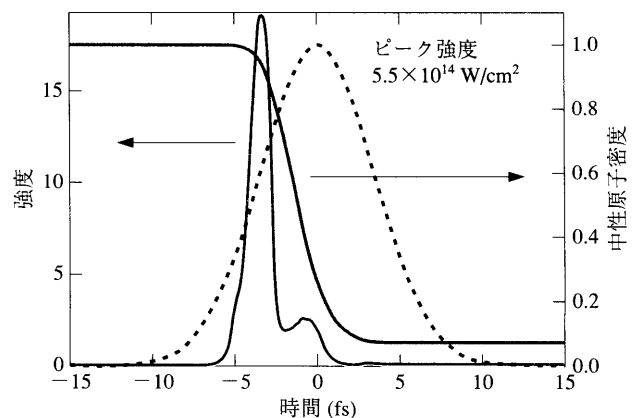


図4 8 fs パルス(点線)による9次高調波(青線)発生時のモデル計算。中性原子密度の時間変化(灰色線)も示す。基本波のピーク強度は 5.5×10^{14} W/cm² である。

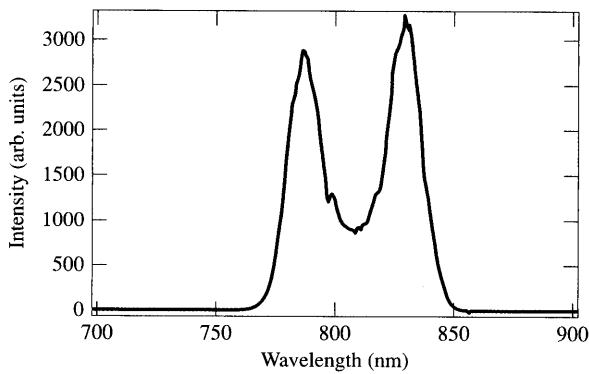


図5 チタンサファイアレーザーのスペクトルの例.

かつ強く発生できるので非線形光学への応用に適しているからである。中心波長 400 nm ・パルス幅 8 fs ・ピーク強度 $5.5 \times 10^{14}\text{ W/cm}^2$ のレーザーパルスで9次高調波を発生させると、パルスの立ち上がりとともに急激に高調波が発生し、非線形媒質である希ガスのイオン化とともに発生が止まることがわかる。高調波の発生が止まるのは、イオン化すると非線形感受率が大きく下がるためである。9次高調波のパルス幅は 1 fs 程度であり、さらに時間幅の短いレーザーパルスを使うとアト秒パルスの発生が期待できる。なお、波長が 400 nm であるため、パルス幅が 8 fs 程度ではCE位相の効果を考える必要はない。

5. 広帯域第二高調波発生によるサブ10 fsパルスの発生

上記の考察によると、アト秒パルス発生のためには、パルス幅が 10 fs を切るパルスレーザーが必要である。パルス幅が短くなるためには、レーザー光のスペクトルはフーリエ変換で決まる周波数帯域を最低限保持していなければならない。中心波長 800 nm チタンサファイアレーザーの場合、フーリエ限界の 10 fs パルスは 700 nm から 900 nm に及ぶ広いスペクトルを持つ。発信器から直接得られるパルスのエネルギーでは高調波を発生できないので増幅する必要がある。その際、全スペクトル領域にわたって一様に増幅することは不可能なためスペクトルの狭帯域化が起こり、その結果パルス幅は延びる。スペクトルの狭帯域化を防ぐため、増幅の際、もともと利得の大きい中心波長付近の利得を光学素子により下げ、周辺領域を増幅するのが定石となっている。そのため、スペクトル形状も図5に示すようにM字型をしているが、それでも 20 fs 程度が限界である。これまで、高調波発生用のサブ 10 fs レーザーは、フェムト秒レーザーを希ガスで満たした中空ファイバー中を伝播させ、自己位相変調を起こさせることによりスペクトル幅を広げ、パルス圧縮することで生成している。¹⁾ パルスエネルギーは $500\text{ }\mu\text{J}$ くらいであるが、応用を視野に入れると 1 mJ 以上は必要である。しかし、中空ファイバーに入力できるパルスエネルギーには限りがあるため、さらに

高出力化するためには異なる方法が必要である。

そこで、筆者らは、超短パルスレーザーを構成する周波数成分をすべて2倍にすることにより帯域を広げパルス幅を短縮する広帯域第二高調波発生的手法を採用した。²⁶⁾ この方法では、第二高調波発生に非線形光学結晶を使うので高い変換効率でパルス幅の短縮が可能になる。実験的には、チタンサファイアレーザーの全ての波長成分が非線形光学結晶(BBO)の位相整合条件を満たすように、回折格子と凹面鏡を使ってレーザービームを角度分散させてBBO結晶に集光して第二高調波を発生する(図6)。発生した第二高調波を対称な光学系に通し、刻み幅が半分の回折格子上で各波長成分を再合成する。全ての波長で周波数変換できるのは、波長 800 nm 付近で波長と位相整合条件を満たすための結晶軸との角度がほぼ比例関係にあるためである。第二高調波のスペクトルは、チタンサファイアレーザーのスペクトルと同様にM字型の形状をしている。単に平行なレーザー光線をBBO結晶に通しただけでは、中心波長から離れたスペクトル成分が位相整合条件を満たさないため波長変換されずスペクトル幅が狭くなり、パルス幅が長くなる。

理想的には周波数変換だけで第二高調波のパルス幅は基本波パルスの半分になるが、実際は空気・結晶の分散があるため、さらに位相補償が必要である。筆者らは、基本波であるチタンサファイアレーザーシステムの位相補償器で第二高調波の位相も補償した。中心波長 400 nm 、最短のパルス幅 8.3 fs 、パルスエネルギー 1.4 mJ の青色レーザーパルスを発生した。発生したレーザーパルスは自己回折周波数分解光ゲート法(Self-Diffraction Frequency-Resolved Optical Gating)²⁷⁾ で、ほぼフーリエ限界パルスであることを確認した。

6. アト秒パルスの発生と計測⁸⁾

6.1 自己相関測定

ピコ・フェムト秒レーザーの時間幅は、通常、2次の自己相関関数を測定することにより求められる。直接、受光器でパルス波形を観測しないのは、フェムト秒の応答速度を持つ速い受光器が存在しないためである。また、1次の自己相関関数(通常の間渉)の相関幅(可干渉距離)はパルスのスペクトル幅により決まり、パルス幅を与えないので、エネルギー集中度を反映する2次以上の相関関数を

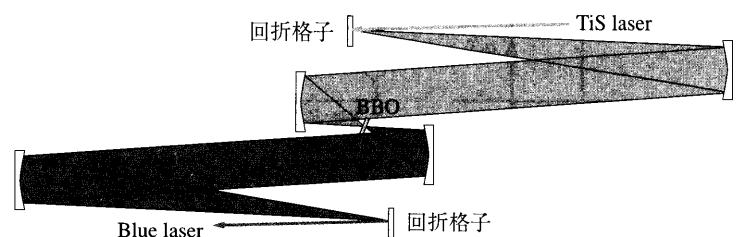


図6 広帯域第二高調波発生のための光学配置。TiS laserはチタンサファイアレーザー、Blue laserは第二高調波を表す。

測定する必要がある。2次の自己相関は第二高調波発生・2光子吸収などの2次の非線形光学過程により実現され、二つに分けたパルス光による非線形信号量の遅延時間 τ 依存性を測ることにより自己相関波形を測定している。その波形 $I(\tau)$ は、一般に、時間に依存する電場を $E(t)$ とし、位相項が平均により零になるとすると、

$$\begin{aligned}
 I(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t) + E(t-\tau)|^2 \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t)|^4 + \int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t-\tau)|^4 \\
 &\quad + 4 \int_{-\infty}^{\infty} dt |E(t)|^2 |E(t-\tau)|^2
 \end{aligned} \tag{2}$$

となる。 $\tau=0$ においてピークを持ち、そのピーク値を3とすると、 $\tau=\pm\infty$ において値は1となる。電場の波形としてガウス関数などの適当な関数を仮定し、自己相関波形に合わせることでパルス幅を求める。

3.1節で紹介したアト秒パルスの計測法は、非線形光学過程が観測できないがゆえに考え出された独創性の高い方法であるが、パルス波形を導き出す過程の一意性が明らかでない。筆者らは、可視域で測られているパルスと同じ非線形光学過程に基づく自己相関法で測定することにより、可視域パルスと同一基準で比較することに意義があると考えている。

6.2 極端紫外域での非線形光学現象

自己相関法により高次高調波パルスを計測するためには、高次高調波で起こる非線形光学過程を見出す必要がある。そこで、希ガスのようにエネルギー準位が既知で離散的な系を対象に、2光子イオン化の観測を試みた。^{13,28)} 2光子吸収に伴い放出される光電子の帰属を曖昧さなく行うことができるからである。筆者らは、既に、チタンサファイアレーザーの9次高調波(光子エネルギー14 eV)によるヘリウム原子の2光子イオン化の観測に成功し、パルス幅測定を行っている。¹⁰⁾ 今回は、より高エネルギーの高調波である青色レーザーの9次高調波(光子エネルギー27.9 eV)に的を絞った。前回と、今回では大きく異なる点がある。青色レーザーの9次高調波は1光子でヘリウム原子のイオン化エネルギー(24.6 eV)を超える。したがって、2光子過程ではイオン化に必要な以上の光子を吸収することになる。このような多光子イオン化過程は超閾イオン化(Above-threshold ionization)といわれる。ヘリウム原子では、通常の2光子イオン化より1桁吸収断面積が小さくなることが理論計算から予測されており、²⁹⁾ 2光子超閾イオン化の観測は難しい実験となる。また、イオン化により生成するイオンではなく、放出される光電子を観測することが必要である。

9次高調波は、ピエゾ駆動式のガスジェットから真空中に吹き出る気体アルゴンに、青色レーザー光を集光することにより発生した。発生した9次高調波は、アルミニウム薄膜フィルターを透過後、27.9 eV中心に反射率を持つSc/Si多層膜凹面鏡により気体ヘリウムに集光される。アルミニウム薄膜フィルターは、高調波に比べて圧倒的に強

い青色レーザーを遮断するために用いた。放出された光電子は、磁気ボトル型光電子分光器でエネルギー分解される。磁気ボトル型光電子分光器は、時間飛行型分光器の一種で、磁場で光電子を束縛し検出器へ導くので、光電子の捕集効率が約50%という高い検出効率を持つ。光電子は、マルチチャンネルプレートで受けられ、マルチチャンネルスクリーンによりカウントされる。その結果、ヘリウムの2光子超閾イオン化による光電子の検出に成功した。図7に光電子スペクトルを示す。他の次数や気体アルゴンによる1光子吸収で放出される光電子とは明確に離れたエネルギー位置に現れており、曖昧さなく帰属される。このときの信号量は、高調波のパルスエネルギー0.9 nJ、パルス幅4 fs、ヘリウムの原子密度 10^{11} 個/cm³、集光直径1 μ m、吸収断面積 10^{-52} cm⁴sであるので、高調波パルス500,000発に対し63個電子が放出されることになる。この値は、バックグラウンドを引いて得られる50個という実験結果と同水準である。

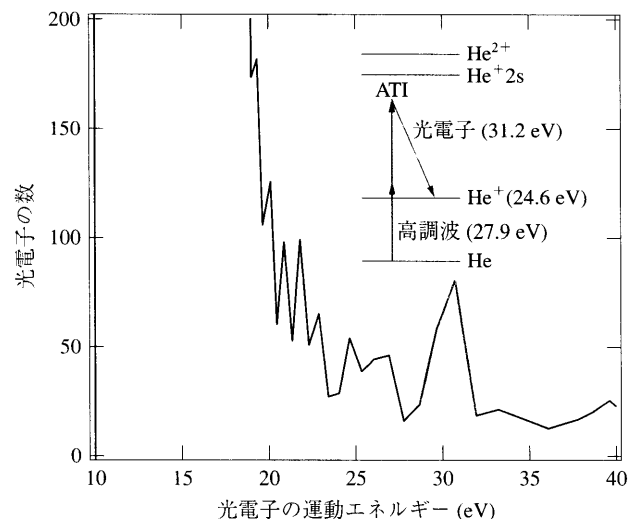


図7 2光子超閾イオン化によりヘリウム原子から放出された光電子のスペクトル。挿入図は、ヘリウム原子のエネルギー準位、高調波、光電子のエネルギー関係を示す。

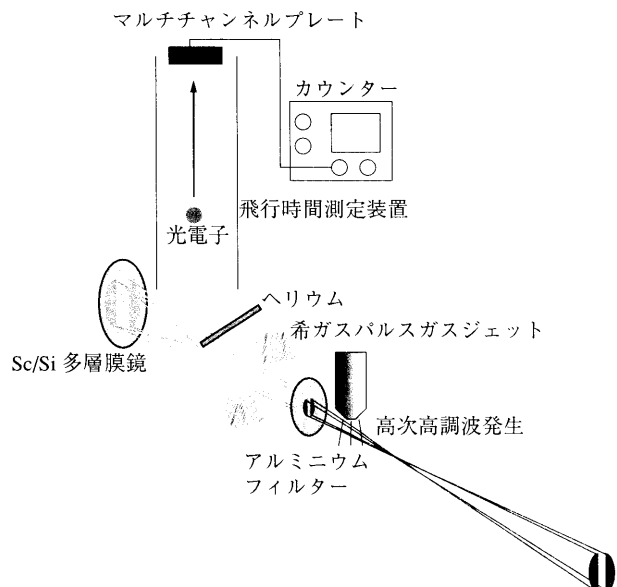


図8 高次高調波パルスの自己相関波形測定のための実験配置図。

6.3 自己相関法によるアト秒パルスの計測

2光子超閾イオン化による光電子量に着目して自己相関波形の測定を行う。図8に実験配置図を示す。可視域ではビームスプリッターにより二つの同一パルスを作るが、極端紫外・軟X線領域で適当な物質は知られていない。そこで、青色レーザービームを空間的に二つに分け、それぞれから独立に9次高調波を発生させることにより遅延時間のついた二つのパルスを生成した。レーザー光が空間コヒーレンスを持つため、同一パルスと考えて差し支えない。実際、ビームの左右で干渉させたとき、全域にわたり干渉縞が観測されている。平行に進行する二つのパルスはSc/Si多層膜凹面鏡で同一点の気体ヘリウムに集光され、2光子超閾イオン化を起こす。光電子収量の遅延時間依存性を測

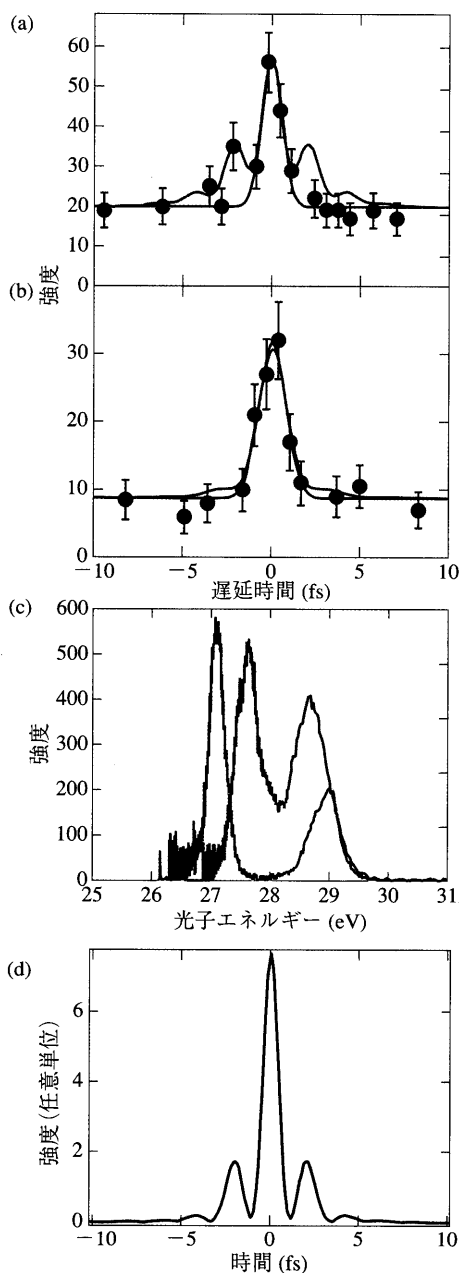


図9 自己相関波形 (a), (b), 高調波のスペクトル (c) と 950 アト秒パルスの波形 (d). (a) と (b) はそれぞれ、パルス幅 8.3 fs と 12 fs の青色レーザーを使った場合である。(c) に 950 as (青線) と 1.3 fs (灰色線) パルスのスペクトルを示す。

定することにより自己相関波形を得ることができる。

図9にその結果を示す。二つのパルスが時間的に十分離れたときの信号量と遅延時間 0 fs での信号量の比がほぼ 1:3 になり、理想的な状況に近い結果が得られた。ガウス関数を仮定して求めたパルス幅は、図9(a)で 950 as, 図9(b)で 1.3 fs である。それぞれ、青色レーザーのパルス幅が 8.3 fs と 12 fs の場合であり、レーザー光のパルス幅はチタンサファイアレーザーのスペクトル幅を制御することにより調整した。自己相関波形の妥当性を確かめるため、図9(c)に示す高調波スペクトルを位相一定と仮定のもとフーリエ変換して時間波形にし、自己相関波形を計算した。その結果が図9(a)と9(b)中に青線で示されており、よく実験結果を再現していることがわかる。

図9(a)については主ピークの両脇に別のピークがあり、ガウス関数が必ずしも良い仮定でないように思われるが、スペクトルをフーリエ変換して得られる自己相関波形は、遅延時間 0 fs の両脇にある構造をよく説明している。また、スペクトルをフーリエ変換して得られるフーリエ限界パルス波形(図9(d))のパルス幅は 940 as で、自己相関波形から得られる結果とほぼ一致している。よって、フーリエ限界パルスが発生しているとともに、主ピークの時間幅は 950 as と考えて差し支えない。なお、高調波パルスは、基本波パルスのチャープ、希ガスのイオン化に伴う屈折率変化による位相変調、発生機構上生じるチャープなどが重なり合った位相を持つので、必ずしもフーリエ限界パルスになるとは限らない。²⁴⁾しかし、筆者らの条件では高調波が基本波パルスの立ち上がりで発生するため、多くの場合、位相変調効果が打ち消し合っているようである。²⁴⁾また、高調波パルスの脇に小さく現れる構造は、高調波のスペクトルが M 字型をしているため生じている。このスペクトル波形は元のレーザーのスペクトルを反映しているためと考えており、先に説明したように、8 fs パルスを発生するためにやむをえずそのような波形にしている。

7. アト秒パルスの応用

世界で最初にアト秒パルスを発生した Krasuz らは、アトフィジックス (Attophysic) という言葉を造り、アトフィジックスでは電子の運動の観測・制御が課題である、と言っている。³⁰⁾古典的な水素原子中の電子の運動を考えると 1 周期は 150 as であり、アト秒が電子の運動の典型的な時間スケールを表しているからである。3.1 で紹介した彼らのパルス幅の計測法は、見方を変えれば、光電場中の電子の運動をアト秒の時間分解能で追跡したことになる。対象を凝縮系に変えれば、可視光照射による光誘起反応中の電子の挙動を実時間で観測することができるであろう。フェムトケミストリー (femtochemistry) では原子の動きを観測しているが、アトフィジックスでは原子を動かす原動力となるポテンシャルの形成過程を見ることになる。これまで瞬時的に光電場に応答しているとされていた電子の運動が

観測されるかもしれない。

一方、筆者らは、高強度のアト秒パルスの発生により、超高速分光での別の展開、および極端紫外・軟X線での非線形光学の開拓を期待している。時間分解分光に関しては、光子エネルギーが極端紫外・軟X線にわたるため、これまでの超高速分光と大きく変わり、単なる時間分解能の向上ではなく、対象となる物理現象が全く異なる新しい研究分野が切り開かれると考えている。すなわち、これまでの超高速分光では、凝縮系で言えば価電子帯電子が重要な役割を果たす現象を対象としてきたが、極端紫外・軟X線アト秒パルスを使った研究では、内殻電子が主要な役割を果たす。内殻電子は価電子帯電子に比べ局在性・電子相関が強いため、これまで時間分解分光により見出されてきた現象とは異なる現象を観測できる可能性がある。³¹⁻³³⁾ 極端紫外・軟X線の光源はこれまで軌道放射光に限られており、時間分解能もナノからピコ秒である。したがって、アト秒はおろかフェムト・ピコ秒の超高速現象の研究すら進んでいないのが現状であり、広大な未踏の領域が広がっている。非線形光学という観点からは、高次高調波により初めて研究可能となった全く新しい分野である。生体の画像化に適したといわれる「水の窓」領域(4.1~2.3 nm)³⁴⁾への多光子吸収過程を利用した生体の観測³⁵⁾などが期待される。

超短パルスレーザーを使った時間分解分光では、ポンプ・プローブ法が広く用いられる。光励起後(ポンプ)の物質の透過率変化などをプローブパルスで検出する方法である。今回行った自己相関測定は、見方を変えれば、ポンプ・プローブ光共に同一パルスを用いて物質の応答時間がパルス幅に比べ瞬時的な現象を時間分解した、最も単純なポンプ・プローブ分光である。極端に言えば、今回紹介した実験系において気体ヘリウムを他の試料に置き換えるだけで、極端紫外光で励起後の物質の電子状態を光電子分光により明らかにすることができる。その意味で今回実演した自己相関測定は、時間分解分光と非線形光学を同時に実現している。

8. 終わりに

筆者ら自身の直近の目標は、さらに短いパルスを発生し計測することである。さらに非線形性の高い高次の高調波を発生することによりさらなる超短パルス化を見込んでいる。そのほか、高次高調波の発生効率が偏光に著しく依存したことを利用したアト秒パルスを発生する方法も提案されている。^{36,37)} いまのところアト秒まで達していないが、このような新しいアト秒パルス発生法の探求も重要な課題である。

パルス幅が数フェムト秒に近づくにつれ、光パルスやそれにより引き起こされる現象をパルスの包絡線で記述するより、電場そのもので考える必要が出てきている。また、波長がこれまでの可視域から極端紫外・軟X線領域の光となり、考慮しなければならないアト秒パルスと物質の相互作用も変わってくる。アトフィジックスという新しい研究

分野を切り開いていくには、単なる時間分解能の向上以上のパラダイムシフトが必要と思われる。³⁰⁾

本稿で紹介した研究は、渡部研究室の小菅淳、金井輝人諸氏と京都大学の中嶋隆先生との共同研究である。記して感謝する。

参考文献

- 1) T. Brabec and F. Krausz: *Rev. Mod. Phys.* **72** (2000) 545.
- 2) 小林孝嘉: *日本物理学会誌* **55** (2000) 332.
- 3) K. Yamane, T. Kito, R. Morita and M. Yamashita: in *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), San Francisco, 2004*.
- 4) 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.
- 5) P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, P. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini: *Science* **292** (2001) 1689.
- 6) Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Fransinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taieb, B. Carre, H. G. Muller, P. Agostini and P. Salieres: *Science* **302** (2003) 1540.
- 7) 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.
- 8) T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai and S. Watanabe: *Nature* **432** (2004) 605.
- 9) P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte and G. D. Tsakiris: *Nature* **426** (2003) 267.
- 10) Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa and S. Watanabe: *Opt. Lett.* **23** (1998) 64.
- 11) T. Sekikawa, T. Ohno, T. Yamazaki, Y. Nabekawa and S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 2564.
- 12) T. Sekikawa, T. Katsura, S. Miura and S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002) 193902.
- 13) N. Miyamoto, M. Kamei, D. Yoshitomi, T. Kanai, T. Sekikawa, T. Nakajima and S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004) 083903.
- 14) 振動電場の一周期中に得る電子の運動エネルギー。電場振幅と角振動数を E, ω とし、電子の質量と電荷を m, e とすると $e^2 E^2 / 4m\omega^2$ と表される。
- 15) A. McPherson, G. Gibson, H. Iara, H. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer and C. K. Rodes: *J. Opt. Soc. Am. B* **4** (1987) 595.
- 16) J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Strelly, P. Wobrowschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann and F. Krausz: *Nature* **433** (2005) 596.
- 17) P. B. Corkum: *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993) 1994.
- 18) P. Salieres, P. Antoine, A. d. Bohan and M. Lewenstein: *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998) 5544.
- 19) 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.
- 20) 逆に、ブラトリー領域の高調波まで含めると、必ずしも瞬間的に発生しているとは限らない。カットオフ領域の高調波のみを取り出すことが重要である。
- 21) J. Itatani, F. Quere, G. L. Yudin, M. Y. Ivanov, F. Krausz and P. B. Corkum: *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002) 173903.
- 22) E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz: *Science* **305** (2004) 1267.
- 23) Y. Kobayashi, T. Ohno, T. Sekikawa, Y. Nabekawa and S. Watanabe: *Appl. Phys. B* **70** (2000) 389.
- 24) T. Sekikawa, T. Kanai and S. Watanabe: *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 103902.
- 25) I. P. Christov, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn: *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997) 1251.
- 26) T. Kanai, X. Zhou, T. Sekikawa, S. Watanabe and T. Togashi: *Opt. Lett.* **28** (2003) 1484.
- 27) 周波数分解光ゲート法は、非線形光学効果を利用して光パルスの波形と位相を同時に決める方法の一つ。ここでは3次の非線形過程である自己回折効果を利用した。
- 28) T. Nakajima and S. Watanabe: *Phys. Rev. A* **70** (2004) 043412.
- 29) L. A. A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos: *J. Phys. B* **34** (2001) 545.

- 30) F. Krausz: *Physics World* **41** (2001) September.
 31) T. Sekikawa, T. Yamazaki, Y. Nabekawa and S. Watanabe: *J. Opt. Soc. Am. B* **19** (2002) 1941.
 32) T. Shimizu, T. Sekikawa, T. Kanai, S. Watanabe and M. Itoh: *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 017401.
 33) 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.
 34) D. Sayre, J. Kirz, R. Feder, D. M. Kim and E. Spiller: *Science* **196** (1977) 1339.
 35) J. Squier: *Optics & Photonics News* **42** (2002) April.
 36) P. B. Corkum, N. H. Burnett and M. Y. Ivanov: *Opt. Lett.* **19** (1994) 1870.
 37) R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L'Huillier, O. Tcherbakoff, A. Zair, E. Mevel and E. Constant: *Phys. Rev. A* **69** (2004) 053811.

著者紹介



関川太郎氏: 専門はレーザー分光。主に、高次高調波発生とその光源としての応用の研究を行っている。



渡部俊太郎氏: 専門はレーザー物理。主に、超短パルスレーザーの開発と高次高調波などの高次非線形過程の研究。

(2005年2月3日原稿受付)

XUV Attosecond Pulse Generation and XUV Nonlinear Optics

Taro Sekikawa and Shuntaro Watanabe

abstract: The shortest pulse duration of an optical pulse breaks into the attosecond ($1\text{ as} = 10^{-18}\text{ s}$) region from the femtosecond ($1\text{ fs} = 10^{-15}\text{ s}$) region. Attosecond pulses are extreme ultraviolet (XUV) light and are generated through the process of high harmonics generation by nonlinear interaction between a laser electric field and atoms. Because attosecond pulses are harmonics of laser pulses, they have temporal and spatial coherence. Attosecond pulses can be applied not only to time-resolved spectroscopy but also nonlinear optics in the XUV and soft X-ray. Recently, we have succeeded in observing a nonlinear optical phenomenon in XUV and have characterized attosecond pulses with a nonlinear optical technique. In this article, the recent researches on the attosecond pulse generation and applications are described along with the details of our work.

解説

シングルスピン非対称が拓くハドロン物理の新展開

小池裕司 <新潟大学理学部物理教室 950-2181 新潟市五十嵐二の町 8050 e-mail: koike@nt.sc.niigata-u.ac.jp>

齊藤直人 <京都大学理学部物理第2教室 606-8502 京都市左京区北白川追分町 e-mail: saito@nh.scphys.kyoto-u.ac.jp>

1991年にフェルミ国立加速器研究所の実験 E704 が報告したパイオン生成における大きなシングルスピン非対称 (SSA) は、摂動論的量子色力学を基礎にした高エネルギー反応に関する理解の枠組みを大きく拡張させることになった。SSA は強い相互作用におけるカイラル対称性の破れを反映するもので、その発現機構の解明は、ハドロン中のクォーク・グルーオン相関やパートンの固有横運動量などの定式化を含む量子色力学 (QCD) 研究の新たな流れとなっている。実験的にもブルックヘブン国立研究所 (BNL) の偏極陽子・陽子衝突加速器 RHIC などを用いたより高いエネルギーでの SSA や、レプトン核子衝突における SSA などの測定が進行し、新たな理論的枠組での理解が前進している。この解説では、これら SSA 研究の現状を報告する。

1. シングルスピン非対称とは

対称性とその破れは物理学の発展において非常に重要な概念である。すべての素粒子が持つ量子数であるスピンは、磁気能率や粒子反応の角度分布など多くの物理量に関与し、対称性の検証に重要な役割を果たしてきた。例えば、偏極した原子核のβ崩壊における非対称性はパリティ非保存の検証実験の中核であったことは想起するまでもない。強い

相互作用の理解においてもスピンの役割は大きく、特に本稿のテーマであるシングルスピン非対称 (Single Spin Asymmetry; SSA) は、カイラル対称性の破れと密接な関係を持っている。これから見ていくように SSA を系統的に理解するには、従来の高エネルギーハドロン反応の理解の枠組みを拡張することが不可欠である。この拡張において、ハドロン構造におけるカイラル対称性の自発的破れの新たな