

研究課題別評価書

1. 研究課題名

高強度超短パルス短波長光中の原子分子ダイナミクス

2. 氏名

石川顕一

3. 研究のねらい

超短パルスレーザー、高次高調波発生、次世代自由電子レーザーなど、赤外からエックス線までの広範囲の波長域にわたる新しい光源の研究が急進展している。これらの光源は、高強度あるいは超短パルスという既存の光にはない著しい特徴を持っている。このような新しい光と物質の相互作用の研究はそれ自体が学術的に興味深い研究対象であるだけでなく、原子・分子の制御、化学反応の制御などに代表される革新的な光技術開発の新しい扉を開くものと期待されている。そのような技術革新のためには、その光の場の中におかれた原子・分子ダイナミクスの新たな理論の構築が強く望まれる。

高強度・超短パルス光においては、非線形光学効果や複数の電子の相互作用が重要な役割を果たしている。このような現象を理論的に究明するには、摂動論的な取り扱いやその他の近似的な手法では不十分である。

そこで、本研究では、時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することをねらいとする。

4. 研究成果

① 2アト秒2重・3重スリット実験

高次高調波発生で得られるアト秒軟エックス線パルス列は複数の高調波次数成分を含んでおり、原子をイオン化した場合の光電子スペクトルはそれらに対応する複数のピークからなる(Fig. 1(b)の実線)。この至極当然な結果は、電子の二重性のあらわれであるヤングの干渉実験の時間版としても理解することができる。電子が複数あるスリットのうちどれを通過してきたか分からないために干渉縞ができるのと同じように、パルス列によるイオン化では電子がどのパルスによって放出されたか分からないためにできる干渉縞がスペクトル中の複数のピークなのである。ならば電子の放出時刻の情報によって干渉縞のでき方を制御できるはずである。今研究では、「電子の挙動をあやつる」方法の一つとして、レーザーパルスによって干渉縞のでき方を制御する「アト秒2重・3重スリット実験」を提唱した。

アト秒パルスを応用した時間分解測定で必要となる電子放出時刻の測定法として、レーザーパルスによる運動量およびエネルギー変化がイオン化の時刻に依存することを利用する「アト秒ストリークカメラ」がある。レーザーパルスのベクトルポテンシャルを $A(t)$ とすると、時刻 t_r に放出された電子のエネルギー W は、角度 θ 方向では $-\sqrt{2W}A(t_r)\cos\theta$ だけシフトする。

Fig. 1(a)に実線で示すトリプルパルスで水素原子をイオン化すると同時に、破線あるいは点線で示すようなベクトルポテンシャルのレーザーパルス(波長 800nm、パルス幅 5×10^{12} W/cm²)を照射した場合の、0 度方向のスペクトルをTDSE計算で求めたものをFig. 1(b)に示す。特に点線の場合に着目すると、第1、3パルスによって放出された電子はエネルギーが増加し、第2のパルスによって放出された電子はエネルギーが減少する。このため 20 eV付近では、第2パルス(シングルスリット)によるイオン化であると特定できるのでフリンジは消え、35 eV付近では、第1、3パルスのダブルスリットになるので、フリンジ間隔がトリプルパルスのみの場合の半分の干渉縞ができる。着目すべきは、放出される電子の数は1つだということである。同じ1つの電子が、シングルスリットとダブルスリットの両方を同時に通過し、その結果が同じ方向で1つのエネルギー

ースペクトルとして得られる、興味深い実験の提案である。

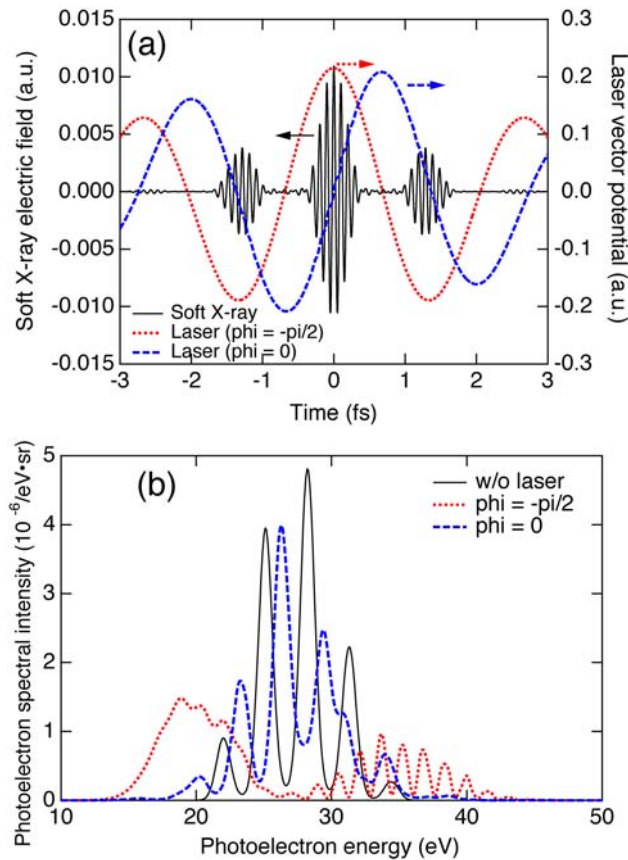


Fig. 1 (a) 基本波長 800nm のレーザー光の 23~31 次高調波からなるアト秒軟エックス線取りパルスパルス(実線)、およびキャリアエンベロープ位相ゼロ(破線)・ $-\pi/2$ (点線)のレーザー電界のベクトルポテンシャルの時間プロファイル。レーザーのピーク強度は 5×10^{12} W/cm 2 。(b) トリプルパルスによるイオン化で放出される光電子の運動エネルギー(実線)および電子の放出時刻の情報を与えるレーザーパルスを同時照射した場合の光電子スペクトル(破線と点線)。

② 基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生

アト秒パルス列を特定の量子経路をとりだすゲートとして利用し、アト秒シングルパルス発生に応用できる可能性を示した。Fig. 2(a)に示すように、波長 800nm の基本波の 11~19 次光からなるシードパルス列と波長 2.1 ミクロンの駆動光との組み合わせによる高次高調波発生(HHG)を考える。後者は光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)で得られる波長に対応しており、パルス列の基本波とは波長が異なる点に注意する。シードパルス列はパルス幅 15fs 程度のマルチサイクルレーザーで発生できるものを想定しているが、駆動光のほぼ1周期におさまっている。従って、シードパルス列による HHG の飛躍的増大効果で、この1周期の間だけ高調波発生が起こるのであろう。さらに、カットオフ近傍に寄与する量子経路は駆動電界がピークを過ぎた位相 17° で放出されるものであることに注意すれば、カットオフ高調波は縦の矢印で示したパルスのところでのみ発生し、アト秒単パルスが発生すると期待される。

実際に、Ne を標的原子として TDSE 計算を行い 30nm 付近で発生する軟エックス線パルスの時間プロファイルを求めたものを Fig. 2(b)に示す。パルス幅 800 アト秒の単独パルスが得られていることが分かる。本研究で提唱した方法では、駆動光、シードパルス列を発生する基本波ともにマルチサイクルでいいのが特徴で、特に駆動パルスが非常に長くても、シードパルス列中の1

つのみが飛躍的増大ゲート(attosecond enhancement gate for isolated pulse generation, AEGIS)の役割を果たすため、アト秒シングルパルスが発生する。本研究では、さらに、逆の波長の組み合わせ、すなわち波長 2.1 ミクロンの基本波の高調波からなるシードパルス列と波長 800nm の駆動光との組み合わせでも、350 アト秒の単独パルスが発生できることを示した。

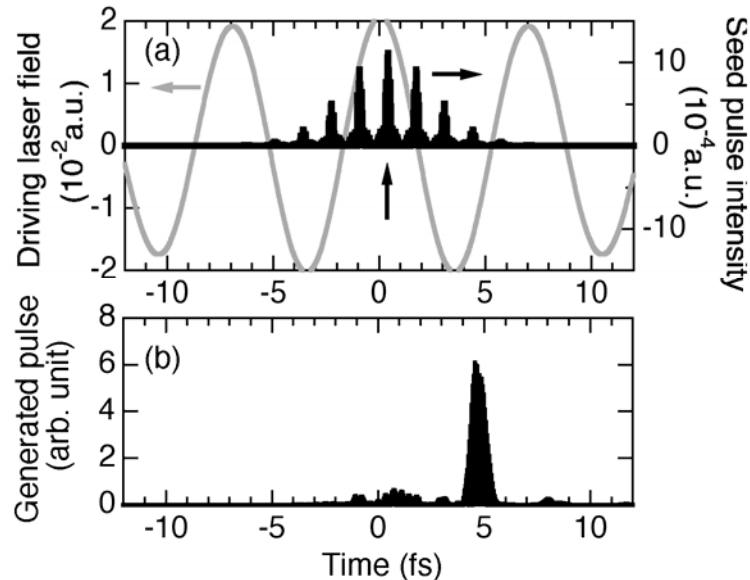


Fig. 2 (a) ピーク強度 10^{13} W/cm² 総パルス幅 5 fsのシード高調波の強度プロファイル(黒、右の縦軸)およびピーク強度 1.5×10^{13} W/cm² パルス幅 30 fsの駆動レーザー電界の時間プロファイル(グレー、左の縦軸) (b) 発生したアト秒シングルパルス(波長 30 nm付近)の時間プロファイル。

③ 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 、ポンデロモーティブエネルギー 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 $E_c = I_p + 3.17 U_p$ 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大幅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. 3 に正方形のマーカーで示す。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乗でスケールアップしていることが分かる。また Ar についてもマイナス 5.5 乗のスケールアップを得ている。

ではなぜこのようなスケールアップ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 λ^{-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 λ^{-2} で変化する。これらを合わせてマイナス5乗スケールアップになると考えられる。

Fig. 3 の正方形のマーカをよく見ると、高調波収量はスケージング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. 3 に実線で示す。収量は波長と共になめらかに変化するので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. 3 の横軸は、単色光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、波長のかわりに、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。これはボンデロモー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. 4 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. 4 に示す TDSE の結果ではそうっていない。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。

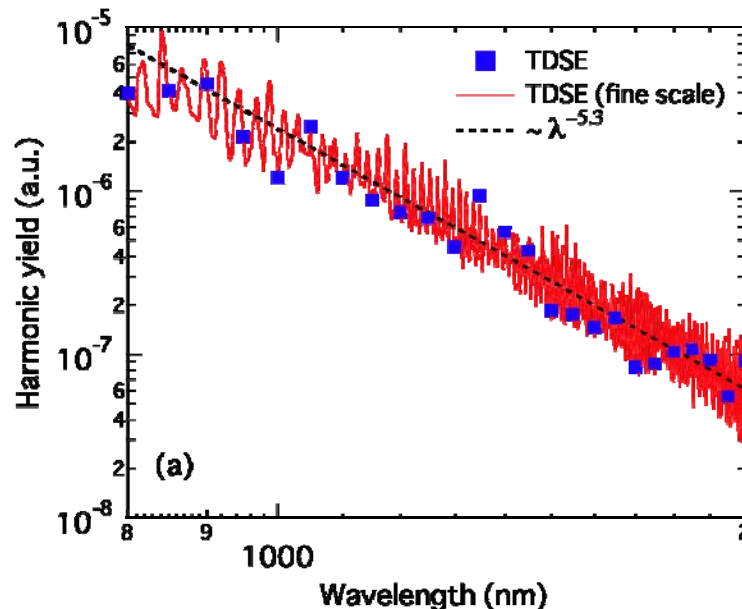


Fig. 3 ピーク強度 1.6×10^{14} W/cm² の8サイクルフラットトップパルスによる水素原子からの 20 ~50eVでの高次高調波発生収量の、基本波長依存性。50 nmピッチで計算した結果を正方形のマーカで、1 nmピッチの詳細な計算の結果を実線でしめす。破線は、累乗則によるフィット

イング。

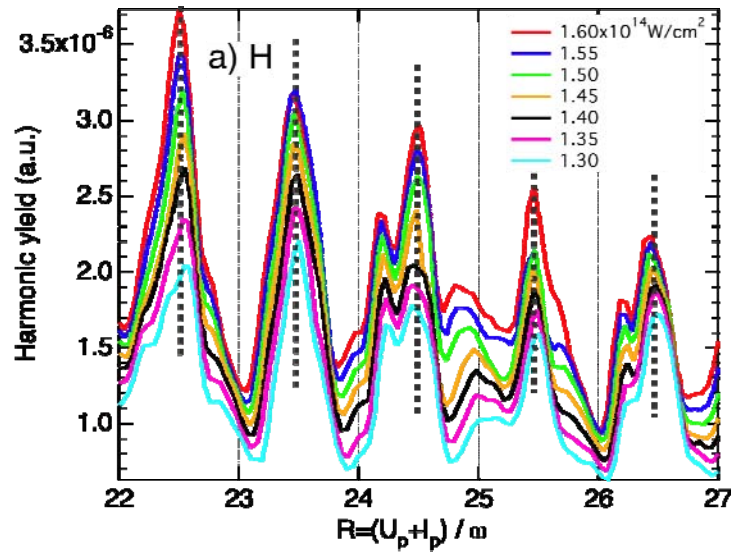


Fig. 4 いくつかの異なるピーク強度の8サイクルフラットトップパルスによる水素原子からの20～50eVでの高次高調波発生収量の基本波長依存性(1000～1100 nm)を、チャンネルクロージング数 R を横軸にプロットしたもの。

5. 自己評価

本研究の目標は、時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することであった。

成果として提案した「アト秒2重・3重スリット実験」は、高強度超短パルス光と高強度短波長光を組み合わせることによって電子のダイナミクスをあやつり、「基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生」はさらにそれを革新的なアト秒パルス発生法として応用するものである。いずれも大変興味深い成果である。

当初はリチウム原子や水素分子も研究対象として想定していたが、研究開始後に、従来とはことなる長波長(中赤外)光を用いた高次高調波発生が、アト秒科学の重要な潮流となった。そのため「高次高調波発生の基本波長依存性」の詳細な検討を、世界にさきがけておこなった。地道な解析から新しい発見が生まれ、波長そのものが、電子のアト秒量子ダイナミクスやその干渉を観測・制御する重要な手段であることが明らかになった。これらは膨大な計算量を必要とし、さきがけの助成なくしてはなしえなかった重要な成果である。

このように、当初のねらい・目的をしっかりと見すえ、かつ本研究分野の急速な発展を的確にとらえた、世界的な視点から価値のある十分な成果を挙げたものと自負している。

6. 研究総括の見解

時間依存シュレーディンガー方程式(TDSE)の直接数値解によって、高強度超短パルス光中の原子・分子のダイナミクスを解明し、原子の中で運動する電子の挙動を見る・あやつる革新的な方法を創出することを目標に研究を行った。主たる成果は次の3点である。

①「電子の挙動をあやつる」方法の一つとして、レーザーパルスによって干渉縞のでき方を制御する「アト秒2重・3重スリット実験」を提唱した。同じ1つの電子が、シングルスリットとダブルスリットの両方を同時に通過し、その結果が同じ方向で1つのエネルギースペクトルとして得られる、との内容で興味深い実験の提案として評価を得た。

②基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生手法を提案した。具体的には、アト秒パルス列を特定の量子経路をとりだすゲートとして利用し、アト秒シングルパルス発生に応

用できる可能性のもと、350 アト秒の単独パルスが発生できることを示した。

③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い、高調波収量において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。

理論的で独創的な研究手法により、アト秒科学の重要な潮流である「高次高調波発生の基本波長依存性」の詳細な検討を、世界にさがけておこない成果を得たことは高く評価できる。

研究成果は、9編の原著論文、8件の招待講演に纏められている。

「アト秒2重・3重スリット実験」は、高強度超短パルス光と高強度短波長光を組み合わせることによって電子のダイナミクスをあやつり、「基本波・極端紫外(XUV)同時照射によるアト秒パルス発生」はさらにそれを革新的なアト秒パルス発生法として応用するものである。今後、実験グループとの連携の基その有用性を確認して行くことも重要である。

電子やイオンなどの量子ビームやプラズマの物理も含めて、研究を展開して行き、光と量子ビームの統合シミュレーションまで展開することを期待する。

7. 主な論文等

(A) さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- ・ 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*, in press (2009).
- ・ 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).
- ・ K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa, Single-attosecond pulse generation using a seed harmonic pulse train, *Phys. Rev. A* 75, 021801(R) (2007).
- ・ K. L. Ishikawa, Temporal Young's interference experiment by attosecond double and triple soft-x-ray pulses, *Phys. Rev. A* 74, 023806 (2006).

(2) 受賞

- ・ 2008年12月 バイオスーパーコンピューティング・シンポジウム 2008 ベストポスター賞 受賞「モンテカルロ法による重粒子線治療シミュレーターの開発」

(3) 招待講演

- ・ (予定) K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, J. Burgdörfer, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, Wavelength dependence of high-harmonic generation, Ultra-Fast Dynamic Imaging of Matter II (UDIM09), Ischia Island, Naples, Italy, April 30-May 3, 2009
- ・ K. L. Ishikawa, Atoms in ultrashort intense laser and XUV pulses, 5th ADLIS (ADvanced Light Sources) Workshop, Munich, Germany, March 2-4, 2009.
- ・ 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.
- ・ K. L. Ishikawa, Atoms in intense ultrashort laser and soft-x-ray pulses, Canada-Japan Bilateral Conference on Ultrafast Intense Laser Science, Québec, Canada, March 5-8, 2007.
- ・ K. L. Ishikawa and K. Midorikawa, Two-photon double ionization of He by attosecond intense soft X-ray pulses, The 2005 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem), Honolulu, Hawaii, USA, Dec. 15-20, 2005.

(4)学会発表(国際学会口頭発表)

- 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.
- 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.
- 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.
- K. L. Ishikawa, Attosecond double- and triple-slit experiment, 15th International Laser Physics Workshop (LPHYS' 06), Lausanne, Switzerland, July 24–28, 2006.
- K. L. Ishikawa and K. Ueda, Coherent control of stepwise and direct multiphoton ionization in the ultrashort pulse regime, Conference on Lasers and Electro-Optics / Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO/QELS 2006), JTuB4, Long Beach, USA, May 21–26, 2006.

(B)その他の主な成果

(1)論文(原著論文)発表

論文(国際)

- 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).