



アト秒現象の理論

石川 顕一

東京大学大学院 工学系研究科システム量子工学専攻 (〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1)
科学技術振興機構 さきがけ (〒332-0012 埼玉県川口市本町4-1-8)

Theory of Attosecond Phenomena

Kenichi L. ISHIKAWA

Department of Quantum Engineering and Systems Science, Graduate School of Engineering, University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656
PRESTO, Japan Science and Technology Agency, 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama 332-0012

(Received August 7, 2007)

Attosecond extreme ultraviolet and soft X-ray pulses are generated through high-order harmonic generation, a highly non-linear and non-perturbative phenomenon. Nonlinear optical effects and electron-electron interaction play an essential role in various applications of attosecond pulses. The best way to study atomic dynamics under such circumstances theoretically is direct numerical simulation of the time-dependent Schrödinger equation (TDSE). The present article introduces how to model the high-field and ultrafast phenomena on the basis of TDSE, and reviews recent theoretical findings on attosecond pulse generation and attosecond phenomena, peculiar to the time scale of electronic motion inside an atom.

Key Words: Time-dependent Schrödinger equation, High-order harmonic generation, Attosecond phenomena

1. はじめに

極端紫外(XUV)および軟X線領域での新しい高強度超短パルス光源の代表として高次高調波¹⁾があげられる。2001年にKrauszらが高次高調波発生(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線パルスの発生に成功し、物質中の電子の超高速運動を観測したり自由に操作したりする「アト秒科学」という新領域が誕生した²⁾。これらの過程を理論的に研究するにはどうすればよいのだろうか。量子系の理論というと第1原理計算や量子化学計算を思い浮かべる人も多いであろう。しかし、高次高調波発生は高度に非線形・非摂動的な過程であり、またアト秒現象で関心の的になっているのは電子相関が重要な役割を果たすダイナミクスであるため、これらの手法では(現時点では)うまく取り扱うことができない。

基本に立ち返れば、量子系のダイナミクスは、時間依存シュレーディンガー方程式(time-dependent Schrödinger equation, TDSE)によって原理的に正確に記述することができる。そして現在までのところ水素、ヘリウム、リチウムに関しては、「原理的に」ではなく「実際に」TDSEによってダイナミクスを計算することができ、高次高調波発生やアト秒現象は主に、TDSEを数値シミュレーションすることによって研究されている。

たとえ少数の電子を含む系しか取り扱えないとしても、近似がつきものの理論研究において厳密解が得られるということの重要性と信頼性は計り知れない。そもそも、時間を含むシュレーディンガー方程式をそのまま計算機シミュレーションできるということに新鮮な驚きを感じる人も多いであろう。また、HHGでターゲットとしてよく用いられる希ガス原子は多くの電子を含んでいるが、幸いなことに高強度場現象は、そのうち1つだけが実効ポテンシャルを感じながら運動し残りの電子の波動関数は凍結されているとするsingle-active-electron (SAE)描像でよく説明できるため、1電子系のTDSEでも応用範囲は広い。このようなアト秒パルスの発生とそれが引き起こす現象の理論研究の主要な潮流—TDSEシミュレーション—を紹介することが本稿の目的である。

まず、第2章ではTDSEの数値計算モデルについて述べる。特定の計算手法を詳述することはさけ、異なる研究者によって用いられている手法のバリエーションについて概観する。続いて第3章ではフェムト秒レーザーによる高調波やアト秒パルスの発生について、また第4章ではアト秒パルスが引き起こす新奇な現象について、最新の理論研究の成果を紹介する。

2. 数値計算モデル

2.1 時間依存シュレーディンガー方程式

光の場における N 電子原子の振る舞いは、時間依存シュレーディンガー方程式、

$$i \frac{\partial \Phi(\{\mathbf{r}_j\}, t)}{\partial t} = (H_0 + H_I) \Phi, \quad j=1, \dots, N \quad (1)$$

で記述される。本稿では特に断らない限り原子単位を用いる。ここで H_0 は原子番号 Z の原子のハミルトニアン

$$H_0 = \sum_j \left(-\frac{1}{2} \nabla_j^2 - \frac{Z}{r_j} \right) + \sum_{j>k} \frac{1}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|} \quad (2)$$

である。双極子近似における相互作用のハミルトニアン H_I は、一般に2つの異なるゲージで書くことができる。一方はlength gaugeと呼ばれ、光電界 $\mathbf{E}(t)$ を用いて

$$H_I = \sum_j \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{E}(t) \quad (\text{length gauge}) \quad (3)$$

とあらわされ、他方はvelocity gaugeと呼ばれ、ベクトルポテンシャル $\mathbf{A}(t)$ を用いて

$$H_I = \sum_j \left(-i\mathbf{A}(t) \cdot \nabla_j + \frac{|\mathbf{A}|^2}{2} \right) \quad (\text{velocity gauge}) \quad (4)$$

とあらわされる。length gaugeでの波動関数 Φ_L とvelocity gaugeでの波動関数 Φ_V は

$$\Phi_L = \exp \left[i \sum_j \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{r}_j \right] \Phi_V \quad (5)$$

のようにゲージ変換され、観測量はどちらのゲージで計算しても同じになる。すなわち、2つのゲージは物理的に等価である。

2.2 Single-active-electron近似

式(1)を数値的に解くのは、水素様原子については比較的容易であるが、電子の数が増えるに従って、クーロン相互作用の項のために、計算量は指数関数的に増加する。これまで、ヘリウム(2電子)およびリチウム(3電子)については計算が行われているが、4つ以上の電子を含む系を取り扱うのは現時点ではほぼ不可能であるので、多くの理論研究が、1つの電子のみが実効ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ の中で運動するとみなすsingle-active-electron近似を用いている。モデルポテンシャルとしては、Kohn-Sham³⁾やHartree-Fockポテンシャル⁴⁾を用いる試みなどもあるが、次のようなシンプルなものを用いることもできる⁵⁾。

$$V(\mathbf{r}) = \frac{[1 + Ae^{-Br} + (Z-1-A)e^{-Cr}]}{r} \quad (6)$$

パラメーター A, B, C は、イオン化ポテンシャルと第1励起エネルギーの値が正しく再現されるように選ぶ。原子物理や電子構造計算に携わる研究者にとっては一見面白い近似に感じられるであろうが、高強度場においては励

起準位の詳細な構造はかき消されてしまうため意外に有効であり、実際、Muller⁵⁾はこのモデルポテンシャルが、Arの超しき電離(ATI)スペクトルを共鳴に起因するサブピークまでよく再現できることを示している。

このようにして得られるTDSEをどのようにシミュレーションするのか？まず1電子波動関数 $\Phi(\mathbf{r}, t)$ は、球面調和

関数を用いて一般には $\Phi(\mathbf{r}, t) = \sum_{l,m} R_{lm}(r) Y_l^m(\hat{\mathbf{r}})$ と、特に z 方

向の直線偏光の場合には $\Phi(\mathbf{r}, t) = \sum_l R_l(r) Y_l^0(\theta, \phi)$ と展開す

ることができる。ここで、多くの読者は、おそらく、動径波動関数($R_{lm}(r)$ または $R_l(r)$)を固有状態の線形結合として表わし、その展開係数の時間発展を計算する、というのを思い浮かべることであろう。しかしながら、そうではなく、空間グリッド上での動径波動関数の値の時間発展を直接計算するのが一般的になってきている。これは通常、波動関数を位置と時間の関数としてとらえている我々の感覚とも合致しており、計算結果を直観的に把握するのが容易であるというコンセプト上の利点もある。等間隔のメッシュが用いられることもあれば³⁻⁵⁾、計算コストを下げるために原子核に近いところほどメッシュを細かくする可変グリッドを用いるアプローチ⁶⁾もある。空間差分については、2次の差分、4次の差分、さらにはGauss-LegendreやB-Spline^{6,7)}などのより優れた内挿法が用いられることもある。

時間発展に関しては、ユニタリ性が保たれ時間ステップ Δt にかかわらず安定なCrank-Nicholson (Peaceman-Rachford)スキームが用いられることが多いが、ここでも可変時間ステップを用いたり、より高次の時間発展プロパーゲーターを用いるなどのアプローチもある。

すでに述べたように、原子と光の相互作用は2つのゲージで記述できる。式(3)(4)の形から、length gaugeでは原子核から遠いところで、velocity gaugeでは原子核に近いところでの計算負荷が大きくなる。従って、一般的には、XUV・軟エックス線パルスの場合にはlength gaugeが、逆に高強度の赤外レーザー光の場合にはvelocity gaugeが有利になる。ただし、原子とレーザー場の組み合わせからなるポテンシャルバリアーを電子波動関数が通り抜けていくというトンネル電離のイメージは、length gaugeによるものである。

これらの組み合わせによって、TDSEの数値解法には多様なバリエーションがある。また、上で紹介した位置空間で解く方法が用いられることがほとんどであるが、これに対して運動量空間で解く試み⁸⁾などもある。

2.3 ヘリウムのTDSE

2重電離や励起をともなう電離、電子相関が重要な役割を果たす過程を研究する場合には、SAE近似は使うことができない。もっとも単純な複数電子系はヘリウムであるが、幸いなことにXUV・軟エックス線領域での非線形光学の実験でしばしば使われるため、理論と実験の直接比較が可能である。

2電子波動関数の角度成分は、クレプシュ・ゴルダン係

数と球面調和関数, 合成各運動量 L を用いて

$$A_{l_2}^{L_2}(\hat{r}_1, \hat{r}_2) = \sum_m \langle l_1 m l_2 - m | L 0 \rangle Y_{l_1 m}(\hat{r}_1) Y_{l_2 - m}(\hat{r}_2) \quad (7)$$

で定義される結合型球面調和関数 $A_{l_2}^{L_2}$ で展開することができる. (r_1, r_2) に依存する動径波動関数は空間グリッド上の値で表現し, クーロン相互作用まで厳密に取り込んだ差分方程式を構築することができ(詳細については文献9)を参照), 時間発展は例えば前進差分法で計算できる. この時間依存緊密結合法以外にも, これ¹⁰⁾を改良して時間発展をより計算コストの少ない Krylov subspace法¹¹⁾で計算する試みや, 超球座標を用いたアプローチ¹²⁾もある.

3. 高次高調波とアト秒パルスの発生

アト秒パルスやパルス列は, 高次高調波として得られる. 本章では, 水素様原子やSAE近似でのアプローチを用いた高次高調波発生やアト秒パルス発生に関する研究を紹介する.

3.1 高次高調波発生の飛躍的増大効果

標的原子のイオン化ポテンシャルに比べて, 基本波レーザーが多光子電離領域にあって弱く, イオン化レートが低い場合には, 高調波の発生効率も低くなる. 波長800 nm, ピーク強度 3×10^{14} W/cm²の基本波を水素原子およびヘリウムイオン(He⁺)に照射した場合の高調波スペクトルを計算したものをFig. 1に示す^{13,14)}. He⁺のイオン化ポテンシャルは54.4 eVと水素原子(13.6 eV)よりかなり大きいので, 高調波発生効率は10桁以上低くなっており, 実質上高調波はほとんど観測されないであろう.

このような状況では, XUV・軟エックス線を同時照射して電離をアシストすることによって, HHGを制御することができる. 同じくFig. 1に, 強度 10^{13} W/cm²の27次高調波(波長29.6 nm)を同時照射した場合の高調波ス

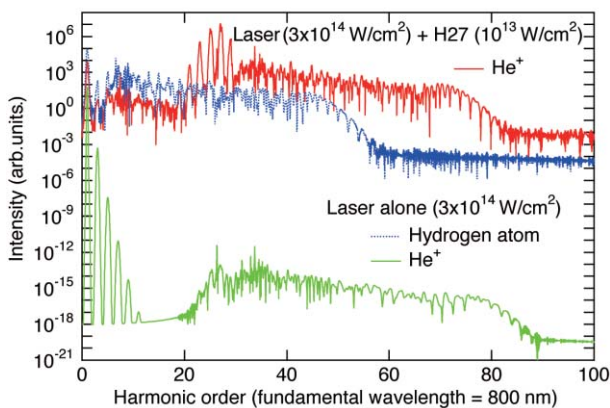


Fig. 1 Upper solid curve: harmonic spectrum from He⁺ exposed to a combined fundamental and its 27th harmonic pulse with a duration of 10 fs, the former with a peak intensity of 3×10^{14} W/cm² and the latter 10^{13} W/cm². The fundamental wavelength is 800 nm. Lower solid and dotted curves: harmonic spectrum from He⁺ and H, respectively, exposed to the fundamental pulse alone.

ペクトルを示す. カットオフエネルギーは高いまま, 発生効率が17桁も向上していることが分かる^{13,14)}. 基本波の波長を750~850 nmの範囲で変化させても(27次高調波の波長も変化することに注意)同程度の増大がみられる. この飛躍的増大効果のメカニズムには, Fig. 2に示すように, 重ね合わせ状態からの高調波発生と仮想励起状態からのトンネル電離の2種類があり, いずれにおいてもXUV・軟エックス線の付加によってイオン化の確率が飛躍的に高まるのがポイントである^{13,14)}. 従ってこの効果は, 基本波のみではほとんど高調波が発生しないときに有効であり, 基本波だけで十分な高調波が得られているときには, 増大効果は見られない. また, 共鳴励起は必要ではなく, 仮想準位からのトンネル電離によって飛躍的増大効果は起こる. 付加するXUV・軟エックス線の光子エネルギーがイオン化ポテンシャルより小さい場合の方が, 増大効果は顕著である. この飛躍的増大効果は, 最近, 実験によって実証された¹⁵⁾. その詳細については, 本特集の高橋 栄治氏の報告を参照されたい.

Fig. 1においては1つの次数の高調波を同時照射することを考えた. これに対して, 複数の次数を重ね合わせることで基本波の半周期毎にくり返すアト秒パルス列が得られる. 一方で, 高調波の各次数には, レーザーの毎半周期の特定の位相で放出され再結合する電子の量子経路が寄与している¹⁶⁾. Schaferら¹⁷⁾はHeのSAE計算を行い, 11~19次光からなるアト秒パルス列と基本波のタイミングを調節することによって特定の量子軌道を選択し, 高調波スペクトルのプラトーやカットオフの構造を制御することができることを示した.

3.2 基本波・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用いるアイデアをさらに推し進めると, アト秒単パルス発生に応用できる可能性がある. Fig. 3(a)に示すように, 波長800 nm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 μ mの駆動光との組み合わせによる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15 fs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る. 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

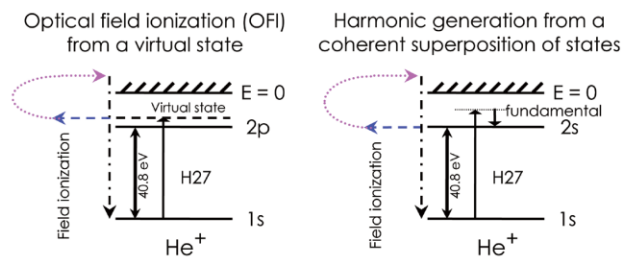


Fig. 2 Two mechanisms of the dramatic enhancement of HHG.

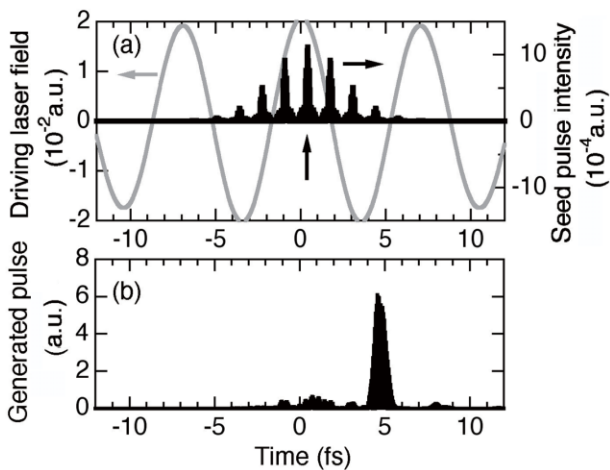


Fig. 3 (a) Temporal profile of the 10^{13} W/cm² seed harmonic pulse intensity (black, right axis) with a global pulse width of 5 fs and the 1.5×10^{13} W/cm² driving laser field (gray, left axis) with a pulse duration of 30 fs. (b) temporal profile of the generated pulse intensity, around 30 nm wavelength.

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SAE計算を行い30 nm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. 3(b)に示す。パルス幅800 asの単独パルスが得られていることが分かる¹⁸⁾。ここで紹介した方法では、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)¹⁸⁾の役割を果たすため、アト秒単パルスが発生する。逆の波長の組み合わせ、すなわち波長2.1 μmの基本波の高調波からなるシードパルス列と波長800 nmの駆動光との組み合わせでも、350 asの単独パルスが発生できることが示されていることを付け加えておく¹⁸⁾。

複数のパルスを組み合わせアト秒単パルスを発生する提案はほかにもある。たとえば、Zengら¹⁹⁾は比較的弱い超短パルス(~5 fs)とパルス幅の長い(~50 fs)高強度パルスの組み合わせで、ほぼ単独のアト秒パルスを発生できることを示している。この場合、前者がスイッチの役割を果たしているのに対し、HHGに必要な電界のほとんどは後者から供給されており、超短パルスの強度を上げる必要がないのが特徴である。また、Pfeiferら²⁰⁾はパルス幅12 fsの基本波パルスに1%程度の強度の2倍を組み合わせることで、単独パルスを発生できることを示している。このように電場形状を少し変化させることによって、基本波の半周期ではなく1周期ごとに高調波パルスが発生するようになり、基本波のみの場合に比べて倍程度のパルス幅でもアト秒単パルスが発生できるようになるのである。

4. アト秒パルスによるイオン化

4.1 ヘリウムの2光子2重電離

高次高調波発生の特徴は、アト秒パルスの発生が可能であることに加えて、高強度のパルスが発生できることである。これによって、XUV・軟エックス線領域での非線形光学が可能になった。その例として、ヘリウムの2光子2重電離をとりあげる。ヘリウムの第1および第2イオン化ポテンシャル(それぞれ24.6 eVと54.4 eV)の和は79 eVであるため、波長800 nmの基本波の27次高調波(41.8 eV)を用いれば実現可能で、実際観測されている^{21,22)}。

この過程の断面積は、TDSEシミュレーションで得られる収量から計算できる。報告されている理論計算は、対象としている光子エネルギーが41.8~45 eVの範囲内に広がっているため単純には比較できないが、断面積の値が $0.015 \sim 8.1 \times 10^{-52}$ cm⁴sの範囲に分布し報告によって大きな隔たりがある。この不一致の原因は現時点でははっきりしていないが、我々の計算によると 0.30×10^{-52} cm⁴sであり、これは実験値 0.4×10^{-52} cm⁴sとよく整合している²²⁾。

79 eV以上の軟エックス線ではヘリウムは1光子でも2重電離するが、強度が十分に強ければ段階的に2つの光子を吸収して2価イオンになる過程も考えられる。これをアト秒パルスで起こした場合、光電子エネルギー分布はどのようなであろうか。光子エネルギー91.45 eV(800 nm)の59次高調波、パルス幅450 asの軟エックス線パルスの場合の2電子エネルギー分布をFig. 4に示す。光子エネルギーからは67 eVと37 eVの2か所にピークができることが予想されるが、Fig. 4を見るとその2つのピークの間少しであるが電子分布があることが分かる。この成分の割合はパルス幅が短くなるほど増え、75 asの場合には実質1つのピークになってしまう。これは広がった2つのピークのすその重なりとしては説明できない「異常」成分である¹⁰⁾。

同様の現象は、複数の理論計算によって報告されている²³⁻²⁵⁾が、この異常成分の起源は何であろうか。我々は直観的にイオン化の瞬間から基底状態のイオンが残されるイメージを持っているが、実際には2電子間の相関が瞬間的になくなることはないため、22 asの相関時間を経て基底状態に至る。アト秒パルスの場合にはこの非常に短い緩和時間も無視し得なくなり、その間に第2のイオン化が起こる事象が異常成分となるのである^{10,24)}。Barnaら²⁵⁾は通常のピークでの電子の角度分布が双極的で独立電子に対応しているのに対して、異常成分の角度分布には顕著な四重極成分が含まれていることを見出し、これは相関誘起のイオン化であることを支持している。

4.2 アト秒2重・3重スリット実験

アト秒パルス列は複数の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. 5(b)の実線)。この至極当然な結果は、電子の二重性の表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

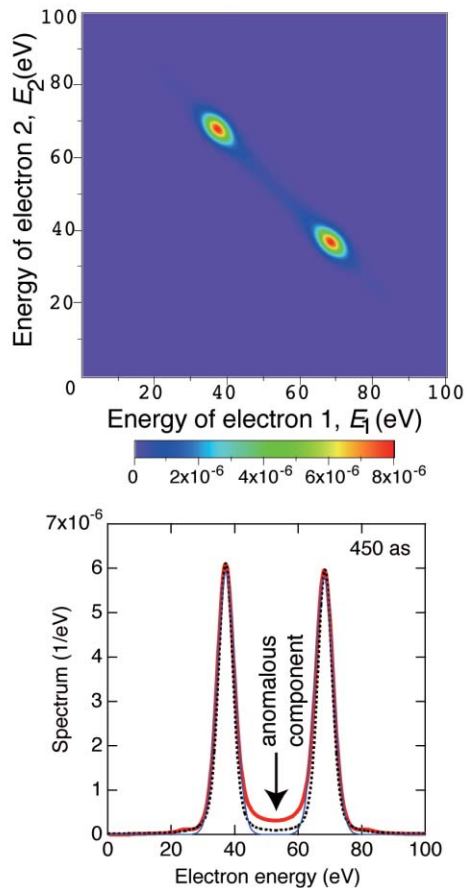


Fig. 4 Energy distribution of the electrons ejected through two-photon double ionization of He. Probability distribution $P(E_1, E_2)$ of the energy E_1, E_2 of the two electrons for a pulse width of 450 as.

オン化では電子がどのパルスによって放出されたかわ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。

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」²⁶⁾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_i は、角度 q 方向では $-\sqrt{2}W_i A(t_r) \cos\theta$ だけシフトする。

Fig. 5(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800 nm, パルス幅 5×10^{12} W/cm²) を照射した場合の、0°方向のスペクトルをTDSE計算で求めたものをFig. 5(b) に示す²⁷⁾。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ッジは消え、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、フリッジ間隔がトリプルパルス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つだけということであ

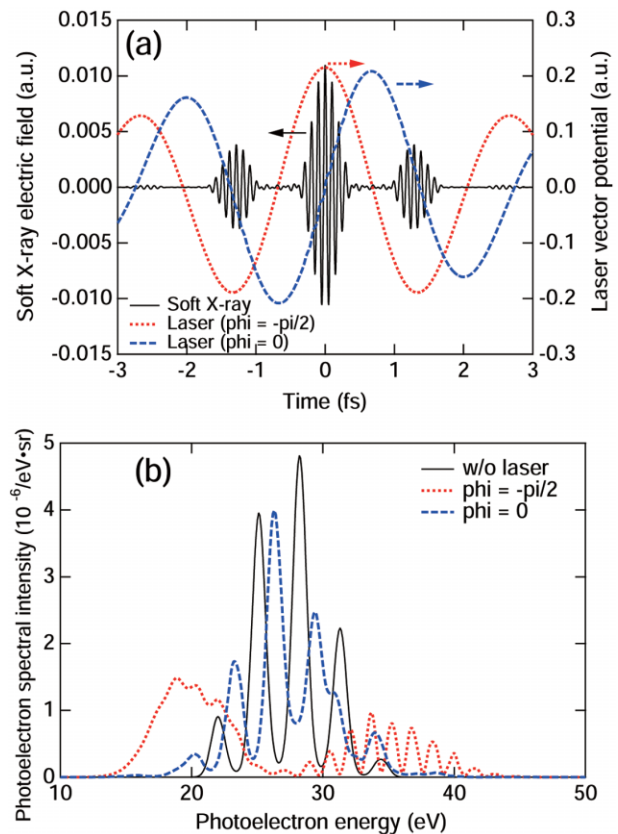


Fig. 5 (a) Temporal variation of an attosecond soft-x-ray triple pulse (solid line), composed of the 23rd to 31st harmonics of a laser pulse with a wavelength of 800 nm. In addition, a temporal profile of the vector potential of the laser electric field with a carrier-envelope phase of 0 (dashed line) and $-\pi/2$ (dotted line). The peak intensity is 5×10^{12} W/cm². (b) calculated kinetic energy spectra of photoelectrons ejected to the direction $\theta=0$ by the triple pulse without (solid line) and with the energy-shearing laser pulse (dashed and dotted lines).

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つのエネルギースペクトルとして得られるのである²⁷⁾。

時間領域の2重スリット実験は、レーザーパルスによるトンネル電離でも実現できる。この場合、観測される電子の運動量がFig. 5(a)のベクトルポテンシャルに比例する。従って、たとえば点線のようなパルスの場合でパルス幅が十分に短ければ、0°方向(図の下側)にはダブルスリットなので電子エネルギースペクトルにフリッジが見られ、180°方向にはシングルスリットなので、フリッジが消えることが予想される。実際、Lindnerらは、Arのトンネル電離による電子エネルギースペクトルに上で予想したようなフリッジを観測し、さらにパルスのキャリアエンベロープ位相によってフリッジパターンが変化し、それがTDSE計算の結果と合致することを見出している²⁸⁾。

5. おわりに

アト秒XUV・軟エックス線パルスおよびその発生に必要なフェムト秒レーザーと原子の相互作用を、時間依存

シュレーディンガー方程式によって計算する手法と、そのような数値シミュレーションに基づく、アト秒パルスの発生と応用、アト秒領域特有の現象に関する最近の理論研究について概観した。

我が国では、XUV・軟エックス線領域での非線形光学効果において他国の追随を許さない実験成果があがっており、4.1節で紹介したヘリウムの2光子2重電離はこれに関連する研究である。一方で、より高次で短波長の高調波への展開や、多くのアト秒光源がそれほど高強度でない現状を鑑みると、アト秒パルス応用の将来展望としては、赤外・可視光レーザーと積極的に組み合わせるのが有望であると考えられる。実際、本稿で紹介した研究の多くも、アト秒パルスと赤外・可視光レーザーが同時に存在する場における原子の振る舞いに関するものであり、今後さらにその傾向は強まるであろう。

計算機技術の目覚ましい進歩により、SAE近似でのシミュレーションは比較的容易になり、パラメータをふりながら計算を繰り返すこともできるようになった。しかしながら、アト秒XUV・軟エックス線パルスとフェムト秒レーザーパルスが同時に存在する場におかれたヘリウムの挙動をシミュレーションするのは、膨大な計算コストのために極めて困難である。また、より短波長でパルス幅の短いアト秒パルスを求めて、中赤外光パルスによるHHGが注目を集めているが、中赤外領域では、関係する空間領域が広くなり部分波(角運動量 l)の数も多くなるため、急激に計算コストが増大する。計算手法の改良によって、現在では困難なこれらのシミュレーションが手軽に行えるようになることが切望される。一方で、数個以上の電子を含む原子のダイナミクスを(SAE近似を用いずに)TDSEシミュレーションするのはおそらく永遠に不可能であり、何らかの近似を伴う手法を発展させることも重要である。本稿では紹介できなかったが、時間依存密度汎関数理論²⁹⁾や多配置時間依存ハートリー・フォック法³⁰⁾などの開発も進んでおり、特徴の異なるさまざまな手法からの知見を総合することによって、アト秒科学がさらに進展していくことを期待している。

謝 辞

本稿中で紹介した我々のグループの研究は、主に(独)科学技術振興機構さきがけ研究、文部科学省科学研究費補助金、(財)光科学技術振興財団のご支援を受けて行われた。これらの研究助成に深く感謝する。

レーザーワード

アト秒現象 (attosecond phenomena)

1フェムト秒より短いアト秒領域(1アト秒=10⁻¹⁸秒)の極短時間に起こる超高速現象。特に、内殻電子励起、自動電離、オージェ効果など、アト秒から数フェムト秒の時間スケールで起こる原子・分子内の電子の運動をさすことが多い。水素の原子核(陽子)からボーア半径(5.3×10⁻¹¹ m)だけ離れて等速円運動する電子を考えると、その周期はおよ

- ## 参考文献
- 1) 緑川 克美, 須田 亮, 高橋 栄治, 鍋川 康夫: 応用物理 **73** (2004) 167.
 - 2) M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz: Nature **419** (2002) 803.
 - 3) D. Bauer and P. Koval: Comput. Phys. Commun. **174** (2006) 396.
 - 4) K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause: in *Atoms in Intense Laser Fields* ed. M. Gavrila (Academic, New York, 1992) p. 247.
 - 5) H. G. Muller: Phys. Rev. A **60** (1999) 1341.
 - 6) X.-M. Tong and S.-I. Chu: Chem. Phys. **217** (1997) 119.
 - 7) H. Bachau, E. Cormier, P. Decleva, J. E. Hansen, and F. Martín: Rep. Prog. Phys. **64** (2001) 1815.
 - 8) A. de Bohan, B. Piraux, L. Ponce, R. Taïeb, V. Vénier, and A. Maquet: Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 113002.
 - 9) M. S. Pindzola and F. Robicheaux: Phys. Rev. A **57** (1998) 318.
 - 10) K. L. Ishikawa and K. Midorikawa: Phys. Rev. A **72** (2005) 013407.
 - 11) J. Feist, S. Nagele, E. Persson, B. Schneider, L. Collins, K. L. Ishikawa, and J. Burgdörfer: unpublished.
 - 12) T. Morishita and C. D. Lin: Phys. Rev. A **57** (1998) 4268.
 - 13) K. Ishikawa: Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 043002.
 - 14) K. L. Ishikawa: Phys. Rev. A **70** (2004) 013412.
 - 15) E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 053904.
 - 16) P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milosevic, A. Sanpera, M. Lewenstein: Science **292** (2001) 902.
 - 17) K. J. Schafer, M. B. Gaarde, A. Heinrich, J. Biegert, and U. Keller: Phys. Rev. Lett. **92** (2004) 023003.
 - 18) K. L. Ishikawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa: Phys. Rev. A **75** (2007) 021801 (R).
 - 19) Z. Zeng, R. Li, X. Xie, and Z. Xu: Phys. Rev. A **70** (2004) 053809.
 - 20) T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel, D. M. Neumark, and S. R. Leone: Opt. Lett. **31** (2006) 975.
 - 21) Y. Nabekawa, H. Hasegawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 043001.
 - 22) H. Hasegawa, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, K. L. Ishikawa, and K. Midorikawa: Phys. Rev. A **71** (2005) 023407.
 - 23) J. S. Parker, L. R. Moore, K. J. Meharg, D. Dundas, and K. T. Taylor: J. Phys. B **34** (2001) L69.
 - 24) S. Laulan and H. Bachau: Phys. Rev. A **68** (2003) 013409.
 - 25) I. F. Barna, J. Wang, and J. Burgdörfer: Phys. Rev. A **73** (2006) 023402.
 - 26) J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Yu. Ivanov, F. Krausz, and P. B. Corkum: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 173903.
 - 27) K. L. Ishikawa: Phys. Rev. A **74** (2006) 023806.
 - 28) F. Lindner, M. G. Schätzel, H. Walther, A. Baltuska, E. Goulielmakis, F. Krausz, D. B. Milosevic, D. Bauer, W. Becker, and G. G. Paulus: Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 040401.
 - 29) 矢花 一浩: 日本物理学会誌 **62** (2007) 406.
 - 30) J. Caillat, J. Zanghellini, M. Kitzler, O. Koch, W. Kreuzer, and A. Scrinzi: Phys. Rev. A **71** (2005) 012712.

そ150アト秒であることから、原子・分子内の電子がアト秒の時間スケールで運動していることが分かる。アト秒現象の研究には、(おもに高次高調波発生をもちいた)アト秒パルスの発生と計測、アト秒パルスと物質の相互作用なども含まれる。(石川 顕一)