

アト秒現象と高次高調波発生理論

東京大学大学院工学系研究科 石川 顕一

1. 本研究分野の概要

極端紫外および軟エックス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（フェムト秒レーザーパルスに照射された原子・分子から波長変換によって発生する整数倍の周波数の電磁波）があげられる。2001年に、高次高調波発生によりパルス幅が1フェムト秒を切るアト秒パルスの発生が初めて報告されて以来、原子・分子中の電子の超高速運動（「アト秒現象」あるいは「アト秒ダイナミクス」）を観測したり自由に操作したりする新しい研究分野（「アト秒物理」あるいはより広く「アト秒科学」）が進展してきた。

この研究分野の特徴の一つは、理論・シミュレーションの研究者が、実験の研究者と緊密に連携しながら、強力に発展を推し進めていることである。理論研究には、コンピューターを用いて光と物質の相互作用を記述する時間依存シュレーディンガー方程式 (time-dependent Schrodinger equation: TDSE) の数値解を直接求めるアプローチが有効に用いられている¹⁾。量子化学計算や密度汎関数法よりも第1原理的なこの手法は、高度に非線形・非摂動的な過程や、電子相関が重要な役割を果たすダイナミクスの研究に威力を発揮している。これに、準解析的な Lewenstein モデルや、半古典的な3ステップモデルによる解析を組み合わせて、アト秒現象や高次高調波発生理論の研究が進められている²⁾。

2. 本研究分野の現状と最近の進歩

従来、高次高調波発生は、主に波長 800 nm 前後の基本波長（発生に用いる駆動レーザーの波長）で行われてきた。カットオフ（発生する高調波の光子エネルギーの最大値）は、基本波長の2乗に比例してのびる。そこで、近年、水の窓（波長 2~4 nm）~keV 領域のアト秒パルス発生をめざし、中赤外（波長 1.5~3 ミクロン）の高強度レーザーの開発が進められている。これと歩調を合わせるように、中赤外レーザーによる高次高調波発生理論研究が盛んに進められている。特に、高次高調波発生効率の基本波長依存性は、重要な研究対象として急速な広がりを見せている。

アト秒パルス光源としての観点からの関心事は、基本波長 800 nm 付近と 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大域的な依存性である。高調波の取量は基本波長のマイナス 5~6 乗に比例することが相次いで報告され、中赤外光による高調波発生困難さを示すものとして衝撃を与えている³⁾。図1に、水素原子の場合の例を示す。希ガス原子に対しても大域的な波長スケールは同様である。これに対して、最近、Xe や Kr を用いた実験で波長のマイナス 6.5 乗程度のスケールが報告されている。一方、カットオフ領域に放射される高調波に注目すれば、基本波長とともに発生効率が増加する波長領域があることを示す理論研究も報告されている。

物理的な観点から、基本波長の小さな変化に対して発生効率がどのように変化するかという詳細な波長依存性に関する

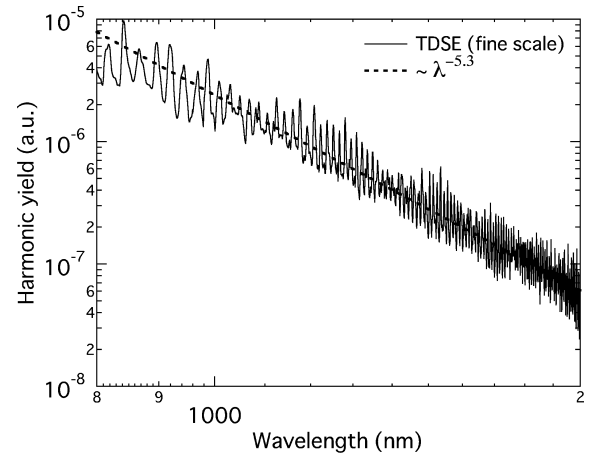


図1 高次高調波取量の基本波長依存性（水素原子）

研究も活発になっている。特に、発生効率は、微細な波長範囲では、上下に驚くほど激しく振動することが分かってきた（図1）³⁾。高次高調波発生メカニズムは、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、3ステップモデルで説明される。上記の振動は、再結合電子の経路の量子力学的な干渉の効果として理解されている。しかも、従来考えられていたよりもはるかに多い10以上の経路が干渉し合っていることが明らかになっている。

3. 本研究分野の将来性・応用

中赤外レーザーを用いてより短波長のアト秒パルスを発生する実験が本格化するにともない、高次高調波発生理論研究の重要性はますます高まると考えられる。特に、巨視的な伝播や位相整合の効果を考慮した、基本波長依存性の研究の進展が期待される。

アト秒科学や高次高調波発生研究はこれまで原子や小さな分子を中心に行われてきた。将来的により幅広い応用を持つ分野へと発展するためには、より大きな系・より複雑な系をも研究対象としていく必要があると考えられる。例えば、透明誘電体、ナノプラズモニックデバイス・メタマテリアル、生体高分子・DNA などにおけるアト秒現象・高強度場現象は、ほとんど未開拓である。独創的な理論研究が、この「複雑系のアト秒ダイナミクス」とよぶべき分野の推進力となっていくことが期待される。

参考文献

- 1) 石川 顕一, レーザー研究, 36, 25 (2008).
- 2) K. L. Ishikawa, "High-Harmonic Generation," in *Advances in Lasers and Electro optics*, intechweb.org (forthcoming).
- 3) K. L. Ishikawa, K. Schiessl, E. Persson, and J. Burgdörfer, *Phys. Rev. A* 79, 033411 (2009).