

高次高調波を用いた超短パルス極端紫外光発生

小柳 洋平



学位論文

高次高調波を用いた超短パルス極端紫外光発生

東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻

小林 洋平

平成10年2月

目次

第1章 序章	1
1.1 超短パルスレーザー	1
1.2 高強度レーザー	3
1.3 高次高調波	4
1.4 本論文の目的と概要	5
第2章 高次高調波の理論	7
2.1 はじめに	7
2.2 多光子イオン化の理論	8
2.3 摂動を用いた高次高調波の理論	9
2.4 非摂動の高次高調波の理論	10
2.4.1 概要	10
2.4.2 Becker's model	11
2.4.3 Quasi static 理論	11
2.4.4 Lewenstein の計算	13
2.5 位相整合	16
第3章 高次高調波の観測	19
3.1 はじめに	19
3.2 分光器の設計	19
3.2.1 高次高調波発生機構	21
3.2.2 分光	21
3.2.3 検出	22
3.2.4 差動排気	23
3.2.5 分光器の波長校正と分解能	23
3.3 高次高調波の観測	24

3.4 高次高調波による軟X線擬白色光発生	24
3.4.1 自己位相変調の理論	24
3.4.2 実験装置	27
3.4.3 実験結果	28
3.4.4 考察	33
3.5 結論	35
第4章 交差相関法による高次高調波のパルス幅測定	37
4.1 はじめに	37
4.2 交差相関法の原理	38
4.3 レーザーシステム	42
4.4 実験装置	42
4.5 実験結果	45
4.6 考察	47
4.6.1 時間分解能	47
4.6.2 ポンプ光が先行したときの透過率変化	48
4.7 結論	50
第5章 自己相関法による高次高調波のパルス幅測定	51
5.1 はじめに	51
5.2 極端紫外領域における非線形光学効果の測定	52
5.2.1 非線形光学効果のために	52
5.2.2 高調波の高強度化	53
5.2.3 次数選択	54
5.2.4 高調波の集光	58
5.2.5 ターゲットガスの密度	59
5.2.6 生成するイオンの見積もり	60
5.2.7 レーザーシステム	60
5.2.8 実験装置	60
5.2.9 実験結果	62
5.2.10 考察	65
5.3 自己相関法によるパルス幅測定	70
5.3.1 自己相関のために	70

5.3.2 実験装置	71
5.3.3 実験結果	71
5.3.4 考察	77
5.4 結論	85
第6章 結論	87
6.1 高次高調波の観測	87
6.2 交差相関法による9次高調波のパルス幅測定	87
6.3 自己相関法による9次高調波のパルス幅測定	87
6.4 極端紫外、軟X線光源としての高次高調波の性質	89
6.5 今後の展望	92
AppendixA自己相関関数	97
AppendixB物質の透過によるパルスの変化	99
AppendixC高調波の位相の求め方	101
謝辞	103
参考文献	105
発表論文	115

目 次

1.1	パルス幅の歴史	2
1.2	高調波の最高次数の変遷	5
1.3	高調波の最短波長の変遷	6
3.1	分光器の概略図	20
3.2	高調波発生機構	21
3.3	分光器の分解能	24
3.4	MCPを用いて観測した高次高調波のスペクトル	25
3.5	EMTを用いて観測した高次高調波のスペクトル	25
3.6	高次高調波の補正後のスペクトル	26
3.7	レーザーシステム	29
3.8	自己位相変調実験配置図	30
3.9	高調波スペクトルのレーザーエネルギー依存	31
3.10	高調波スペクトルのガス圧依存	32
3.11	集光後の基本波スペクトルのエネルギー依存	33
3.12	アルミニウム薄膜の透過率測定	34
4.1	Krのエネルギー準位図	39
4.2	交差相関法の原理図1	40
4.3	交差相関法の原理図2	41
4.4	レーザーシステム	43
4.5	実験配置図	44
4.6	9次高調波の透過率変化1	45
4.7	9次高調波の透過率変化2	46
4.8	7次高調波の透過率変化	47
4.9	クリプトンのイオン化レートの計算	48

5.1	7、9次高調波の2光子イオン化	53
5.2	光量の増大の配置図	54
5.3	ガスチューブの位置に対する9次高調波の光量	55
5.4	高調波の次数に対する様々な物質の反射率	56
5.5	高調波の次数に対するアルミニウムの反射率	57
5.6	アルミニウム反射後の高調波スペクトル	58
5.7	パルスガスジェットの細工	59
5.8	高調波による2光子イオン化の実験配置図	61
5.9	ヘリウムのイオンスペクトル	63
5.10	アルゴンのイオンスペクトル	64
5.11	9次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量	66
5.12	7次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量	67
5.13	7次、9次高調波の強度に対するアルゴンイオンの生成量	68
5.14	自己相関法に用いたレーザーシステム	72
5.15	自己相関法の実験配置図1	73
5.16	自己相関法の実験配置図2	73
5.17	9次高調波の自己相関波形	74
5.18	アルゴンを非線形媒質とした7次高調波の自己相関波形	75
5.19	ヘリウムを非線形媒質とした7次高調波の自己相関波形	76
5.20	ガスチューブの位置に対する9次高調波のパルス幅配置図	77
5.21	ガスチューブの位置に対する9次高調波のパルス幅	78
5.22	高調波の集光による分解能	79
5.23	レーザーの集光強度に対する9次高調波の光量と位相の計算	80
5.24	イオン化を無視した時の9次高調波のパルス波形	81
5.25	イオン化を考慮した時の9次高調波のパルス波形	82
5.26	イオン化を考慮した時の9次高調波のパルス波形に対する位相	82
5.27	空間を考慮した時の9次高調波波形の集光強度依存	83
5.28	9次高調波の位相補償	85
6.1	パルス幅の歴史における本研究による高次高調波のパルス幅	88
6.2	高次高調波と他光源との比較	93
6.3	高調波のスペクトルとそのフーリエ変換波形	94

表 目 次

5.1	チタンサファイアレーザー（波長 800 nm）の高調波の光子エネルギー	52
5.2	2光子イオン化を観測できる次数	52
5.3	集光鏡とガス種による多光子吸収	58
5.4	2次の自己相関で測定される次数	70
5.5	3次の自己相関で測定される次数	71
6.1	他光源との比較	91

第1章 序章

1.1 超短パルスレーザー

1960年にルビーレーザーが発振して[1][2]以来、人類は非常に純粋な可視光を手に入れることができるようになった。このレーザーはフラッシュランプ励起で波長が694.3 nm、パルス幅はマイクロ秒であった。これはコヒーレントな光であり、パルス強度が強いことから非線形光学効果が起こることが予想され、1961年には最初の2次の非線形光学効果である第2高調波の発生が実現した[3]。パルスレーザーはこの後1962年、Qスイッチの開発により120 nsパルスとなり[4]、1964年にHe-Neレーザーで能動モード同期法が開発された。1966年にはガラスレーザーに色素の過飽和吸収体をいれることにより受動モード同期法が成功し500 psのパルス幅が得られている[5]。1972年には、色素レーザーで受動モード同期により1.5 psパルスが発生し[6]、さらに色素レーザーによる超短パルス化が進み1974年には0.5 psパルスを[7]、衝突モード同期により1981年には90 fs[8]、1985年には27 fsパルスが発生している[9]。1987年にはこの共振器から発生したパルスをファイバーに通しスペクトル幅を広げ、パルス圧縮することにより6 fsパルスの発生に成功している[10]。この頃の超短パルス競争は色素レーザー主導でおこなわれてきたが、1991年にチタンサファイアレーザーで受動モード同期の一つである、カーレンズモード同期が実現し時代はチタンサファイアへと移行した[11][12]。この理由としてチタンサファイアは色素に比べて扱いやすく、バンド幅が広いことによりフェルミエ境界パルスで3 fsとなる非常に優れた結晶であり、カーレンズモード同期は装置が非常に簡単である利点が上げられる。1992年には共振器内の分散補償により共振器からのパルス幅は17 fsになり[13]、1993年には11 fsにまで発展を遂げている[14]。1995年にはそれまでのプリズムペアによる共振器内の分散補償に代わりチャープ補償ミラー[15]を用いることにより8 fsのパルスが共振器から発生するようになった[16]。1996年、1997年にはそれぞれ7.5 fs[17]、6.5 fsパルス発生が可能となり、これが共振器からの現在の最短パルスである[18]。また、キャビティダンピングをもちいた共振器から発生したパルスをファイバーに通しバンド幅を広げ、圧縮することにより5 fsのパルスが繰り返し1 MHzで出ている[19]。ほぼ同時期に再生増幅器で

増幅したパルスの中空ファイバーに入れ、バンド幅を広げる方法で繰り返し 1kHz でパルス幅 4.5 fs のパルスが発生した [20]。これが現在のパルス幅の最小値である。ここまで述べたパルス幅の歴史を図 1.1 に示す。

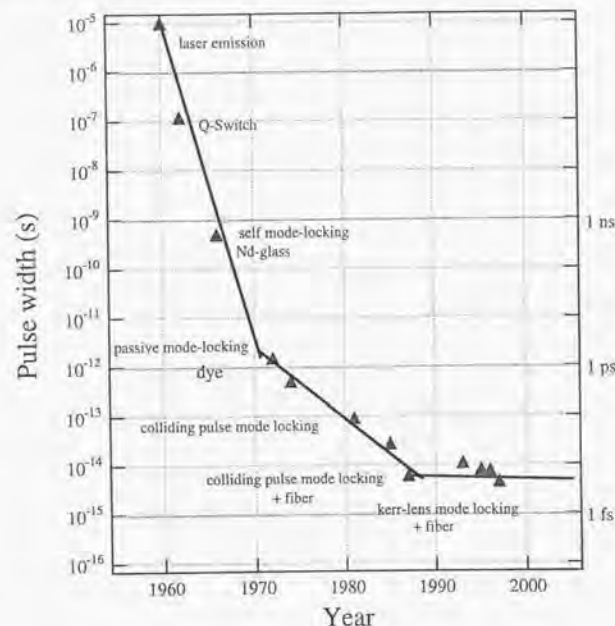


図 1.1: パルス幅の歴史

この間のパルス幅の変遷を見ると Q スイッチ法から 1987 年の 6 fs パルス発生までパルス幅は順調に短くなってきた。ところがこの 6 fs という記録はこの 10 年間破られず、1997 年になってようやくチタンサファイアレーザーにより 4.5 fs という記録が作られた。この 10 年間のパルス幅の記録の停滞の理由として 4.5 fs という時間が光の電場サイクルの 2 周期分に相当し、光パルスとしてはすでに近赤外領域の限界に達していることが挙げられる。これ以上の短パルス化には必然的により短い波長の光を使わざるを得ない。加えて超短パルスを作るためにはコヒーレンスの良い光で、スペクトル幅の広いものを使わなくてはな

らない。現在紫外光ではエキシマレーザーが存在するが、スペクトル幅の面から最短パルスを更新することはできない。また真空紫外領域ではエキシマランプ、希ガスランプ、軌道放射光、軟 X 線レーザー等があるが、時間領域で位相が一定でなく、スペクトル間に規則的な位相特性がないため超短パルスを作ることはできない。一方、レーザーの高調波は元のレーザーのコヒーレンスを保ちつつ波長が短いため超短パルス発生に適している。

1.2 高強度レーザー

高調波で極端紫外、軟 X 線領域の光を出すためには非常に高次の高調波を発生させる必要がある。第 2 高調波、第 3 高調波発生であれば非線形結晶を使うことができるが紫外より短い波長では非線形媒質として気体を使う必要がある。この波長領域では透過できる非線形結晶が存在しないからである。短い波長の高調波を発生させるには高いピーク強度が必要となる。この理由でパルスレーザーの高強度化に伴い高次高調波の最高次数、最短波長が進歩してきた。高強度のレーザーを作るにはパルス当たりのエネルギーを増やし、パルス幅を狭くする必要があるためレーザー媒質は蓄積エネルギーが大きく、ゲイン幅の大きいものを使わなくてはならない。

1960 年にルビーレーザーが発振したときにはピーク強度は kW 程度であった。その後パルス幅の減少、増幅技術とともにピーク強度は上がり、GW 程度となったが、超短パルスのまま増幅するとレーザー媒質に損傷が起きるためにピーク強度の増加が頭打ちとなった。しかし 1985 年に CPA (Chirped pulse amplification) が G. Mourou らによって提案されてから [21]、レーザーのピーク強度が飛躍的に上がることとなった。CPA とは共振器からでた超短パルスのパルス幅をパルス伸長器で伸ばし、レーザー媒質でピーク強度が上がらないように増幅し、増幅後にパルス圧縮器で超短パルスに戻す方式である。CPA とチタンサファイアレーザーの進歩によりテーブルトップでピーク強度が TW に届くようになり [22]、現在ではフランスで 25 TW [23]、我々のグループで 22 TW のピーク強度が達成している [24]。このような高強度レーザーを集光すると非常に強い電場を作り出すことができる。レーザーの集光強度 I と電場 E の強さは

$$I = \epsilon_0 c E^2 / 2 \quad (1.1)$$

の関係にあるため、 $4 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ でレーザー電場は水素原子の最外殻電子が感じるクーロン電場をしのぐようになる。このような超高強度電場はレーザーでのみ達成可能であり、レーザー電場はもはやクーロン電場に対して摂動として扱えない領域となる。レ

ザーの高強度化に従い様々な新しい現象が観測されるようになり、高強度物理という分野を形成するようになった。この分野の研究報告としては高強度電場による原子のイオン化 [25] [26]、イオン化の際に観測される ATI (Above threshold ionization) [27] [28] [29] [30] [31]、高次高調波発生、電場誘起軟X線レーザー [32] [33] [34] [35]、フェムト秒X線発生 [36] などがある。

1.3 高次高調波

1960年にレーザーが発振して非線形現象が起こることが予想され、1961年には第2高調波の発生が報告された [3]。1965年には非線形結晶を用いたルビーレーザーの第3高調波が発生し [37]、1969年には希ガスをターゲットとした第3高調波が発生している [38]。これより先は非線形媒質として主に希ガスが用いられている。パルスレーザーの進歩に伴い、1976年にはYAGレーザーの4倍高調波の5次高調波 (波長 53.2 nm) [39]、1978年にはYAGレーザーの4倍高調波の7次高調波 (波長 38 nm) が発生し [40]、高調波が軟X線領域近くまで達した。1987年に McPherson らは KrF レーザーの高調波を 17 次、波長にして 14.6 nm まで観測した [41]。また、Ferry らは Nd:YAG レーザーの 33 次、波長にして 33.2 nm までの高調波を観測した [42]。この頃から高次高調波のスペクトルに 2 つの興味深い現象が見られるようになった。第一はプラトーと呼ばれるものである。高調波の強度は低次の方では振動論に従い次数とともに強度が急激に弱くなるのに対し、高次でプラトーと呼ばれる強度の変化しない領域が出現した。そしてある次数になると再び強度が急激に弱くなる。これが第二の現象でカットオフと呼ばれる。このプラトーの原因とカットオフの次数がどのように決まるのかがこれ以降の議論となった。このころまでは高調波の最高次数が年と共にほぼ指数関数的に伸びていたが、プラトーの出現によりここから最高次数はさらに伸びてゆく。1990年には Becker らによってプラトーのある高調波の次数依存に合う理論が出された [43]。1991年に KrF レーザーの 25 次高調波が発生し、コヒーレント光の波長が 10 nm を切った [44]。1993年にはガラスレーザーの 135 次 [45]、チタンサファイアレーザーの 109 次が発生し [46]、波長も 7.4 nm に達した。同年には Corkum らによって古典論的に高調波の次数依存が説明され [47]、1994年には Lewenstein らによって量子論的に高調波の次数依存が説明された [48]。1996年には KrF レーザーの 37 次 [49] がでて、波長は 6.7 nm となった。超短パルスレーザーを用いるとイオン化の進行よりも速く高調波が発生しより高次の高調波がでることが報告され [50] [51]、1997年にはついに波長 2.3 - 4.4 nm の水の窓に到達している [52] [53]。この水の窓とは炭素の吸収はあるが

水の吸収が無い波長領域であり、生体の観察に適しているため今後の応用が期待されている。ここで述べた高次高調波の最高次数と最短波長の変遷を図 1.2、1.3 に示す。

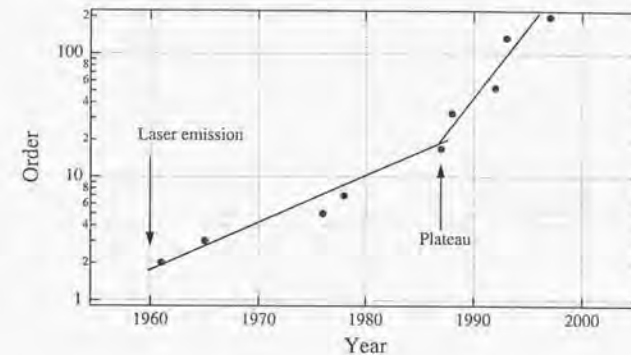


図 1.2: 高調波の最高次数の変遷

1.4 本論文の目的と概要

高次高調波は発生した頃から発生機構や諸性質の解明、最高次数の探求がなされてきた。諸性質としてはスペクトル、変換効率 [54]、広がり角 [55] [56]、空間コヒーレンス [57] [58]、位相整合条件 [59] [60] 等 [61] [62] が解明されてきており、高次高調波を用いて固体の表面の研究が行われるに至っている [63]。しかし、パルス幅についてはストリークカメラで測定できるピコ秒領域でしか測定できなかった。これは、超短パルスのパルス幅測定には一般に自己相関法を用いるため非線形現象を測定する必要があるが、極端紫外、軟X線領域では非線形現象が測定できなかったことによる。一方、1.3節で高次高調波の最短波長の歴史を述べたが、高次高調波はその短波長性、コヒーレンス、スペクトル幅の広さの点で超短パルス発生に適していて、その理論的な予測がなされている [64] [65]。つまり、極端紫外、軟X線領域で非線形現象を測定し、これを用いて超短パルスの高次高調波を測定することは、1 fs をきるアト秒パルスを発生させる意味でも高次高調波の性質を解明する意味でも非常に有意義である。本論文では高次高調波の発生機構の解明、特にパルス幅測定を目的とする。高次高調波のパルス幅を測定することは、つまり極端紫外領域の超短

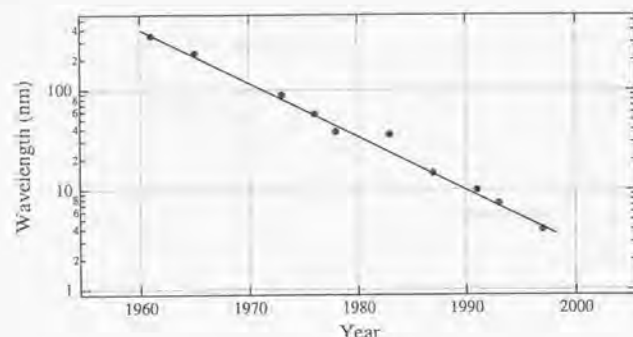


図 1.3: 高調波の最短波長の変遷

パルス光を発生させることと等価である。さらに、パルス幅が確定することにより極端紫外や軟X線領域の光源としての高次高調波の性質がほぼ説明することになる。この領域の光源としての高次高調波の確立も目的とする。

本論文では第2章で高次高調波とそれに付随する理論を述べる。第3章では高次高調波の観測に先立ち極端紫外、軟X線領域の分光器を設計、制作した。これを用いた高次高調波スペクトルの観測によりチタンサファイアレーザー（波長745 nm）の89次高調波、波長8.4 nmまで観測した。また、高次高調波による軟X線領域の擬白色光発生をおこなひ、20 nm～40 nmの範囲での擬白色光を得た。第4章では交差相関法によるチタンサファイアレーザーの9次高調波のパルス幅測定を行った。レーザーのパルス幅300 fsのときに9次高調波のパルス幅は260 fsであった。第5章では自己相関法による9次高調波のパルス幅測定のため、9次高調波の2光子吸収による希ガスのイオン化を行った。またこの極端紫外領域での非線形光学効果を用いた自己相関法によりチタンサファイアレーザーの9次高調波のパルス幅測定を行った。チタンサファイアレーザーパルスが34 fsのときに9次高調波は27 fsであった。これは自己相関法による最初の極端紫外パルス測定である。高次高調波のパルス幅の計算を行い高調波のパルス幅を決める要因を考察することにより今後アト秒パルスを得るための知見を得た。これらの研究により高次高調波のパルス幅の測定に成功したため、高調波の性質はほぼ説明したことになる。高次高調波は軟X線領域での超短パルスであるために今までにない光源としてとらえることができる。第6章では本研究の結論と光源としてとらえた高次高調波の性質、今後の展望について述べる。

第2章 高次高調波の理論

2.1 はじめに

高次高調波には2つの非常に興味深い現象がある。1つは高調波の光量がある次数以降ほとんど変化しない現象で、プラトーと呼ばれている。また、プラトーがある次数で終わり、それ以降光量が急激に小さくなってゆくカットオフがある。カットオフの光子エネルギー (E_{max}) は経験的に、又、数値計算から

$$E_{max} \approx I_p + 3U_p \quad (2.1)$$

と与えられた[66]。ここで I_p :イオン化エネルギー、 $U_p = e^2 E^2 / 4m\omega^2$:ポテンロモータイブエネルギー（振動電場中の電子の平均運動エネルギー）である。はじめの頃はその物理的な意味が分かっていなく、これらの現象をうまく説明できる理論を求めて研究がなされてきた。また、高次高調波の発生はイオン化との競合になりました。スペクトルにはイオン化が密接に関係してくる[67]。又、高次高調波発生の仕組みが明らかになると高調波やイオン化では異なる波長間の干渉効果、いわゆる2波長位相制御を観測することができると予想され、実証されている[68][69][70]。この章では高次高調波発生とイオン化についての理論をいくつか取り上げることにする。

高次高調波はその波長が極端紫外、軟X線であるために空気中では存在できないし透過する物質もない。従って非線形媒質としては低密度な気体を用いることとなる。このことは高調波の理論を考えるときにむしろ簡単になる。1つの原子が高強度電場中に置かれた場合についての理論を考えればよいからである。気体は反転対称性があるので偶数次の非線形分極は0となる。従って気体を非線形媒質として用いる高次高調波は奇数次のみ発生することになる。

高次高調波の理論に先立ちまず分極を電場で展開する方法で非線形分極を求め、高次の高調波発生を導く。この理論は通常用いられるもので振動的に非線形分極を求めその2乗に高調波の光量が比例するという方法で求めるものである。ところが光電場が非常に大きくなると、この振動を用いた理論は実験とあわなくなる。振動を用いると次数が上がるに従い光量が急激に落ちてゆくと予測できるが実験ではある次数以上では高調波の光量が一

定になるといういわゆるプラトーが出現するのである。光電場の非常に大きい領域では非線形分極を非摂動的に、すなわち正確に求める必要がある。高次の非線形分極を正確に求めるにはハミルトニアンを原子のクーロンポテンシャルと光電場によるポテンシャルとした時間依存シュレーディンガー方程式を解き最外殻電子の波動関数を求め双極子モーメントの期待値を求めるという方法を探る必要がある。この計算は解析的には解けないので数値計算をする必要がある。この数値計算の方法にはいくつかあり、後に述べることにする。また、マクロにみたとき位相整合も重要な要素となる。位相整合も考えると高調波の光量は低次ではコンフォーカルパラメータの3乗に比例する。以上の解析で、高次高調波は理論的に説明できるが、物理的にどのような過程でできているのかを次に述べる。簡単に述べると原子に束縛されている電子は光電場によりトンネルイオン化し、光電場による外力で運動する。その結果原子核に戻ってきた電子が再び束縛され、運動エネルギーを放出する時にできるのが高調波である。この考え方は多光子イオン化における2光子同時イオン化、ATIのHigh Energy Tailも直感的に結びつく重要な理論である。また非常に単純な式で高調波を記述できるという魅力もある。量子論で高調波のスペクトルを求めるためには時間依存シュレーディンガー方程式を解き最外殻電子の波動関数を求め双極子モーメントの期待値を求めるという方法をとるが、その物理的な解釈を与えた理論がM.Lewensteinらによって出された。

2.2 多光子イオン化の理論

まずは多光子イオン化の理論について簡単に述べる。高強度電場下のイオン化を初めて理論的に扱ったのはKeldyshである[71]。その後低周波近似を用いなくても良い理論がFaisalとReissによって展開された[72][73][74]。KFR理論では始状態として水素様原子の波動関数をもちいた場合の単位時間当たりのイオン化確率は

$$W = 32\omega n_b^{5/2} \sum_{n=N_0}^{\infty} \frac{(n-n_p-n_b)^{1/2}}{(n-n_p)^2} \int_0^1 J_n^2(n_f, -\frac{1}{2}n_p) d\mu \quad (2.2)$$

$$n_b = \frac{I_p}{\hbar\omega}$$

$$n_p = \frac{U_p}{\hbar\omega}$$

$$n_f = [8n_p(n-n_p-n_b)]^{1/2}$$

で与えられる。ここで $J_n(u, v)$ は一般化されたベッセル関数をあらわし、 n_b はイオン化エネルギーと光子エネルギーの比、 n_p はボンデロモティブエネルギーと光子エネルギー

2.3 摂動を用いた高次高調波の理論

との比をあらわす。 N_0 は $n_p + n_b$ を越える最小の整数でこれはイオン化に必要な光子数をあらわす。

KFR理論を改良したSzoke's modified KFR理論では[75]、最終のVolkov状態で振動電場のポテンシャルにイオン化ポテンシャルを加えている。この場合にはイオン化確率は

$$W = 32\omega n_b^{5/2} \sum_{n=N_0}^{\infty} \frac{(n-n_p-n_b)n^2}{(n-n_p)^{1/2}(n+n_b-n_p)^4} \int_0^1 J_n^2(n_f, -\frac{1}{2}n_p) d\mu \quad (2.3)$$

$$n_f = [8n_p(n-n_p)]^{1/2}$$

となる。これらは単位時間当たり個の原子がイオン化する確率をあらわし、パルスの時間波形を考えてレート計算をすることにより時刻に対するイオンの割合やレーザーパルス通過後にイオン化している原子の割合を求めることができる。

2.3 摂動を用いた高次高調波の理論

一般的に高調波の発生は摂動を用いて説明される。ここでは摂動を用いて高次高調波発生を説明することを試みる。いまある非線形媒質に電場 E がかかると、その分極 P は N を原子の個数とすると、

$$P = \epsilon_0 N (\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots + \chi^{(n)} E^n + \dots) \quad (2.4)$$

となる。 n 次に注目すると、

$$P_n = \epsilon_0 N \chi^{(n)} E^n \quad (2.5)$$

であり、 $\chi^{(n)}$ を求めることにより分極がもとまる。ここで n 次の高調波の発生する経路のうち最低次のみの経路を考え、非線形感受率を求めると、

$$\chi^{(n)} = \sum_{l=1}^{q+1} \sum_{n_1, \dots, n_n} \frac{\langle i | e z | n_n \rangle \dots \langle n_2 | e z | n_1 \rangle \langle n_1 | e z | i \rangle}{(\omega_{n_n i} - l_1 \omega) \dots (\omega_{n_2 i} - l_2 \omega) (\omega_{n_1 i} - l_1 \omega)} \quad (2.6)$$

$|i\rangle$: 初期状態
 $|n\rangle$: 励起状態

$$\omega_{ni} = \epsilon_n - \epsilon_i \quad (2.7)$$

$$l_j = n + 1 - j$$

となる。(2.5) 式をマックスウェル方程式に代入し、 n 次の高調波の光量 ϕ_n を求めると、

$$\phi_n \propto |N\chi^{(n)}E^n|^2 \quad (2.8)$$

となる。比例係数には位相整合積分が含まれているがこれについては後に述べる。 $\chi^{(n)}$ は次数が増すと急激に小さくなる量なので、高調波の光量も次数とともに急激に小さくなるはずである。ところが高次高調波は9次以降あたりから光量がほとんど減らない、いわゆるプラトーが出現する。そしてある次数で再び急激に減少する、いわゆるカットオフも存在する。これらの現象をこの摂動を用いた理論では説明が出来ない。摂動は、レーザー電場によるポテンシャルが原子のクーロンポテンシャルに比べて十分小さい必要がある。ところが我々の扱っている高強度レーザーはそのレーザー電場の大きさが、原子のクーロン電場がそれ以上の大きさとなっている。これにより、摂動がよい近似となっていないことがわかる。従って摂動の考え方は低次の高調波以外では有用ではない。

2.4 非摂動の高次高調波の理論

2.4.1 概要

希ガスにレーザー電場のかかった場合の最外殻電子を表すシュレディンガー方程式は、

$$i\hbar \frac{\partial \psi(r,t)}{\partial t} = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(r) - e r E \cos(\omega t) \right] \psi(r,t) \quad (2.9)$$

と書ける。双極子モーメントは

$$d(t) = \langle \psi(r,t) | e r | \psi(r,t) \rangle \quad (2.10)$$

高調波の電場はこの双極子モーメントをフーリエ変換したものである。フーリエ変換したもののうち n 次のを $D(n\omega)$ とすると高調波の光 ϕ_n 量は、

$$\phi_n \propto |D(n\omega)|^2 \quad (2.11)$$

となる。つまり、レーザー電場によって電子は外力を受け振動するがクーロンポテンシャルのためにその運動はひずみを受ける。その結果双極子モーメントもひずみ、その中に高調波成分が含まれることになる。この分極により高調波が発生するわけである。このように計算すると、プラトー、カットオフの実験結果とも一致する。2.9式を解析的には解けないが、様々なモデルが提案されている。次にポテンシャルを3次元 δ 型ポテンシャルとした Becker model をしめす。

2.4. 非摂動の高次高調波の理論

2.4.2 Becker's model

このモデル [43] [76] は、原子の個性をイオン化ポテンシャルのみとし、クーロンポテンシャルの代わりに3次元 δ 型ポテンシャルを用いている。比較的簡単な数値計算に帰結できる点便利なモデルである。結果のみを示す。 n 次の高調波の光量は、

$$|D(n\omega)|^2 = 4\pi \frac{\pi \hbar}{m\omega} |L_k|^2 \quad (2.12)$$

$$L_k = 2(N_p N_b)^{1/2} \int_0^\infty \frac{d\rho}{\rho^{3/2}} e^{-ik\rho} \{ \beta_k J_k[Z(\rho)] \cos \alpha_k - e^{-i\rho} \beta_k J_{k+1}[Z(\rho)] \sin \alpha_k \}$$

$$\alpha_k = \{ N_b + N_p [1 - (\frac{\sin \rho/2}{\rho/2})^2] \} \rho + (-1)^{k+1} \frac{\pi}{4}$$

$$\beta_k = \frac{1}{k(2k+1)} [1 - \frac{4k}{(2k+1)\rho} e^{-i\rho/2} \sin \frac{\rho}{2}]$$

$$\beta_k(\rho) = \beta_{-k-1}(\rho)^*$$

$$z(\rho) = N_p (\sin \rho - \frac{4 \sin^2 \rho/2}{\rho})$$

$$N_p = \frac{U_p}{\hbar \omega}$$

$$N_b = \frac{I_p}{\hbar \omega}$$

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$$

となる。このように計算が1次元の積分に帰結されている。ところがこの計算では物理的なイメージがわかりにくい。直感的に高調波がどのように出てくるのかを次に述べる。

2.4.3 Quasi static 理論

高次高調波の発生機構を半古典論を用いて直感的に説明したのは P. B. Corkum である [47]。彼の理論は以下の通りである。まずレーザー電場により最外殻電子がトンネルイオン化し、イオン化した電子は初速度が0であり、その後レーザー電場により電子は古典的な運動をする。この運動により再び原子へ戻ってきた電子は基底状態に結合し、運動エネルギーを高調波として放出する。原子へ戻ってきた電子が基底状態には結合せず、原子核によって散乱されると運動エネルギーが増え、ATIの High Energy Tail となる。また、原子へ戻った電子が他の電子に衝突し、結果として2つの電子が同時に原子から離れてゆくと、2電子同時イオン化となる。このように高強度物理において興味深いこれらの現象を結びつけ、さらに直感的に理解できるという面で非常に優れた理論といえる。高調

波について述べると、どのように発生するかは上で述べたが、原子に戻ってくる電子の運動エネルギーを古典論で簡単に求めることができ、その最大値が ponderomotive energy の 3.17 倍となることが導ける。これはとりもおさずカットオフのエネルギーを示している。それまで経験値、あるいは数値計算の結果としてしか表せなかったカットオフの物理的イメージを与えている。

式を用いて表すと以下になる。まずレーザー電場の位相が ϕ_0 の時に電子がトンネルイオン化をすると、そのときのレーザー電場の大きさは、 $E = E_0 \sin \phi_0$ となる。そのときのイオン化確率は ADK Theory[77] で与えられ、

$$W = \omega_A C_{n^*, l}^2 f(l, m) I_p \left(\frac{3E}{\pi(2I_p)^{3/2}} \right)^{1/2} \left[\frac{2(2I_p)^{3/2}}{E} \right]^{2n^* - |m| - 1} \times \exp \left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E} \right] \quad (2.13)$$

$$f(l, m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l-|m|)!}$$

$$C_{n^*, l} = \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{n^*} \frac{1}{(2\pi n^*)^{1/2}}$$

ただし n^* : 有効主量子数、 l : 方位量子数、 m : 磁気量子数、 e : 自然対数の底、 ω_A : 原子単位系における角振動数の単位量で、この式は原子単位系を用いている。また、位相 ϕ_0 でイオン化した電子は次の式に従って運動する。

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -e E_0 \sin(\omega t + \phi_0) \quad (2.14)$$

ただしレーザーは直線偏光とし、偏光の向きを x としている。この運動方程式を初期条件、

$$\begin{aligned} \frac{dx}{dt} \Big|_{t=0} &= 0 \\ x \Big|_{t=0} &= 0 \end{aligned} \quad (2.15)$$

のもとで解く。この初期条件はイオン化した電子の運動エネルギーが 0 で、イオン化した電子は原子核にきわめて近い場所にいることに対応する。また $t=0$ でイオン化するとしている。その結果、

$$\dot{x} = \frac{eA}{m\omega} \cos(\omega t + \phi_0) - \frac{eA}{m\omega} \cos \phi_0 \quad (2.16)$$

$$x = -\frac{eA}{m\omega^2} \left[\frac{1}{\omega} \sin(\omega t + \phi_0) + \cos \phi_0 \cdot t + \frac{1}{\omega} \sin \phi_0 \right] \quad (2.17)$$

となる。この電子が原子核に戻ってきたときの運動エネルギーを数値計算すると、その最大値が ponderomotive energy の 3.17 倍となることが簡単にわかる。高次高調波のスペクトルを得るには、まずイオン化するレーザー電場の位相を決める。この位相に応じてトンネルイオン化確率がわかる。この位相でイオン化した電子が原子核に戻ってきたときのエネルギーがわかり、これが高調波の光子エネルギーに対応する。また、戻り電子のエネルギーに応じて電子の広がりを仮定することにより再結合する確率が分り、これにより高調波の光量がでてくる。このようにしてレーザー電場の位相を振ってゆくと高調波のスペクトルが得られる。

このように単純な描像で高次高調波の性質を直感的に示す理論となっている。しかし、この理論では ponderomotive energy の 3.17 倍以上のエネルギーを持った高調波は発生しないこととなるが、実際にはカットオフというはある次数以降高調波の光量が急激に減るだけで全く出ないわけではない。また、この理論では電子の広がりを仮定して高調波の光量を求めている。次に完全な量子論による高調波の計算について述べる。

2.4.4 Lewenstein の計算

この計算は完全に量子論であり、低周波数 (Nd:Glass, Ti:Sapphire) のレーザーについて成り立つ。また古典的な描像をカバーしていて、カットオフのエネルギーを明確に説明している。つまり、時間依存シュレーディンガー方程式を解き、電子の分極を求めているが、その流れの中で物理的にどのような過程に対応するかを説明している。まず 1 電子近似をした時間依存シュレーディンガー方程式は原子単位系をつかうと、

$$i \frac{\partial |\varphi\rangle}{\partial t} = H |\varphi\rangle \quad (2.18)$$

$$H = -\frac{1}{2} \nabla^2 + V(x) - Ex \cos \omega t \quad (2.19)$$

となる。ここで 3 つの仮定をする。

ア) 基底状態 以外の束縛電子準位を無視する。

イ) $|0\rangle$ (基底状態) の枯渇を無視する。

ウ) continuum の電子の運動では $V(x)$ (クーロンポテンシャル) を無視する。

つまり基底準位とイオン化した後の連続状態のみを考え、基底準位にいる電子の数はなくならないとし、イオン化した後の電子の運動に原子によるポテンシャルは無視でき、外力はレーザー電場にのみ依るとしている。イオン化した後、速度 v で運動している電子の波動関数を $|v\rangle$ とすると、 $\langle v|x|v'\rangle$ はレーザー電場中の自由電子の運動を記述する。上の3つの仮定のもと、電子の波動関数は、

$$|\varphi(t)\rangle = e^{iI_p t} [a(t)|0\rangle + \int d^3v b(r, t)|v\rangle] \quad (2.20)$$

仮定A) より、 $\dot{a}(t) = 0, a(t) = 1$ として、2.20 式を 2.19 式に代入すると、

$$\begin{aligned} \dot{b}(r, t) &= -i\left(\frac{v^2}{2} + I_p\right)b(r, t) - E \cos t \frac{\partial b(r, t)}{\partial v_x} + iE \cos t d_x(v) \\ d_x(v) &= \langle v|x|0\rangle \end{aligned} \quad (2.21)$$

となる。これは正確に解くことができ、

$$\begin{aligned} b(r, t) &= i \int_0^t dt' [E \cos t' d_x(v + A(t) - A(t'))] \\ &\quad \times \exp\{-i \int_{t'}^t dt'' [(v + A(t) - A(t'))^2/2 + I_p]\} \end{aligned} \quad (2.22)$$

ここで $A(t) = (-E \sin t, 0, 0)$ はレーザー電場のベクトルポテンシャルである。時間依存の双極子モーメントを求めることが目的であるが、双極子モーメントを

$$x(t) = \langle \varphi(t)|x|\varphi(t)\rangle \quad (2.23)$$

と書くと、2.20 式と 2.22 式より、

$$x(t) = \int d^3v d_x^*(v) b(r, t) + cc. \quad (2.24)$$

ここで運動量として新しい量、

$$p = v + A(t) \quad (2.25)$$

を導入すると、最終的に双極子モーメントが次のように求められる。

$$x(t) = i \int_0^t dt' \int d^3p \{E \cos t' d_x(p - A(t')) d_x^*(p - A(t)) \times \exp[-iS(p, t, t')]\} + cc. \quad (2.26)$$

$$S(p, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left\{ \frac{[p - A(t'')]^2}{2} + I_p \right\} \quad (2.27)$$

2.26 式がレーザー電場のもとの双極子モーメントであるが、この物理的意味を述べる。被積分関数の最初の項 $E \cos t' d_x(p - A(t'))$ は、時刻 t' に電子が基底状態から連続状態に遷移する確率振幅を表す。その後電子は時刻 t まで時間発展し、この時の波動関数の位相項は $S(p, t, t')$ となる。その間の電子の動きはレーザー電場中の自由電子の運動で $\langle v|x|v'\rangle$ で記述される。時刻 t に電子は再結合し、その確率振幅は $d_x^*(p - A(t))$ である。2.26 式を p について積分する。Saddle-point method を用いるとその結果は、

$$\begin{aligned} x(t) &= i \int d\tau \left(\frac{\pi}{\epsilon + i\tau/2} \right)^{3/2} d_x^*(p_{st}(t, \tau) - A_x(t)) \\ &\quad \times d(p_{st}(t, \tau) - A_x(t - \tau)) E \cos(t - \tau) \exp[-iS_{st}(t, \tau)] + cc. \end{aligned} \quad (2.28)$$

ここで、

$$\begin{aligned} p_{st}(t, \tau) &= E[\cos(t) - \cos(t - \tau)]/\tau \\ S_{st}(t, \tau) &= \frac{1}{2} \int_{t-\tau}^t dt' (p_{st}(t, \tau) - A(t'))^2 \\ &= (I_p + U_p)\tau - 2U_p[1 - \cos\tau]/\tau - U_p C(\tau) \cos(2t - \tau) \\ C(\tau) &= \sin\tau - 4\sin^2(\tau/2)/\tau \end{aligned}$$

以上が原子にレーザー電場がかかったときの時間依存双極子モーメントである。後はこれをフーリエ変換したものが高次高調波のスペクトルとなる。フーリエ変換後の式は具体例で示す。ここではハーモニクポテンシャルを仮定した時の計算結果を示す。基底状態の波動関数はガウシアンとなり、

$$\begin{aligned} \varphi(x) &= \left(\frac{\alpha}{\pi}\right)^{3/4} e^{-\alpha x^2/2} \\ \alpha &= 2I_p \end{aligned} \quad (2.29)$$

Dipole matrix element は、

$$d(p) = i\left(\frac{1}{\pi\alpha}\right)^{3/4} \frac{p}{\alpha} e^{-p^2/2\alpha} \quad (2.30)$$

となり、双極子モーメントのフーリエ変換を施すと、

$$\begin{aligned} x_{2k+1} &= \left(\frac{U_p}{\pi}\right)^{3/2} \frac{2i^{k+1}}{\alpha^2} \int_0^\infty d\tau \left(\frac{\pi}{1/\alpha + i\tau/2}\right)^{3/2} \exp[-iF_k(\tau)] \\ &\times \{B(\tau)J_{k+2}(U_p C(\tau)) + i[B(\tau)e^{i\tau} + D(\tau)]J_{k+1}(U_p C(\tau)) \\ &+ [B(\tau) + D(\tau)e^{i\tau}]J_k(U_p C(\tau)) - iB(\tau)e^{i\tau}J_{k-1}(U_p C(\tau))\} \end{aligned} \quad (2.31)$$

ここで、

$$\begin{aligned} C(\tau) &= \sin(\tau) - \frac{4\sin^2(\tau/2)}{\tau} \\ F_k(\tau) &= (I_p + U_p - K)\tau - \frac{4U_p \sin^2(\tau/2)}{\tau} \\ B(\tau) &= -\frac{2\sin^2(\tau/2)}{\tau^2} + \frac{\sin(\tau)}{\tau} - \frac{1}{2} \\ D(\tau) &= -2B(\tau) - 1 + \cos(\tau) \end{aligned} \quad (2.32)$$

と表せる。2.31 式は $2k+1$ 次の高調波の双極子モーメントを表し、 $|x_{2k+1}|^2$ が $2k+1$ 次の高調波の光量を表す。

2.5 位相整合

今までの理論は原子 1 個についての高次高調波の発生についてであるが、マクロな効果として位相整合がある [78]。それぞれの原子から発生した高調波の位相が揃っているときに高調波が最も強く発生する。観測される高調波の光量は、前節で述べた 1 原子の双極子モーメントのフーリエ変換の 2 乗と位相整合積分との積となる。 q 次の高調波の光量は、

$$\phi_q \propto |F_q|^2 |Nx_{2k+1}|^2 \quad (2.33)$$

コンフォーカルパラメーターが媒質長よりも十分長い場合、位相整合積分は

$$F_q = \frac{2l \sin(\Delta k_{eff}/2)}{b \Delta k_{eff}/2} \quad (2.34)$$

$$\Delta k_{eff}/2 = \frac{2\pi(n_q - n_1)}{\lambda} + \frac{2(q-1)}{b} \quad (2.35)$$

ここで、 N : 原子数、 l : 媒質長、 b : コンフォーカルパラメーター、 n_q : q 次の屈折率である。2.35 式右辺第 1 項は媒質の分散、第 2 項は空間的等位相面のずれによる効果を表す。波長が短い場合、屈折率はほぼ 1 であるので、第 1 項はあまり効いてこない (式 5.4 参照)。第 2 項は高調波の波面と基本波の波面のずれによるもので、高次ほど大きく効く。これはより平面波に近い状態から高調波を発生させると強くなることを示す。理想的な場合、高調波の光量はコンフォーカルパラメーターの 3 乗に比例する。従って高調波の光量を大きくしたい今回の実験ではコンフォーカルパラメーターを大きくとることが重要である。

第3章 高次高調波の観測

3.1 はじめに

高次高調波の波長範囲はレーザーの波長である可視域から軟X線領域までである。主に紫外線と呼ばれる領域であるが、紫外線の幅は約400 nmから0.2 nmと非常に広い範囲であるためさらに細かい領域に分けて用いられることが多い。分け方にも流儀があるが本論文では以下のように言葉を用いることにする。

まず波長200 nm以下では空気中の酸素の吸収が起こりはじめ大気中では存在できなくなる。従ってこの0.2 nmから200 nmまでの領域の光は真空紫外光と呼ばれている。さらに波長100 nm以下では光を透過できる窓材が存在しなくなるため真空紫外光もさらに細かい領域に分けられる。約30 nmから100 nmまでの領域は極端紫外領域、0.2 nmから約30 nmまでは軟X線領域と呼ばれている。

このように真空紫外域である高次高調波を発生させ観測するためには真空槽の中ですべて行う必要がある。この章では最初に高次高調波の観測のための分光器の設計、作成について述べ、この分光器を用いた高次高調波のスペクトルを示す。軟X線領域の分光の光源として高次高調波を用いる場合に高調波のスペクトルは離散的なので不利となる。これを解消するためにチタンサファイアレーザーの集光強度を上げ、高調波発生時に同時にイオン化を進行させることにより高調波のブルーシフトを起こし、高次高調波のスペクトルを広げることににより軟X線領域で擬白色光を得ることができたのでそれについて述べる。

3.2 分光器の設計

今回は高次高調波を観測するための非常に明るい分光器を作るという目的のみではなく今後高調波を用いた分光実験等に備え、高調波の次数を選びものに当てられるようにするため、高調波を分光するとともに集光もできるスタイルにした。まず明るい分光器という観点では従来のスリットを用いたタイプでは広がった光の一部を入射スリットで切り取りこの像を結像する方法となる。これでは高調波の光量をスリットによって減少させてしまう

し、高調波を集光することは不可能となる。高調波はレーザーの焦点から発生するので発生した時点では点光源となっている。従ってこの点光源を分光した後に点に結像させることにより光の損失なしに集光することができる。

また分光し、集光する光学系にも特殊なものが必要である。XUV、軟X線の光は透過する窓材がなく、軟X線は直入射では反射しない。従って分光器を設計する場合、すべて斜入射系にする必要があり困難を伴う。今回は、トロイダルミラーと平面回折格子を組み合わせて、集光しながら分光をするスタイルを採用した。高調波を集光するという実験にあわせ、ミラーと回折格子はできるだけ大きいものを使い集光効率を高くした。

高調波を発生させる非線形媒質には希ガスを用いる。波長の短い光でも密度の薄いガスであれば透過できるからである。以前まではガスターゲットとしてパルスガスジェットを用いて高調波を発生させていた。この場合、パルスガスジェットの繰り返しが上がらないという問題と、レーザーに同期をとってパルスガスジェットを打つ必要があり、実験を難しくする一つの原因となっていた。そこで今回は、ターゲットとして希ガスを定常的に流しておき、レーザーがいつ入射しても高調波が発生する装置を制作した。希ガスを真空槽内に定常的に流すと、真空槽内の圧力が上がりすぎて、高調波の検出器として用いる MCP (Microchannel plate) や EMT (Electron Multiplier Tube) を動作させられないという問題が生じる。そこで、高調波の発生真空槽と高調波を検出する真空槽との間に差動排気を施した。

高次高調波の検出はモノクロメーターとして用いる場合は Cu-Be 面の EMT、空間分解の検出器によるスペクトログラフとして用いる場合は MCP と蛍光面の組み合わせで蛍光をカメラでとらえる方法や、背面照射型 CCD (Charge coupled device) を用いた。

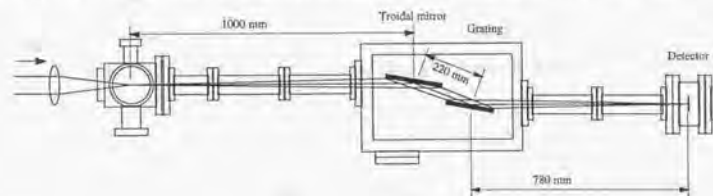


図 3.1: 分光器の概略図

3.2.1 高次高調波発生機構

高次高調波を発生させる非線形媒質には希ガスを用いる。希ガスを定常的に流し、レーザーが入射したときにいつでも高調波が発生するようにした (図 3.2)。ターゲットには希ガスの満たされたガス管の両側に穴をあけたものを使用した。そしてターゲットを3次元で平行移動できるようにしてある。レーザー光を集光点がガス管の中になるように集光する。レーザーの集光はパルス幅が 100 fs 程度の時にはレンズを使うことができるが 30 fs 程度になると反射光学系で集光する必要がある。きつい集光をする場合には軸はずし放物面鏡、緩い集光を行う場合には球面鏡を用いた。希ガスを真空槽に定常的に導くと、真空槽内の圧力があがってしまうので、排気量の大きいターボ分子ポンプや拡散ポンプを用いた。ターゲットのガス管には各希ガスのボンベがつながっていて、それぞれの希ガスが導けるようになっている。また、ターゲットとして入っているガスの圧力は圧力計で測れるようになっている。

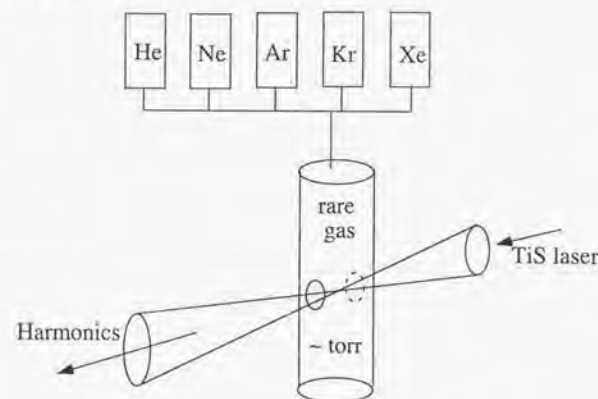


図 3.2: 高調波発生機構

3.2.2 分光

高調波の分光には回折格子を用いて波長を選ぶ方法をとった。回折格子を用いると、これを回転させるだけで波長を選択できるという性質を持つ。分光された高調波の集光の方

法であるが、この波長領域では透過する物質が存在しないので、ミラーを使うしかない。ミラーで集光するには様々な方法があるが、装置が大がかりにならないようにするには選択肢は限られる。まず最もシンプルなものとして、回折格子をトロイダルにしてしまう方法がある。トロイダルとは縦、横方向とも異なる曲率を持つ曲面である。しかし、トロイダルは集光するには入射角が決まっているので、回折格子を回転させて波長を選ぶことはできない。波長を選ぶには3枚のトロイダルを組み合わさる必要がある。これは非常に大がかりとなるのみならず、アライメントが大変になる。

また、平面回折格子と1枚のトロイダルミラーを用いる方法がある。この方法はまずトロイダルミラーに当たった光が集光されながら回折格子に当たり、波長が選択されるといものである。2枚の光学系で済み、アライメントも比較的楽である。トロイダルミラーを用いる以上、収差が存在することは避けられない。

今回は、比較的シンプルな最後の方法、つまり、平面回折格子と1枚のトロイダルミラーの組み合わせを採用した。このミラーと回折格子は、Jobin Evon 社製のものを利用した。この回折格子は、トロイダルミラーで避けられない収差を取り除くように、等間隔ではあるが、刻みが曲線になっている特殊なものである。また、回折格子のブレイズ波長は15 nmで、回折する範囲は8 nm-80 nmである。トロイダルミラーの入射角は78.5度で、回折格子は入射角と出射角との和が157度となっている。回折格子とトロイダルミラーのコーティングは金となっている。金は短波長まで反射率があるからである。トロイダルミラーの倍率は等倍率で、焦点までの距離は約1 mである。これらのミラーと回折格子は発生した高調波をすべて集光できるように大きなものとしていて、許容角は約40 mradである。この大きなミラーと回折格子を納める真空槽は必然的に大きくなるが、アルミ製で、直方体のものを制作した。外部より回折格子の角度を調節できるようにしてある。

3.2.3 検出

回折格子とトロイダルミラーとの組み合わせで、平面に結像するスペクトロメーターと、集光点にスリットをおくモノクロメーターとの2通りの使い方ができる。スペクトロメーターとして使う場合、蛍光面つきのMCPまたはCCDを結像点に置き、広い範囲の分光像を1度にとらえることができる。8 nm-80 nmの波長範囲をみるには、4回に分けてとればよい。レーザー1ショットの測定の場合有効である。MCPを用いた場合は蛍光面をカメラでみるので、分光器としての明るさは暗くなる。また、波長の分解能はMCPのチャンネルの大きさで制限されるので、あまり良くない。CCDを用いると感度は非常によくな

るが基本波であるチタンサファイアレーザーにも感度があるので透光除去が必要となる。モノクロメーターとして使う場合、結像点にスリットを置き、回折格子を回転させEMTで検出する。この信号をボックスカーで積算したものをコンピュータに取り込む。このとき、分解能はスリットにより決まる。また、レーザーを積算してデータとするのでよりSNの良いデータとなる。スリット幅は真空槽の外部から可変であり、集光径を測定できるようにになっている。スリット幅を変えてゆき、高調波の透過量を測定すると、高調波のビームパターンをガウシアンと仮定したときの集光径がわかるのである。

3.2.4 差動排気

ガスターゲットをバルスガスジェットではなく、定常的にガスを流す方法を採用すると、高調波の発生は簡単になるが、真空槽の内部の圧力があがってしまう。検出器にMCP, EMT, CCDを用いるので、検出真空槽では高真空になっていなくてはならない。従って真空槽間に差動排気を施している。

高調波発生真空槽と分光用真空槽との間には3桁程度の作動排気を行えるようにした。Heで12 Torr, Arで15 Torrまで圧力をあげても、MCPの位置で、 10^{-6} Torr台が保たれるようになっている。EMT, CCDは、 10^{-4} Torr台で作動するので問題はない。

3.2.5 分光器の波長校正と分解能

絶対波長の校正には2つの方法を用いた。まず高調波の次数を決める程度の校正にはアルミの吸収端を用いた。アルミの吸収端は約15 nmにあるので高調波の次数を同定することができる。用いたフィルターは、Luxel社のアルミ1パーセントシリコンで、厚さ1500 Å、直径1.5インチである。このフィルターをレーザーによるダメージをさけるためにレーザーの最も広がった場所、すなわちトロイダルミラーの直前に挿入した。正確な波長を決めるためにはHeIIのライマン線を波長同定に用いた(図3.3)。ライマン $\alpha, \beta, \gamma, \delta, \epsilon$ の波長は303.78 Å, 256.32 Å, 243.03 Å, 237.33 Å, 234.35 Åである。これらの線幅より分解能はライマン α 線で0.1 nm(半値全幅)となった。従って $\lambda/\Delta\lambda \sim 300$ となった。これは高次高調波の測定には十分な能力である。

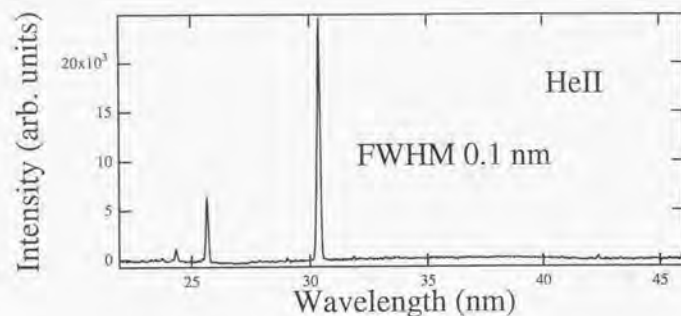


図 3.3: 分光器の分解能

3.3 高次高調波の観測

スペクトログラフ、モノクロメーターの両方の方式での高調波のスペクトルを図 3.4、3.5 に示す。

用いたレーザーはチタンサファイアレーザーのマルチパス増幅を用いた CPA システムで、波長 745 nm, パルスエネルギー 10 mJ, パルス幅 100 fs で尖塔出力 0.1 TW の場合である。スペクトログラフの場合には MCP の蛍光をカメラでみる方式をとっているため分解能が悪く、79 次高調波までしか観測されなかったが、モノクロメーターの場合は 89 次、波長にして 8.4 nm まで観測できた。この短波長の限界は回折格子の回折効率による。反射率、回折効率、検出器の量子効率等を考慮した較正後のスペクトルを図 3.6 に示す。縦軸は 1 パルス当たりの絶対光量に換算してある。トロイダルミラーにより集光された KrF レーザーの 5 次高調波の集光径を測定したところ半値全幅で $110 \mu\text{m}$ となった。これから集光強度は $0.1 \text{ MW}/\text{cm}^2$ と見積もれる。このスペクトルを取ったときに比べ現在では高調波の光量は 2~3 桁強くなっている。

3.4 高次高調波による軟 X 線擬白色光発生

3.4.1 自己位相変調の理論

高次高調波を軟 X 線領域の分光の光源として用いることを考えると、高調波は特定の波長に限定されるという欠点を持つ。これを解決するためにレーザーのスペクトルを広げ

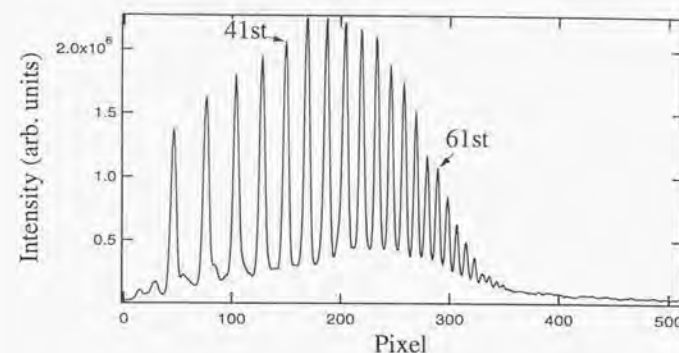


図 3.4: MCP を用いて観測した高次高調波のスペクトル

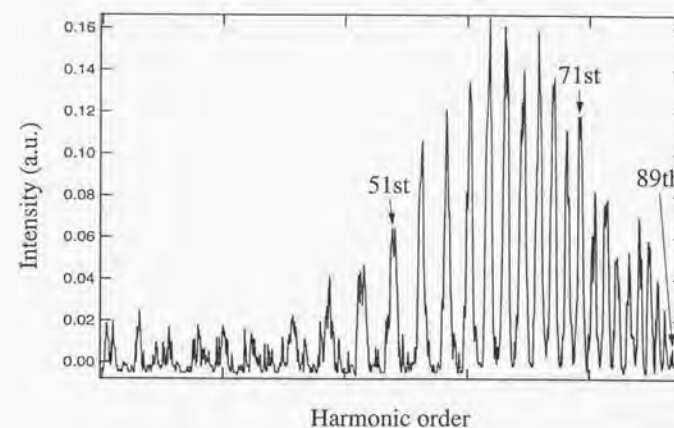


図 3.5: EMT を用いて観測した高次高調波のスペクトル

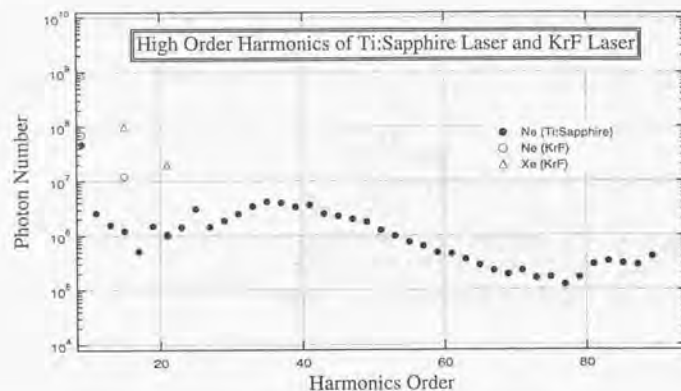


図 3.6: 高次高調波の補正後のスペクトル

ることにより高次高調波のスペクトルを広げて隣の次数とつなげ、擬白色光を得る実験を行った。ここではまず自己位相変調の理論について述べる。

一般にレーザーの集光強度が大きくなると自己位相変調によりスペクトルが広がる。自己位相変調とは媒質の屈折率が光の強度に依存し、光強度が時刻と共に変化するパルス中では時刻と共に屈折率変化が起き、スペクトルに変化を受けることである。

周波数シフトを式で表すと

$$\Delta\omega = -\frac{\omega_0}{c} \int_0^z \frac{\partial n(l,t)}{\partial t} dl \quad (3.1)$$

と表される。 $n(l,t)$ は屈折率で $n(l,t) = n(t)$ のとき、

$$\Delta\omega = -\frac{\omega_0}{c} \frac{\partial n(t)}{\partial t} z \quad (3.2)$$

となる。

光カー効果で自己位相変調を受ける場合には集光強度を I とすると、

$$n = n_0 + n_2 I \quad (3.3)$$

の屈折率変化を受けるため、レーザーの集光強度が大きくなると屈折率が大きくなりパルスの立ち上がりでレッドシフトを起こし、パルスのたち下がり屈折率が小さくなってゆ

くのでブルーシフトを起こすことによりスペクトルが広がる。高次高調波発生の場合はターゲットは希ガスであるために希ガスの屈折率変化となる。

集光強度が非常に大きくなると希ガスは電場によりイオン化を起こし始める。このことにより希ガスは光カー効果とは異なる屈折率変化を起こす[79]。イオン化が起きるとプラズマが増加する。プラズマの屈折率 n は次式で表される。

$$n = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2}} \quad (3.4)$$

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_0 e^2}{\epsilon m}}$$

ここで、 ω_0 はレーザーの周波数、 ω_p はプラズマ周波数、 n_0 は電子密度である。よって

$$n \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{n_0 e^2}{\epsilon_0 m \omega_0^2} \quad (3.5)$$

となる。これは電子の数が増えると屈折率が下がることを意味する。つまりイオン化が進むような集光強度ではパルスの立ち上がりでイオン化が進行するために屈折率が下がってゆき、スペクトルはブルーシフトすることになる。

プラズマの再結合にはパルス幅以上の時間がかかるためパルスのたち下がりでは電子密度に変化がないので屈折率変化は起きない。従ってレッドシフトは起きない。さらにイオン化が起きた後は高次高調波の発生効率が下がるため高調波のスペクトルに与える影響はブルーシフトのみとなる。

このようにレーザーの集光強度が上がったときにレーザーのスペクトルは光カー効果によるレッドシフト、ブルーシフトとイオン化によるブルーシフトが同時に起こることになる。また、高調波の発生機構からのブルーシフトも起こる(Appendix C 参照)。

3.4.2 実験装置

この実験で用いたレーザーシステムはチタンサファイアレーザーのCPAシステムでパルス幅22 fs、ピーク強度22 TWの出力を出す能力がある(図3.7) [24]。このレーザーパルスを中心波長803 nm、パルス幅25 fsで用いた。パルスエネルギーは最大で121 mJで運転した。実験配置図を図3.8に示す。このパルスを $f=500$ mmの球面鏡で集光した。焦点には7 mmの厚さのガスクチュブを置き中に希ガスを満たす。発生した高調波は基本波を除去するためにビームスプリッター[80]へ導かれる。このビームスプリッターは高次高調波を反射し、基本波の99.2%と3次高調波の96%を透過するようになっている。高

調波は3.2節で作成した分光器に導かれる。今回は検出器は背面照射型 CCD を用い、スペクトロメーターとして使用した。

3.4.3 実験結果

ターゲットを Kr としたときの 25 次から 43 次高調波のスペクトルのレーザーのパルスエネルギー（集光強度）依存を図 3.9 に示す。パルスエネルギーが 8.7 mJ の時には離散的に高調波がでているのに対し、61.0 mJ の時には擬白色光になっている。61.0 mJ の時には高調波スペクトルが 8.7 mJ の時に比べ 1 nm 程度ブルーシフトしている。これはパルスエネルギーが増えるとイオン化が進行してより大きなブルーシフトを起こすためである。

クリプトンガスをを用いたときの高調波スペクトルのガス圧依存を図 3.10 に示す。ガス圧が 15.8 Torr の時には次数と次数の間がつながっていて擬白色光となっている。この場合もガス圧が 15.8 Torr の時には 2.8 Torr の時と比べてスペクトルが 1 nm 程度ブルーシフトしている。これは式 3.2 よりガスの密度が増えると屈折率変化が大きくなるためである。

図 3.9、図 3.10 より高調波スペクトルはブルーシフトしていることが分かる。これよりこのスペクトル幅広がりとは通常の光カー効果によるスペクトル変化ではなく、レーザーパルスの立ち上がりのイオン化による自己位相変調が支配的であることが分かる。基本波のスペクトルもレーザーのエネルギーを変えて測定した（図 3.11）。確かにレーザーのスペクトルが希ガスに集光された後にブルーシフトしている。点線はイオン化を考慮した自己位相変調から予想される計算値である。

軟 X 線擬白色光の応用としてアルミニウム薄膜の透過率の測定をした（図 3.12）。これは 1500 Å アルミニウム薄膜を透過させない時の高調波の光量に対する透過させたときの光量の割合である。通常の高調波では波長が離散的なためならぬ透過率曲線を得ることはできないが、擬白色光とした本実験では 26 nm ~ 36 nm の範囲で長波長ほど透過率が下がる透過率曲線を得ることができた。今までは軌道放射光を用いないと測定できなかったものである。カタログ値と比較してみると、やはり次数と次数の間で高調波の光量の小さいところでノイズの大きい部分があるが、絶対値を含めて良い一致を示していることが分かる。これからこの波長領域で分光の光源として高調波が使用できることが分かる。

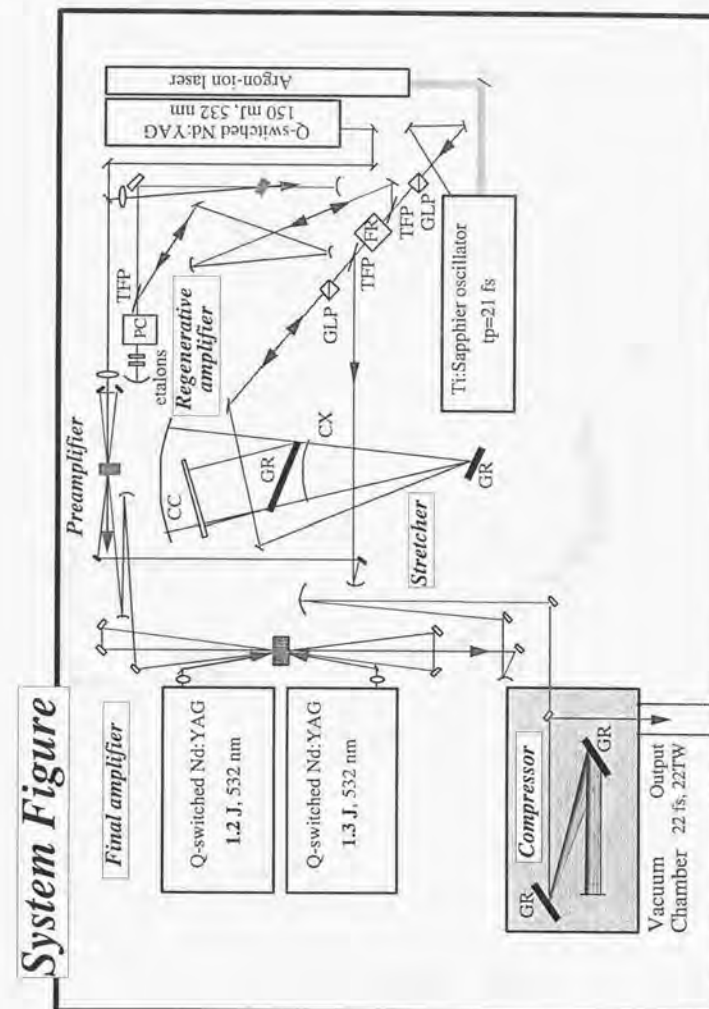


図 3.7: レーザーシステム

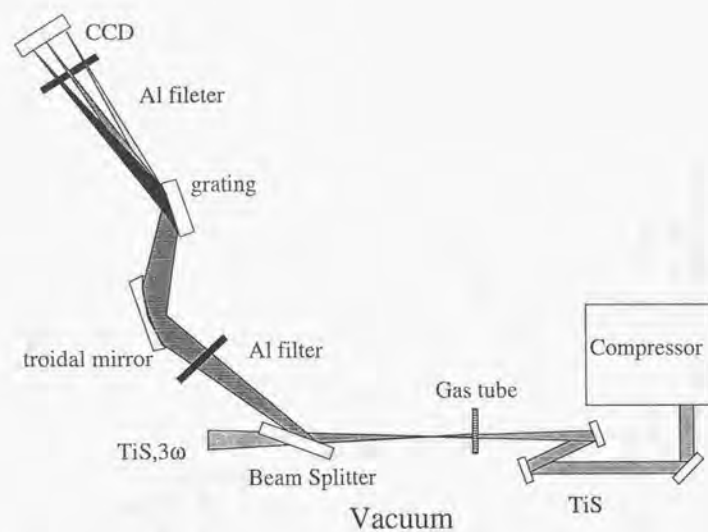


図 3.8: 自己位相変調実験配置図

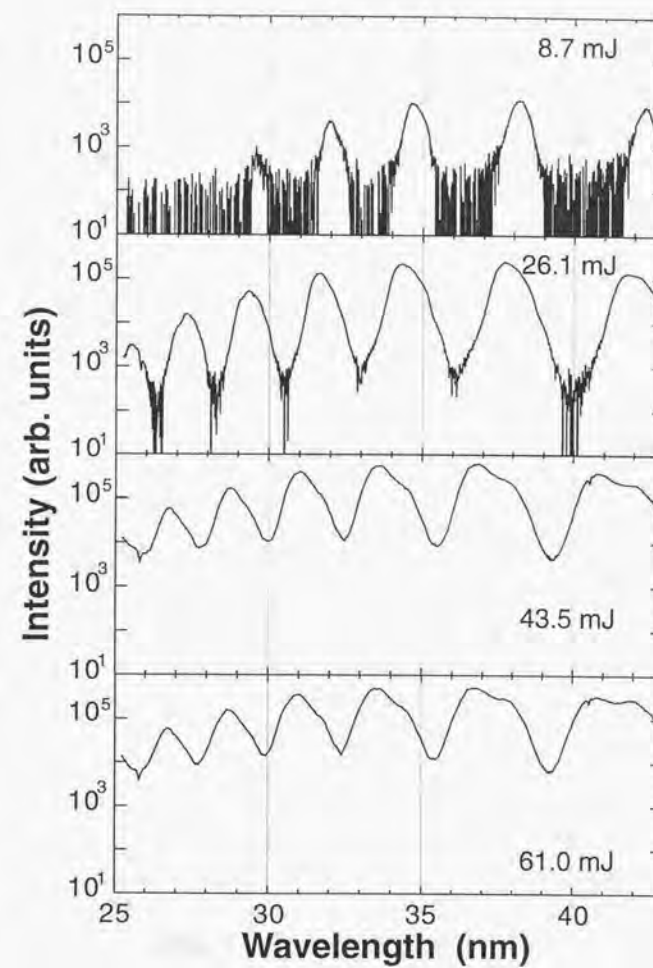


図 3.9: 高調波スペクトルのレーザーエネルギー依存

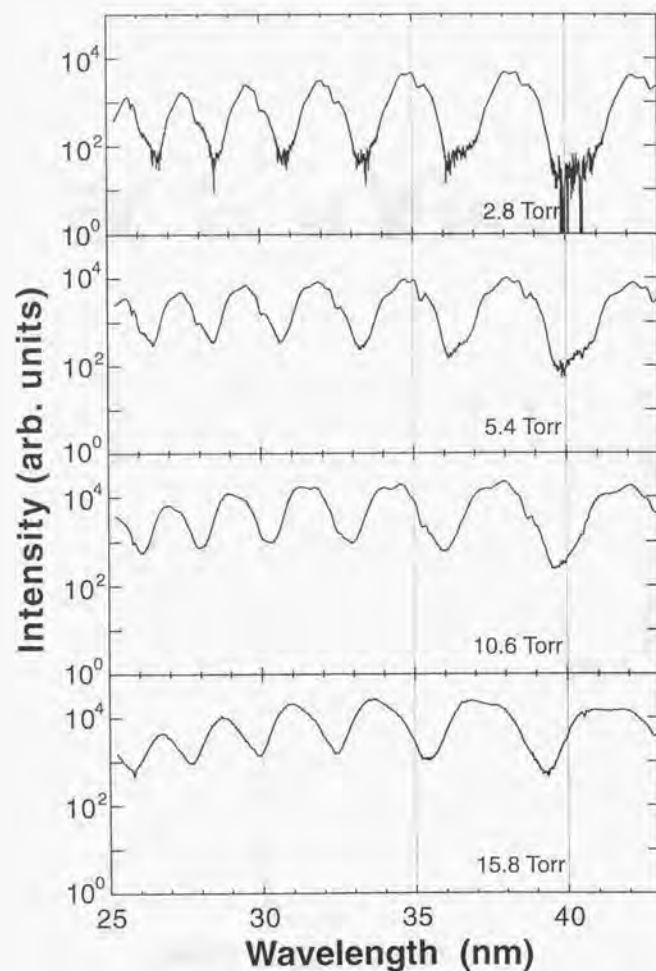


図 3.10: 高調波スペクトルのガス圧依存

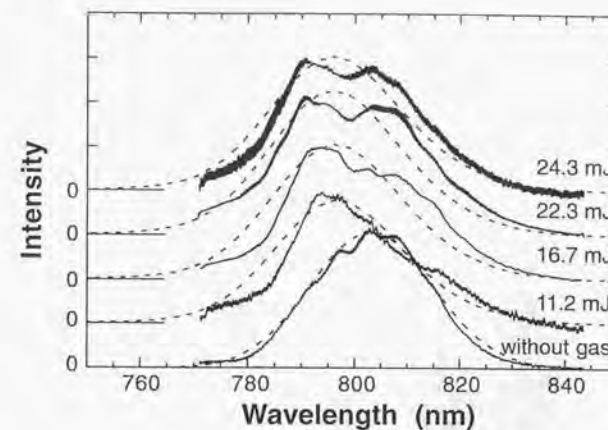


図 3.11: 集光後の基本波スペクトルのエネルギー依存

3.4.4 考察

この様に高調波を発生させる際に集光強度を上げることによりスペクトルを広げる方法により擬白色光を発生させたわけであるが、実は超短パルスレーザーの高次高調波のスペクトルは高次になると必然的につながる。基本波の波長、スペクトル幅を λ 、 $\Delta\lambda$ 、 n 次の波長、スペクトル幅を λ_n 、 $\Delta\lambda_n$ として、摂動を仮定すると $\Delta\lambda_n = \Delta\lambda/(n\sqrt{n})$ となる。この式は高次でも摂動が使えたと仮定しているが例えば9次以降ではプラトーになりスペクトル幅が $\Delta\lambda_n = \Delta\lambda/(n\sqrt{9})$ となると仮定できる。隣の次数とスペクトル幅との比は、

$$\frac{\Delta\lambda_n}{\lambda_n - \lambda_{n+2}} = \frac{\Delta\lambda}{6\lambda}(n+2) \quad (3.6)$$

となる。この比が1となると隣の次数とスペクトルがつながることになる。例えば $\lambda=800$ nm、 $\Delta\lambda=40$ nm の時には $n=118$ となる。 $\lambda=800$ nm、 $\Delta\lambda=80$ nm では $n=58$ 、つまり59次以降では連続スペクトルになる。このようにレーザーのスペクトルが広がると比較的低次でも連続光が発生することが分かる。本実験では20 nm ~ 40 nm と長い波長で連続光が発生したことに意義があることになる。

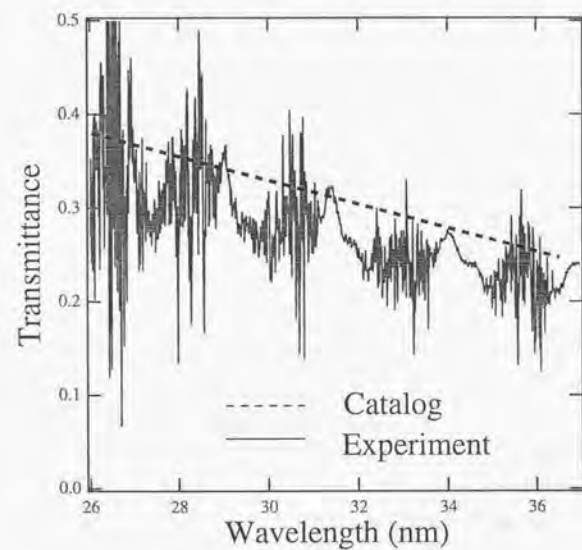


図 3.12: アルミニウム薄膜の透過率測定

3.5 結論

高次高調波の測定のため極端紫外、軟X線領域の分光器を制作した。高次高調波を作成した分光器で観測し、チタンサファイアレーザーの89次、波長にして8.4 nmまで観測した。

高次高調波のスペクトルを広げ、20 nm ~ 40 nmの範囲で擬白色光を得た。この擬白色光を用いアルミニウム薄膜の透過率を測定した。これにより今後、高次高調波を用いた軟X線超高時間分解分光に期待できる。

第4章 交差相関法による高次高調波のパルス幅測定

4.1 はじめに

高次高調波の諸性質はほぼ解明してきたが、パルス幅はまだ測定されていなかった。これは非線形結晶やガスの3光子吸収、self diffractionによる自己相関法が使えるような紫外領域では超短パルスの測定法が存在するが[81][82][83]、非線形結晶の使えない極端紫外や軟X線領域での超短パルス測定方法がなかったことによる。

さて、高次高調波のパルス幅は低次については摂動論から簡単な予想ができる。レーザーパルスの電場の時間波形を

$$E(t) = Ae^{-\frac{t^2}{\tau^2}} \quad (4.1)$$

とすると、

n 次の高調波の電場は基本波の電場の n 乗に比例するとしたとき、 n 次高調波の電場 $E_n(t)$ は、

$$E_n(t) = A^n e^{-\frac{t^2}{(\tau/\sqrt{n})^2}} \quad (4.2)$$

となるので、 n 次高調波のパルス幅は基本波の $1/\sqrt{n}$ 倍になることが分かる。これは摂動論が適用できる低次の高調波に有効であると考えられる。このように1つの次数のパルス幅を測定するとすでに超短パルスの極端紫外光が発生し、さらに複数の次数を重ねることにより1 fsを切るようなアト秒パルスを作ることが出来ると予想される。

高次高調波のパルス幅はこのように基本波よりも短くなると予想されるので、超短パルスを作る意味でも測定手段を確立することは重要な課題となっていた。

高次高調波のパルス幅測定は、1992年に50 psのガラスレーザーの9次高調波のパルス幅がX線ストリークカメラで測定され、25 psという結果となった[84]。これがこれまで

に判明している高次高調波のパルス幅では唯一の値であった。ストリークカメラでの時間分解能は可視域で 200 fs、X 線領域で 2 ps である [85]。

高次高調波以外の真空紫外領域でのパルス幅測定はいくつかの方法で行われている。Sherらはレーザープラズマからの軟X線のパルス幅をクリプトンの吸収線の変化を用いたポンププローブ法でピコ秒領域で測定した [86]。これにより 15 ps というパルス幅が測定されている。この方法は非常に広いスペクトルを有するパルスには効果的であるが高次高調波のスペクトル程度では難しい。Schinsらはレーザープラズマからの軟X線のパルス幅をオージェ過程を用いて観測した [87]。観測されたパルス幅は 0.7 ps である。Le Blancらは4光波混合により発生した 147 nm の VUV 光のパルス幅をイオン化による屈折率変化を用いて測定し、パルス幅 850 fs を得ている [88]。

フェムト秒の極端紫外、軟X線パルスのパルス幅測定法には自己相関法と、交差相関法とが考えられる。自己相関法を用いるためには高次高調波による非線形光学効果を測定する必要がある。交差相関法を用いる場合には高次高調波と他の超短パルス光源との相互作用を起こせばよい。よって自己相関法に比べ、高調波のピーク強度が低くても測定可能となる。前節で実験により求めた 9 次高調波の集光強度はわずか $\sim 0.1 \text{ MW/cm}^2$ であった。この集光強度では高調波だけで非線形光学効果を起こすことは難しい。多光子吸収によるイオン化の確率は Keldysh-Faisal-Reiss (KFR) 理論 (第 2.2 節参照) によって計算できる。例えば波長 88 nm で集光強度 0.1 MW/cm^2 の時に Kr の 2 光子吸収によるイオン化確率は $10^{-21}/\text{pulse}$ であり、10 Hz レーザーを用いた場合ターゲットの原子の個数を考えても 1 年に 1 個イオンが出来るかどうかである。これでは 2 光子吸収を用いて自己相関法でパルス幅を測定することは出来ず、この段階では交差相関法によりパルス幅を測定せざるを得ない。さて、交差相関で用いる高調波の光子 1 つと他のレーザーパルスの 1 光子とで起こす非線形現象には、和周波光混合、差周波光混合、2 光子イオン化等が考えられるが、本章ではチタンサファイアレーザーの基本波をポンプ光として希ガスターゲットの状態を変え、高調波のプローブで測定するという手段を使い、今回我々はフェムト秒領域での高次高調波のパルス幅測定を行った。

4.2 交差相関法の原理

本実験では中性原子のクリプトンとクリプトンの 1 価イオンとでの高調波の吸収係数の違いを利用してチタンサファイアレーザーの 9 次高調波のパルス幅をポンププローブ法を用いて測定した。この測定法の原理は以下の通りである。

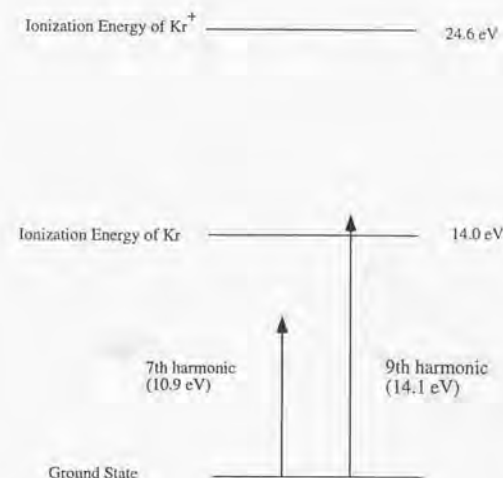


図 4.1: Kr のエネルギー準位図

チタンサファイアレーザー（波長 795 nm）の 9 次高調波の光子エネルギーは 14.1 eV である。クリプトンのイオン化エネルギーは 14.0 eV であるため 9 次高調波は中性原子の吸収係数のもっとも高い領域になる。一方クリプトンの 1 価イオンのイオン化ポテンシャルは 24.6 eV であるため、9 次高調波はクリプトンイオンに吸収されない（図 4.1）。

従ってポンプ光をクリプトン原子のイオン化に用い、プローブ光を 9 次高調波とすると、ポンプ光より先にプローブ光が来ると 9 次高調波は中性のクリプトン原子に吸収され、ポンプ光が先にクリプトンに入射されるとクリプトンはイオン化されプローブ光が透過することになる。ポンプ光によるクリプトンのイオン化はポンプ光のパルス幅に比べて十分に早い時間で起こるためポンプはプローブを透過させるための早いスイッチとして働く。遅延時間を変化させながらプローブ光の透過率を測定することによりプローブ光のパルス幅が測定できることになる。

Concept of this experiment

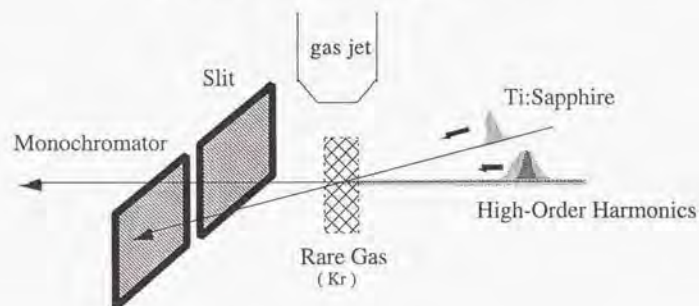


図 4.2: 交差相関法の原理図 1

図 4.2、図 4.3 に実験の原理図を示す。ポンプ光のある時刻でイオン化が起き、その時刻以降の 9 次高調波は透過する。従って遅延時間を変えてゆくと 9 次高調波の積分波形が得られることになる（図 4.3 下の実線）。ポンプ光がプローブ光に対して十分に早い時刻に入射した場合、再結合が起こるため、透過率は下がってゆくことになる（図 4.3 下の一点鎖線）。

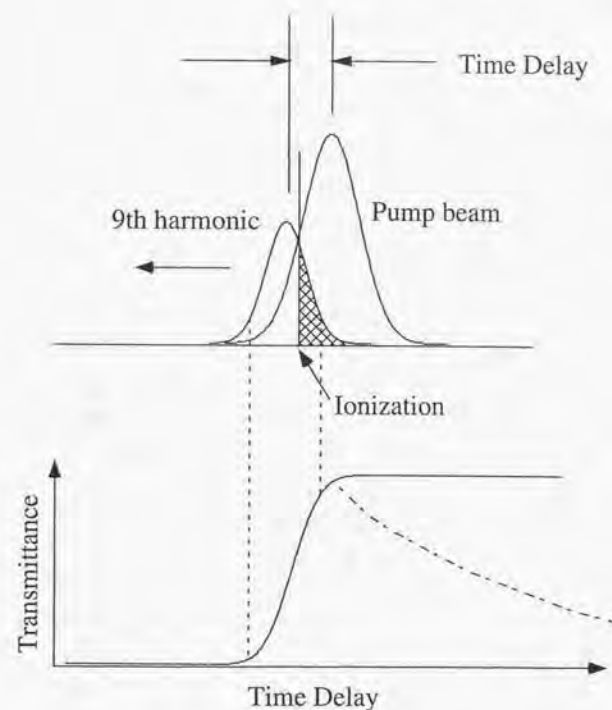


図 4.3: 交差相関法の原理図 2

4.3 レーザーシステム

この実験で用いたレーザーシステムはチタンサファイアレーザーのCPAシステムで再生増幅されたパルスをマルチパス増幅する方式を用いている。波長は795 nm、パルス幅は300 fs、パルスエネルギー20 mJである。

4.4 実験装置

実験配置図を図4.5に示す。レーザーシステムから出てきたパルスを半透鏡を用いて2つのパルスに分ける。一方のパルスはプローブ光である高次高調波発生に用い、パルスエネルギーは約8 mJである。 $f = 300$ mmのレンズで希ガス中に集光する。高調波発生用の非線形媒質にはキセノンを用い、圧力は2~3 Torrとした。これはキセノンを用いると他の希ガスに比べ低次の高調波が強く発生し、この圧力が9次高調波に最適であるためである。発生した高次高調波のうち9次のみをクリプトンガスに集光することが望ましいが、次数を選ぶためにフィルターや回折格子を使用すると高調波の光量が減ってしまうことと高調波とポンプ光のクリプトン中での空間的な重なりのアラインメントが非常に困難なために発生した高調波と残りの基本波を全てクリプトン中に集光した。半透鏡で分かれたもう一方のパルスはポンプ光として用い、遅延をつけてからクリプトンガスに $f = 700$ mmのレンズで集光し光スイッチとする。パルスエネルギーは8 mJ程度である。ポンプ光とプローブ光は相互作用領域で2.4度の角度で交差する。ポンプとプローブとの時間的、空間的重なりは対物レンズを用いて干渉縞を観測することによりあわせた。クリプトン中でのポンプ光の集光サイズは $150\text{ }\mu\text{m}$ で、プローブ光の $100\text{ }\mu\text{m}$ に比べ大きくなっている。クリプトンでの集光強度は約 $1.5 \times 10^{14}\text{ W/cm}^2$ となる。高調波の集光には金コートのトロイダルミラーを使用した。クリプトンはパルスガスジェットにより真空槽内に供給した。パルスガスジェットは背圧を1気圧として用い、このとき真空槽内には約5 Torrのクリプトンが存在する[92]。透過した高調波のうち9次のみを分光器(λ -Minuteman Model 302 VM)で選び透過率の測定をするスタイルにした。検出には電子増倍管を用い、得られた信号をボックスカー積分器により積算した。

この実験配置には問題がある。それはプローブ光と共に高調波を発生させたチタンサファイアレーザーがやはりクリプトンに集光されクリプトンからも高次高調波が発生してしまうことである。クリプトンに集光する前にフィルターを入れることにより基本波を除くことは出来るが高調波の光量も少なくなってしまうため今回はそれが不可能であった。このように計りたいキセノンからの高調波の透過光に加えて不必要なクリプトンから

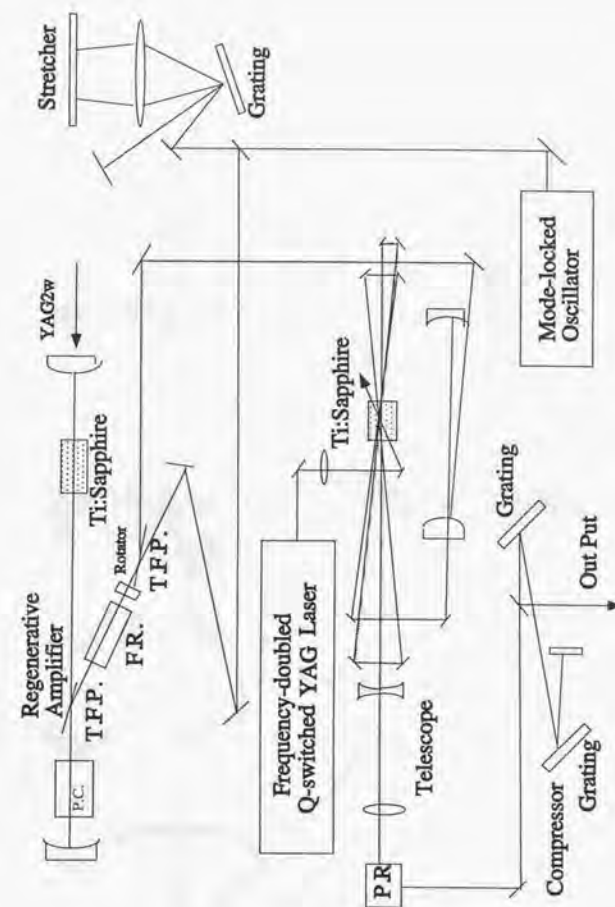


図 4.4: レーザーシステム

Experimental Setup

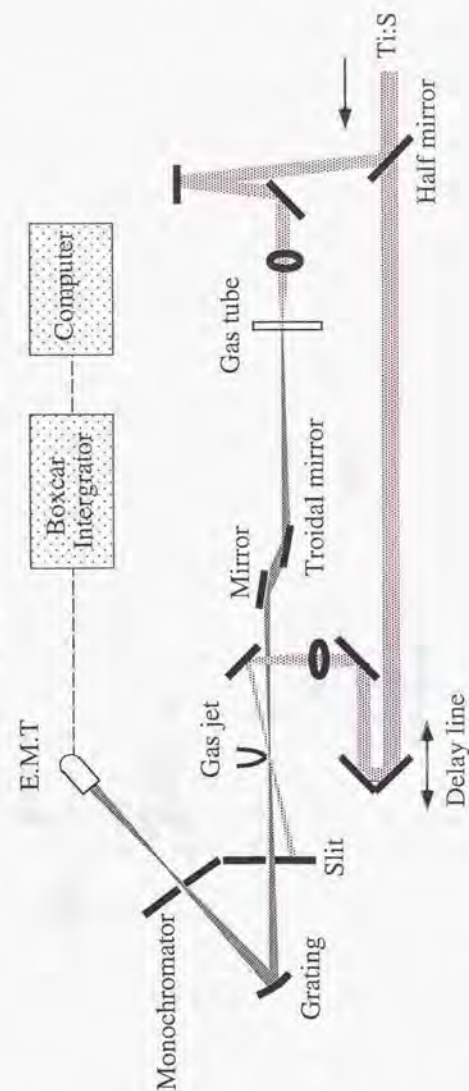


図 4.5: 実験配置図

の高調波が測定に乗ってしまうため、この2つの成分から不必要なクリプトンからの高調波を引き算することにより求めたい高調波の透過率変化を算出する方法を採った。

4.5 実験結果

測定結果を図 4.6 に示す。

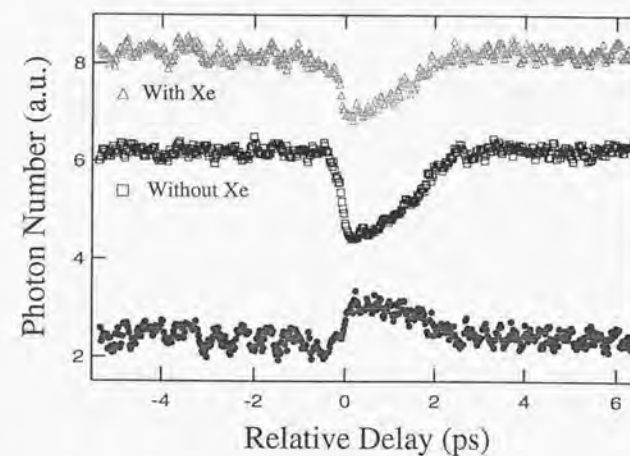


図 4.6: 9 次高調波の透過率変化 1

横軸が遅延時間で縦軸が高調波の光量となっている。高調波の光量は 9 次を分光器で選んだ後に EMT で検出し、この信号をボックスカーで積分したものをコンピュータに取り込んで測定した。キセノンとクリプトンの両方から高調波が出ているときの波形が上段 (Δ) で、クリプトンから出た高調波の波形が中段 (\square) で示されている。これはクリプトンイオンの生成を通した二つの基本波の相関を表している。ポンプ光が入射するとクリプトンはイオン化されプローブからの高調波の発生効率が下がっている。この遅延 0 秒での鋭い傾斜が基本波のパルス幅を表していることになる。パルス波形をガウシアンと仮定すると基本波のパルス幅は 310 fs となる。ポンプ光の入射後時間が経ってからプローブが入射すると高調波発生が回復している。高調波の回復は指数関数でフィッティングでき時定

数は2 psとなった。キセノンからの高調波信号を含む上段の高調波の光量は当然クリプトンのみの中段に比べ大きな値となっており、上段から中段を差し引いた波形が下段(●)で示されていて、これが欲しいキセノンで発生した高調波の透過率変化を示す。

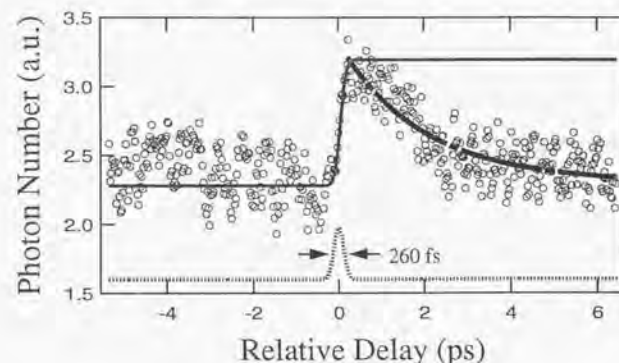


図 4.7: 9次高調波の透過率変化2

図 4.6 の下段のみを示したものが図 4.7 である。遅延時間 0 秒のところでポンプ光とプローブ光が時間的に重なっている。この透過率の立ち上がりが 9 次高調波のパルス幅の積分になっている。立ち上がりをガウシアン波形の積分でフィッティングし、微分することにより下に示されるガウシアン波形を得る。これにより 9 次高調波のパルス幅 260 fs を得た。これは時間分解能によるデコンボリューションをしていないものである。時間分解能については次節でふれる。後半のややゆっくりした吸収の回復はクリプトンの状態が 9 次高調波を再び吸収するようになっていく過程を示している。指数関数でフィッティングすると図 4.6 中段と同様、時定数 2 ps が得られた。同様に 7 次高調波について透過率変化を測定したものが図 4.8 である。この場合には遅延時間に対して 7 次高調波の透過率変化はない。つまり 7 次高調波は中性のクリプトンでもクリプトンイオンでも吸収されずに透過していることが分かる。これは 7 次高調波の光子エネルギーがクリプトン、クリプトンイオンの両方のイオン化エネルギーよりも小さいため吸収断面積に変化がないためである。

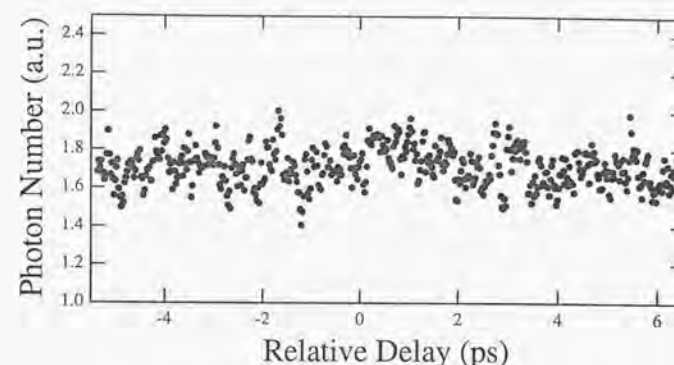


図 4.8: 7次高調波の透過率変化

4.6 考察

4.6.1 時間分解能

まずこの交差相関法によるパルス幅測定の時間分解能であるが、ポンプ光によるクリプトンのイオン化がプローブ光の通過する領域にわたって完了するのに要する時間となる。まずは空間を考慮せずにイオン化が完了する時間の見積もりをする。パルスの時間波形を考えたときにイオン化確率は単位時間当たりで与えられる。つまり、確率的に一つの原子が完全にイオン化するのにはある時間を要する。原子のイオン化のモデルにはトンネルイオン化と多光子イオン化とがあるが、クリプトンがチタンサファイアレーザーでイオン化するときには多光子イオン化のモデルを当てはめるのがよい近似となる [89]。Keldysh の理論によると、単位時間当たりのイオン化確率は 2.3 式から求められる。例えば波長 795 nm で集光強度 1.5×10^{14} W/cm² を考え、レート方程式によりイオンの割合を計算することが出来る。計算結果を図 4.9 に示す。

これよりクリプトンの中性原子の割合が 90% ~ 10% となる時間は約 50 fs と見積もることが出来る。次に空間を考慮するとポンプ光とプローブ光とが 2.4 度の角度を持って交わっていることによりプローブ光が通過する領域の端と端では約 15 fs の時間差が出来る。さらにポンプ光の集光強度の空間分布があるために光軸上では集光強度が強いために早い時刻にイオン化が進むが端の領域では集光強度が弱いためにイオン化が起きる時刻が遅れる。

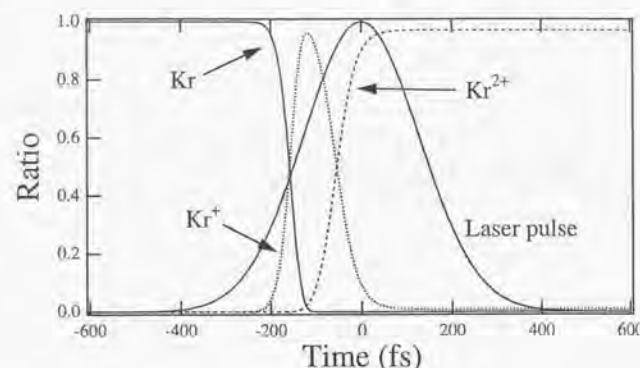


図 4.9: クリプトンのイオン化レートの計算

ポンプ光の集光領域を十分大きく取りプローブ光に比べて広い領域でイオン化を起こすことが出来れば集光強度の空間分布は考慮しなくても済むが実際はレーザーのエネルギーが限られているためポンプ光もある程度集光をきつくせざるを得ない。このようにイオン化に要する時間で集光強度の空間分布を考慮したものとポンプ光とプローブ光との交差角度によるものとの二つがこの交差相関法での時間分解能を決める。この実験の場合前者が大きくパルス幅の半分程度はありと考える。他にもデータを蓄えるプロセスでも時間分解能が制限される。本実験では透過率1点を得るのにレーザーパルス10ショット(1s)の積算をしている。一方遅延は14.2 μm/sでかけてある。従って1点につき24 fsの分解能となる。これらの分解能を考慮すると260 fsよりも短いパルス幅が得られるであろう。

4.6.2 ポンプ光が先行したときの透過率変化

図4.6をみると上段、中段ではポンプ光入射直後にプローブ光が入射すると高調波発生は抑制されるがこの抑制は数psでまた回復する様子が分かる。また、下段を見ると高調波の透過率はポンプ光入射直後は確かに高くなっているが数ps経つと透過率が下がる。この数psの緩和の原因を考察する。

ポンプ光でイオン化が起き、この状態が失われる過程は再結合過程であると考えのが自然である。再結合過程を見ているとするとポンプ光入射直後にはイオンとなっているた

めに高調波の発生効率率は下がり高調波の発生は抑制されまた、イオンなので高調波の透過率は上がることになる。再結合すると中性原子となるので高調波は発生するようになり透過率も下がるという説明になる。再結合過程には主に再結合をした時の余剰エネルギーを光として放射する2体再結合と他の電子に与える3体再結合とがある。2体再結合レート β はSeatonらによって、

$$\beta = \frac{2^6 \pi^{1/2} e^4}{3\sqrt{3} m_e c^3} Z \lambda^{1/2} (0.43 + \ln \lambda + 0.469 \lambda^{-1/3}) [cm^6 s^{-1}] \quad (4.3)$$

$$\lambda = \chi_{z-i}/T_e \quad (4.4)$$

と与えられている[90]。ここで m_e は電子の質量、 T_e は電子温度、 e は素電荷、 χ_{z-i} は $z-i$ 価のイオンの電離エネルギーを表す。3体再結合レート α は以下のように与えられる[91]。

$$S = 2.15 \times 10^{-6} T_e^{-3/2} \exp(-u)/u^2 [cm^3 s^{-1}] \quad (4.5)$$

$$\alpha = 1.66 \times 10^{-22} T_e^{-3/2} g_i \exp(u) S [cm^6 s^{-1}] \quad (4.6)$$

$$u = \chi_0/T_e \quad (4.7)$$

ここで S は衝突イオン化レートであり、 α は3体再結合レートをあらわす。 $T_e[eV]$ は電子温度であり $\chi_0 = 14.0/n^2[eV]$ 、 n は主量子数、 g_i は統計的重率である。希薄なプラズマでは2体再結合、密度の高いプラズマでは3体再結合が支配的となる。本実験でのプラズマ密度では後者が支配的となる。3体再結合を用いて本実験条件での再結合時間を見積もる。電子温度を1~10 eVとすると $n=9$ への再結合であれば0.5~5 psとなり、~2 psという時間の説明は付く。ただし電子が上準位にいるときの高次高調波の発生効率は解っていない。よって2 psで高調波発生が回復するためには励起状態からの高調波の発生効率が基底状態にある場合と同等であるか、基底状態まで2 psで脱励起するかのどちらかとなる。上準位に再結合した電子が下の準位に落ちてゆくには二つの過程がある。衝突脱励起と、光の放射を伴う脱励起である。ここではクリプトン原子の上準位寿命の計算ができないため、基底状態まで落ちているかどうかは判断できないが、Gloverらの計算ではヘリウムの2価が20 eVの電子と再結合して下まで落ちてゆく時間を5 psと計算している[103]。従って我々の結果2 psもオーダーとしてはあり得る値であると考えられる。我々の実験条件では通常の計算結果よりも早く再結合、脱励起する要因もある。今までの計算は全て電子の温度をマックスウェル分布として扱っている。ところが我々の場合にはクリプトン原子をチタンサファイアレーザーでイオン化しているために多光子イオン化が起こっている。よって電子の持つエネルギーは光子エネルギー以下のピークを持ち、ATIスペクトル

が鋭く形となっているであろう。これはマックスウェル分布とは異なり低温の電子が多い分布となる。これにより早い再結合時間が得られたものと考えられる。

また、何らかの原因でポンプ光の集光強度が上がっていなかった場合にはポンプ光でイオン化ではなく高励起状態と基底状態とのコヒーレントな重ね合わせ状態ができていた可能性もある[93][94][95][96][97]。この状態では基底状態に比べ9次高調波の透過率は大きくなり、高調波発生効率も下がるであろう。何故ならクリプトンに対する9次高調波の吸収係数は電子が基底状態にいるときに最大となり、高励起状態にいる原子は高次高調波を発生する前に1光子でイオン化を起こしてしまうからである。この状態へとクリプトンが変化していたとすると2 psの緩和はどのように説明されるであろうか。本実験のようにポンプ光の集光強度が高い場合、大多数の上準位がAC Starkシフトにより多光子吸収に共鳴を起こす。すると基底状態と高励起状態とのコヒーレントな重ね合わせ状態は多数できることになる。そしてこの状態は分極を作ることになるが、初めのうちはそれぞれの位相が揃っているために分極は最大となっており、時間と共に位相情報を失い緩和するであろう。

他にはポンプ光により多数の上準位状態の重ね合わせにより形成される電子の波束の時間発展を見ているという可能性もある[98][99][100][101][102]。このような可能性があるが、やはり再結合を示しているとするのが自然である。いずれにしてもポンプ光でクリプトン原子の状態がスイッチされ、高次高調波の透過率が素早く変化するという仕組みを用いて高調波のパルス幅を測定していることになり時間分解能は変わらない。

4.7 結論

ポンプ光によりクリプトン原子の状態を変化させ高調波の透過率を上げることで高調波のパルス幅を測定することに成功した。これは高調波と基本波との交差相関になっている。交差相関により高次高調波のパルス幅をフェムト秒領域で観測したのは本実験が初めてである。今回得られた高調波の透過率の回復の現象は低温プラズマの再結合過程であると思われるが、他の要因も考えられる。

第5章 自己相関法による高次高調波のパルス幅測定

5.1 はじめに

第4章で述べた交差相関法による高調波のパルス幅測定の分解能はおおよそポンプ光のパルス幅の半分程度であり、ポンプ光よりも十分に短いパルス幅を測定することは困難でありかつ、ポンプ光のパルス幅が十分短くなってもポンプ光とプローブ光との交差する角度により、4.6.1節で述べたように15 fs程度の避けることのできない分解能が存在した。Gloverらは高調波と基本波によるイオン化に於ける電子分光による交差相関法で23次高調波のパルス幅50 fsを観測したが[104]、やはりデコンボリューションの過程に不確定さが残った[105][106]。これから高調波に関する研究の一つの大きな流れに1フェムト秒を切るようなアト秒領域のパルスを発生させるということが挙げられるが、これについては様々な理論的予測がされており[64][65]、最大の問題点はそのようなアト秒の極端紫外光をどのように測定するかにあった。従って交差相関法よりも時間分解能のよい自己相関法によって極端紫外領域の超短パルスを測定する方法を確立することは非常に大きな意味を持つ。自己相関法によりパルス幅を測定するには極端紫外領域で非線形光学効果を観測する必要がある。今までの極端紫外光は希ガスラмпや軌道放射光により得られていたのでもピコ秒を切るような超短パルスはなく、従って非線形現象を起こすほどピーク強度が高くはなかった。よってこの波長領域の非線形現象は未知の領域であった。波長100 nmを切る極端紫外領域では光を透過できる物質がないので非線形結晶は使えないため非線形媒質としてはガスを用いるか固体の表面を用いざるを得ない。今回我々はヘリウムガスを9次高調波により2光子イオン化させることにより極端紫外領域での非線形現象を観測し、これを用いてチタンサファイアレーザー（パルス幅34 fs）の9次高調波のパルス幅を自己相関法により測定し、パルス幅27 fsを得た。

5.2 極端紫外領域における非線形光学効果の測定

5.2.1 非線形光学効果のために

自己相関法でのパルス幅測定に必要な非線形現象にはいくつかの候補が考えられる。まずは希ガスを非線形媒質として用いる高調波の第3高調波発生。次に固体の表面を非線形媒質として用いる表面第2高調波発生。これらはどの高調波の次数でも非線形媒質を変えずに観測できる利点を持つが測定は光を分光して検出するため検出の感度が上がらない欠点を持つ。また、希ガスをターゲットとして高調波を2光子吸収させイオン化を起こさせるという非線形現象も候補に挙がる。こちらは非線形を起こさせる波長がガスの種類で制限されるという欠点があるが、検出が生成されたイオンや派生した光電子でできるため検出感度が優れている。当研究室ではイオン分光器の方が優れているため今回は高次高調波による希ガスの2光子イオン化をイオンを検出する方法で行った。高次高調波の光子エネルギーと希ガスのイオン化エネルギーとの関係を表5.1、5.2に示す。これらによりどの希ガスを用いた場合にどの次数の高調波が2光子イオン化を起こすかが決まる。

次数	光子エネルギー (eV)
3rd	4.65
5th	7.75
7th	10.85
9th	14.0
11th	17.1
13th	20.2
15th	23.25
17th	26.35

表 5.1: チタンサファイアレーザー (波長 800 nm) の高調波の光子エネルギー

ガス種	イオン化エネルギー (eV)	2光子イオン化を起こす次数
ヘリウム	24.6	9-15
ネオン	21.56	9-13
アルゴン	15.75	7-9
クリプトン	14.0	5-9
キセノン	12.13	5-7

表 5.2: 2光子イオン化を観測できる次数

表5.1、5.2を見ると高調波の2光子イオン化は観測したい次数によって適当なガスを選ぶことにより5次から15次まで観測できることが分かる。例えばヘリウム、アルゴンのイオン化エネルギーに対する7、9次高調波の光子エネルギーを図5.1に示す。ヘリウムを用いると9次以上の高調波は2光子吸収を起こしイオン化が起きるが7次高調波では2光子ではイオン化させることができない。アルゴンを用いると7、9次共に2光子吸収でイオン化が起きる。

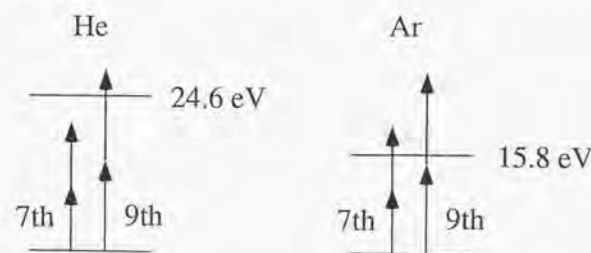


図 5.1: 7、9次高調波の2光子イオン化

高次高調波の2光子イオン化を観測するためにはいくつかの達成すべき問題点がある。第一には2次の非線形現象は集光強度の2乗に比例するため高次高調波の集光強度を上げることである。第二には観測されるイオンはターゲットである希ガスの密度に比例するために真空槽の中にできるだけ高密度の希ガスを供給する必要があることである。また、希ガスのイオン化が高次の高調波では1光子で起こり、低次の高調波が混ざると低次は強度が強いため3光子吸収以上の非線形によりイオン化が起こる可能性があるため高調波の次数を選ぶ必要がある。つまり高調波の次数を観測したい次数周辺に絞って希ガス中に集光する必要がある。これらの問題点をクリアして初めて高次高調波の非線形現象を観測することができる。

5.2.2 高調波の高強度化

まずは高次高調波の発生効率を上げ、高調波の高強度化をはかった。高次高調波の発生は通常レーザーの焦点で希ガスと相互作用をさせて行うが、レーザーシステム的大幅な向上があったため焦点から離れたところで高調波を発生させることができるようになった。高次高調波の発生効率はレーザーの集光強度がある程度の強さになると飽和する。よって

焦点から離れたところではレーザーが希ガスと相互作用をする体積が大きくなるため高調波の光量は増大する。あまり離れすぎるとレーザーの集光強度が下がりすぎ高調波の発生効率は下がる。まずは希ガスの充填してあるガスチューブの焦点からの距離 (L) を変え、9 次高調波の光量を測定した (図 5.2)。測定結果を図 5.3 に示す。

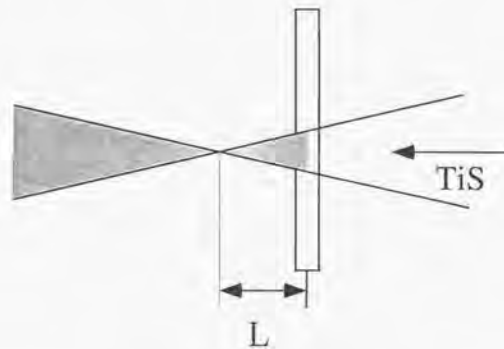


図 5.2: 光量の増大の配置図

焦点にガスチューブがある時に比べ焦点から 20 mm 離れたところにガスチューブをおくことにより 2 桁高調波の光量の増大させることができた。レーザーのエネルギーが 44 mJ の時に 9 次高調波のエネルギーは 50 nJ となった。

5.2.3 次数選択

高調波の非線形現象を観測するためにはどの次数によってイオン化が起きたのかを判断するため次数を選ぶ必要がある。1 光子でイオン化してしまうような高次の高調波を除去しなければならないし、基本波や 3 次高調波を除去しなければこれらを複数吸収してイオン化を起こしてしまう。次数を選ぶ方法でまず考えられるのが回折格子によって選択する方法であるが、例えば第 3 章で制作した分光器を用いると高調波のパルス幅は数 100 fs 程度に伸びてしまう。これでは非線形光学効果は起こりにくくなり又、パルス幅の測定にはならない。それではフィルターを用いるとどうなるか。比較的低次の高調波を選択するには In フィルターを使うことができる。この場合 9 次から 13 次程度を選択することができ

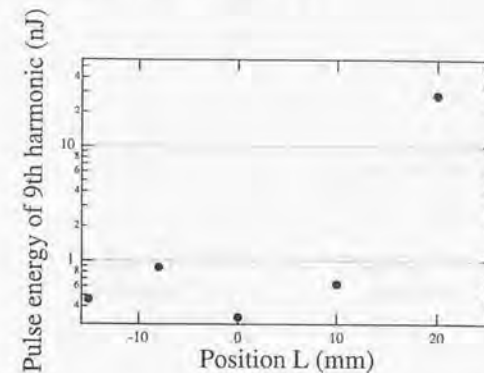


図 5.3: ガスチューブの位置に対する 9 次高調波の光量

るが透過率は 10 % 程度に落ちてしまい非線形効果を測定するには適さない。この波長領域では透過する物質が金属の薄膜のみであるので物質の反射特性を用いて波長を選択するしかなくなる。様々な物質の反射率の波長特性は誘電率の実部 n と虚部 k が分かれば次式により計算することができる [107]。

$$\begin{aligned} R_s &= \frac{a^2 + b^2 - 2a \cos i + \cos^2 i}{a^2 + b^2 + 2a \cos i + \cos^2 i} \\ R_p &= R_s \cdot \frac{a^2 + b^2 - 2a \sin i \tan i + \sin^2 i \tan^2 i}{a^2 + b^2 + 2a \sin i \tan i + \sin^2 i \tan^2 i} \end{aligned} \quad (5.1)$$

where

$$\begin{aligned} 2a^2 &= [(n^2 - k^2 - \sin^2 i)^2 + 4n^2 k^2]^{1/2} + (n^2 - k^2 - \sin^2 i) \\ 2b^2 &= [(n^2 - k^2 - \sin^2 i)^2 + 4n^2 k^2]^{1/2} - (n^2 - k^2 - \sin^2 i) \end{aligned}$$

図 5.4 に様々な物質の直入射反射率の高調波次数依存を示す。

これを見るとアルミニウムの反射率が高次の高調波を除去する目的に適していることが分かる。9 次までは 8 割以上反射するのに対し、11 次以上は反射率がほとんどない。アルミニウムに MgF_2 をコーティングした鏡を用いると MgF_2 は 9 次以上の高次の高調波を吸収してしまうため 9 次以上の高調波の反射率はなくなることになる。つまり、アルミニウム鏡と MgF_2 コート付きアルミニウム鏡を用いることにより 9 次高調波までを反射する光学系と 7 次高調波までを反射する光学系が組めることになる。この 2 つの光学系の違いを

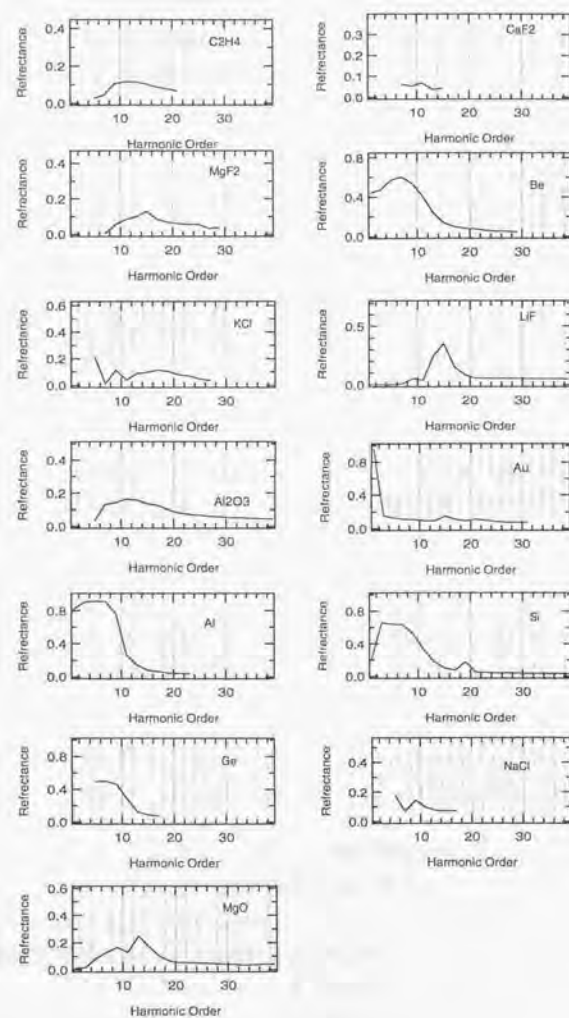


図 5.4: 高調波の次数に対する様々な物質の反射率

見るにより9次高調波の役割が明確になる。従ってアルミニウムの反射特性の有用性により用いる高調波の次数は9次にするにした。あとは基本波と3次高調波をいかに除去するかである。800 nmのチタンサファイアレーザーの3次高調波の波長は267 nmであるためこの波長領域ではまだ誘電体多層膜の抗反射膜が存在する。一方斜入射光学系では高次高調波は反射率がある。従って斜入射で基本波と3次高調波は抗反射膜により透過し、高次高調波は反射するビームスプリッターを作ることができる。高次高調波の反射率特性の良い材料である2酸化珪素を表面に用いた2酸化珪素と2酸化チタンとの組み合わせを使った誘電体多層膜のビームスプリッターを用いることにより基本波の99.2%、3次高調波の96%、5次高調波の一部を除去することができた。

このようにアルミニウム鏡とビームスプリッターとを用いることにより5次の一部、7次、9次高調波を選ぶことができる。このときターゲットをアルゴン、ネオン、ヘリウムを用いるとこれらの2光子イオン化を測定することができる。またMgF₂コート付きアルミニウム鏡とビームスプリッターとを用いることにより5次の一部、7次高調波を選ぶことができる。(図5.5)

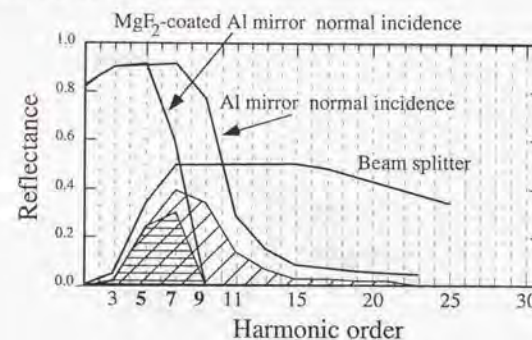


図 5.5: 高調波の次数に対するアルミニウムの反射率

アルミ鏡を用いたときの焦点での高次高調波スペクトルを図5.6に示す。これにより11次以降は除去されていることが分かる。

集光鏡とターゲットの希ガスの組み合わせで起こる多光子吸収を表5.3に示す。これを見ると、例えばヘリウムをターゲットとして用い集光鏡をアルミニウムとした場合、9次+9次、9次+7次、9次+5次+5次、...の2光子、あるいは3光子吸収によりイオン化が起

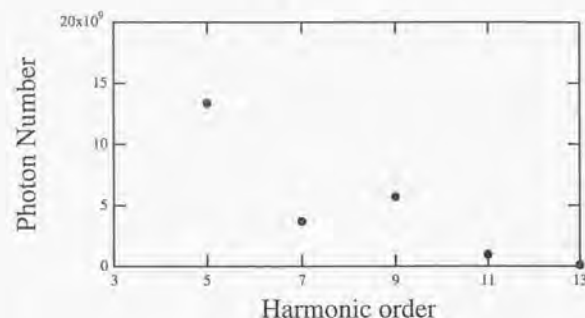


図 5.6: アルミニウム反射後の高調波スペクトル

	Al	MgF ₂ -Al
He	9+9, 9+7, 9+5+5, 7+7+7, 7+7+5, 7+5+5	7+7+7, 7+7+5, 7+5+5
Ar	9+9, 9+7, 9+5, 7+7, 7+5, 5+5+5	7+7, 7+5, 5+5+5

表 5.3: 集光鏡とガス種による多光子吸収

きることになるが3光子吸収は2光子吸収に比べ確率が低い。よって9次+9次、9次+7次が支配的になる。また、図5.6を見ると9次高調波の方が7次高調波よりも強いことが分かる。これより9次+9次がより支配的になるであろうことが予測される。後は集光鏡をアルミニウムとMgF₂コート付きアルミニウムにした場合の比較を行い、どの次数の非線形効果が起きているのかを確かめる。

5.2.4 高調波の集光

発生した高調波の次数を選んだ後に高調波を集光する必要がある。高次高調波を発生させるためのレーザーの集光系は高調波の発生効率を上げるために強く集光する必要があるのに対し、高調波の集光はきつくし焦点での集光径をできるだけ小さくすることが望ましい。そのために今回は高調波を直入射の球面鏡で集光することにより縮小系を組んだ。

5.2. 極端紫外領域における非線形光学効果の測定

レーザーの集光系は $f = 500$ mm の球面鏡で構成されていて焦点での集光径は $\sim 30\mu\text{m}$ である。ここから約 1170 mm 離れたところに $f = 100$ mm の球面鏡を置き縮小系を組んだ。光線追跡の計算から高調波は焦点では $\sim 2\mu\text{m}$ まで絞れることになる。実際はアルミの球面鏡の面精度が高調波の波長程度にしかならないのでここまでは集光されないであろうが直入射の球面鏡により集光する方法は縮小系を組む上で非常に優れた方法である。アルミニウムの球面鏡を用いることにより集光と同時に高調波の高次を除去するフィルターにもなっている。

5.2.5 ターゲットガスの密度

高調波の焦点に希ガスを充填する方法はパルスガスジェットを採用した。これは定常的に希ガスを真空槽内に充填させる方法ではイオン分析の検出器の真空度の限界により 10^{-4} Torr しか満たせないがパルスガスジェットを用いることにより数 Torr まで希ガスの密度を上げることができるからである。高調波の焦点にはイオン分析のための電極が上下にあるために電極の間にガスを供給するためにパルスガスジェットの先端にはストロー状の絶縁体をつけてある(図5.7)。また、イオン分析器の検出器のある場所と高調波が希ガスと相互作用する場所とで約2桁の差動排気を行い検出器付近では 10^{-6} Torr を実現している。

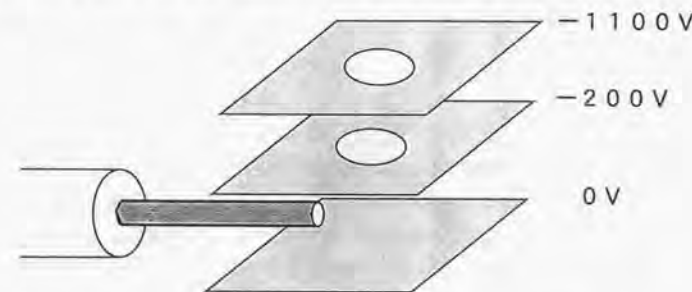


図 5.7: パルスガスジェットの細工

5.2.6 生成するイオンの見積もり

高次高調波の集光強度が見積もれると2光子吸収によるイオンの生成量を見積もることができる。集光強度を見積もる上で最も曖昧になってしまうのは高調波の集光径である。これについては測定不可能なため推測値を用いる。

9次高調波によるヘリウムイオンの生成量を見積もる。まずパルス当たりの9次高調波のエネルギーは発生時で約50 nJで集光効率率はビームスプリッターの反射率とアルミ鏡の反射率で～30%となる。焦点でのエネルギーは約13 nJである。パルス幅は30 fsと仮定し、高調波の集光径は10 μm (直径)とする。これより9次高調波の集光強度は～500 GW/cm^2 と見積もることができる。ガスの圧力は1 Torrとしガスの存在する領域の長さは0.8 mmで、高調波のコンフォーカルパラメータも約0.8 mmである。ここまでくるとあとはKeldysh-Faisal-Reiss理論と呼ばれる、光による原子のイオン化確率を与える式2.3に代入すれば何個イオン化するかを見積もることができる。

例えば集光強度を150 GW/cm^2 としてイオン化のレート方程式を計算すると、1パルス当たり～60個のヘリウムイオンが生成されることになる。これは十分観測可能な量である。

5.2.7 レーザーシステム

ここで用いたレーザーシステムはチタンサファイアレーザーのCPAシステムで波部研究室で開発された世界トップレベルの22 TWレーザーである。このレーザーは22 fsのパルス幅で480 mJのパルスエネルギーを繰り返し10 Hzで出す能力があり、このような能力を持つレーザーシステムが開発されたために従来不可能であろうと思われていた自己相関法による高次高調波のパルス幅測定が可能にまで大きな信号量を非線形光学効果で得ることができる様になったのである。実際の非線形効果の観測、自己相関法による高次高調波のパルス幅の測定では1～2 TWレベル、パルス幅34 fsでレーザーシステムを運転した。

5.2.8 実験装置

チタンサファイアレーザーのCPAシステムはパルス圧縮を行うとパルスのピーク強度が強いためパルスは空气中を伝搬することができない。従ってパルス圧縮は真空槽内で行われる。このシステムから出てきたパルスを $f = 500 \text{ mm}$ の球面鏡で集光する。焦点より

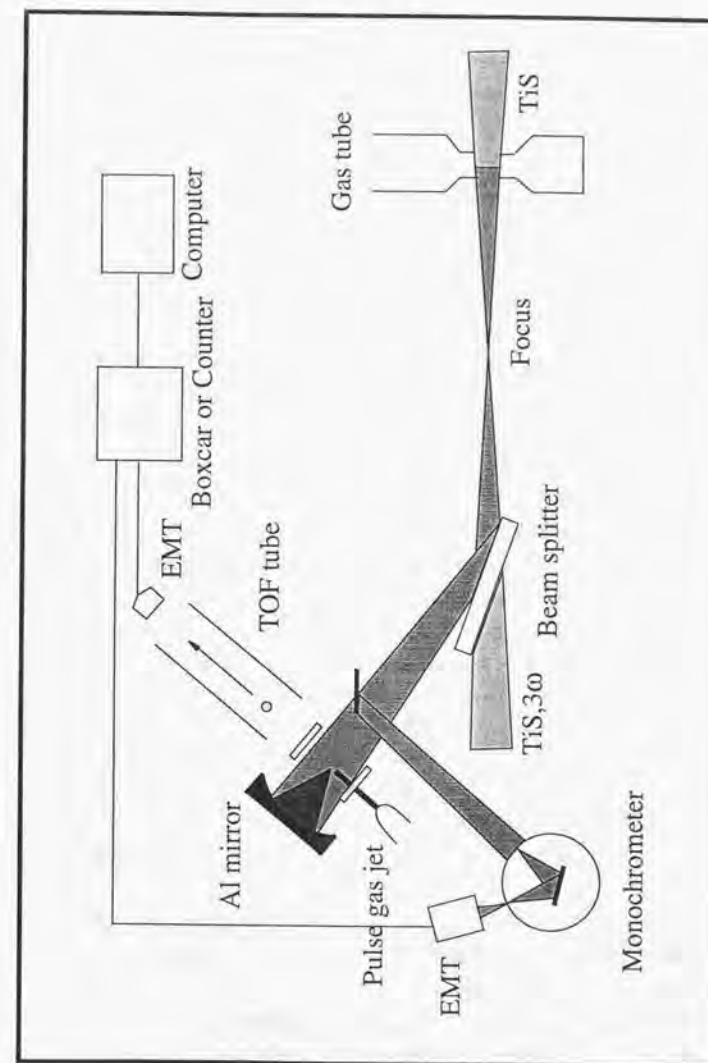


図 5.8: 高調波による2光子イオン化の実験配置図

15 mm 手前に Xe が 2 ~ 3 Torr 充填したガスチューブを置く。このガスチューブは両端に穴があいていてこの穴よりレーザーパルスがガスチューブ中に導かれる。希ガスとレーザーパルスが相互作用して高次高調波が発生しもう一方の穴より出てくる。発生した高調波と残りの基本波はビームスプリッターへ導かれる。基本波の 99.6 %、3 次高調波の 96 %、5 次高調波の一部はこのビームスプリッターを透過し真空槽の外へ導かれる。5 次高調波以上の高次高調波はビームスプリッターにより反射され広がりながら直入射のアルミニウムまたは MgF_2 コート付きアルミニウム鏡に導かれる。アルミニウム鏡を用いた場合 5、7、9 次高調波が集光され、 MgF_2 コート付きアルミニウム鏡を用いた場合 5、7 次高調波が集光される。焦点には希ガスがパルスガスジェットにより供給され、2 光子吸収によりイオン化したイオンは上下にかけられた電界により上方へ飛ばされる。高調波の焦点の上下には平行電極による電界がかかっているためパルスガスジェットの先端にストローを付け、電極中に希ガスを供給できるように工夫した。上方へ飛ばされたイオンは e/m に応じた速度で飛んでいくのである距離離れた検出器に到達した時刻によりイオンの種類を分解するいわゆる飛行時間分析法によるイオン分析器を用いた。検出器は比較的高い圧力でも使える電子増倍管を用いた。これは浜松ホトニクス社の R5150 で、立ち上がり時間 1.7 ns の応答時間の早いものを用いた。電子増倍管からの信号はマルチチャンネルスケーラー (Stanford Research System SR430) で取り込んだ。これは 256 チャンネルのカウンタであり、横軸は時間、縦軸はイオンのカウント数となる。

5.2.9 実験結果

イオンを検出する電子増倍管からの信号はマルチチャンネルのカウンターとデジタルオシロスコープである、Tectronics 社の Digital Signal Analyzer とを使って測定した。高次高調波を高効率で発生させたときには高調波 1 パルス当たり 1 個以上のイオンが生成するためカウンタでは個数を正確に測定できないため高調波を発生させるガスチューブ中の Xe ガスの密度を下げ、高調波の光量を下げてパルス当たり 1 個以下のイオン生成量にしてカウンタで測定した。

ターゲットガスをヘリウムとしたときのイオンスペクトルを図 5.9 に示す。横軸は飛行時間、縦軸は検出されたイオンの個数で 6000 レーザーショットの積算値である。ヘリウムガスを用いているため 9 次高調波は 2 光子吸収によりヘリウムをイオン化する事ができ、7 次高調波の場合はイオン化に 3 光子を要し、5 次高調波では 4 光子を要する。アルミニウム鏡を用いたときには集光される高調波は 5 次、7 次と 9 次であり、 MgF_2 コート付

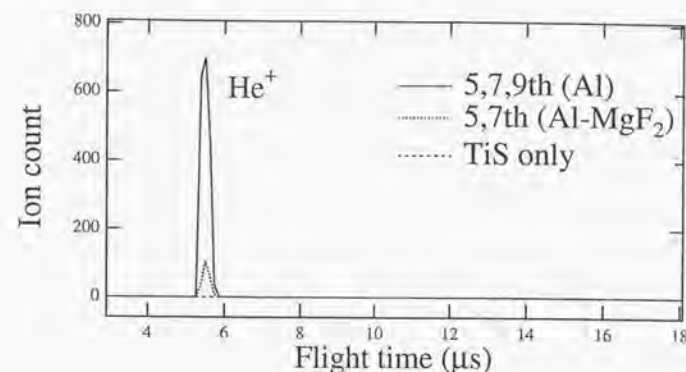


図 5.9: ヘリウムのイオンスペクトル

きアルミニウム鏡を用いた場合は集光される高調波は 5 次、7 次高調波なのでこの違いにより 9 次高調波のイオン化に対する役割が分かる。図 5.9 より 9 次高調波が集光されているときの方が 9 次高調波がないときに比べ 1 桁程度イオンの生成量が大きいためヘリウムの高調波によるイオン化は 9 次高調波の 2 光子吸収によるイオン化が支配的であることが分かる。一方残りのチタンサファイアレーザーによるイオン化の影響を見るために高調波が発生していない時のヘリウムイオンを測定したが 0 カウントであった。これによりビームスプリッターで基本波が完全に除去されていることが分かる。また、高調波の光軸上に 2 mm 厚の MgF_2 を挿入して完全に 9 次高調波を除去した状態でもヘリウムイオンはわずかながら生成した。これは基本波の影響ではなく 7 次高調波の 3 光子吸収が 7 次と 5 次とを併せて 3 光子吸収してヘリウムイオンが生成したことによる。何故なら 2 mm 厚の MgF_2 を基本波と高調波が通過すると群速度の違いが $> \text{ps}$ となり、基本波と高調波は完全に時間的に重ならないのにも関わらずイオン化が起きているからである。

一方ターゲットガスをアルゴンにしたときのイオンスペクトルを図 5.10 に示す。この場合もヘリウムの時と同様の傾向を示した。やはり 9 次高調波も同時に集光されているときにアルゴンイオンの生成量が増えている。アルゴンは 7 次、9 次とも 2 光子吸収によりイオン化を起こす。また 7 次と 9 次の 1 光子ずつを吸収してイオン化する事もできる。従って 9 次高調波が加わることでイオン化は起こりやすくなるのである。

高調波の光量を最大にしてデジタルオシロでイオンを測定すると生成したイオンの個数

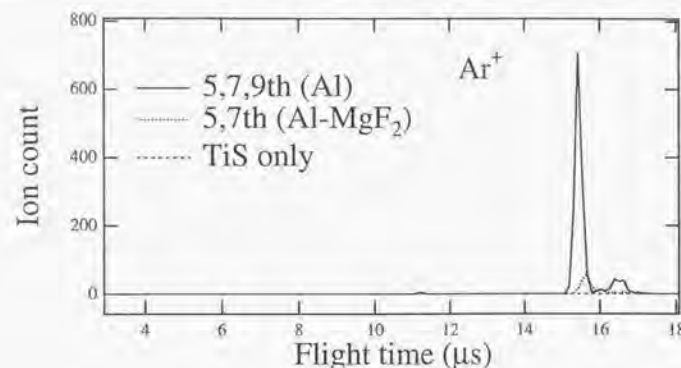


図 5.10: アルゴンのイオンスペクトル

を見積もることができる。オシロの画面ではパルスは横軸が時間が縦軸が電圧で出てくる。このパルスの面積は $[V \cdot s]$ の単位で表される。オシロの入力インピーダンスは $R = 50[\Omega]$ なので、 $[V \cdot s] = [50A \cdot s] = [50C]$ (A: アンペア, C: クーロン) となる。一方電子増倍管の光電面にイオンが1個入射したときに信号線に出力される電子の数は光電面の量子効率と増倍率との積して与えられている。この増倍率は電子増倍管に印加する電圧により、浜松ホトニクス R5150 で、電圧が 2 KV のときに 10^7 倍である。入射したイオン数を N 、量子効率を η とすると電子増倍管の出力は $N \cdot \eta \cdot 10^7 \cdot 1.6 \times 10^{-19} [C]$ となる。オシロで測定したパルスの面積を $S[V \cdot s]$ とすると、

$$N \cdot \eta \cdot 10^7 \cdot 1.6 \times 10^{-19} [C] = 50S [C] \quad (5.2)$$

より

$$N = \frac{50S}{10^7 \cdot \eta \cdot 1.6 \times 10^{-19}} \quad (5.3)$$

となる。これにより入射したイオンの個数を見積もることができる。イオンの個数の見積もりには量子効率を1とした。全く同様の方法で高調波の光子数も見積もることができる。この場合は量子効率はカタログ値を用いた。この換算を用いると本実験ではチタンサファイアレーザーのパルスエネルギーが 44 mJ のとき 9 次高調波は約 50 nJ 発生する。また、レーザーエネルギー 10 mJ の時にパルス当たり 20 個のヘリウムイオンが生成したことになる。

高次高調波による 2 光子吸収を確かめるために 9 次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量を測定した。この場合は発生した高次高調波の一部を集光前に切り出し分光器に導き一つの次数を選び出し、その光量をイオンの生成量と同時に測定した。高次高調波の光量は電子増倍管 (浜松ホトニクス R595) からの信号を Digital Signal Analyzer (Tectronics) で 256 回平均して得た。高調波の光量は高調波を発生させる非線形媒質として用いているキセノンガスの濃度を変えることにより調整した。イオンの信号は電子増倍管 (浜松ホトニクス R5150) からの信号をボックスカーで 300 回積算して得た。イオンの信号は 300 回で観測した個数に換算して縦軸に示してある。9 次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量を図 5.11 に示す。

両対数で表示したときに傾きが 2 となっているのでこれは 9 次高調波の強度の 2 乗にヘリウムイオンの生成量が比例していることが分かる。これにより 9 次高調波の 2 光子吸収でヘリウムがイオン化していることが確かめられた。この実験では高調波の焦点に 5、7、9 次高調波が混在しており 9+9、9+7、9+5+5 が考えられるが (表 5.3 参照) 3 光子吸収よりも 2 光子吸収が強く起こりさらに、7 次比 9 次高調波が強いことによりイオン化は主に 9 次高調波による (図 5.9 参照)。従って 2 次の傾きは 9 次高調波の 2 次の非線形と解釈できる。次に 7 次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量を図 5.12 に示す。このときには両対数グラフで傾き 2.4 が得られた。これは 7 次高調波の強度の 2.4 乗にヘリウムイオンの生成量が比例していることを示す。この系で 7 次高調波の 3 光子吸収のみが起こっているときには 7 次高調波の 3 乗に比例するであろうが、2.4 乗になったということは 2 光子吸収と 3 光子吸収が混在していることになる。この測定ではアルミニウム鏡を用いているため集光点では 5 次、7 次、9 次高調波が混在している。よって 7+7+7 の他に 7+7+5、7+5+5、7+9 等の非線形過程が含まれることになる。7+9 が 2 次の非線形過程のために強く起こり、結果として傾き 2.4 となったのであろう。

次に高調波の強度に対するアルゴンイオンの生成量を測定した (図 5.13)。9 次高調波の場合も 7 次高調波の場合も 2 光子吸収を示す傾き 2 が得られた。これはアルゴンは 7 次、9 次ともに 2 光子吸収でイオン化できることによる。

5.2.10 考察

今回の測定系でイオンが発生してから検出器に入るまでの線形性を考える必要がある。イオンが 1 個発生したときに希ガスの密度があまりに高いときにはイオンが電場で加速されて中性原子に衝突し、イオン化を起こすことによりイオンの個数が増えるからである。

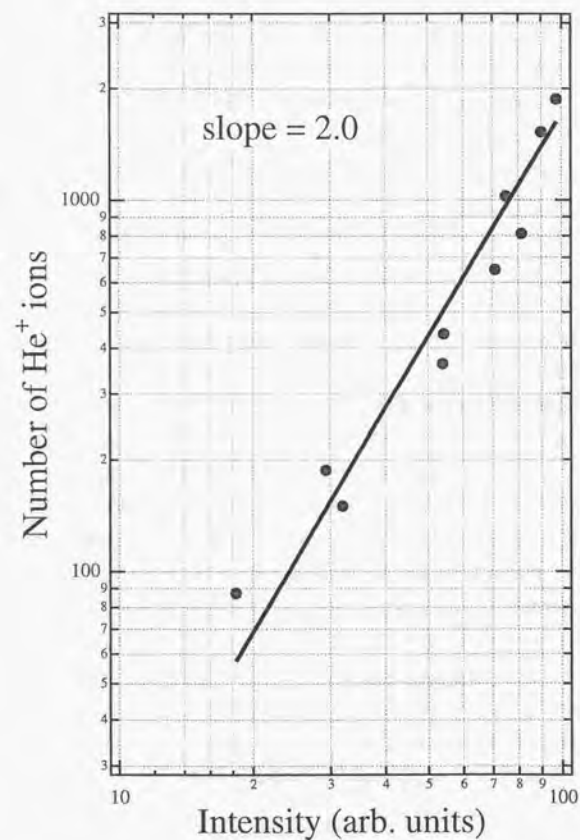


図 5.11: 9 次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量

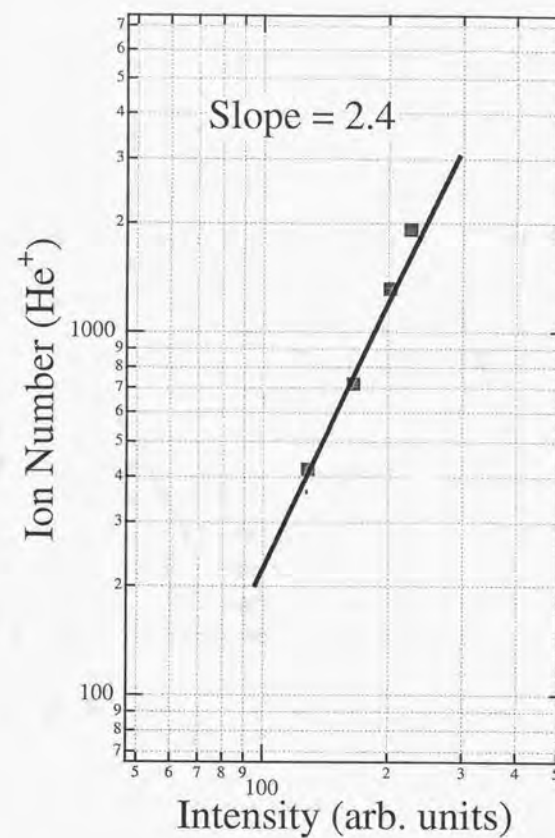


図 5.12: 7 次高調波の強度に対するヘリウムイオンの生成量

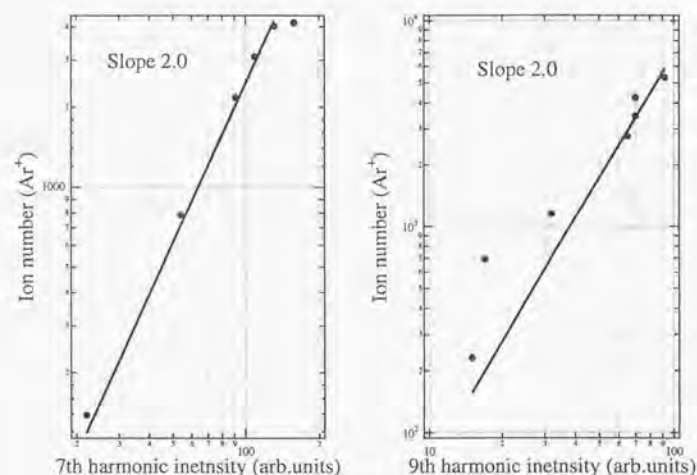


図 5.13: 7次、9次高調波の強度に対するアルゴンイオンの生成量

本実験条件での衝突によるイオン化について考察する。ガスジェットから伸びているストロー状のセラミックの先端から中性原子がでている。内径は0.8 mmで中心が高調波の焦点になっているため発生したイオンは ~ 1 Torrの密度中を ~ 0.4 mm通ることになる。この領域は1 cm幅の上下に200 Vの電圧がかけられていて下方に初速を持つイオンも上方に導く仕組みになっている。従って0.4 mmのうちにイオンは8 eVのエネルギーを持つ。8 eVのエネルギーのイオンは中性原子に衝突してもイオン化エネルギー以下なので衝突によるイオン化は起こさない。パルスガスジェットの先端以外の領域の真空度は $< 1 \times 10^{-4}$ Torrに保たれている。この真空度では平均自由行程は ~ 1 mある。イオンは900 eV加速されて上方へ飛ばされるが、この真空度を飛行する距離は < 30 cmである。従ってこの間の衝突によるイオン化もほぼ無視できる。そこから先の飛行管は距離約1 mで真空度 4×10^{-6} Torrに保たれており、衝突は無視できる。この様に検出器の真空限界のためだけではなく発生したイオンの衝突を防ぐためにも差動排気を施すことは非常に重要である。ガスジェットの背圧を上げることにより高調波と相互作用する原子の数は上げることができるが実験で背圧を2 気圧以上にしてガスを比較的大きいアルゴンやクリプトンにした場合、イオンスペクトルを取ると衝突によるとみられるイオンスペクトルのピークの幅の増大が見られ、さらに圧力を上げると衝突のために多価のイオンが生成する。多価のイオンが生成していても始めに高調波の2光子吸収が起きなければ核となるイオンができないので、これは2光子吸収をうらづけることにはなるが、高調波の強度に対するイオンの生成量のグラフの傾きはそのまま高調波の強度の何乗に比例しているとは一概にいえなくなってくる。しかしこのイオン分析器の性質を逆手に取り電圧で加速しながらイオンの個数をねずみ算的に増やして光電子増倍管のように用いることにより極わずかなイオンの検出に用いることが可能であることも分かる。

今回用いた希ガスの2光子イオン化はヘリウムで24.6 eVの光子エネルギーまで使うことができる。これはチタンサファイアレーザーの15次高調波まで使えることになるが、波長選びの方法でアルミニウム鏡を用いたために7、9次高調波の2光子イオン化を測定することになった。様々な物質の反射率を計算した結果LiFの反射率は15次高調波でピークを持つため15次高調波での2光子イオン化は測定できると考えられる(図5.4)。15次になるとすでにプラトーの領域になっているため、パルス幅を測定する意義がまたでくる。今後の課題だと考える。

5.3 自己相関法によるパルス幅測定

5.3.1 自己相関のために

5.2節で9次高調波による非線形光学効果を観測することができたのでここではこれを用いて9次高調波のパルス幅測定を自己相関法により行う。自己相関法で高調波のパルス幅を測定するためには高調波のパルスを二つに分け、遅延をつけて空間的に重ねる必要がある。ところが高調波が発生した後でパルスを分け遅延をつけることは非常に困難である。何故なら極端紫外領域では半透鏡がなく、真空槽のなかで遅延をつけることが難しいからである。この問題を解決するためにチタンサファイアレーザーの段階でパルスを二つに分け遅延をつけることにした。それぞれのパルスから高調波を出して焦点で重ねればよい。レーザーを2つに分ける方法にも問題がある。半透鏡を用いてチタンサファイアレーザーを二つのパルスに分け、遅延をつけた後に光軸を一致させると高次高調波を発生させるとここで先のパルスが次のパルスに影響を与えてしまう。先のパルスが高調波を発生するときに同時に希ガスをイオン化させてしまい、次のパルスからは高調波発生効率の下がってしまうからである。これを避けるためには高調波を発生させる場所を二つのパルスで分ければよい。そのためにチタンサファイアレーザーを空間的に二つのパルスに分け遅延をつけた。この二つのパルスを平行光として一つの集光鏡で集光すると、焦点まで空間的に離れている。高調波を発生させる希ガスの入ったガスチューブは焦点より手前においておくので希ガスと相互作用する場所では二つのパルスは重ならず、お互いに影響を与えることはない。発生した高調波はいったん集光した後広がってゆき、ビームスプリッターで反射し、アルミの球面鏡により集光される。二つの元が平行光であった高調波が一つの球面鏡で集光されると焦点では必然的に空間的に重なるのである。この方法を用いることにより目に見えない極端紫外光の空間的な重なりを克服することができた。

第5.2.9節で求めたように用いる鏡とターゲットの希ガスの種類に応じて測定できる次数が決まる。この関係を表5.4、5.5に示す。

	Al	MgF ₂
He	9	-
Ar	(9)	7

表 5.4: 2次の自己相関で測定される次数

これよりアルミニウム鏡を用いヘリウムイオンの生成量を遅延を変えながら測定することにより9次高調波のパルス幅を測定することができ、MgF₂コート付きアルミニウム鏡

5.3. 自己相関法によるパルス幅測定

	Al	MgF ₂
He	-	7
Ar	-	(5)

表 5.5: 3次の自己相関で測定される次数

を用いアルゴンイオンの生成量を遅延を変えながら測定することにより7次高調波のパルス幅を測定することができる。また、MgF₂コート付きアルミニウム鏡を用いヘリウムイオンの生成量を遅延を変えながら測定することにより7次高調波のパルス幅を3次の自己相関で測定することができる。

5.3.2 実験装置

用いたレーザーシステムを図5.14に示す。

レーザーシステムは5.2節と同じである。このシステムはパルス圧縮を真空槽内で行うためパルス圧縮前にパルス分割と遅延回路を挿入した。遅延はステップモーターで動くパルスステージによって与え、最小遅延幅は ~ 3 fsとなっている。チタンサファイアレーザーの二つのパルスは $f = 500$ mmの球面鏡で集光され、焦点より15 mm手前に厚さ1 mmで両側に800 μ mの穴のあいたガスチューブが置かれている。この中には比較的低次の高調波の光量が大きくなるキセノンガスを2 \sim 3 Torr満たして高調波を発生させる。ガスチューブ中では二つのパルスは50 μ m程度分離してお互いに影響を与えることはない。これらのパルスは入射角70 degのビームスプリッターにあたり、基本波、3倍波は透過し真空槽の外へ導かれ、5次以上は反射する。反射した二つの高調波パルスは一つの球面鏡 ($f = 100$ mm) で希ガス中に集光される。9次高調波のパルス幅を測定するときにはアルミニウム鏡を用いターゲットの非線形媒質としてヘリウムガスを用いた。7次高調波のパルス幅はMgF₂コート付きアルミニウム鏡とアルゴンを用いた。イオンの検出は電子増倍管で行い、信号はボックスカーで積算した後にコンピューターに取り込んだ。

5.3.3 実験結果

レーザーはパルスエネルギー10 mJ、パルス幅34 fsで用いた。まずはアルミニウム鏡とヘリウムの組み合わせを使い9次高調波のパルス幅測定を行った。遅延の送り幅は1 μ mずつで、1点につき200パルス積算した。最も短いパルス幅が得られたときの自己相関波

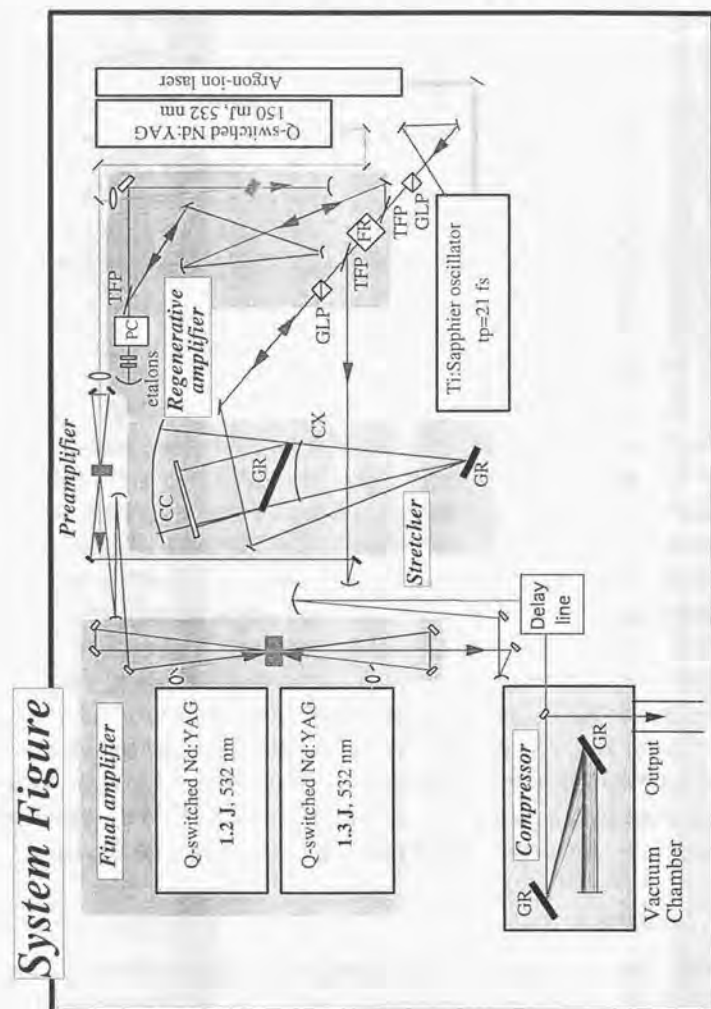


図 5.14: 自己相関法に用いたレーザーシステム

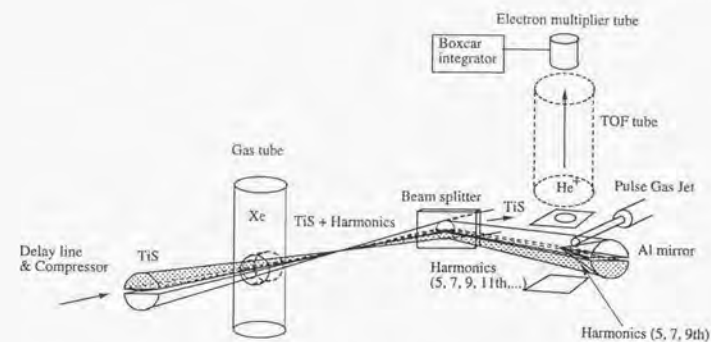


図 5.15: 自己相関法の実験配置図 1

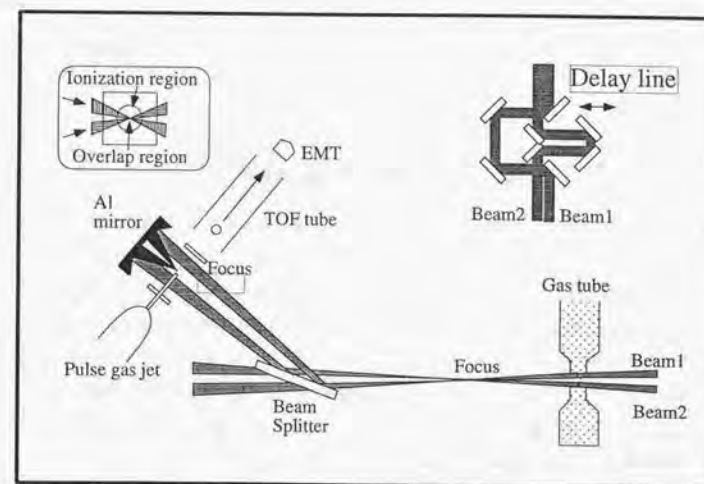


図 5.16: 自己相関法の実験配置図 2

形を示す。(図 5.17)

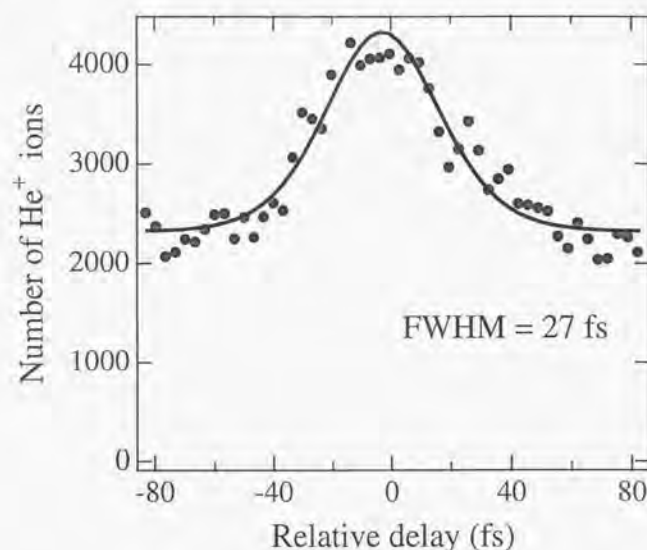


図 5.17: 9 次高調波の自己相関波形

遅延ゼロ秒でイオンの信号が大きくなっていることから確かに自己相関波形がとれていることが分かる。パルス波形を sech^2 と仮定して自己相関波形にフィッティングし、 sech^2 パルスの自己相関関数より導出される値 1.55 で半値全幅を割ることによりパルス幅がもともとの 1.5 倍となる。これにより 9 次高調波のパルス幅は 27 fs となった。ターゲットをアルゴンとした場合も自己相関波形が得られた。次に MgF_2 コート付きアルミニウム鏡とターゲットとしてアルゴンを用いて 7 次高調波のパルス幅を測定した。(図 5.18) この場合は最も短いパルス幅が得られるような条件ではしなく、9 次高調波の自己相関波形が最も狭くなるような条件のまま測定したものである。

次にターゲットをヘリウムとして MgF_2 コート付きアルミニウム鏡を用いて 7 次高調波の 3 光子吸収で自己相関波形を測定した。

この場合は得られた自己相関波形を sech^2 でフィッティングしたあと 3 次の相関関数が

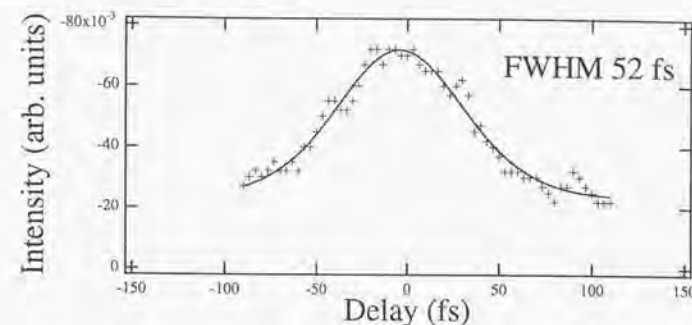


図 5.18: アルゴンを非線形媒質とした 7 次高調波の自己相関波形

ら 1.23 で割ることによりパルス幅が得られる (図 5.19)。図 5.19(a) が 7 次高調波の自己相関波形をそのまま測定したもので、アルゴンを非線形媒質として用いた自己相関波形 (図 5.18) とほぼ同じパルス幅が得られている。また、ピークと裾との強度の比が大きくなっていることが分かる。これは 3 光子吸収のためである。図 5.19(b) は 2 mm 厚の MgF_2 透過後の自己相関波形である。7 次高調波は MgF_2 の基板を透過でき、このとき 7 次高調波のスペクトル幅を 2 nm と仮定すると群遅延により 1 mm 当たり数 100 fs パルス幅が伸びることになる (Appendix B 参照)。ただしここで用いているセルマイヤー方程式は真空紫外では通用しない。それは真空紫外域での屈折率を考慮せずに求めた式だからである。実験では 2 mm の基板を透過した後の 7 次高調波のパルス幅を測定するとイオンの信号は極わずかとなってしまったが自己相関は測定できパルス幅は 78 fs となった。確かに計算とはかなり離れたパルス幅がもともとの 1.5 倍となった。これは 7 次高調波の群遅延を測定していることになる。また、 MgF_2 の基板を挿入しても自己相関波形が計れたことはこの測定に基本波であるチタンサファイアレーザーが影響していない証拠にもなる。何故なら基本波は群遅延により 7 次高調波とパルスが ~ 2 ps 時間的に離れているため、遅延ゼロのイオン信号に基本波は効いてこないからである。

9 次高調波のパルス幅を様々なパラメーターを変えて測定した。まずは高調波の発生機構でパルス幅が決まると考えられるためチタンサファイアレーザーの強度依存を測定した。レーザーのエネルギーを変えるよりも高調波が発生するガスチューブの位置を光軸方向に変えてパルス幅を測定する方が他の条件を保ったまま測定しやすいことから、ガスチュー

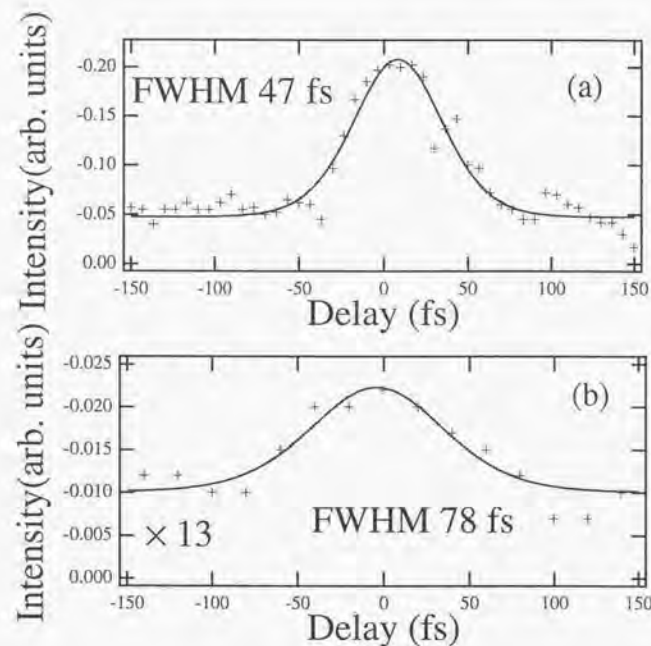


図 5.19: (a): 3 次相関による 7 次高調波の自己相関波形 (b): MgF_2 2mm 透過後の 7 次高調波の自己相関波形

ブの位置に対する 9 次高調波のパルス幅を測定した。この実験配置図を図 5.20 に、測定結果を図 5.21 に示す。

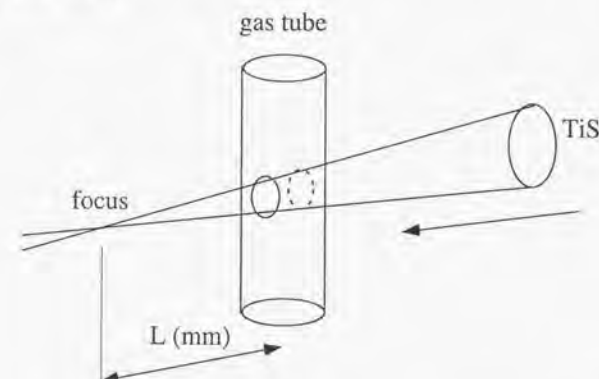


図 5.20: ガスチューブの位置に対する 9 次高調波のパルス幅配置図

レーザーの焦点から 0 mm, 5 mm の時には自己相関波形は得られなかった。これは焦点に近いときには二つのレーザーパルスがガスチューブ中で重なってしまい先のパルスがキセノンガスをイオン化してしまうためだと考えられる。ガスチューブの位置を遠ざけるほどパルス幅は短くなりこのときは 20 mm 離れたところで最短となった。25 mm 離すと高調波の強度が小さくなり自己相関を得ることが難しくなり同時にパルス幅も広がってしまった。この様に高次高調波のパルス幅はレーザーの集光強度に強く依存することが分かる。そして高調波のパルス幅を最短にするときにレーザーの集光強度は重要なパラメータとなり、弱めの集光強度で高調波を発生させたときにパルス幅が最小になることが分かる。高次高調波を発生させるガスの種類を変えて測定したが、クリプトン、アルゴンに変更してもパルス幅に顕著な変化は見られなかった。

5.3.4 考察

まずはこの測定の分解能について考察する。遅延の刻みによる分解能は ~ 3 fs である。また、二つの高調波パルスの集光は平行光を一つの球面鏡で行っているが、二つの独立なパルスの集光と考えるとある角度を持って焦点で交差することになる。この高調波の集

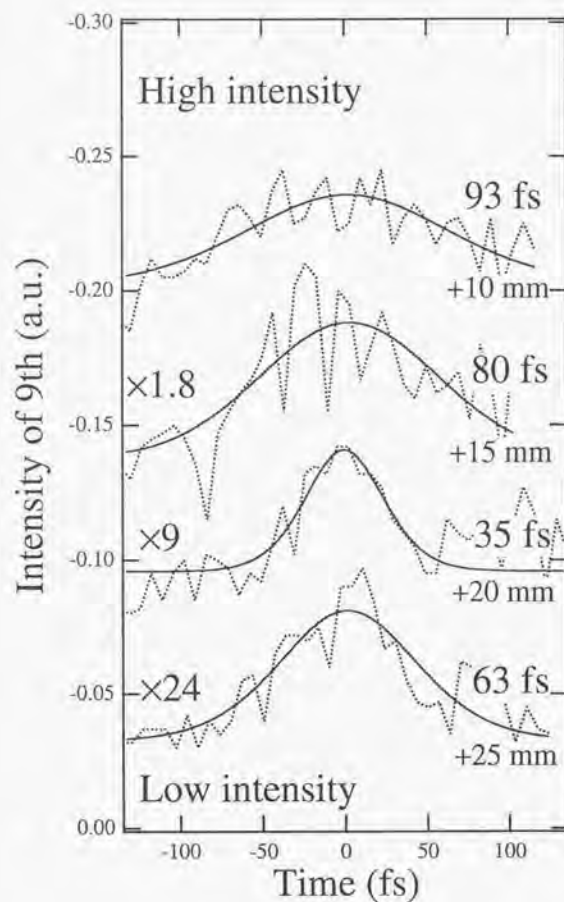


図 5.21: ガスチューブの位置に対する 9 次高調波のパルス幅

光の様子を図 5.22 上に示す。本実験の場合 8.5 deg の角度で交差し、焦点でのビーム径を $10\mu\text{m}$ とすると 3 fs の分解能となる。ただ、元々一つのビームを二つに分けて集光しているわけであるから完全に独立した二つのビームが交差しているのとは異なる (図 5.22 下)。この様に考えると集光による時間分解能は考えなくてよいこととなる。いずれにしても 3 fs 以下の分解能になるということになる。

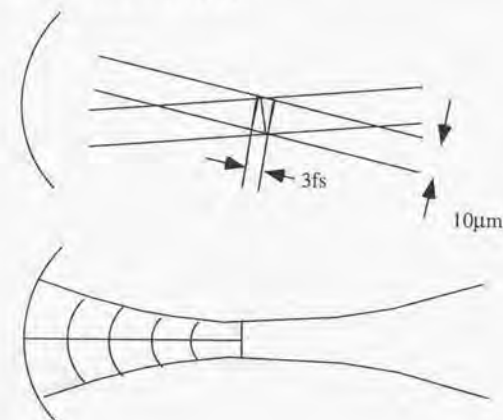


図 5.22: 高調波の集光による分解能

これらの測定限界から考えると今回測定された 27 fs は十分に高調波のパルス幅をあらわしていることになる。レーザーのパルス幅 34 fs に比べると 9 次高調波のパルス幅はわずかに 20 % しか短くない。摂動論を考え、レーザーパルスの時間波形をガウシアンとすると 9 次高調波のパルス幅は $34/\sqrt{9} \sim 11$ fs となるはずである。この予想よりも比較的長いパルス幅が得られた理由を考える。大きく分けると二つの理由が考えられる。第一には高調波が発生した後にパルス幅が伸びるということである。第二には高調波の発生する時点で長いパルスが発生している可能性である。まずは前者を考察する。高調波発生時に 1 Torr, 1 mm のキセノンガス中を、高調波の集光点で 1 Torr, 1 mm のヘリウムガス中を透過しているためにこのガスの分散により高調波のパルス幅がどう変化するかを求める。He ガスの分散は経験式で次のように与えられる [108]。

$$n^2 - 1 = 6.927 \times 10^{-5} \left(1 + \frac{2.24 \times 10^5}{\lambda^2} + \frac{5.94 \times 10^{10}}{\lambda^4} \right)$$

$$+ \frac{1.72 \times 10^{16}}{\lambda^6} + \dots) \quad (5.4)$$

この式が適用できる範囲はガスの電子準位と光が共鳴するところまでである。9次高調波の光子エネルギーは14 eVなので、ヘリウムの分散の式は問題なく適用でき、これより求めると9次高調波は1 as以下の群速度分散を受ける。これは全く問題にならない量である。キセノンについてはイオン化エネルギーを越えてしまうのでこの式そのものは適用できないが9次高調波は共鳴しないので屈折率はそれほど変わらないため先に求めたヘリウムの分散から考えるとパルス幅に対する影響はないと考えられる。よって、時間分解能も十分であるため、比較的長い高調波パルスが発生していることになる。

次に高調波発生メカニズムによるパルス幅の広がりについて考察する。高次高調波発生では発生効率と位相がレーザーの集光強度に依存する。また、高調波発生と同時に希ガスのイオン化が進行する。これらの要因により高調波のパルス幅が決定される。まずはLewensteinらの計算の手法を用いてレーザーの強度に対する9次高調波の強度と位相の計算結果を図5.23に示す[109] (Appendix C 参照)。

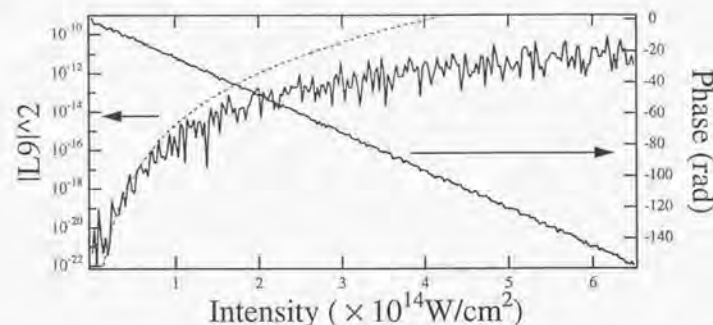


図 5.23: レーザーの集光強度に対する9次高調波の光量と位相の計算

左軸が9次高調波の光量を示す。集光強度の9乗に比例する場合の点線と比べ、計算(実線)では集光強度が増加すると高調波の発生は飽和することが分かる。これは実験的にもよく知られている[110]。また、位相も集光強度に依存していることが分かる[111][46][109]。本実験で27 fsが得られたときのピークの集光強度は $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ であり、このときには高調波の飽和も起こり、さらにキセノンのイオン化は $\sim 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ で起こるため、イオン化も起きてしまっている。レーザーの集光強度は集光の仕方による空間分

布を持ちさらにレーザーの時間波形による強度変化がある。従って異なる時刻や異なる場所からでてくる高調波の発生効率、イオンの割合、位相が異なり全体として高調波パルスの性質を決定する。まずは位相を考えずに飽和とイオンの効果を考える。集光強度の空間分布を考慮せずに光軸上からでてくる高次高調波の時間波形を計算した(図5.24)。レーザーのパルス幅を34 fs、ピーク強度を $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ として計算している。この計算ではベッセル関数の積分が入っているため非常に大きな振動が乗り、パルスの形に凹凸が乗ってしまうが、実際はこれをなめらかにしたものであると考えられる。

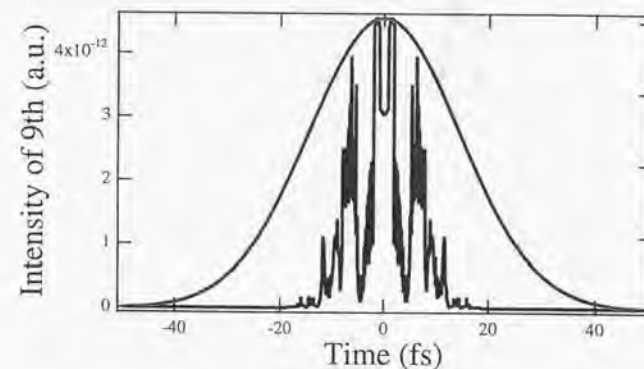


図 5.24: イオン化を無視した時の9次高調波のパルス波形

次にイオン化を考慮する。イオン化を起こすと高調波発生効率の下がる。高調波の光量はガス密度の2乗に比例するとして計算した。光軸のみ考えたときにある時刻でイオン化が起きそれ以降は高調波が発生しないので高次高調波の時間波形は極めて短いパルス幅(4~5 fs)を示す(図5.25)。ただし、計算では激しい振動が乗るため、全体をなめらかにしたものが高調波パルスを示す。

イオン化を考慮した時の9次高調波のパルス波形の位相を図5.26に示す。高調波はブルーシフトをしてさらにチャープが乗っていることが分かる。

これに集光強度の空間分布を考慮したもので集光強度を変化させたときの9次高調波のパルス波形の計算値を図5.27に示す。

空間分布を考慮すると光軸上では早い時刻で高調波が発生するが空間の端では遅い時刻で発生するため全体としてはパルス幅が広がることになる。このことから逆に光軸付近の

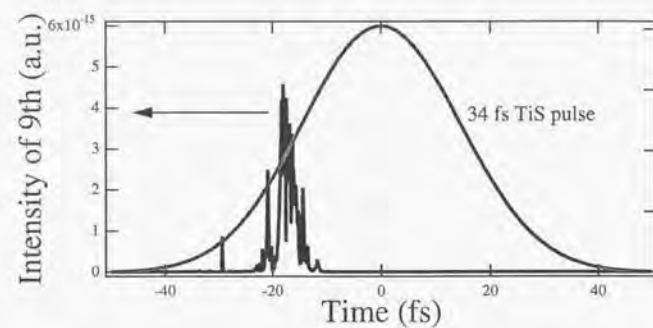


図 5.25: イオン化を考慮した時の9次高調波のパルス波形

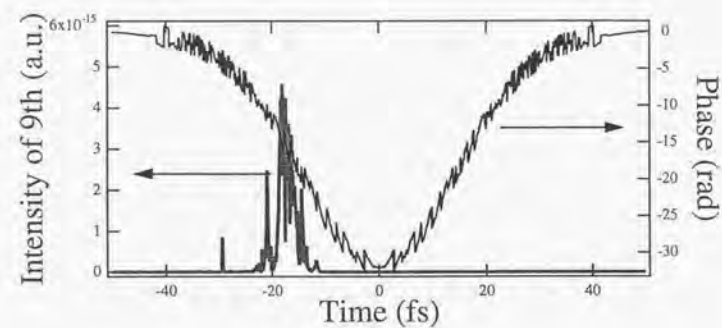


図 5.26: イオン化を考慮した時の9次高調波のパルス波形に対する位相

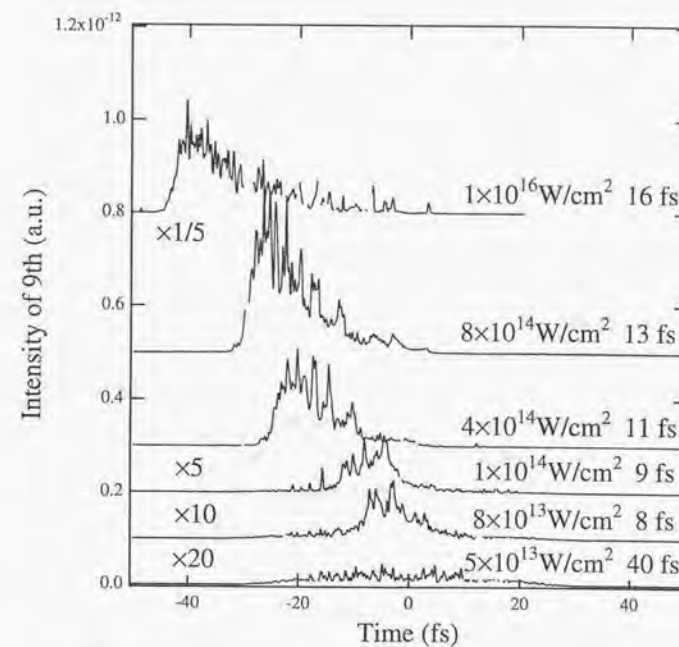


図 5.27: 空間を考慮した時の9次高調波波形の集光強度依存

みの高調波は非常に短いパルスとなることが分かる。発生した高調波の一部分のみのパルス幅を測定することにより、より超短パルスを発生させることができるであろう。集光強度を変えると高次高調波のパルス幅も変化している様子が分かる。あまり強度が強いと光軸上では早い時刻で高調波が発生し、空間の端では時刻ゼロまで発生し続けるため幅の広いパルスとなっている。強度が弱くなると時刻ゼロ付近でしか光軸上でも端でも高調波が発生しないためパルス幅は短くなる。さらに強度が弱くなると今度は全体からだらだらと高調波が発生するためパルス幅は長くなっている。この的確な説明はつかないが恐らくこの強度でもまだ高調波の飽和が起きているためであろう。この計算結果はパルス幅の値までは一致しないが傾向は実験結果(図5.21)と非常によくあっている。実験とパルス幅が一致しない理由の一つとして、高調波発生に用いているキセノンガスの密度が高すぎ、光量がガス圧の2乗に比例していないことが挙げられる。この計算からより短い高調波パルスを得るためにはレーザーパルスのピークでぎりぎり高調波が発生するような集光強度を選び、さらに発生した高調波の光軸付近のみ選ぶことをすればよいことが分かる。さらにアト秒領域の光パルスを発生させるための方法もこの計算より示唆される。光軸付近のみを考えると高調波の位相が計算により決定するため、高調波が発生した後にどのように位相補償をすればよいかが分かる。また、高調波が発生した時点でフーリエ限界パルスとなるようにレーザーパルスの位相を調節しておく方法も考えられる。これは技術的に簡単のためにアト秒パルス発生の手続きになる可能性が大きい。その方法を示す。

チタンサファイアレーザーのパルスを

$$E_F = e^{-\alpha t^2} e^{i\omega_F t} e^{i\phi_F(t)} \quad (5.5)$$

とする。ここではレーザーシステムのコンプレッサーで与える位相項 $e^{i\phi_F(t)}$ を加えてある。9次高調波は

$$E_F^9 = e^{-9\alpha t^2} e^{i9\omega_F t} e^{i9\phi_F(t)} \quad (5.6)$$

となる。このほかに9次高調波が発生する際に強度の時間変化により $e^{i\phi(t)}$ が加かると9次高調波は

$$\begin{aligned} E_F^9 &= e^{-9\alpha t^2} e^{i9\omega_F t} e^{i9\phi_F(t)} e^{i\phi(t)} \\ &= e^{-9\alpha t^2} e^{i(9\omega_F t + 9\phi_F(t) + \phi(t))} \end{aligned} \quad (5.7)$$

となる。9次高調波がフーリエ限界パルスとなるためには

$$\begin{aligned} 9\phi_F(t) + \phi(t) &= 0 \\ \phi_F(t) &= -\frac{\phi(t)}{9} \end{aligned} \quad (5.8)$$

となればよく、 $\phi(t)$ は図5.26の様に計算でもとまるのでこれに応じた $\phi_F(t)$ を予めレーザーパルスに与えておけばよい。レーザーの集光強度が $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ のときの $\phi_F(t)$ を図5.28に示す。

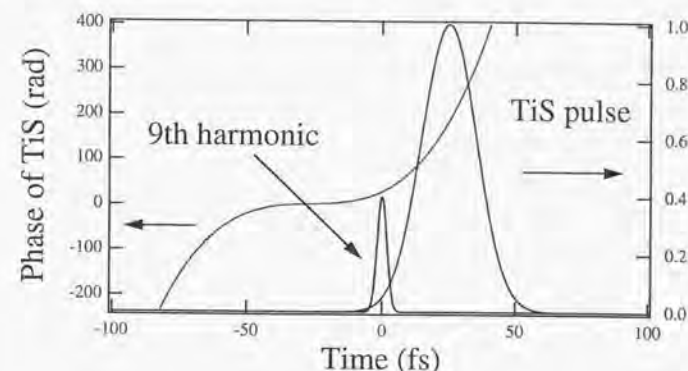


図 5.28: 9次高調波の位相補償

集光強度の空間分布によって高調波が受ける位相のシフトは異なるためこの方法では高調波の光軸付近のみが位相補償され超短パルスとなる。高調波の位相補償のためにレーザーパルスに予め与える、時刻に対する位相変化は非常に大きな値となっているが位相変調を与えるのは高調波が発生する時刻のみでよい。

5.4 結論

9次高次高調波の集光強度を $\sim 100 \text{ GW/cm}^2$ まで高めることができ、これにより希ガスの2光子吸収を観測する手段を用いて極端紫外領域での非線形現象を観測することができた。生成されたイオンの個数が自己相関波形を取るのに十分であったことと極端紫外領域での自己相関法の手続の工夫により極端紫外領域での自己相関法によるパルス幅測定に成功した。チタンサファイアレーザーの9次高調波(波長89 nm)のパルス幅で27 fsを得た。これは極端紫外領域、さらには真空紫外領域での最短パルス幅となっている。高次高調波のパルス波形の計算を空間を考慮して行い、アト秒パルスを得るための知見を得た。

第6章 結論

6.1 高次高調波の観測

高次高調波を観測するための極端紫外、軟X線領域の明るい分光器を設計、作成した。トロイダルミラーと平面回折格子との組み合わせを用い、点光源を点に結像する方式を取り、分解能は $\sim 1\text{\AA}$ であった。スペクトログラフとモノクロメーターの両方で使える方式にしてそれぞれで高次高調波を測定した。モノクロメーターとして用いたときにチタンサファイアレーザー（波長745 nm）の89次、波長にして8.4 nmまで観測した。

非常に強い集光強度で高次高調波発生を行うことにより高調波のスペクトルをブルーシフトさせることによりスペクトルを広げ、波長20 nm \sim 40 nmの範囲で擬白色光を得ることができた[113]。このフェムト秒擬白色光は超高時間分解軟X線分光の強力な光源となると考えられる。

6.2 交差相関法による9次高調波のパルス幅測定

チタンサファイアレーザー（波長795 nm）の9次高調波（波長88 nm）のパルス幅を交差相関法により測定した。レーザーのパルス幅が300 fsのとき9次高調波のパルス幅は260 fsであった。測定の原理としては高強度チタンサファイアレーザーによりクリプトン中性原子の状態をスイッチして高調波のクリプトンに対する透過率を変化させるという方法を用いた。これはフェムト秒の高次高調波のパルス幅を初めて測定したことになる[114]。

6.3 自己相関法による9次高調波のパルス幅測定

高次高調波のパルス幅の測定手段として自己相関法を確立した。自己相関法を極端紫外領域で行うためにまず、チタンサファイアレーザー（波長800 nm）の9次高調波（波長89 nm）による非線形光学効果を希ガスの2光子吸収によるイオン化を用いて測定した。この2光子イオン化を用いて二つの高調波パルスの遅延をつけ自己相関波形を得た。レー

ザーのパルス幅が 34 fs のとき 9 次高調波のパルス幅は 27 fs となった。これは自己相関法で初めての極端紫外領域のパルス幅測定であり、極端紫外での最短パルスとなっている [115]。また、高次高調波のパルス幅の計算を空間を考慮して行い、アト秒パルスを得るための知見を得た。序論で示した最短パルスの歴史の図に高次高調波のパルス幅測定の進歩を加えた図 6.1 を示す。本研究により高調波のパルス幅が飛躍的に進歩したことが分かる。

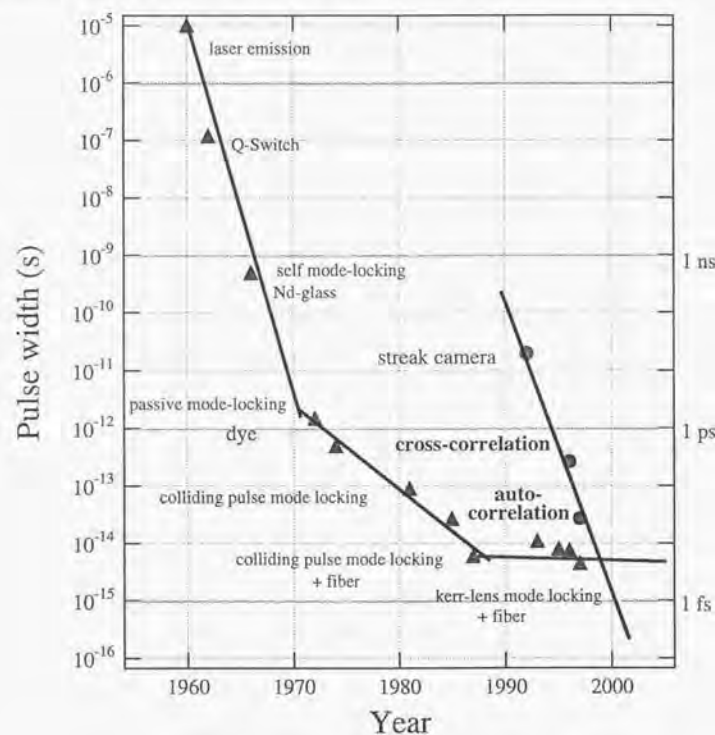


図 6.1: パルス幅の歴史における本研究による高次高調波のパルス幅

6.4 極端紫外、軟 X 線光源としての高次高調波の性質

本研究により高次高調波のパルス幅が確定した。これにより光源としての高次高調波の性質をまとめることができるようになった。

まず本研究により得られた高次高調波の性質をまとめる。

- 波長 レーザーの波長から軟 X 線 (8 nm) まで (連続光も可能)
- パルスエネルギー > nJ (9 次高調波で 50 nJ)
- パルス幅 < レーザーのパルス幅 (レーザーが 34 fs のとき 9 次で 27 fs)
- 集光強度 9 次高調波で ~ 100 GW/cm²

ここでは軌道放射光、軟 X 線レーザー、ヘリウムランプと高次高調波との比較を行う。それぞれの分野で用いている光の強度を表す方法が異なっているため適当な単位の換算を行う必要がある。高繰り返しレーザーの分野では平均出力 [W] やピーク強度 [W] を用いることが多い。シングルショットの軟 X 線レーザーではパルス当たりのエネルギーとパルス幅を示すことが多い。軌道放射光の分野では

- $[Flux] = [photons / (sec \cdot mrad(horizontal) \cdot 0.1 \% b.w. \cdot mA)]$
- $[Brightness] = [photons / (sec \cdot mrad^2 \cdot 0.1 \% b.w. \cdot mA)]$
- $[Brilliance] = [photons / (sec \cdot mrad^2 \cdot mm^2 \cdot 0.1 \% b.w. \cdot mA)]$

という単位を用いる。例えば [Flux] とは電流 1 mA 当たり、波長の 0.1 % のスペクトル幅当たり、水平方向の広がり角 1 mrad 当たり、1 秒当たりの光子数を表す。この様にそれぞれの分野で異なる単位を使うためここでは 3 種類の単位で比較をすることにする。Brilliance はそれぞれの装置の電流値を考慮したもの $[photons / (sec \cdot mrad^2 \cdot mm^2 \cdot 0.1 \% b.w.)]$ 、パルス当たりの光子数 $[photons / pulse \cdot 2 \% b.w.]$ 、ピーク強度 $[photons / sec \cdot pulse \cdot 2 \% b.w.]$ を使う。まずは 9 次高調波をそれぞれの単位に換算する。

$$\begin{aligned}
 50[nJ/pulse] &= 2.2 \times 10^{10} [photons/pulse] \\
 &= 2.2 \times 10^{11} [photons/sec] \\
 &= 1.3 \times 10^{10} [photons/sec \cdot 0.1 \% b.w.] \\
 &= 7 \times 10^{12} [photons/sec \cdot mm^2 \cdot mrad^2 \cdot 0.1 \% b.w.]
 \end{aligned}$$

となる。ここでエミッタンス保存則（輝度保存則）より $\sigma x \cdot \sigma \theta [\text{m} \cdot \text{rad}] = \text{const.}$ を用いた。これが集光能力を決める。レーザーの場合

$$\sigma x \cdot \sigma \theta [\text{m} \cdot \text{rad}] = f \lambda / d \cdot d / 2f = \lambda / 2$$

9th の場合 $\sigma x \cdot \sigma \theta [\text{m} \cdot \text{rad}] = 4.4 \times 10^{-8} [\text{m} \cdot \text{rad}] = 4.4 \times 10^{-2} [\text{mm} \cdot \text{mrad}]$

である。

パルス当たりの光子数は波長の2%のスペクトル幅当たりの光子数に換算した。これは高次高調波のスペクトルが広いためである。軟X線レーザーについてはスペクトル幅が狭いので0.01%のスペクトル幅当たりとなっている。ピーク強度はパルス当たりの光子数をパルス幅で割ったものである。

比較に使った軌道放射光は高エネルギー研究所のフォトンファクトリー (PF) の改良前のデータと分子科学研究所の UVSOR、理研と原研の Spring8 であり、パルス当たりの光子数とピーク強度は Bending magnet より放射される光の値を用いている。軌道放射光では挿入光源としてウィグラーとアンジュレーターとがあり、これらを用いるとより高輝度の放射光ができる。軟X線レーザーの値としては Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) のガラスレーザーを用いた Se ターゲットの軟X線レーザーである。これは巨大ガラスレーザーを用いた世界トップレベルの軟X線レーザーでありシングルショットのレーザーで繰り返しができないため平均強度である Brilliance では比較ができない。元になっている値は

9 次高調波	$2.2 \times 10^{10} [\text{Photon/pulse}]$
UVSOR	$10^{10} [\text{photon/s mrad mA } 0.1 \% \text{ b.w.}]$
PF	$10^{10} [\text{photon/s mm}^2 \text{ mrad}^2 \text{ mA } 0.1 \% \text{ b.w.}]$
LLNL	$10^{23} [\text{photon/s mm}^2 \text{ mrad}^2 0.01 \% \text{ b.w.}]$
Spring8	$3 \times 10^{15} [\text{photon/s mm}^2 \text{ mrad}^2 0.1 \% \text{ b.w.}]$

である [116] [117] [118] [119] [120]。これらの値を基準にして表 6.1 の値を用いてそれぞれの単位に変換した。

軟X線源として用いられる放電ガストラップについては輝度の比較はできていないが、レーザー励起の HeII の発光強度は測定した (図 3.3)。ここから輝度を算出すると高調波と同程度と見積もられた。スペクトル幅は $\sim 0.1 \text{ \AA}$ と非常に狭く、光電子分光のエネルギー同定に活躍するが、実際のエネルギー分解能は電子分光器で制限されている。パルス幅は長いパルス当たりの光子数やピーク強度の比較はできない。

他光源との比較を図 6.2 に示す。軌道放射光の PF はフォトンファクトリー、SP8 はスプリング 8 であり、偏向磁石からの放射光は (B)、ウィグラーからの放射光は (W)、アンジュレーターからの放射光は (U) で示してある。現在のところ平均出力は軌道放射光、

	9th	UVSOR	PF	X-ray laser	Spring8
Energy		750MeV	2.5GeV		8GeV
Critical wavelength	889Å	29.2Å	3.1Å	206Å	0.44Å
current		150mA	350mA		100mA
Radio frequency		90MHz	500MHz		509MHz
Emittance (H) [m rad]	4.4×10^{-8}	3.6×10^{-7}	130×10^{-9}		6.85×10^{-9}
Emittance (V) [m rad]	4.4×10^{-8}	3.6×10^{-8}	2×10^{-9}		1.37×10^{-10}
Beam size (H) [mm]		0.89	0.34	0.3	0.15
Beam size (V) [mm]		0.64	0.16	0.3	0.051
発散角 (H) [mrad]		0.41	0.41	5	0.065
発散角 (V) [mrad]		0.056	0.033	5	0.003
Bunch length	30 fs	0.4 ns	50 ps	300 ps	80 ps
Brilliance ^a	7×10^{12}	4.7×10^{13}	3.5×10^{14}		3×10^{15}
パルス当たり ^b	2.2×10^{10}	1.4×10^5	1×10^4	7×10^{15}	1.2×10^2
尖頭値 ^c	1×10^{24}	3.5×10^{14}	2×10^{14}	2.3×10^{23}	1.5×10^{12}

^a [Photons/(sec mrad² mm² 0.1 % b.w.)]

^b [Photons/(pulse 2 % b.w.)]

^c [Photons/(pulse sec 2 % b.w.)]

表 6.1: 他光源との比較

パルス当たりの光子数は軟X線レーザー、ピーク強度は高次高調波というすみわけになっていることが分かる。しかしこの比較に用いた高次高調波は 10 Hz のものであり現在当研究室でたち上げている kHz チタンサファイアレーザーシステムを用いると平均出力ですら軌道放射光に匹敵するであろう。また、高次高調波は現在光子エネルギーにして 0.5 KeV まで出ている。さらに高次高調波は軌道放射光では得られない超短パルスという性質を有する。これにより極端紫外や軟X線領域での光源としての高次高調波は多大な可能性を秘めていることが分かる。

6.5 今後の展望

今後の展望としては大きく二つの展開が考えられる。アト秒パルス発生とフェムト秒軟X線分光である。

高次高調波でアト秒パルス発生を実現するためにはいくつかの段階、方法が考えられる。まずは最も大切なことはレーザーパルスの超短パルス化である。今回は 34 fs パルスを用いたが、現在は再生増幅器後に 5 fs パルスを発生させているグループがある。5 fs パルスの高次高調波を測定するとそのまま最短パルスとなるであろう。しかしレーザーシステムでここまでの超短パルス化を計るとパルスエネルギーが制限されるため高調波のパルス幅測定が可能なほどの光量は得られにくい。20 fs を切るくらいのレーザーで mJ 以上のパルスを使うことが現実的であると考えられる。レーザーのパルス幅を短くした上でなにをすればアト秒が得られるのかを次に述べる。

一つには第3章で行った様に自己位相変調を用いて高調波のスペクトルを広げる方法が考えられる。例えば 25 fs チタンサファイアレーザーの 25 次高調波のスペクトルをフーリエ変換して得られる時間波形は 1.6 fs パルスを示す。

また、複数の次数を用いることによりスペクトル的には自己位相変調で広げるまでもなく簡単にアト秒パルス発生が予測できる。図 6.3 はアルゴンガスからの高次高調波スペクトル（上）と、21 次高調波スペクトルのフーリエ変換波形（中）、19 次から 23 次までをまとめたスペクトルのフーリエ変換波形（下）である。21 次のみでも 2 fs、3 つの次数をまとめると 500 as パルスが予想される。

スペクトルをフーリエ変換してアト秒パルスを予測することは比較的行えるが問題は位相補償にあると思われる。高次高調波発生計算を行うとレーザーの集光強度が上がるが高調波の位相はブルーシフトする事が分かる。つまり高調波が発生するだけでこれは既にフーリエ限界パルスではなくチャープしてしまっているのである。高次高調波の位

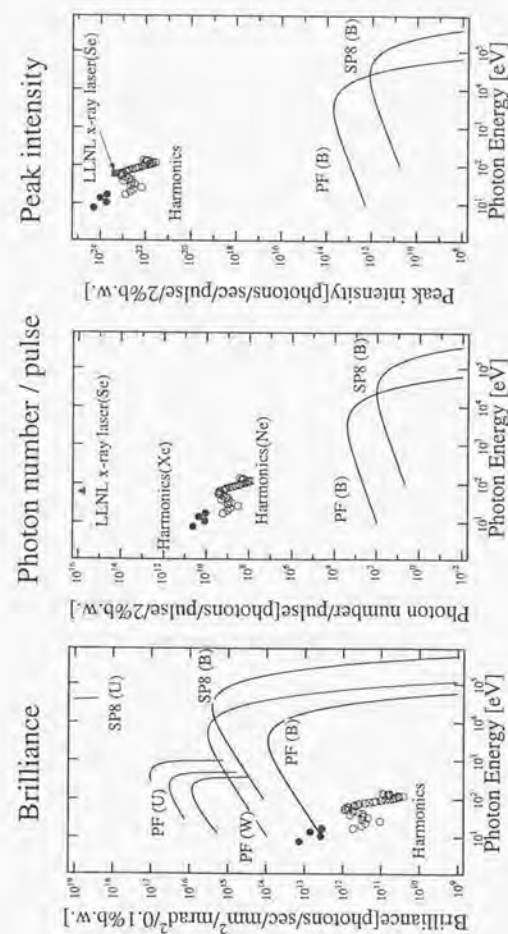


図 6.2: 高次高調波と他光源との比較

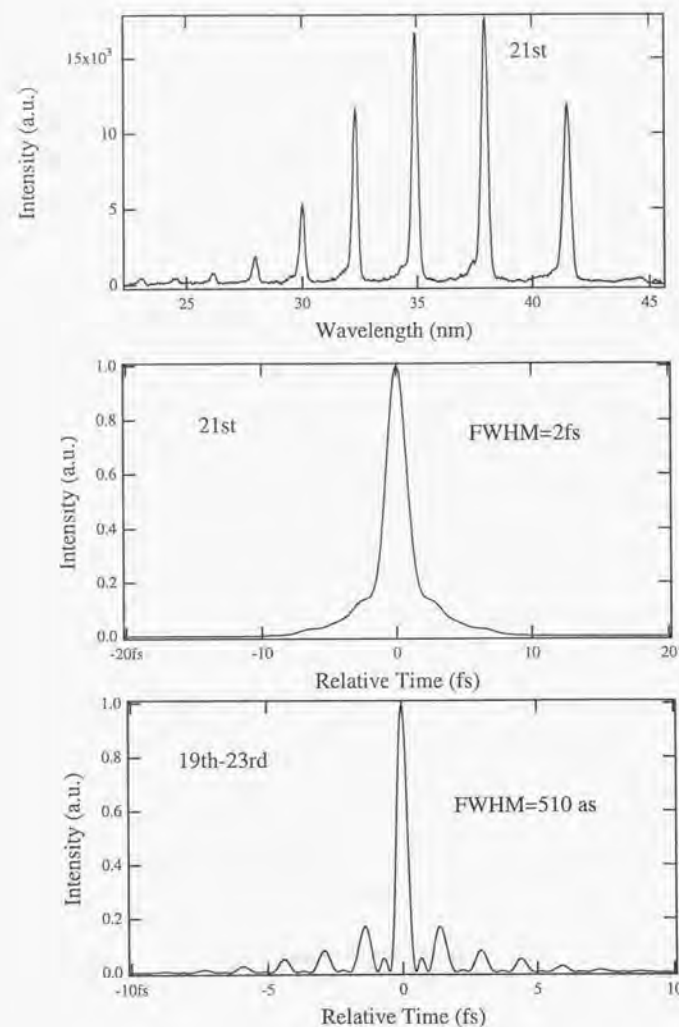


図 6.3: 高調波のスペクトルとそのフーリエ変換波形

相補償には発生してから補償する方法と発生する前に補償する方法とが考えられる。発生してから補償する方法としては金属の直入射の反射率がある低次の高調波については通常のパルス圧縮と同様に行えばよく、反射率の無いような高次の高調波については透過型回折格子を用いたパルス圧縮をすることになる。高調波発生後に位相補償すると特定の次数を空間的に選べるという利点があり基本波も空間的に完全に排除することができる。ただし真空中に組むことと高調波は見えないためにアライメントが難しいという欠点を持つ。発生前に補償する方法としては高調波発生によるチャープ量をあらかじめ見積もりレーザーパルスをアップチャープさせておくという方法が考えられる(第5.3.4節参照)。これはレーザーのパルス圧縮の回折格子を調節すればよく簡単に行える方法である。いずれの方法も位相のシフト量はレーザーの集光強度によるために光軸付近と光軸から離れた場所では異なるため集光強度の空間分布全体について補償することはできない。従って発生した高調波のうち光軸付近だけを位相補償することになるであろう。いずれにしてもアト秒パルス発生は十分到達可能であり、更なる時間分解分光が発展することと思われる。

次に高次高調波を用いた超高時間分解分光であるが、今までは軌道放射光のパルス幅(> ps)であった軟X線パルスが高次高調波を用いると30 fsまで短くなり、ピーク強度も非線形効果を起こすほど高い。分光を行う上で重要な輝度も軌道放射光に肉薄してきている。従って今後高次高調波を用いた軟X線分光は研究領域として非常に面白い。極端紫外や軟X線領域は内殻電子を直接励起できるため、内殻遷移の寿命や内殻励起子の寿命測定等が可能である。さらにはアト秒領域のパルスができると今まで瞬間と扱われてきたものの時間応答が測定できるようになる。例えば早い電子の動きが分かるようになるであろう。ピーク強度もあるためレーザー電場により変位した電子の緩和、非線形分極の緩和時間が計れるかもしれない。

このようにまだまだ分かっていない時間応答を探る上で高次高調波はこれからの重要な光源となるに違いない。

Appendix A 自己相関関数

パルスの外形を $I(t)$ と書くと、自己相関で得られる遅延時間 τ に対する 2 次の相関信号 $I(\tau)$ は、

$$I(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t-\tau)dt \quad (\text{A.1})$$

となる。パルス波形をガウシアン $I(t) = e^{-(t/T)^2}$ とした場合

$$\begin{aligned} I(\tau) &= e^{-\frac{\tau^2}{2T^2}} T \sqrt{\frac{\pi}{2}} \\ &\propto e^{-(\frac{\tau}{\sqrt{2}T})^2} \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

となるため、得られる自己相関波形の半値幅を $\sqrt{2} \approx 1.414$ で割ることにより元のパルス幅が得られる。

パルス波形を $I(t) = \text{sech}^2(t/T)$ とした場合は

$$I(\tau) = \frac{3}{\sinh^2(\tau/T)} \left[\frac{\tau}{T} \coth\left(\frac{\tau}{T}\right) - 1 \right] \quad (\text{A.3})$$

となり、得られる自己相関波形の半値幅を 1.55 で割ることにより元のパルス幅が得られる。

3 次の自己相関関数は

$$I(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)^2 I(t-\tau)dt \quad (\text{A.4})$$

で与えられ、ガウシアンの場合は $\sqrt{3/2} \approx 1.22$ 、 sech^2 パルスでは 1.23[83] で相関波形の半値幅を割ることにより元のパルス幅が得られる。

AppendixB 物質の透過によるパルス の変化

レーザー電場を

$$E = A(t)e^{i(\omega t - kx)} \quad (\text{B.1})$$

と書くことにする。また、

$$\begin{aligned} k &= \frac{n\omega}{c} \\ \phi &= kx \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

と ϕ を定義すると、群遅延は $\frac{d\phi}{d\omega}$ 、2 次の分散は $\frac{d^2\phi}{d\omega^2}$ 、3 次の分散は $\frac{d^3\phi}{d\omega^3}$ で与えられる。それぞれに $\phi = \frac{n\omega}{c}x$ を代入すると、

$$\frac{d\phi}{d\omega} = \frac{1}{c} \left(n - \lambda \frac{dn}{d\lambda} \right) x [\text{s}] \quad (\text{B.3})$$

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \frac{d^2n}{d\lambda^2} x [\text{s}^2] \quad (\text{B.4})$$

$$\frac{d^3\phi}{d\omega^3} = -\frac{\lambda^4}{4\pi^2 c^3} \left(\frac{d^2n}{d\lambda^2} x + \lambda \frac{d^3n}{d\lambda^3} x \right) [\text{s}^3] \quad (\text{B.5})$$

これらを求める際に $\frac{dn}{d\lambda}, \frac{d^2n}{d\lambda^2}, \frac{d^3n}{d\lambda^3}$ はセルマイヤー方程式から求めることができる。例えば MgF_2 のセルマイヤー方程式は、 λ を μm 単位で書くと、

$$n_e^2 = 1 + \frac{4.134\lambda^2}{\lambda^2 - 1.357 \times 10^{-3}} + \frac{5.049\lambda^2}{\lambda^2 - 8.237 \times 10^{-3}} + \frac{2.490\lambda^2}{\lambda^2 - 5.651 \times 10^2} \quad (\text{B.6})$$

となる。ただし、セルマイヤー方程式は経験式であり短波長では正しくない。本実験の場合波長 116 nm で MgF_2 を 2 mm 通過させているが、B.3 式を用いると 1mm 当たり 760 fs の群遅延があることになる。

AppendixC 高調波の位相の求め方

高調波の電場を $e^{i(\omega t - \phi)}$ と定義して [78] 位相項 ϕ を展開すると

$$\begin{aligned} e^{i(\omega t - \phi)} &= e^{i[\omega t - (\phi_0 + \dot{\phi}t + \ddot{\phi}t^2 + \dots)]} \\ &= e^{-i\phi_0} e^{i(\omega - \dot{\phi})t} e^{-i\ddot{\phi}t^2} \times \dots \end{aligned} \quad (\text{C.1})$$

となる。

$e^{i(\omega - \dot{\phi})t}$ の項を見ると中心周波数 ω が $-\dot{\phi}$ だけずれている。この項が高調波のレーザーに対する中心周波数のずれを表す。

$e^{-i\ddot{\phi}t^2}$ の項は時間とともに周波数がずれていくことを表しているのこれはチャープを示すことになる。

それでは高調波の位相をどのように求めるかを述べる。第 2.4.4 節の計算で高調波の双極子モーメントを求めているが (2.28 式) これは複素数であり位相因子 S も含む。従って $\arg(x(t))$ を求めることにより位相が決定する。また、 S を直接もとめてもよい。本論文では 2.31 式を用いて位相を計算した。レーザーの集光強度を変えながらこの様に位相を求めた結果が図 5.23 や図 5.26 である。図 5.26 をみると、レーザーパルスの時間波形に応じて位相が変化している。この変化のうち時間に比例する成分は上で述べたように高調波の中心周波数シフトを表し、高調波が発生している時刻では傾きが負なのでブルーシフトを表す。時間の 2 乗に比例する成分はリニアチャープを表す。この図ではパルスの立ち上がりでイオン化が進行してしまいパルスの後半では高調波が発生していないが、イオン化が起きないような集光強度で高調波を発生させると立ち上がりでブルーシフト、たち下がりでレッドシフトを起こす。さらにパルスの先端付近では時刻に対する位相の変化が放物線に近いのでチャープの性質もよく、パルス圧縮が行えてアト秒パルス発生に都合が良くなる。

謝辞

本論文は東京大学物性研究所先端分光研究部門渡部研究室で行われた研究をまとめたものです。東京大学物性研究所先端分光研究部門という、レーザーに関する4つの研究室が集まり様々な研究がなされている環境は自分の研究を多方面でとらえることができ有意義な5年間を送らせていただきました。

本論文を審査して下さい、内容について貴重な御示唆を下された渡部俊太郎先生、清水富士夫先生、黒田和男先生、五神真先生、志村努先生に深く感謝いたします。

非常にやりがいがある壮大な研究テーマを与えてくださった渡部俊太郎教授には、研究のあり方、研究者としての心構え、考え方から始まり実験は勿論のこと論文の書き方、就職や日常生活に至るまで常に熱心に御指導いただきました。感謝の念に耐えません。渡部研究室は常に最先端レーザーシステムが稼働して、世の中には無いような超高強度電場を使った新しいことを考える楽しさも与えて下さいました。先生のおかげで5年間が厳しく楽しい充実したものとなりました。本当に有り難うございました。

関川太郎助手には実験、解析の全般にわたりいつも親身な御指導いただきました。関川さんには高強度物理以外の分野についてもいろいろと教えていただきました。また、夕食の時間等に会話を通じて有意義な時間をいただきました。深く感謝します。

鍋川康夫技官には最先端レーザーについて実に様々なことを教えていただきました。鍋川さんが常に最先端レーザーシステムを構築、運転してくれるおかげで思いきり応用実験をすることができました。工作、回路設計、計算も教えていただきました。深く感謝します。

前渡部研究室助手の筑波大学近藤公伯講師には私がレーザーや高強度物理を何も知らなかった頃からなめらかな関西弁で初めから全て教えていただきました。深く感謝いたします。

渡部研究室OBで原子力研究所の匂坂明人さんには様々なアドバイスをいただきました。真空装置やレーザーの扱い方から実験のやり方等を教えていただきました。有り難うございました。

坂谷治郎さんにはアメリカでお世話になりましたし、幅広い知識を惜しみなく教えていただきました。有り難うございました。

蔵本福之君は幅広い知識と経験と根性があり、レーザーについて教えてくれた他にも日常会話を通じて研究生生活を楽しいものとしていただきました。富樫格君にはコンピュータやソフトの知識をいろいろと教えていただきました。大野智輝君には一番身近な協力者として設計や実験、解析でお世話になり、またアイデアが豊富で会話から実験の工夫等が生まれました。夕食後に遊んでくれる数少ない人材でした。有り難うございました。

1994年8月から4ヶ月ほど当研究室にいらしたミシガン大学のG. A. Mourou先生には自らのアライメントで渡部研のレーザーを刷新していただきました。また高調波に関するアイデアを教えてくださいました。フランス訛りの英語で1日に3回も4回も“Hello, how are you?”と聞かれて2回目以降になんと答えるか閉口したことを思い出します。アメリカに行ったときにもお世話になり有り難うございました。

当研究室OBの吉原修君、熊崎貴仁君には実験を手伝っていただき、柴村大さん、細井文樹君、吉富大君、井上武君、塩崎雄治君には研究室を明るくするものとしていただきました。草野修二君には軌道放射光の分野についていろいろ教えてくださいました。G. A. Mourou先生の息子のVincent Mourou君には英会話を教わり、日常生活を通じて楽しいひとときをいただきました。有り難うございました。

元秘書の富田愛子さん、現秘書の岡本綾子さんには日常のお世話になり又、研究室をなごやかなものとしていただきました。

数値計算を行うに当たり、イオン化の計算はOBの民田太郎さん、匂坂明人さん、吉原修君の作ったプログラムを改良させていただきました。また、高次高調波の計算では近藤公伯さんの作ったプログラムを改良させていただきました。この場を借りてお礼申し上げます。

また、物性研究所の他の研究室の方々にもお世話になりました。深く感謝いたします。

参考文献

- [1] T. H. Maiman *Nature* Vol. 187, 494 (1960)
- [2] R. J. Collins, D. F. Nelson, A. L. Schawlow, W. Bond, C. G. B. Garrett, and W. Kaiser *Phys. Rev. Lett.* Vol. 5, 303 (1960)
- [3] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich *Phys. Rev. Lett.* Vol. 7, 118 (1961)
- [4] F. J. McClung and R. W. Hellwarth *J. Appl. Phys.* Vol. 33, 828 (1962)
- [5] A. J. DeMaria, D. A. Stetser, and H. Heynau *Appl. Phys. Lett.* Vol. 8, 174 (1966)
- [6] E. P. Ippen, C. V. Shank, and A. Dienes *Appl. Phys. Lett.* Vol. 21, 348 (1972)
- [7] C. V. Shank, and E. P. Ippen *Appl. Phys. Lett.* Vol. 24, 373 (1974)
- [8] R. L. Fork, B. I. Greene, and C. V. Shank *Appl. Phys. Lett.* Vol. 38, 671 (1981)
- [9] J. A. Valdmanis, R. L. Fork, and J. P. Gordon *Opt. Lett.* Vol. 10, 131 (1985)
- [10] R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker, and C. V. Shank *Opt. Lett.* Vol. 12, 483 (1987)
- [11] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett *Opt. Lett.* Vol. 16, 42 (1991)
- [12] N. Sarukura, Y. Ishida, and H. Nakano *Opt. Lett.* Vol. 16, 153 (1991)
- [13] C. Huang, M. T. Asaki, S. Backus, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn *Opt. Lett.* Vol. 17, 1289 (1992)
- [14] M. T. Asaki, C. Huang, D. Garvey, J. Zhou, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane *Opt. Lett.* Vol. 18, 977 (1993)

- [15] R. Szipocs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, and F. Krausz *Opt. Lett.* Vol. 19, 201 (1994)
- [16] A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann, F. Krausz, and R. Szipocs *Opt. Lett.* Vol. 20, 602 (1995)
- [17] L. Xu, Ch. Spielmann, F. Krausz, and R. Szipocs *Opt. Lett.* Vol. 21, 1259 (1996)
- [18] I. D. Jung, F. X. Kartner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tschudi *Opt. Lett.* Vol. 22, 1009 (1997)
- [19] A. Baltuska, Z. Wei, M. S. Pshenichnikov, and D. A. Wiersma *Opt. Lett.* Vol. 22, 102 (1997)
- [20] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipocs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz *Opt. Lett.* Vol. 22, 522 (1997)
- [21] D. Strickland and G. Mourou *Opt. Comm.* Vol. 56, 219 (1985)
- [22] Y. Nabekawa, K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki, and S. Watanabe *Opt. Lett.* Vol. 18, 1922 (1993)
- [23] J. P. Chambaret, C. Le Blanc, G. Cheriaux, P. Curley, G. Darpentigny, P. Rousseau, G. Hamoniaux, A. Antonetti, and F. Salin *Opt. Lett.* Vol. 21, 1921 (1996)
- [24] J. Itatani, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe *Opt. Comm.* Vol. 134, 134 (1997)
- [25] K. Kondo, A. Sagisaka, T. Tamida, Y. Nabekawa, and S. Watanabe *Phys. Rev. A* Vol. 48, 2531 (1993)
- [26] A. Sagisaka, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe *Appl. Phys. B* Vol. 61, 217 (1995)
- [27] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic *Phys. Rev. Lett.* Vol. 59, 1092 (1987)

- [28] U. Mohideen, M. H. Sher, H. W. K. Tom, G. D. Aumiller, O. R. Wood II, R. R. Freeman, J. Bokor, and P. H. Bucksbaum *Phys. Rev. Lett.* Vol. 71, 509 (1993)
- [29] E. Mevel, P. Breger, R. Trainham, G. Petite, and P. Agostini *Phys. Rev. Lett.* Vol. 70, 406 (1993)
- [30] B. Yang, K. J. Schafer, B. Walker, K. C. Kulander, P. Agostini, and L. F. DiMauro *Phys. Rev. Lett.* Vol. 71, 3770 (1993)
- [31] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander *Phys. Rev. Lett.* Vol. 70, 1599 (1993)
- [32] N. H. Burnett, and P. B. Corkum *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 6, 1195 (1989)
- [33] B. E. Lemoff, G. Y. Yin, C. L. Gordon III, C. P. J. Barty, and S. E. Harris *Phys. Rev. Lett.* Vol. 74, 1574 (1995)
- [34] Y. Nagata, K. Midorikawa, S. Kubodera, M. Obara, H. Tashiro, and K. Toyoda *Phys. Rev. Lett.* Vol. 71, 3774 (1993)
- [35] D. V. Korobkin, C. H. Nam, S. Suckewer, and A. Goltsov *Phys. Rev. Lett.* Vol. 77, 5206 (1996)
- [36] W. P. Leemans, R. W. Schoenlein, P. Volfbeyn, A. H. Chin, T. E. Glover, P. Balling, M. Zolotarev, K. J. Kim, S. Chattopadhyay, and C. V. Shank *Phys. Rev. Lett.* Vol. 77, 4182 (1996)
- [37] P. D. Maker, and R. W. Terhune *Phys. Rev.* Vol. 137, A801 (1965)
- [38] J. F. Ward, and G. H. C. New *Phys. Rev.* Vol. 185, 57 (1969)
- [39] J. Reintjes, R. C. Eckardt, C. Y. She, N. E. Karangelen, R. C. Elton, and R. A. Andrews *Phys. Rev. Lett.* Vol. 37, 1540 (1976)
- [40] J. Reintjes, C. Y. She, and R. C. Eckardt *IEEE J. Quantum Electron.* Vol. QE-14, 581 (1978)
- [41] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, H. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rodes *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 4, 595 (1987)

- [42] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus *J. Phys. B* Vol. 21, L31(1988)
- [43] W. Becker, S. Long, and J. K. McIver *Phys. Rev. A* Vol. 41, 4112 (1990)
- [44] N. Sarukura, K. Hata, T. Adachi, R. Nodomi, M. Watanabe, and S. Watanabe *Phys. Rev. A* Vol. 43, 1669 (1991)
- [45] A. L'Huillier, and Ph. Balcou *Phys. Rev. Lett.* Vol. 70, 774 (1993)
- [46] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, and C. L. Gordon III *Phys. Rev. Lett.* Vol. 70, 766 (1993)
- [47] P. B. Corkum *Phys. Rev. Lett.* Vol. 71, 1994 (1993)
- [48] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum *Phys. Rev. A* Vol. 49, 2117 (1994)
- [49] Y. Nagata, K. Midorikawa, M. Obara, and K. Toyoda *Opt. Lett.* Vol. 21, 15 (1996)
- [50] J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn *Phys. Rev. Lett.* Vol. 76, 752 (1996)
- [51] I. P. Christov, J. Zhou, J. Peatross, A. Rundquist, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn *Phys. Rev. Lett.* Vol. 77, 1743 (1996)
- [52] Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnurer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, and R. Krausz *Proceedings of Ultrafast Optics 1997* ThA-5 (1997)
- [53] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn *Proceedings of Ultrafast Optics 1997* ThA-6 (1997)
- [54] T. Ditmire, J. K. Crane, H. Nguyen, L. B. DaSilva, and M. D. Perry *Phys. Rev. A* Vol. 51, R902 (1995)
- [55] J. Peatross, D. D. Meyerhofer *Phys. Rev. A* Vol. 51, R906 (1995)
- [56] J. W. G. Tisch, R. A. Smith, J. E. Muffett, M. Ciarrocca, J. P. Marangos, and M. H. R. Hutchinson *Phys. Rev. A* Vol. 49, R28 (1994)

- [57] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, and M. H. R. Hutchinson *Phys. Rev. Lett.* Vol. 77, 4756 (1996)
- [58] I. Mercer, E. Mevel, R. Zerne, A. L'Huillier, P. Antonie, And C. G. Wahlstrom *Phys. Rev. Lett.* Vol. 77, 131 (1996)
- [59] A. L'Huillier, X. F. Li, and A. Lompre *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 7 524 (1990)
- [60] P. L. Shkolnikov, A. Lago, and A. E. Kaplan *Phys. Rev. A* Vol. 50, R4461, (1994)
- [61] T. D. Donnelly, T. Ditmire, K. Neuman, M. D. Perry, and R. W. Falcone *Phys. Rev. Lett.* Vol. 76, 2472 (1996)
- [62] Ph. Balcou, C. Cornaggia, A. S. L. Gomes, L. A. Lompre, and A. L'Huillier *J. Phys. B* Vol. 25, 4467 (1992)
- [63] R. Haight, and D. R. Peale *Phys. Rev. Lett.* Vol. 70, 399 (1993)
- [64] K. J. Schafer, K. C. Kulander *Phys. Rev. Lett.* Vol. 78, 638 (1997)
- [65] I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn *Phys. Rev. Lett.* Vol. 78, 1251 (1997)
- [66] J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander *Phys. Rev. Lett.* Vol. 68, 3535 (1992)
- [67] K. Kondo, T. Tamida, Y. Nabekawa, and S. Watanabe *Phys. Rev. A* Vol. 49, 3881 (1994)
- [68] N. B. Baranova, H. R. Reiss, B. Ya. Zel'dovich *Phys. Rev. A* Vol. 48, 1497 (1993)
- [69] S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa, A. Sagisaka, and Y. Kobayashi *Phys. Rev. Lett.* Vol. 73, 2692 (1994)
- [70] K. Kondo, Y. Kobayashi, A. Sagisaka, Y. Nabekawa, and S. Watanabe *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 13, 424 (1996)
- [71] L. V. Keldysh, Zh. Eksp. Teor. Fiz. *Sov. Phys. JETP* Vol. 20,1307 (1965)
- [72] F. H. M. Faisal *J. Phys. B* Vol. 6, L89 (1973)

- [73] H. R. Reiss *Phys. Rev. A* Vol. 22, 1786 (1980)
- [74] H. R. Reiss *J. Phys. B* Vol. 20, L79 (1987)
- [75] M. D. Perry, A. Szoke, O. L. Landon, and E. M. Campbell *Phys. Rev. Lett* Vol. 60, 1270 (1988)
- [76] W. Becker, S. Long, and J. K. McIver *Phys. Rev. A* Vol. 50, 1540 (1994)
- [77] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov *Sov. Phys. JETP* Vol. 64, 1191 (1986)
- [78] P. Balcou, P. Salieres, A. L'Huillier, and M. Lewenstein *Phys. Rev. A* Vol. 55, 3204 (1997)
- [79] Wm. M. Wood, C. W. Siders, and M. C. Downer *Phys. Rev. Lett.* Vol. 67, 3523 (1991)
- [80] R. W. Falcone, J. Bokor *Opt. Lett.* Vol. 8, 21 (1983)
- [81] S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn *Opt. Lett.* Vol. 21, 665 (1996)
- [82] J. N. Sweetser, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino *Opt. Lett.* Vol. 22, 519 (1997)
- [83] N. Sarukura, M. Watanabe, A. Endoh, and S. Watanabe *Opt. Lett.* Vol. 13, 996 (1988)
- [84] M. E. Faldon, M. H. R. Hutchinson, J. P. Marangos, J. E. Muffett, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, and C. G. Wahlstrom *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 9, 2094 (1992)
- [85] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and R. W. Falcone *Appl. Phys. Lett.* Vol. 56, 1948 (1990)
- [86] M. H. Sher, U. Mohideen, H. W. K. Tom, O. R. Wood II, G. D. Aumiller, R. R. Freeman, and T. J. McIlrath *Opt. Lett.* Vol. 18, 646 (1993)
- [87] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz *Phys. Rev. Lett.* Vol. 73, 2180 (1994)

- [88] S. P. Le Blanc, Z. Qi, and R. Sauerbrey *Opt. Lett.* Vol. 20, 312 (1995)
- [89] 勾坂明人, 博士論文 (1997)
- [90] M. J. Seaton *Mon Not. R. Astron. Soc.* Vol. 119, 81 (1959)
- [91] M. J. Seaton in *Atomic and Molecular Processes*, D. R. Bates, Ed. (Academic, New York, 1962, p374)
- [92] T. Adachi, K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki, and S. Watanabe *Appl. Phys. B* Vol. 55, 323 (1992)
- [93] E. Mevel, P. Breger, R. Trainham, G. Petite, P. Agostini, J. P. Chambaret, A. Migus, and A. Antonetti *J. Phys. B* Vol. 25, L401 (1992)
- [94] J. G. Story, D. I. Duncan, and T. F. Gallagher *Phys. Rev. Lett.* Vol. 70, 3012 (1993)
- [95] R. R. Jones, C. S. Raman, D. W. Schumacher, and P. H. Bucksbaum *Phys. Rev. Lett.* Vol. 71, 2575 (1993)
- [96] L. D. Noordam, D. I. Duncan, and T. F. Gallagher *Phys. Rev. A* Vol. 45, 4734 (1992)
- [97] R. R. Jones *Phys. Rev. Lett.* Vol. 75, 1491 (1995)
- [98] J. A. Yeazell, and C. R. Stroud, Jr. *Phys. Rev. Lett.* Vol. 60, 1494 (1988)
- [99] L. D. Noordam, A. ten Wolde, A. Lagendijk, and H. B. van Linden van den Heuvell *Phys. Rev. A* Vol. 40, 6999 (1989)
- [100] J. Parker, and C. R. Stroud, Jr. *Phys. Rev. Lett.* Vol. 56, 716 (1986)
- [101] A. ten Wolde, L. D. Noordam, A. Lagendijk, and H. B. Van Linden van den Heuvell *Phys. Rev. Lett.* Vol. 61, 2099 (1988)
- [102] R. R. Jones, D. W. Schumacher, and P. H. Backsbaum *Phys. Rev. A* Vol. 47 R49 (1993)
- [103] T. E. Glover, J. K. Crane, M. D. Perry, R. W. Lee, and R. W. Falcone *Phys. Rev. Lett.* Vol. 75, 445 (1995)

- [104] T. E. Glover, R. W. Schoenlein, A. H. Chin, and C. V. Shank *Phys. Rev. Lett.* Vol. 76, 2468 (1996)
- [105] A. Bouhal, R. Evans, G. Grillon, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, and D. von der Linde *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 14, 950 (1997)
- [106] J. M. Schins, P. Breager, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, A. Bouhal, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 13, 197 (1996)
- [107] Handbook of Optical Constants of Solids I, II *Academic press* (1985, 1991)
- [108] A. Dalgarno, A. E. Kingston *Proc. R. Soc. London Ser. A* 259, 424 (1960)
- [109] P. Salieres, A. L'Huillier, and M. Lewenstein *Phys. Rev. Lett.* Vol. 74, 3776 (1995)
- [110] C. G. Wahlstrom, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salieres, Ph. Balcou, and A. L'Huillier *Phys. Rev. A* Vol. 48, 4709 (1993)
- [111] M. Lewenstein, P. Salieres, and A. L'Huillier *Phys. Rev. A* Vol. 52, 4747 (1995)
- [112] P. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salieres, and B. Carre *Phys. Rev. A* Vol. 53, 1725 (1996)
- [113] T. Sekikawa, T. Kumazaki, Y. Kobayashi, Y. Nabekawa, and S. Watanabe *J. Opt. Soc. Am. B* to be published
- [114] Y. Kobayashi, O. Yoshihara, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe *Opt. Lett.* Vol. 21, 417 (1996)
- [115] Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe *Opt. Lett.* Vol. 23, 64 (1998)
- [116] 菊田惺志, X線回折散乱技術: 東京大学出版会
- [117] 佐々木泰三, 数理科学, No. 243, 5 (1983)
- [118] 市村禎二郎、旗野嘉彦、井口洋夫編, シンクロトロン放射光: 学会出版センター

- [119] D. Matthews, M. Rosen, S. Brown, N. Ceglio, D. Eder, A. Hawryluk, C. Keane, R. London, B. MacGowan, S. Maxon, D. Nilson, J. Scofield, and J. Trebes *J. Opt. Soc. Am. B* Vol. 4, 575 (1987)
- [120] 北村英男, 放射光輝度計算プログラム

発表論文

論文

Y. Kobayashi, O. Yoshihara, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe

"Femtosecond measurement of high-order harmonic pulse width and electron recombination time by field ionization"

Optics Letters, Vol. 21, No. 6, 417 (1996)

Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics"

Optics Letters, Vol. 23, No. 1, 64 (1998)

S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa, A. Sagisaka, and Y. Kobayashi

"Two-colour phase control in tunneling ionization and harmonic generation by a strong laser field and its third harmonic"

Physical Review Letters, Vol. 73, No. 20, 2692 (1994)

K. Kondo, Y. Kobayashi, A. Sagisaka, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"Tunneling ionization and harmonic generation in two-color fields"

J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 13, No. 2, 424 (1996)

T. Sekikawa, T. Kumazaki, Y. Kobayashi, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"Femtosecond extreme ultraviolet quasi-continuum generation using an intense femtosecond Ti:Sapphire laser"

J. Opt. Soc. Am. B, to be published

国際会議発表

Y. Kobayashi, O. Yoshihara, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe

"Femtosecond measurement of high-order harmonic pulse width and electron recombination time by field ionization"

Special issue of Progress in Crystal Growth & Characterization of Materials, Elsevier, P241-244 (1996)

Y. Kobayashi, O. Yoshihara, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe

"Measurement of high-order harmonic pulse width and electron recombination time by field ionization"

Proceedings of CLEO/QELS '96 JTuA6 (1996)

Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"Ultrashort XUV pulse generation by high-order harmonics"

Proceedings of Postdeadline paper, CLEO Pacific Rim '97, PD1.8 (1997)

その他のプロシーディング

Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"Ultrashort XUV pulse generation by high-order harmonics"

Proceedings of Ultrafast Optics 1997, ThA-7 (1997)

Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"27-fs XUV pulse generation by high-order harmonics"

Proceedings of Postdeadline paper, CLEO/QELS'97, CPD4 (1997)

K. Kondo, Y. Kobayashi, A. Sagisaka, Y. Nabekawa, and S. Watanabe

"Terawatt Krf/Ti:Sapphire hybrid system and its application"

Proceeding of International Conference on Laser Interaction and Related Plasma Phenomena (Osaka Univ. and IAEA, Osaka, 1995) P143

