

論文内容の要旨

論文題目 : Multiphoton ionization of atoms by extreme ultraviolet free electron laser
seeded with high-order harmonics of Ti:Sapphire laser
and amplification of backward fluorescence in laser induced filaments

(チタンサファイアレーザーの高次高調波によってシードされた
極端紫外領域自由電子レーザーによる原子の多光子イオン化
およびレーザー誘起フィラメントによる後方蛍光の増幅)

氏名 大和田成起

1. 序論

媒質にレーザーを照射すると、電場強度に比例して媒質の原子や分子に分極が誘起される。入射するレーザー光が 10^{10} - 10^{11} V/m 程度の高強度になると、高次の非線形分極の効果により様々な非線形光学現象が観測される。この電場強度は、水素原子の 1s 軌道にある電子が原子核から受ける電場強度である 5.2×10^{11} V/m に相当する。

媒質の密度が低いときは非線形分極による屈折率の寄与が小さいので、個々の原子とレーザー電場との相互作用により媒質はトンネルイオン化され、電子が放出される。放出された電子は、レーザー電場によって加速され元の原子へ再結合することで高エネルギー状態から安定な結合状態となり、高次高調波と言われる高い光子エネルギーを持った光を発生する。極端紫外域において非摂動領域に到達するには 3.8×10^{11} V/m の電場強度が必要となるが、このような強い電場強度は従来の高次高調波では達成されていない。本研究では高次高調波をさらに高強度化するために、理化学研究所播磨研究所の SCSS 試験加速器をチタンサファイアレーザーの 13 次、15 次高調波をシード光として自由電子レーザー(free electron laser, FEL)において、加速器と同期した増幅を行い、中心波長 61.5 nm、53.3 nm の高強度コヒーレントな極端紫外パルスが発生させた。さらに、シードされた FEL パルスによる希ガス原子の多光子イオン化を計測し、自己増幅自発放射光型(self-amplified spontaneous emission, SASE) FEL のパルスによる多光子イオン化と比較することで、それぞれのスペクトル構造や時間構造の違いによる多光子イオン化過程の相違を調べた。

一方で、媒質の密度が高い時は、3 次の非線形分極効果による屈折率がビームの伝搬に与える影響が大きくなるため、自己収束が起きる。自己収束とは、媒質の屈折率が $n = n_0 + n_2 I$ で表されるよう

に非線形屈折率 n_2 が屈折率 n に大きく寄与するようになり、ビームが集光される現象である。集光された強いレーザー電場において、媒質中の原子や分子をイオン化し電子を放出するため、屈折率は電子密度に比例する値だけ低下することから、ビーム伝搬中にビームの発散が生じる。自己収束と発散を繰り返し伝搬する状態をフィラメントと呼ぶ。本研究ではレーザーフィラメント中の分子から放出される蛍光強度の入射レーザー強度依存性を観測し、フィラメント内で媒質分子に反転分布が生じ自然放射光増幅過程による蛍光の増幅が行われることを明らかにした。

2. チタンサファイアレーザーの高次高調波によりシードされた自由電子レーザー

SASE-FEL は極端紫外領域の高強度光源であるが、その発生過程に起因して時間コヒーレンスに乏しく、スペクトル構造、時間構造がショット毎にランダムに変化するという問題がある。この問題を改善するために、コヒーレントな外部レーザーによるシード FEL がある。本研究では、チタンサファイアレーザーの 13 次高調波、15 次高調波シード光として FEL において増幅を試みた。

FEL において光の増幅を実現するには、高調波パルスと電子バンチの時間、空間、スペクトルの重ね合わせが要求される。特に、時間重ね合わせでは、電子バンチの時間幅が 600 – 700 fs、高調波パルスの時間幅が 50 fs 程度であることから、サブピコ秒精度での時間重ね合わせが求められる。しかし、電子バンチと同期レーザーの到着時間ゆらぎは数秒で数ピコ秒程度に達するため、時間的重なりはすぐに失われてしまう。従来の光遷移放射光をストリークカメラで観測する方法は破壊検査であるため、実時間で到着時間ゆらぎを補償することができない。

そこで本研究では 1 次の電気光学効果を利用した、非破壊、リアルタイム到着時間計測法を導入した。さらに自作した LabView プログラムにより同期レーザーのトリガー遅延時間を調整することで、到着時間ドリフトを補償した。その結果、長時間にわたりピコ秒精度での電子バンチと高調波パルスの時間重なりを保つことに成功した。チタンサファイアレーザーの 13 次高調波をシード光として FEL の増幅をすることで、最大で 20 $\mu\text{J/pulse}$ のエネルギーを持つ波長 61.5 nm の極端紫外パルスを 7 時間以上発生させることに成功した。このことにより、シードされた FEL を光源として実験を行うことが可能となった。

3. シードされた自由電子レーザーによる希ガス原子の多光子イオン化

高次高調波によりシードされた FEL によるコヒーレント極端紫外パルスを光源とし、飛行時間型質量分析器を用いて希ガス原子の多光子イオン化過程を観測した。また、シードされた FEL と同程度のパルスエネルギーを持つ SASE-FEL においても同様に飛行時間型質量スペクトルを測定した。

3.1. ヘリウムの多光子イオン化

Figure 1(a)は、ヘリウムのイオン収量のパルス強度依存性を対数プロットで示したものである。シードされた FEL によるイオン収量、SASE-FEL によるイオン収量の傾きは、それぞれ 2.0(1)、1.9(1)であった。このことは、2 光子過程によるイオン化であることを示している。波長 61.5 nm の光子エネルギーは 20.1 eV である。ヘリウムの第一イオン化エネルギーは 24.59 eV であり、ヘリウム原子の電子励起状態の中で最も低いエネルギーを持つ 1s2p 状態のエネルギー準位が 21.21 eV であることから、基底状態のヘリウムから 1 光子で共鳴できる準位はなく、非共鳴 2 光子イオン化が起きている

ことを示している。シードされた FEL によるイオン収量は、SASE-FEL によるイオン収量の約 2.7 倍の収量があった。ここで、イオン収量は下式(1)のように表すことができる。

$$Y_{\text{He}^+} \propto N_{\text{He}} \cdot \sigma_{\text{He}}^2 \cdot \left(\frac{\lambda I}{hc}\right)^2 \cdot \tau = N_{\text{He}} \cdot \sigma_{\text{He}}^2 \cdot \left(\frac{\lambda E}{hcS}\right)^2 \cdot \frac{1}{\tau} \quad \dots (1).$$

N_{He} は、反応領域中のヘリウム原子数、 I はレーザー集光強度、 E はパルスエネルギー、 S はビーム断面積、 τ はパルスの時間幅である。

よって、イオン収量の比は式(2)のように表すことができる。

$$Y_{\text{He}^+}(\text{Seeded FEL})/Y_{\text{He}^+}(\text{SASE FEL}) = \frac{\tau_{\text{SASE FEL}}}{\tau_{\text{Seeded FEL}}} \quad \dots (2).$$

式(3)より、SASE-FEL パルスの時間幅はシードされた FEL パルスの時間幅の 2.7 倍であることがわかった。

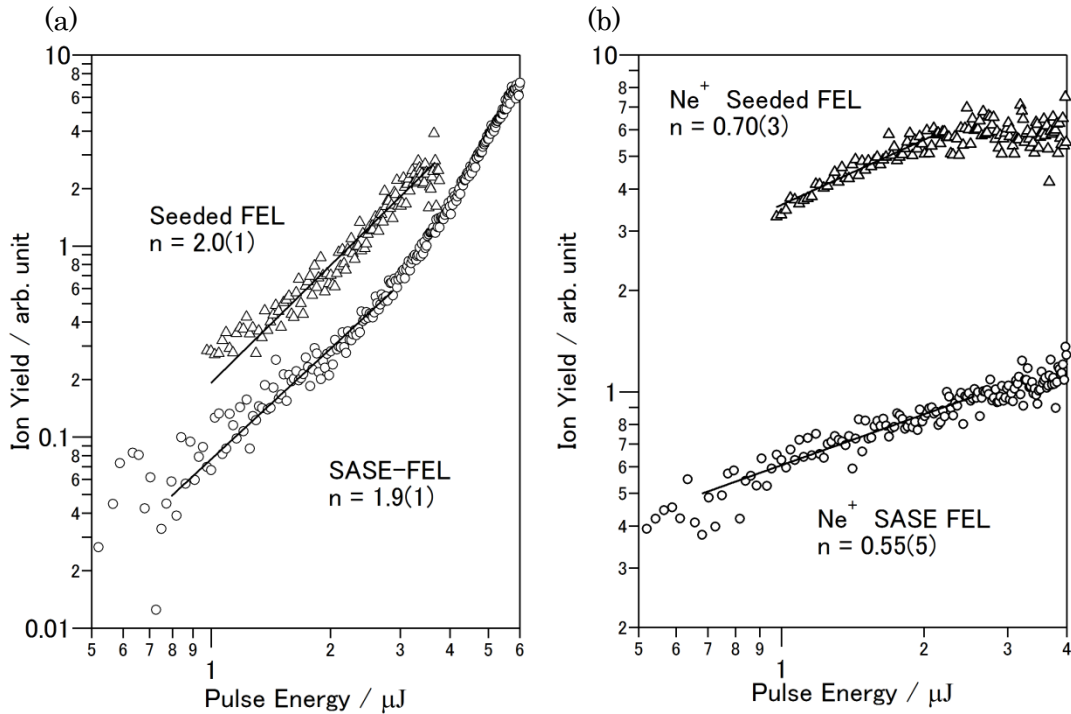


Figure 1 (a) ヘリウムイオン収量の強度依存性。 (b) ネオンイオン収量の強度依存性。

3.2. ネオンの多光子イオン化

Figure 1(b)は、ネオンのイオン収量のパルス強度依存性を対数プロットで示したものである。ネオンは波長 61.56 nm に $^1\text{P}(2s^22p^53d) \leftarrow ^1\text{S}(2s^22p^6)$ の共鳴遷移を持ち、イオン化エネルギーは 21.56 eV であるため、Ne⁺の生成過程は共鳴 2 光子イオン化となる。ここで、シードされた FEL パルスと SASE-FEL パルスのスペクトル構造を考えれば、波長 61.5 nm にシングルピークを持つシードされた FEL パルスの方が、より高い共鳴効果を得ることが考えられる。そのために Ne⁺の収量が SASE-FEL の場合と比較して増加しているものと考えられ、スペクトルの構造による共鳴効果の違いが確認された。

4. フェムト秒レーザー誘起フィラメントによる後方蛍光の増幅

フェムト秒レーザー誘起フィラメントでは自己位相変調によるスペクトルの広帯域化が起り、白色光が放出されることが報告されているが、電子励起されたイオンや分子、ラジカルからの蛍光の観測などが報告されている。例えば空気中のフィラメントからは N_2 の $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ 遷移による 337 nm の蛍光が報告されており、メタンと空気の混合気体中のフィラメントからは $A^2\Delta \rightarrow X^2\Pi$ 遷移による 430 nm の蛍光が報告されている。本研究では、フィラメントからの後方蛍光強度の入射エネルギー依存性を確認した。

パルス幅 42 fs、中心波長 810 nm、パルスエネルギー 0.5 – 6.0 mJ のチタンサファイアレーザーを空气中で集光することでフィラメントを生成し、フィラメント内部の電子励起状態の窒素分子の $C \rightarrow B$ 遷移からの波長 337 nm の蛍光の増幅について調べた。入射パルスエネルギーを変化させながらフィラメント側面からフィラメントの画像を CCD カメラで取得するとともに、フィラメント後方に放出される蛍光強度を測定した。フィラメント画像を解析することで、各パルスエネルギーにおけるフィラメントの長さ、1/e 直径、自然放出光強度を見積もった。

自然放射光増幅による蛍光強度は、光学利得 g 、媒質の長さ L 、媒質の断面積 A 、媒質単位長さあたりの自然放出光強度 I_0 を用いて、式(3)のように表される。

$$I(L) = I_0 \cdot A(e^{gL} - 1)/g \quad \dots (3).$$

蛍光強度の媒質の長さに対する依存性を求めるために、式(4)を式(5)のように規格化した。

$$I'(L) = I(L) / (I_0 \cdot A) = B \cdot (e^{gL} - 1)/g \quad \dots (4).$$

解析によって得られた値を使用して側面蛍光強度、後方蛍光強度を規格化したものを Figure 3 に示す。規格化された側面蛍光強度はフィラメント長に依存しない一方で、規格化された後方蛍光強度はフィラメント長に対して、指数関数的に増加した。後方蛍光に対して、式(4)を用いて自然放射光増幅による光学利得を計算すると、 $1.4(3) \text{ cm}^{-1}$ と求められた。このことは、フィラメント内部で窒素分子の C 状態と B 状態間で反転分布が形成され、自然放射光増幅によって後方蛍光が増幅されたことを示している。

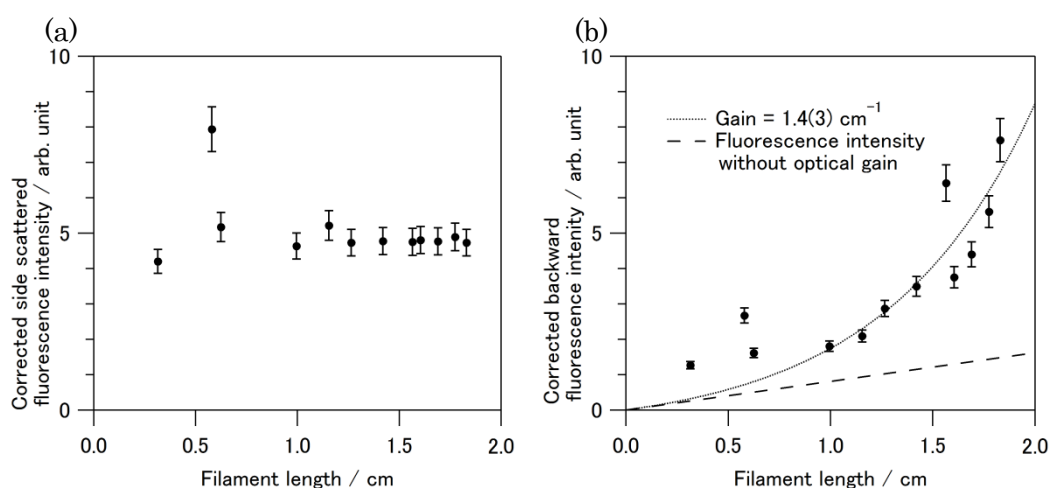


Figure 2 フィラメント断面積と単位長さあたりの自然放出光強度によって規格化された(a)側面蛍光強度、(b)後方蛍光強度。