

論文の内容の要旨

論文題目 : Observation of the phase differences of near-threshold high-order harmonics generated in atoms and molecules

(原子および分子から発生する高次高調波のイオン化限界近傍における位相差の観測)

氏名 加藤康作

1. はじめに

原子や分子に強いレーザー光を照射すると、高次高調波と呼ばれる真空紫外光が広い波長領域に渡って発生する。その発生過程は、強いレーザー電場によって分子から飛び出した電子がレーザー電場によって加速され、戻ってきて親イオンと再結合するときに発生するという、いわゆる3ステップモデルでよく説明される(P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993))。このモデルに基づき、高次高調波を用いて分子軌道のイメージを非常に高い空間・時間分解能で調べられることが示され(J. Itatani *et al.*, *Nature (London)* **432**, 867 (2004))注目を集めている。近年は、通常の回折格子分光器で得られるスペクトルの強度 $|E_{HH}(\omega)|^2$ に加えて、その位相 $\phi_{HH}(\omega)=\arg(E_{HH}(\omega))$ を調べることで、より詳細な情報を得る実験が行われている。ところで高次高調波の実験結果を説明する際、強電場近似(strong-field approximation)と呼ばれる近似がよく使用される。この近似は(1)束縛状態として基底状態のみを考え、励起状態の寄与は無視する、(2)イオン化に伴う基底状態の割合の減少の効果を無視する、(3)電子が連続状態にあるときは、親イオンの作るクーロンポテンシャルの影響を無視する、という3つの近似からなる。この近似を用いることで高次高調波が持つ特徴を簡単な計算で比較的正確に再現することができる。しかし、最近イオン化限界近傍において、強電場近似では説明できない現象が観測された(H. Soifer *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 143904 (2010))。現状ではこのような低い次数の高次高調波の研究は高い次

数のものに比べ限られている。私達はこの領域での高次高調波発生過程の知見をより深めるため、原子と分子から発生する高次高調波の隣り合う次数間の位相差を測定した。イオン化限界近傍において、位相差の次数依存性について強電場近似では説明できない振舞いが観測され、その原因の考察を行った。

2. 位相差測定装置の開発

位相差を調べる方法として、RABBIT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions)と呼ばれる方法を用いることにした(P. M. Paul *et al.*, *Science* **292**, 1689 (2001))。この方法では、高次高調波とその基本波を時間差 Δt をつけて希ガスに集光し、発生する光電子のエネルギースペクトルを観測する。高調波による一光子イオン化の信号の間に、高次高調波の光子と基本波の光子が1個ずつ関与する二光子イオン化で発生する光電子の信号が現れるが、 $2n-1$ 次高調波の光子1つと基本波の光子1つを吸収する過程と、 $2n+1$ 次高調波の光子1つを吸収し基本波の光子1つを放出する過程は同じ運動エネルギーの光電子を発生させ、互いに干渉する。このことを使い、高次高調波と基本波の間の遅延時間 Δt を変えたときの二光子イオン化の信号の変化の様子から、隣り合う次数の高調波の位相差を測定することができる。

実験装置の概要を Fig.1 に示す。Ti:sapphire 増幅器から出た光を穴あきミラーで外側のドーナツ状のビームと内側の細いビームの2つに分け、外側を高次高調波を発生させるためのパルス(driving pulse)、内側を RABBIT 法測定のための probe pulse とした。両者はピエゾ素子駆動の遅延ステージにより光路差をつけた後、穴あきミラーで同軸上に戻されてから真空槽に入り、凹面鏡でガスジェット中に集光される。外側の光は高次高調波を発生させた後にアパーチャで遮られる。高次高調波と内側の細い probe pulse はアパーチャを通り抜け、トロイダルミラーによって希ガスジェット中に集光される。そこで発生した光電子の運動量分布を速度マップ型イメージング装置で観測した。

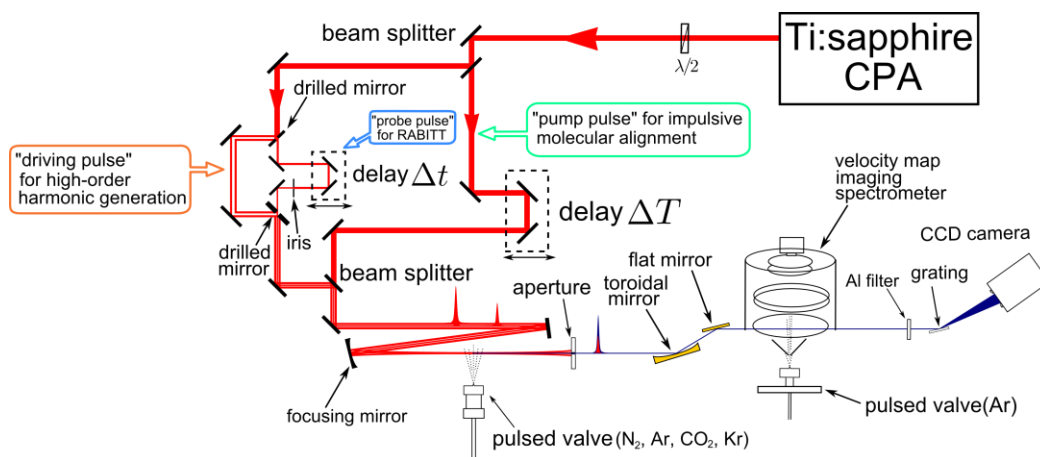


Fig. 1 : Schematic diagram of our experimental setup.

3. 測定結果

Fig. 2 は Ar のジェットから発生した高次高調波を位相差検出用の別の Ar ジェットに集光して発生した光電子の運動量分布を示しており、左が高次高調波のみを集光した場合、右が高次高調波と基本波を同時に集光した場合のイメージである。基本波も同時に集光した場合は高次高調波による光電子の信号の間に二光子イオン化によるサイドバンドが現れる。このイメージの動径分布を積分し、サイドバンドの強度を probe pulse の遅延 Δt の関数として計算してそこから隣り合う高調波間の位相差を得た。その際、高次高調波を発生させるときに driving pulse と probe pulse が干渉し、それに伴う高調波の強度の変調がサイドバンドに影響を及ぼすという問題があった。従来の研究ではサイドバンドの強度を全信号強度で割ることでこの変調の影響を打ち消していたが、今回私達は二光子イオン化過程の考察に基づいて、以下のような物理的により妥当性の高い解析法を新たに開発した。 $2n-1$ 次高調波と $2n+1$ 次高調波による信号の間にあらわれる二光子イオン化の信号を $2n$ 次のサイドバンドと呼ぶことにすると、 $2n$ 次のサイドバンドの強度 S_{2n} は二次の摂動論から、

$$S_{2n} = \mathcal{A}_1^2 \mathcal{A}_X^{(2n-1)2} A_+^{(2n+1)} + \mathcal{A}_1^2 \mathcal{A}_X^{(2n+1)2} A_-^{(2n-1)} \\ + \mathcal{A}_1^2 \mathcal{A}_X^{(2n-1)} \mathcal{A}_X^{(2n+1)} A_{\text{atom}}^{(2n)} \cos \left(2\phi_{\text{probe}} + \phi_{\text{HH}}^{(2n-1)} - \phi_{\text{HH}}^{(2n+1)} + \Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)} \right)$$

と表される。ここで \mathcal{A}_1 と $\mathcal{A}_X^{(2n\pm 1)}$ はそれぞれ probe pulse と $2n\pm 1$ 次高調波の電場振幅、 ϕ_{probe} と $\phi_{\text{HH}}^{(2n\pm 1)}$ は probe pulse と $2n\pm 1$ 次高調波の位相、 $A_{\pm}^{(2n\pm 1)}$, $\mathcal{A}_{\text{atom}}^{(2n)}$, $\Delta\phi_{\text{atom}}^{(2n)}$ は高調波によらない定数である。ここで、 $\mathcal{A}_X^{(2n\pm 1)}$ が $2n\pm 1$ 次高調波による一光子イオン化の信号の平方根に比例することから、サイドバンドの強度をその両隣の信号強度の積の平方根で規格化することで高次高調波の変調の効果を取り除ける。さらに、probe pulse の強度が driving pulse との間の非線形効果による相互作用で変調する効果を考慮し、サイドバンド強度を

$$A[1 + B \cos(\omega_0 t + \eta)][1 + C \cos(2\omega_0 t + \phi)]$$

という関数で表すと実験結果をよくフィットできた。このフィットのパラメータ ϕ から隣り合う次数間の位相差 $\Delta\phi_{\text{HH}}^{(2n)} \equiv \phi_{\text{HH}}^{(2n+1)} - \phi_{\text{HH}}^{(2n-1)}$ が得られる。

Ar および N_2 中で発生した高次高調波の隣り合う次数間の位相差をそれぞれ Fig.3 の左と右の図の中の点で示す。点の形状の違いは測定した日の違いを表している。また N_2 につい

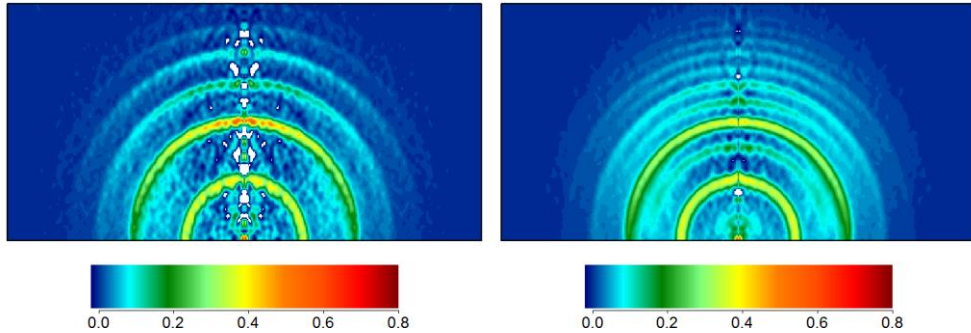


Fig. 2 : Typical images of photoelectrons produced from Ar observed with only high-order harmonics (left) and with both high-order harmonics and probe pulses (right). High-order harmonics are generated in another Ar gas jet.

ては事前に **pump pulse** を照射して分子の向きをそろえた場合とランダムな向きの場合を測定し、それぞれ中空と中実な点で結果を示した。この結果から、次の二つのことが分かる。(a)位相差 $\Delta\phi_{HH}^{(2m)}$ は次数とともに単調に増加するが、位相差の絶対値は測定した日によって異なる。(b)Ar では 11 次と 13 次の位相差 $\Delta\phi_{HH}^{(12)}$ が 13 次と 15 次の位相差 $\Delta\phi_{HH}^{(14)}$ と近い値をとっているのに対し、N₂では 0.5 rad ほど離れている。同様の測定を CO₂および Kr から発生する高次高調波に対しても行った。CO₂では Ar と同様に $\Delta\phi_{HH}^{(12)}$ と $\Delta\phi_{HH}^{(14)}$ との差がゼロに近い値をとることが分かった。Kr の測定ではガスの圧力のゆらぎが大きかったため他の媒質の結果より信頼性は低いが、基本波の強度が強いときに $\Delta\phi_{HH}^{(12)}$ と $\Delta\phi_{HH}^{(14)}$ との差が小さくなる傾向が見られた。

4. 考察

強電場近似に基づくモデル計算の結果を Fig.3 の中に曲線で示した。計算結果は位相差が単調増加する傾向を再現している。位相差の絶対値の測定日による違いは、レーザーの集光位置とガスを供給するバルブのノズル間の距離が変わったことによる高調波発生用の媒質の密度の変動、およびアラインメントのずれによる **driving pulse** と **probe pulse** の光路差の変動に起因すると考えられる。一方、 $\Delta\phi_{HH}^{(12)}$ と $\Delta\phi_{HH}^{(14)}$ の差が Ar および CO₂でゼロに近い値をとる現象はモデル計算では再現できず、またガス密度や光路差の変動で説明するのは困難である。この現象を説明するには、イオン化過程における励起状態の関与や再結合の際のクーロンポテンシャルの影響など高強度電場近似を越えた取り扱いが必要であることを指摘した。

5. まとめ

高次高調波の隣り合う次数間の位相差を二光子イオン化を用いて測定した。媒質のイオン化限界近傍における位相差に高強度電場近似で説明できない特徴が現れ、原子と分子では異なる振舞いを見せた。今回の結果は低い次数の高次高調波については高強度電場近似を越えたより精度の高いモデルによる理解が必要であることを示唆しており、イオン化近傍で起こる現象のさらなる研究を促す嚆矢の一つとなるであろう。

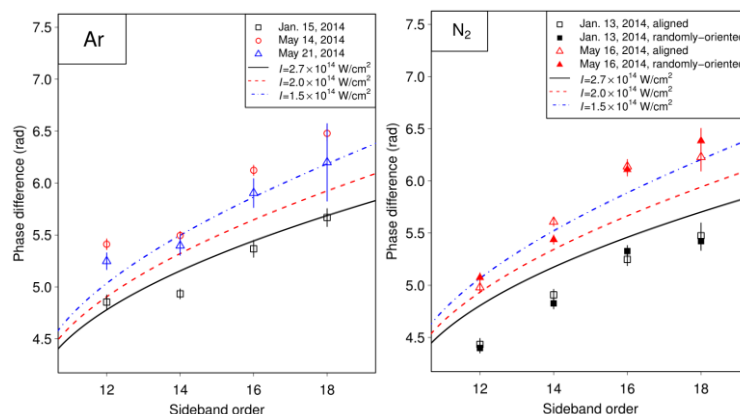


Fig. 3 : Points with bar: The phase differences between adjacent orders of harmonics generated in Ar (left) and N₂ (right). Bars show the error of the fitting. Curves: the results of the model calculation.