

# 高次高調波によるコヒーレント軟X線の発生とその応用

板谷 治郎

## Generation of Coherent Soft X-ray High Harmonics and Their Applications

Jiro ITATANI

When intense ultrashort laser pulses are focused onto atomic or molecular gas targets, short-wavelength radiation called *high harmonics* are produced. Because of their fully coherent nature in space and time, the generation of attosecond pulses in extreme ultraviolet (EUV) has been realized, which expanded the forefront of ultrafast optical sciences from femtosecond to attosecond time scales. However, the spectral range of attosecond pulses are still limited in EUV ( $< 200$  eV) because near infrared Ti:sapphire lasers are mostly used. Meanwhile, recent progress of optical parametric chirped pulse amplifiers have opened the way to generating intense few-cycle laser pulses from infrared to mid-infrared ranges, which enables the generation of attosecond soft X-ray pulses in the water window and even beyond. Attosecond soft X-ray pulses are expected to be applied for element-specific ultrafast spectroscopy using absorption edges.

**Key words:** high-peak-power lasers, optical parametric chirped-pulse amplifiers, carrier-envelope phase, high harmonic generation, soft X-ray, attosecond science

高強度レーザー光をガス媒質に集光して得られる高次高調波の発生は、1980年代後半に発見された<sup>1,2)</sup>。発見当初より、高い次数の高調波が一定の強度で多数発生する「ブラトー」とよばれる領域と、急激に強度の落ちる「カットオフ」とよばれる構造によってスペクトル形状が特徴付けられることから、非摂動的な原子応答が予想された。その後、1993年にP. B. Corkumによって発生原理が説明されたことにより、コヒーレント短波長光を発生させるための新しい光技術として飛躍的に進展することとなった<sup>3)</sup>。今日ではテーブルトップ規模のレーザー装置で、ピーク出力1 TW (1 TW =  $10^{12}$  W) 程度の高強度レーザーパルスを、1 kHz 程度の高い繰り返しで発生可能となっている。その結果、原子内の束縛電子が感じるクーロン電場を上回る強い光電場を実現できるようになり、従来の摂動的な非線形光学では説明のできない物質の極端な非線形応答が観測できるようになっている<sup>4)</sup>。新しい非線形光学現象の観測は、新しい実験手法に直結する。特に、原子のトンネルイオン化に代表されるような、時々刻々変化する光電場の

振幅に依存する電子の応答は、位相を安定化した高強度レーザーを用いることによってアト秒精度で制御できるようになっており、アト秒スケールの光パルスあるいは電子線パルスを用いた「アト秒光科学」とよばれる超高速光科学が生まれた<sup>5)</sup>。また、アト秒光科学は長らく極紫外域(光子エネルギー $< 200$  eV)での超高速光技術に止まっていたが、光パラメトリック増幅法に基づく長波長域の高強度レーザーの出現によって軟X線領域へと拡大しつつある。本解説では、近年の高強度極短パルスレーザー技術の進展を踏まえ、高次高調波によるフェムト秒からアト秒領域のコヒーレント短波長光の発生と応用について解説する。

### 1. 高次高調波によるアト秒光パルス発生

原子内の電子は、原子核のつくるクーロンポテンシャルによって束縛状態にある。外場として、光電場の強度がクーロンポテンシャルを形成する原子内電場と同程度になると、図1(a)に示されるように、光電場とクーロン電場の重ね合わせで形成されるポテンシャルにポテンシャル障

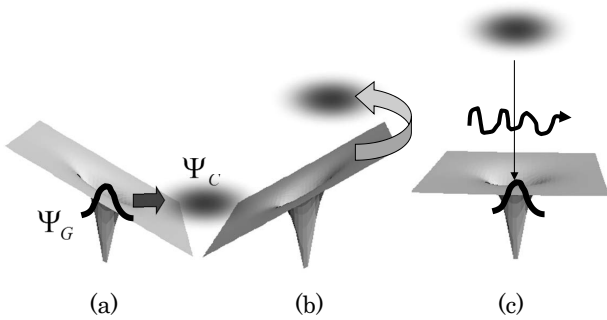


図1 高次高調波発生のスリーステップモデル. (a) トンネルイオン化, (b) レーザー電場による電子波束の加速, (c) 再衝突に伴う再結合 (光子放出). 図中の  $\Psi_G$ ,  $\Psi_C$  は, それぞれ基底状態の波動関数と連続準位中の電子波束を示す.

壁が現れ, トンネル効果によって連続準位中に波動関数がしみ出す. この現象はトンネルイオン化とよばれる. トンネルイオン化は ADK 理論などで詳細に定式化されるが<sup>6)</sup>, ここでは, Landau が導いた DC トンネルイオン化の表式からを用いてその傾向を説明しよう<sup>7)</sup>. イオン化ポテンシャル  $I_p$  の水素様原子に外場  $E$  が加わったとき, 単位時間当たりのトンネルイオン化確率  $w_{dc}$  は次式で与えられる.

$$w_{dc} \sim \frac{E}{(2I_p)^{1/2}} \exp\left[-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E}\right] \quad (1)$$

まず, 電場  $E$  が指数項に含まれることから, 電場強度が高くなるにつれてイオン化確率が急激に増大することがわかる. そのため, 直線偏光の高強度光電場の下では, トンネルイオン化が電場波形のピーク付近で発生することになる. 同様に, イオン化ポテンシャル  $I_p$  も指数項に含まれることから, 多電子を含む系においては原則として最外殻の電子が放出されることになる. いったん連続状態へしみ出た電子の波動関数  $\Psi_C$  は, 図 1 (b) に示されるように, 光電場によって原子から遠ざかる方向へ加速される. 直線偏光の場合, 光電場の方向が一周期以内に反転する際に逆加速され, 発生源であるイオンに衝突する. 加速された電子が衝突する際に基底状態  $\Psi_G$  へと再結合し, 図 1 (c) に示されるように, 運動エネルギー  $K$  とイオン化ポテンシャル  $I_p$  の和に相当する光子  $\hbar\omega_x$  を放出する. すなわち,  $\hbar\omega_x = K + I_p$  が成り立つ. このモデルは「スリーステップモデル (三段階モデル)」とよばれ, 高次高調波発生を説明する理論として 1993 年に Corkum によって提唱され<sup>3,8)</sup>, 高次高調波の発生と応用に関して最も重要な枠組みとなっている.

トンネルイオン化で発生した電子波束の運動は, 光の偏光方向に関しては, 電場のピーク付近の有限幅の時刻で初速度ゼロで放出された多数の古典的な点電荷の運動として

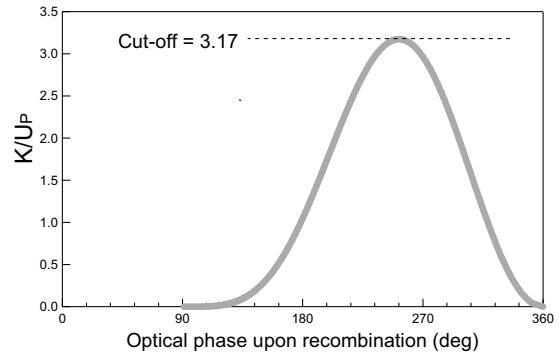


図2 古典的に計算される再衝突電子の運動エネルギー. 横軸は再結合する時刻 (位相), 縦軸はポンデロモータYPテンシヤルで規格化された運動エネルギー.

理解できる. 図 2 に, 電子が再結合する時刻に相当する位相  $\omega t_r$  と, イオンに再結合する瞬間の電子の運動エネルギー  $K$  を示す. 電子の運動エネルギーは, ポンデロモータYPテンシヤル  $U_p$  で規格化されているエネルギー保存則  $\hbar\omega_x = K + I_p$  を, 高次高調波の瞬間角周波数  $\omega_x(t_r)$  が時々刻々,

$$\omega_x(t_r) = K(t_r)/\hbar + I_p/\hbar \quad (2)$$

という式を満たして変化すると考えれば, 再衝突する電子波束の瞬間周波数が原子近傍に形成される振動双極子の瞬間周波数に対応して, その振動双極子が高次高調波の光電場を放出するとも理解できる.

スリーステップモデルによって, (i) 高次高調波発生の素過程は光電場の一周期以下の現象であること, (ii) 発生する高次高調波は再衝突する電子の運動エネルギーの変化に対応して瞬間周波数が時間的に変化していること (図 2), (iii) 高次高調波の最大光子エネルギー (カットオフ) は  $\hbar\omega_{\text{cutoff}} = 3.17U_p + I_p$  で与えられることがただちにわかる. 特に, (i) の特徴は, 高次高調波がレーザー電場の 2 分の 1 周期ごとに発生していることを意味しており, そのままアト秒パルス列となっていることが示唆される. 電場波形の向きが 2 分の 1 周期ごとに反転していることを考えれば, 周波数領域では,  $\hbar\omega_x = (2n+1)\hbar\omega$ , すなわち奇数次の高調波成分から構成されることもわかる. また, (ii) の特徴は, シンクロトロン放射光では相対論的な電子の運動によって運動エネルギーの  $10^{-6}$  程度のフォトンエネルギーをもつ光子が放出されるのに対して, 電子の運動エネルギーがそのままフォトンエネルギーに変換される点が大きな違いである. これは, 高次高調波の発生機構が原子の励起 (イオン化) と脱励起 (再結合) を伴う量子力学的な現象に起因しているためである.

## 2. アト秒光科学

高次高調波発生のスリーステップモデルは、光電場の瞬時値によってアト秒スケールでの電子の古典的な運動が確定するという点からもわかるように、高次高調波によるアト秒パルス光発生の可能性を示唆していた。しかし、実際にアト秒光パルスが実験的に確認されたのは2001年のことであった<sup>9)</sup>。その理由は、通常の高強度レーザーパルスでは、高次高調波発生に十分な光強度は容易に実現できるものの、光位相を制御された数サイクルの電場振動から構成される極短パルスを発生させるためには、多くの技術革新が必要であったためである。

はじめてアト秒パルスの発生と計測に成功したのは、当時ウィーン工科大にいたF. Krauszらのグループである<sup>9)</sup>。彼らは、希ガス充填された中空ファイバーによるサブ mJ パルスのパルス圧縮手法<sup>10)</sup>と、T. W. Hänsch と J. L. Hallらによって確立されたキャリアエンベロープ位相 (carrier-envelope phase; CEP. 光パルスの電場包絡線に対する搬送波位相) の安定化技術<sup>11)</sup>を組み合わせることにより、高次高調波を発生しうる高いピーク出力をもち、CEP 安定で数サイクルの時間幅をもつ高強度極短パルスの発生に成功した。そして、スリーステップモデルから推測されるように、カットオフ近傍の高調波スペクトルを薄膜フィルターで選択することによって、チャープの少ないアト秒極紫外パルス発生を実現した。

アト秒パルスの発生と計測は現在でもかなりの技術的困難を伴っており、市販装置を並べた程度ではなかなか実現できない。それでも、最初のアト秒パルス発生の報告以来着実に応用例は広がっており、アト秒スケールでの超高速分光法や光電場で加速された電子波束を利用したアト秒計測法など、多くの利用研究が広がっている。以下では、アト秒計測手法と高次高調波の利用研究の例を概説する。

### 2.1 高次高調波を用いた非線形分光

可視域のフェムト秒レーザーを用いた超高速計測では、非線形結晶を用いた波長変換が広く用いられている。それは、フェムト秒レーザーパルスがエレクトロニクスの応答速度の限界である 100 GHz をはるかに超える帯域 (～数 100 THz) をもっているためである。そのため超短パルス光の時間波形の測定には、干渉計と非線形光学過程による時間ゲートを組みあわせた測定手法が広く用いられている。しかし、高次高調波の強度が可視域のレーザーに比べてきわめて低いことと、透明な非線形媒質がほとんど存在しないことから、極紫外における非線形光学過程を利用することは現状では非常に難しい。唯一の例外は、イオン化ポテンシャルよりも光子エネルギーの小さい真空紫外の

高次高調波に対する原子の二光子イオン化を用いた電場自己相関測定である<sup>12)</sup>。この手法では、原子が一光子でイオン化できないことから、二光子イオン化に伴う微弱なイオン (あるいは光電子) の信号をバックグラウンドフリーで検出できる。そのため、可視域で用いられている二倍波発生に基づく自己相関測定と等価な測定を行うことができる。特に、二光子イオン化に伴う光電子スペクトルを観測することにより、周波数分解光ゲート法 (frequency resolved optical gating; FROG) を構成することができるため、フェムト秒からアト秒領域での極紫外パルスの時間波形の測定が実証されている<sup>13,14)</sup>。また、分子の二光子解離においては、2つの時間遅延のついたアト秒パルス列を用いることによって解離イオンの収量の周期的変調から二光子過程をスペクトル的に分解する興味深い手法も報告されている<sup>15)</sup>。

### 2.2 アト秒ストリーク法

前述した短波長域での非線形光学手法は、反応断面積が比較的大きく、かつ、高いフォトンフラックスの得られる紫外から真空紫外域での実験に限られていた。極紫外 (光子エネルギー 10～120 eV) よりも短波長の高次高調波に関しては、広帯域で非共鳴な非線形現象はきわめて少なく、フォトンフラックスの低下に伴い二光子イオン化などの非線形現象を利用することは困難である。

この問題を解決したのが、アト秒ストリーク法である<sup>16,17)</sup>。この手法では、まず対象となる原子を、高次高調波で発生した短波長光パルスで一光子イオン化させる。このとき、光子エネルギー  $\hbar\omega_x$  はイオン化ポテンシャル  $I_p$  より十分大きいとする。イオン化の瞬間に外場がなければ、光電子スペクトルはイオン化に用いられた極紫外パルスのスペクトルと同一になる。イオン化の瞬間に振動する電場が印加されていると、光電子はその外場で加速されて、最終的にイオン化した瞬間の初期運動エネルギーと異なる運動エネルギーをもつ。この運動量のずれは、古典的な運動方程式を解くことにより、イオン化した瞬間のベクトルポテンシャルに等しいことが示される。したがって、短波長光のパルスと、電子を加速する光電場のタイミングを徐々に変えていくことによって、光電子スペクトルがシフトしたり、広がったりする。このような低周波数の光電場による位相敏感な電子加速は、いわゆるストリークカメラと概念的に類似している。つまり、フォトカソードがイオン化する原子に、電子を加速する高周波電場が数フェムト秒の周期で振動する光電場に対応する。また、通常のストリークカメラでは、電場掃引された電子の空間的な広がりイメージング型検出器で観測するのに対して、本手法では光

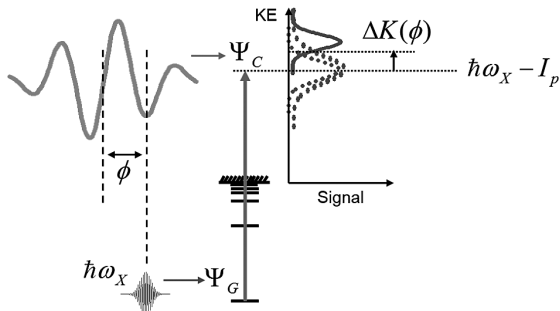


図3 アト秒ストリーク法の原理。

電子の運動量空間での広がりを見る。このような対応関係から、本手法は「アト秒ストリーク法」とよばれている。

初期のアト秒ストリーク法の提案では、観測される光電子スペクトルに、一光子イオン化を起こすアト秒パルスの時間波形（時間幅，チャープ）がマップされていることが示されたが、任意のアト秒パルスの時間波形を再構築する方法は示されなかった。光パルスによる電子の加速は、物質波としての電子波束の位相が振動電場で変調されることにほかならない。そのため、アト秒ストリーク法で得られるさまざまな遅延での光電子スペクトルから構成される二次元画像は、前述したFROG法において、ゲート関数を周期的な位相変調としたものに相当する。それを利用して、可視域で考案されたFROG法のアルゴリズムを光電子スペクトル画像に適用させることによって、極紫外域のアト秒光パルスの時間波形を精密に測定する手法が実現した。本手法は、FROG-CRAB法（frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts）とよばれており、極紫外域のアト秒パルス波形を測定する一般的な手法となっている<sup>18)</sup>。現在、世界最短のアト秒パルスの時間幅は、FROG-CRAB法を拡張したPROOF法（phase retrieval by omega oscillation filtering）によって測定された67アト秒である<sup>19)</sup>。本手法によって、今後、1原子単位の時間スケールを下回るアト秒パルス発生が期待される。また、光電子を光電場でストリークする手法は、レーザー光電場の直接計測<sup>20)</sup>や、光電子放出におけるわずか20アト秒前後の電子放出時間のずれ<sup>21)</sup>などのアト秒計測にも応用されている。

アト秒ストリーク法の特徴は、一光子イオン化で発生した光電子が振動する光電場で加速される際に、イオン化した瞬間の光電場の位相に応じて異なる運動量をもつことである。そのため、おおざっぱには、光電場の半周期よりも長い時間波形を測定することは難しい。なぜなら、光電場の半周期以上離れた時刻に放出された光電子が同じ終状態に縮退してしまうためである。それに対して、可視光より

も波長の長い赤外・中赤外域での高強度レーザーを用いて光電子をストリークすることにより、より長い時間スケールでのアト秒計測が可能となる。極端な例としては高強度テラヘルツ波を用いた光電子のストリーク実験が行われており、0.5 ps程度の時間窓での時間分解光電子計測が実現している<sup>22, 23)</sup>。

### 2.3 高次高調波をプローブとした光電子分光と吸収分光

高次高調波をプローブとしたポンプ-プローブ法に基づく超高速分光手法は広く行われつつある。代表的なものは、フェムト秒レーザー光で励起された系に、高次高調波によるプローブ光を照射するという実験である。高次高調波の光子フラックスはあまり高くないため、光電子分光が多く用いられる。その場合、高次高調波のスペクトルを多層膜ミラー等の光学素子によってスペクトル制限した後にサンプルへ集光する。近年では、光誘起相転移に伴う電子状態の変化を光電子分光によって直接検出する実験も行われている<sup>24)</sup>。

高次高調波の素過程では、高次高調波を構成するアト秒パルスがレーザー電場の半周期の間隔で発生する。また、それぞれのアト秒パルスを取り出すと、そのスペクトルは連続的になっているはずである。したがって、高次高調波をプローブとして、広いスペクトル範囲にわたって吸収スペクトル（あるいは反射スペクトル）を時間分解測定する実験がいくつか行われている。このような吸収分光は放射光施設において定常的な電子状態を測定するために行われているが、高次高調波を用いることにより、電子状態の超高速変化を追跡することが可能となる。特に、吸収端を利用した分光手法は元素選択性があることから、特定元素の近傍の短距離秩序や着目している原子の価数についての情報を得ることができるため、応用の幅の広い分光手法としての展開が期待されている。これまでに、内殻励起による吸収分光を用いた遷移金属のスピンダイナミクスの観測<sup>25)</sup>や、強レーザー場中の石英におけるアト秒スケールでの吸収端のシフト<sup>26)</sup>など、興味深い現象が観測されている。

### 2.4 高次高調波分光法

高次高調波は、光電場で加速された光電子が基底状態に再結合することによって発生する。衝突する電子波束の運動はレーザー電場で制御されており、図2のような運動エネルギーの時間変化が高調波の時間的な位相構造に投影される。その際に、基底状態の波動関数の形状に関する情報が高次高調波のスペクトル形状に含まれることになる。特に高次高調波発生の理論を近似的に記述することによって、高次高調波スペクトルが電子波動関数の空間的な射影

に相当していることを示すことができる。半古典的な描像では、再衝突する電子の運動エネルギーに対応する物質波の波長が空間分解能を決めるため、100 eV 程度までの高次高調波スペクトルで得られる空間分解能は1 Å程度となる。

通常の高次高調波発生では、空間的な異方性のない希ガス原子が用いられる。それに対して、高強度レーザーを用いて分子の向きをそろえる技術が登場し<sup>27)</sup>、分子軸の向きを選択した条件下での高次高調波発生が可能となった。その結果、さまざまな方向へ配向した分子集団からの高次高調波スペクトルを測定することにより、窒素分子の基底状態の分子軌道イメージングが実現している<sup>28)</sup>。この手法は分子軌道トモグラフィとよばれているが、近年では、これらの実験手法を総称して「高次高調波分光法」(high harmonic spectroscopy)とよぶようになっている<sup>29,30)</sup>。

### 3. 光パラメトリックチャープパルス増幅法

高次高調波の最大光子エネルギーは、 $\hbar\omega_{\text{cutoff}} = 3.17U_p + I_p$ と与えられる。ここで $U_p$ はポンデロモータティブポテンシャルとよばれる量であり、振動電場中での自由電子の平均的な運動エネルギーである。ポンデロモータティブポテンシャルは波長の二乗に比例することから、より長波長のレーザーを用いて高次高調波を発生させれば、そのスペクトル域を極紫外から軟X線へと拡大できる。このような指針は、3ステップモデルが提唱された時期から広く認識されていた。例えばチタンサファイアレーザーの二倍波あるいは三倍波といった短波長光を用いた高次高調波発生実験において、短波長レーザーを用いることによるカットオフエネルギーの低下が観測されている。しかし、長波長域での高強度超短パルスレーザー技術が存在しなかったことにより、長波長レーザーによる高次高調波発生の試みはほとんど行われていなかった<sup>31)</sup>。

その一方で、Ybレーザーなど従来のチタンサファイアレーザーを超える高出力ピコ秒レーザーの登場や、パラメトリック増幅による数サイクルの超短パルス光増幅、さらには、チャープパルスをパラメトリック増幅することによるチャープパルスパラメトリック増幅法(optical parametric chirped pulse amplification; OPCPA)の登場<sup>32)</sup>により、赤外から中赤外域における高強度レーザーによる高次高調波発生が実現した。特に波長3.9 μmの中赤外域での高次高調波発生において、光子エネルギー1.6 keVに及ぶ軟X線発生が報告されている<sup>33)</sup>。

軟X線領域での孤立アト秒パルス発生は、アト秒軟X線分光を実現する上での最重要課題である。孤立アト秒軟X

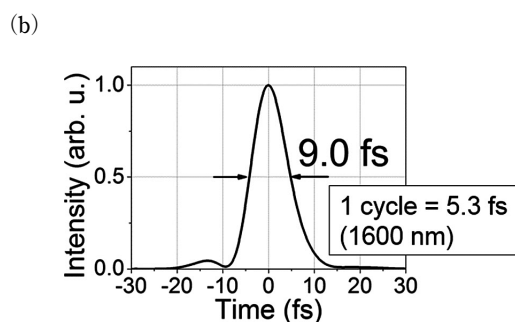
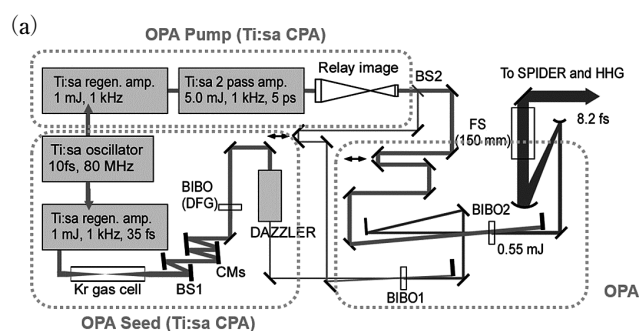


図4 (a) BIBO結晶を用いた赤外光パラメトリックチャープパルス増幅システムの模式図。(b) 周波数分解光ゲート法で再構築されたサブ2サイクルパルスの強度波形。(文献<sup>38)</sup>より引用)

線パルス発生のための最も直接的な方法は、パルス幅数サイクル程度でCEPが安定な高強度レーザーパルスを発生させることである。また、アト秒計測のためには長時間のデータ積算が必要であり、高繰り返しかつ高安定であることが望ましい。図4(a)に、このような目的で東京大学物性研究所において開発された波長1.6 μmにおける高強度サブ2サイクルOPCPA光源の概略図を示す<sup>34)</sup>。このOPCPA光源では、ポンプ光として繰り返し1 kHzで動作するチタンサファイアレーザーのチャープパルス増幅システムの出力光が用いられており、非線形光学結晶としてはBIBO結晶が用いられている。この組み合わせは、BIBO結晶のゼロ分散の半波長が励起波長と一致していることから、中心波長1.6 μm帯において1オクターブを超える利得帯域がある<sup>35)</sup>。シード光としては、チタンサファイアレーザーの再生増幅器からの出力光をガスセル中に導入し、フィラメンテーションによる自己位相変調によって広帯域化し、その差周波をとることで1オクターブを超える赤外白色光を発生させている。また、この差周波過程においてシード光のCEPが受動的に安定化している。この赤外シード光は、音響光学素子に基づくパルス整形素子によって時間的に4 ps程度までストレッチされ、BIBO結晶を用いた二段の光パラメトリック増幅器で0.5 mJ程度まで増幅され、分散媒質によって9 fsまで圧縮される。図4

(b) に得られた赤外極短パルスの強度波形を示す。本光源のひとつの特色は、CEP が受動的に安定化した白色光を光パラメトリック増幅で直接増幅している点である。他の多くの OPCPA 手法では、数サイクルの極短シードパルスを得るには利得帯域幅が不足するため、増幅後に自己位相変調などの非線形光学過程を利用してパルス圧縮を行う。この際に、増幅に伴う強度ゆらぎが CEP のゆらぎにつながるという問題がある。本光源の CEP の安定性はショットバイショットで 160 mrad (rms) である。ビーム形状はほぼ回折限界であり、高次高調波発生のための緩やかな集光 ( $F/50$ ) においても、 $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> 程度の集光強度が実現可能である。このような光源が実現したことにより、チタンサファイアレーザーに匹敵する高強度性、パルスエネルギー安定性、CEP 安定性が赤外域の極短パルスレーザーにおいて初めて実現された。

#### 4. 軟 X 線領域での高次高調波発生

図 4 に高強度赤外 OPCPA 光源を用いて発生した高次高調波のスペクトルを示す<sup>36)</sup>。高次高調波のカットオフ光子エネルギーは 330 eV に達しており、炭素の K 吸収端 (284 eV) を超えて「水の窓」領域に十分入っている。CEP を変化させることによって、スペクトルのピークが 180 eV から 280 eV へと大きく明瞭にシフトしているのがみられる。これらのスペクトル領域の特徴は、レーザー電場の半周期ごとに異なる光強度で高次高調波が発生していることに相当し、Half-cycle cutoff (HCO) とよばれる<sup>37)</sup>。HCO ピーク直下のスペクトル成分は原理的に 1 つのアト秒パルスから構成されており、スペクトル選択を行うことにより孤立アト秒軟 X 線パルスを得ることができると知られている。また、高次高調波を広帯域プローブ光として用いる際は、サンプルでの吸収 (あるいは反射) の後に置かれた分光器でスペクトルを測定すればよいので、炭素 K 吸収端でのアト秒軟 X 線吸収分光まであと一歩といえる。

チタンサファイアレーザーによる高強度超短パルスレーザー技術の進展とともに発達してきた高次高調波によるコヒーレント短波長光発生技術は、CEP 制御された極短パルス光源の実現によって、極紫外域におけるアト秒パルス発生とその応用につながった。その後、光パラメトリックチャープパルス増幅法 (OPCPA 法) の登場により、赤外から中赤外域での超高速分光に十分な安定性と繰り返しをもつ高強度極短パルスレーザーが実現した。現在、アト秒軟 X 線パルスのスペクトル帯域は「水の窓」に到達しており、フェムト秒からアト秒スケールでの超高速軟 X 線吸収

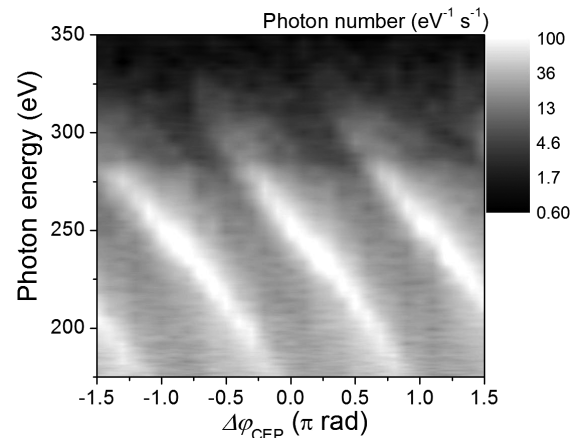


図 5 赤外域の高強度極短パルスレーザーで発生した軟 X 線領域の高次高調波スペクトルの CEP 依存性。(文献<sup>40)</sup>より引用)

分光への道が開かれつつある。また、現在の高強度レーザー技術をさらに推し進めることにより、アト秒軟 X 線パルスのスペクトル範囲としては「水の窓」をすべてカバーする範囲 (光子エネルギー 284~540 eV) 程度への拡大は十分可能であろう。

現在、アト秒光科学における高強度レーザーの標準的な繰り返しは 1 kHz であり、パルスエネルギーは数 mJ オーダーである。これは平均出力としては数ワットに相当し、大学規模の実験室では容易に扱える出力である。しかし、今後、超高速軟 X 線分光をはじめとするアト秒光科学をさらに進展させるためには、高次高調波のフォトンフラックスの増大が必須である。現在、半導体レーザー励起固体レーザーの平均出力は 1 kW のオーダーにすでに到達しており、産業用途が広がりつつある。このようなレーザーを高次高調波発生のための光源に組み込むことにより、現状のフォトンフラックスを将来的には 2 桁程度増大させることは可能であろう。このような高平均出力レーザーの出現により、超高速軟 X 線分光が原理実証の段階から物性研究への応用段階へ進むことが期待できる。高繰り返しによる超高速分光に適した高次高調波技術と、単一ショットで高いフォトンフラックスをもつ X 線自由電子レーザー技術は、その特性と応用を考えるときわめて相補的な光源といえる。ともに超高速性をもつ短波長コヒーレント光源として、光技術の協力と融合による短波長領域の新しい光科学の進展を期待したい。

#### 文 献

- 1) A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer and C. K. Rhode: "Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases," J. Opt. Soc. Am. B, 4 (1987) 595-601.

- 2) M Ferray, A L'Huillier, X F Li, L A Lompre, G Mainfray and C Manus: "Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases," *J. Phys. B*, **21** (1988) L31-L35.
- 3) P. B. Corkum: "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization," *Phys. Rev. Lett.*, **71** (1993) 1994-1997.
- 4) T. Brabec and F. Krausz: "Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics," *Rev Mod. Phys.*, **72** (2000) 545-591.
- 5) P. B. Corkum and F. Krausz: "Attosecond science," *Nat. Phys.*, **3** (2007) 381-387.
- 6) M. V. Ammosov, N. B. Delone and V. P. Krainov: "Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field," *Soviet Phys. JETP*, **64** (1986) 1191-1194.
- 7) L. D. Landau and L. M. Lifshitz: *Quantum Mechanics*, 3rd ed. (Butterworth-Heinemann, 1976).
- 8) M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L'Huillier and P. B. Corkum: "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields," *Phys. Rev. A*, **49** (1994) 2117-2132.
- 9) M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum and F. Krausz: "X-ray pulses approaching the attosecond frontier," *Science*, **291** (2001) 1923-1927.
- 10) M. Nisoli, S. De Silvestri and O. Svelto: "Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique," *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996) 2793-2795.
- 11) D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall and S. T. Cundiff: "Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis," *Science*, **288** (2000) 635-639.
- 12) Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa and S. Watanabe: "27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics," *Opt. Lett.*, **23** (1998) 64-66.
- 13) T. Sekikawa, T. Kanai and S. Watanabe: "Frequency-resolved optical gating of femtosecond pulses in the extreme ultraviolet," *Phys. Rev. Lett.*, **91** (2003) 10392.
- 14) T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai and S. Watanabe: "Nonlinear optics in extreme ultraviolet," *Nature*, **432** (2004) 605-608.
- 15) Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino, S. Saugout, K. Yamanouchi and K. Midorikawa: "Nonlinear Fourier-transform spectroscopy of D<sub>2</sub> using high-order harmonic radiation," *Phys. Rev. A*, **82** (2010) 013421.
- 16) J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Yu. Ivanov, F. Krausz and P. B. Corkum: "Attosecond streak camera," *Phys. Rev. Lett.*, **88** (2002) 173903.
- 17) M. Kitzler, N. Milosevic, A. Scrinzi, F. Krausz and T. Brabec: "Quantum theory of attosecond XUV pulse measurement by laser dressed photoionization," *Phys. Rev. Lett.*, **88** (2002) 173904.
- 18) Y. Mairesse and F. Quéré: "Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts," *Phys. Rev. A*, **71** (2005) 011401(R).
- 19) K. Zhao, Q. Zhang, M. Chini, Y. Wu, X. Wang and Z. Chang: "Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch," *Opt. Lett.*, **37** (2012) 3891-3893.
- 20) E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuska, V. Yakovlev *et al.*: "Direct measurement of light waves," *Science*, **305** (2004) 1267-1269.
- 21) M. Schultze, M. Fieß, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman *et al.*: "Delay in photoemission," *Science*, **328** (2010) 1658-1662.
- 22) B. Schutte, U. Fruhling, M. Wieland, A. Azima and M. Drescher: "Electron wave packet sampling with laser-generated extreme ultraviolet and terahertz fields," *Opt. Express*, **19** (2011) 18833-18841.
- 23) K. Kitano, N. Ishii, N. Kanda, Y. Matsumoto, T. Kanai, M. Kuwata-Gonokami and J. Itatani: "Orientation of jet-cooled polar molecules with an intense single-cycle THz pulse," *Phys. Rev. A*, **88** (2013) 061405(R).
- 24) K. Ishizaka, T. Kiss, T. Yamamoto, Y. Ishida, T. Saitoh, M. Matsunami, R. Eguchi, T. Ohtsuki, A. Kosuge, T. Kanai, M. Nohara, H. Takagi, S. Watanabe and S. Shin: "Femtosecond core-level photoemission spectroscopy on 1T-TaS<sub>2</sub> using a 60-eV laser source," *Phys. Rev. B*, **83** (2011) 081104(R).
- 25) E. Turgut, C. La-O-Vorakiat, J. M. Shaw, P. Grychtol, H. T. Nembach *et al.*: "Controlling the competition between spin transport and optically induced demagnetization in magnetic multilayers," *Phys. Rev. Lett.*, **110** (2013) 197201.
- 26) M. Schultze, E. M. Bothschafter, A. Sommer, S. Holzner, W. Schweinberger *et al.*: "Controlling dielectrics with the electric field of light," *Nature*, **493** (2013) 75-78.
- 27) J. J. Larsen, H. Sakai, C. P. Safvan, I. Wendt-Larsen and H. Stapelfeldt: "Aligning molecules with intense nonresonant laser fields," *J. Chem. Phys.*, **111** (1999) 7774-7781.
- 28) J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum and D. M. Villeneuve: "Tomographic imaging of molecular orbitals," *Nature*, **432** (2004) 867-871.
- 29) T. Kanai, S. Minemoto and H. Sakai: "Quantum interference during high-order harmonic generation from aligned molecules," *Nature*, **435** (2005) 470-474.
- 30) S. Haessler, J. Caillat, W. Boutu, C. Giovanetti-Teixeira, T. Ruchon *et al.*: "Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets," *Nat. Phys.*, **6** (2010) 200-206.
- 31) B. Shan and Z. Chang: "Dramatic extension of the high-order harmonic cutoff by using a long-wavelength driving field," *Phys. Rev. A*, **65** (2001) 011804(R).
- 32) S. Witte and K. S. E. Eikema: "Ultrafast optical parametric chirped-pulse amplification," *IEEE Sel. Top. Quant. Electron.*, **18** (2012) 296-307.
- 33) T. Popmintchev, M.-C. Chen, D. Popmintchev, P. Arpin, S. Brown *et al.*: "Bright coherent ultrahigh harmonic generation in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers," *Science*, **336** (2012) 1287-1291.
- 34) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe and J. Itatani: "Sub-two-cycle, carrier-envelope phase-stable, intense optical pulses at 1.6 μm from a BiB<sub>3</sub>O<sub>6</sub> optical parametric chirped pulse amplifier," *Opt. Lett.*, **37** (2012) 4182-4184.
- 35) I. Nikolov, A. Gaydardzhiev, I. Buchvarov, P. Tzankov, F. Noack and V. Petrov: "Ultrabroadband continuum amplification in the near infrared using BiB<sub>3</sub>O<sub>6</sub> nonlinear crystals pumped at 800 nm," *Opt. Lett.*, **32** (2007) 3342-3344.
- 36) N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe and J. Itatani: "Carrier-envelope phase-dependent high harmonic generation in the water window using few-cycle infrared pulses," *Nature Commun.*, **5** (2014) 1-6.
- 37) C. A. Haworth, L. E. Chipperfield, J. S. Robinson, P. L. Knight, J. P. Marangos and J. W. G. Tisch: "Half-cycle cutoffs in harmonic spectra and robust carrier-envelope phase retrieval," *Nat. Phys.*, **3** (2007) 52-57.

(2014年6月29日受理)