1Pp074

誘起双極子を制御した原子分子気体における高次高調波発生

（東大院理）　○野村雄高、峰本紳一郎、金井恒人、酒井広文

気体の原子や分子に高強度フェムト秒レーザー光を照射すると、基本波の奇数倍の周波数を持つ高次高調波が放射される。近年、高次高調波は、真空紫外領域から軟 X 線領域における超短パルスコヒーレント光源として注目されており、その高効率化・短波長化を目指して実験的・理論的に多くの研究がなされている。特に、レーザー光と媒質との相互作用長を変えるなど、マクロな位相整合を利用して高調波発生の高効率化・高出力化を目指す研究は多い。その一方で、原子分子内の双極子を制御するなど、ミクロな位相整合を用いる研究はほとんどない。本研究では、基本波より長波長のナノ秒レーザー光を併用し、気体媒質内の双極子に変調を加えた状態で高調波を発生させ、その特性を調べた。

真空装置中に噴出した Ar および N_2 ガスジェットに直線偏光したフェムト秒 Ti:sapphire レーザー光（パルス幅 τ ～50 fs、強度 I～2.5×10^{14} W/cm^2）を照射し、斜入射分光器と電子増倍管を用いて、発生した高調波のスペクトルを測定した。さらに、ナノ秒 Nd:YAG レーザー光（τ ～12 ns、I～$3\text{-}9\times10^{11}$ W/cm^2）をフェムト秒レーザー光と同時に照射し、スペクトルの変化を調べた。この時、λ/2 波長板を用いてナノ秒レーザー光の偏光を変え、フェムト秒レーザー光の偏光と平行あるいは直交するようにした。今回、ナノ秒レーザー光のエネルギーが高く（数 10 mJ 以上）、散乱光防止用の XUV フィルターの損傷が懸念されたため、その使用を避けた。一方、ナノ秒レーザー光の強度が高すぎると、フェムト秒レーザー光との協調作用により媒質ガスが激しくプラズマ化し、高調波の信号に白色光の信号がノイズとして加わってしまう。このため、使用するナノ秒レーザー光の強度は媒質ガスのプラズマ化が起きない程度に制限した。本実験では Ar ガスの場合 3×10^{11} W/cm^2、N_2 ガスの場合 9×10^{11} W/cm^2 で測定を行った。

Fig. 1 に、フェムト秒レーザー光のみを照射した場合と、それに平行な偏光を持つナノ秒レーザー光を併用した場合の、カットオフ付近の高調波スペクトルをそれぞれ示す。Ar の場合[Fig. 1(a)]、ナノ秒

レーザー光の照射により、各高調波のピークが広がると同時に、中心周波数が低エネルギー側にシフトしているのがわかる。一方、N_2 の場合[Fig. 1(b)]、ピークの広がり、シフトの量ともに Ar より大きい。特に幅の広がりに関しては、Ar ではピークの裾が主に広がっているのに対し[Fig. 1(a)中の矢印]、N_2 の場合はピークそのものも大きく幅が広がっている。また、低エネルギー側へのシフトの量ΔE を見積もったところ、21、23、25 次でそれぞれ Ar では 0.03 eV、0.07 eV、0.06 eV、N_2 では 0.09 eV、0.15 eV、0.21 eV と高次の高調波ほど、ΔE が大きくなる傾向が見られた。一方、偏光を直交させた場合には、スペクトルの広がりは観測されず、中心周波数のシフトΔE も測定誤差の範囲内であった。

高次高調波発生のメカニズムは 3 段階の過程で説明される。すなわち、レーザー電場による自由電子の生成（トンネルイオン化）、自由電子のレーザー電場中での運動、そして電子と親イオンの再結合に伴う高調波の発生である。ナノ秒レーザー光の併用によるスペクトルの変化は、この 3 段階の過程それぞれにおいて変調が加わったことにより引き起こされたと考えられる。特に、ナノ秒レーザー光によりフェムト秒レーザー電場の位相が変調を受け、自由電子の軌跡が変化し、自由電子がレーザー電場から受け取るエネルギーが大きく変化することがスペクトルの変化の主な原因と予測される。また、ナノ秒レーザー光の電場によって電子の感じるポテンシャルが歪むため、イオン化の始状態と終状態が変化する、すなわち、イオン化および再結合の際のポテンシャルが変化することも原因の一つと考えられる。講演では、上述した 2 つの過程について詳しく議論する。

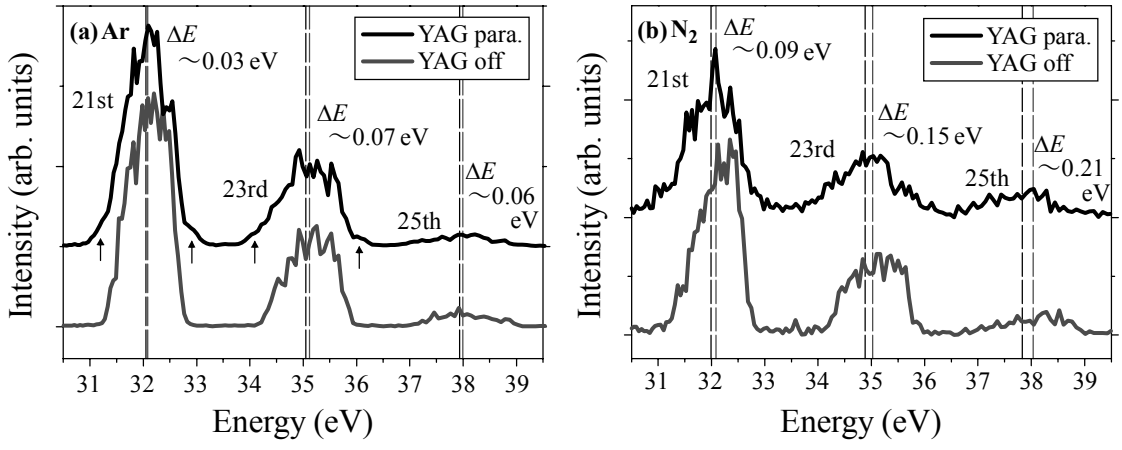

Fig. 1. Typical harmonic spectra generated in (a) Ar and (b) N_2 at 2.5×10^{14} W/cm^2 with and without YAG pulses. Dashed lines indicate the weighted centers for respective harmonics.