

はじめに

“より速い自然現象の理解と制御”を目指して、短パルスレーザーの開発とそれに関連する様々な研究が近年盛んに行われています。今世紀に入り、パルス幅はフェムト (10^{-15}) 秒領域を超え、アト (10^{-18}) 秒領域へ突入しました。現時点においては、約 80 アト秒の単一パルスの生成が報告されるに至っています。水素原子の基底状態の古典的な周期軌道は約 150 アト秒であるので、こうしたアト秒パルスの登場は、原子・分子内の電子が時々刻々運動する様子の実時間分析、さらには電子状態を制御という、原子・分子・光科学の新しいパラダイムが開けたことを意味します。実際に、アト秒パルスを利用した物質中の電子状態の実時間分析についての先駆的な研究が行われ始め、今後もますます発展していくものと期待されています。

こうした状況の下、平成 19 年度日本学術振興会アメリカ合衆国との共同研究として「**アト秒光パルスの生成と原子分子ダイナミクスの実時間分析への応用**」が採択されました。本共同研究では、「**超短**」(カンザス州立大, Chang)「**超高繰り返し**」(電通大, 桂川)「**超高強度**」(理研, 緑川)というそれぞれ異なる優れた特徴をもったアト秒パルス光源の開発・計測を目指す日米の 3 つの実験グループと「**電子間の相互作用**」(電通大, 渡辺, 森下)「**光と電子の相互作用**」(カンザス州立大, Lin) の 2 つの重要な観点からアト秒領域の超高速過程の深い理解を目指す日米の 2 つの理論グループが融合して連携と協力を培い、光と物質の相互作用の新しい知見を探求すると共に、次世代基盤技術の開拓を目指して行われました。また、学位取得直後の博士研究員、博士前期および後期過程の大学院生の交流を積極的に行うことによって次世代の科学を担う研究者の育成を図ることも目標としました。

具体的には、日米の実験および理論の研究者間の相互に訪問しあい、情報・技術交換を行いました。日本国内においても、理研のグループと電通大のグループの間で、若手メンバーを中心に適宜訪問しあってセミナーを開催し、情報交換や今後の課題を検討しました。本共同研究は、日米双方のグループにとって、アト秒科学のさらなる発展へのステップとなったものと思います。

このような有意義な共同研究を実施するにあたり、参加者の皆様は勿論のこと、多くの方々のご支援をいただきました。松澤通生先生(電気通信大学名誉教授)、渡辺信一先生(電気通信大学教授)には、たくさんの応援を頂きました。松澤通生先生と Tulane 大学 J.H. McGuire 先生の間で行われた学術振興会による日米共同研究「Correlation Effects in Collision Dynamics」(平成 3, 4 年度)、同じく「Collision Dynamics of Doubly Excited Atoms and Other Coulombic Three Body Systems」(平成 6, 7 年度)は、原子物理分野における日米間交流の契機となりました。また、渡辺信一先生によって行われました学術

振興会による日米共同セミナー「強光子場中の原子過程と関連の多体効果」(平成16年度)では, 本共同研究の日米双方の主要メンバーが参加し, アト秒パルスの生成とその応用がメインピックスとしてとりあげられ, アト秒科学における実験・理論相互の意見・技術交換を通じた連携の重要性が認識されるようになり, 本共同研究の提案に至りました. 本共同研究が有意義に行えたのも, 日米の原子分子光物理の交流に対する両先生のご尽力の賜物であります. 本共同研究が, 次世代の科学へのさらなる発展の契機としたいと思えます. そして, 本共同研究の申請に関してレーザー技術の詳細を教えてくださいました増子裕紀博士, 終始ご理解ご支援いただいた, 緑川克美先生, 桂川眞之先生, 事務作業でお手伝いいただいた, 八木純子さん, 伊藤順子さんに感謝いたします.

この報告書では, 本共同研究についての日米の参加メンバーリスト, 交付決定額, 日本側メンバーによる関連論文を掲載しました.

平成21年3月

日本側共同研究代表者

森下亨 (電気通信大学 量子・物質工学科)

参加メンバーリスト (所属は、共同研究開始当時のもの)

【日本側】

森下亨 (代表, 電気通信大学)

渡辺信一 (電気通信大学)

緑川克己 (理化学研究所)

須田亮 (理化学研究所)

桂川眞之 (電気通信大学)

加来昌典 (宮崎大学)

高橋栄治 (理化学研究所)

鈴木隆行 (電気通信大学)

豊田広大 (電気通信大学)

松永浩和 (電気通信大学)

【アメリカ側】

Chii-Dong Lin (Principal Investigator, Kansas State University)

Zhenghu Chang (Kansas State University)

Anh Thu Le (Kansas State University)

Hiroki Mashiko (Kansas State University)

Chengquan Li (Kansas State University)

交付決定額

	直接経費	間接経費	合計
平成19年度	2,500,000 円	0 円	2,500,000 円
平成20年度	2,500,000 円	0 円	2,500,000 円

日本側研究者訪問

平成 19 年度

氏名・所属	期 間 (現地到着日～現地出発日)	主たる訪問先
森下亨・電気通信大学	平成 19/8/6～8/31	カンザス州立大学
桂川眞行・電気通信大学	平成 19/8/22～8/26	カンザス州立大学
鈴木隆行・電気通信大学	平成 19/8/18～8/26	カンザス州立大学
渡辺信一・電気通信大学	平成 20/1/12～1/18	カンザス州立大学
緑川克美・理化学研究所	平成 20/3/9～3/12	カンザス州立大学
豊田広大・電気通信大学	平成 20/3/3～3/11	カンザス州立大学
加来昌典・宮崎大学	平成 20/3/27-3/30	電気通信大学・日本大学

平成 20 年度研究参加者(日本側)

氏名・所属	期 間 (現地到着日～現地出発日)	主たる訪問先
鈴木隆行・電気通信大学	平成 20/5/3～5/10	国際会議(CLEO/QELS08) サンノゼ
森下 亨・電気通信大学	平成 20/7/18～8/29	カンザス州立大学
須田 亮・理化学研究所	平成 20/9/28～10/2	カンザス州立大学
渡辺 信一・電気通信大学	平成 20/11/22～11/30	国際会議(AISAMP8) オーストラリア

関連論文

(A) 超高繰り返し超短パルス関連

1. “Dual-frequency pulsed laser with an accurate gigahertz-beat note”,
Y. Fujii and M. Katsuragawa,
Opt. Lett. 32, 3065 (2007).
マッハツェンダーRF変調器を用いた二周波数発振注入同期レーザーを開発し、その性能を系統的に報告した。周波数差がGHzの領域で、かつRF発振器の精度をもつ二周波数レーザー発振を実現できることを示した。
2. “Dual-wavelength injection-locked pulsed laser with highly predictable performance”,
T. Onose and M. Katsuragawa,
Opt. Express 15, 1600 (2007).
二波長発振注入同期レーザーの制御性について、系統的な報告を行った。比較的単純なモデルで計算されるレーザーの出力特性が実際のレーザーの性能を極めてよく再現することを示した。
3. “ラマン過程の断熱操作と超短パルス光発生制御技術への展開”
桂川真幸
応用物理 76, 125 (2007) .
遠共鳴三準位系におけるラマンコヒーレンスの断熱生成と、その非線形光学過程への応用について述べた。断熱励起を用いることで最大に近いラマンコヒーレンスが生成され、位相整合に制約されない非線形光学過程が可能になることを示した。例として、赤外から真空紫外近傍の広帯域にわたるラマンサイドバンド光の高効率同軸発生や、それらのフーリエ合成によるユニークな超短パルス光の形成に関する研究を紹介した。
4. “Octave-Spanning Raman Comb with Carrier Envelope Offset Control”,
T. Suzuki, M. Hirai, and M. Katsuragawa,
Phys. Rev. Lett. 101, 243602 (2008) .
基本波と倍波を同時に励起光として用いることで、オクターブを超える帯域に渡るラマンサイドバンド発生をデモした。さらに、発生させたラマンサイドバンド光のCEOが自動的に制御できることを示した。
5. “Stable confinement of nanosecond laser pulse in an enhancement cavity”
R. Tanaka, T. Matsuzawa, H. Yokota, T. Suzuki, Y. Fujii, A. Mio, and M.

Katsuragawa,

Opt. Express 16, 18667 (2008).

ナノ秒の注入同期レーザー光をファイネスの高い外部共振器に安定に閉じ込める方法の提案と実験によるデモを行った。理論的に予測される値まで、レーザー光の高強度化が可能で、それが安定に実現されることを示した。

6. “Spectral phase measurements for broad Raman sidebands by using spectral interferometry”,

T. Suzuki, N. Sawayama, and M. Katsuragawa,

Opt. Lett. 33, 2809 (2008).

極めて離散性の高いスペクトルをもつ超短パルス光のスペクトル位相を評価する方法の提案と、実際に実験による実証を行った。計測はスペクトル干渉の原理に基づいている。

(B) 超高強度レーザー，高次高調波，アト秒パルス列関連

7. “Dramatic enhancement of high-order harmonic generation”,

E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa,

Phys. Rev. Lett. 99, 053904 (2007).

混合ガスをもちいることによって、XUV 光を励起レーザー光と同時に照射することによる高次高調波の飛躍的増大効果が、初めて実証された。

8. “Destructive interference during high harmonic generation in mixed gases”,

T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa,

Phys. Rev. Lett. 98, 153904 (2007).

高次高調波発生において、わずかにイオン化ポテンシャルの異なるガスを混合して用いることにより、高調波同士の干渉効果を利用して光電場中での電子の運動時間を計測することに成功した。

9. “Optimization of hollow fiber pulse compression using pressure gradients”,

M. Nurhuda, A. Suda, M. Kaku, and K. Midorikawa,

Appl. Phys. B 89, 209–215 (2007).

SPM を利用する圧力勾配を持つ中空ファイバーパルス圧縮の最適化のためにメカニズムを検証した結果、ファイバー入射口のレーザー強度が MPI 閾値以下でなければ、イオン化のためにスループットが大きく減少することがわかった。またテラワットレベルを達成するための指針を示した。

10. “Attosecond nonlinear Fourier transformation spectroscopy of CO₂ in extreme ultraviolet wavelength region”,
T. Okino, K. Yamanouchi, T. Shimizu, R. Ma, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa,
J. Chem. Phys. 129, 161103 (2008).
アト秒パルス列を CO₂ 分子に照射し, その解離フラグメントの自己相関時間波形をフーリエ変換することにより XUV 領域での 2 光子吸収過程を明らかにした.
11. “Two-photon double ionization of helium: An experimental lower bound of the total cross section”,
P. Antoine, E. Fomouo, B. Piraux, T. Shimizu, H. Hasegawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa,
Phys. Rev. A 78, 023415 (2008).
He 原子の 2 光子 2 重電離過程の断面積の絶対値をより正確に求めるため, 1 光子電離過程との比較を利用することにより実験値とのより一致が得られた.
12. “Pointing stabilization of a high-repetition-rate high-power femtosecond laser for intense few-cycle pulse generation”
T. Kanai, A. Suda, S. Bohman, M. Kaku, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa
Appl. Phys. Lett. 92, 061106 (2008)
高繰り返し高強度フェムト秒レーザー用のビームポインティング安定化システムを開発した. 中空ファイバーパルス圧縮器の入り口におけるビーム位置を検出しフィードバック制御することで, そのふらつきを $\pm 110 \mu\text{m}$ から $\pm 4 \mu\text{m}$ 以下に抑制した. その結果, 出力エネルギーとスペクトル変動が改善され, 安定した数サイクルパルスの発生が可能となった.
13. “Generation of 5 fs, 0.5 TW pulses focusable to relativistic intensities at 1 kHz”,
S. Bohman, A. Suda, M. Kaku, M. Nurhuda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa
Opt. Express 16, 16684 (2008).
圧力勾配中空ファイバーを用いたパルス圧縮によって, 5 fs, 0.5 TW の数サイクルパルスを 1 kHz, で発生できることを実証した. ファイバー出射後のビームは回折限界程度まで集光することができ $5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ のピーク強度が得られた.
14. “Auto-cleaning of deposited tin debris in a laser-produced plasma extreme ultraviolet source by using a liquid jet target containing tin chloride”,
M. Kaku, S. Suetake, Y. Senba, M. Katto, S. Kubodera,

Appl. Phys. B 93, 361 (2008).

レーザープラズマ EUV 光源のターゲット媒質として塩化スズ溶液を用いることによって、1%以上の EUV 変換効率を達成すると共に、デブリの堆積と塩素によるエッチング効果をバランスさせることによって、光学系へのデブリの付着が抑制されることを実証した。

15. “Suppression of suprathreshold ions from a colloidal microjet target containing SnO₂ nanoparticles by using double laser pulses”,

T. Higashiguchi, M. Kaku, M. Katto, and S. Kubodera,

Appl. Phys. Lett. 91, 151503 (2007).

酸化スズナノ粒子コロイドターゲットを用いるレーザープラズマ EUV 光源において、ダブルパルス照射方式を用いることによって、EUV 変換効率を増加させると共に、イオンデブリを抑制することが可能であることを実証した。

16. “Deposited debris characteristics and its reduction of a laser-produced plasma extreme ultraviolet source using a colloidal tin dioxide jet target”,

M. Kaku, S. Suetake, Y. Senba, S. Kubodera, M. Katto, and T. Higashiguchi,

Appl. Phys. Lett. 92, 181503 (2008).

酸化スズナノ粒子コロイドターゲットを用いるレーザープラズマ EUV 光源において、熱エネルギーを用いることによって、in-situ で光学系に堆積するデブリを低減することができることを実証した。

(C) 強レーザー場中のアト秒ダイナミクス関連

17. “Analysis of two-dimensional high-energy photoelectron momentum distributions in the single ionization of atoms by intense laser pulses”,

Z. Chen, T. Morishita, A.T. Le, and C.D. Lin,

Phys. Rev. A 76, 043402 (2007).

高強度レーザーパルスによる原子の光電子スペクトルを強光子場近似による計算結果に基づき分析を行った。スペクトルの高エネルギー部分から、原子イオンによる電子の弾性散乱断面積のボルン近似による値が得られることがわかった。

18. “Siebert-state expansion in the Kramers-Henneberger frame: Interference substructure of above-threshold ionization peaks in the stabilization regime”,

K. Toyota, O.I. Tolstikhin, T. Morishita, and S. Watanabe,

Phys. Rev. A 76, 043418 (2007).

極強度高周波レーザーによる 1 次元原子のイオン化スペクトルに関して、

Kramers-Henneberger 描像に基づく理論的研究を行った。イオン化の飽和が起きる極強度領域において、異なる時刻に生成される放出電子の量子干渉に起因する、超閾イオン化ピークの新奇な構造を見出した。

19. “Potential for ultrafast dynamic chemical imaging with few-cycle infrared lasers”,
T. Morishita, A.-T. Le, Z. Chen, and C.D. Lin,
New J. Phys. 10, 025001 (2008) .
高強度レーザーパルスによる分子の光電子スペクトルから、分子イオンによる電子の弾性散乱断面積が抽出できることを強光子場近似の範囲で示した。
20. “Accurate retrieval of structural information from laser-induced photoelectron and high-harmonic spectra by few-cycle laser pulse”,
T. Morishita, A.-T. Le, Z. Chen, and C.D. Lin,
Phys. Rev. Lett. 100, 013903 (2008).
高強度超短レーザーパルスによる原子の光電子スペクトルの高エネルギー成分から標的原子イオンによる自由電子の弾性散乱微分断面積が、そして、高次高調波スペクトルから標的イオンによる光再結合断面積高精度で抽出できることを厳密計算結果により示した。これは、数フェムト秒程度の分解能で分子の超高速イメージングの可能性を意味する。
21. “Experimental retrieval of target structure information from laser-induced rescattered photoelectron momentum distributions”,
M. Okunishi, T. Morishita, G. Prümper, K. Shimada, C.D. Lin, S. Watanabe, and K. Ueda,
Phys. Rev. Lett. 100, 143001 (2008).
800nm, 100 fs のレーザーによる Ne, Ar, Xe の光電子スペクトルから、それらのイオンによる自由電子の弾性散乱微分散乱断面積を高精度で抽出できることを実験的に示した。
22. “Large angle electron diffraction structure in laser induced rescattering from rare gases”,
D. Ray, B. Ulrich, I. Bocharova, C. Maharjan, P. Ranitovic, B. Gramkow, M. Magrakvelidze, S. De, I. V. Litvinyuk, A. T. Le, T. Morishita, C. D. Lin, G. G. Paulus, and C. L. Cocke,
Phys. Rev. Lett. 100, 143002 (2008).
7 fs の超短レーザーによる Xe, Kr, Ar の光電子スペクトルから、それらのイオンによ

る自由電子の弾性散乱微分散乱断面積を高精度で抽出できることを実験的に示した.

23. “Retrieval of electron-atom scattering cross sections from laser-induced electron rescattering of atomic negative ions in intense laser fields”,
X. Zhou, Z. Chen, T. Morishita, A.-T. Le, and C. D. Lin,
Phys. Rev. A 77, 053410 (2008).

高強度レーザーによる原子負イオンの光電子スペクトルから, 原子による電子の弾性散乱断面積が精度よく抽出できることを, 厳密数値計算結果により示した.

24. “Extraction of the species-dependent dipole amplitude and phase from high-order harmonic spectra in rare-gas atoms”,
A.-T. Le, T. Morishita, and C. D. Lin,
Phys. Rev. A 78, 023814 (2008).

高強度レーザーによる原子の高次高調波スペクトルから, 原子による電子の光結合断面積, さらには, その位相までもが精度よく抽出できることを, 厳密数値計算結果により示した.

25. “Retrieving photorecombination cross sections of atoms from high-order harmonic spectra”,
S. Minemoto, T. Umegaki, Y. Oguchi, T. Morishita, A.-T. Le, S. Watanabe, and H. Sakai,
Phys. Rev. A 78, 061402 (2008).

800 nm, および 1300 nm の高強度フェムト秒レーザーによる Ar, Kr, Xe の高次高調波スペクトルから, それぞれの原子イオンによる電子の光結合断面積が精度よく抽出できることを実験的に示した.

26. “Interference substructure of above-threshold ionization peaks in the stabilization regime”,
K. Toyota, O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and S. Watanabe,
Phys. Rev. A 76, 043418 (2007).

極強度高周波レーザーによる水素負イオンの光電子スペクトル中の多光子吸収ピークに現れる新規な振動構造を見出し, それが, 異なる時刻に発生する電子波束の量子干渉に起因することを明らかにした.

27. “Origin of species dependence of high-energy plateau photoelectron spectra”,
Z. Chen, A.-T. Le, T. Morishita, and C.D. Lin

J. Phys. B, in press.

強レーザーによる原子の光電子スペクトルの高エネルギー成分における標的原子の依存性について、厳密数値計算と強光子場近似に基づく理論的研究を行った。4Up 以上の高いエネルギーでのスペクトルの構造は、標的原子イオンによる再衝突電子の弾性散乱断面積を用いて説明することができることを示した。

28. “Quantitative rescattering theory for laser-induced high-energy plateau photoelectron spectra”,

Z. Chen, A-T. Le, T. Morishita, and C.D. Lin,

Phys. Rev. A, in press.

強レーザーによる原子の光電子スペクトルの高エネルギー成分における標的原子の依存性について、厳密数値計算と強光子場近似に基づいた理論の詳細を示した。

29. “Retrieval of experimental differential electron-ion elastic scattering cross sections from high-energy ATI spectra of rare gas atoms by infrared lasers”,

T. Morishita, M. Okunishi, K. Shimada, G. Prümper, Z. Chen, S. Watanabe, K. Ueda, and C. D. Lin,

in preparation.

800nm, 100 fs のレーザーによる Ne, Ar, Kr, Xe の光電子スペクトルから、それらのイオンによる自由電子の弾性散乱微分散乱断面積を、広範囲のエネルギー領域について高精度で抽出できることを実験的に示した。

本共同研究の主要な結果として、以下に関連論文 4,5,6,10,11,12,16, 20,21,22 を採録する。