

# 高強度極短光パルス源を用いた超高速光科学の最前線

石井 順久

量子科学技術研究開発機構 関西光科学研究所

2019年8月8日

## 概要

2018年のノーベル物理学賞は「レーザー物理学における画期的な発明」が受賞対象となり、Arthur Ashkin 博士 (for the optical tweezers and their application to biological systems)、Gérard Mourou 博士と Donna Strickland 博士 (for their method of generating high-intensity, ultra-short optical pulses) に与えられた。本集中ゼミでは、まず初めに、電場と光パルスの基本的性質について説明し、次に、高強度極短光パルス源の開発とその応用研究を、最先端の動向を踏まえながら、平易に解説する。高強度極短光パルス源を用いた超高速光科学実験として、気体をターゲットとした高次高調波発生やフェムト秒、アト秒分光について詳しく紹介したい。また、近年、物性研究におけるレーザーの利用が目覚ましく発展を遂げている。レーザーを用いた光電子分光、吸収分光はもちろんのこと、高強度電場下の固体の極端な非線形応答が注目されており、最先端のテーマの一つとして取り上げたい。

## 1 はじめに

今回の集中ゼミで解説する「高強度極短光パルス源を用いた超高速光科学の最前線」は、光や光を用いた計測を主体としたテーマである。「物性若手夏の学校」での講義ということで、光科学になじみがない学生でも簡単に理解できることを目指していきたい。光科学は直接的には物性とは関係はないが、1960年のレーザー発明以来 [1]、レーザーの優れた性質を取り込んで、物性実験に取り込まれてきており、今や物性研究と光科学は切っても切り離せないものになっている。従来、物性研究に強く結びついた光源としてシンクロトロン放射光施設が挙げられる。光電子分光、X線吸収・発光分光には欠かせないツールとしてなじみが深いであろう。シンクロトロン放射光施設は限られた場所で利用可能であり、装置も高額である。近年、シンクロトロン放射光施設の一部を担う光源として、レーザーベースの光源の台頭が著しい。レーザー光電子分光やレーザーを用いたフェムト秒光電子分光、高次高調波ベースの軟 X線吸収分光等が着実に進展している。光物性という観点からは、可視からテラヘルツにわたる、基礎吸収分光や非線形分光が確立されつつあり、研究分野の一つであるフェムト秒化学を確立した功績として、Ahmed Zewail 博士が 1999年にノーベル化学賞を受賞した [2]。ノーベル賞自体は化学分野であるが、フェムト秒分光は、固体における振動分光や、電子励起を包括したものであり、光物性研究の目玉の一つである。図 1 は、物性研究と光に関する各科学用語を用いた、Web of Science [3] での検索にかかる論文数の推移である。(電通大の米田先生の紹介している解析手法を用いた [4])。全体として論文出版数が増えていることに加えて、規格化した点線は近年明らかに割合が増えていることが見て取れる。2005年以降の増加はレーザーを用いた物性研究が増えていることを表しているように思える。この傾向から、物性研究に光科学は欠かせないものとなりつつあり、将来的にも密接に関わって発展していくことは容易に想像される。今回の集中講義では、物性研究を志望する学生へ、光やレーザー自体の性質を平易

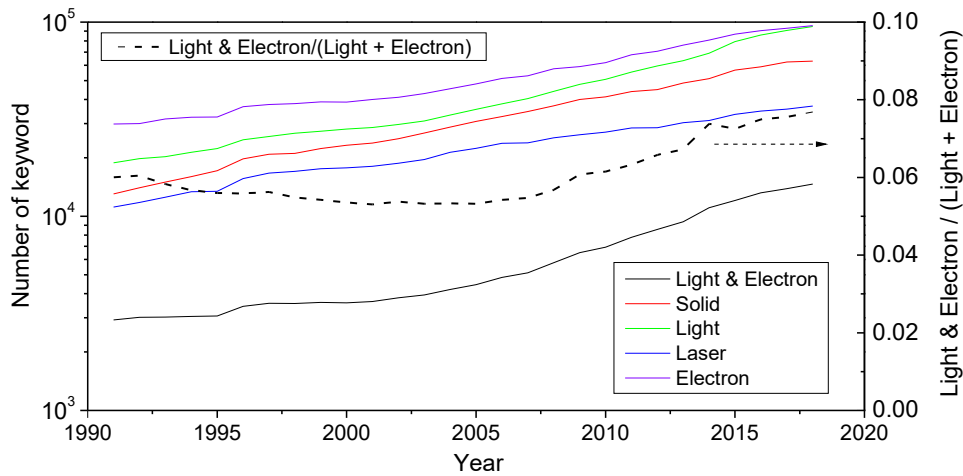


図1 各科学用語を用いた Web of Science での検索にかかる論文数の推移

に解説し、現在の最先端の研究を紹介することを目的としたい。具体的には、極短パルスの性質や扱いから、ノーベル賞の受賞理由となった Chirped-pulse amplification 法による（高強度）レーザー開発や最先端の高次高調波発生実験、フェムト秒、アト秒分光、レーザーを用いる物性研究等を解説していきたい。

## 2 光パルス：時間領域と周波数領域での表式

光パルスは電磁波であり、磁場成分と固体との相互作用は小さく、本講義では電場成分のみを考える。パルス電場をどのように記述可能であるか、時間と周波数（スペクトル）両方の領域での表式を見ていきたい。電磁波は、マックスウェル方程式から周期的に振動する波を解に持ち、任意の電磁波は、多数の連続波を重ねることで表すことができる。特に、今回のテーマである、電場パルスが多数の連続波の重ね合わせで生成可能であることを図2は示している。図2(a)では、最も低い周波数を  $f$  として、 $1.1f, 1.2f, 1.3f, 1.4f, 1.5f$  の周波数を持つ合計6個の連続波をプロットしたものである。今回は理由は説明しないが、一般的に、レーザーは等間隔な周波数を有する。図2(a)から、時刻-30、0、30の時にすべての波がそろって正の値を持っており、重ね合うことで振幅が強め合うことが予想される。図2(b)は最低周波数の連続波を示しており、順々に高い周波数の波を加えて重ね合わせた波形が図2(c) - (g)である。最初は連続波だった波が、うねりを示すようになり、波を重ねるごとに、うねりの持続時間が短くなっていることがわかる。すべての波を重ねた図2(g)では、連続波に比べて、振幅が6倍になっており、波が2回振動する程度の持続時間にまで圧縮されている。

ここでは離散的な波を重ね合わせを考えてきたが、連続的な周波数の波を重ね合わせることを考え、フーリエ変換を導入してパルス電場を表現する。任意の電場は、（周期性を仮定すると）連続波の重ね合わせとして表現可能であり、その重ね合わせの強度と位相を得る方法がフーリエ変換である。以下の式のように、実時間での電場の表式をフーリエ変換することにより、スペクトル領域での電磁波の表現が得られる。

$$\tilde{E}(f) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{-2\pi i f t} dt \tag{1}$$

$$E(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(f) e^{2\pi i f t} df \tag{2}$$

ここで  $t$  と  $f$  はそれぞれ時間と周波数を表す。 $E(t)$  は電場の実時間領域での表現で、測定可能で実数で表され、 $\tilde{E}(f)$  はスペクトル領域での表現で、一般的に複素数で表される。ここでガウシアン包絡線を持つ光パ

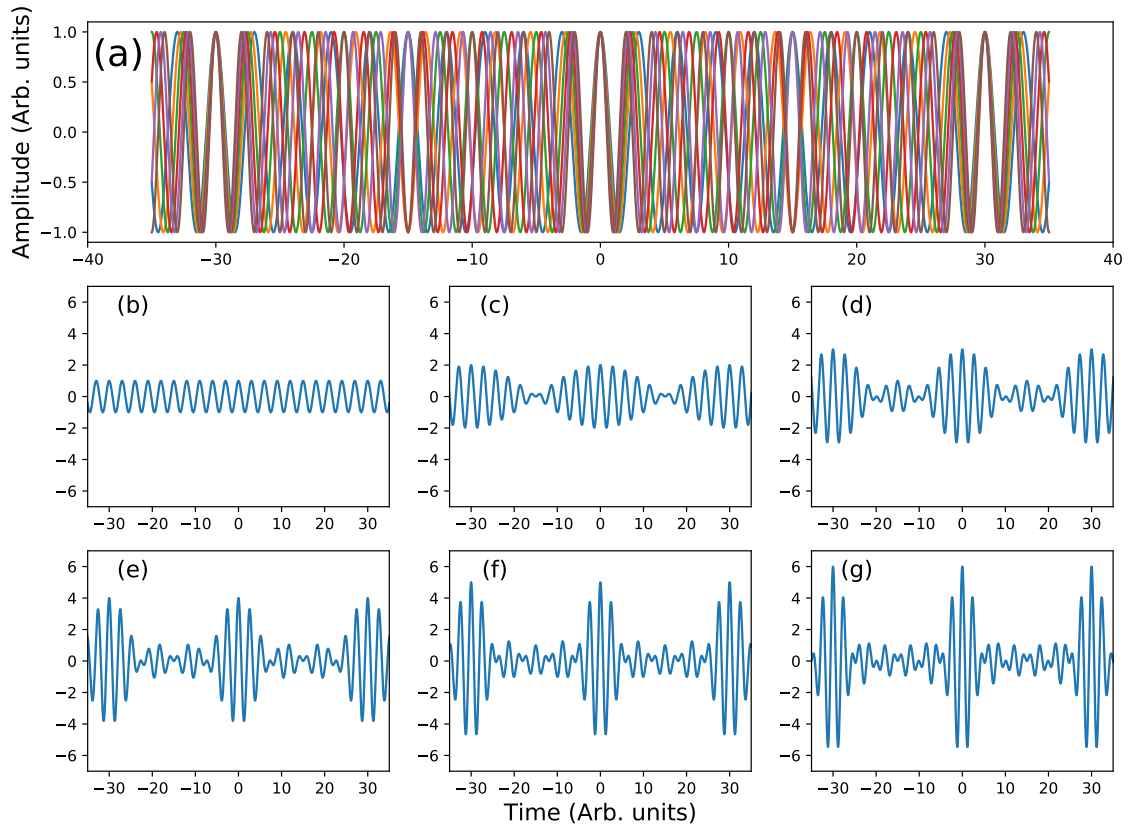


図2 (a) 最も低い周波数を  $f$  として、 $1.1f$ 、 $1.2f$ 、 $1.3f$ 、 $1.4f$ 、 $1.5f$  の周波数を持つ合計 6 個の連続波。最低周波数の連続波 (b) に、順々に高い周波数の波を加えて重ね合わせた波形 (c) - (g)。

ルスを考えて、

$$E(t) = \exp\left\{-2\ln(2)\left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right\} \times \cos(2\pi f_0 t) \quad (3)$$

とする。ここで、 $f_0$  は電場の中心周波数である (スペクトル強度が分布を持っているときに、その中心の周波数)。式 (3) により包絡線を定義すると、 $\tau$  は電場強度 ( $\propto |E(t)|^2$ ) における半値全幅を表す。一般に「光パルスの時間幅」というときには、電場強度における半値全幅を用いることが多い。式 (3) のフーリエ変換により、スペクトル領域の表現は

$$\tilde{E}(f) = \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left\{-2\ln(2)\left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right\} \times \cos(2\pi f_0 t) \exp(-2\pi i f t) dt \quad (4)$$

$$\propto \exp\left\{-\left(\frac{\pi\tau}{2\ln(2)}\right)^2 (f - f_0)^2\right\} + \exp\left\{-\left(\frac{\pi\tau}{2\ln(2)}\right)^2 (f + f_0)^2\right\} \quad (5)$$

と求まる。式 (5) は  $f = \pm f_0$  を中心としたガウシアン分布になっており、周波数が正の部分のみ (式 (5) の第一項) を考えると、スペクトル領域のガウシアン分布の半値全幅  $\Delta f$  は、

$$\Delta f = \frac{2\ln(2)}{\pi\tau} \quad (6)$$

となる。パルスの時間幅  $\tau$  が長い時にはスペクトル幅  $\Delta f$  は狭くなり、パルスの時間幅  $\tau$  が短いときにはスペクトル幅  $\Delta f$  が広がる。両領域での幅を掛け合わせると、

$$\tau * \Delta f = \frac{2 \ln(2)}{\pi} \quad (7)$$

となり、フーリエ変換の不確定性関係が成り立っていることがわかる。

図 3(a) と (b) はレーザー強度の半値全幅が 20 fs (フェムト秒、 $10^{-15}$  秒) と 50 fs の時の電場波形であり、この時のスペクトル強度が、それぞれ、図 3(c) と (d) になる。このプロットでは、中心周波数が 0.375 PHz

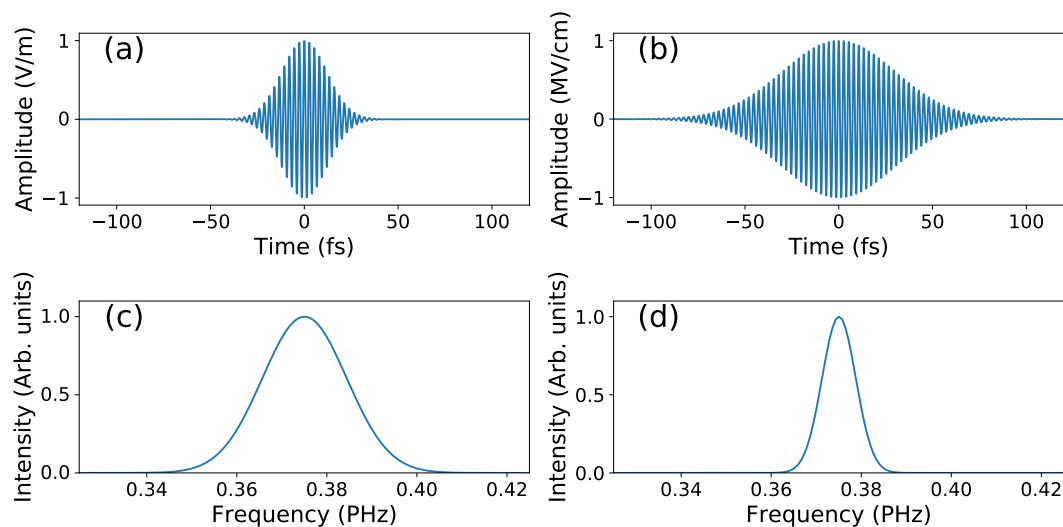


図 3 光電場パルスの時間幅とスペクトル幅の関係性

(ペタヘルツ、 $10^{15}$  ヘルツ、ペタはフェムト分の 1) (波長では 800 nm (ナノメートル、 $10^{-9}$  メートル) に相当し、電場の周期は 2.67 fs)、を仮定しており、フェムト秒レーザーの光源としてよく用いられるチタン・サファイアレーザーを想定している。このプロットから実際にパルス幅が短くなるとスペクトルの幅が広がっていることがわかる。逆は真ではなく、スペクトル幅が広くなればパルス幅が短くなるということは成り立たない。なぜならば、スペクトル領域の表現では、強度だけでなく、異なる周波数間のスペクトルの相対位相というパラメーターがあり、短パルス発生に重要になる。スペクトル領域の電場の表現、 $\vec{E}(\omega)$  は一般的に複素数であり、極座標表示では振幅と位相で表すことができる。極短パルスの発生にはこの位相が重要となることを次に説明する。図 4 ではスペクトル強度 ((a) と (b) の黒線) を一定にしたまま、スペクトル位相の分散を変化させたときのパルス波形の違いをプロットした。図 4(a) の青線のように、周波数に対して線形の位相分散を与えると、実時間領域では、時間のシフトにつながる。図 4(c) では 2 種類の電場波形は、相対的なタイミングが異なるが、電場の包絡線は変わらない。もう少し詳しく見ると、実は、これらの電場波形は同一でないことがわかる。特にオレンジ線では電場のピークと包絡線のピークが一致しているが、青線では異なっている。この違いは、後に説明するアト秒パルス発生の際に重要となる。次に、中心周波数からのずれであるオフセット周波数の 2 乗に比例するスペクトル位相の分散 (図 4(b) 青線) を加えてみる。この時の電場波形が図 4(d) のようになり、図 4(c) と比べ、パルス幅が伸びている。図 4(d) からわかることとして、時々刻々の瞬間的な周波数が変わっていることがあげられる。 $t < 0$  の領域では振動の周波数が高くなっており、 $t > 0$  の領域では振動の周波数が低くなっており、電場の周期が長くなっている。このような周波数の時間的な変化を、

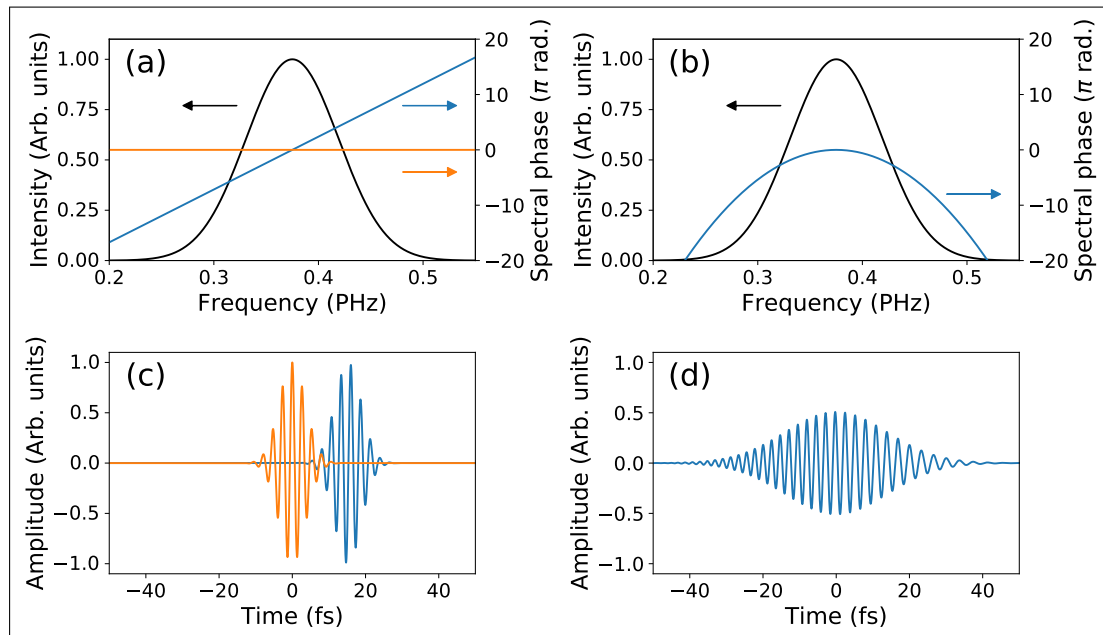


図4 光パルスとスペクトル位相の関係。(a) 共通したスペクトル強度（黒線）を用いて、スペクトル位相が零（オレンジ色）と周波数に対して線形な関係性を持つもの（青色）の2種類によって、それぞれ、電場波形が(c)のオレンジ線と青線になる。(b) スペクトル強度は(a)と同じであるが、位相が2次曲線にしたとき、電場波形は(d)のように時間的に伸長される。(d)の電場波形において、時間が負の時と正の時で振動の周期が変化していることに注目。

チャープ (chirp、さえずり：瞬時周波数が増加することによって、鳥の鳴き声の音が時間と共に増加することと同じ現象である) と呼ぶ。もう一つわかることとして、図4(d)のチャープした電場波形は、図4(c)の時と比べ、電場の振幅が低くなっていることがあげられる。パルス幅を伸ばすことによって、実時間領域で電場の振幅を低くすることが可能となり、高い電場振幅によっておこる光損傷を免れることができる。光損傷は物質が高い電場強度下で改変されることで、レーザー増幅媒質でこれが起こると再度レーザー増幅をすることができなくなってしまう。光パルスをチャープさせて光破壊を避けつつ、パルスエネルギーを増幅することが、2018年にノーベル物理学賞となったチャープパルス増幅 (Chirped-pulse amplification) の根幹である。

### 3 チャープパルス増幅 (Chirp-pulse amplification、CPA)

チャープパルス増幅は、1985年に G. Mourou 博士と D. Strickland 博士によって開発された、極短パルスレーザーを高強度に増幅するための画期的な手法で [5]、2018年のノーベル物理学賞の対象となった (日本語の解説記事は引用 [6] を参照)。この章では、CPA の仕組みと理屈を簡単に紹介する。

1985年の初めての実験では、ネオジウム・ガラス (ネオジウムを添加したガラス) を媒質とするレーザーが使われた。1990年代からは、ネオジウム・ガラスレーザーに変わり、チタン・サファイア (チタンを添加したサファイア) をレーザー媒質としたケースが主になっている。これらの固体レーザーでは飽和フルーエンス (レーザービームやレーザー結晶の断面積あたりにエネルギー、典型的な単位は  $\text{J}/\text{cm}^2$ ) と呼ばれる、効率の良いエネルギー取り出しの目安となる値が高い。飽和フルーエンスは、チタン・サファイアでは  $1 \text{ J}/\text{cm}^2$ 、ネオジウム・ガラスでは  $5 \text{ J}/\text{cm}^2$  になる。しかし、フェムト秒パルスを直接これらの物質に入れると、 $0.01 - 0.1 \text{ J}/\text{cm}^2$  程度のエネルギー密度でレーザー結晶が破壊されてしまい、このままではフェムト秒パルスを効率的

に増幅することはできない。ここで、Gérard Mourou 博士と Donna Strickland 博士が考えたのが、光パルスを時間的に伸ばして電場強度を低くし、チャープした光パルスを効率よく増幅した後に、逆の操作で光パルスを時間的に圧縮するという方法である。物質の光破壊のフルーエンスは、大まかにパルス幅の平方根に比例するので、100 fs の光パルスを 1 ns(ナノ秒、 $10^{-9}$  秒) に伸ばして増幅すると大体 100 倍のパルスエネルギーを達成することができる（実際にはフェムト秒パルスはより低いエネルギーで自己収束等が起き、高いエネルギーを取り出すことはより困難になるため、倍率はさらに高い）。フェムト秒光パルスでは 0.01 - 0.1 J/cm<sup>2</sup> であった破壊フルーエンスが 100 倍になると 1 - 10 J/cm<sup>2</sup> となり、効率的な増幅が可能になる。図 5

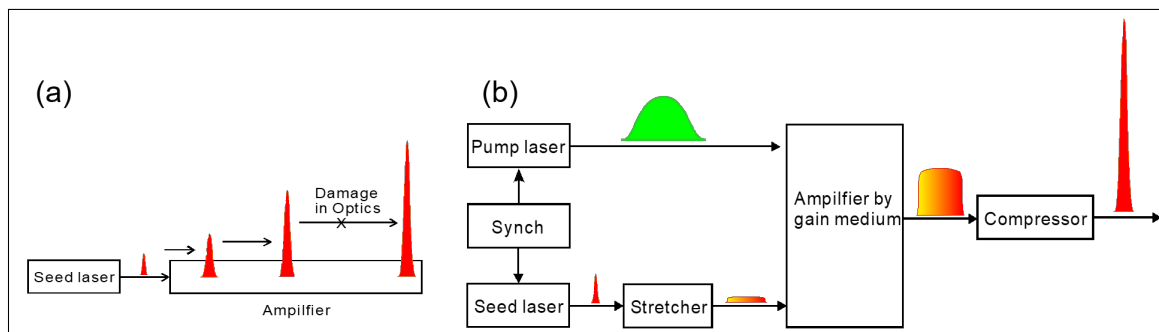


図 5 (a) 被増幅光をチャープさせないときのレーザー増幅。レーザー媒質の光破壊で高増幅率の達成は不可能である。(b) 被増幅光をチャープさせたときのレーザー増幅 (CPA)。シードレーザー (Seed laser) からの極短光パルスを時間的に伸ばし (Stretcher)、増幅後に時間的に圧縮 (Compressor) し、高強度フェムト秒パルスを得る。

が CPA の概念図である。図 5(a) は被増幅光をチャープさせないときのレーザー増幅で、レーザー媒質内の光破壊で高増幅率の達成は不可能である。図 5(b) のように、シードレーザー (Seed laser) を時間的に伸ばし (Stretcher)、増幅後に時間的に圧縮 (Compressor) し、高強度フェムト秒パルスを得る。典型的なチタン・サファイアレーザーの出力は、パルス当たりのエネルギーが 1-10 mJ (ミリジュール、 $10^{-3}$  ジュール)、パルス幅が 30 fs、繰り返し周期が 1 kHz (キロヘルツ、 $10^3$  ヘルツ) である。チタン・サファイアを用いた最高強度レーザーの出力は、パルス当たりのエネルギーが 30 J、パルス幅が 30 fs、繰り返し周期が 0.1 Hz である。最高強度レーザーの瞬間的な電力 (J/sec = W) は 1 ペタ ( $10^{15}$ ) ワット (= 30 J/ 30 fs) であり、ペタワットレーザーの開発が世界で盛んにおこなわれている。日本の電気によるエネルギー供給量は年間に 10000 PJ (ペタジュール) であるので、電力供給量は平均約 300 GW (ギガワット、 $10^9$  W) であり、最高強度レーザーの 3000 分の 1 である (ただし、一瞬 (30 fs) しか光っていないので、停電することはない)。

CPA を用いたチタン・サファイアレーザーが開発される以前は、色素レーザーやエキシマーレーザーが盛んに用いられていた。これらのレーザーの飽和フルーエンスは非常に低いため、CPA なしで極短パルスが得られる。しかし、液体や気体をレーザー媒質としていたので、保守が非常に困難で、使い勝手が良くなかった。CPA を用いたチタン・サファイアレーザーの技術進歩とともに、高強度極短パルスレーザーが簡便に使用可能になり、非線形光学や非線形フェムト秒化学、高強度場物理 (高次高調波発生) 等の実験分野が開けることとなった。



## 4 光の高次高調波発生

この章では光の高調波発生について説明する。前章で説明した、CPA を用いたチタン・サファイアレーザーからの高強度極短光パルスを集光すると  $10^{12}$  から  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザー強度を達成することが可能である。例えば、 $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> のレーザー強度は、パルスエネルギー 1 mJ、パルス幅 100 fs のビームを直径 100  $\mu$ m に集光することで達成可能である（ビーム直径 100  $\mu$ m は、直径 2 mm のレーザービームを焦点距離が 50 cm のレンズで集光することで達成可能である）。これらの高強度電場下にある気体媒質（通常貴ガスを用いる）は非線形応答を示し、反転対称性がある媒質からは入力レーザーの周波数の奇数倍（3、5、7、 $\dots$ 、 $2n+1$  倍）の周波数を持った高調波が発生する。比較的低いレーザー強度（ $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> 程度）では、摂動的な非線形応答により、高い次数の高調波は急激に弱くなっていく。一方、 $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 以上のレーザー強度では、電界強度が非摂動論的領域に到達し、摂動論で説明できない現象が観測されてきた。非摂動論的領域の高強度場物理をうまく説明する理論的枠組みとして、1993 年に P.B. Corkum 博士が 3 ステップモデルを提唱した [7]。このモデルは、実験事実を非常にうまく説明でき、高次高調波発生を含む、高強度物理全般において広く用いられるようになった。このモデルの概念を図 6 に示す。茶色線が入力レーザーの電場を表しており、気体の

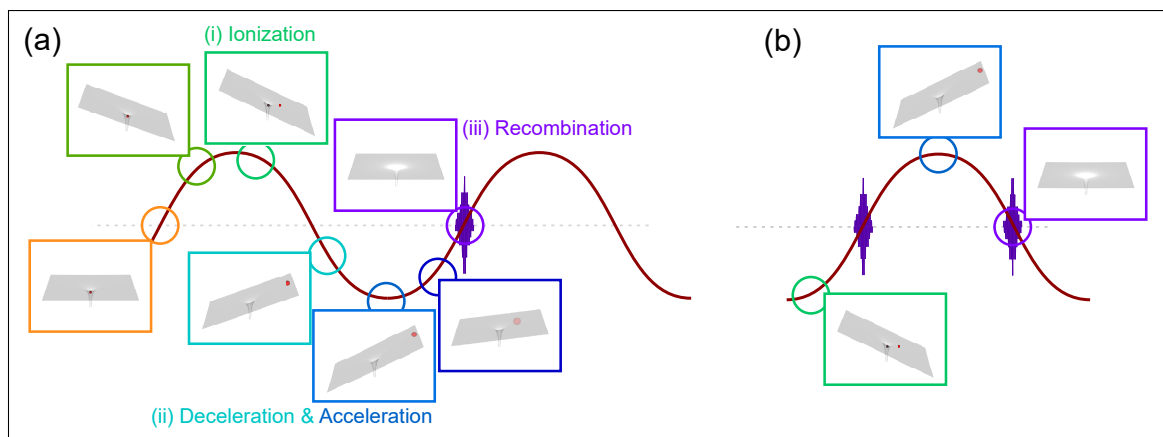


図 6 (a) ハーフサイクル内の 3 ステップモデル。(i) Ionization : 電子のイオン化、(ii) Deceleration & acceleration : 減速と再加速、(iii) Recombination : 再結合による光放射 (b) 3 ステップは各ハーフサイクルで繰り返すために、基本レーザーの半周期で繰り返される。

クーロンポテンシャルと電場によるポテンシャル（ポテンシャルが傾く効果）の和が各枠内に模式的に描かれている。電場がゼロである時点（オレンジ枠内）では気体のポテンシャルはクーロンポテンシャルのみで記述され、電場が増えたときに（緑枠内）ポテンシャルが傾いていく。電場が最大になった時（青緑枠内）、最外殻の電子がクーロンポテンシャルの束縛を離れ（イオン化）、親イオンから離れるように加速される（第一ステップ、Ionization : イオン化）。次に、電場の向きが反転し（水色枠内）、電子の外向きの運動が減速され（青枠内）、親イオンに向かって再加速される（群青色枠内）（第二ステップ、Deceleration & acceleration : 減速と加速）。最後に、加速された電子が親イオン周辺に戻り、再結合することによって光が放射される（紫枠内）（第三ステップ、Recombination : 再結合と光放射）。放出される光子エネルギーは、電子の運動エネルギーとイオン化エネルギーの合計に等しくなる。この 3 ステップは、図 6(b) のように入力レーザーの半周期ごとに繰り返される。この半周期ごとの高調波は、フーリエ変換の関係を用いると、入力レーザーの周波数の奇数倍（3、5、7、 $\dots$ 、 $2n+1$  倍）の周波数を持つスペクトルとして観測される。3 ステップモデルから、再結合時の

電子の運動エネルギーが古典的に計算可能で、運動エネルギーに上限があることがわかる。この最大運動エネルギーとイオン化エネルギーの和であるカットオフエネルギー  $\hbar\omega_c$  は次のように表される、

$$\hbar\omega_c = 3.17U_p + I_p, \left( U_p \equiv \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} \right) \quad (8)$$

ここで  $U_p$  はポンデロモティブポテンシャル、 $e$  は電気素量、 $m$  は電子の質量、 $E$  は電場振幅、 $\omega$  は入力レーザーの角周波数、 $I_p$  はイオン化ポテンシャルである。このカットオフエネルギーはレーザーの強度とレーザーの波長の2乗の積に比例することがわかる。チタンサファイアレーザーを用いると、カットオフエネルギーは極紫外域に達する。高調波を極紫外から軟 X 線に拡張するために、入力レーザーの長波長化が現在盛んにおこなわれている。最先端の高調波発生については講義当日詳しく解説する。

## 5 搬送波包絡線安定な数サイクルパルスによるアト秒パルス発生

フェムト秒光パルスはレーザー発振器から直接取り出すことが可能である。レーザー媒質のスペクトル幅がフェムト秒パルスを生成するのに充分であったためである。しかし、アト秒パルスはレーザーから直接発生させることは、現在のところ出来ていない。アト秒パルスを発生させるのに十分広いスペクトル帯域を有するレーザー媒質は世の中に存在しないからである。また、可視光領域では電場の振動周期がフェムト秒のオーダーであり、可視光を重ね合わせただけではアト秒パルス発生は不可能である。アト秒パルス発生のためには、電場周期の短い紫外、極紫外、軟 X 線領域にスペクトル帯域をもっていかななくてはならない。ここで高次高調波発生とアト秒パルス発生をうまく結びつけたのが(当時)ウィーン工科大学(現在マックスプランク量子光学研究所)のクラウツ研究室であった。アト秒パルス発生とその応用についての詳しいレビューは引用[8, 9]を参照されたい。前章で述べたように、高次高調波発生は入力レーザーの半周期ごとに起きる。一つの半周期から出た放射はアト秒の持続時間を持っているが、半周期ごとに繰り返されたアト秒パルスが規則的に並ぶ、アト秒パルス列になってしまう。しかし、高調波発生を2サイクル程度の入力レーザーで行うと単一のアト秒が得られることが示された。図7でその仕組みを説明する。図7(a)と(b)はパルス幅、電場の周期は同じであるが、パルスの包絡線(点線)と包絡線内の電場(搬送波、実線)のタイミングが異なる。この包絡線と搬送波のタイミングを位相として表したものを、搬送波包絡線位相(Carrier-envelope phase, CEP)と呼ぶ。図7(a)と(b)は、それぞれ、 $CEP = 0$ と $\pi/2$  rad.の電場波形で、図7(a)と(b)の電場は、それぞれ、慣習的にコサインパルスとサインパルスと呼ぶ。図7(a)と(c)の赤線と青線は、それぞれ、3ステップモデルにおける電子軌跡とその結果発生する高次高調波スペクトルであり、2つの高調波スペクトルをコヒーレントに足し合わせたのが黒線である。同じように、図7(d)の赤線と青線のスペクトルが、それぞれ、図7(b)の赤線と青線の電子軌跡によるものである。図7(c)において、赤線のカットオフエネルギーが、青線に比べて、約10 eV程度高い(網掛け領域)。このスペクトル領域をX線ミラー等で選択すると、単一の高調波発生が可能でその持続幅はアト秒となる。一方、図7(d)のサインパルスでは、2種類の高調波のカットオフエネルギーがほぼ等しく、単一パルスの選択は不可能である。図7のように、高調波スペクトルがCEPに依存することが2003年に実証され[10]、アト秒パルス発生と計測、並びにアト秒分光の発展に結び付いた。

## 6 光パルスの最短持続時間の変遷

最後に、光パルスの最短持続時間の変遷を見ることで、高次高調波とアト秒パルス発生がいかに画期的であったかを振り返る。1960年に初めて発明されたレーザーは[1]、(そのパルス幅は測定されていないもの)



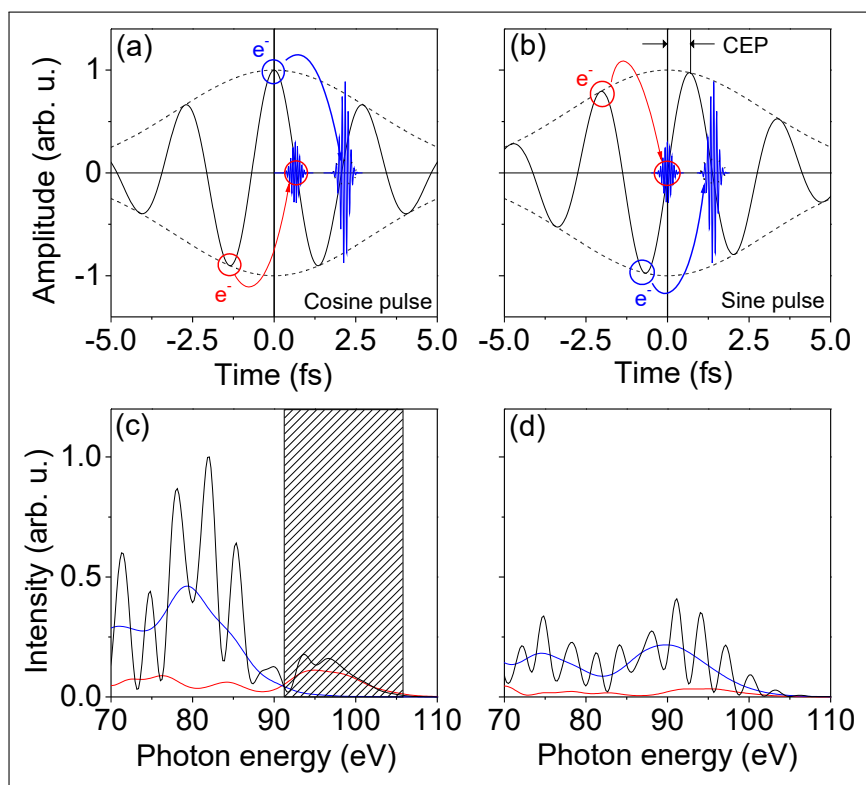


図7 2サイクル光パルスによるアト秒高調波発生。(a)、(c)は、それぞれ、コサインパルスの時の高次高調波発生電子軌跡と高次高調波のスペクトル。(b)、(d)は、それぞれ、サインパルスの時の高次高調波発生電子軌跡と高次高調波のスペクトル。網掛け部分が単一アト秒パルスのスペクトル領域であり、コサインパルスのみ発生が可能である。

発生の機構より、マイクロ秒 ( $10^{-6}$  秒) 程度の持続時間を有していただろうと推測される。マイクロ秒であった光パルスが技術の進展とともに短くなっていく変遷を図8に示す。この図のうち「Q-switch」と書いてある部分までは電気的なスイッチを与えることで得られている。スマートフォンやパソコンに使われるCPU等の半導体による電気信号のスイッチングは、現在では、数十ピコ秒 ( $10^{-12}$  秒) 程度で可能であるが、光パルスはそれよりもはるかに短い持続時間を達成することが可能となっている。モードロックというレーザーの広いスペクトル幅内の相互位相関係をロックする機構が発明されたことにより、電気信号より短い光パルスの発生が可能となった。現在では、2017年にスイスのチームが達成した43 asが、光パルスの最短持続時間になっている[11]。図内の「SPM」と書かれた部分までは可視、赤外スペクトル領域で達成されたものである。しかしこれらのスペクトル領域ではアト秒を達成することはできず、2000年以降の紫色の線で示した部分はすべて高次高調波発生をベースに達成されたものである。

## 7 まとめ

極短光パルスの性質について、フーリエ変換を導入し、実時間とスペクトル領域での取り扱いを説明した。高強度極短光パルスレーザーの開発に不可欠である、チャープパルス増幅について解説した。高強度極短光パルスを用いた高次高調波発生について、3ステップモデルを説明し、2サイクルレーザーパルスを用いた高次高調波発生による、アト秒パルス発生について説明した。極短光パルスレーザーの歴史的変遷において、今世

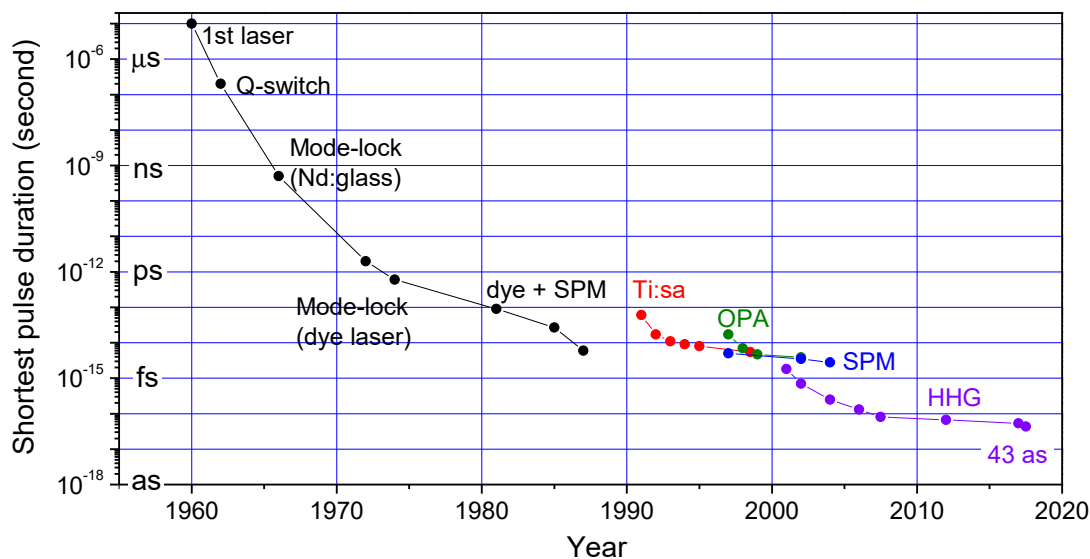


図8 光パルスの最短持続時間の変遷

紀の最短光パルスはすべて高次高調波をベースとしたアト秒発生によって達成されている。物性若手夏の学校の本講義においては、極短光パルスの基礎から、レーザー発生方法について、開発手法を交えてより詳しく解説し、フェムト秒、アト秒パルス発生実験やそれを用いた分光実験について紹介したい。さらにレーザー光源を用いた物性研究、特に固体における高強度場物理や高調波発生についても解説を行いたい。

## 参考文献

- [1] T. H. Maiman, “Stimulated optical radiation in ruby,” *Nature* **187**, 493–494, (1960).
- [2] A. H. Zewail ed. *Femtochemistry*. World Scientific, Singapore, (1994).
- [3] <https://apps.webofknowledge.com/>.
- [4] <https://www.uec.ac.jp/research/activity/uec-research/03.html>.
- [5] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Opt. Commun.* **56**, 219 – 221, (1985).
- [6] 渡部俊太郎、鍋川康夫、板谷治郎、小林洋平、「Gérard A. Mourou 博士とチャープパルス増幅法 - 2018 年ノーベル物理学賞受賞を祝して」、「科学」2019 年 2 月号、岩波書店
- [7] P. B. Corkum, “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization,” *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994–1997, (1993).
- [8] P. B. Corkum and Ferenc Krausz, “Attosecond science,” *Nature Physics* **3**, 381, (2007).
- [9] F. Krausz and M. Ivanov, “Attosecond physics,” *Rev. Mod. Phys.* **81**, 163–234, (2009).
- [10] A. Baltuska, Th Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, and F. Krausz, “Attosecond control of electronic processes by intense light fields,” *Nature* **421**, 611–615, (2003).
- [11] T. Gaumnitz, A. Jain, Y. Pertot, M. Huppert, I. Jordan, F. Ardana-Lamas, and H. J. Wörner, “Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver,” *Opt. Express* **25** 27506–27518, (2017).