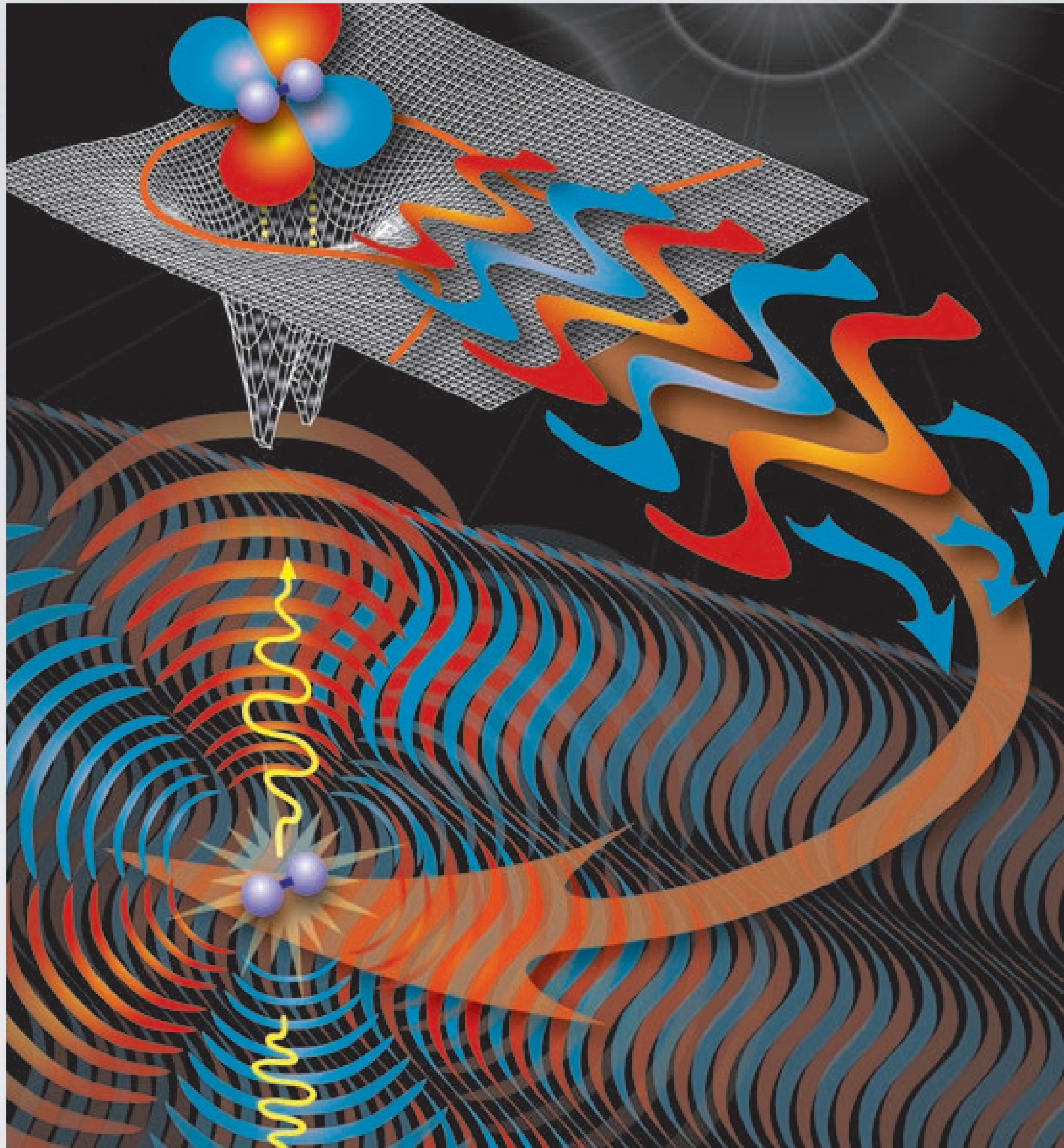
石川顕一

東京大学 大学院工学系研究科 光量子科学研究センター

ishiken@atto.t.u-tokyo.ac.jp　http://ishiken.free.fr/

高強度場現象・アト秒科学（2）

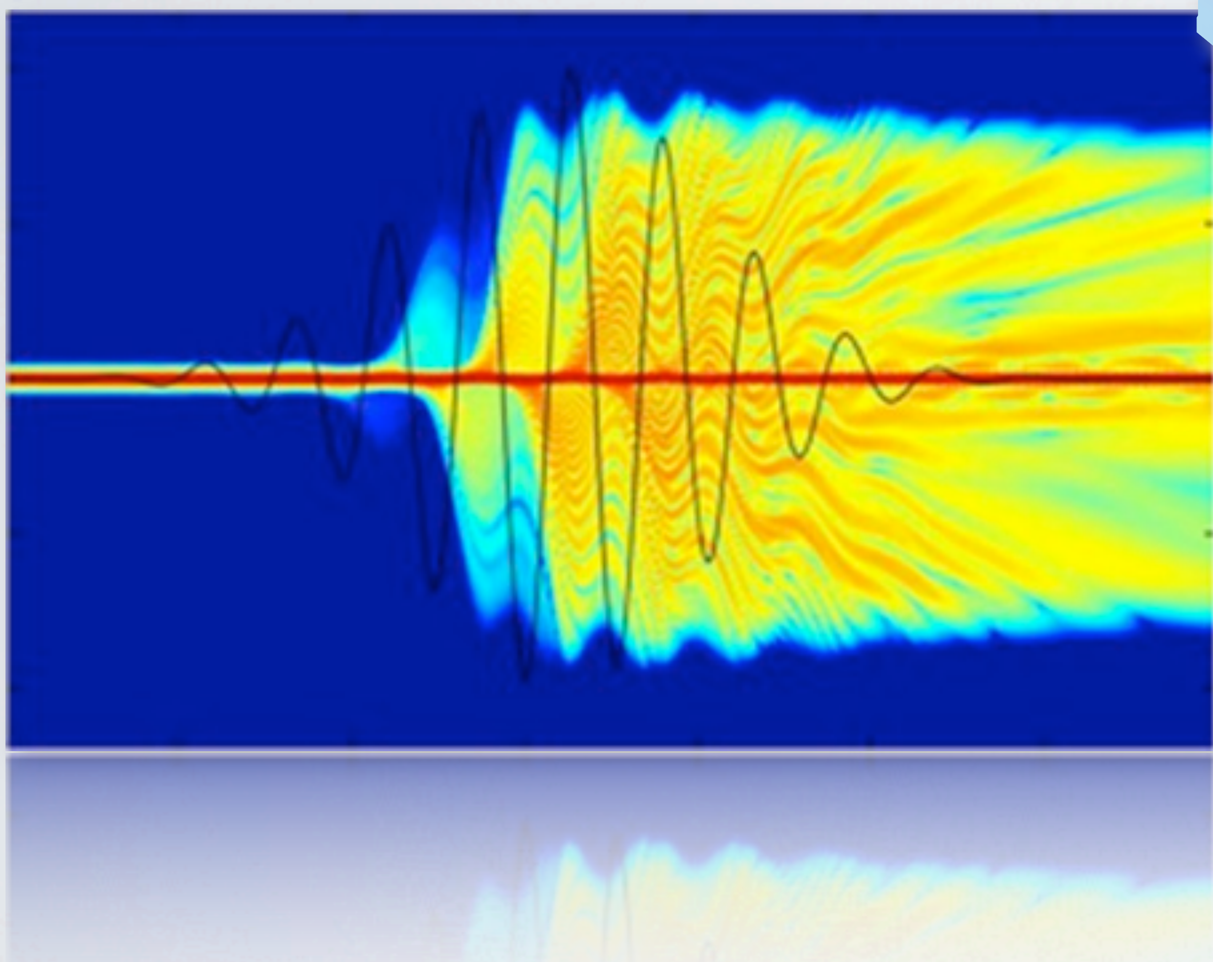
高次高調波発生とアト秒パルス

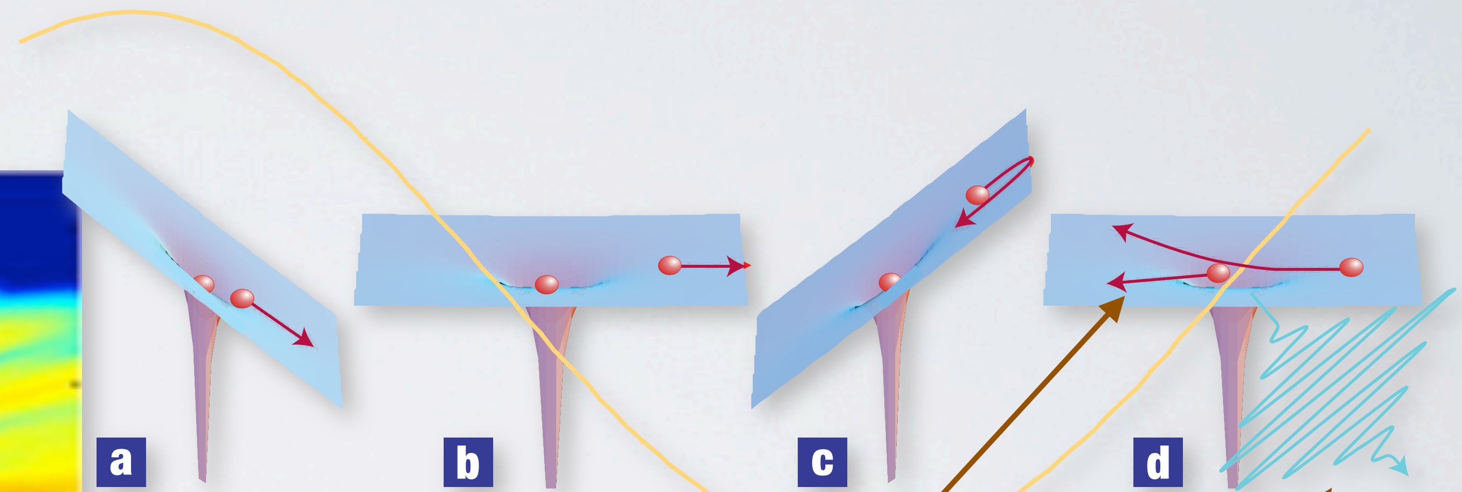


高次高調波発生とアト秒パルス

Optics and Photonics News, Vol. 19, Issue 10, pp. 24-29 (2008)

トンネル電離後の電子はどうなる？



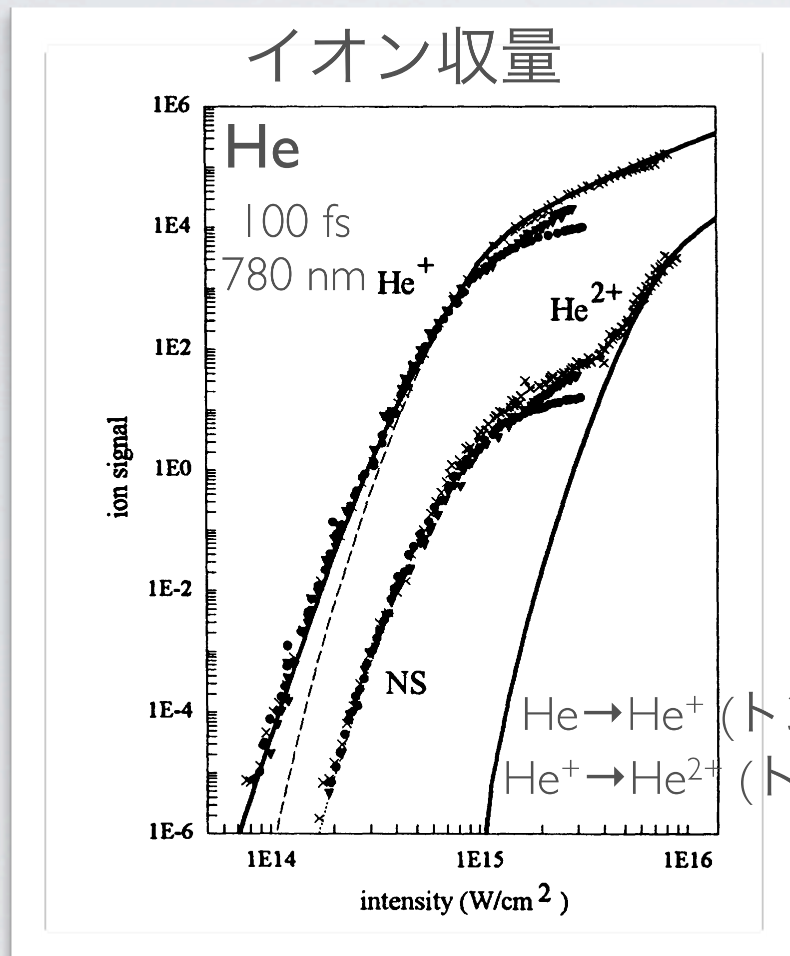


非逐次2重電離

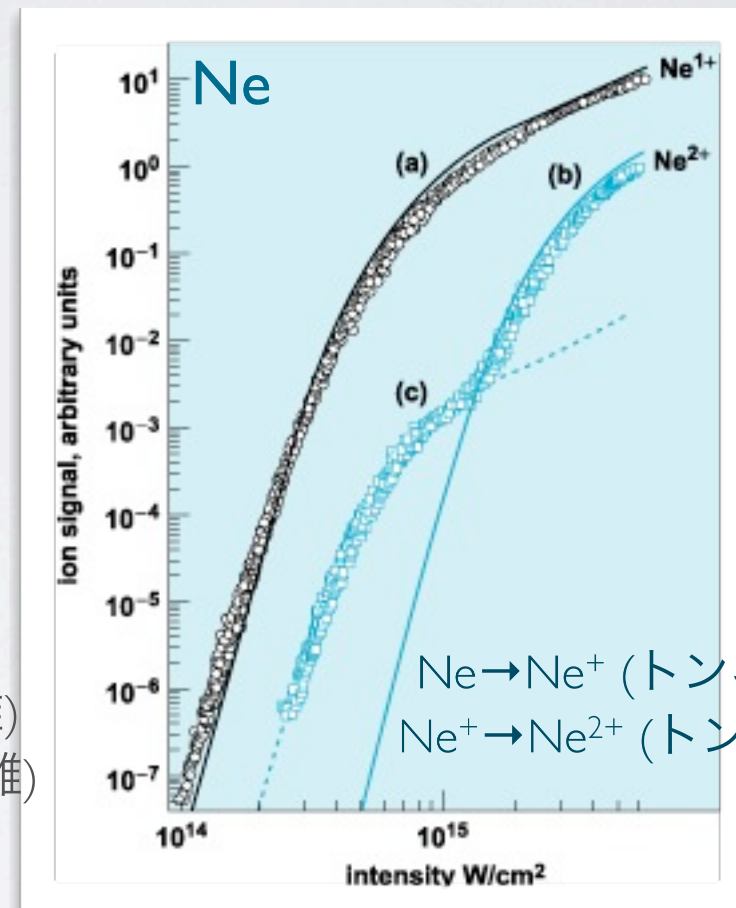
再結合→高次高調波

非逐次２重電離

Non-sequential double ionization (NSDI)



Walker et al., PRL 73, 1227 (1994)

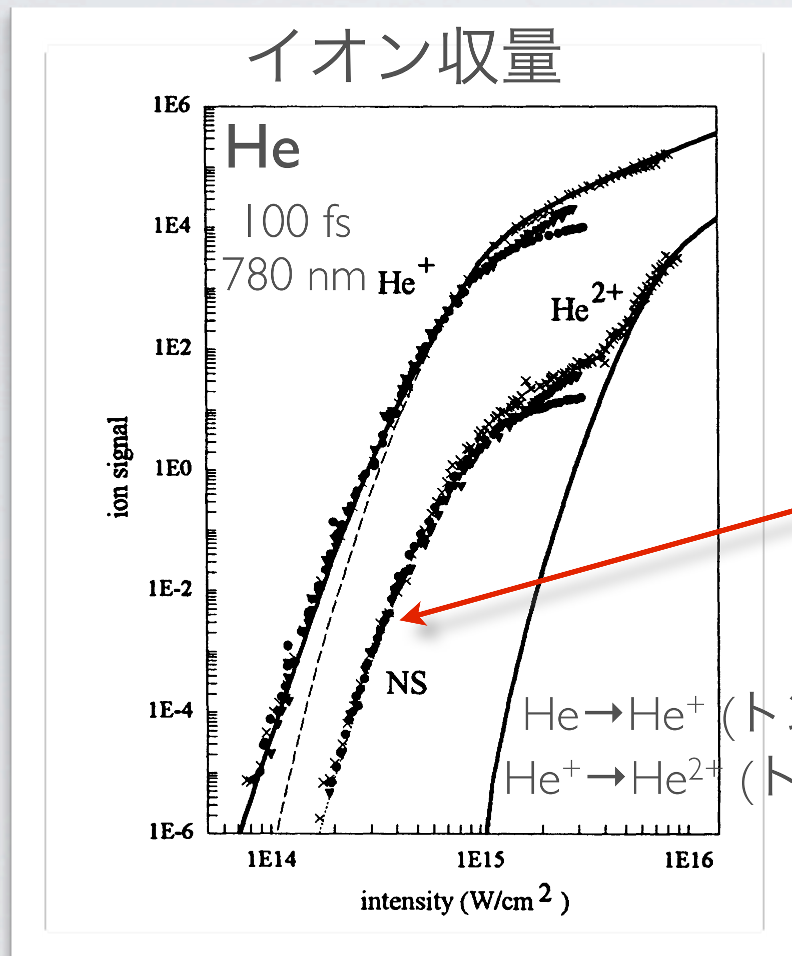


Dörner et al., Physik. Blätter, 57, 49 (2001)

- トンネル電離が順次起こるのでは説明できないkneeあるいはshoulderがある。

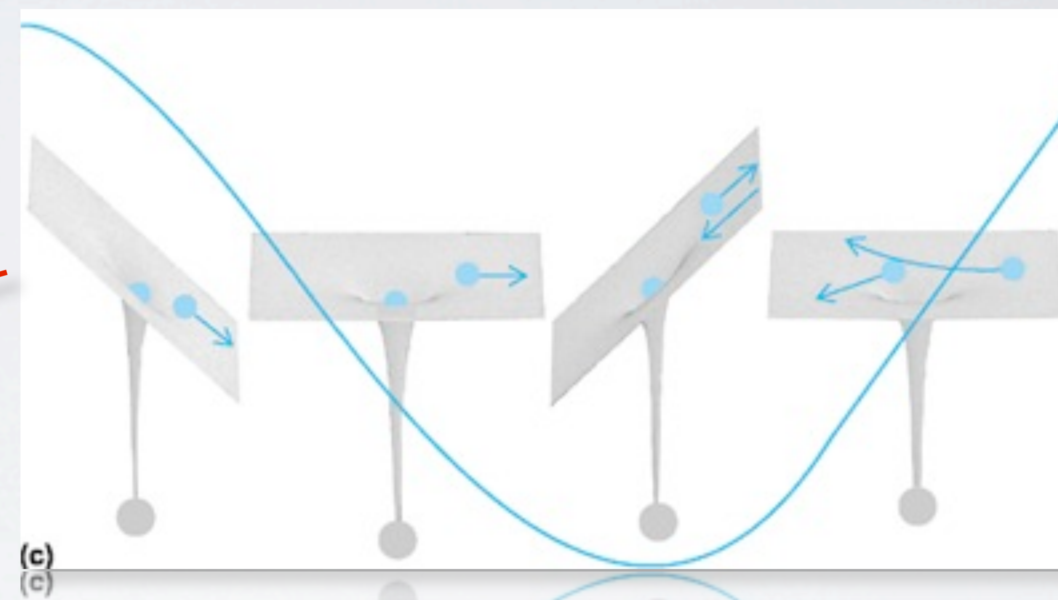
非逐次２重電離

Non-sequential double ionization (NSDI)



Walker et al., PRL 73, 1227 (1994)

トンネル電子が再衝突する際に、親イオンをさらにイオン化



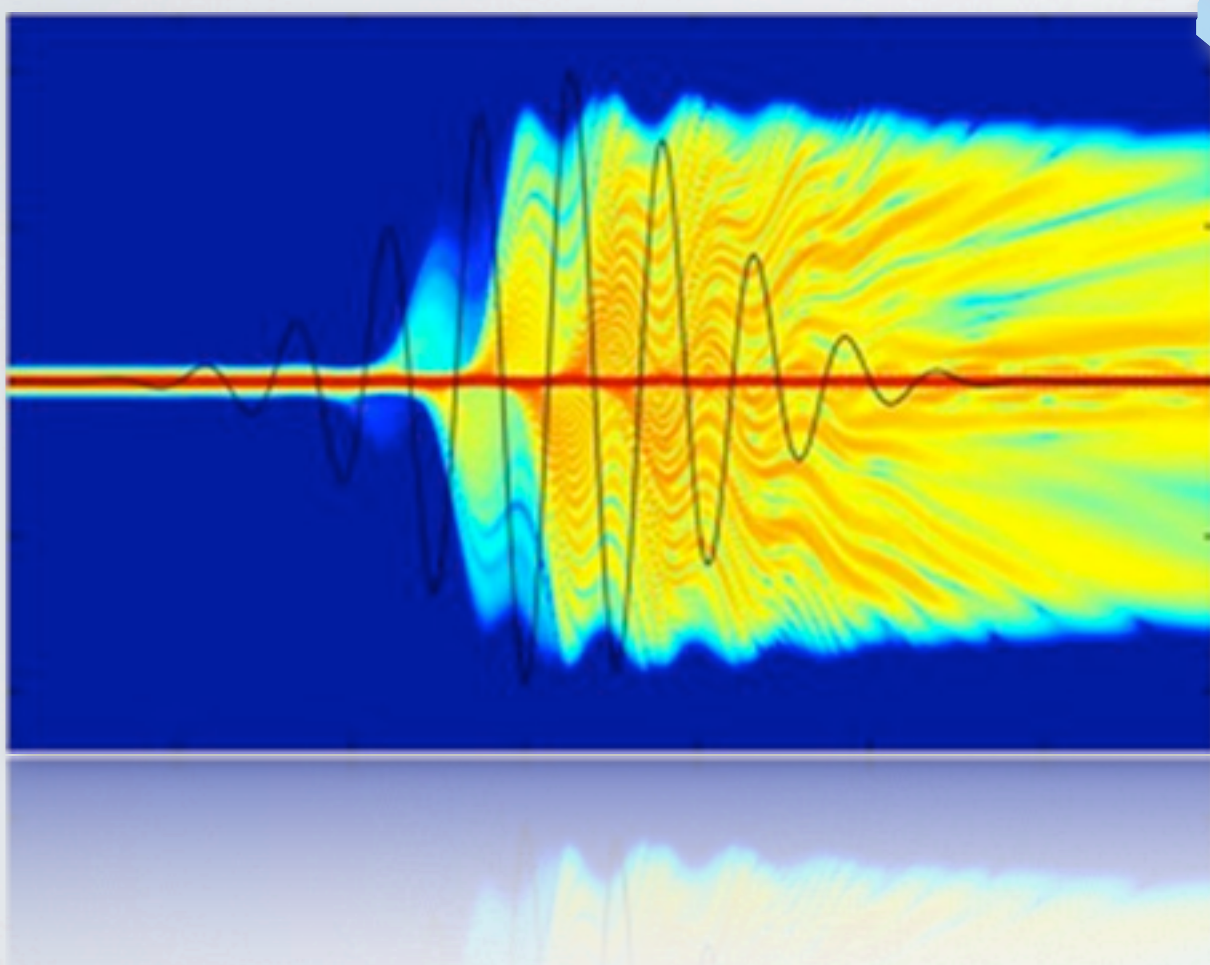
電子相関の顕著な例

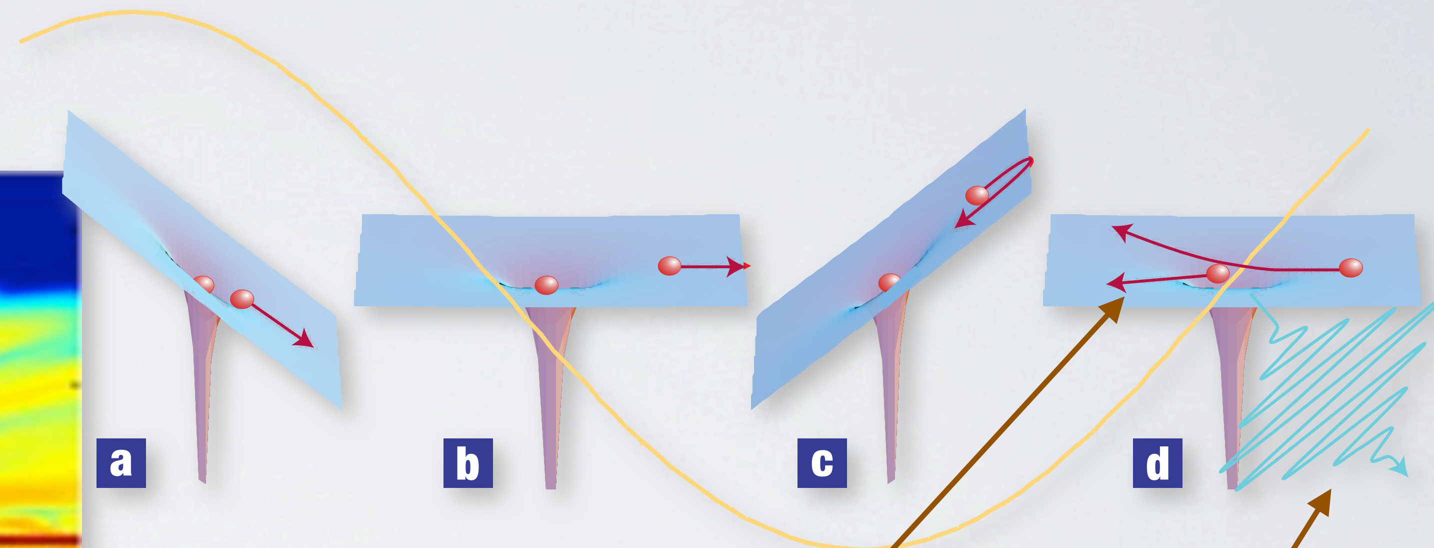
- トンネル電離が順次起こるのでは説明できないkneeあるいはshoulderがある。

UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

トンネル電離後の電子はどうなる？





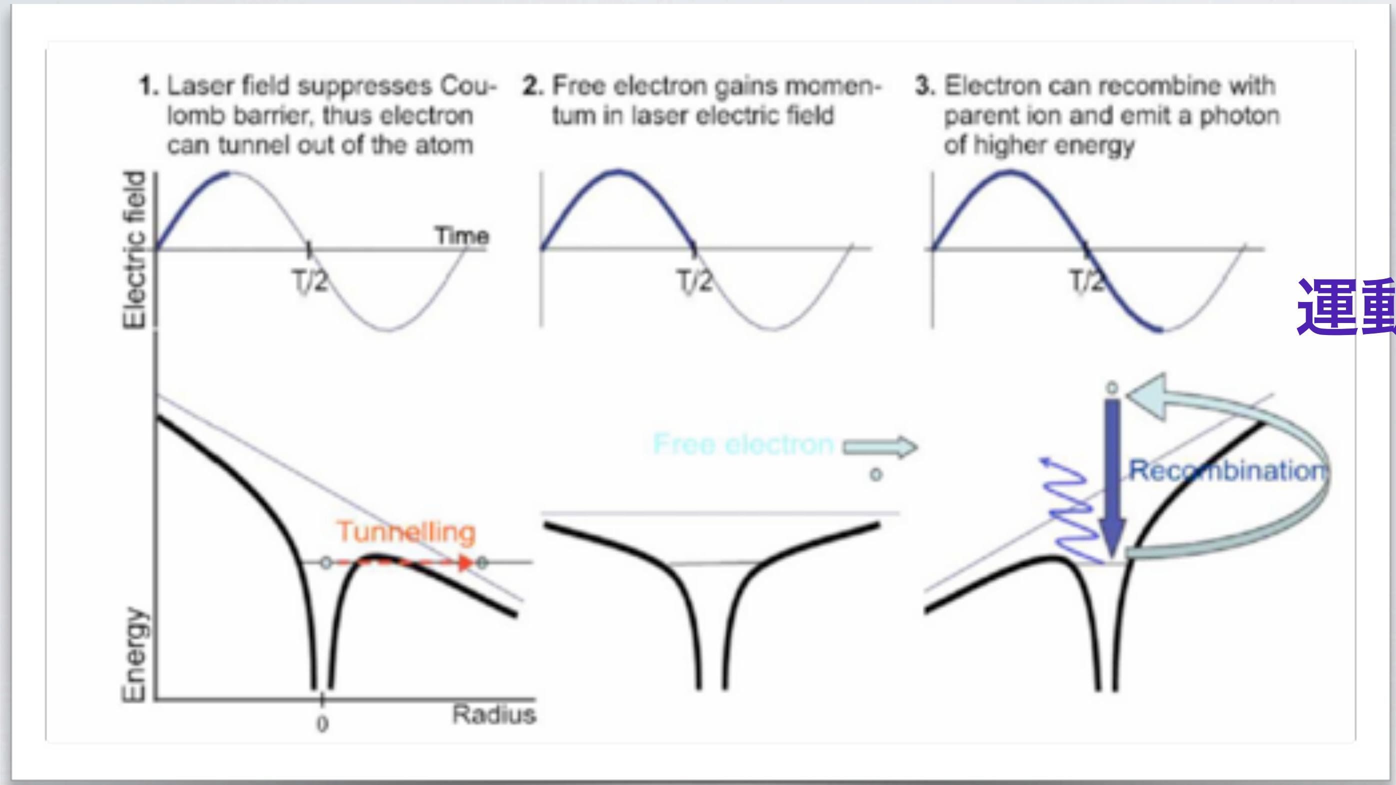
非逐次2重電離

再結合→高次高調波

石川顕一

高次高調波発生

HIGH-HARMONIC GENERATION (HHG)

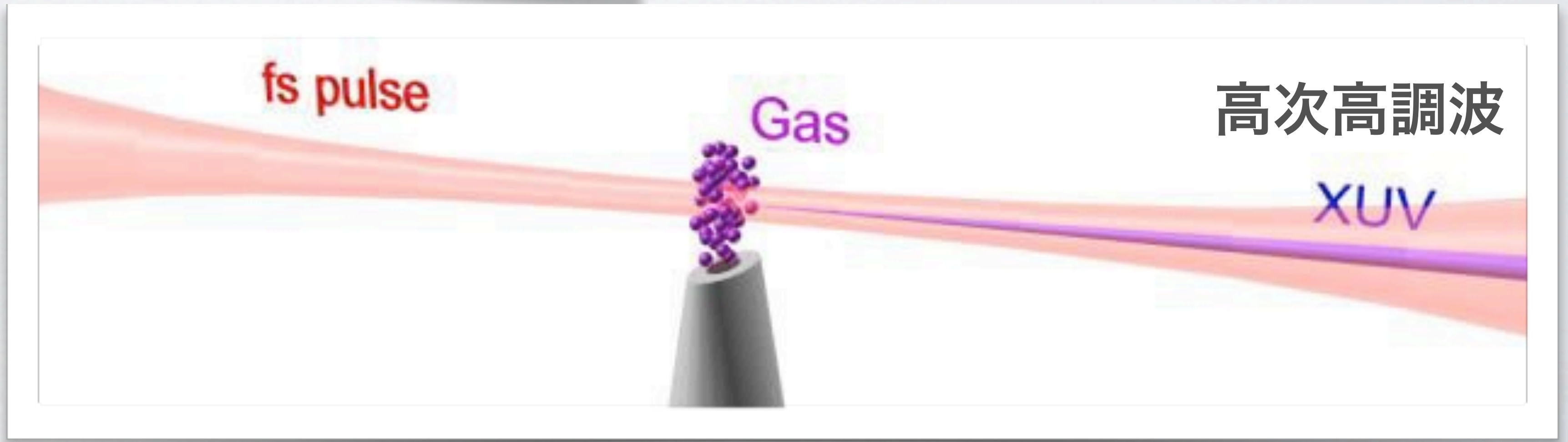


discovered in 1987

再結合の際に

運動エネルギー + **イオン化ポテンシャル**

のエネルギーの光子を放出



XUV = extreme ultraviolet (極端紫外)

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

高調波発生

波長変換

非線形光学効果　　物質の応答が、入射光強度に非線形に依存

$$D = \varepsilon_0 E + P$$

$$P = \varepsilon_0 \left[\chi^{(1)} E + \underline{\chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \cdots} \right]$$

非線形分極 (nonlinear)

線形分極 linear polarization

反転対称な媒質では、 $\chi^{(2)} = 0$

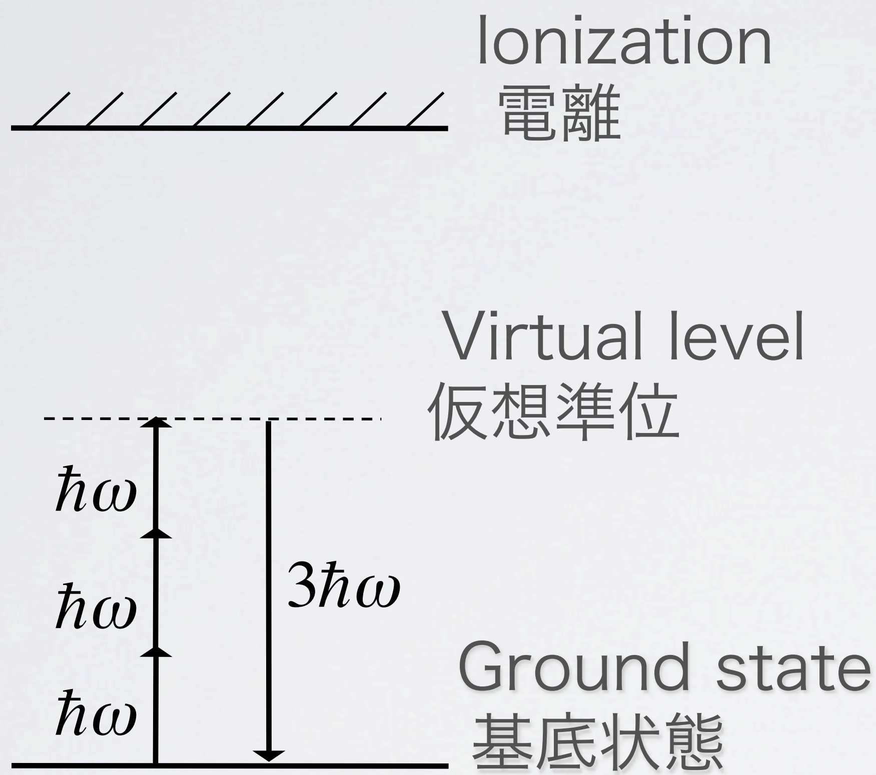
$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2}$$

3ω：３次高調波 (3rd harmonic)

5ω：５次高調波 (5th harmonic)

摂動論的高調波発生

３次高調波発生の概念図



遷移行列要素

$$M_{\mathrm{THG}} = \sum_{h,i,f} \left\{ \frac{\boldsymbol{\epsilon}_3 \cdot \mathbf{D}_{1h} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{hi} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{ij} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{j1}}{(3\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j)} \right.$$

$$+ \frac{\boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{1h} \boldsymbol{\epsilon}_3 \cdot \mathbf{D}_{hi} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{ij} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{j1}}{(-\omega_1 - \omega_h)(2\omega_1 - \omega_i)(\omega_1 - \omega_j)}$$

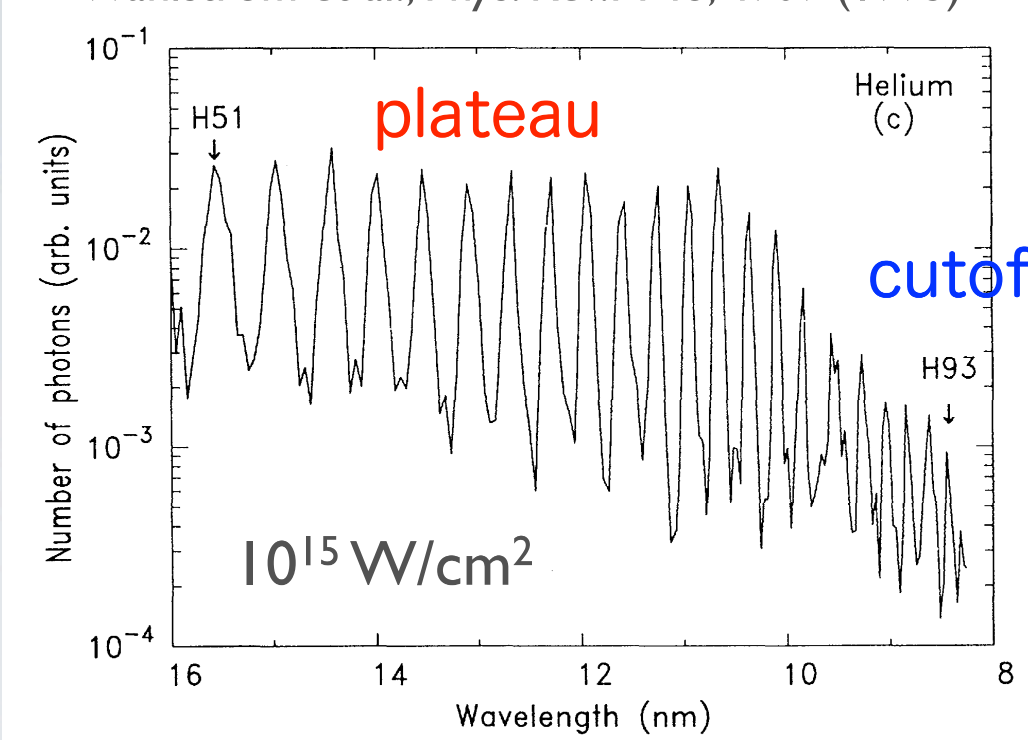
$$+ \frac{\boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{1h} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{hi} \boldsymbol{\epsilon}_3 \cdot \mathbf{D}_{ij} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{j1}}{(-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(-\omega_1 - \omega_j)}$$

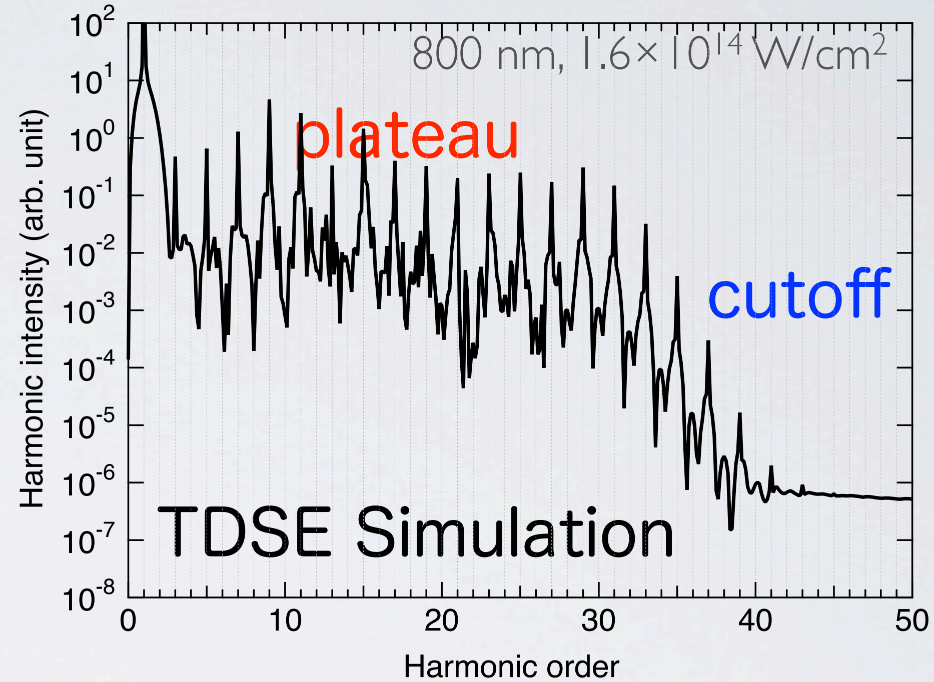
$$+ \frac{\boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{1h} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{hi} \boldsymbol{\epsilon}_1 \cdot \mathbf{D}_{ij} \boldsymbol{\epsilon}_3 \cdot \mathbf{D}_{j1}}{(-\omega_1 - \omega_h)(-2\omega_1 - \omega_i)(-3\omega_1 - \omega_j)}$$

次数が高くなるほど、発生効率は減少。

プラトーとカットオフ

Wahlström et al., Phys. Rev. A 48, 4709 (1993)





プラトー(plateau)：Efficiency does NOT decrease with increasing harmonic order. **次数が上がっても強度が落ちない。**

カットオフ(cutoff)：Maximum energy of harmonic photons

$$E_c \approx I_p + 3.17U_p \qquad U_p(\mathrm{eV}) = \frac{e^2E_0^2}{4m\omega^2} = 9.3\times10^{-14}I(\mathrm{W/cm^2})\lambda^2(\mu\mathrm{m})$$

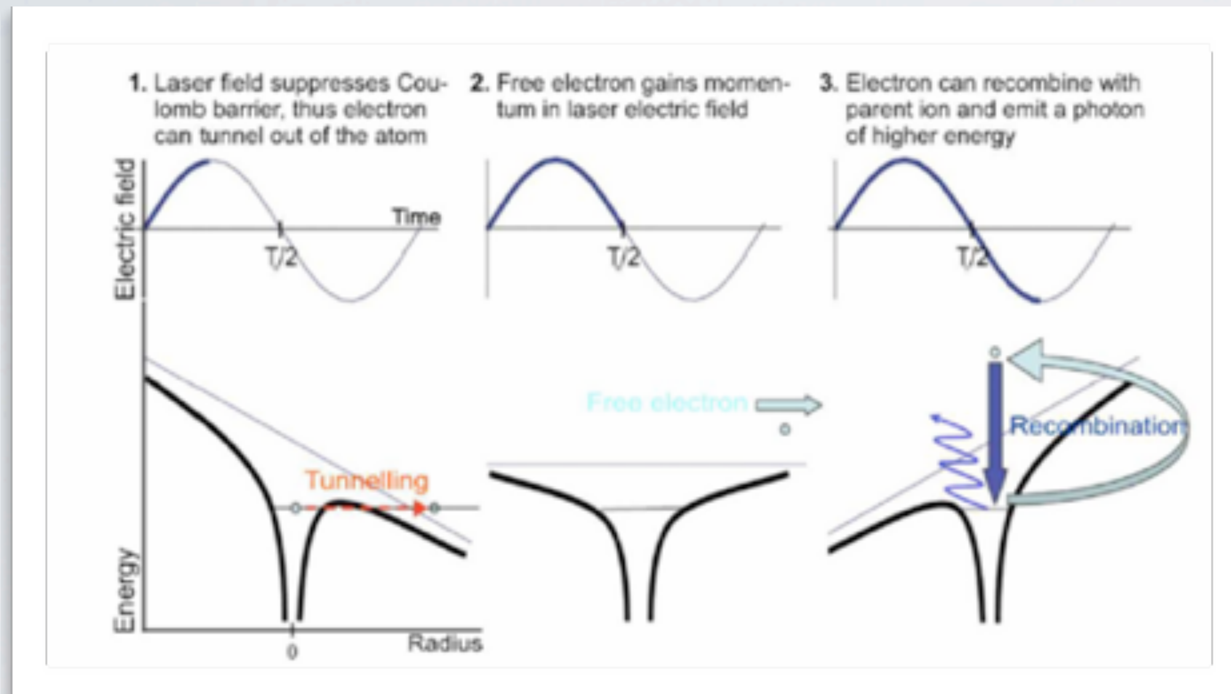
ポンデロモーティブエネルギー

- 摂動論的には解釈できない

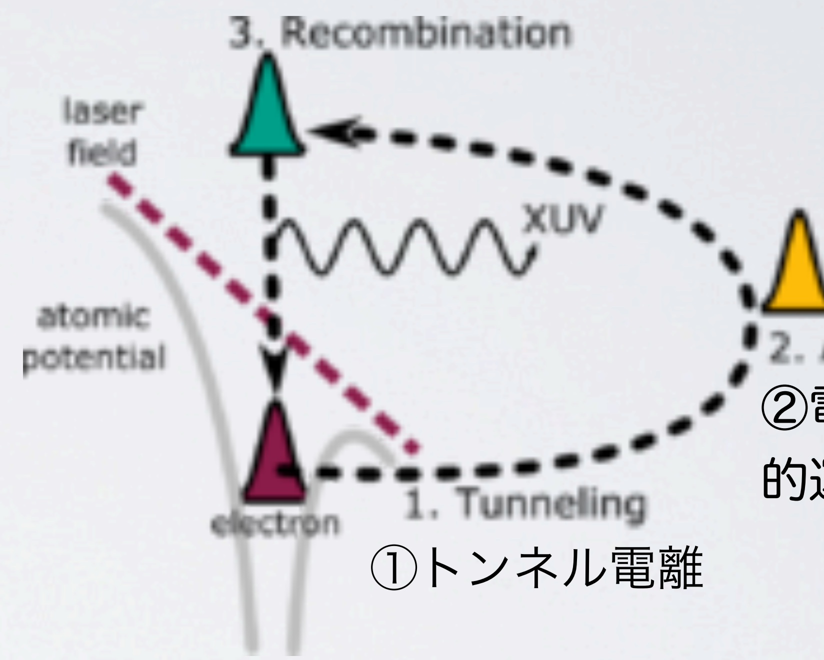
UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

高次高調波発生のメカニズム
３ステップモデル



③再結合→発光（高次高調波）



②電場中の古典的運動（加速）

①トンネル電離

Paul B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993)

K. C. Kulander et al., in *Super-Intense Laser-Atom Physics*, NATO ASI Ser. B, Vol. 316, p. 95 (1993)

Paul B. Corkum

UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

高次高調波発生の３ステップモデル

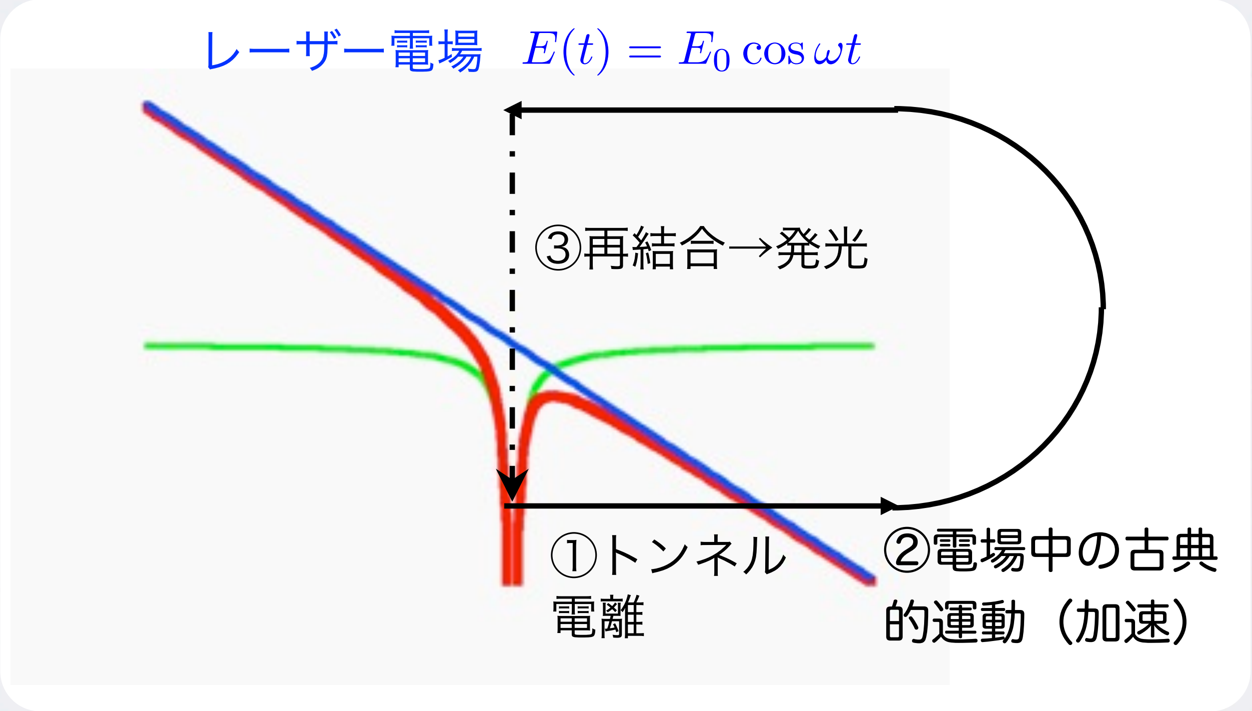
時刻　t_0 でイオン化。原点に初速ゼロで出現

$$m\ddot{z} = -eE_0 \cos\omega t \qquad \dot{z}(t_0) = 0 \qquad z(t_0) = 0$$

規格化　$\phi = \omega t \quad \phi_0 = \omega t_0$

$$z = \frac{E_0}{\omega^2}\left[(\cos\phi - \cos\phi_0) + (\phi - \phi_0)\sin\phi_0\right] \qquad E_{\mathrm{kin}} = 2U_p(\sin\phi - \sin\phi_0)^2$$

再衝突　$z = 0$　となる　$\phi = \phi_{\mathrm{ret}}(\phi_0)$

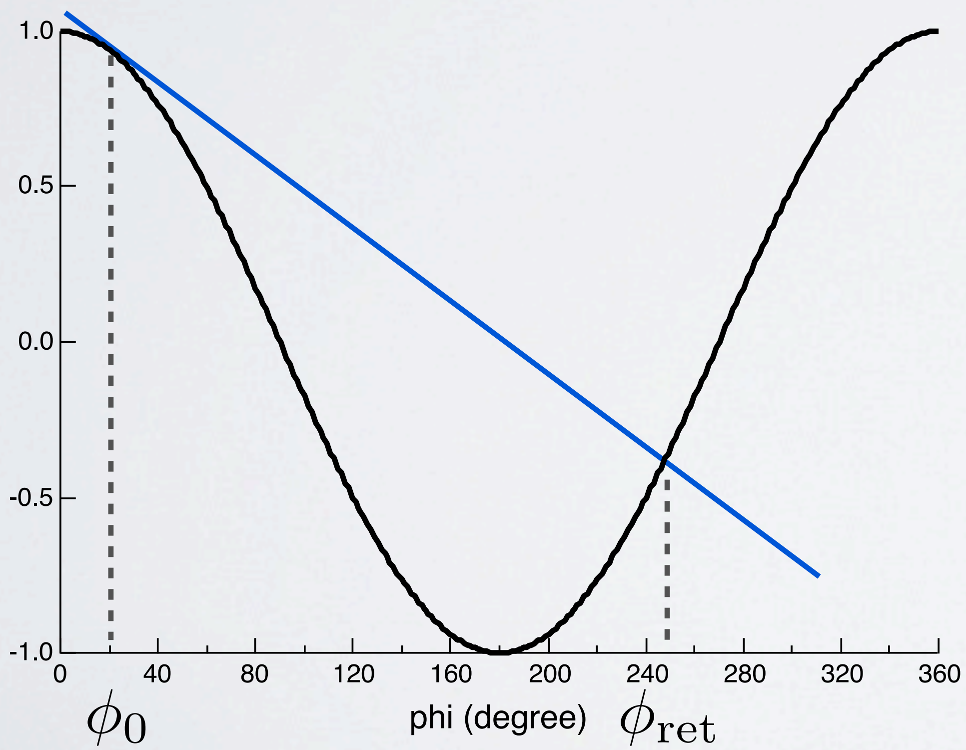


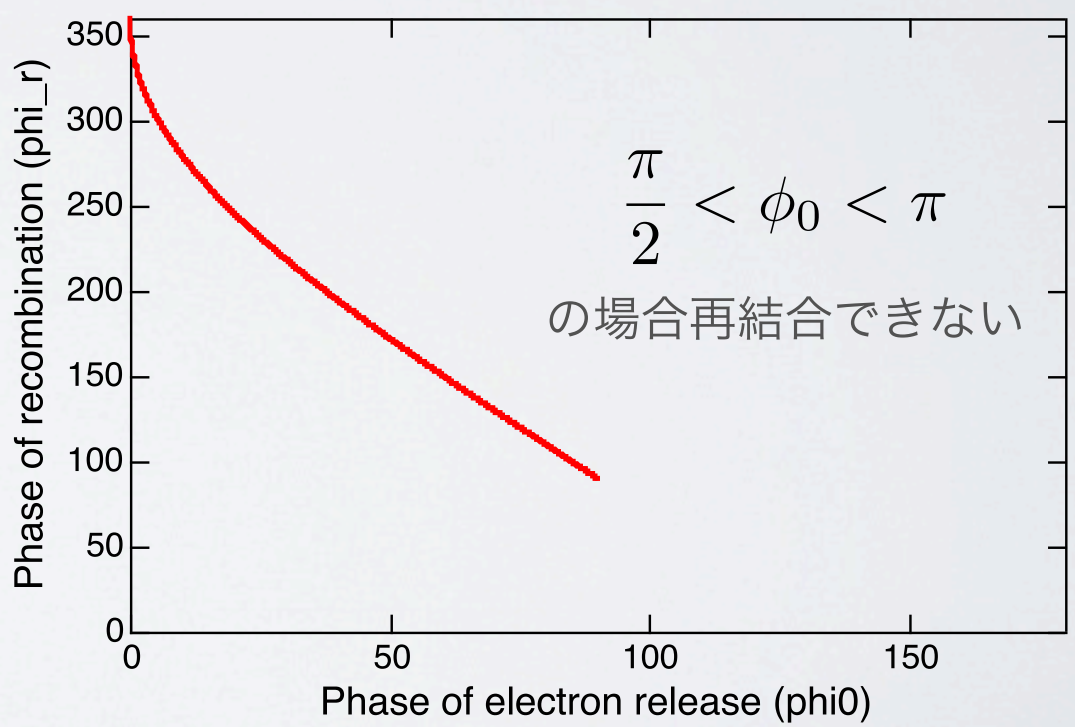
再衝突時刻

$$z = 0 \longrightarrow (\cos\phi_{\mathrm{ret}} - \cos\phi_0) + (\phi_{\mathrm{ret}} - \phi_0)\sin\phi_0 = 0$$

$$(\cos\phi)'|_{\phi_0} = \frac{\cos\phi_{\mathrm{ret}} - \cos\phi_0}{\phi_{\mathrm{ret}} - \phi_0}$$

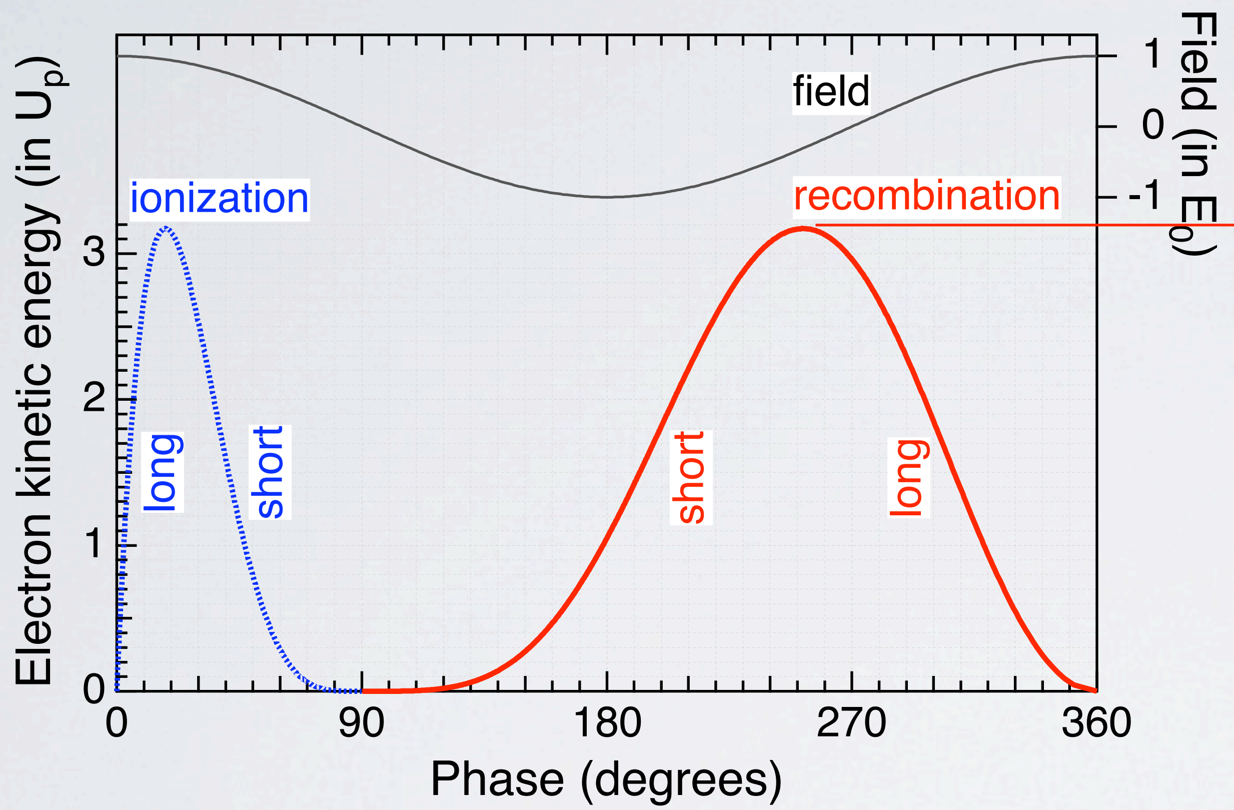
イオン化時刻と再衝突時刻の関係





石川顕一

カットオフ則のシンプルな説明



再結合時の運動エネルギーの最大値

$$3.17U_p$$

カットオフ

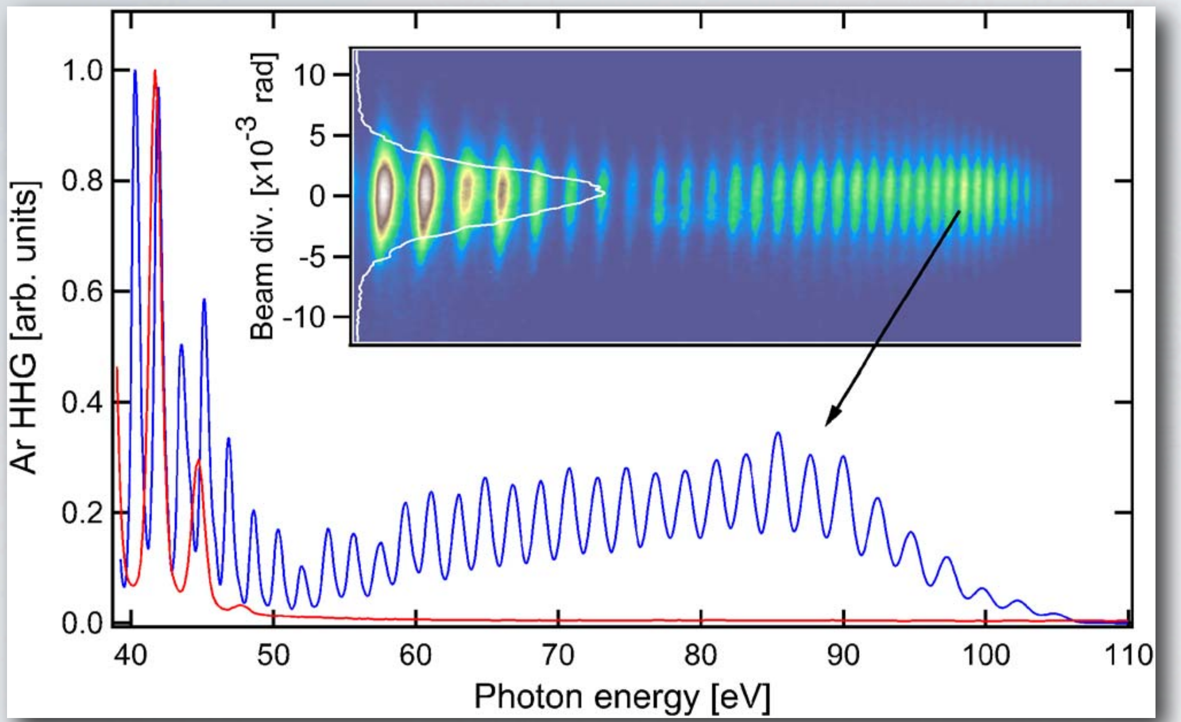
$$E_c = I_p + 3.17U_p$$

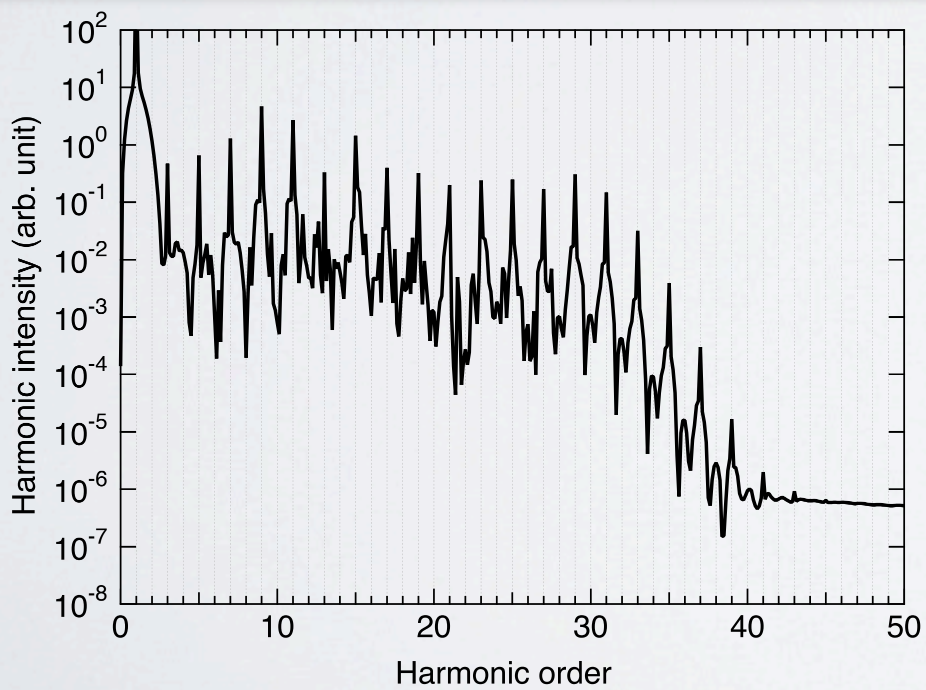
同じ高調波次数（光子エネルギー）に対応するイオン化時刻と再結合時刻のペアは２つある。

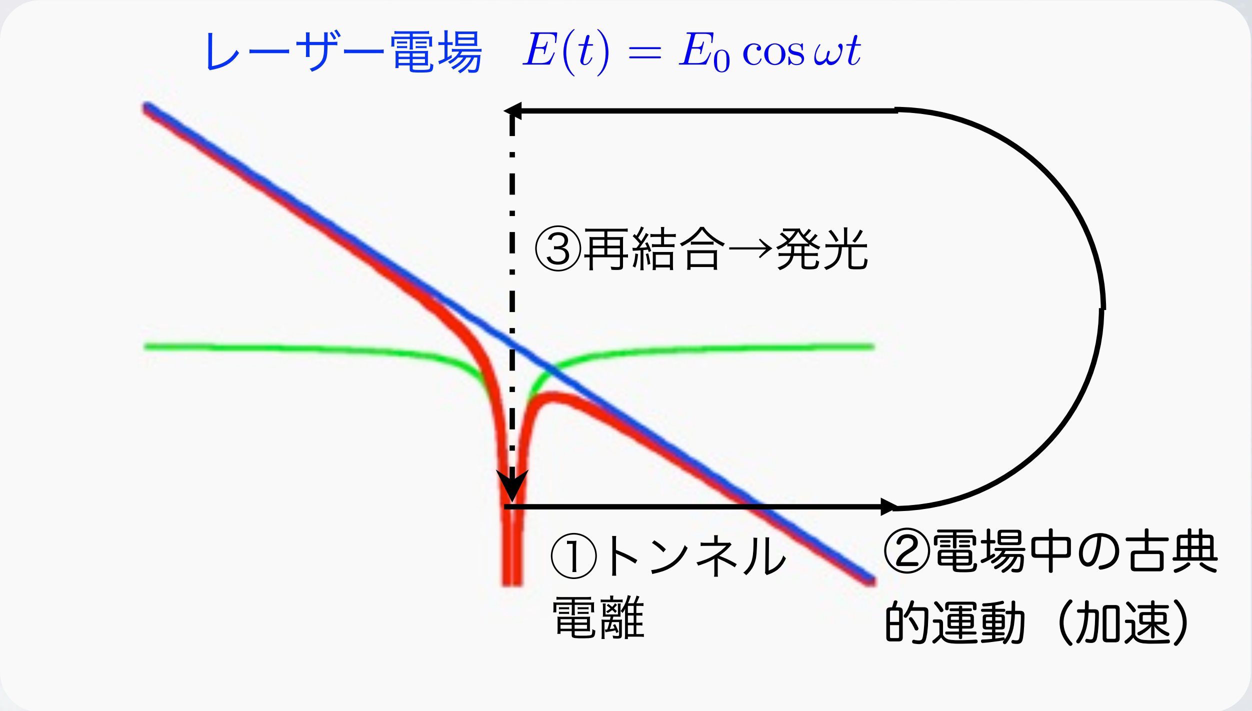
short trajectory
long trajectory

なぜ、高次高調波スペクトルは離散的なのか？

Takahashi et al., Appl. Phys. Lett. 93, 041111 (2008)

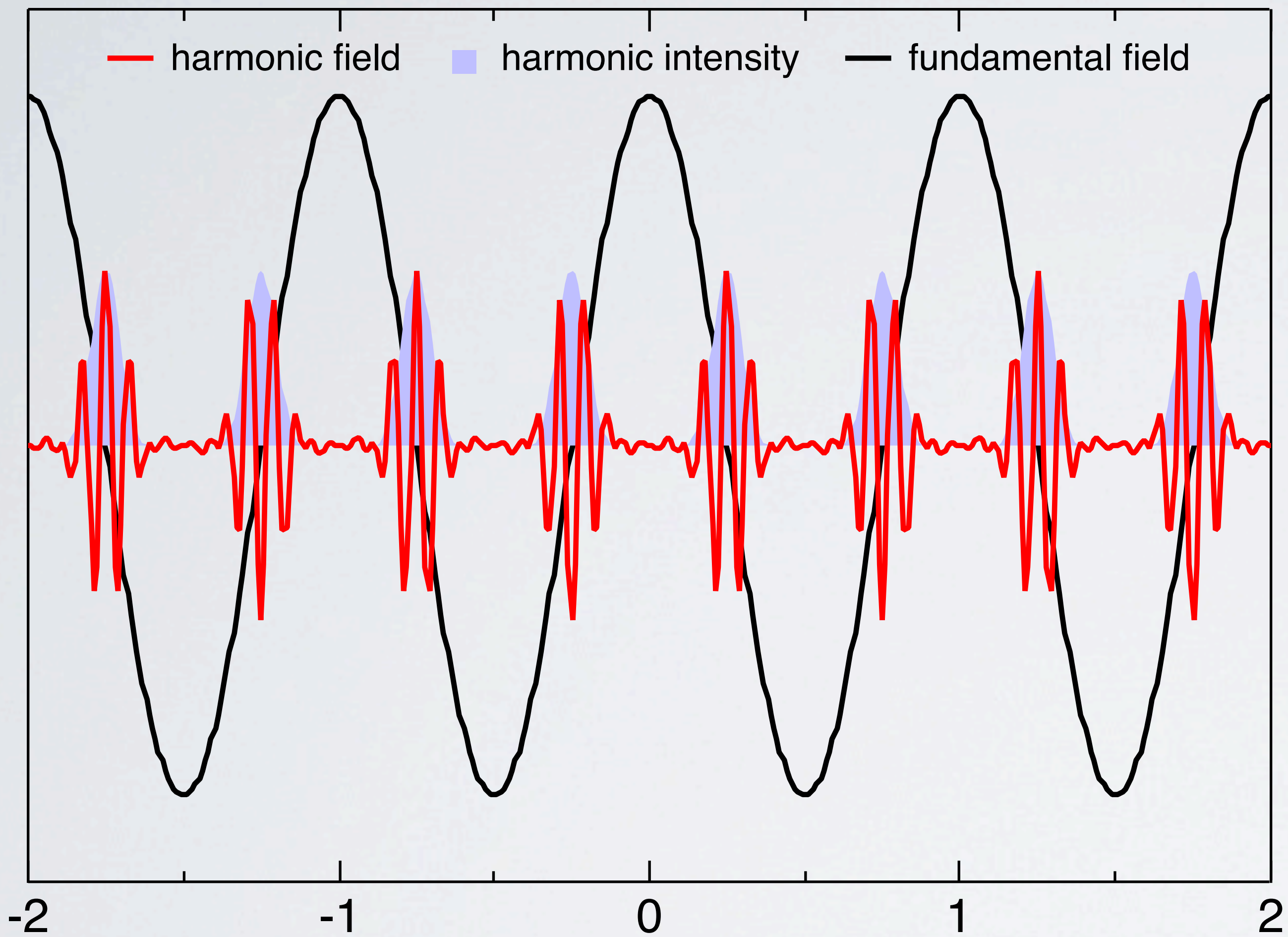






トンネル電離と高調波の発生は、レーザーの半周期ごとに起こる。

高調波の電場波形の概念図

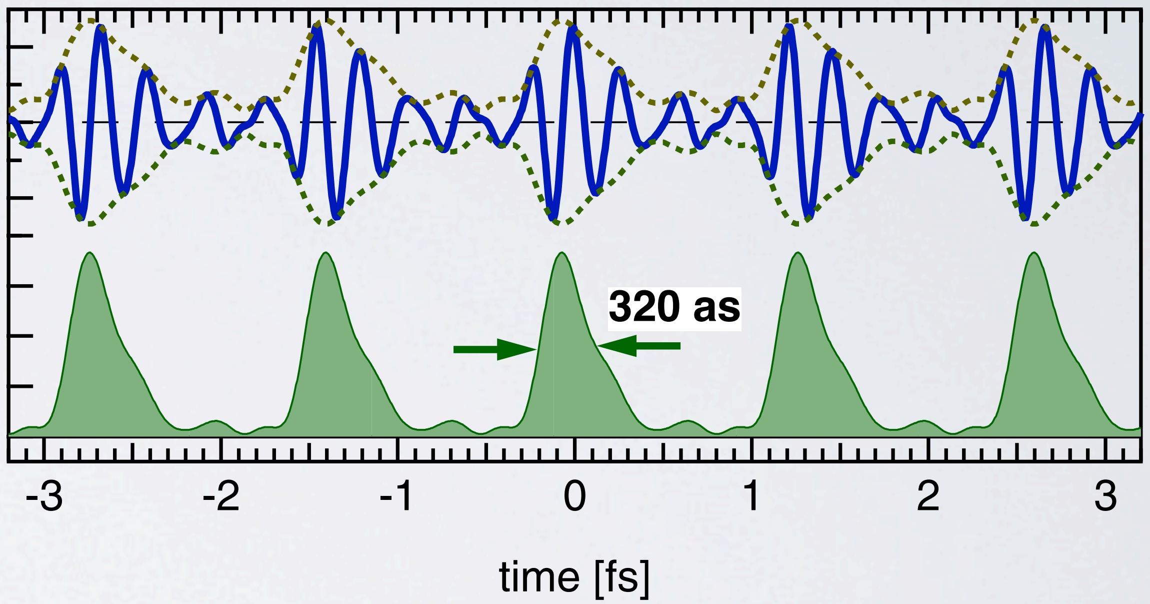


$$f(t) = -f(t - \pi/\omega_0)$$

基本波の奇数倍の周波数成分のみを含む。

実験的にも観測されている

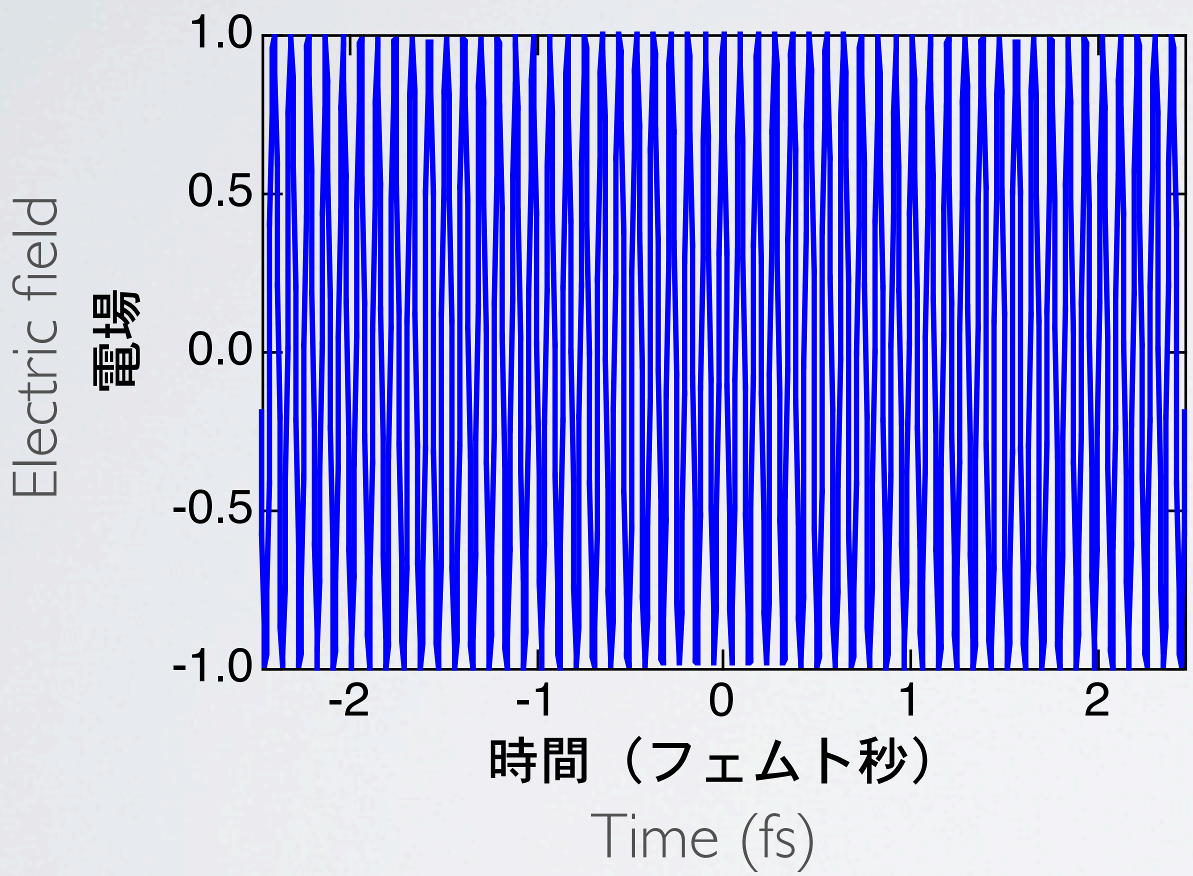
Nabekawa et al., Phys. Rev. Lett. 97, 153904 (2006)

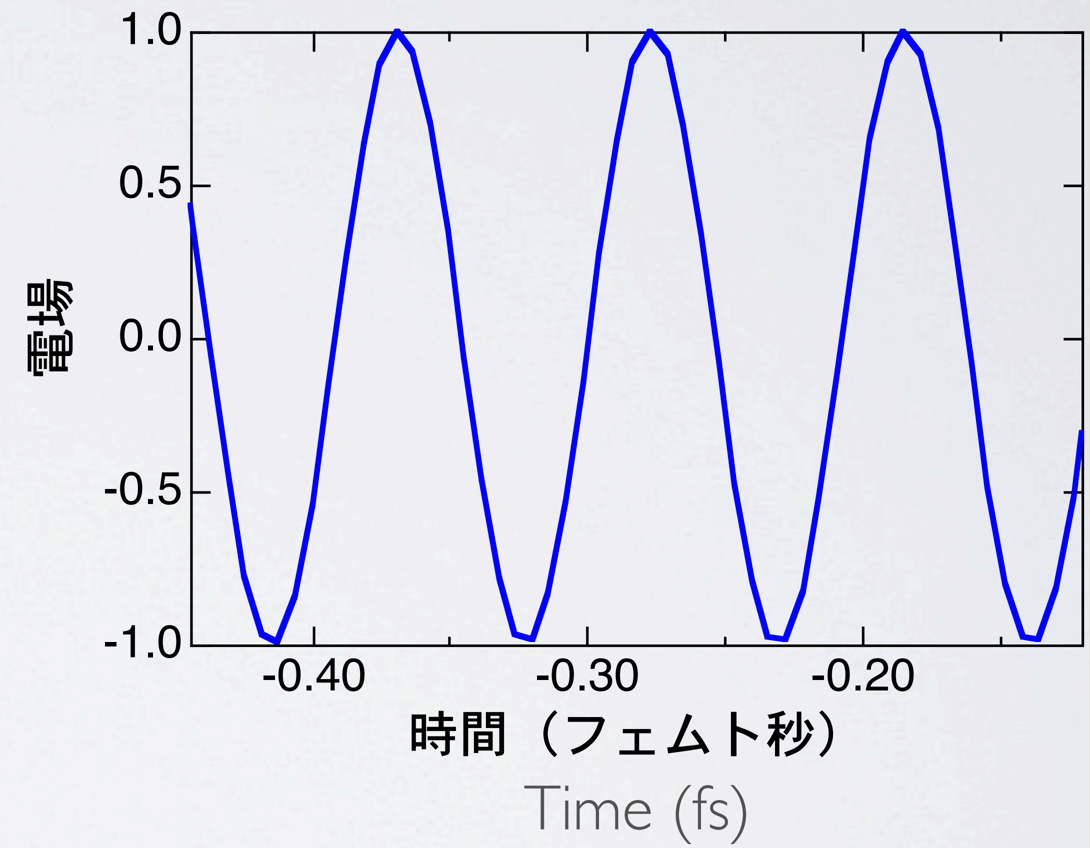


レーザーの１周期(2.7 fs)

１つの次数のみが存在するときの光電界

$$E_h(t) = E_q \cos(q\omega + \phi_q) = E_{2n+1} \cos[(2n+1)\omega + \phi_{2n+1}]$$





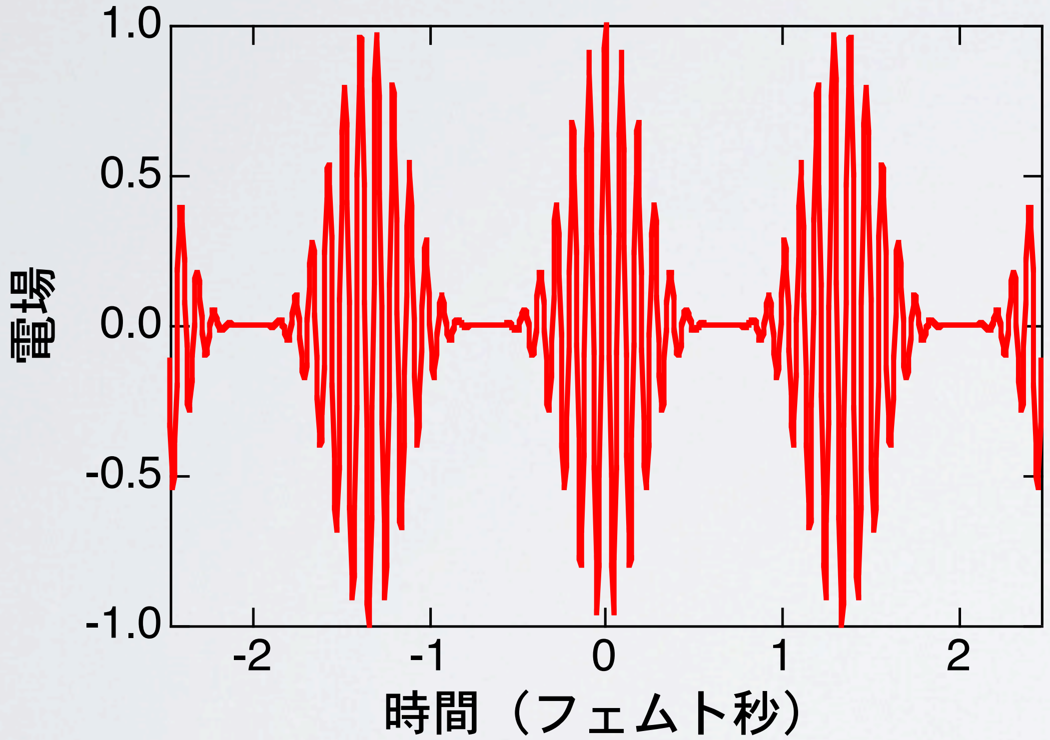
連続波（パルスではない）

Continuous wave (no pulse)

UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

複数の次数（奇数次）が混在するときの光電界

$$E_h(t) = \sum_q E_q \cos(q\omega + \phi_q) = \sum_q E_{2n+1} \cos[(2n+1)\omega + \phi_{2n+1}]$$



- アト秒パルス列になっている。
- パルスの間隔は、基本波の半周期
- 隣り合うパルスは位相が反転

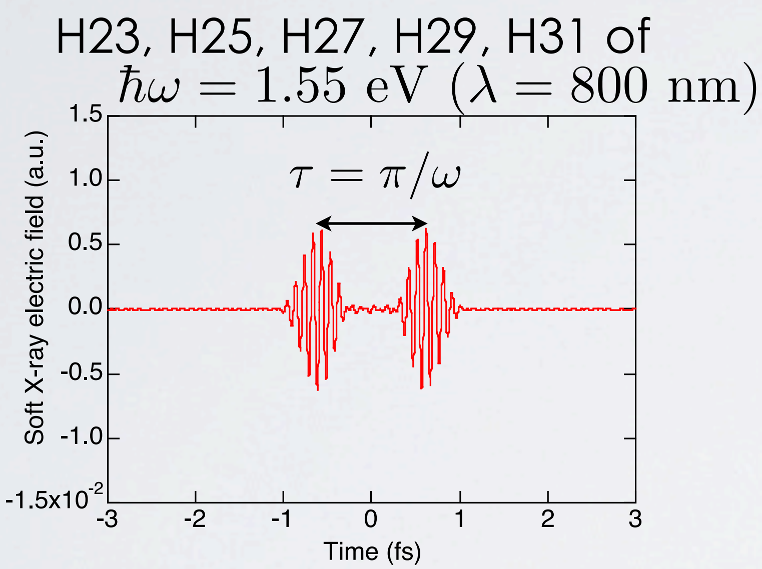
等間隔の周波数成分 ⟷ 等間隔のパルス列

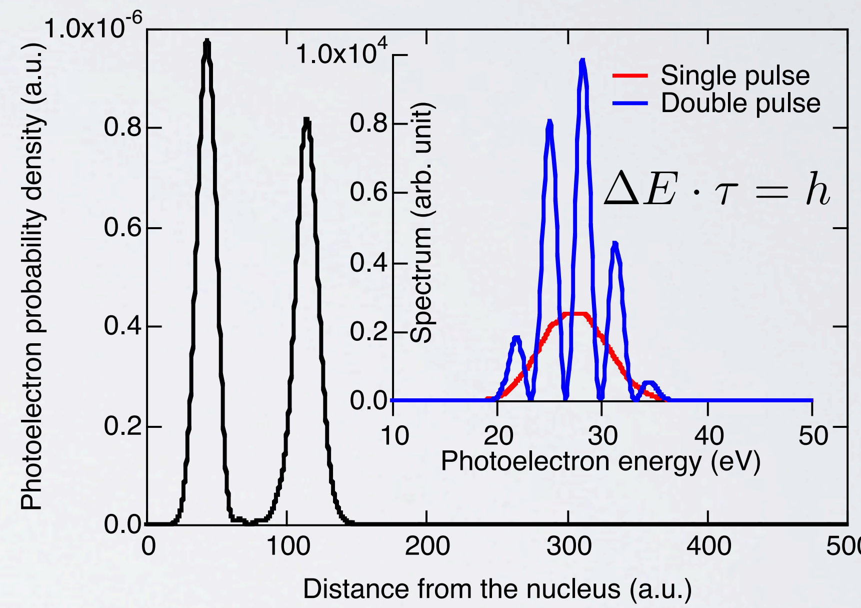
高次高調波の奇数次のみを含む離散的なピークは、二通りに解釈できる。

- 光子エネルギーの整数倍＋反転対称性
- **基本波の半サイクルごとの光放出**

一定の時間間隔で放出される電子波束のエネルギースペクトルは離散的になる

- トンネル電離
- アト秒パルス列に（１光子）イオン化された電子





光パルス（アト秒ダブルパルス）のスペクトルが離散的

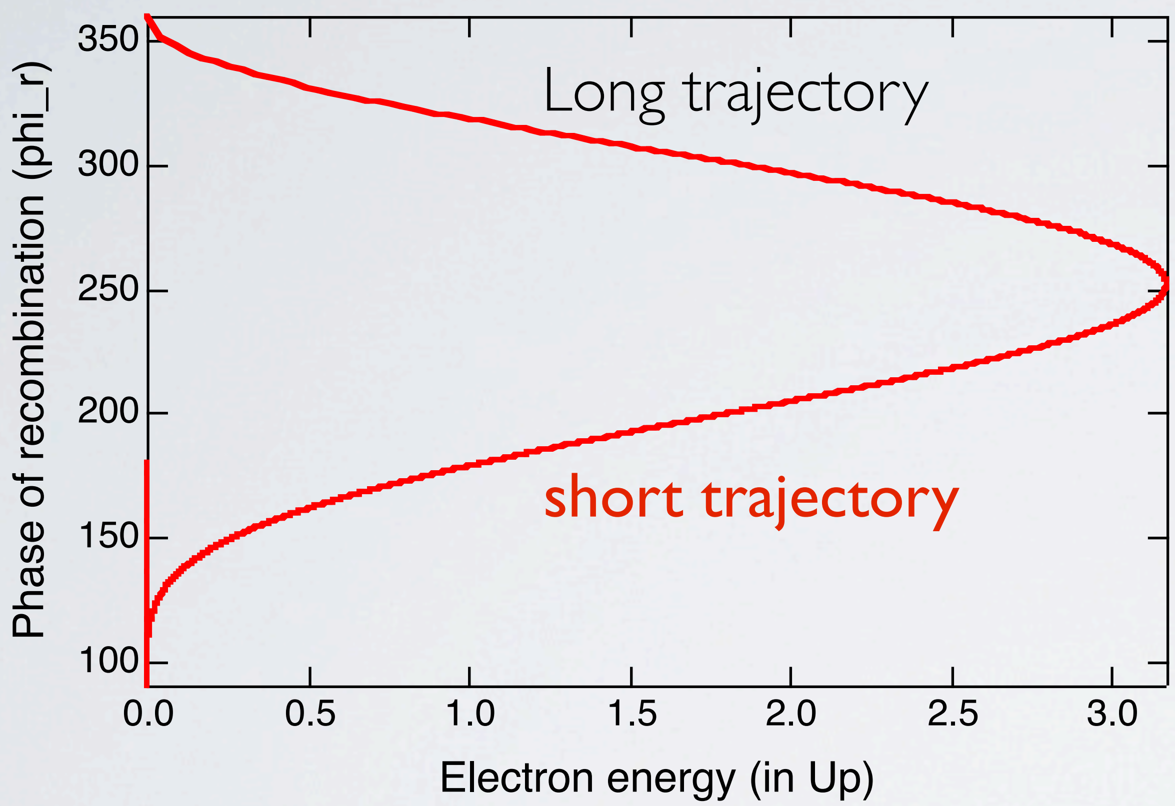
２つの電子波束が空間的に重なることによる干渉

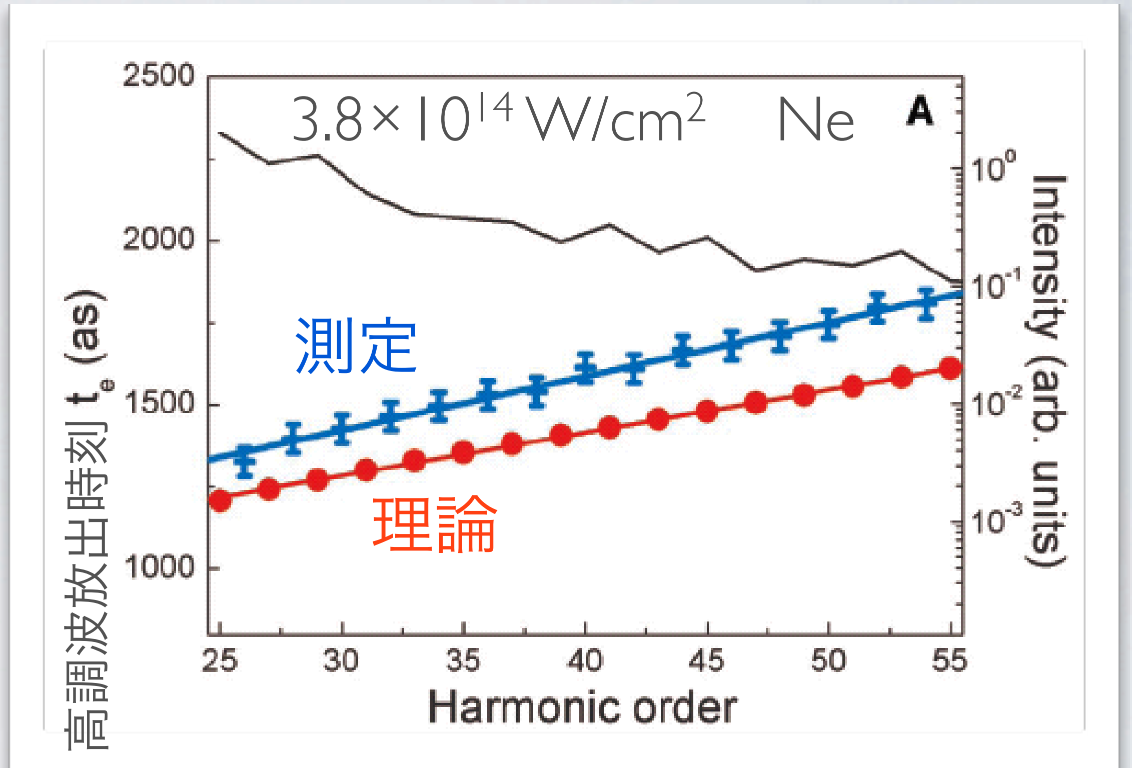
どちらのパルスにイオン化されたか分からないことによる干渉縞（ヤングのダブルスリットの時間版）

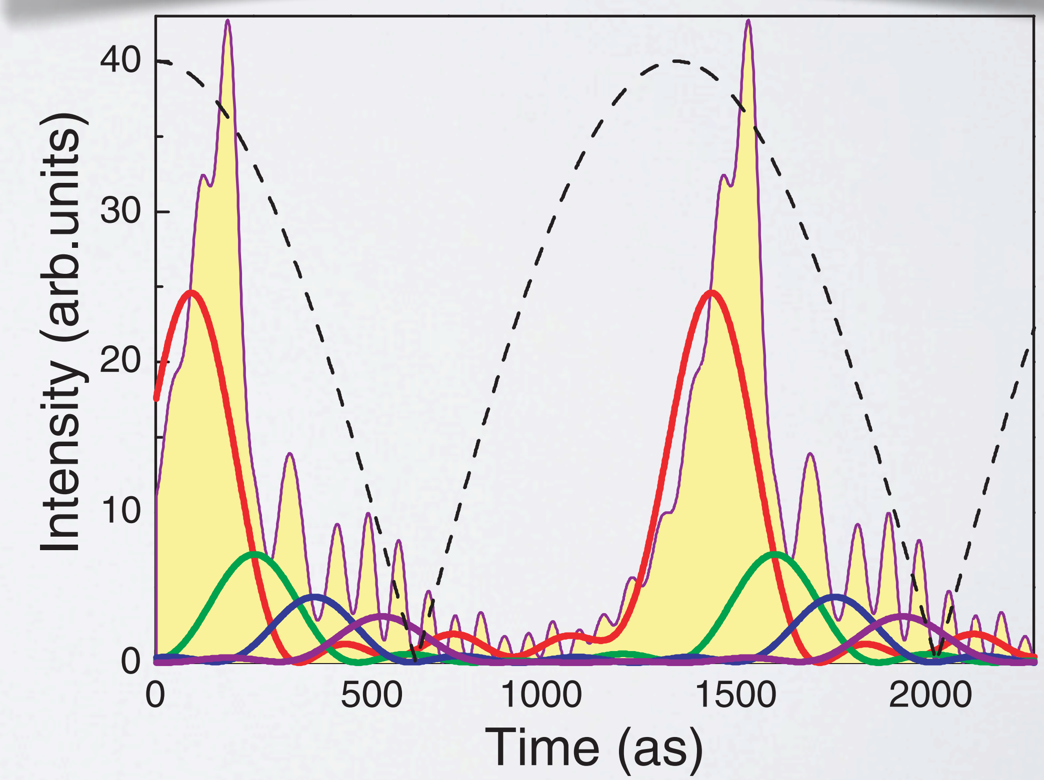
UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

K.L. Ishikawa, Phys. Rev. A 74, 023806 (2006) 石川顕一

次数によって高調波の発生時刻が異なる







Mairesse et al., Science 302, 1540 (2003)
Varju et al., J. Mod. Opt. 52, 379 (2005)

ショートトラジェクトリーの場合

低次が先に高次が後で発生する。

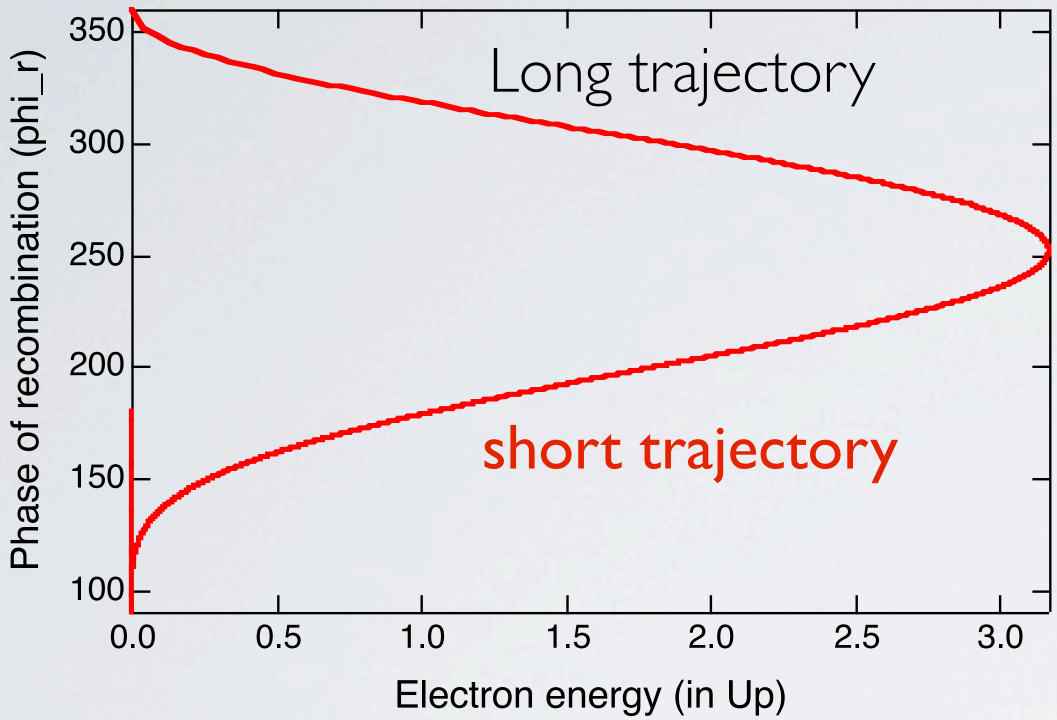
➡ **ポジティブチャープ**

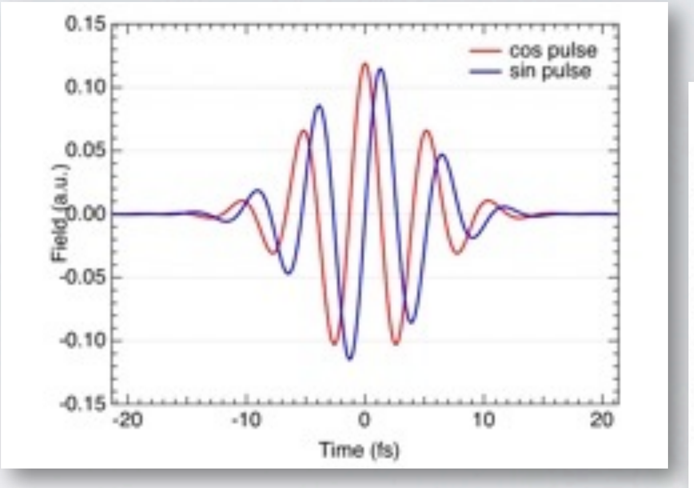
UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

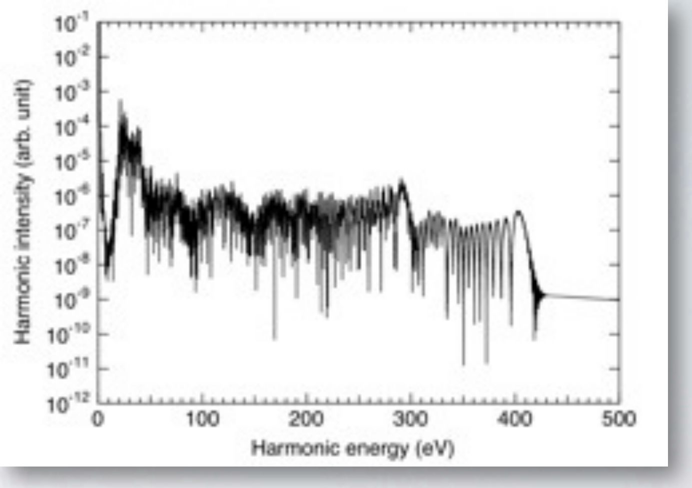
石川顕一

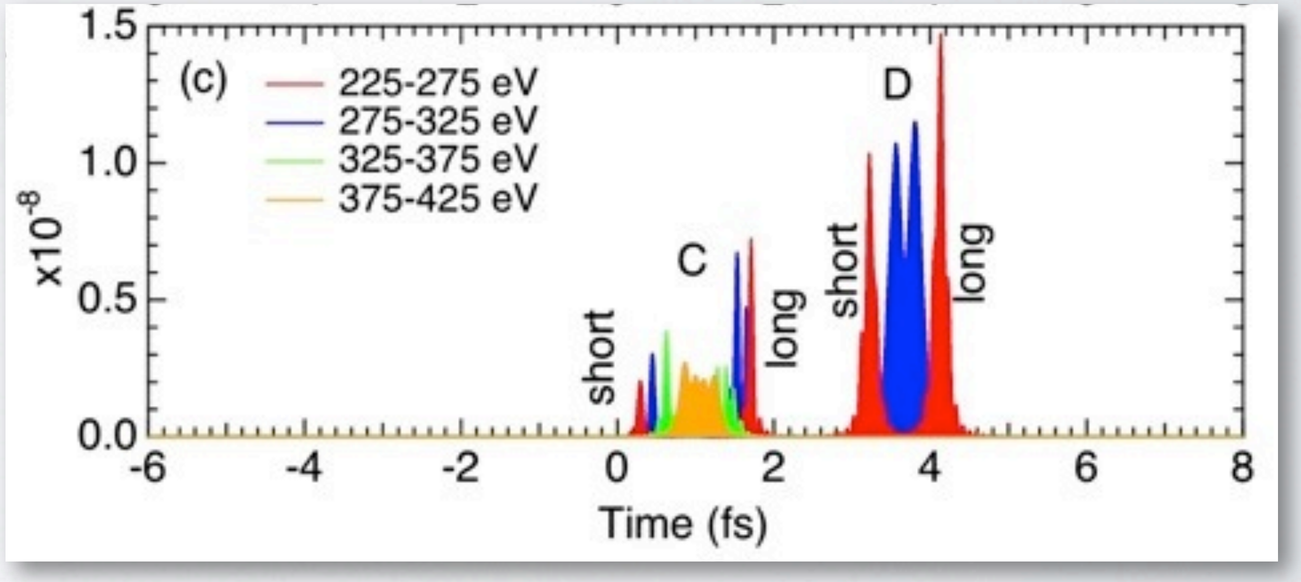
次数によって高調波の発生時刻が異なる

TDSEシミュレーション









ショートトラジェクトリーの場合

→ **ポジティブチャープ**

ロングトラジェクトリーの場合

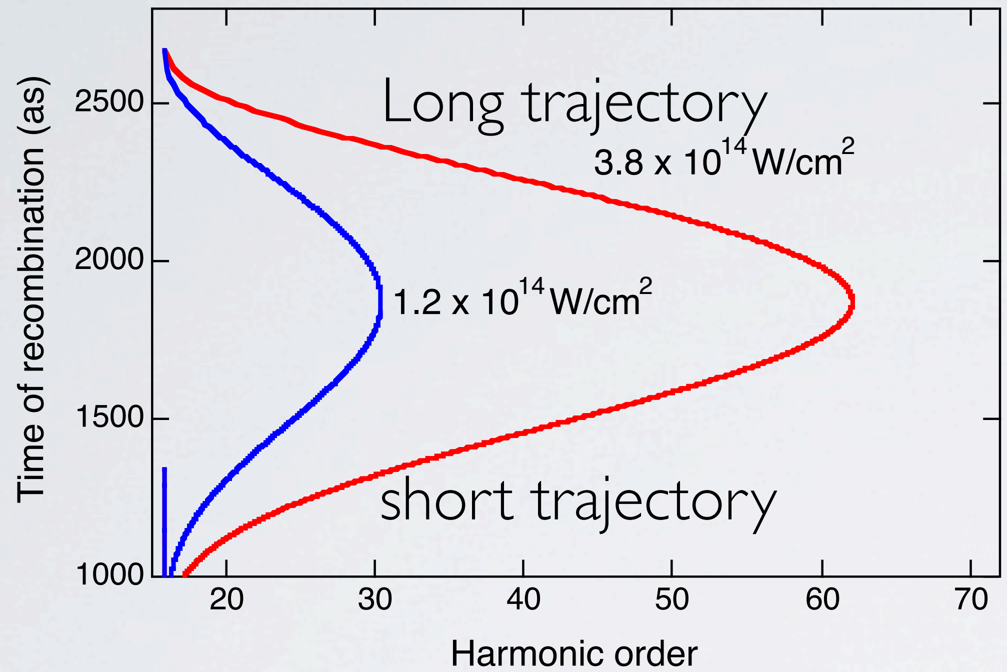
→ **ネガティブチャープ**

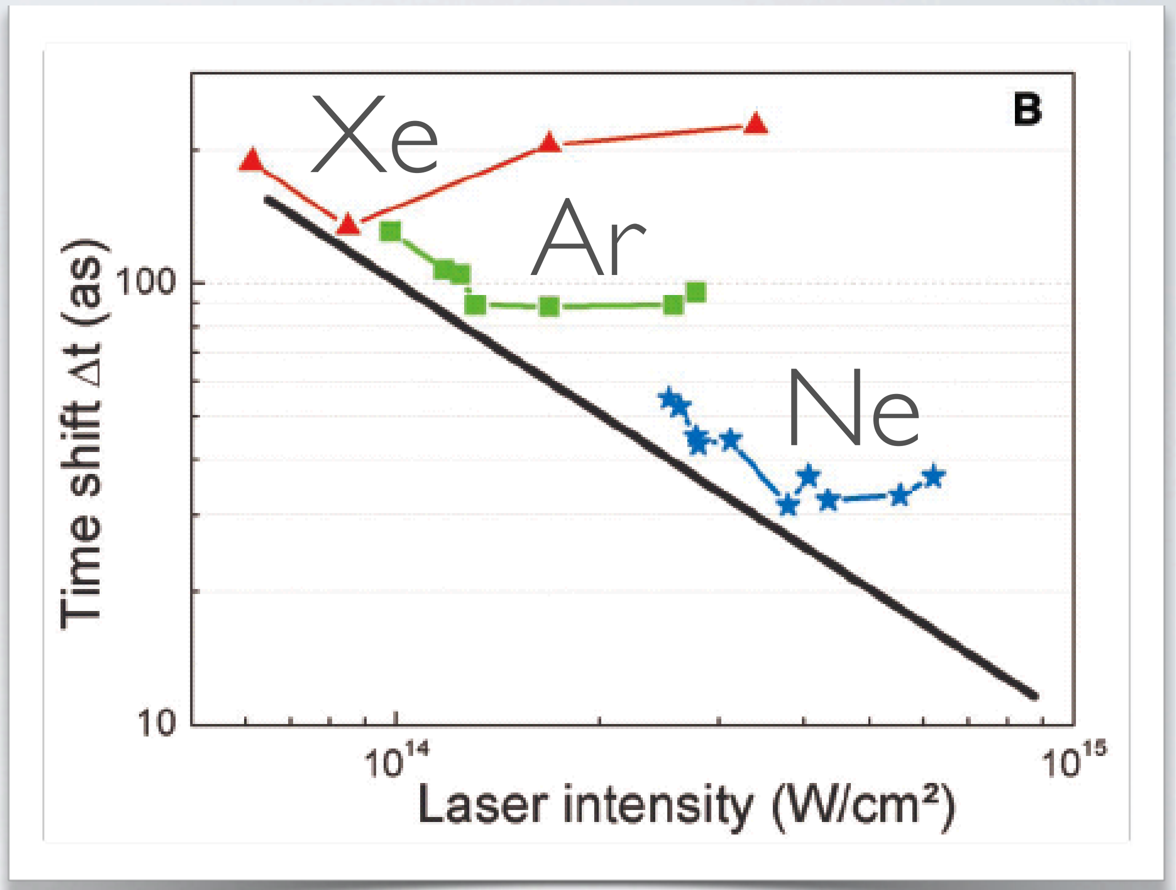
K. L. Ishikawa, "High-harmonic generation" in Advances in Solid-State Lasers, ed. by M. Grishin (INTECH, 2010) 439-464

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

強度によって高調波の発生時刻が異なる





Mairesse et al., Science 302, 1540 (2003)

ショートトラジェクトリーの場合

次数が同じなら、高強度の時の方が、早く発生する

同じ次数でも、強度によって発生時刻が異なる。

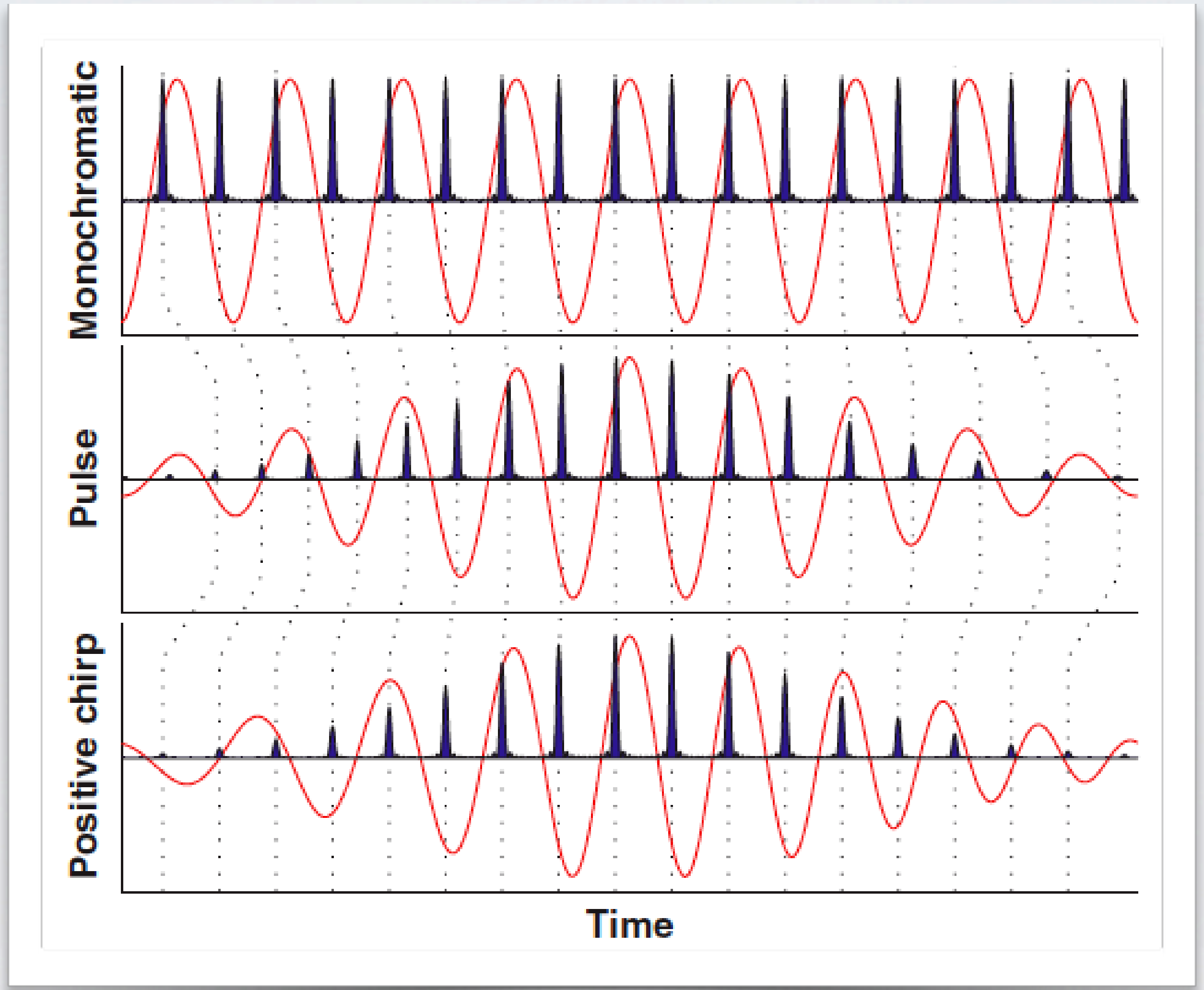
UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

次数が同じなら、高強度の時の方が、早く発生する

強度上昇時は発生間隔が短い（ブルーシフト）
強度下降時は発生間隔が長い（レッドシフト）

→ **ネガティブチャープ**



Varju et al., J. Mod. Opt. 52, 379 (2005)

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

高調波のチャープのまとめ

- **異なる次数間　→　ポジティブチャープ**
- **１つの次数の中　→　ネガティブチャープ**

本来量子力学的なこれらの現象（実験的にも観測されている）が、シンプルな３ステップモデルで説明できる。

高次高調波発生の量子論

Lewensteinモデル

Lewenstein et al., Phys. Rev. A 49, 2117 (1994)

高強度場近似

Strong-field approximation (SFA)

- 励起状態の寄与を無視　The contribution of all the excited bound states can be neglected.
- 連続状態に対する原子のポテンシャルの効果を無視（連続状態を平面波で近似）The effect of the atomic potential on the motion of the continuum electron can be neglected.
- 基底状態の減少を無視　The depletion of the ground state can be neglected.

$$i\frac{\partial\psi(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + V(\mathbf{r}) + zE(t)\right]\psi(\mathbf{r},t)$$

双極子モーメント

Time-dependent dipole moment

$$x(t) \equiv \langle \psi(\mathbf{r},t) \mid z \mid \psi(\mathbf{r},t) \rangle$$

$$= i\int_{-\infty}^{t} dt' \int d^3\mathbf{p}\, \langle \varphi(\mathbf{r})e^{iI_p t}|z|\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)\rangle \exp\left[-i\int_{t'}^{t} dt'' \left(\frac{[\mathbf{p}+\mathbf{A}(t'')]^2}{2}\right)\right] \langle \mathbf{p}+\mathbf{A}(t')|zE(t')|\varphi(\mathbf{r})e^{iI_p t'}\rangle + \text{c.c.}$$

3ステップ
モデル

再結合　レーザー場中での運動　イオン化

$$= i\int_{-\infty}^{t} dt' \int d^3\mathbf{p}\, \langle \varphi(\mathbf{r})e^{iI_p t}|z|\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)\rangle \exp\left[-i\int_{t'}^{t} dt'' \left(\frac{[\mathbf{p}+\mathbf{A}(t'')]^2}{2}\right)\right] \langle \mathbf{p}+\mathbf{A}(t')|zE(t')|\varphi(\mathbf{r})e^{iI_p t'}\rangle + \text{c.c.}$$

再衝突電子波束と基底状態と
の間の双極子モーメント

再衝突電子波束　イオン化

$$x(t) = i\int_{-\infty}^{t} dt' \int d^3\mathbf{p}\, d^*(\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)) \cdot \exp[-iS(\mathbf{p},t,t')] \cdot E(t')d(\mathbf{p}+\mathbf{A}(t')) + \text{c.c.}$$

transition dipole　遷移双極子行列要素

半古典的作用積分
semiclassical action

$$S(\mathbf{p},t,t') = \int_{t'}^{t} dt'' \left(\frac{[\mathbf{p}+\mathbf{A}(t'')]^2}{2} + I_p\right)$$

UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

高調波スペクトル＝双極子モーメントのフーリエ変換

$$\hat{x}(\omega_h) = i \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{t} dt' \int d^3\mathbf{p}\, d^*(\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)) \cdot \exp[i\omega_h t - iS(\mathbf{p},t,t')] \cdot E(t')d(\mathbf{p}+\mathbf{A}(t')) + \text{c.c.}$$

５重積分　five-dimensional integral

⬇

鞍点解析　saddle-point analysis

cf. 経路積分

鞍点解析 saddle-point analysis (SPA)

Saddle-point equations 解→トラジェクトリー trajectory

$$\frac{[p+A(t')]^2}{2} = -I_p$$

トンネル電離

t' イオン化時刻
t 再結合時刻

$$\int_{t'}^{t} [p+A(t'')]dt'' = 0$$

イオン化と再結合の位置が同じ

$$\frac{[p+A(t)]^2}{2} + I_p = \omega_h$$

高調波の光子エネルギー
= 再結合時の運動エネルギー
+ イオン化ポテンシャル

$$\hat{x}(\omega_h) = \sum_s \left(\frac{\pi}{\epsilon + \frac{i}{2}(t_s - t'_s)}\right)^{3/2} \frac{i2\pi}{\sqrt{\det S''(t,t')|_s}} d^*(p_s + A(t_s))$$
$$\times \exp[i\omega_h t_s - iS(p_s, t_s, t'_s)]E(t'_s)d(p_s + A(t'_s)),$$

- ３ステップモデルに物理的に対応

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

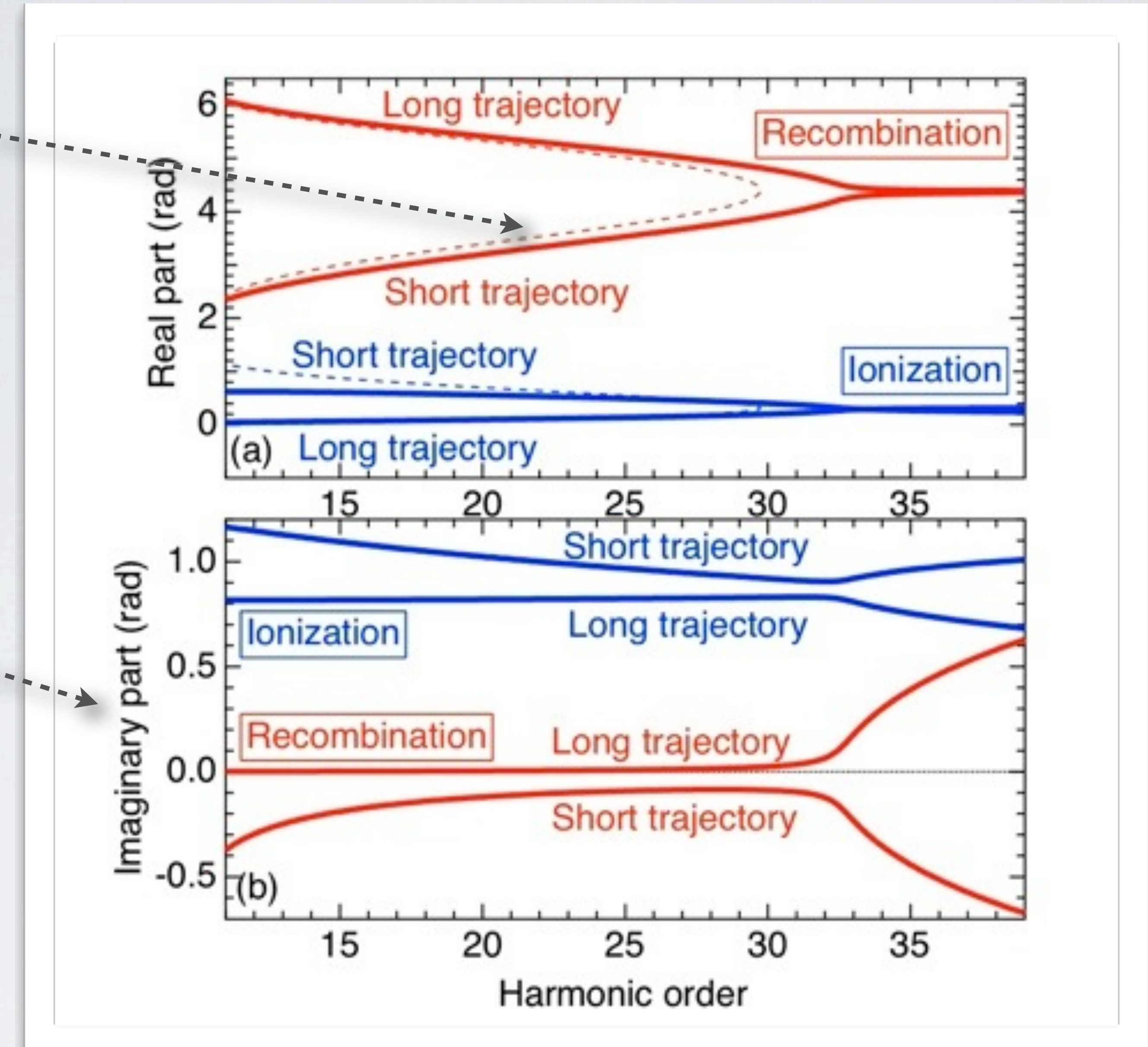
鞍点解の例

$E(t) = E_0 \cos\omega t$　Ar (I_p = 15.7596 eV)　$1.6 \times 10^{14}\,\mathrm{W/cm^2}$

$\phi' = \omega t'$　$\phi = \omega t$　の実部（上）と虚部（下）

破線は３ステップモデルの解

「トンネル時間」に対応すると解釈されている



カットオフ

$E_c = 3.17U_p + gI_p$

$(g \approx 1.3)$

- ３ステップモデルは、量子力学的なLewensteinモデルのよい近似になっている。→ ３ステップモデルの成功の理由

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

attosecond pulse train (APT)

アト秒パルス列

と

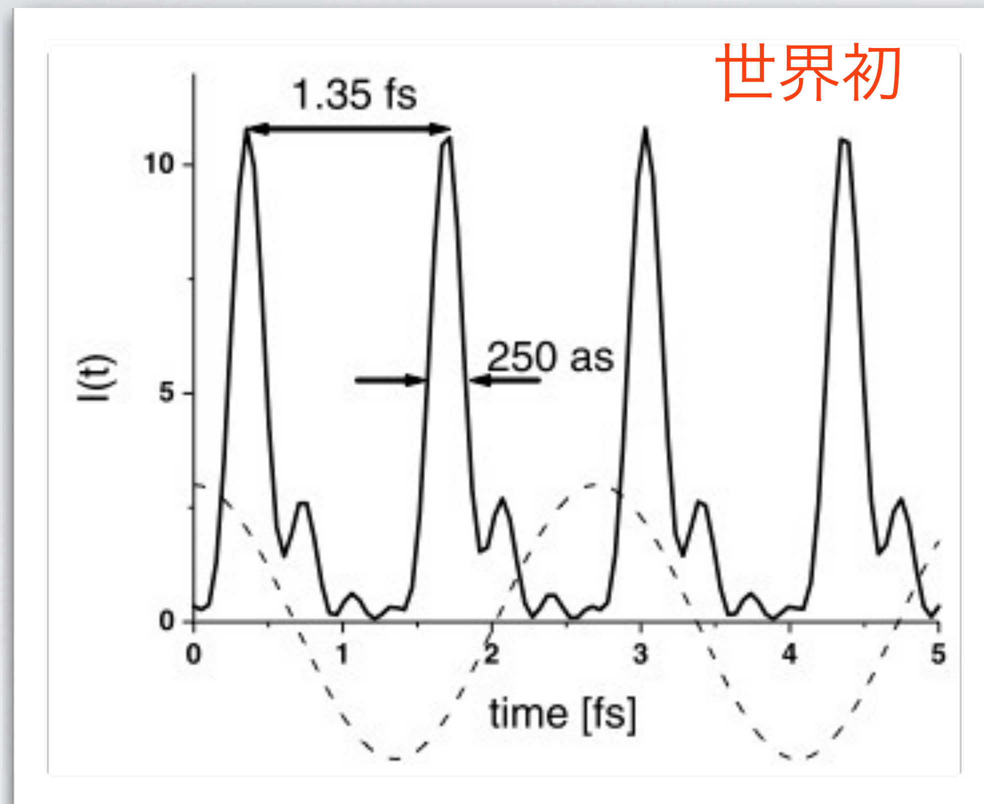
単独アト秒パルス

isolated attosecond pulse (IAP)

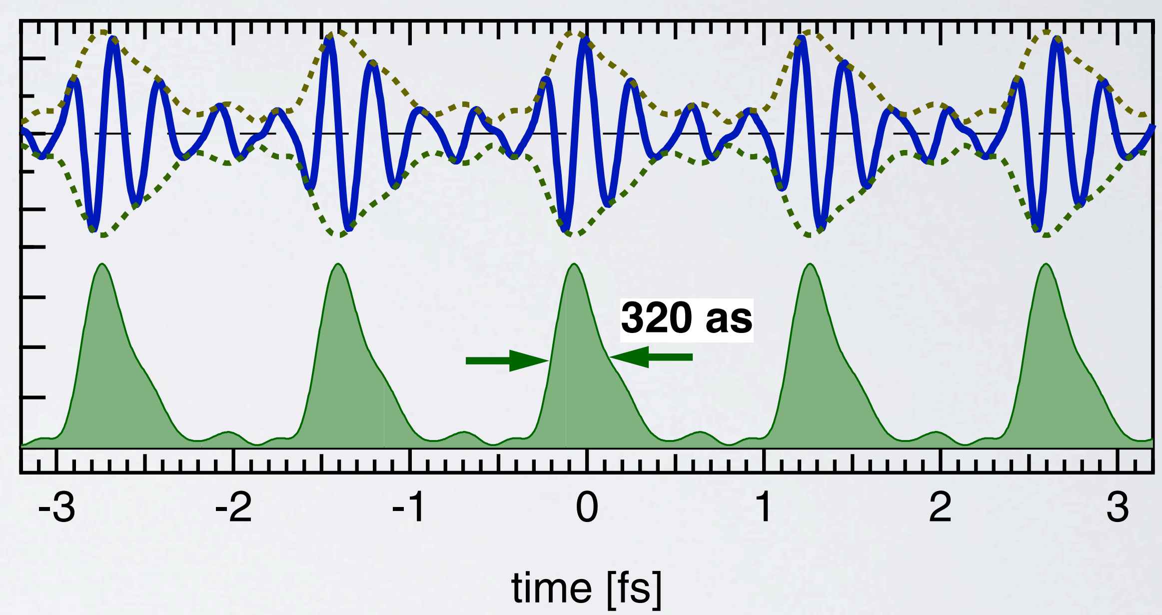
高次高調波は、基本波レーザーの半周期ごとにアト秒のバーストとして発生する（アト秒パルス列）

Paul et al., Science 292, 1689 (2001)

世界初



Nabekawa et al., Phys. Rev. Lett. 97, 153904 (2006)

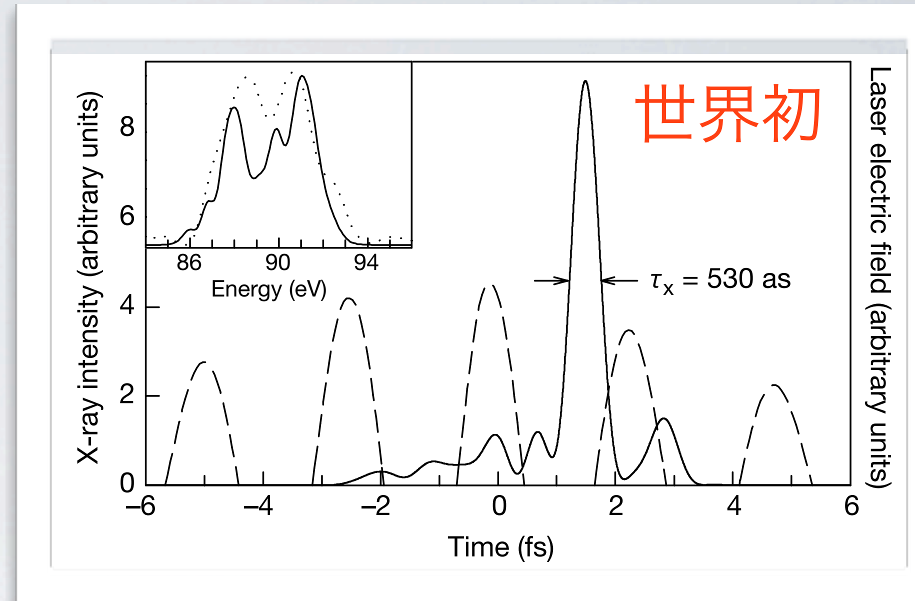


レーザーの１周期(2.7 fs)

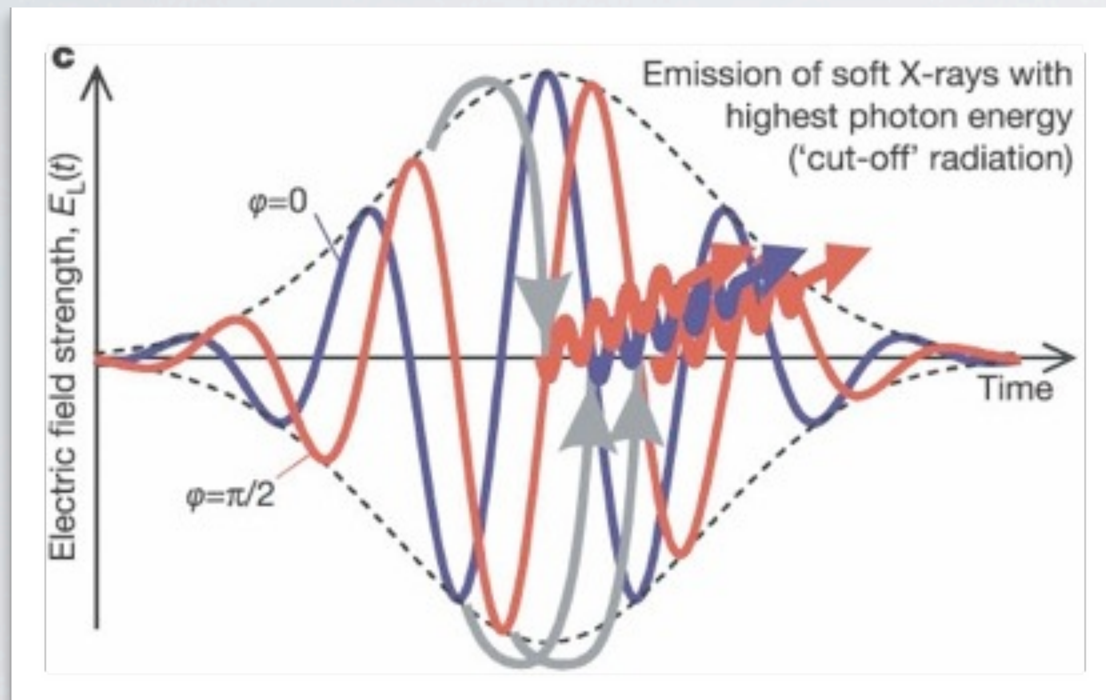
超短パルスレーザーを用い、１回だけバーストが発生するようにすれば、単独パルスになる。

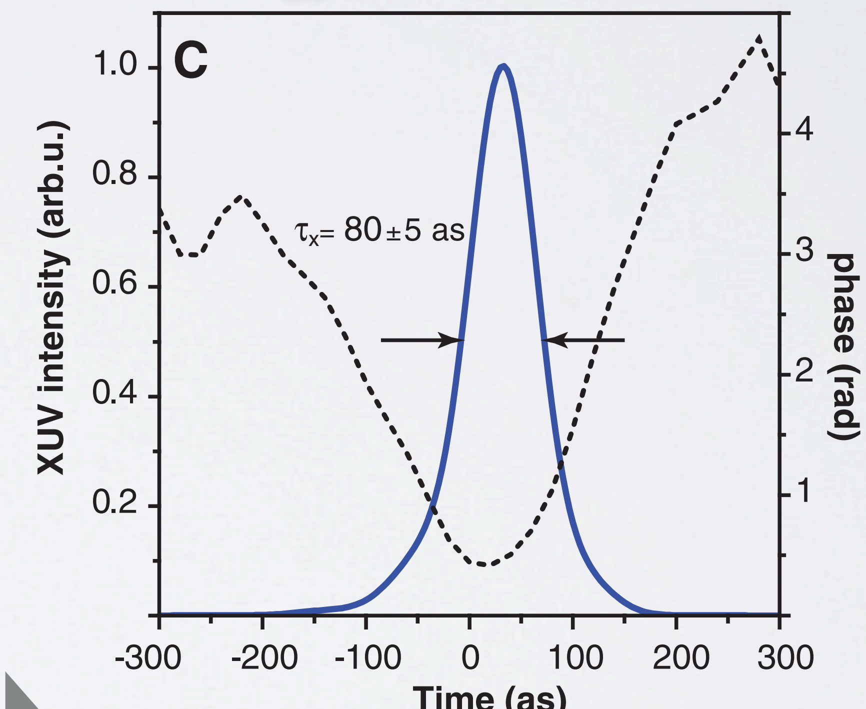
単独アト秒パルス

Hentschel et al. Nature 414, 509 (2001)



Baltuska et al. Nature 421, 611 (2003)





Goulielmakis et al. Science 320, 1614 (2008)

Light emission takes place only once.

光の放出は１回だけ

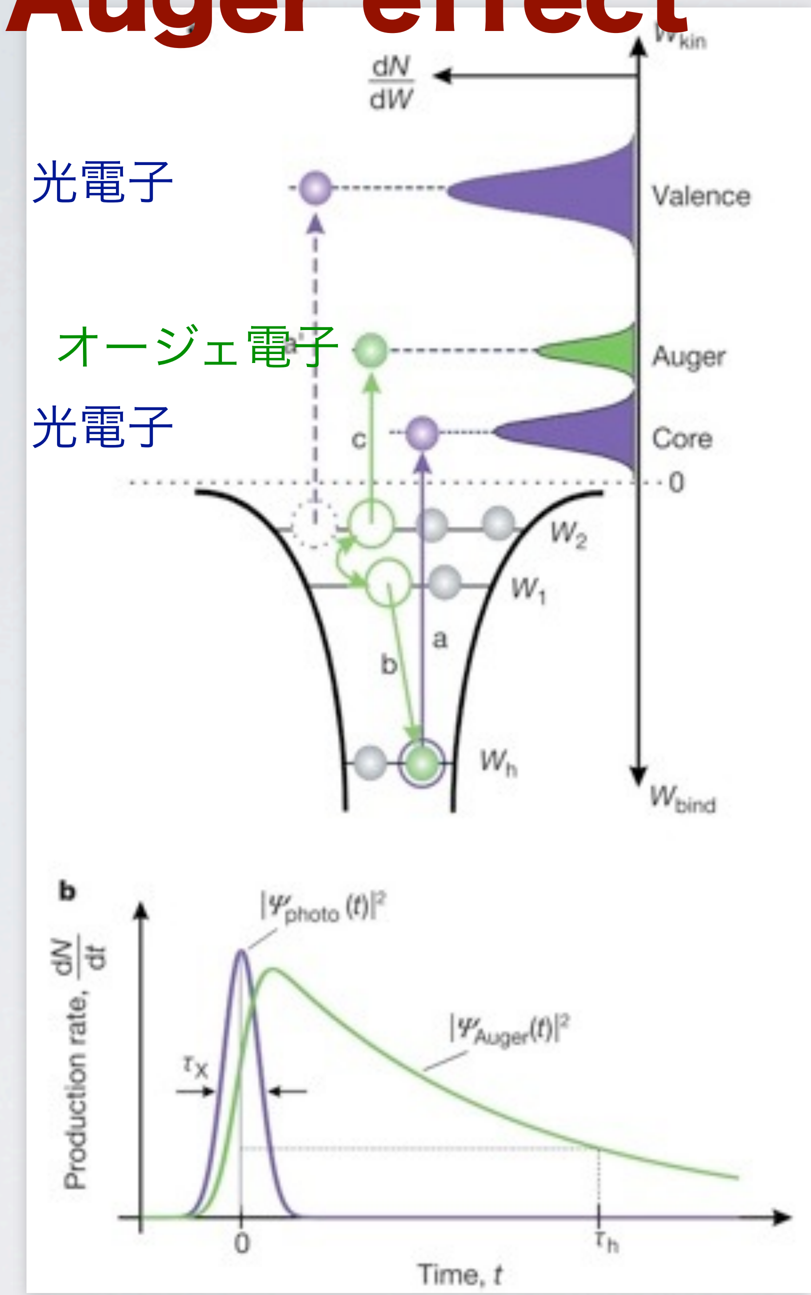
Attosecond (10^{-18} sec) pulse
アト秒パルス

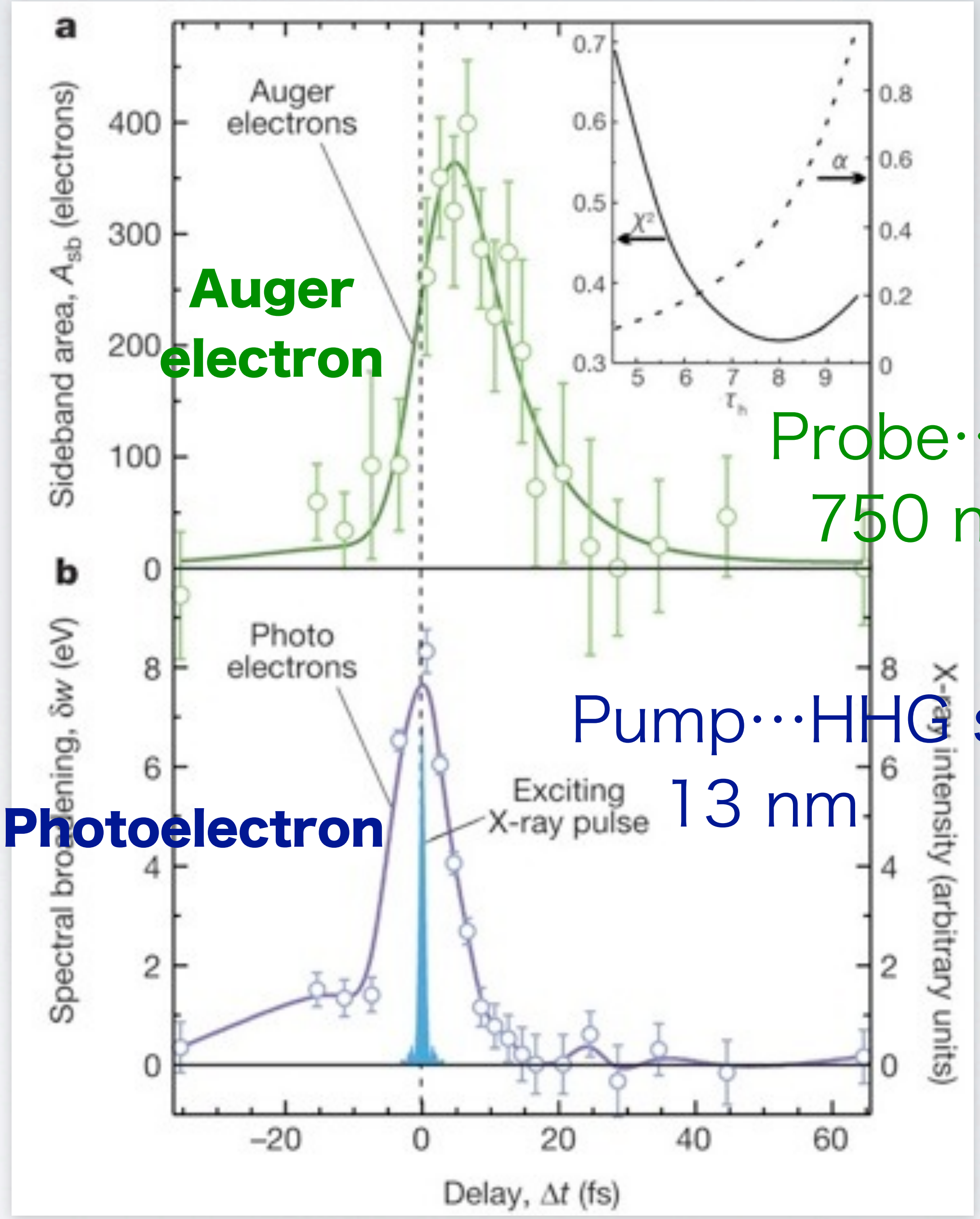
UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

石川顕一

時間分解オージェ電子分光

Auger effect

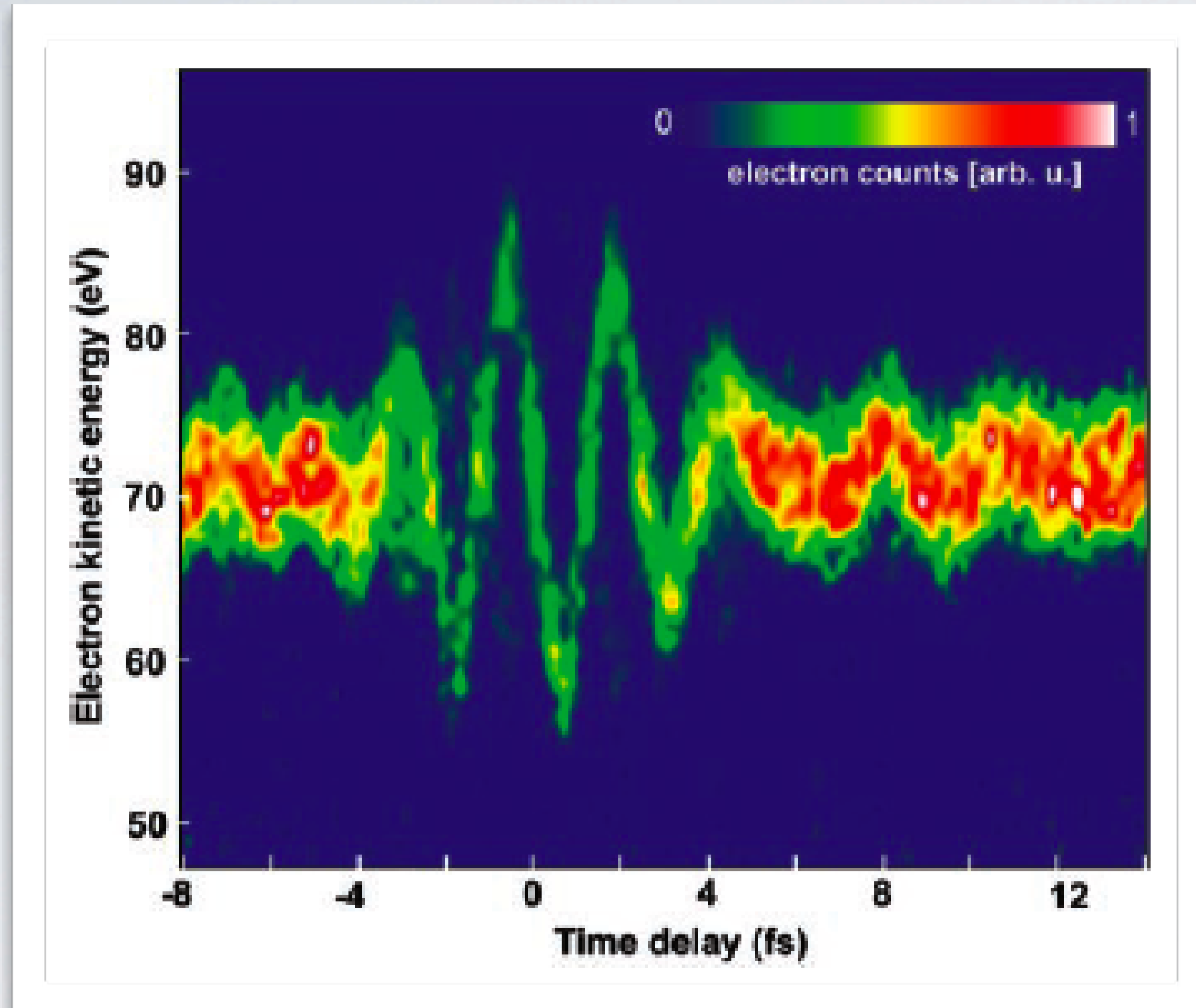


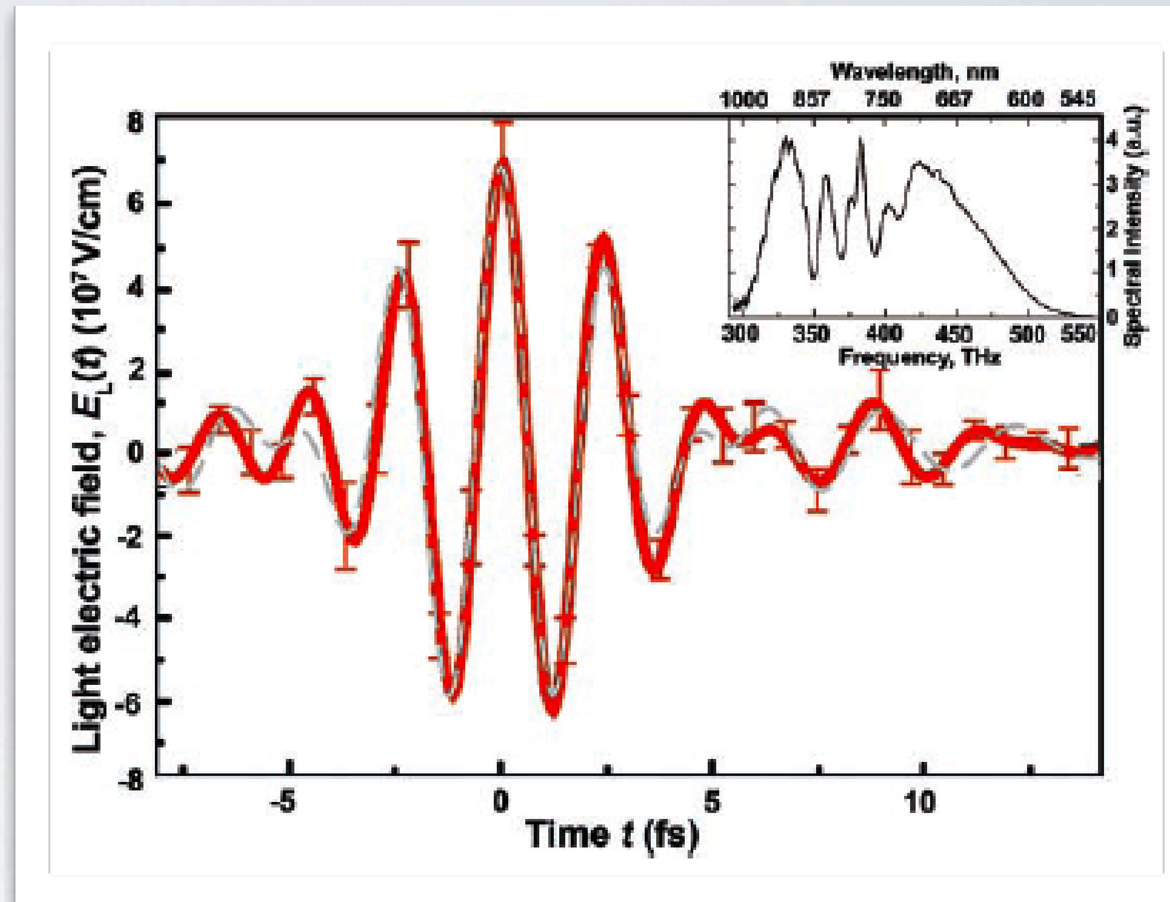


数フェムト秒程度の超高速過程が見える！
Ultrafast process ~ a few fs

Drescher et al. Nature 419, 803 (2002)

DIRECT MEASUREMENT OF LIGHT WAVES





- 光の電界の直接測定に初めて成功！→光が「電磁波」であることの直接的な証明

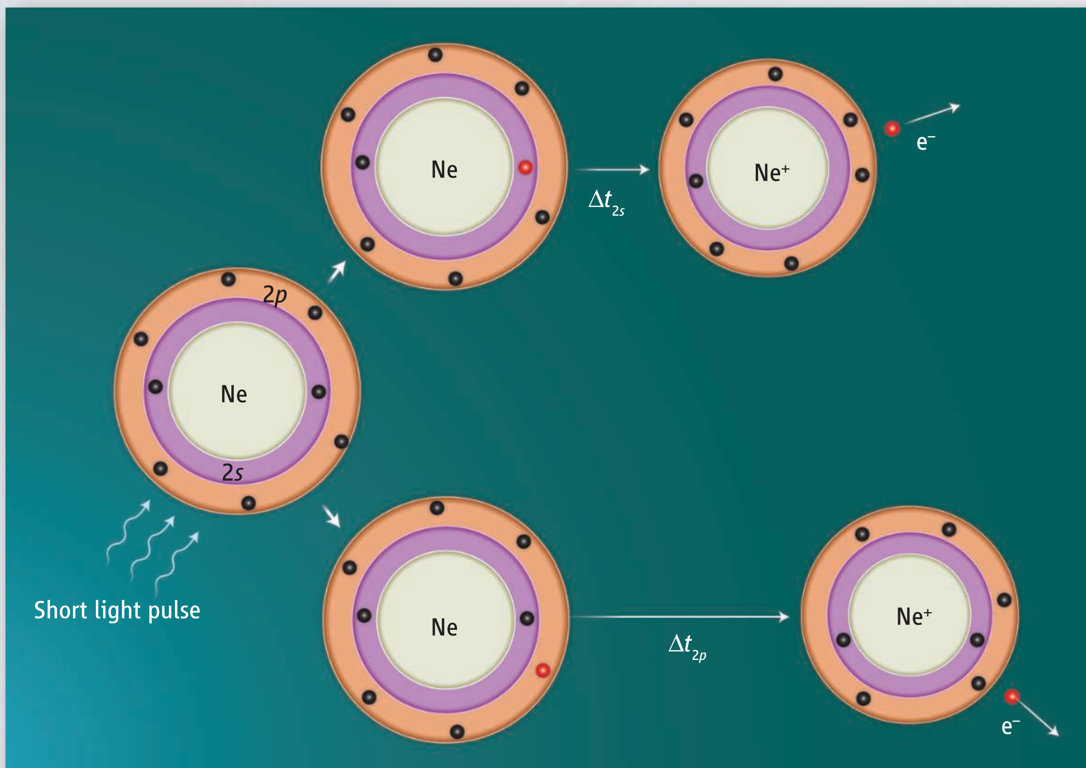
Direct proof of the wave nature of light

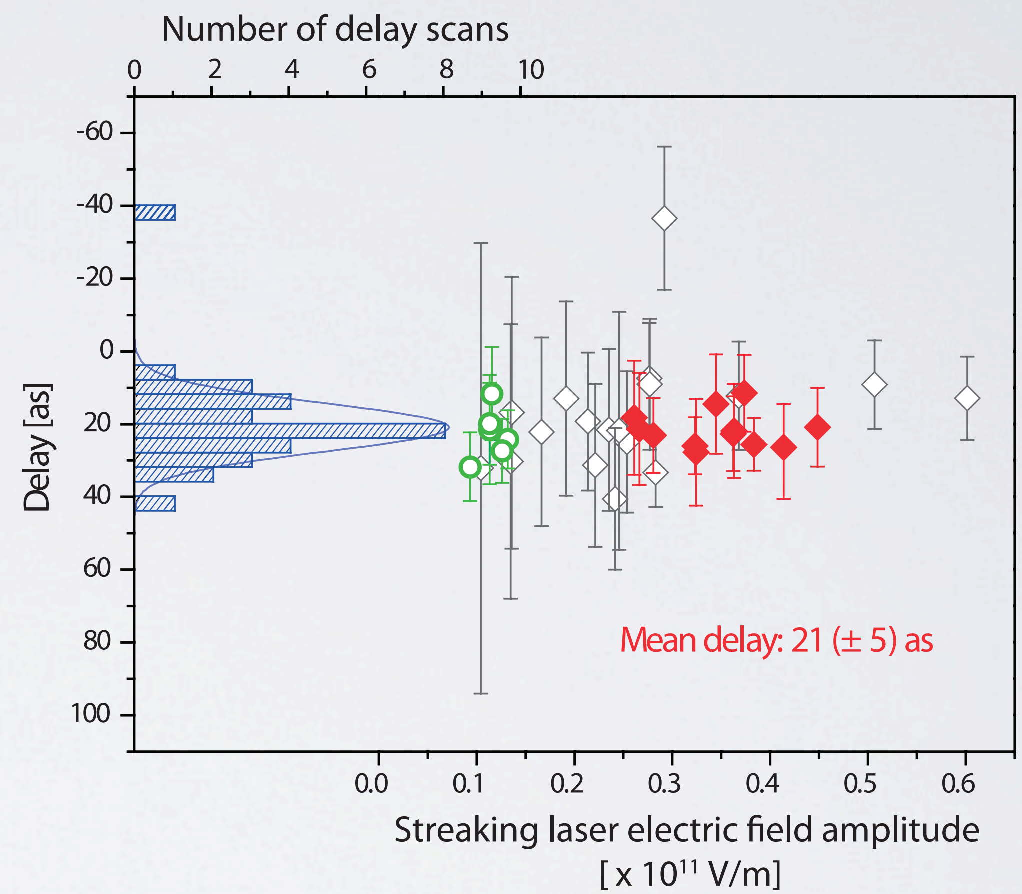
E. Goulielmakis *et al*., Science 305, 1267 (2004).

UT-PSC
Photon Science Center of the University of Tokyo

DELAY IN PHOTOEMISSION
WHEN DOES PHOTOEMISSION BEGIN?

The photoelectric effect is usually considered instantaneous. But ...





The 2s electron appears to come out 21 attoseconds earlier than the 2p electron!

- Eisenbud–Wigner–Smith time delay
- Continuum-continuum phase shift
- Core rearrangement ??

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

Schultze *et al.*, Science 328, 1658 (2010)
Klünder *et al.*, PRL 106, 143002 (2011)

石川顕一

まとめ

- 時間領域で考えよう！
- 時間依存で考えよう！

UT-PSC Photon Science Center of the University of Tokyo

チャレンジ

放射場を量子化して、高強度場現象（トンネル電離、高次高調波発生）を定式化するには、どうすればいいか？