分光法を最先端に推し進める高次高調波発生

ジェフ・ヘクト

改良された高次高調波発生技術はパルス継続時間をゼプト秒の時間スケールにまで推し進め、周波数コム分光法を極端紫外線にまで広げた。

高次高調波発生は非線形物理学の特異な現象を利用して、伝統的な非線形光学による第2、第3および第4高調波よりもはるかに高い周波数を生成する。超短レーザパルスを適切なガスに注入すると、コヒーレント光の爆発がポンプ光の奇数高調波で起こり、その広がりは何オクターブにもなる。**図1**に示すように、それぞれの高調波のエネルギーは、まず低周波数側で低下し、次に連続する高調波が同じレベルのエネルギーをもつ平坦状になり、最後にさらに高い周波数でゼロに向けて再低下する。

1980年代末に初めて実証された高次高調波発生は、コストが高く使いにくい加速器を使用しなくても、極端紫外線（EUV）と軟X線の領域のコヒーレント光を発生できるため、活気に満ちた研究分野になった。現在の高次高調波発生は超高速物理学の最前線を押し広げ、そこでは研究者たちがアト秒からゼプト秒への研究の移行を目指している。また、最新の実験では研究者たちが高次高調波技術を使用して、従来は不可能であった分光測定を十分に可能にするEUVフェムト秒周波数コム発生に成功した。

高次高調波の物理学

高次高調波は極端に短く強力なレーザパルスが希ガスと相互作用したときに発生する。パルスのピーク近傍の強い電場は電子を原子の外殻から引き出すが、電子場の方向は原子がイオン化される前に変化する。その結果、電子は原子のより低いエネルギー状態に落ち込み、その余分なエネルギーがポンプレーザ周波数の一連の奇数高調波として解放される。ポンプ強度が10^{13}W/cm^{2}を超えると、放出された光の強度は高調波の多数の次数にわたり一定に近い状態で推移し、高調波の次数がさらに大きくなると急激に低下する。この過程のエネルギー変換効率は低く、高次高調波の強度は入力パワーに比べると非常に小さい。

発生する高調波の次数、出力、カットオフ波長などの詳細は使用する希ガスの種類とポンプパルスの波長、継続時間、繰り返し速度などの特性に依存する。ポンプパルスの波長が長くなると、光子エネルギーが低くても高次高調波は発生する。イムラアメリカ社（IMRA America）のレーザ研究部長を務めるマーチン・ファーマン氏（Martin Fermann）の説明によると、電場の変化は長波長ほど遅くなり、電子の加速に必要な時間が長くなるため、電子が原子と再結合するときに放出するエネルギーが大きくなる。例えば、波長800nmのTi:サファイアレーザを用いて励起されたアルゴンの遮断波長は約25nm（50eV）になるが、1.4μmの波長でポンピングすると、12nm（100eV）の短い波長になる[1]。このトレードオフは複雑で、高調波の強度は遮断周波数の減少とともに低下する。

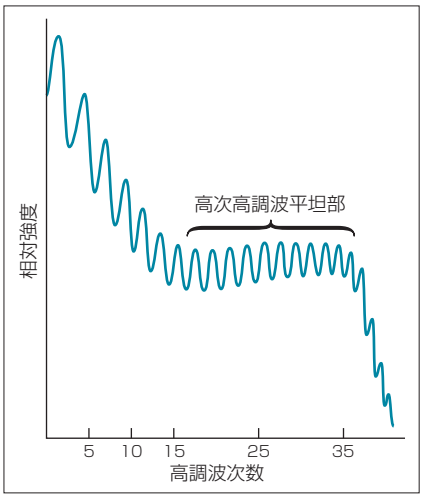

図1　希ガス中の高次高調波発生は奇数高調波がピークを示す。高調波の次数が大きくなると、出力はまず減少し、次に平坦になり、最後はふたたび減少してゼロになる。高調波出力の実際の測定には、最低次高調波と平坦部との間の低強度ゾーンなどのより多くの特徴が含まれる。

高次高調波の強度は低いが、EUVと軟X線の領域は既存レーザの使用が不可能であり、シンクロトロン光源は大型でコストが高く複雑になるため、高次高調波はこれらの領域の研究に適している。初期の高次高調波システムは数ヘルツから数千ヘルツの繰り返し速度をもつモード同期Ti：サファイアレーザと出力パワーを増強する再生増幅器を用いて構築された。現在、このシステムは特殊な応用を目的にした開発が行われている。

アト秒物理学

高次高調波から得られる広帯域の魅力の1つはアト秒（10^{-18}s）領域のパルスを発生できることだ。そのためには少数

サイクルパルスを低い繰り返し速度で発生できるレーザ発振器が必要になる。

研究者たちは、まず、それ自身がより短いパルスを放出するレーザを開発し、より高次の高調波を発生する軽い希ガスを採用して、アト秒領域へと突き進んだ。2008年になると、独マックスプランク量子光学研究所（Max Planck Institutes for Quantum Electronics）のエレフテリオス・グーリエルマキス氏（Eleftherios Goulielmakis）と同僚は、ネオンガスを直接励起して、80asパルスの新記録を達成した。このパルスは12～21nm（60～100eV）の帯域に10^{11}以上のEUV光子が含まれる。そのためには3.3fs（約1.5サイクル）の継続時間をもつ720nm光の300μJパルスを発生させ、ネオンに集光することが必要であった。彼らはその成功を超高速過程、つまり発生した高調波の位相散逸の回避にあると説明し、このような短いパルスは「アト秒分光法の分解能限界を原子単位時間（約24as）にまで押し込み、電子相関の実時間観察を可能にする」と将来への期待を述べた[2]。

より広い帯域をもつパルスの発生は、より長波長のレーザ発振器の使用と最軽量の希ガス、つまりネオンの励起が必要になる。JILAと米コロラド大学（University of Colorado）のテニオ・ポプミントチェフ氏（Tenio Popmintchev）と共同研究者は、20Hzピコ秒Nd：YAGレーザでポンプする新しい光パラメトリックチャープパルス増幅器を使用して、6サイクル、3.9μmの8.5mJアイドラパルスを発生させた。彼らが2011年のCLEOで発表したパルスはそれまでの中赤外フェムト秒パルスの最高となるパルスエネルギーが得られた[3]。これらパルスを位相整合して気圧の高いガスを充填した中空導波路に通すと、高次高調波スーパーコンティニュームが発生した。彼らは導波路中の35気圧のヘリウムを使用して、5031次の高調波に相当する0.78nm（1.6keV）にまで広がる位相整合波を発生させた。この圧力は他の研究者よりもはるかに高く、それまでの最大帯域幅となる広がり1.3keV（4～0.78nm）のコヒーレントスーパーコンティニュームが得られた。この帯域幅は継続時間がわずか2.5asのフーリエ変換パルスを十分に発生できる。彼らはパルス継続時間の限界を測定しなかったが、その方法は「ゼプト秒の時間スケールに到達できる」（1zsは10^{-21}s）と語っている。

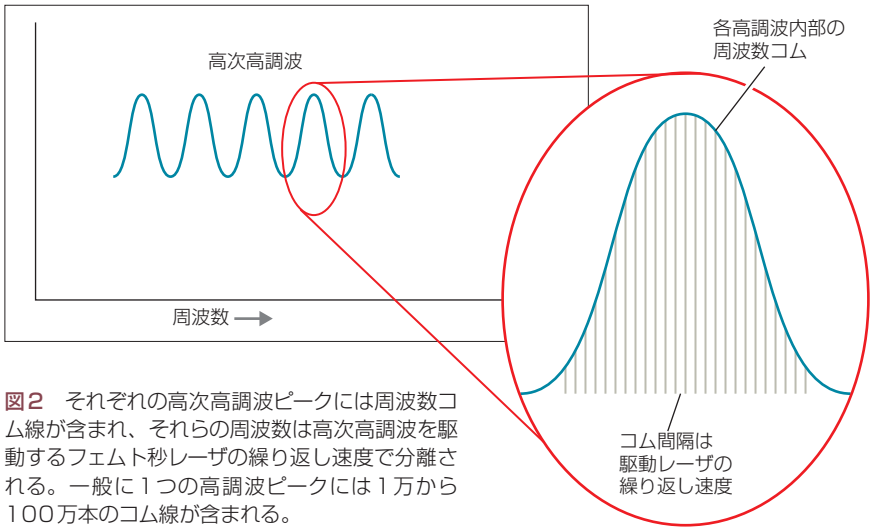

図2　それぞれの高次高調波ピークには周波数コム線が含まれ、それらの周波数は高次高調波を駆動するフェムト秒レーザの繰り返し速度で分離される。一般に1つの高調波ピークには1万から100万本のコム線が含まれる。

EUV周波数コム

高い繰り返し速度で同期したフェムト秒レーザを用いて高次高調波発生を行うと、かなり異なる結果になり、EUV領域の周波数コムが得られる。駆動パルスを高い速度で定常的に反復すると、発生する高次高調波は相互に干渉し、周波数コムが発生する。これはEUVの全域に広がる単一周波数コムではないが、一連の短いコムが発生し、**図2**に示すように、それぞれが異なる高調波帯域からなる間隔の狭い歯状のコムになる。

簡単なモード同期フェムト秒レーザは通常の高次高調波発生にとって十分に強いパルスを発生できない。最近の実験では20.8MHzのモード同期Yb：KGWレーザによるパルスの増幅と圧縮およびキセノンのジェットガスへの集光による高次高調波の発生が実証されたが、その出力はナノワットに限られていた[4]。

しかし、**図3**に示すように、このレーザパルスをフェムト秒増強共振器に結合し、高調波発生を共振器の内部で行うと、その出力は増加できる[5]。共振器を安定化して調整し、共振器内の往復時間をレーザパルスに整合すると、共鳴が起こる。JILAの初期の実験ではパルスエネルギーの約1000倍への共振器内増幅が実証された[5]。高次高調波発生セルを共振器内に配置し、増強されたエネルギーをもつ駆動パルスを利用することで、高次高調波のパルス列がレーザ発振器と同じ繰り返し速度で得られている。

このようにして得られるEUV周波数コムは強力な分光プローブになる。しかしながら、それぞれの高調波の出力パワーは10^4から10^6の歯に分割されるため、それぞれの歯は小さい出力しか得

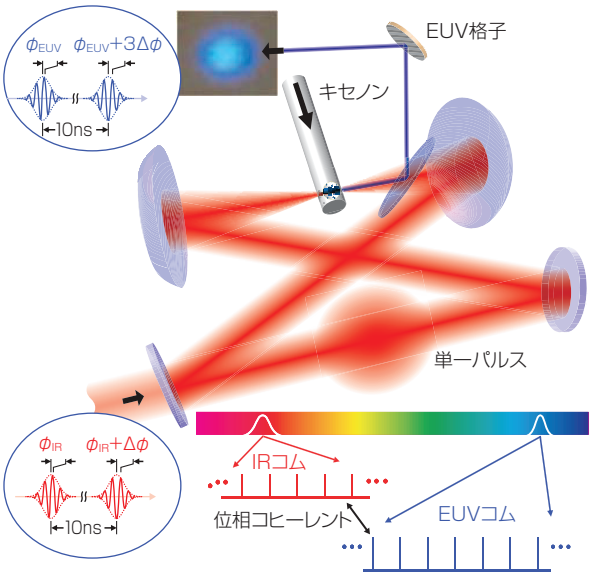

図3 外部モード同期レーザからのパルス列は高次高調波発生用の増強共振器に結合する。共振器とパルス列を整合すると循環する単一パルスは共鳴して出力が増強される。この出力をキセノンガスに集光すると、駆動レーザとコヒーレント位相をもつ高次高調波が発生する。（資料提供：R・J・ジョーンズ氏）

られない。可視波長の周波数コムは分光測定用の強力なレーザを較正できる。しかし、EUV領域は適切なレーザが存在せず、高次高調波の発生効率は低いため、その分光は周波数コム線による直接測定が必要になる。

現在、2つのグループが高出力EUVコム発生を異なる方法で実証し、その1つのグループがEUVコムを分光法へ応用した。

米アリゾナ大学（University of Arizona）のR・ジェーソン・ジョーンズ氏（R. Jason Jones）のグループは、新しい高出力Ti：サファイアレーザを開発し、彼らのフェムト秒増強共振器を最適化した。彼らはこのレーザは増幅器に注入同期し、80fsパルスを50MHzで発生させ、6Wの平均出力を生成して、100nJ以上のパルスエネルギーを増強共振器に注入した。彼らはキセノンをポンピングして、72nmの11次高調波では77μWの出力を、53nmの15次高調波ではマイクロワットの出力を実現した[6]。

JILAとイムラアメリカのチームはYbドープファイバレーザを使用して、より高い出力のフェムト秒周波数コムを発生させた。イムラアメリカのアクセル・ルール氏（Axel Ruehl）と共同研究者は2010年に、120fsパルスを154MHzで放出するYbファイバレーザからの平均80Wの周波数コム出力の発生を報告した[7]。彼らの成功の要点は長さ380m以上の光ファイバを使用し、大きなストレッチ比をもつチャープパルス増幅器を構築して、パルス分散の完全補償を実現したことにある。

このレーザ発振器と高次高調波発生用のキセノンセルを内蔵するフェムト秒増強共振器を使用して、JILA-IMLAチームは約7kWの平均出力を発生させた。この挑戦には共振器内レーザ損傷の回避、共振器からのEUV出力の結合、所望のEUV高調波を選択するための出力のフィルタリングなどが含まれる。EUVにおける出力結合とフィルタリングはいずれも10～20%の効率しか得られないため、彼らは両者の機能を420nmの周期をもつ単一回折格子内で組み合わせた。その結果、50から120nmの波長において高調波あたり200μW以上の平均EUV出力を得ることができた[8]。

彼らはこのEUV出力を使用して分光法の研究を始めた。分光法では高調波の分離が必要になり、その出力は20μWに減少する。この高調波にコム構造が含まれていることを証明するために、彼らはアルゴンの82nmからネオンの63nmへの高エネルギー遷移を分解した。彼らはArxiv.orgに投稿した論文のなかで、それぞれのコム歯は幅の上限が10MHz以下であるため、線の中心は500kHz以内で決まり、EUVにおいて2×10^{-10}以下の記録的な分数周波数精度になるとの結論を述べている[9]。

これはEUVの実に素晴らしい成果だが、その実証にはすべての細部の非常に極端に深い調整が必要であった。現在、EUV周波数コムは分光法の極め付きの最先端に位置づけられている。しかし、わずか10年ほど前は、光周波数コムも同様の最先端にあったことを忘れてはならない。

参考文献

(1) K. Midorikawa, "High-Order Harmonic Generation and Attosecond Science," Japanese J. Appl. Phys., 50(2011); doi; 10.1143/JJAP.50.090001.
(2) E. Goulielmakis et al., "Single-cycle nonlinear optics," Sci., 320, 1614(2008); doi:10.1126/science.1157846.
(3) T. Popmintchev et al., "Bright Coherent Attosecond-to-Zeptosecond Kiloelectronvolt X-ray Supercontinua," CLEO 2011, paper PDPC12.
(4) A. Vernaleken et al., "Single-pass high-harmonic generation at 20.8 MHz repetition rate," Opt. Lett., 36, 17, 3428-3430(2011).
(5) R.J. Jones et al., "Phase-coherent frequency combs in the vacuum ultraviolet via high-harmonic generation inside a femtosecond enhancement cavity," Phys. Rev. Lett., 94, 19, 193201(2005).
(6) J. Lee, D.R. Carlson, and R.J. Jones, "Optimizing intracavity high harmonic generation for XUV fs frequency combs," Opt. Exp., 19, 23315(Nov. 7, 2011).
(7) A. Ruehl et al., "80 W, 120 fs Yb-fiber frequency comb," Opt. Lett., 35, 18, 3015-3017(2010).
(8) D.C. Yost et al., "Power optimization of XUV frequency combs for spectroscopy applications," Opt. Exp., 19, 23483(Nov. 7, 2011).
(9) A. Cingöz et al., "Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet," http://arxiv.org/abs/1109.1871.

LFWJ