

授業でお使い下さい



Science Plaza

2023年ノーベル物理学賞



アト秒光パルスによって拡大するフロンティア

東京大学アト秒レーザー科学研究機構

山内 薫

1. アト秒とは？

2023年のノーベル物理学賞は「電子のダイナミクスを研究するためのアト秒パルスの生成に関する実験手法」に貢献のあった Pierre Agostini (米国), Ferenc Krausz (ドイツ), Anne L'Huillier (スウェーデン) の三氏に授与されました。

アト (atto) とは、 10^{-18} を表す接頭辞です。したがって、アト秒とは 10^{-18} 秒のことです。また、フェムト (femto) という接頭辞は、 10^{-15} を表します。フェムト秒とは 10^{-15} 秒のことです。1999年のノーベル化学賞は「フェムト秒分光を用いた化学反応の遷移状態に関する研究」に貢献のあった Ahmed H. Zewail 氏 (エジプト) に授与されました。分子の分子内の原子間の距離は固定されているわけではなく、振動しています。例えば酸素分子 (O_2) の場合、酸素原子と酸素原子は化学結合でつながっているわけですが、その化学結合の長さは伸びたり縮んだりします。分子内

でのこのような振動の周期は、おおよそ 10 フェムト秒から 1,000 フェムト秒の間であることが知られています。これは結合が生成される際に、あるいは、結合が切断される際にかかる時間と同程度です。

例えば、100 フェムト秒の時間幅をもつ光パルス (これをポンプ光と呼ぶ) で分子を励起 (より高いエネルギーの状態にすること) して、振動を激しくさせたり、化学結合を切断させたりする場合、別の 100 フェムト秒の時間幅をもつ光パルス (これをプローブ光と呼ぶ) でモニターすることができれば、時々刻々分子が振動する様子や化学結合が切断されていく様子を観測することができることになります。このような実験手法はポンプ・プローブ法と呼ばれています。Zewail 氏は、フェムト秒領域の時間幅を持つレーザー光を用いたポンプ・プローブ法によって、分子が振動している様子を、また、化学結合が切断される様子を観測したのです。

Contents

Science Plaza

2023年ノーベル物理学賞 アト秒光パルスによって拡大するフロンティア

東京大学アト秒レーザー科学研究機構 山内 薫 1

2023年ノーベル化学賞 量子ドットの発見とその後の展開

京都大学化学研究所 教授 金光 義彦 6

ペロブスカイト太陽電池の特徴と高効率化の材料設計

桐蔭横浜大学 特任教授 宮坂 力 10

Topics

知ってほしい海洋酸性化問題

東京海洋大学 海洋資源環境学部 教授 川合 美千代 16

光を99.98%以上吸収する至高の暗黒シート

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 計量標準総合センター 雨宮 邦招 20

根の重力屈性 ～重力感知の新展開～

自然科学研究機構・基礎生物学研究所・植物環境応答研究部門 西村 岳志 24

観測史上2番目に高エネルギーな宇宙線「アマテラス粒子」

サイエンスライター 彩恵 リリ 28

高校生へ私が選んだ1冊の本

地学双書 38 火山地質学の基本問題

—私の火山の見方— 32

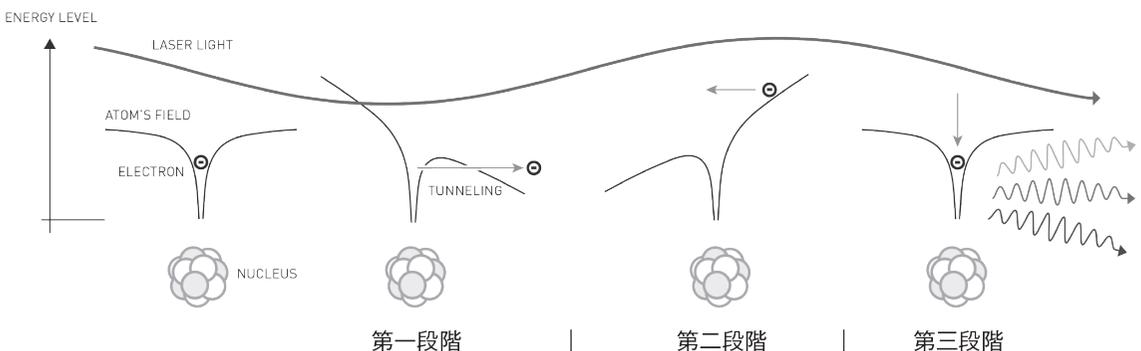
さて、分子に光を照射した場合、最初に光にตอบสนองするのは分子内の電子です。そして、その電子が光からエネルギーを受け取ることが契機となり、そのエネルギーが分子振動や化学結合の切断に使われることになります。この電子のレスポンスがどれだけ短い時間で起こるかという、それは、10~1,000アト秒の時間領域になります。分子振動や化学結合の切断を誘起される時、そのメカニズムを知りたいければ、分子の中の電子の運動がどのようなものであるかを知らなければならぬのです。この電子の動きをポンプ・プローブ法で観測するためには、光のパルス幅はアト秒の時間領域となる必要があります。そのため、アト秒パルスの生成が長いこと待ち望まれていたのです。

2. アト秒パルスを作るには強い光が必要

このアト秒パルスを実現するためには、光を強くする必要があります。短パルスレーザーの高出力化への技術開発が進むにつれて、原子の光イオン化過程に面白い現象が現れることが知られるようになりました。1979年にAgostiniらはキセノン原子(Xe)の多光子イオン化に伴って放出される電子の生成量を縦軸にとって、観測された光電子(光によるイオン化に伴って放出される電子のこと)のエネルギーを横軸にとったプロット(これを光電子スペクトルと呼ぶ)を作成しました。ここで、多光子イオン化とは、2個以上の光子を吸収した結果として原子から電子が放出されて、原子がイオン化される現象です。

その結果、光電子スペクトルには、イオン化するのに最低限必要な数の光子による光電子の信号だけでなく、それよりも多くの光子が関与した超閾イオン化(above-threshold ionization, ATI)を示す光電子のピークの並びを観測されました。関与する光電子の数が増えると、その分だけ光電子のエネルギーが増えるので、光電子スペクトルには、等エネルギー間隔でピークが並ぶことになります。その後、この光電子のエネルギー構造には面白い特徴があることが明らかとなりました。つまり、光電子のエネルギーが増加しても信号量が大きく減少しない「プラトー領域」とその信号量が急激に減少する「カットオフ領域」の存在です。

このATI(エー・ティー・アイと読む)の観測は、そのメカニズムについての理論研究の発展を促すこととなりました。そして、ATIにおいては、「光電場の中で、一度放出された電子が原子イオンに戻ってくる」という再衝突過程が重要な役割を果たすことが理解されるようになりました。ここで、光電場の中とは、「交番電場である光の存在する時間の中」という意味です。そして、1987年、Kuchievは、強い光電場の中でトンネルイオン化(図1中の第一段階)によって原子イオンから離れていった電子が、光電場の中で原子イオンの場所に戻ってきて衝突を起し、その結果、原子系が高く励起されることを、量子力学に基づいて明らかにしました。ここで、トンネルイオン化とは、光電場が強い場合には、電子をつなぎとめている原子



© Johan Jarnestad/The Royal Swedish Academy of Sciences

図1 再衝突(再散乱とも呼ばれる)による高次高調波の発生。強いレーザー電場に晒された原子から電子がトンネルイオン化によって放出される(第一段階)。その電子はレーザー電場によって加速されるが、レーザー電場が次の半サイクルとなると、電場の向きが逆になるため、電子は、今度は原子イオンに向かって加速され、原子イオンに衝突し、原子イオンと再結合する(第二段階)。そして、再結合に伴って、電子の持つ運動エネルギーが高次高調波(波長としては軟X線(50~2nm)(1nm=10⁻⁹m)の領域)に変換されて放出される(第三段階)。

内のポテンシャルの形が歪んでしまい、電子をつなぎとめられなくなって、電子が出て行ってしまうという現象です。

ちょうどその頃、超短パルスレーザー（ピコ (10^{-12}) 秒からフェムト秒領域の時間幅を持つパルスレーザー光）をアルゴン（Ar）や Xe などの貴ガス中に集光すると高次高調波とよばれる「レーザー周波数の奇数倍の周波数を持つ光」、すなわち、奇数倍の光子エネルギーを持つ光子が生成することが相次いで報告されるようになりました。1987 年には Rhodes らのグループが、そして、1988 年には L'Huillier, Mainfray らのグループが高次高調波の生成を報告しています。実は、この高次高調波は、ATI の構造と類似する特徴をもっていたのです。すなわち、低次数の高調波は次数が上がるにつれて強度が下がっていきませんが、その後、広い次数に亘って強度が変わらないプラトー領域があり、そしてその先に、急激に強度が落ちるカットオフ領域が存在したのです（図 2）。

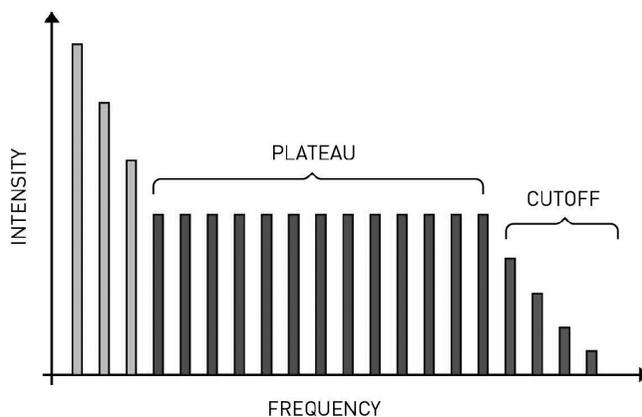
この高次高調波の発生が報告されて以来、多くの研究グループがそのメカニズムを理論的に説明することを試みました。1992 年に Kulander らのグループは数値計算によってプラトーとカットオフを説明し、1993 年には、プラトーとカットオフが 3 つのステップによって説明されること、すなわち、トンネルイオン化、レーザー電場による加速と再衝突、そして、再衝突に伴う高次高調波の発生というステップからなることを報告しました。また、同じ 1993 年には、Corkum は、

Kulander とは独立に高次高調波の発生が 3 つのステップによって説明されることを示しています。この「強レーザー電場での電子の再衝突のモデル」（図 1）は、高次高調波を説明するための標準的なモデルとして受け入れられています。

3. 高次高調波はアト秒パルス

一方、1992 年には、Farkas と Tóth は、超短パルスレーザーによる高次高調波が時間領域においてコヒーレント（干渉しあうことができるという意味）であることに着目し、異なる次数の高次高調波を重ね合わせればアト秒パルスが発生できるという提案を行いました。これは再衝突のモデルで言えば、トンネルイオン化された電子が原子イオンに戻って来て再衝突する度にアト秒パルスが生成することに相当します。

そして、2001 年、Agostini のグループは、高強度フェムト秒パルス（アルゴン（Ar）ガス）に集光することによって、高次高調波を発生させ、2 波長 2 光子干渉法という手法を用いて、一つ一つのアト秒パルスが 250 アト秒の時間幅を持つ「アト秒パルス列」が生成することを確認しました。そして、同じ 2001 年、Krausz のグループは、数サイクル（光電場が振動する回数が 2~3 回）の高強度フェムト秒パルス（クリプトン（Kr）ガス）に集光することによって、時間領域において一本のピークを持つ「単一アト秒パルス」を発生させ、光電子ストリーキングという方法によって、そのパルス幅が 650 アト秒であることを確認した



© Johan Jarnestad/The Royal Swedish Academy of Sciences

図 2 高次高調波のスペクトル。横軸は周波数（FREQUENCY）で、生成した高次高調波の光子エネルギーに対応する。縦軸は高次高調波の強度（INTENSITY）。次数が増えても強度が一定となる平坦な領域（プラトー領域：PLATEAU）と急激に強度が落ちる領域（カットオフ領域：CUTOFF）が現れる。

のです。

ここに、ATIから始まった一連の仕事の流れは、「アト秒パルスを発生させ、それがアト秒パルスであることを実証する」という一つのゴールに到達したのです。その結果、原子から電子が放出する際に、どの軌道から電子が放出されるかによって、アト秒領域のわずかな時間差が存在することが明らかにされるなど、「一瞬で起こる」と思われていた現象を、アト秒の時間精度で時々刻々観測することができるようになりました。つまり、このアト秒パルスをカメラのフラッシュのように使えば、物質の中で電子の分布や電荷分布が変化していく様子をコマ撮りすることができるのです。Agostini, Krausz, L'Huillierの三氏は、実験と計測の立場から、このアト秒科学の黎明期に大きな貢献をしました。

4. 日本におけるアト秒科学の展開

我が国でも、高次高調波が発見された1980年代末から、多くの研究者がこの分野の発展に寄与してきました。2004年、渡部俊太郎氏（東京大学物性研究所）らは、自己相関法によって、950アト秒の単一アト秒パルスの計測に成功しています。また、緑川克美氏（理化学研究所）らは、2002年にそれまでの高次高調波の強度を2桁以上増強する技術を開発し、アト秒領域での様々な非線形現象の観測を進めました。特に、2006年には、電場干渉自己相関測定によって、高次高調波の発生原理を実証しています。私自身は、1996年頃から強いレーザー場の中での原子、分子のイオン化やそれに引き続き起こる化学結合の切断や組み換えについての研究に長年従事してきました。2006年頃からは「アト秒パルス列だけを使ったポンプ・プローブ実験」で緑川先生とご一緒する機会をいただきました。

今、私は、アト秒レーザー光源を広い分野の研究者の方々に使っていただくことを願って、アト秒科学をさらに発展させるためのユーザー施設である「アト秒レーザー科学研究施設」(Attosecond Laser Facility, ALFA)を設立するための活動に従事しています。ALFA(アルファ)には、高次高調波ベースのアト秒光源に加えて、単一アト秒パルスを発生させることができる軟X線領域の自由電子レーザー(free-electron laser, FEL)ビームラインを設置する予定です。この

FEL(エフ・イー・エル)光源を用いれば、軟X線領域において、高次高調波ベースのアト秒パルスよりも2桁から3桁程高い単一アト秒パルスを発生できるため、単一アト秒パルスをを用いたポンプ・プローブ計測が現実のものとなると期待されています。将来、ALFAに設置される先端アト秒レーザー光源群が、物理学、化学、工学、生命科学、薬学、農学、医学など様々な基礎・応用分野のフロンティア研究に活用されるとともに、ALFAが国際的研究拠点となり、次世代を担う研究者の育成に資することを願っています。



(本稿の内容についての、より詳しい解説は、“山内薫(編著),『強光子場分子科学』,朝倉書店(2022)”の「本書の構成」,および、第6章をご参照下さい。)