

電子の超高速運動を観測する・操作する

Keyword: アト秒物理学

電子は、分子の中で原子同士を結びつけ、化学結合や化学反応を担っている。エレクトロニクスデバイスや生体中で情報を伝達し、植物の光合成においては光を化学エネルギーに変換する。もし仮に、水素原子の中で電子が陽子からボーア半径だけ離れたところを等速円運動しているとすると、その周期は約150アト(10⁻¹⁸)秒である。このことから、原子や分子、物質中における電子運動の時間スケールがアト秒であることが分かる。高強度のフェムト秒レーザーパルスや、それを希ガス等に照射することで発生できるアト秒光パルスを用いて、電子の超高速運動を観測したり操作したりする分野を、アト秒物理学あるいはより広くアト秒科学¹⁻³⁾と呼ぶ。以下では、アト秒研究の基礎物理と、最先端研究の一端を紹介する。

1. 高強度場現象

チャープパルス増幅によって可能になった高強度のフェムト秒レーザーを原子や分子に照射すると、摂動論では解釈できない非線形光学効果が起こる。これらは、高強度場現象⁴⁾と総称され、アト秒物理学の基礎となっている。

光子のエネルギーが原子のイオン化ポテンシャルより小さい場合でも、光の強度が上がるにつれて、イオン化ポテンシャル I_p を超えるまで複数個の光子が同時に吸収されて多光子イオン化が起こる。レーザーの強度が10¹³ W/cm²を超えるあたりから、原子はさらに必要以上の光子を吸収してイオン化するようになり、これを超閾イオン化と呼ぶ。10¹⁴ W/cm²以上の強度では、図1(a)に示すように、レーザー場でゆがめられたクーロンポテンシャルの壁を電子がトンネル効果で通り抜けてイオン化するという描像に近くなり、これをトンネルイオン化と呼ぶ。

また、このような高強度のレーザーを気体に照射すると、レーザー周波数の数十倍以上もの周波数を持つ高次高調波が発生する。摂動論では、高次になるほど強度が落ちると考えられるが、高次高調波スペクトルには、次数が上がっ

ても強度が落ちないプラトー領域が長く続く、ある次数(カットオフ)で突然強度が落ちそれ以上の次数は発生しない、という著しい特徴が見られる。

2. 3ステップモデル

高次高調波発生の特徴の多くは、CorkumおよびKulanderらによって提唱された3ステップモデルで説明できる。図1に示すように、トンネルイオン化によって連続状態の電子が生まれ、レーザー電場中で古典力学的な振動運動をし、親イオンと再結合して高調波光子を放出する。親イオンからのクーロン力を無視すれば(高強度場近似)、再衝突電子が持つ運動エネルギーの最大値は3.17 U_p である。ここで U_p はボンデロモーティブエネルギーと呼ばれ、電子の振動運動のエネルギーに対応する。レーザーの強度 I 、波長 λ を用いて $U_p(\text{eV}) = 9.337 \times 10^{-14} I (\text{W/cm}^2) \lambda^2 (\mu\text{m})$ である。このことから、カットオフの光子エネルギーは $I_p + 3.17U_p$ で与えられることが分かる。また、再衝突電子が親イオンをさらにイオン化する非逐次2重イオン化等も起こり、これは強レーザー場下で電子相関の寄与が重要となる興味深い例である。

3. アト秒パルス発生

トンネルイオン化は光の周期あたり2回、電場強度が最大になる時に選択的に起こり、アト秒スケールの電子波束が半周期ごとに繰り返し放出される。したがって、高次高調波も通常、基本波の半周期(波長800 nmの場合1.33フェムト秒)ごとに繰り返すアト秒パルスの列となる。再結合を1回に抑えれば単独のアト秒パルスとなり、時間分解分光用途に便利である。単独アト秒パルスを発生する方法はこれまでに、絶対位相(搬送波包絡線位相)を制御したシングルサイクルに近い基本波を使う振幅ゲート法、基本波が直線偏光の場合にのみ高次高調波が発生することを利用し時間遅延を持たせた2つの円偏向パルスを利用する偏光ゲート法、2波長を組み合わせてアト秒バーストが発生する間隔を広げる2色ゲート法、基本波パルスの立ち上がり部分でほとんどの原子をイオン化するイオン化シャッター法、そしてこれらを組み合わせた方法が開発されている。パルス幅の最短記録は、Changらが2012年に報告した67アト秒である。光子エネルギーは55-110 eVにわたる。

高出力のアト秒パルスを発生するためには、基本波と高調波の位相整合が重要である。高橋、緑川らは長い焦点距離(5 m)の集光光学系を用いることで、世界最高となる1.3

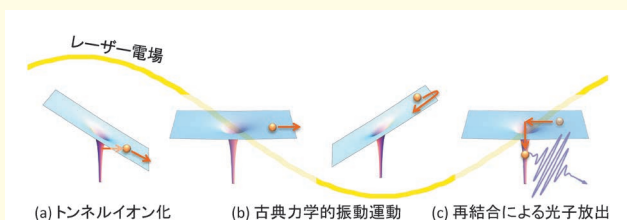


図1 3ステップモデル。(a) 電場強度が最大となる付近でトンネルイオン化によって放出された電子が、(b) レーザー電場中で古典力学的な振動運動をし、(c) 親イオンと再結合して高調波光子を放出する。

マイクロジュール、2.6 GW (パルス幅 500 アト秒) の単独アト秒パルス (28–35 eV) の発生を 2013 年に報告している。

基本波としては波長 800 nm 近傍のチタンサファイアレーザーが使われることが多かったが、近年、中赤外領域の高出力光源技術の進歩が目覚ましい。 U_p が波長の 2 乗に比例することからカットオフものび、例えば、Kapteyn, Murnane らは波長 3.9 ミクロンの基本波を使って、keV 領域 (5,000 次以上) に達する高調波の発生に成功している。

4. アト秒物理学のツール

電子が放出されるタイミングを測定する手法にアト秒ストリーキングがある。アト秒パルスをポンプ光として照射すると同時に、近赤外領域のシングルサイクルに近いフェムト秒パルス (ストリークパルス) をプローブ光として照射する。ストリークパルスのベクトルポテンシャルを $\mathbf{A}(t)$ とすると、時刻 t_0 に運動量 \mathbf{p}_0 で放出された電子 (電荷 $-e$) の運動量は、検出器では $\mathbf{p}_0 - e\mathbf{A}(t_0)$ と観測される。このため、電子の運動量 (またはエネルギー) の測定値から、放出時刻 t_0 を逆算できる。この方法はまず 2002 年に、オージェ電子放出の時間分解測定に使われた。

光電効果では、アト秒パルス照射とほぼ同時に電子が放出される、すなわち t_0 が分かっているので、逆にストリークパルスの電場 $\mathbf{E}(t) = -\partial_t \mathbf{A}(t)$ を求めることができる。2004 年には可視光領域の光電場の直接測定が初めて実現された。ところが 2010 年に、Ne の光電効果における電子放出時刻が、電子がもっていた軌道 ($2s$ か $2p$ か) によって約 20 アト秒異なることが報告された。その一部は半世紀以上前に Wigner らによって予言されたものであるが、残りの部分の解釈については現在も議論が続いている。

再衝突電子が高調波を出したり散乱されたりする過程をよく考えることによって種々の情報が得られる。高調波の次数によって再結合時刻が異なることを利用して、2 原子分子がトンネルイオン化に続いてどのように解離していくかを実時間計測できる。再衝突電子の波動関数は連続状態だけでなく基底状態との重ね合わせで、前者を平面波で近似すれば、高調波スペクトルには分子軌道の空間フーリエ変換の情報が含まれている。分子の向きをそろえレーザーの偏光を様々に変えながら高調波スペクトルを測れば、分子軌道を再構成できる。板谷らによって開発されたこの方法を分子軌道トモグラフィーと呼び、絶対値の 2 乗ではなく位相を含む軌道関数自体を求められる。また、再衝突電子が親イオンに弾性散乱される高次超調イオン化を利用すれば、分子イオンによる電子散乱微分断面積を測定できる。

5. シミュレーションによるアプローチ

極めて短い時間スケールと非摂動的な高強度が関与していることから、シミュレーションが果たす役割は大きい。レーザーと原子分子の相互作用は、時間依存シュレーディンガー方程式 (Time-Dependent Schrödinger Equation; TDSE) によって記述できる。これを空間グリッド上で直接数値計算する TDSE シミュレーションは計算量の大きさから 2 電子系 (He, H₂) が限界で、実効ポテンシャル中の最外殻電子だけを考慮する有効一電子近似が広く用いられている。

一方、多電子系を第一原理的にシミュレーションするため、時間依存密度汎関数理論に加え、最近では、波動関数を複数のスレーター行列式の線形結合で表現する時間依存多配置自己無撞着場法⁵⁾を開発する試みが進められており、第一原理高強度場物理の開拓が期待される。

6. 最近の中心的なトレンド

1999 年に Cederbaum と Zobeley が、トンネルイオン化やアト秒パルスによる光電効果で分子の一部に局在した正孔ができると、電子相関によってその正孔は波束として分子の中を移動すると予言した。この電子によって駆動される電荷移動を電荷マイグレーションと呼ぶ。これはアト秒の時間スケールで起こり、さらに長い時間スケールで分子構造の変化を駆動すると考えられている。最近、電荷マイグレーションとみられる現象が、フェニルアラニン、ヨードアセチレン、窒素分子で相次いで観測されている。

また、高調波発生の媒質としては気相の原子や分子がほとんどであったが、最近、固体からの高次高調波が観測され、そのメカニズムも含め関心が高まっている。

このように、我々は電子の運動を直接観測・制御できる技術を手に入れた。今後、アト秒時間スケールの興味深い物理現象がさらに数多く報告され、電子ダイナミクスの理解が進んでいくものと期待される。

参考文献

- 1) 大森賢治編: 「アト秒科学」(化学同人, 2015)。
- 2) Z. Chang: *Fundamentals of Attosecond Optics* (CRC Press, 2011)。
- 3) S. R. Leone, *et al.*: *Nature Photon.* **8** (2014) 162。
- 4) M. Protopapas, *et al.*: *Rep. Prog. Phys.* **60** (1997) 389。
- 5) K. L. Ishikawa and T. Sato: *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **21** (2015) 8700916。

石川 顕一 (東京大学大学院工学系研究科 ishiken@n.t.u.tokyo.ac.jp)

(2016 年 3 月 30 日原稿受付)