

アト秒の科学

Hiromichi Niikura (JST/NRC)

1. 背景

より速い物体の運動を観測するためには、より短いパルスが必要である。1962年にレーザーが発明されて以来、図1に示すようにレーザーのパルス幅は、約二十年間で数フェムト秒にまで短縮された。しかし、1986年に600nm, 6 fsに到達して以来、ほぼ十年間、その記録が破られることはなかった。これは、一パルスの中で電場が数回しか振動しないほど短いパルスである。そこで、フェムト秒のバリアを破りアト秒(10^{-18} 秒)領域に到達するためには、新しい物理的概念に基づく新しい手法の開発が必要とされてきた。

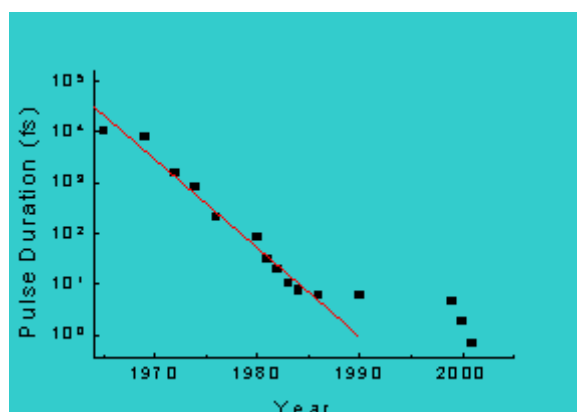


図1 達成されたレーザーのパルス幅と年代の関係

一方、フェムト秒レーザーの発達により、mJの尖頭強度を持つレーザーパルスが卓上で生成できるようになった。例えば、 $10\mu\text{J}$ 、800nm、50fsのレーザーパルスを $30\mu\text{m}^2$ まで集光すれば、その強度は

$$I[\text{W}/\text{cm}^2] = 10\mu\text{J} / (30\mu\text{m}^2 \times 50\text{fs}) = 6.66 \times 10^{14} \text{W}/\text{cm}^2$$

になる。この強度をレーザー電場に換算すれば、

$$E[\text{V}/\text{cm}] = 27.46 \times \sqrt{I[\text{W}/\text{cm}^2]} = 7 \times 10^8 [\text{V}/\text{cm}]$$

となり、原子または分子中の電子が感じるクーロン電場と同程度になる。

この非常に強いレーザー光を用いることで、アト秒光パルス及び電子パルスの生成が可能になった。その基本的な原理は、1993年に提案された三段階モデルに基づいている[1]。このモデルなどを用いて、アト秒光パルスが発生できることが1995年に示された[2]。その後、2001年にアト秒のパルス列を含む高次高調波の発生が実験的に確認された[3]。同年にオーストリア工科大学などで、単一のアト秒光パルス発生が確認され[4]、2003年にそれを用いて、オージェイオン化過程のダイナミクスが測定された[5]。さらに、レーザー位相を制御することで、精密にアト秒光パルスの発生を制御した実験が行われた[6]。一方、筆者等によって、2002年にアト秒電子パルスの発生が確認され[7]、2003年に、それを用いて、重水素分子の振動運動がアト秒の精度で測定された[9]。

2. トンネルイオン化と電子再衝突

アト秒光パルスと電子パルスの発生は、トンネルイオン化と電子再衝突という共通の物理現象を元に行っている(三段階モデル)[1]。 $\sim 10^{14} \text{W}/\text{cm}^2$ の近赤外レーザー光を気相の原子または分子に照射すると、電子の感じるクーロンポテンシャルがレーザー電場によって歪み、

原子内（分子内）に束縛された電子波動関数の一部がレーザー電場とクーロンポテンシャルの作るバリアを抜けてイオン化する（トンネルイオン化）。イオン化した電子波束は未だレーザー電場の中にあるので、レーザー電場によって加速され、レーザー電場の周期が変わると、軌道を変えて再びもとのイオン核に衝突する（再衝突）。トンネルイオン化はレーザーの強度に対して非線形な過程であるため、レーザーパルスの各周期のピーク付近でのみイオン化し、レーザーの一周期以内に再衝突する。

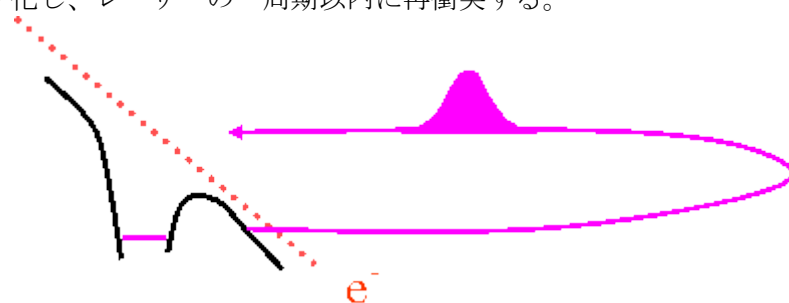


図2 トンネルイオン化と電子再衝突

3. 再衝突電子波束を利用したアト秒ダイナミクスの測定

加速された電子の再衝突により、様々な過程が生じる。最大の衝突エネルギーは、レーザーの波長の自乗と強度に比例し、例えば 800nm , $3 \times 10^{14}\text{W/cm}^2$ では約 60eV の衝突エネルギーを持つ。

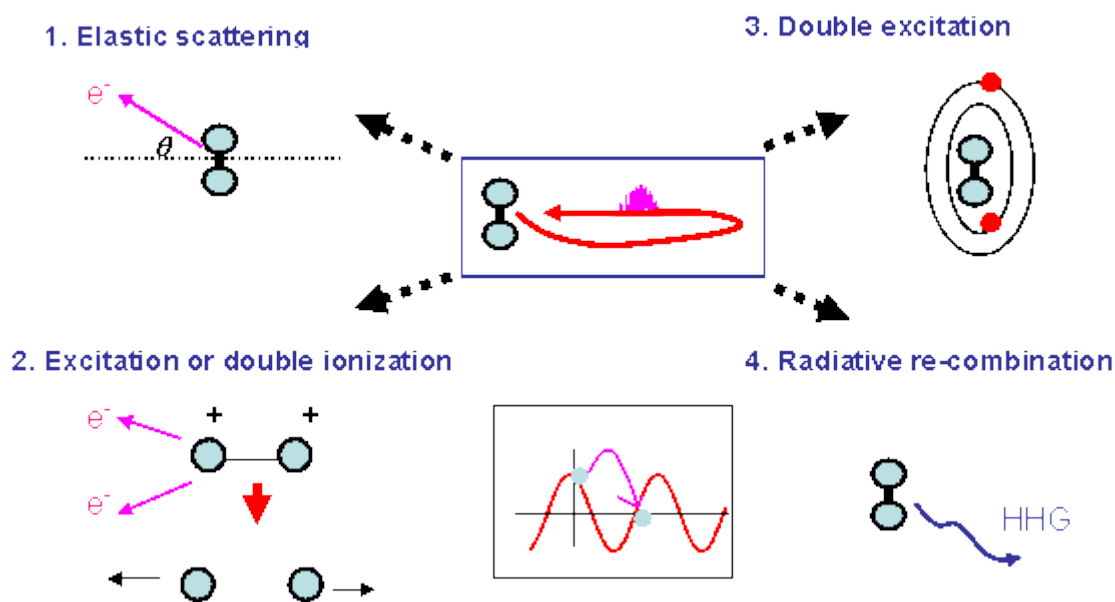


図3 再衝突によって起こる過程

もしイオンと弾性的に衝突すれば、分子の構造を反映した散乱角で散乱される。また、もし衝突時に他の電子をたたき出したり励起したりすれば（非弾性衝突）、二重イオン化過程(double ionization)、2電子励起過程、解離過程などが生じる。輻射性再結合過程が生じれば、衝突エネルギーに応じてアト秒パルスを含んだ軟 X 線領域の光パルス(高次高調波 High harmonic generation :HHG)が生成する。電子の再衝突過程はレーザーの一周期(800nm で 2.6fs)以内のある領域で起こるので、これらの衝突過程を利用することで分子の構造変化や分子・原子中の電子軌道の変化がアト秒の精度で測定できる。

本研究では、再衝突する電子波束の時間構造を、新たに提案した分子時計法によって測定した(3.1, 3.2 章)。次に、この再衝突電子波束の運動を制御することで、重水素分子イオンの運動をアト秒の精度で測定した(3.3 章)。また、再衝突電子波束のコヒーレントな性質を利用して、分子の最高占有軌道のイメージング測定を行い(3.4 章)、同様に分子内束縛電子波束の運動をアト秒の精度で測定する方法を提案した(3.5 章)。

3-1. アト秒電子波束の時間構造・大きさの測定[Nature 417, 917 (2002)]

再衝突する電子波束の時間的・空間的構造を、水素分子のイオン化-再衝突過程を用いて測定した。イオン化によって電子波束と水素分子イオン(H_2^+)の振動波束が同時に生成する。再衝突までの間(~1.7fs)、振動波束は H_2^+ の基底状態ポテンシャル上を動く。その後再衝突によって、 H_2^+ の励起状態または H_2^{++} に振動波束が励起 (イオン化) され、解離する。このとき、解離種(H^+)の運動エネルギーは、いつ電子が再衝突したのかを示す。このように、トンネルイオン化により電子波束と同時に生成した振動波束の運動を、電子波束の時間構造の測定に使用する方法を分子時計法と呼ぶ。

分子時計法を用いた実験および計算結果から、電子波束はトンネルイオン化後レーザー電場の 2/3 周期の時にもっとも大きな確率を持って衝突し、その後 5/4, 7/4 にも衝突することがわかった。800nm の場合には、これらはそれぞれ 1.7fs, 3.3 fs, 4.6 fs に相当する。一回目の衝突は<1fs の間続き、その強度は電子密度に換算して 10^{11} Amps/cm² 程度であることが求められた。また、再衝突時の空間的な広がりがある程度であることがわかった。

3-2. Few-cycle laser pulse を用いた単一アト秒電子波束の測定

[J. Mod. Opt. 52, 453, 2005]

もしレーザー電場のパルス幅が短くなれば、一回のイオン化につき、一回だけ再衝突を起こすことが出来る。800nm, 40fs, 0.4mJ のレーザーをアルゴンガスで充填された中空ファイバーに導き、バンド幅を広げた後、チャープミラーに数回反射させることで、~8fs のパルスを得た。このパルスを用いて、分子時計法により再衝突電子波束の時間構造の測定を行った。その結果、二回目・三回目の衝突が抑制され、ほぼ一回だけ衝突が起きていることが実験的に確認された。

3-3. アト秒電子波束を用いた重水素分子(D_2^+)の振動波束運動の測定

[Nature 421, 826 (2003)]

重水素分子をトンネルイオン化すると、電子波束と振動波束が同時に生成する。電子波束と振動波束の衝突時間は、レーザー電場の波長を変えることで制御できる。再衝突時間を 1.7fs (800nm のとき) から 4.2fs (1850nm のとき)まで変化させ、 D_2^+ 振動波束の運動を 200 アト秒・0.05 オングストロームの精度で測定した。エンタングルした波束対を同時に生成し、その片方の運動を強レーザー電場で制御することで、他方の運動をアト秒の精度で測定できることが示された。

3-4. 最高占有軌道の測定[Nature 432, 867 (2004)]

再衝突する電子波束のコヒーレントな性質を利用して、分子の最高占有軌道のイメージング測定を行った。強レーザーパルス分子に照射すると、一般に垂直イオン化エネルギーの最も低い電子軌道の一部がトンネルイオン化し、イオン化連続状態に電子波束が生成する。再衝突時に、この連続状態の電子波束(再衝突電子波束)と元の軌道に残っている電子軌道とがコヒーレントに相互作用し、高次高調波が生成する。このとき、高次高調波のスペ

クトルには、もとの電子軌道の情報が記録される。分子軸と再衝突電子波束が入射する方向を変えることで、最高占有電子軌道のイメージングを行うことが出来ることを実験的に示した。

3-5. 分子内アト秒電子波束の測定[Phys. Rev. Lett., *in press.*]

分子内の束縛状態に電子波束が生成していれば、その運動は同様に高次高調波のスペクトルに記述される。高次高調波のスペクトルは再衝突するまでの時間に換算できる。分子の中を動く電子波束が、再衝突する電子波束と逆方向に動いているときに高調波のスペクトルはへこみを持つ (**destructive interference** が生じる) ことを量子力学的計算によって示した。レーザー位相の制御された十分に短いパルスを用いることで、分子の中を動く束縛電子波束の運動がアト秒の精度で測定できることを理論的に提案した。

まとめ

アト秒科学の次の目標は、分子内の束縛状態に電子波束を生成し、その運動を実時間で測定することだと言われている。本研究では、再衝突電子波束を利用する方法を提案した。従来のフェムト秒科学では、分子の構造変化や核の運動を測定することが主に行われたが、分子構造や化学反応の反応性・選択性は、分子内の電子構造やその変化と密接な関係がある。アト秒の時代には、分子内の電子軌道の時間変化や、電子波束の運動という観点から化学反応を理解する試みが行われるであろうと考えられる。

References

- [1] P. B. Corkum, **Phys. Rev. Lett.** **71**, 1994 (1993). (三段階モデル)
- [2] M. Ivanov *et al.*, **Phys. Rev. Lett.** **74**, 2933 (1995). (アト秒光パルス発生の予測)
- [3] P. M. Paul *et al.*, **Science** **292**, 1689 (2001). (アト秒光パルストレインの測定)
- [4] M. Hentschel *et al.*, **Nature** **414**, 509 (2001). (単一アト秒光パルスの測定)
- [5] M. Drescher *et al.*, **Nature** **419**, 803 (2002). (アト秒光パルスによるオージェの測定)
- [6] A. Baltuska *et al.*, **Nature** **421**, 611 (2003). (再衝突電子のアト秒コントロール)
- [7] H. Niikura *et al.*, **Nature** **417**, 917 (2002). (アト秒再衝突電子波束の測定)
- [8] H. Niikura *et al.*, **J. Mod. Opt.** **52**, 453 (2005). (単一アト秒再衝突電子波束の測定)
- [9] H. Niikura *et al.*, **Nature** **421**, 826 (2003). (再衝突電子を用いた振動運動の測定)
- [10] J. Itatani *et al.*, **Nature** **432**, 867 (2004). (再衝突電子を用いた HOMO の測定)
- [11] H. Niikura *et al.*, **Phys. Rev. Lett.** **94**, 083003(2005). (再衝突電子を用いたアト秒電子波束の測定法の提案)