



超高速光物理研究の最前線への期待と展望 ——ペタヘルツ波をエンジニアリングする

2023年ノーベル物理学賞の対象となったアト秒パルスは、アト秒領域の時間幅を持つ極端紫外光パルス（列）です。アト秒パルスの時間幅は、典型的な光の1周期よりも短く、その時間スケールでは、光はサブペタヘルツ（PHz = 10^{15} Hz）周波数で振動する電界としてとらえ直すことができます。本稿では、“アト秒科学”の時代を切り拓いたアト秒パルス発生技術について解説し、NTT物性科学基礎研究所が進めるアト秒パルスレーザー技術と、ペタヘルツ電界-電子系相互作用ダイナミクスに関する超高速光物理研究の概要と展望について紹介します。

キーワード：#超高速光物理、#アト秒科学、#ペタヘルツ波

おぐり かつや

小栗 克弥

NTT物性科学基礎研究所

光の極限制御技術とペタヘルツ波

NTT事業の中核を占める光ネットワークや光デバイスなど多岐にわたる光通信技術において、私たちは、日常的に“光”を扱っています。そのような中で、私たちは光を特徴付ける単位として“波長〇〇nm”や“光子エネルギー〇〇eV”という表現を用います。一方、高校生のときに学習するように、光は電磁波の一種であり、モバイル通信で用いられる電波や高周波といった電磁波とは波長（もしくはエネルギー）が異なるだけで物理的には同じものです。このような電波は、オシロスコープなどの計測装置を使って、周波数〇〇Hzや、周期〇〇秒の周期的電界として計測が可能で、振動の位相なども制御可能です。例えば、ラジオ放送やモバイル通信帯の電波領域において、私たちは日常的に電波を周波数で表現します。それでは、“光”の場合は、なぜ、周波数や周期といった単位で表現しないのでしょうか？これは、光の振動周波数が電波と比べてあまりに高いためにその周波数を正確に計測・制御することができなかったこと、光の振動周期があまりに短いために計測ができず、振動の位相も制御できなかったという理由に過ぎません。計測も制御もできない対象における特徴的な量を扱うのは不合理であり、そのような量を考える必要がない、というのがこれまでの“光”の常識でした。

しかしながら、21世紀に次々とノーベル物理学賞の対象となった、アト秒（as： 10^{-18} 秒）パルス技術（2023年）⁽¹⁾、光周波数コム*¹技術（2005年）、チャープパルス増幅*²技術（2018年）、そして将来のノーベル物理学賞候補の呼び声が高い光格子時計*³技術という4つの革新的光技術により、“光の常識”は変わりつつあります。この革新的光技術により、光の波動としての性質を規定する時間、周波数、位相、振幅というすべてのパラメータを精密に計測・制御することが可能となり（図1）、私たちは、“光”を1周期フェムト秒（fs： 10^{-15} 秒）の周期電界がペタヘルツ（PHz： 10^{15} Hz）周波数で振動する電磁波として認識できるようになりました。光は、いまや、電波の帯域・精度・強度を遥かに凌駕する、いわば“ペタヘルツ（PHz）波”としてとらえ直すことができるようになったといえるでしょう。21世紀は、このペタヘルツ波を自在にエンジニアリングすることによって、これまでの光技術の“常識”の枠を破る新しいフロンティアの可能性が拓けています⁽²⁾。本稿では、特に、光のペタヘルツ電界振動を時間領域でとらえることを可能にした“時間”領域における極限光技術、すなわち、アト秒パルス発生技術、アト秒時間分解能計測技術、そしてアト秒時間スケールの電子ダイナミクスの研究に焦点を絞り、NTT物性科学基礎研究所における超高速光物理研究の取り組みを紹介します。

アト秒パルスとは？

レーザーの発明直後より、超短パルスレーザーの開発が始まり、ナノ秒（ns： 10^{-9} 秒）、ピコ秒（ps： 10^{-12} 秒）、そしてフェムト秒と順調に短パルス化技術が進展し、物質中の超高速現象の観察に利用されてきました（図2(a)(b)）。1990年代に入り、数フェムト秒のパルス幅でその進展は一時停滞しましたが、2001年にアト秒の壁を突破しました。

*1 光周波数コム：周波数軸上に等間隔に並んだ櫛状（櫛=Comb コム）の周波数スペクトルを持つレーザーであり、時間軸上では等間隔に並んでいるパルス列を発生するレーザーです。光周波数コムの周波数成分を原子時計などに同期させることで、各周波数を精密に安定化させ、光の精密周波数計測や、精密長さ・距離計測、精密分光計測など、さまざまな分野で利用されています。

*2 チャープパルス増幅：パルスレーザーのパルスエネルギーを増幅する際には、増幅によってパルスピーク強度が高くなり過ぎると、その増幅過程自身で増幅物質が損傷してしまうという問題が起こります。それを回避するために、増幅する低パルスエネルギーのパルスを、増幅前にパルス幅を長くする（チャープをつける）ことによって、ピーク強度をあらかじめ十分に低くした状態でパルスレーザー光を増幅する方法です。パルスエネルギーを増幅後、再びパルス幅を圧縮して高強度・超短パルスレーザー光をつくり出すことが多くなります。

*3 光格子時計：レーザー光を利用して原子を光の格子に捕らえ、その振動を基に非常に高精度な周波数を発生する装置です。光格子時計は、従来の1億年に1秒程度の誤差のセシウム原子時計に対して数10~100億年で1秒の誤差しかなく、国際標準時の精度向上や、重力の影響を測定する研究など、さまざまな分野での応用が期待されています。

アト秒時間とはどのくらい短い時間スケールか想像できますでしょうか？ 典型的な例としてよく挙げられるのが、水素原子の回りを運動する電子です（図2(c)上）。電子がボーア半径*4で古典的に円運動していると仮定すると、1周期およそ150 asで電子が運動しているとみなすことが可能です。また、私たちのなじみの深い通信波長帯の光の1周期について考えてみましょう。通信波長帯として1.5 μmの波長を仮定しますと、1周期およそ50000 asに対応します。このように、私たちの常識では“瞬間的に起こっている”という現象も、アト秒という時間スケールでとらえ直すと有限の時間スケールで動いていると認識できます。アト秒パルスは、このような物質の“瞬間的な動き”を計測する際に威力を発揮する、アト秒の時間幅（パルス幅）を擁する電磁波パルスのことを指します（図2(c)下）。

計測したい対象物の“動き”よりも十分に短い時間幅を持つアト秒パルスで、その対象物を照射すれば、その時間幅だけ平均化された（ぼやけた）“動き”の一部を撮影できます。そして、次にその時点からわずかに時間をずらしたタイミングで、“動き”をアト秒パルスで撮影します。以下同様、その“動き”全体にわたって、タイミングを細かく区切ってコマ撮りし、時間の経過にしたがってアト秒パルスで撮影したコマを並べれば、一連の動きを再現する動画ができます。ここで、どれだけ短い時間の“瞬間”を鮮明に計測することができるかは、アト秒パルスの時間幅によって制限されます。それまで、私たちが認識（コマ撮り）できる時間スケールは、1999年に Ahmed Zewail 教授が受賞したノーベル化学賞の対象である化学反応過程の典型的時間スケールに代表されるようにフェムト秒領域でした。アト秒パルスの発生は、人類が認知できる最短の時間スケールを、それまでのフェムト秒領域から桁違いに向上させたということに直結します。この理由により、2023年のノーベル物理学賞は、“物質中の電子ダイナミクス研究のためのアト秒パルス発生・計測の実験的手法の開発”に貢献した Pierre Agostini 教授、Ferenc Krausz 教授、Anne L’Huillier 教授の3名に授与されました^{(3)~(5)}。

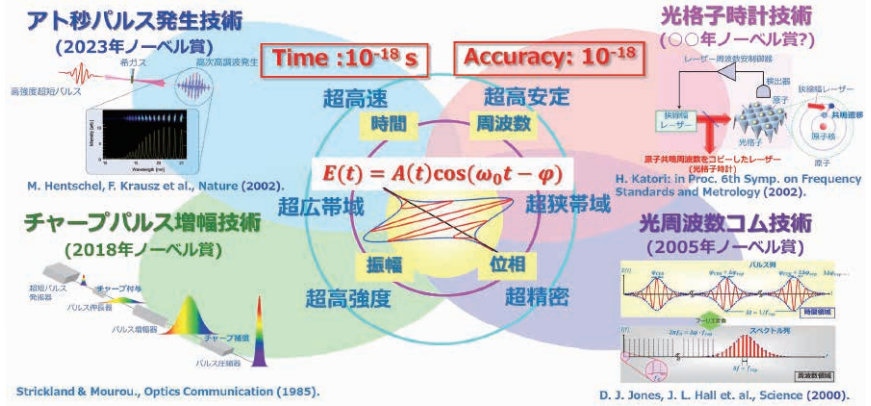
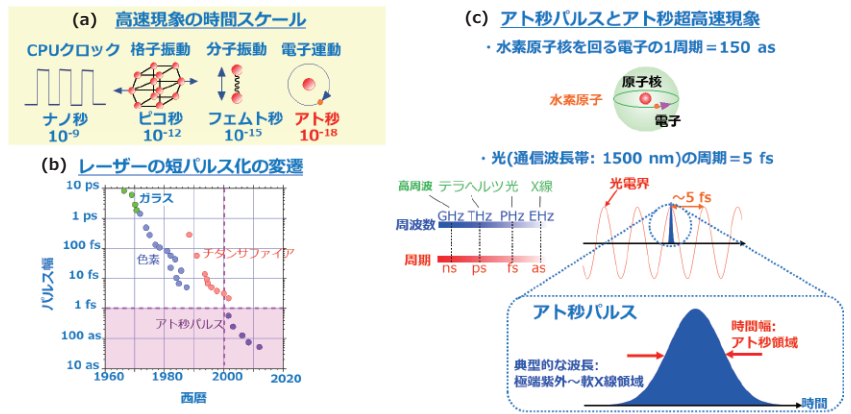


図1 光波を特徴づける時間、周波数、位相、振幅の4つのパラメータを制御することを可能にした光波制御技術



(a) 各時間スケールにおける典型的な超高速現象
 (b) レーザーの短パルス化の変遷。レーザーの発明直後より、パルス化が始まり、短パルス化技術が発展した。
 (c) アト秒パルスとアト秒時間スケールの超高速現象

図2 超高速現象と超短パルスレーザー技術

アト秒パルスの発生方法

アト秒パルスは、高強度超短パルスレーザーから出力される近赤外領域の光パルスを、主に希ガス原子中に集光することによって発生する高次高調波（HHG: High Harmonic Generation）パルスです。高次高調波発生メカニズムは、3ステップモデルという直感的にイメージしやすいモデルで理解されています⁽⁶⁾（図3左下）。まず、ピーク強度およそ 10^{14} W/cm²以上に集光した直線偏光の近赤外高強度・超短光パルスを希ガスに照射すると、光パルスのピーク近傍で振動する光電界がもっとも強くなる（振動の山と谷）タイミングで、希ガス原子の束縛ポテンシャルが強い光電界によって瞬間的に大きく歪み、最外殻の電子がその歪んだポテンシャル障壁をトンネル効果によって束縛から逃れてイオン化します（Step1: 光トンネルイオン化）。次に、

そのトンネルイオン化した電子が、その後続く電界に従って加速運動し、光電界の向きが反転することでイオン化した元の原子の近傍に戻ってくる過程で、光電界から運動エネルギーを獲得します（Step2: エクスカーション）。最後に、ある確率でイオン化した元の原子と再結合し、初期状態に戻ることによって、光電界の加速によって獲得した運動エネルギーと再結合の際に獲得するイオン化エネルギー一分に対応するエネルギーの光を放射します（Step3: 再結合）。この放射される電磁波パルスの波長は、一般的には極端紫外から軟X線の波長領域にあり、これがアト秒パルスに対応します。この一連の過程は、基本波の半周

*4 ボーア半径：ボーアの原子模型において、水素原子の第一軌道半径を表す物理定数です。ボーア半径 a_0 をSI単位のメートルで表した値は、 $a_0 = 5.292 \times 10^{-11}$ m となります。

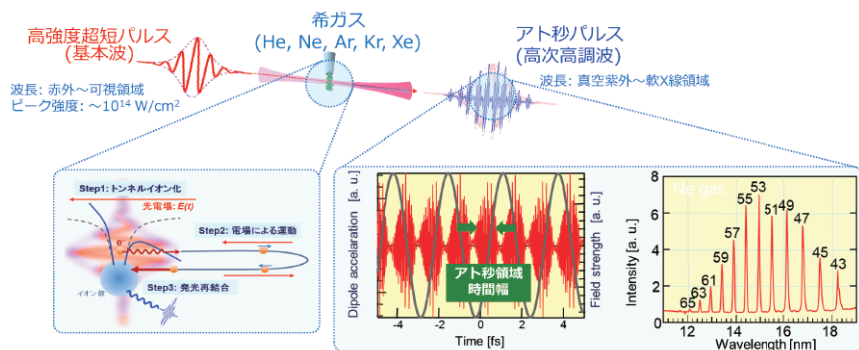


図3 アト秒パルスの発生原理 (3ステップモデル)

期ごとに正確に繰り返されるため、アト秒パルスは、基本波の半周期ごとに放射されるアト秒パルス列となっています (図3真ん中下)。このため、アト秒パルス列を周波数 (波長) 軸上で計測すると、基本波周期の2倍ごとに次数が増加し、奇数次数のみ発生することになります (図3右下)。このスペクトルの分布から分かるように、高次高調波のスペクトル帯域の分布の幅は数eVから数10 eVにわたります。このように極めて広いスペクトル帯域を持つ電磁波パルスがコヒーレントに重ね合わされた場合、そのパルスを時間軸上でみると、フーリエ変換の関係によって、スペクトル帯域の逆数に相当する時間幅のパルスになっており、数eVから数10 eVのスペクトル帯域は、数100 asから数10 asの時間幅に相当します。これがアト秒パルス発生の基本原理です。

以上のように、アト秒パルスは、通常、基本波の高強度超短パルスを構成する光電界が振動した数だけ連なるアト秒パルス列として発生しますが、これをパルス列ではなく、1パルス分だけ発生させることも可能です (単一アト秒パルス)。そのもっとも簡単な方法が、高強度超短パルスのパルス幅をできるだけ短くし、パルスの中で、電界がほぼ1回しか振動しないようなパルス (モノサイクルパルス) を基本波として用いることです。単一アト秒パルスは、次に紹介するアト秒時間分解分光法のプローブ光として利用することが可能です。

アト秒パルスの展開——アト秒科学: 光と物質のアト秒時間スケールダイナミクスの研究

アト秒パルス発生技術のもっとも重要な展開の1つが、前述した極めて高速な現象のアト秒動画技術です。それでは、“極めて高速な現象”とは何でしょうか？ その1つが、光と物質の相互作用におけるアト秒時間スケール動的現象 (ダイナミクス) です。例えば、光検出器などの原理となっている半導体中の電子と光 (可視光や近赤外光など) の相互作用について考えてみます⁷⁾。半導体の教科書に記載されているもっとも素朴な描像としては、半導体に光が照射されると電子系が光子エネルギーを吸収し、価電子エネルギーバンドから伝導エネルギーバンド*5へ量子遷移 (励起) するととらえます。光は、瞬間的にエネルギーを電子系に受け渡す役割を担っているだけで、時間的に高速振動する電界としての振る舞いは考慮されていません。光と相互作用する電子系も事情は同じで、電子は光のエネルギーを受け取り、“瞬間的”に高いエネルギー状態に遷移すると考え、光の振動電界によって引き起こされているはずの電子系の運動は考えません。一方、冒頭で紹介しましたように、光をパタヘルツ波としてとらえ直した場合、光電界で駆動される電子系のアト秒時間スケールの相互作用ダイナミクスそのものが主役に躍り出ます。可視光や近赤外領域の光電界の1周期はおよそ10000 asですが、光電界が1回振動している時間の途中では、電子はどのような状態、運動をとるのでしょ

うか？ 電子による光の吸収という、光と物質のもっとも基本的な相互作用でさえ、アト秒の時間スケールでとらえ直すと、教科書的な見方は、分からないことがたくさん出てくるのがお分かりいただけたと思います。アト秒動画技術は、このような疑問に対して、実験的にアクセスするもっとも有効な手段といえます。アト秒科学は、このようなアト秒時間分解能の光源・計測・分光技術を創出することや、これらの計測技術を用いたさまざまな物質系におけるアト秒時間スケールの現象を解明する学術分野です。

NTT 物性科学基礎研究所での取り組み

本特集では、NTT 物性科学基礎研究所におけるアト秒パルス技術・アト秒科学の最近の進展に関する4つのトピックスについて取り上げます。詳細は、各記事をご覧ください。なっていただくこととして、ここでは概要を紹介します。

■高輝度アト秒分光に向けた1.7 サイクル高強度光パルスのMHz繰返し発生

1番目の記事では、アト秒パルスを発生させるためのドライバとなる高強度・モノサイクル級パルス光源に関する成果を紹介します。近年、第1世代アト秒パルス発生におけるドライバレーザの主役であったチタンサファイア (Ti:sapphire) レーザ増幅器に代わり、高平均出力・高繰返し発生が可能なイットリビウム (Yb) 系レーザ増幅器の技術が急速に進展し、注目を集めています。Yb系レーザ増幅器の典型的なパルス幅は200 fs以上であり、パルス幅15 fs級が実現可能なチタンサファイアレーザと比較して、その短パルス性には及ばないものの、平均出力が100 W級以上、パルス繰返し数も数MHzまで可変可能です。本記事では、このようなYb系レーザ増幅器とマルチプレートパルス圧縮技術を組み合わせることで、モノサイクル級パルスを発生し、高い平均出力を有する単一アト秒パルス発生が可能なドライバ光源の開発について解説します。

*5 価電子帯 (エネルギーバンド)、伝導帯: 固体結晶は、バンドと呼ばれるエネルギー構造を持っています。価電子帯は、電子を含むもっともエネルギーの高いバンドであり、伝導帯は、電子の存在しないもっとも低いエネルギーバンドです。

■固体におけるトポロジカル高調波発生

NTT 物性科学基礎研究所では、これまで、希ガス原子を媒質としたアト秒パルス（高次高調波）発生の研究に取り組み、高次高調波パルスの短パルス化、短波長化、高出力化などのパラメータの拡大・制御を実現してきました。

2 番目の記事では、固体を媒質として利用し、固体特有の空間的な結晶対称性を利用することによって、高次高調波パルスの空間位相（波面形状）の制御を実現した成果について紹介します。波面形状を制御した光は、トポロジカル光と呼ばれ、トポロジカル高次高調波の発生は、アト秒の時間幅と特異な波面形状を兼ね備えた新たなアト秒パルスの発生と、アト秒パルスの応用領域の拡大・展開が期待されます。本研究では、固体におけるトポロジカル高次高調波発生について、その変換ルールが固体の対称性を反映して決まる汎用的な法則のうえに成り立っていることも明らかにしました。

■アト秒パルスを用いた固体電子系超高速ダイナミクス計測

アト秒パルスを用いたもっとも基本的な時間分解計測系は、超短パルス光と高次高調波パルスを組み合わせたポンプ・プローブ型アト秒時間分解分光です。アト秒時間分解分光法は、2001年の単一アト秒パルス発生の実現の直後から始まり、当初、気体の原子中の電子ダイナミクス計測へ適用されました。2010年代に入ると、固体電子系への適用が本格的に開始され、超短光パルスポンプ・単一アト秒パルスプローブ型吸収分光がスタンダードな手法として用いられてきました。

3 番目の記事では、NTT 物性科学基礎研究所が、アト秒パルス分光計測の第一線をリードしてきた、固体中の光誘起電子系応答の観測や、超高感度フォノン振動計測、時間分解角度分解高電子分光計測など多彩なアト秒時間分解分光手法による固体電子超高速ダイナミクス計測の中から、アト秒時間分解吸収分光法を用いた光誘起非織維系分極振動ダイナミクスの研究について紹介します。

■高強度光パルス——固体電子系の実時間量子ダイナミクスシミュレーション

光をペタヘルツ波ととらえ直すと、光電

界の1周期よりも短いアト秒時間スケールにおける光電界と物質の相互作用が問題となります。

4 番目の記事では、高強度光電界が引き起こす超高速電子ダイナミクスに注目し、高強度光電界が半導体・絶縁体に印加された際のトンネル効果による電子の遷移率を量子ダイナミクスシミュレーションで評価した成果について紹介します。

高強度光電界と半導体電子系の相互作用において、電子・正孔相互作用を含む理論モデルを構築し、電子間相互作用がトンネル遷移確率に影響することを明らかにしました。このような理論・シミュレーションの研究は、従来の光科学で仮定されてきた近似の枠組みを超えたアト秒時間スケールの電子ダイナミクスを理解し、実験結果を解析する強力な方法論になります。

今後の展望

本特集では、NTT 物性科学基礎研究所で進めているアト秒技術・アト秒科学について、理論・実験の両面からの取り組みについて解説します。2023年度のノーベル賞の選考委員長からのコメントでは、アト秒パルスは発生する段階から「利用する」段階へ移ったとの認識が示されました。私たちが進めてきたアト秒パルスによるアト秒時間領域の電子ダイナミクスの研究は、まさにこの認識を先取りしてきた取り組みです。また、私たちの研究は、摂動の範囲内で包絡線近似や回転波近似などを前提としている従来の光物性を超えた枠組みを開拓するものであると同時に、固体電子系への適用により、ペタヘルツ波による電子機能の極限動作スピードを追求するものといえます。電子の運動の自然な時間スケールと同等なパルス幅を持つアト秒パルスの応用は多岐にわたると考えられますが、ペタヘルツ波によるアト秒スケール電子系制御は、その応用へのブレークスルーとなる最重要ターゲットであることは間違いありません。しょう。

19世紀後半、英国の写真家エドワード・マイブリッジは、最高的高速写真撮影技術を開発し、馬が疾走する様子のコマ撮り撮影に成功することで、当時話題となった“走る馬の脚は4本同時に離れるか？”という

論争に終止符を打ちました。いつの時代も人々を引き付けてやまない“どのように動いているのか？”を見たいという好奇心は、21世紀の“走る馬”をとらえる研究の原動力になっています。

■参考文献

- (1) <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2023/press-release/>
- (2) 小栗：“ペタヘルツエンジニアリング創出に向けたアト秒光物性～NTT 物性科学基礎研究所における超高速光物理研究～,” 日本物理学会誌, Vol.70, No.12, pp.936-940, 2015.
- (3) M. Ferray, A. L'Huillier, X.F. Li, L.A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus: “Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases,” J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys., Vol.21, L31, 1988.
- (4) P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini: “Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation,” Science, Vol.292, No.5522, pp.1689-1692, 2001.
- (5) M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz: “Attosecond metrology,” Nature, Vol.414, pp.509-513, 2001.
- (6) P. B. Corkum and F. Krausz: “Attosecond science,” Nat. Phys., Vol.3, pp.381-387, 2007.
- (7) 小栗・増子・後藤：“半導体の光電場駆動ペタヘルツ電子応答,” 固体物理, Vol.54, No.11, pp.713-725, 2019.



小栗 克弥

光速光物理の研究は、レーザー制御技術の究極を追求する最先端技術研究と、極限レーザー光電界と物質の新しい相互作用物理を開拓する物性研究の2つを両輪とする光の極限をめざす研究です。新しい光技術の“知の泉”を産み出すワクワクする可能性を感じ取っていただければ幸いです。

◆問い合わせ先

NTT 物性科学基礎研究所
フロンティア機能物性研究部
量子光デバイス研究グループ
TEL 046-240-3461
FAX 046-270-2358
E-mail katsuya.oguri@ntt.com