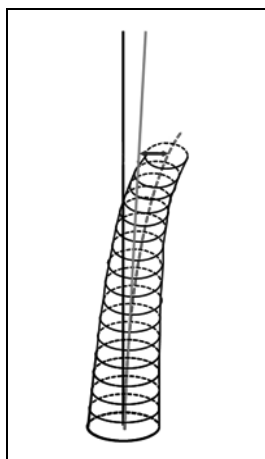


アト秒科学の進展

国立研究開発法人理化学研究所
沖野友哉，鍋川康夫，緑川克美



1. はじめに

物質は原子核と電子から構成されており，アト秒の時間分解能が物質内の電子の運動を観測するために必要である。化学反応をつかさどるのは電子の運動であり，まず電子が動くことで物質内の電子分布が変化する。そして，その電子分布の変化に追従することで原子核が動き，化学結合の組み換えが誘起されるという理解がされている。しかし，これを直接的に観測することはこれまで実現できていない。アト秒科学とは，物質中の電子の運動をリアルタイムで観測および操作することによって，化学反応素過程を根本から明らかにすることや新しい物性を有する物質の創製を目指す研究分野である。光波の精密な制御を必要とするために，最先端のレーザー技術と計測技術の融合を必要とする光量子科学の研究分野の一つである。

本稿では，アト秒科学の概要を紹介するとともに，特に物質中の超高速ダイナミクスの実時間追跡への応用について，そこで用いられる光源および計測手法の構成や特徴について解説する。

2. アト秒科学とは

2-1 アト秒の時間分解能

例えば，水素原子の基底状態の電子が原子核の周りを一周するのにかかる時間は152アト秒である。また，水素原子の基底状態と第一励起状態が同時に励起された場合には，電子状態の重ね合わせ状態，すなわち電子波束が生成することになる。このとき，2つの状態間のエネルギー差が10.2 eVであるため，電子波束の周期は約400アト秒となる。現在では，100アト秒以下の時間幅を有するアト秒パルスの発生が可能であるため，電子の運動をリアルタイムで観測するに十分な時間分解能を有する光源が存在する。

2-2 アト秒パルスの発生

レーザーパルスの最短パルス幅，すなわち光学サイクルは中心波長に依存する。例えば中心波長が800 nmのチタンサファイアレーザーの場合，最短パルス幅は2.7 fsであり，アト秒の時間分解能を得ることはできない。3次高調波（波長266 nm）で始めて光学サイクルがフェムト秒を切り，900 asとなる。すなわち，アト秒パルスを発生させるためには，短波長への変換を必要とする。レーザーの有する時間コヒーレンスおよび空間コヒーレンスを継承したまま短波長変換を実現する方法として，高次高調波発生法¹⁾がある。高強度フェムト秒レーザーの出力を原子および分子に集光照射することで高次高調波を発生させることができる。このとき，高調波のフーリエ合成電場としてアト秒パルスが発生する。高調波のスペクトルが離散的な場合には，アト秒パルスが光学サイクルの半周期で連なるアト秒パルス列となり，高調波のスペクトルが連続的な場合には，単一のアト秒パルスとなる²⁾。