

[受賞者] ピエール・アゴスティニ (Pierre Agostini) 氏 (アメリカ)

フェレンツ・クラウス (Ferenc Krausz) 氏 (ドイツ)

アンヌ・リュイリエ (Anne L'Huillier) 氏 (スウェーデン)

「アト秒パルス光を発生するための実験的手法の開発」について

東京理科大学 創域理工学部 先端物理学科 教授 須田 亮

2023年のノーベル物理学賞は Pierre Agostini 氏 (米国), Ferenc Krausz 氏 (ドイツ), Anne L'Huillier 氏 (スウェーデン) の3氏に授与された。受賞理由は「アト秒パルス光を発生するための実験的手法の開発」である。私たちの身の周りにある物質の性質は電子が支配していると言っても過言ではないが、その挙動は速すぎて直接捉えることができなかった。水素原子の基底状態にある電子が原子核の周りを周回する時間が約150アト秒 (as: 10^{-18} s) であることから分かるように、電子の運動を観測するにはアト秒の時間分解能が必要である。3氏は、プローブとなるアト秒パルス光の発生を実現し、これによって物質中の電子ダイナミクスの観測を可能とした功績により受賞した。

■ 高次高調波の発見とその原理の解明

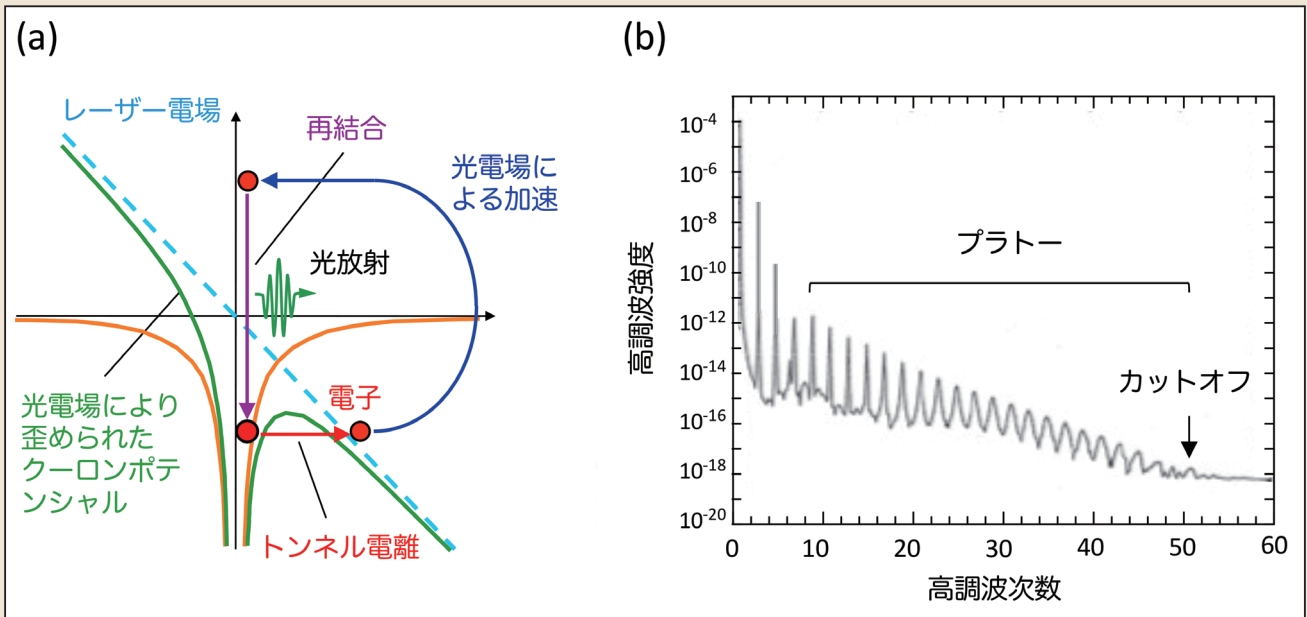
フランス出身の L'Huillier 氏は、原子力庁 Saclay 研究所で多光子電離や超閾電離におけるエネルギー収支を研究していたところ偶然にも高次高調波を発見し¹⁾、その後の展開のきっかけとなった。高調波とは、原子や分子に高強度の光が入射したとき、応答に歪みが生じて現れる成分のことであり、入射波 (基本波と呼ばれる) の整数倍の周波数をもって発生する。2次や3次の高調波は比較的容易に発生するものの、それ以上の次数の高調波を発生させることは難しく、当時は7~9次程度が限界であると考えられていた。ところが1980年代後半、ピコ秒 (ps: 10^{-12} s)、フェムト秒 (fs: 10^{-15} s) パルス時代の到来とともにピークパワーが飛躍的に増大し、原子内の束縛電子を感じるクーロン場に匹敵する大きさの光電場を生成できるようになった。高強度のレーザー電場に晒された原子では、電子がトンネリングによりポテンシャル障壁をすり抜

け、レーザー電場により加速された後、向きを反転して元の原子の位置に戻り再結合する【図1(a)】。その際に余剰エネルギーが光として放射され、これが基本波の半周期ごとに繰り返されて高次高調波となる。【図1(b)】のように、周波数スペクトルに次数が大きくなっても強度の減少が緩やかな“プラトー”と呼ばれる平坦部と最高次数に対応する“カットオフ”が現れる。今日、最高次数は数100次に及び、波長にして数nmの軟X線領域に達している。このような高次高調波の発生原理の解明とともに、時間的構造についての理解も深まり、高次高調波は基本波の半周期毎に発生するアト秒パルスから成るパルス列であることが明らかとなってきた。しかし、当時はそれを観測する実験的手段がなく、さらに、実用上はパルス列ではなく単一パルスが望ましいことから、これらを実現するための発生法がその後の課題となった。

■ アト秒パルスの発生・計測と応用

Agostini 氏もフランス出身であり、同じく Saclay 研究所で原子物理学を専門として研究を進めてきた。1970年代後半に超閾電離を発見し、むしろこの功績の方がよく知られているであろう。超閾電離は10年後に L'Huillier 氏が高次高調波を発見するきっかけとなった。Agostini 氏は、2000年代初頭に RABITT と呼ばれる手法により、アト秒パルス列の時間構造を測定することに初めて成功した²⁾。

また、同時期に Krausz 氏は、単一のアト秒パルスの発生と計測を実証した³⁾。ハンガリー出身の Krausz 氏は、オーストリアのウィーン工科大学で、チャープミラーと呼ばれる光パルスの伸びを補正する誘電体多層膜鏡を開発した。その波及効果は大きく、フェムト

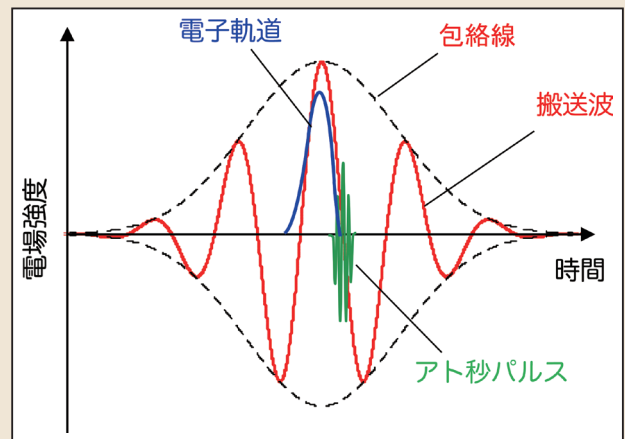


【図1】 (a) 高次高調波発生モデルと (b) 高次高調波スペクトルの一例

秒パルスが発生するモード同期発振器の安定性が飛躍的に向上し、さらに、増幅器の小型化と安定化にも大きく貢献した。卒業生とともにベンチャー企業を立ち上げる一方、折しも、アト秒パルスの実現に向けて気運が高まりつつある中で、一躍そのトップランナーに躍り出た。単一アト秒パルスが発生させるには、パルス幅が十分短い数サイクルパルス（パルス内に電場の振動が数サイクルしか含まれないパルス）を基本波として用いることと、搬送波包絡線位相を制御することが必要である【図2】。前者は既に達成していたものの、後者については Max Plank 研究所の Theodor Hänsch 教授（2005 年ノーベル物理学賞受賞）に協力を仰ぎ、レーザー装置を光学ベンチごとトレーラーに積み込み、Wien から Garching まで運んで実験を行ったという逸話もある。Krausz 氏は、相互相関法を用いた測定により 650 as の単一アト秒パルスの発生を初めて実証し³⁾、さらに、内殻励起状態の緩和過程の観測、光電子放出における遅延時間の測定、光電場の実時間観測など、さまざまな応用研究を推進し、その後のアト秒科学の発展を牽引した。

■おわりに

L'Huillier 氏は現在、スウェーデン Lund 大学の教授であるとともに、スウェーデン王立科学アカデミーのメンバーでもある。2015 年に梶田先生がノーベル物理学賞を受賞したときは、L'Huillier 氏が登場して受賞理由を説明した。裏方（選考側）にまわったこと



【図2】 基本波とアト秒パルスの時間的關係。単一アト秒パルスの発生には搬送波と包絡線の位相が揃った数サイクルパルスが必要である。

でその後の受賞資格が失われるのではないかとこの噂が駆け巡ったが、今回の受賞でそのような懸念は払拭された。

さて、光パルスの時間幅は 10 年でほぼ 1 桁ずつ短くなっている。現在、最短パルスは 50 as を下回り、そろそろzeptosecond (zs: 10^{-21} s) を目指した取り組みが現れてもよい頃である。今後の展開に注目したい。

参考文献

- 1) M. Ferray *et al.*, J. Phys. B **21**, L31 (1988).
- 2) P. M. Paul *et al.*, Science **292**, 1689 (2001).
- 3) M. Hentschel *et al.*, Nature **414**, 509 (2001).