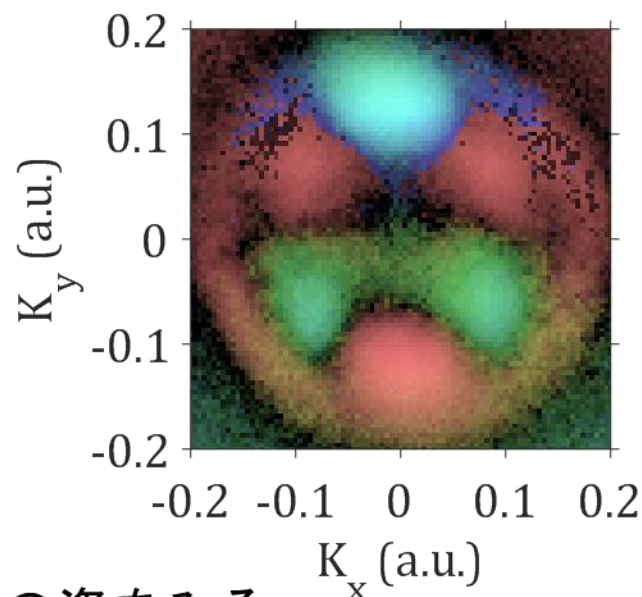
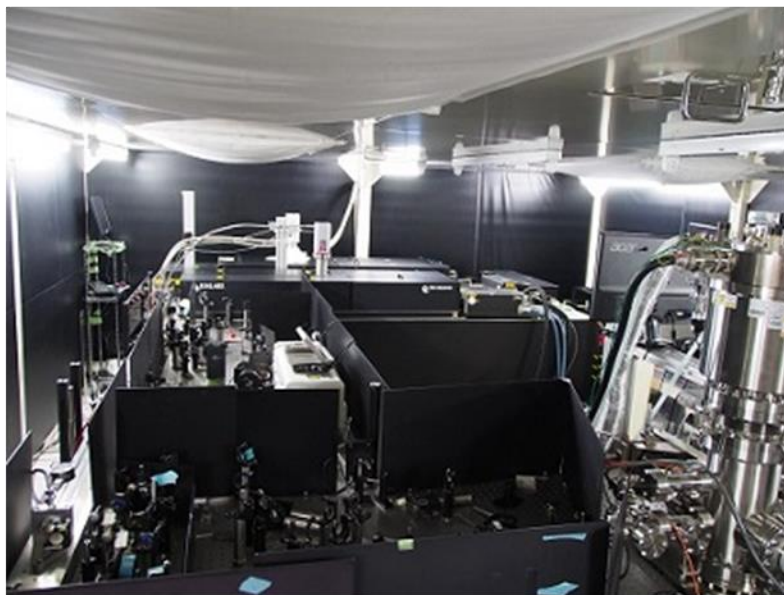


# アト秒科学のなぜ・なに解説

2022年ウルフ賞&2023年ノーベル賞記念版

updated 2023.12.8

詳しい説明はAPPENDIXにあります。



アト秒科学・・・電子の姿をみる

早稲田大学 先進理工学部 応用物理学科  
教授 新倉弘倫

私費ロゴは  
須藤雄気教授（岡山大）  
からのインスパイアです。



# 2022年度 ウルフ賞 (物理)

## アト秒物理と超高速分光



**"for pioneering contributions to ultrafast laser science and attosecond physics"**

**Dr. Anne L'Huillier, Dr. Paul Corkum Dr. Ferenc Krausz**

<https://wolffund.org.il/2022/02/08/congratulations-prof-corkum-prof-lhuillier-prof-krausz-are-awarded-the-2022-wolf-prize-in-physics/>

---

# 2023年度 ノーベル賞 (物理)

## 物質中の電子運動の研究のための アト秒光パルス発生の実験的方法

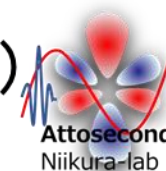
**"for experimental methods that generate attosecond pulses of light for the study of electron dynamics in matter"**

**Dr. Pierre Agostini, Dr. Ferenc Krausz Dr. Anne L'Huillier,**

<https://www.nobelprize.org/uploads/2023/10/advanced-physicsprize2023.pdf>

☆ウルフ賞の受賞範囲の一部が、ノーベル賞になっています（範囲が狭い）。

# (1) ネイチャー誌の初めてのアト秒のレビュー(2002年)



## Nature in Context 2002 “The fast show”

Nature 420, 737 (2002)

<https://www.nature.com/articles/420737a>

Dr. Krausz

Dr. Agostini

1. Paul, P.M. *et al.* **Science** 292, 1689 (2001).
2. Hentschel, M. *et al.* **Nature** 414, 509 (2001).
3. Drescher, M. *et al.* **Nature** 419,803 (2002).
4. **Niikura, H.** *et al.* **Nature** 417,917 (2002).

4つ論文があげられている。

- ・ 1つはアゴスティーニ研
- ・ 2つはクラウス研
- ・ **1つはコーカム研（新倉）**

## (2) ネイチャー誌によるマイルストーン(2010年)

### “Milestone Photons”

光学の歴史的なマイルストーンとなる  
分野・研究を挙げた特集。

<https://www.nature.com/collections/haabfcefab>

#### Milestone 22

#### “Into the attoworld”

Nature Materials 9, S19 (2010)

### アト秒科学のマイルストーンとして 挙げられているオリジナル論文

コーカム研

1. Schafer, K. J., Yang, B., DiMauro, L. F. & Kulander, K. C. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. Phys. Rev. Lett. 70, 1599–1602 (1993)

2. Corkum, P. B. A plasma perspective on strong field ionization. Phys. Rev. Lett. 71, 1994–1997 (1993)

3. Antoine, P., L'Huillier, A. & Lewenstein, M. Attosecond pulse trains using high-order harmonics. Phys. Rev. Lett. 77, 1234–1237 (1996)

アゴス研

4. Paul, P. M. et al. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. Science 292, 1689–1692 (2001)

5. Hentschel, M. et al. Attosecond metrology. Nature 414, 509–513 (2001)

6. Drescher, M. et al. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. Nature 419, 803–807 (2002)

7. Baltuska, A. et al. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. Nature 421, 611–615 (2003)

クラウス研

コーカム研

8. Niikura, H. et al. Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wavepacket pairs. Nature 421, 826–829 (2003) 新倉

9. Baker, S. et al. Probing proton dynamics in molecules on an attosecond timescale. Science 312, 424–427 (2006)

クラウス研

10. Uiberacker, M. et al. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. Nature 446, 627–632 (2007)

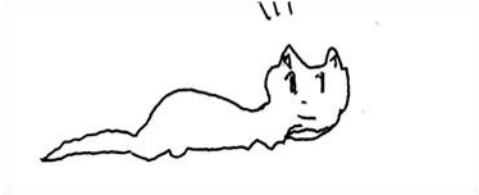
11. Cavalieri, A. L. et al. Attosecond spectroscopy in condensed matter. Nature 449, 1029–1032 (2007)

コーカム研

12. Meckel, M. et al. Laser-induced electron tunneling and diffraction. Science 320, 1478–1482 (2008)

<https://www.nature.com/articles/milephotons22>

日本人で唯一 (H. Niikura) !!!

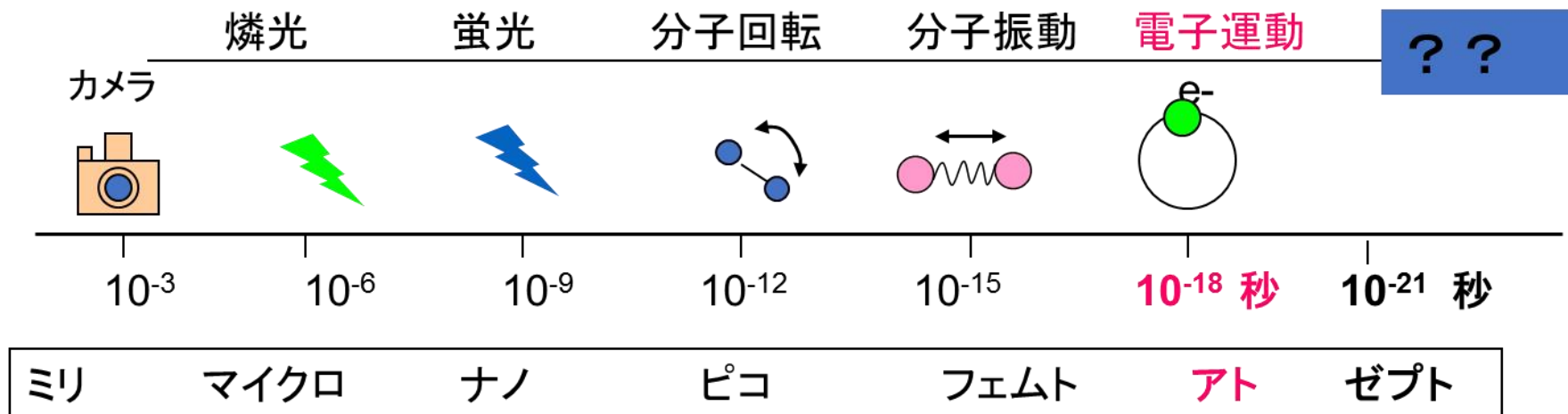


# 1. アト秒ってなんですか？

- 電子の様子・ダイナミクスを測定
- 瞬間的に光るフラッシュ・レーザーパルス

なぜアト秒パルスを作るのは難しかったのか。

# アト秒 as, attosecond

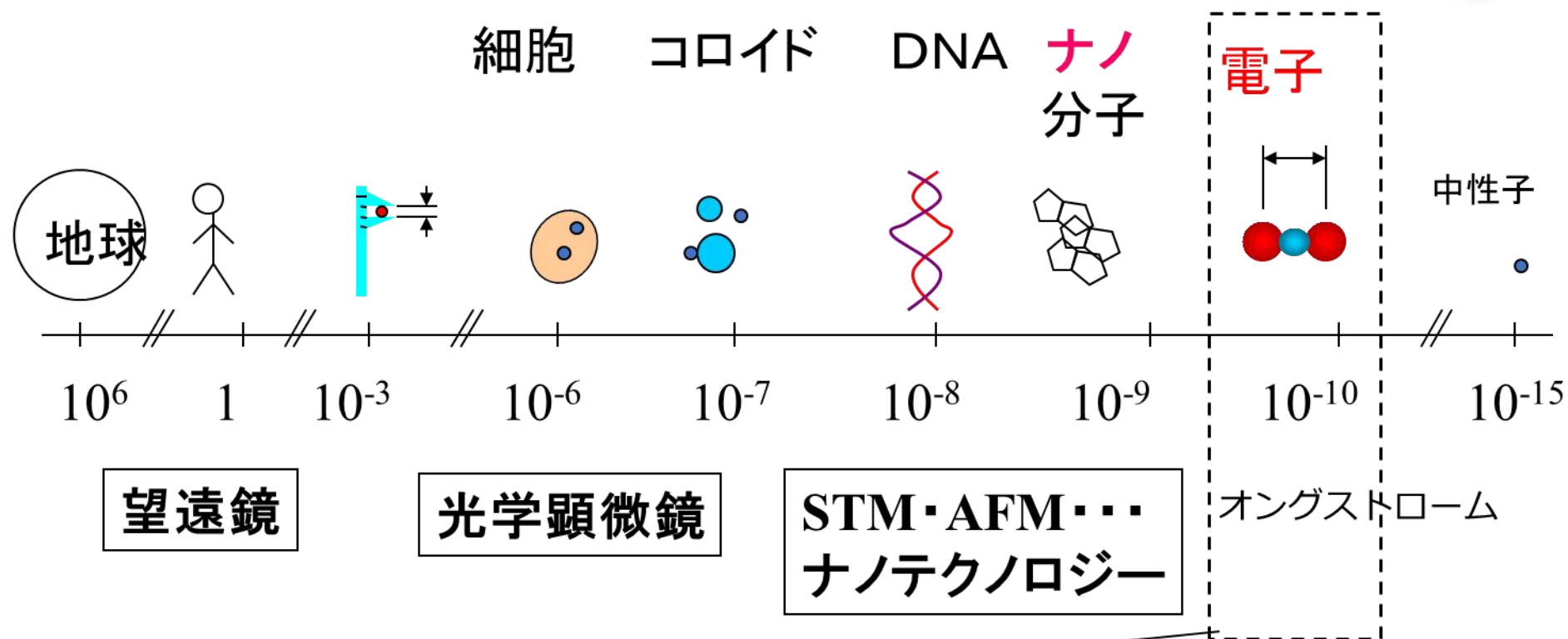


電子の姿(分布・位相)を”光(アト秒パルス)”で観る

分子の「中身」= ”電子の姿”を観測する。  
・従来のナノ科学では見えなかったものを見る。

アト秒・オングストロームの科学

# 電子の大きさ(分布)(オングストローム)



電子の姿を「アト秒光パルス・再衝突電子」で見る

Attosecond and Angstrom Science  
アト秒・オングストロームの科学

# 速く動くものを測定するには??



シャッターが開いている時間

0.077 秒

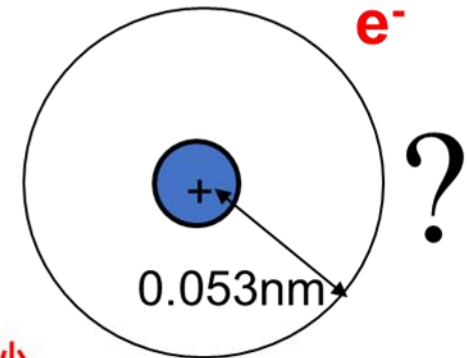
77 ms



0.0005秒

500  $\mu$ s

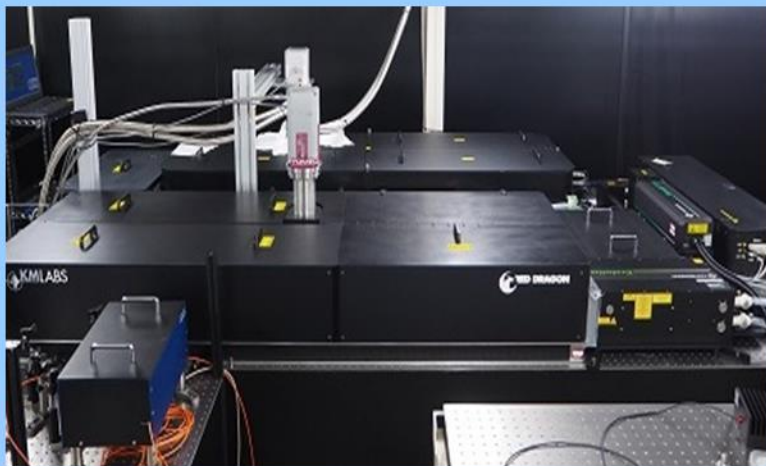
ボーアモデル  
 $e^-$



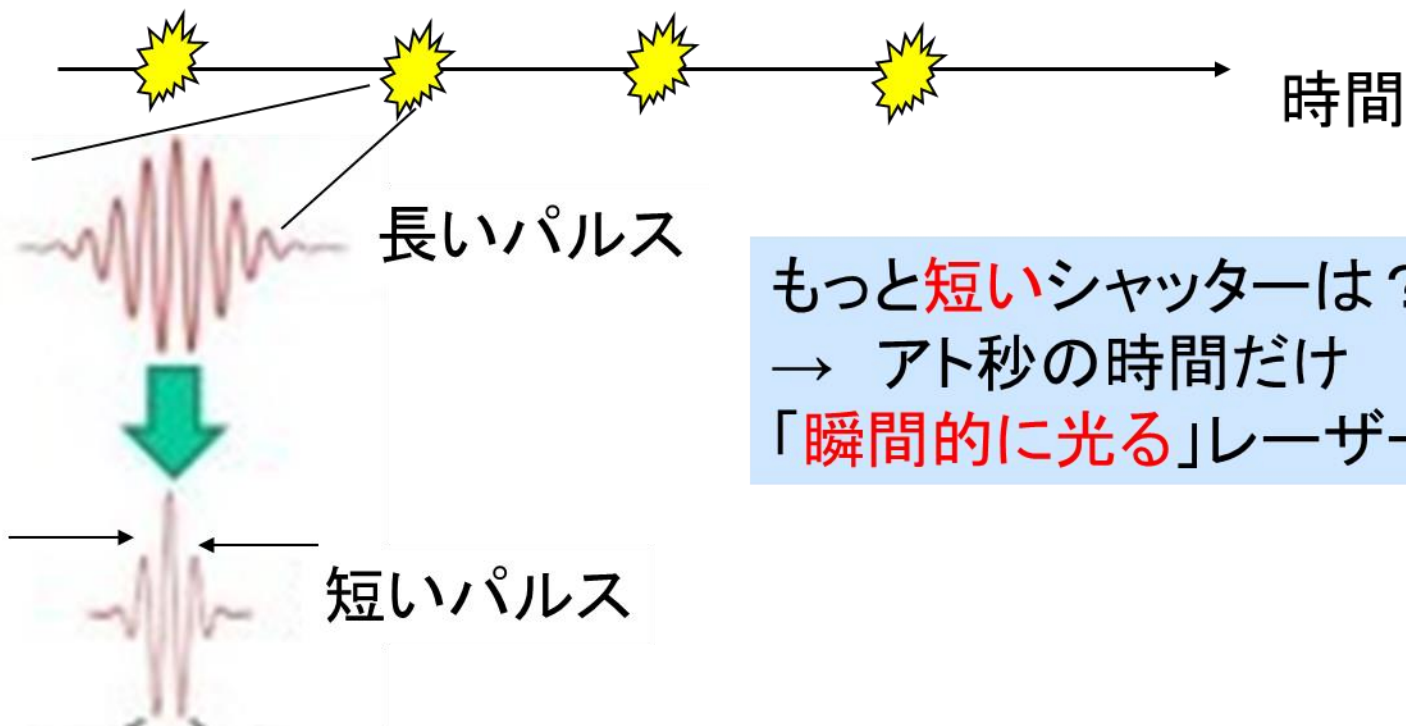
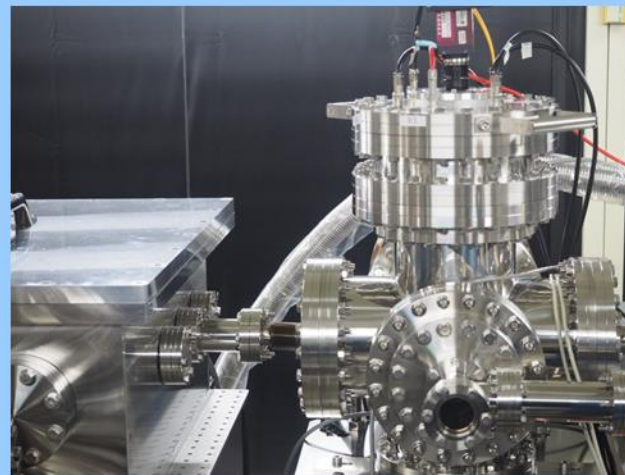
150 アト秒

=0.000 000 000 000 000 15 秒  
150 as (古典的な電子運動)

# アト秒レーザーパルス

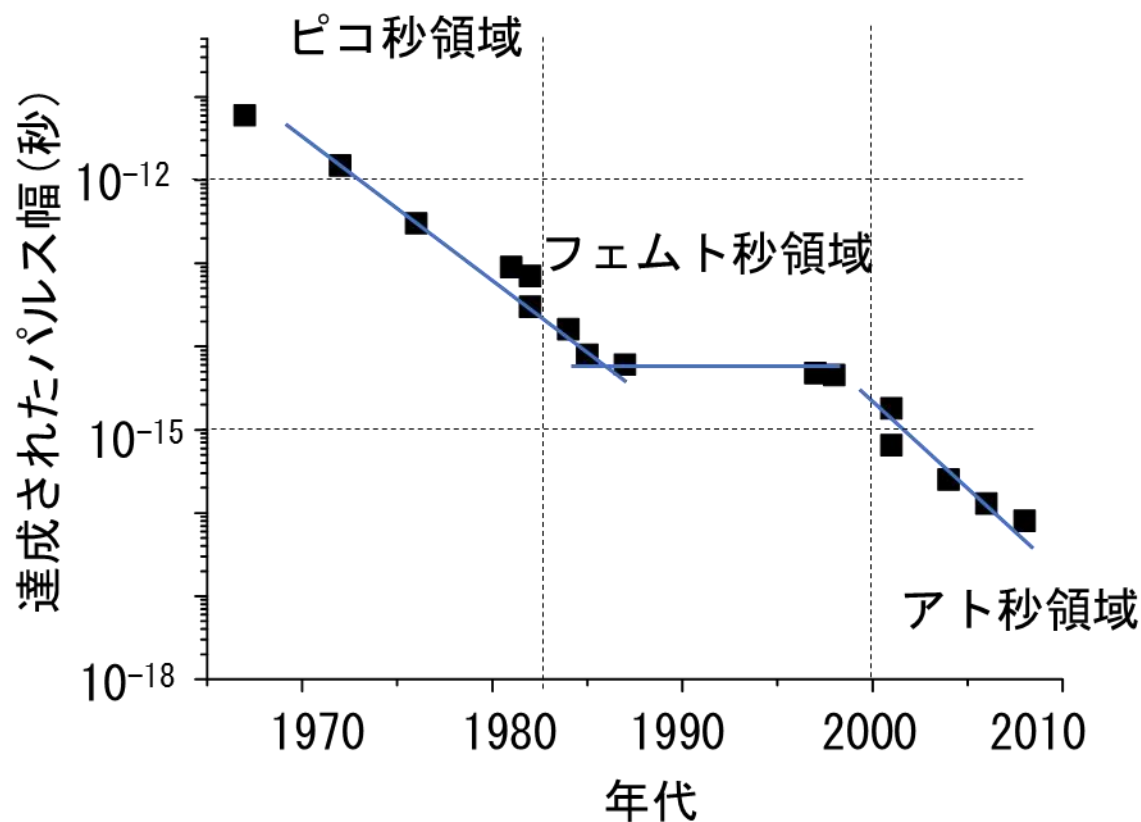


+



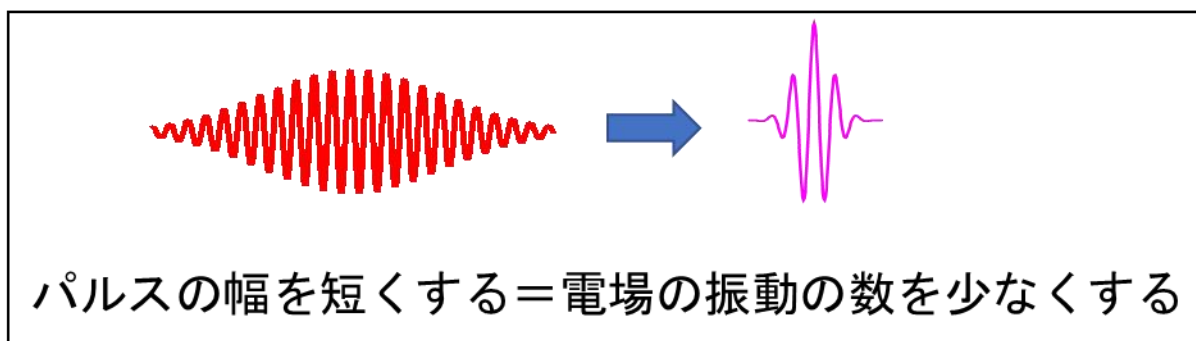
もっと**短い**シャッターは??  
→ アト秒の時間だけ  
「**瞬間的に光る**」レーザーパルス！

# 短いパルス幅のレーザーを作る

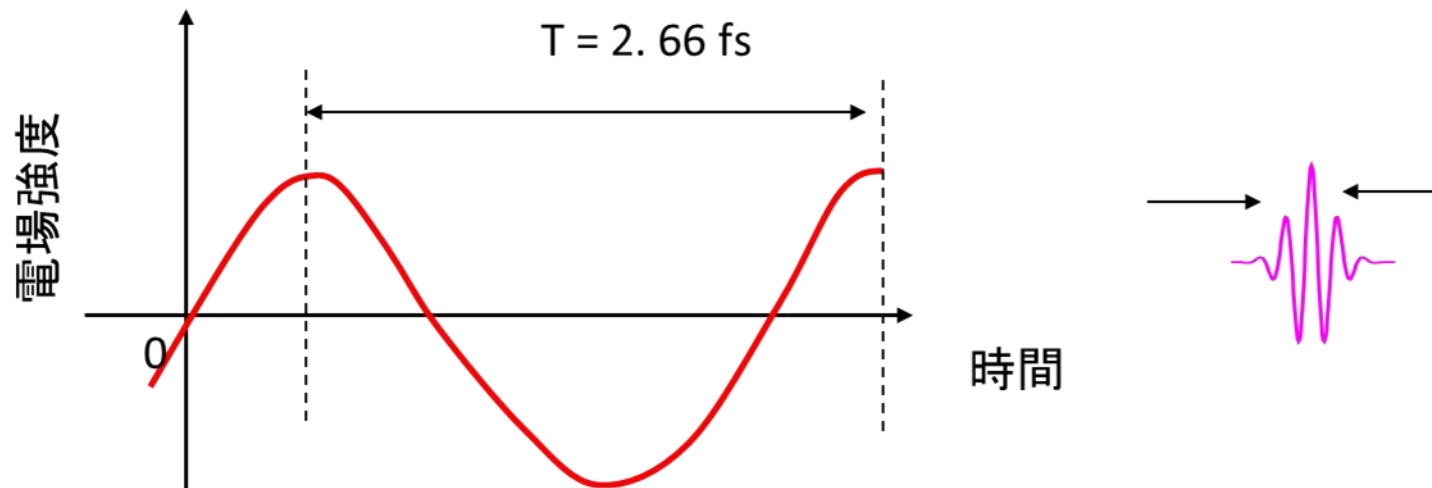


フェムト～アト  
で技術的なギャップ

フェムト秒とは  
異なる考え方が必要



# なぜアト秒パルスを作るのが難しかったか



赤外では、アト秒はレーザー電場の1周期よりも短い時間  
したがって、赤外レーザーでは、パルス幅を短くしてもアト秒に到達するのが困難だった  
(2023年現在ではモノサイクルに近いパルスもあります)

そのため、以下の三つの方法を新たに開発する必要があった。

- ・どうやって発生するか？
- ・パルス幅をどう計測するか？
- ・アト秒の現象(特に電子運動)をどうやって測定するか？

- ・極端紫外・・・より短い波長を用いる
- ・レーザー電場1周期以内のダイナミックス



## 2. どんな発見や理論モデル・技術が、 アト秒につながったの??

### アト秒科学前夜（～2000まで）

- (1) 「高次高調波」の発見(1988)      A. L'Huiller 博士
- (2) アト秒科学の基礎となるモデル（三段階モデル）(1993)
  - ・ アト秒パルス発生 of 理論予測(1994)
  - ・ アト秒パルスや現象の測定法の提唱(1997)P. Corkum 博士
- (3) フェムト秒レーザー技術の発展
  - ・ 高強度の短い赤外パルス（few-cycle）の発生
  - ・ キャリアエンベロープ位相安定化技術F. Krausz 博士

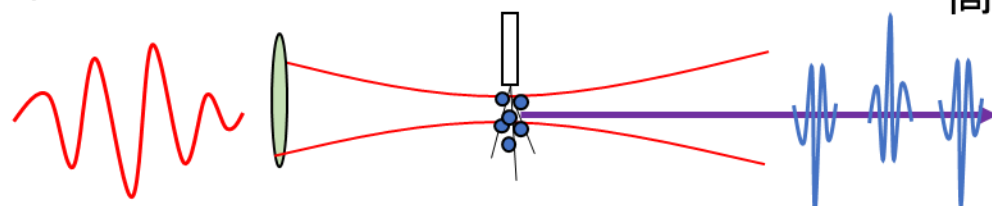
# (1) 高次高調波の発見(1988)

Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases

M Ferray, A L'Huillier, X F Li, L A Lompre, G Mainfray and C Manus

J. Phys. B21, L31 (1988)

赤外パルス

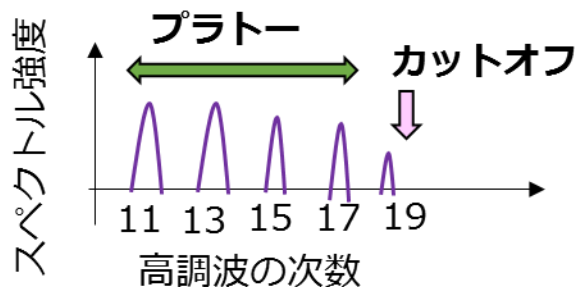


高次高調波発生

(パルス列)

高強度赤外レーザーパルス(波長800nmや約1000nmなど；基本波)を原子や分子などに集光すると、はるかに波長の短い極端紫外領域(60nmなど)の光が発生することを発見！ 高次高調波と呼ぶ。

高次高調波のスペクトルの特徴



## 1. 基本波の奇数次倍

(9倍・11倍・13倍など) のとびとびのエネルギー(波長でいえば1/9, 1/11, 1/13などの波長)

## 2. プラトー領域を持つ

次数があがっても、強度が大きく減少しない  
(これまでの非線形過程では、次数があがると強度が大きく減少し、高次までの到達が困難)

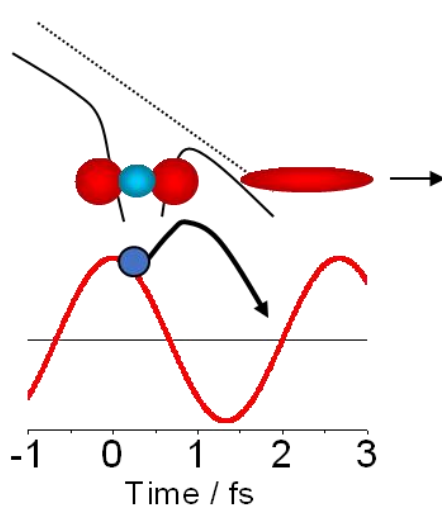
## 3. カットオフ

ある次数で、急激に強度が減少する。

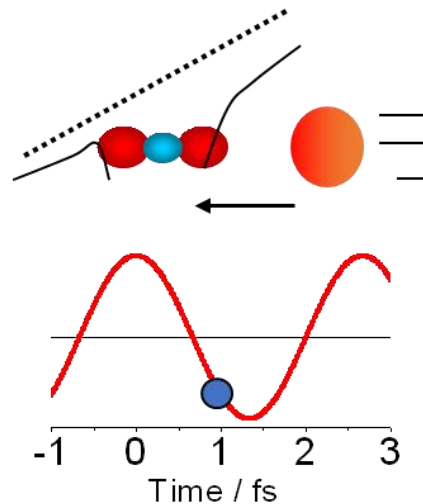
なぜ、どのようなメカニズムで発生するのか??が不明だった。

Paul Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993)

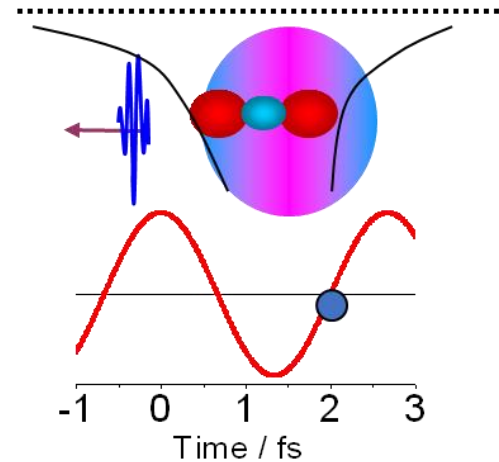
### 1. トンネルイオン化



### 2. 電場中で加速



### 3. 電子の再衝突

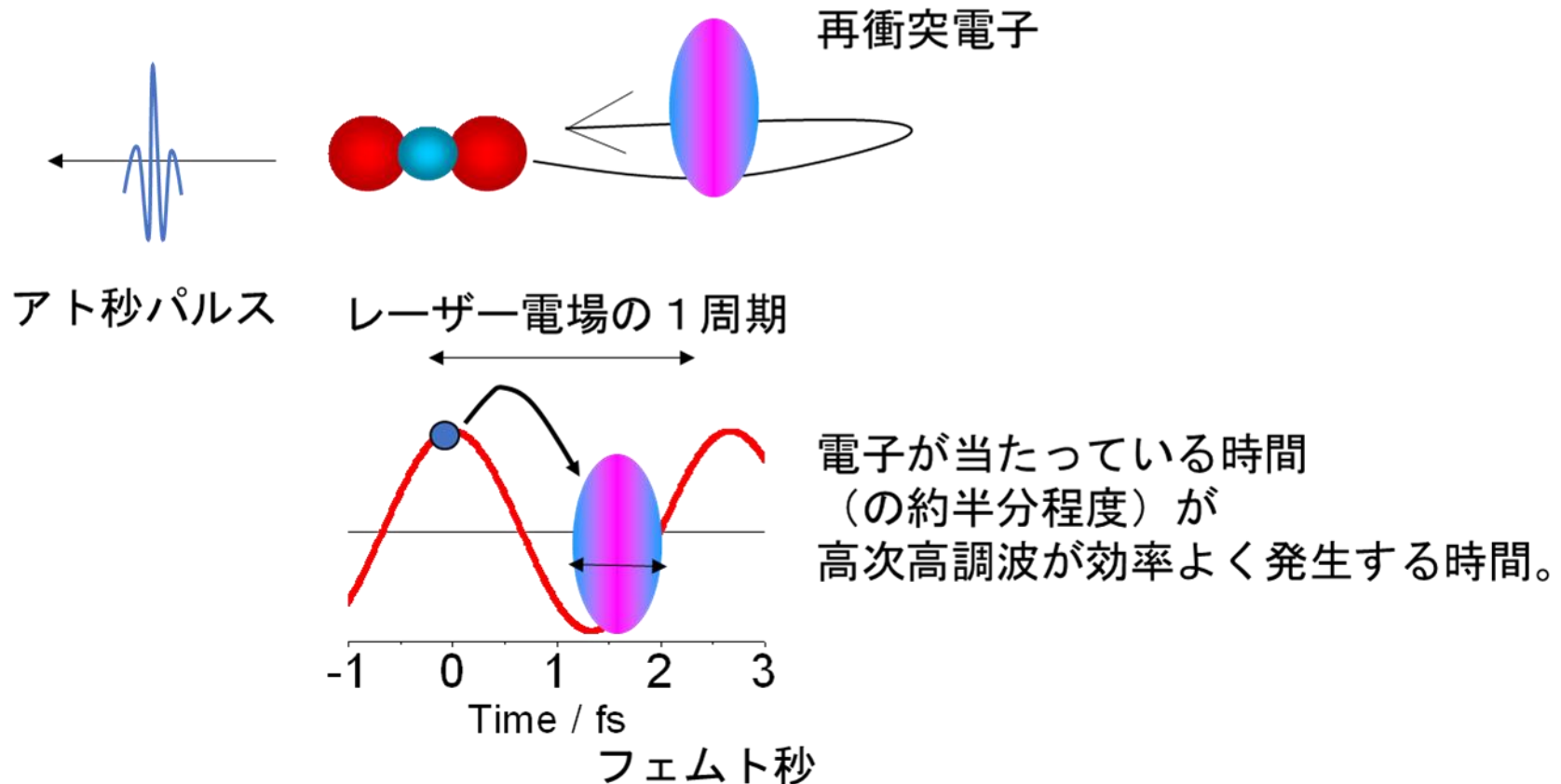


1. 赤外のレーザー電場により、原子中の電子が引き出され（トンネルイオン化）
2. 電子は電場中で加速されるが、電場の向きが変わると
3. もとの原子に戻ってきて、衝突する（電子再衝突）。  
衝突したときに、衝突エネルギーが光のエネルギーに変換され、  
極端紫外の波長の短い光（高次高調波）が発生する！

トンネルイオン化—電子再衝突過程は  
レーザー電場の1周期（800nmなら2.66 フェムト秒）以内に生じる。  
sub-laser-cycle process

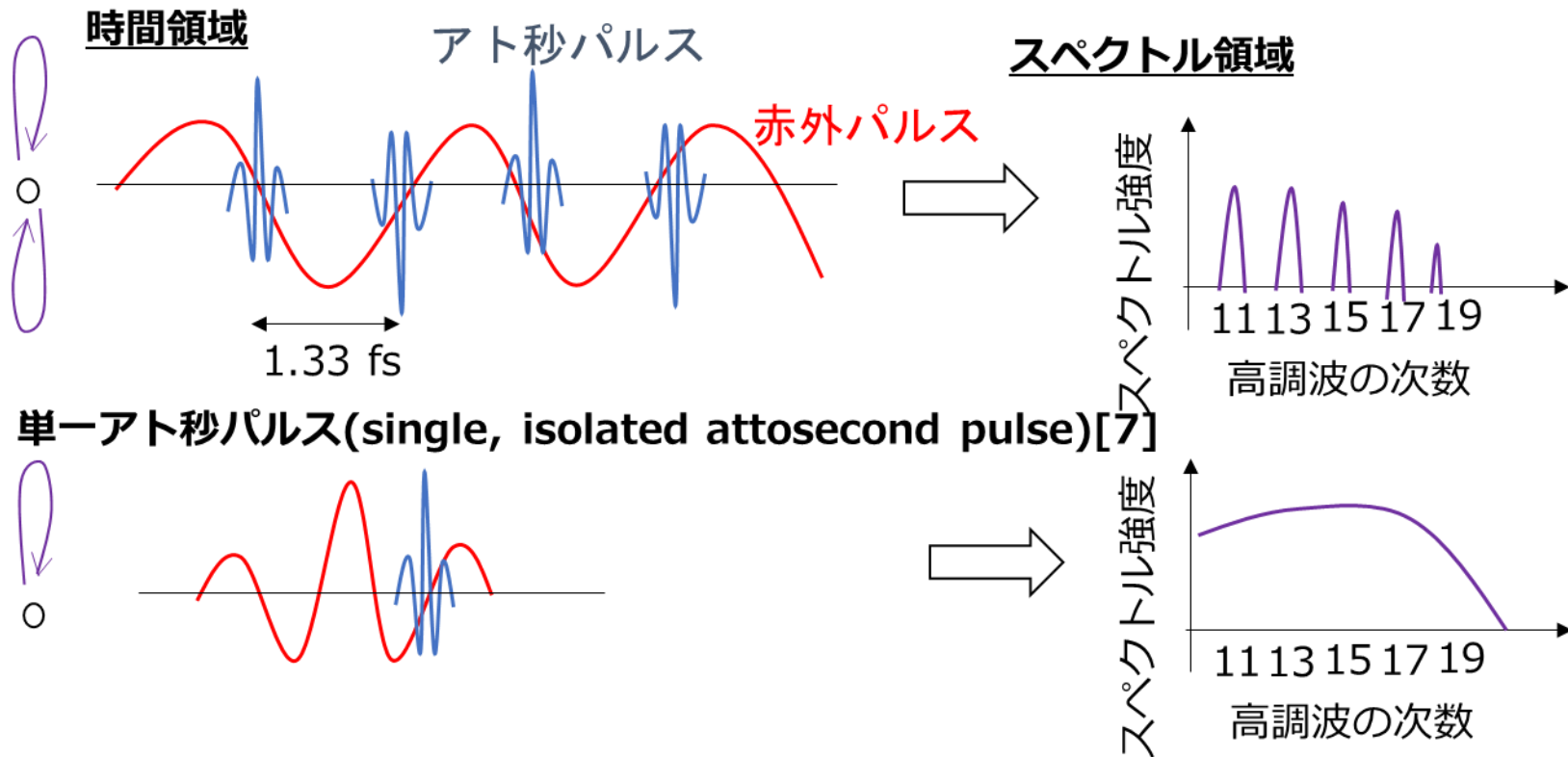
## なぜ高次高調波はアト秒のパルス幅になるか？

- ・ 電子が元の原子・分子に再衝突している間だけ、光が放出される。
- ・ 再衝突する電子のパルス幅は、「レーザー電場の1周期以内」  
(Niikura (著者) et al., Nature 417, 917 (2002))
- ・ 再衝突電子パルスの一部が高次高調波に効率よく変換される  
(short trajectoryのみを取る) ため、アト秒になる！



# アト秒光パルス（高次高調波）の構造

## (a) アト秒レーザーパルス列(attosecond pulse train)



## (b) 単一アト秒パルス(single, isolated attosecond pulse)[7]



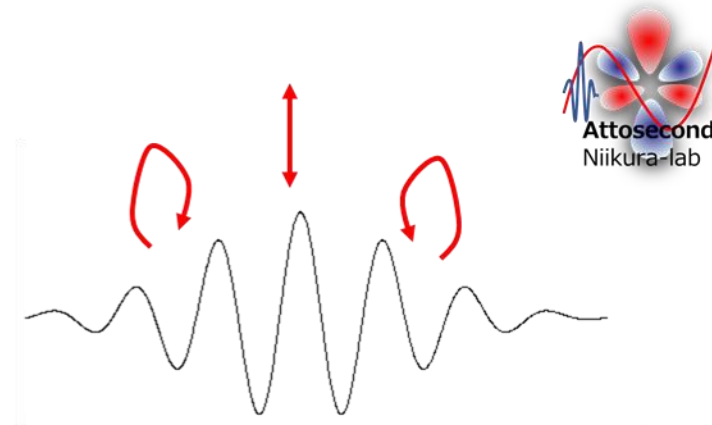
- ・ 一回の電子再衝突により、1回、アト秒パルスが発生する。
- ・ 赤外のレーザー電場の1周期あたり、2回、再衝突が起こる。
- ・ 長い赤外レーザーパルスを用いると、「一つ一つがアト秒のパルス」
- ・ がいくつか連なる（**アト秒パルス列**）。
- ・ もとの赤外レーザーパルスを短くして、1回しか再衝突が起こらないようにすると「**単一アト秒パルス**」が発生する！



## ・ アト秒パルス発生 の理論予測

“Subfemtosecond pulses”,  
**Optics letters 19, 1870 (1994).**

P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov



再衝突する電子のトラジェクトリを制御。

## ・ アト秒パルス測定法の提案

アト秒の幅を持つ光パルスをどのように測定するか？

“Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses”,

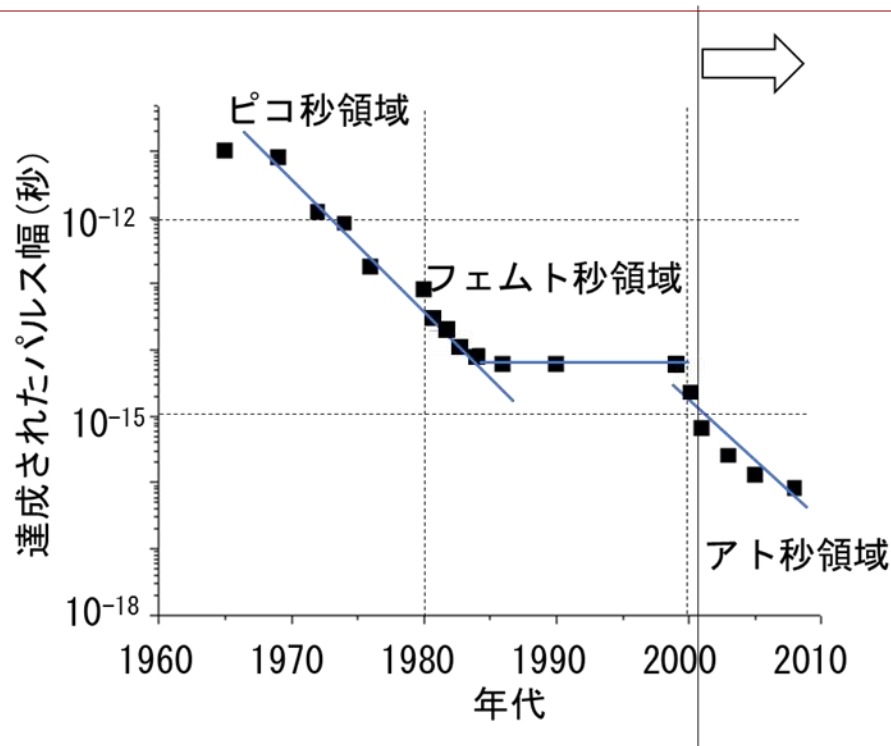
Phys. Rev. A 56 3870 (1997) E. Constant, Tarunkhim, A. Stolow, P. B. Corkum

アト秒パルス幅測定だけではなく、多くのアト秒ダイナミクスの測定に使用。

2001年からの単一アト秒パルスの実験に使用されている。

### 3. どうやって「**アト秒**」が測定されたの??

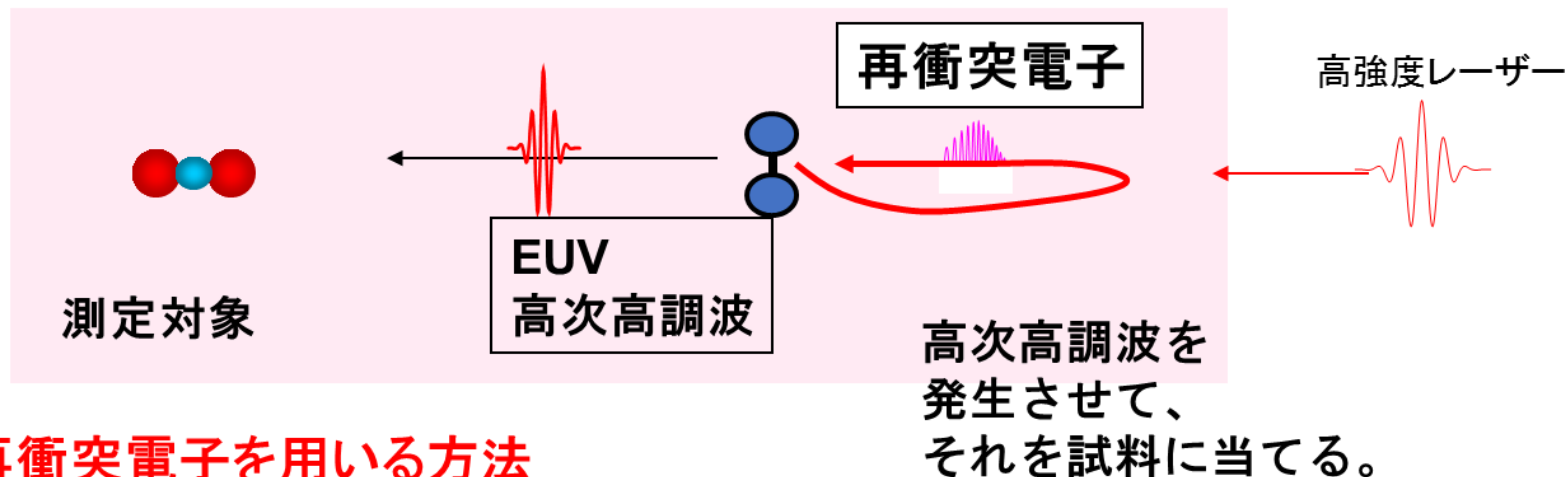
#### 2000年代:**アト秒**の時代



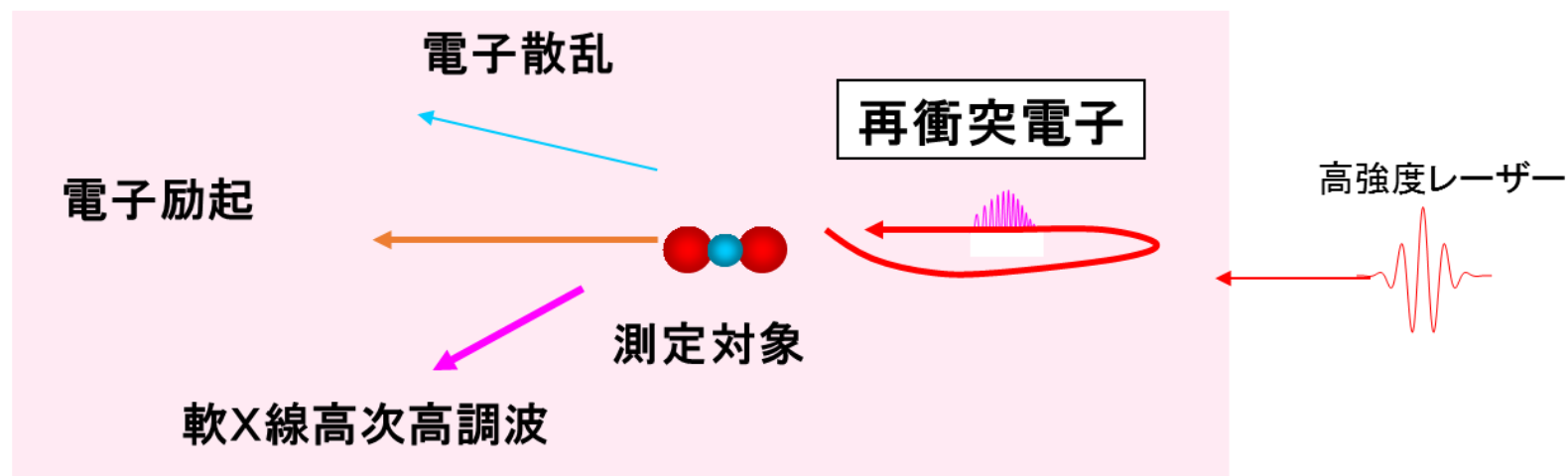
- ・ アト秒レーザーパルス**列** (高次高調波パルス列)
- ・ **単一**アト秒レーザーパルス
- ・ アト秒**再衝突電子**法 (attosecond re-collision physics)

# アト秒科学の二つの方法

## 1. 高次高調波を用いる方法



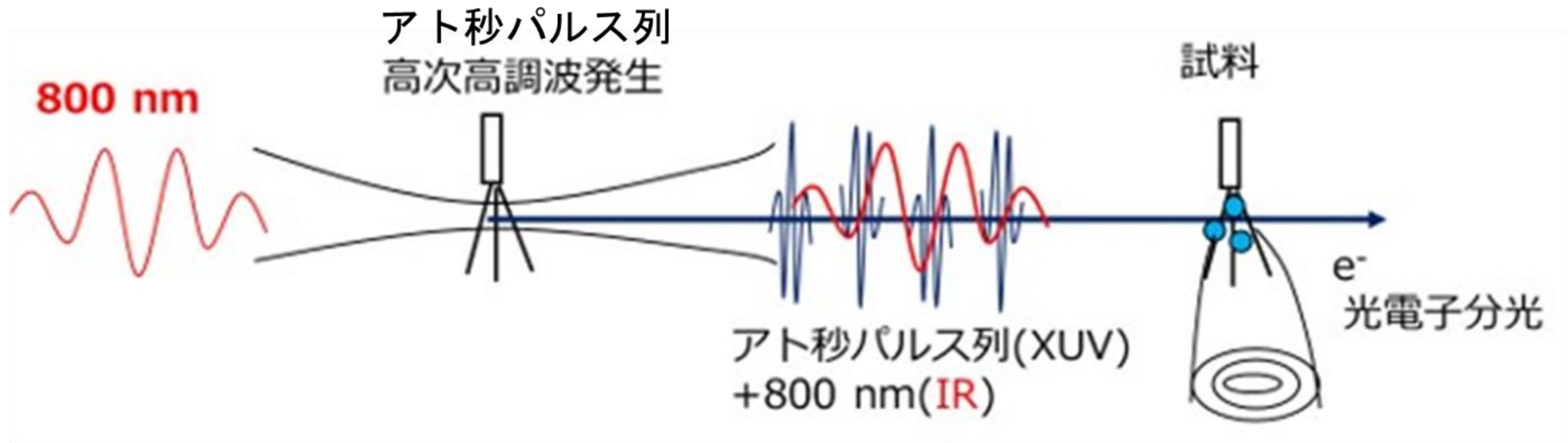
## 2. 再衝突電子を用いる方法



試料からプローブとなる「再衝突電子」を引き出し、**著者が貢献**  
電子再衝突によって生じた過程を測定する。（物質の自分撮り）

# アト秒パルス列のパルス幅測定法(RABBIT法)

"Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation", P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, Ph. Balcou, H. G. Muller, **P. Agostini**, Science **292**, 1689 (2001).



アト秒パルス列 (XUV) と赤外光 (IR) を重ねて試料に照射し、発生した光電子のエネルギーをXUVとIRの時間差の関数として測定。

250asのパルス幅      なおRABBIT法は「パルス幅の**測定**法」であって、「アト秒パルス列**発生**の方法」ではない。

(2)

ウルフ賞  
ノーベル賞

## 単一アト秒の発生とパルス幅測定



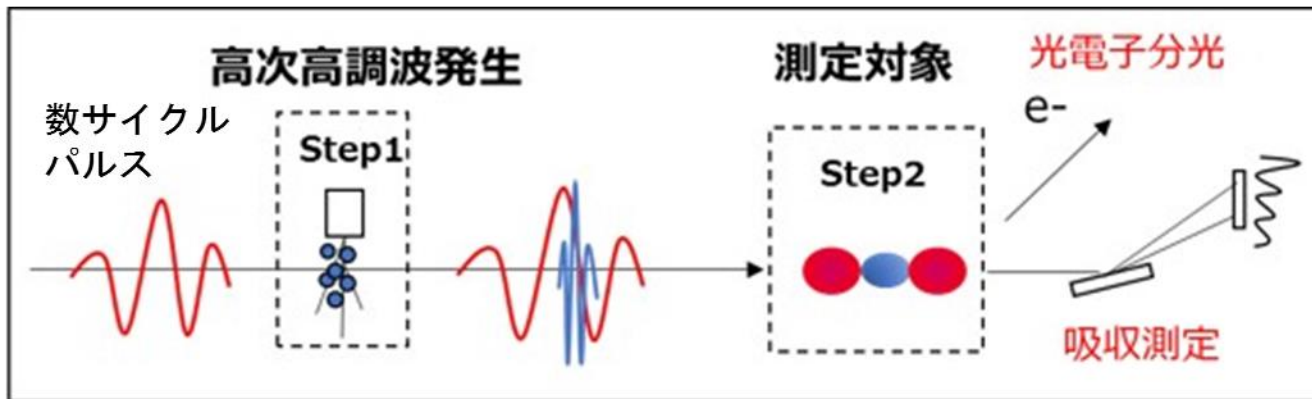
"Attosecond metrology",

M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic,

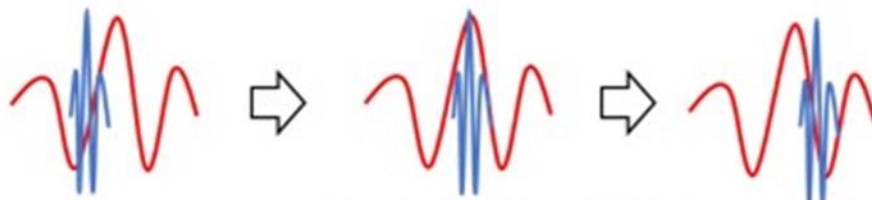
T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, **F. Krausz**,  
Nature **414**, 509 (2001).

赤外の数サイクル  
パルスをチャープミ  
ラーなどで作ったこ  
とが「単一アト秒パ  
ルス」発生鍵とな  
る技術。  
+測定法の開発

650 as  
(アト秒)



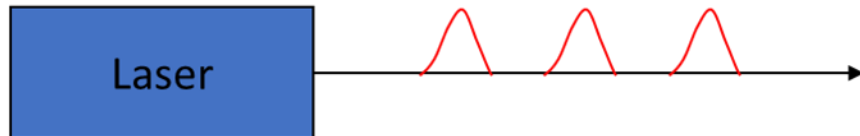
- (1) 高強度赤外レーザーを原子等に照射して、**アト秒高次高調波発生**。
- (2) 発生したアト秒高次高調波(XUV)と、赤外レーザー(IR)の両方を、**測定対象**に照射。
- (3) イオン化により試料から放出された**光電子**や、**試料**によって吸収された量をXUV-IRの時間差の関数として測定。(時間分解光電子分光・吸収分光測定)。



XUV-IRの時間差を変える。

パルス幅測定は  
光電子スペクトルの測定で  
行う。

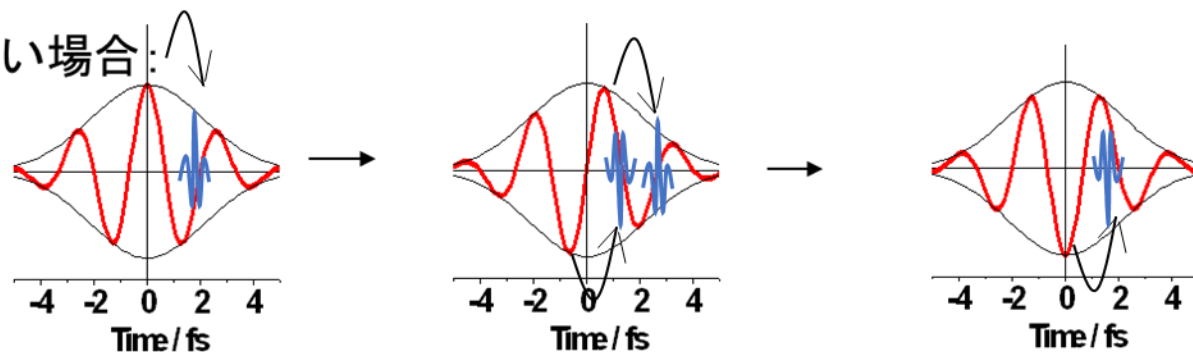
# キャリアエンベロープ位相(Carrier-envelope phase, CEP)



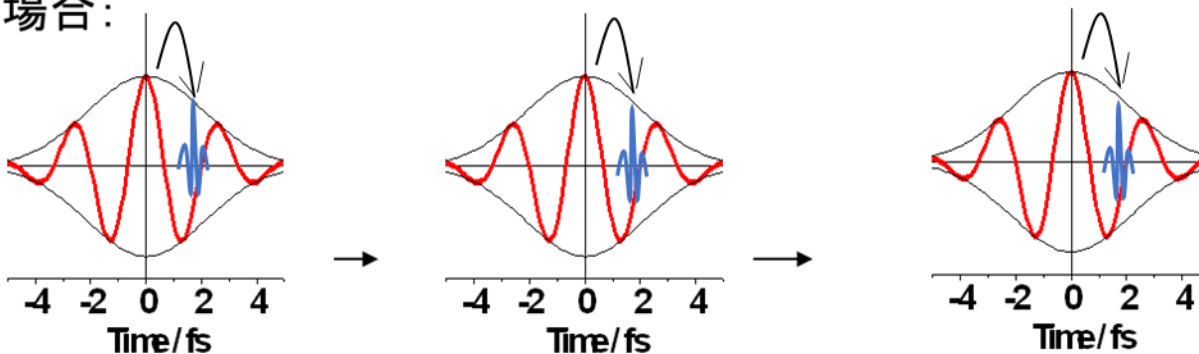
1 KHz 繰り返し



安定化していない場合:



安定化してる場合:



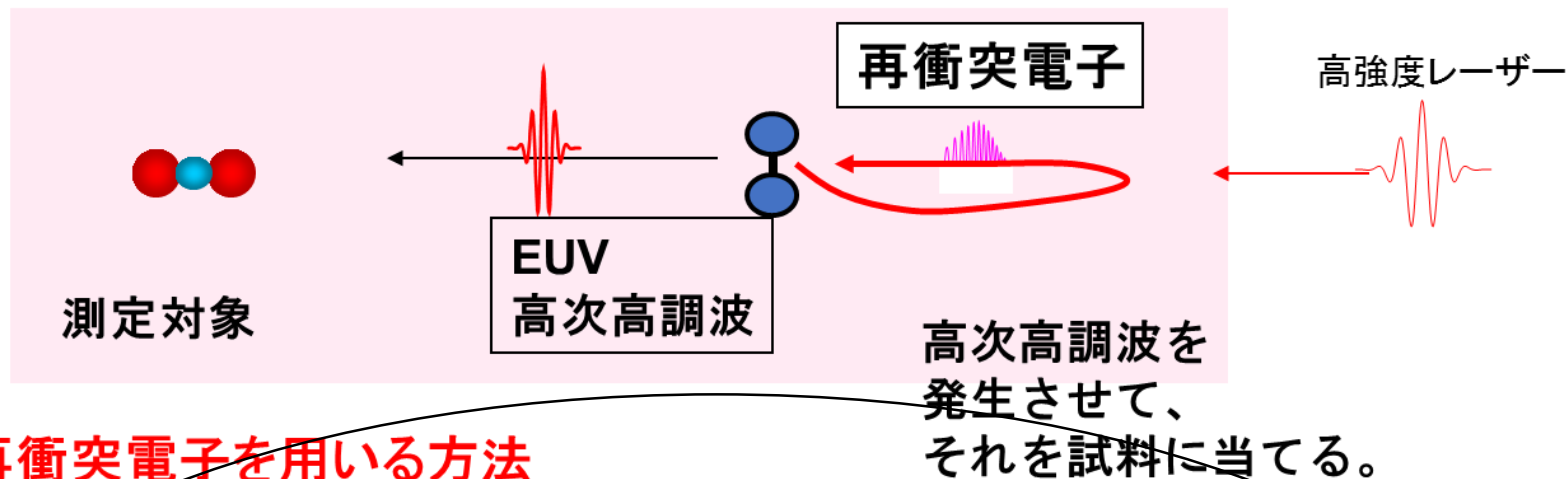
パルス幅が短くなると、CEPを安定化させることが重要になる。

アト秒科学では2003年に発表。

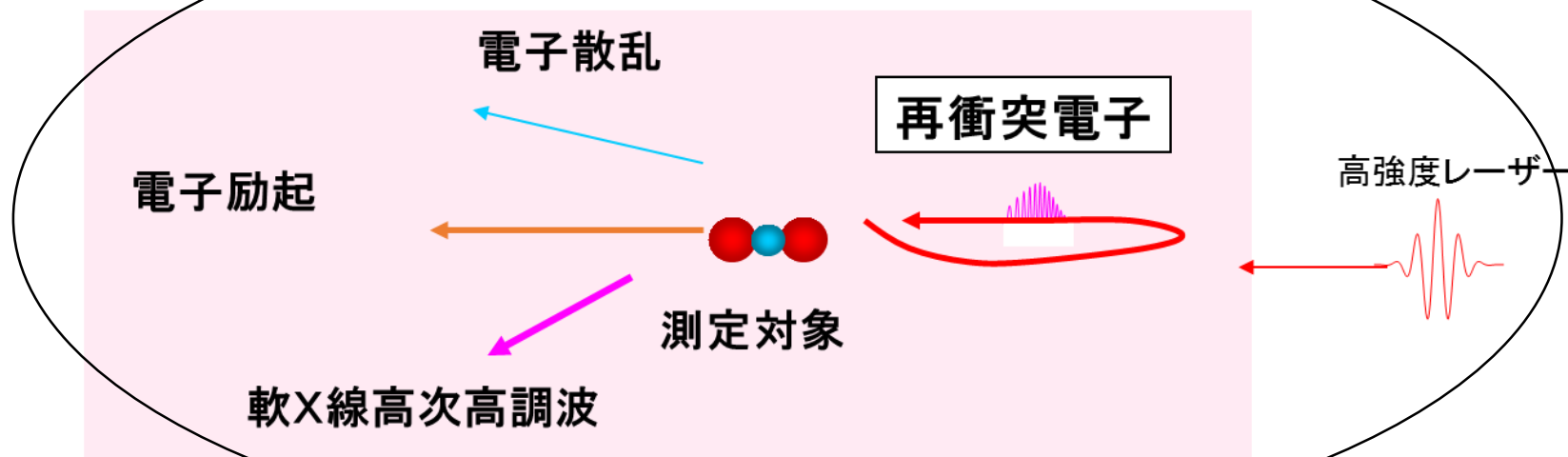
A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis,  
C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hansch, and F. Krausz,  
"Attosecond control of electronic processes by intense light fields", Nature **421**, 611 (2003).

# アト秒科学の二つの方法

## 1. 高次高調波を用いる方法



## 2. 再衝突電子を用いる方法



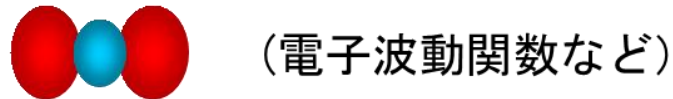
Niikura et al., Nature 417, 917 (2002).

試料からプローブとな「再衝突電子」を引き出し、  
電子再衝突によって生じた過程を測定する。(物質の自分撮り)

# アト秒“自分撮り”測定法

Attosecond re-collision physics (アト秒再衝突物理)

## (1) 測定対象



(2) 測定対象自身からプローブとなる電子（カメラ）を引き出す。

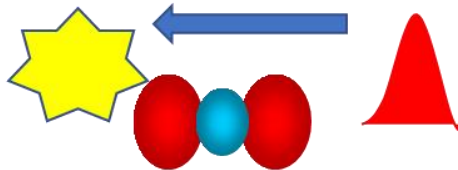


“自分撮り”

カメラ



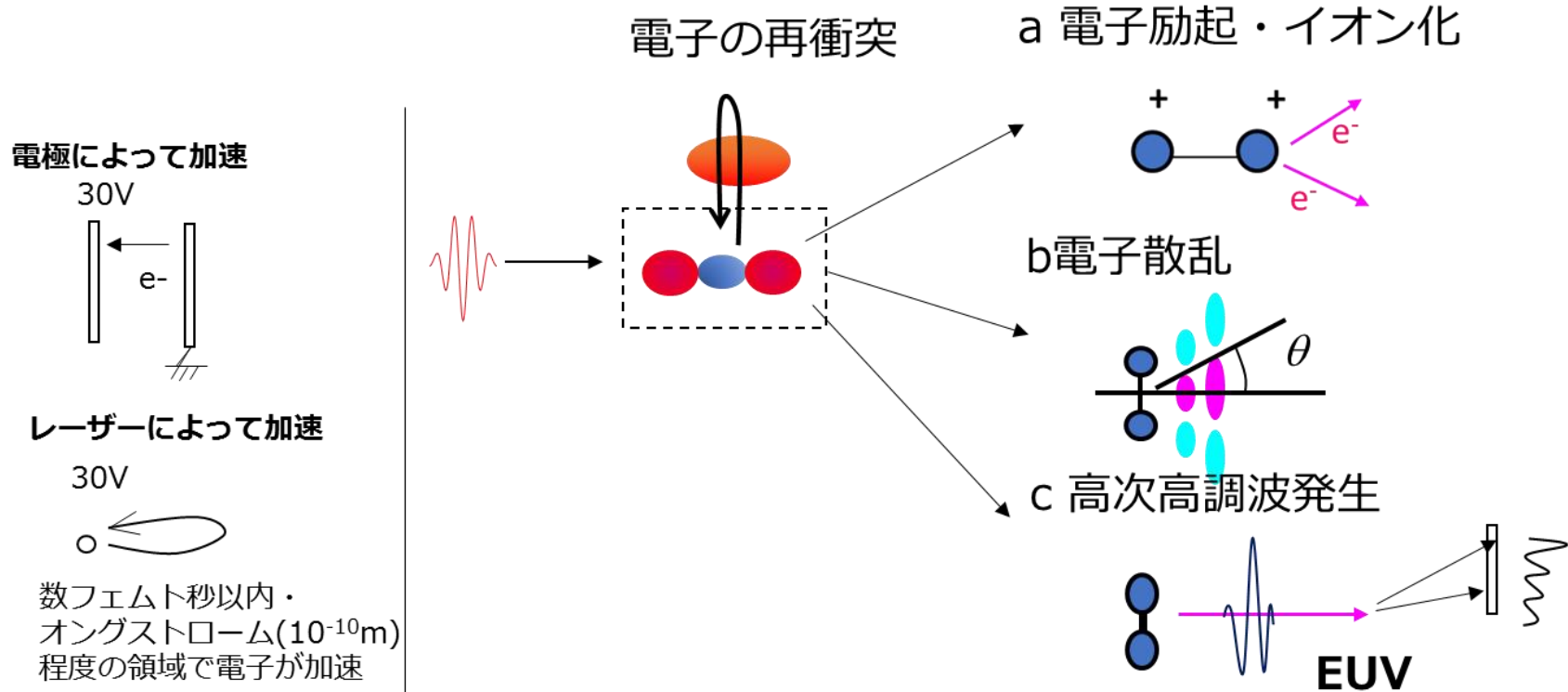
(3) 測定対象に電子が戻ってきて、その様子を“撮影”



特徴：

- ・ 電子はすぐに戻るので「アト秒」測定が可能。
- ・ コヒーレント（過干渉性）、電子の量子的な性質である「位相」が保たれる。  
(分子軌道の撮影が可能！)
- ・ アト秒レーザーパルスを用いるより簡単な実験系。  
(より赤外光を使うと、真空チャンバーも不要！)

# 再衝突後に起こる物理過程



電子は数10eVから数100eVに加速されているので、電子再衝突により様々な物理過程が生じる。電子を散乱したり励起したり。再衝突のエネルギーが光に変わると、極端紫外～軟X線領域の光（高次高調波）が発生する！

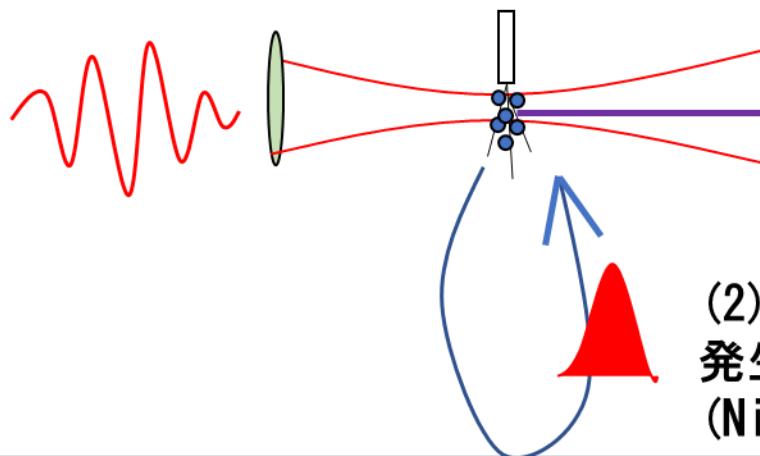
再衝突後に起こった現象を測定することで、試料の構造やダイナミクスについての情報を得る。

# (1) 約アト秒・再衝突・電子パルスの同定

"Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics"

H. Niikura, F. Legare, R. Hasbani, A. D. Bandrauk, Misha Yu. Ivanov, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, **Nature** **417**, 917 (2002).

(1) 赤外パルスを照射



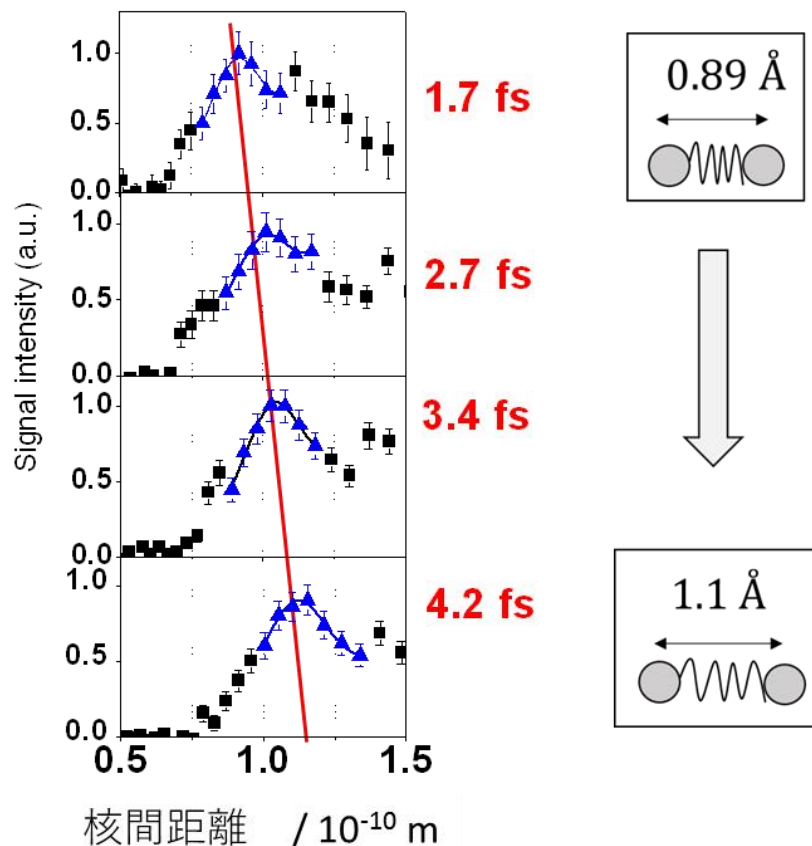
(3) アト秒**光パルス**が発生することを確認  
(Nature2001, クラウス研)

(2) ほぼアト秒領域の**電子パルス**が発生することを同定 (約 $\sim 1\text{fs}$ )  
(Niikura et al., Nature 2002)

- ・ アト秒光パルスを発生させるための「電子パルス」がほぼアト秒のパルス幅を持っていることを同定！
- ・ **なぜ光パルスはアト秒か？** → 赤外パルスを照射したときに発生する電子パルス（再衝突電子パルス）が短いから。
- ・ この「再衝突する電子パルス」を用いて、新しいアト秒「自撮り」再衝突分光法を構築。

**アト秒再衝突物理**  
・ ・ 新しい物理

## (2) アト秒時間分解能での分子が動く様子の測定



“Probing molecular dynamics with **attosecond** resolution using correlated wave packet pairs”

Hiromichi Niikura, F. Légaré, R. Hasbani, Misha Yu Ivanov, D. M. Villeneuve & P. B. Corkum, **Nature** **421**, 826 (2003).

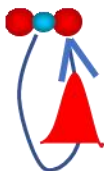
アト秒・オングストローム  
( $10^{-10}$  m, Å) の科学の構築

※横軸は運動エネルギーを核間距離に変換

# アト秒再衝突物理の発展



## 再衝突電子のパルス幅の同定



Nature 417, 917 (2002)

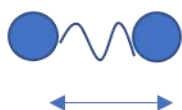
## 化学反応の追跡



Nature 466, 604 (2010)

Science 334, 208 (2011)

## アト秒分子運動測定



Nature 421, 826 (2003)

Science 312, 424 (2006)

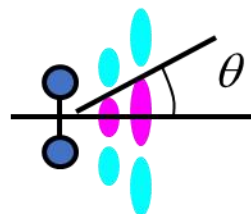
## 分子軌道トモグラフィ



Nature 432, 867 (2004)

窒素分子の分子軌道を捉えた！！

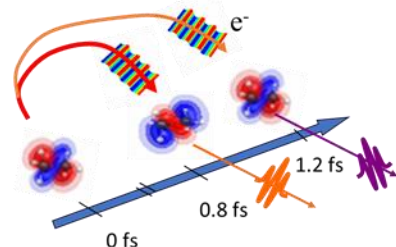
## 再衝突による散乱



窒素分子・酸素分子  
の分子軌道

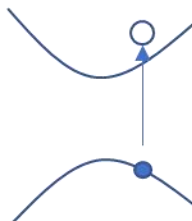
Science 320, 1478 (2008)

## アト秒分子内電子運動測定



Phys. Rev. Lett. 107, 093004 (2011)

## 固体内の電子ダイナミクス



Nature **522** 462, 2015

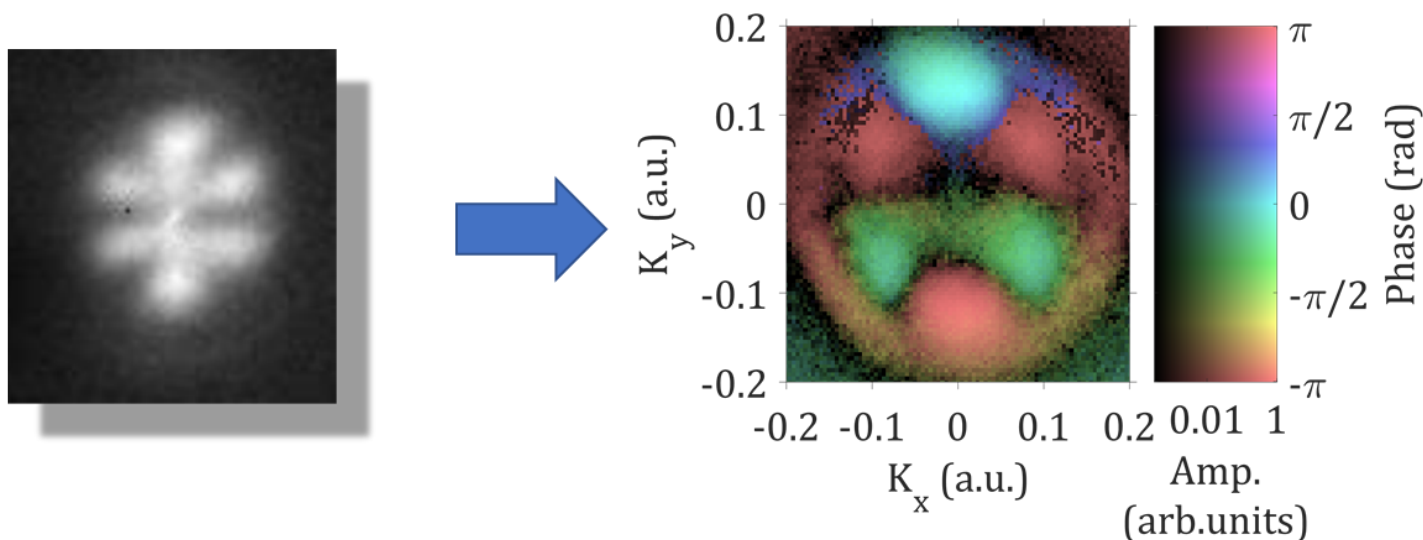
固体物性研究への応用で、  
多くの研究者が利用！！  
アト秒レーザーパルスが不要



## (4) アト秒レーザーパルスによって何がわかるの？

### 電子のひみつ

～複素数の電子波動関数のイメージング～



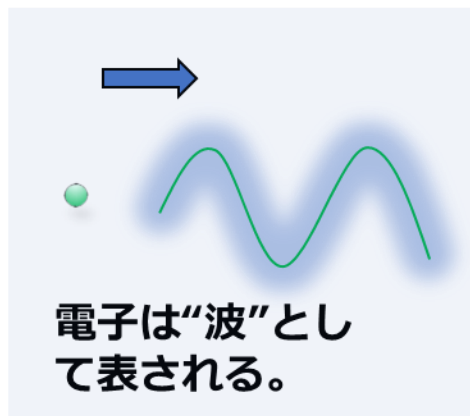
電子の密度分布だけではなく、電子の「**位相**の違い」を測定。  
**複素数の波動関数を可視化。**

Science 356, 1150 (2017)  
Phys.Rev. A106, 063513(2022)

最近の筆者の研究例

Special thanks to Dr. D.M. Villeneuve at National Research Council of Canada.

**電子**（量子）は、粒としての性質と**波としての性質**（**波動性**）の両方を持つ。

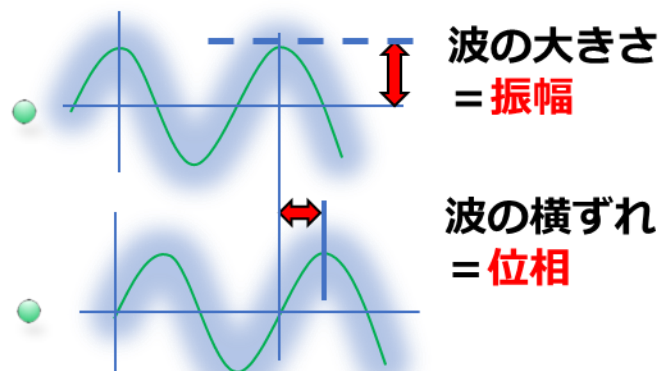


**波としての性質**  
・・・干渉する

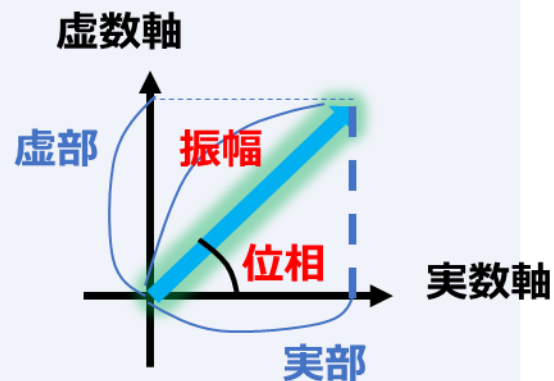
（打ち消しあい・強めあいが起こる。）

## 波の表し方

### 波の振幅と位相



### 複素数表示



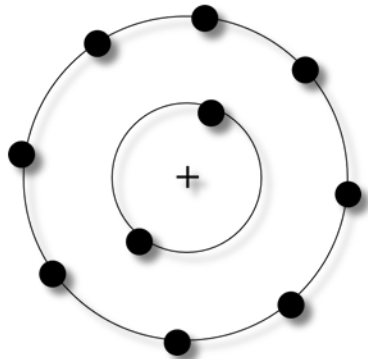
振幅と位相、または実部と虚部の2つのパラメーターが必要。

# 電子の表し方

原子・分子・固体（物質）の中に電子はある。

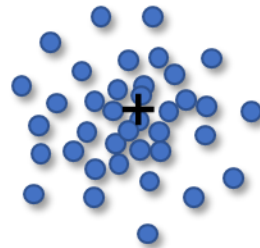
Schrödinger (1925)

## ボーアモデル(1913)



原子核のまわりを  
電子がぐるぐる回る

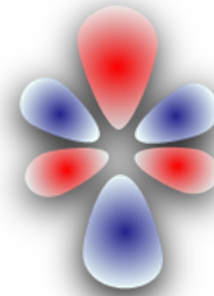
電子雲



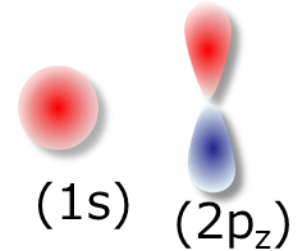
電子が「確率的に分布」

## 波動関数 $\Psi$ によるモデル

波としての性質を反映。



f-orbital  
( $m=0$ )



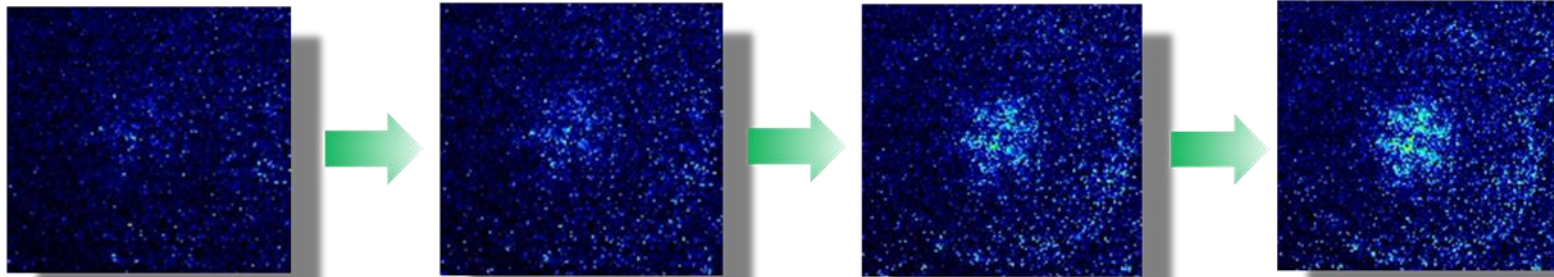
(1s)

(2p<sub>z</sub>)

電子は確率的に分布  
+ “位相（符号）” が異なる

- 惑星のように、原子核の周りを回っているというモデルではなく、
- 電子は「確率的に分布」している。
- その確率分布には「形」があり、さらに「色（位相）」によって区別される。

# アト秒レーザーで電子(波動関数)を測定する

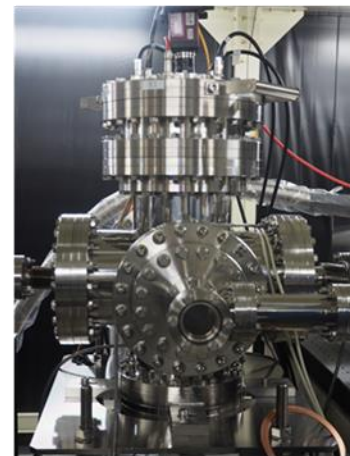
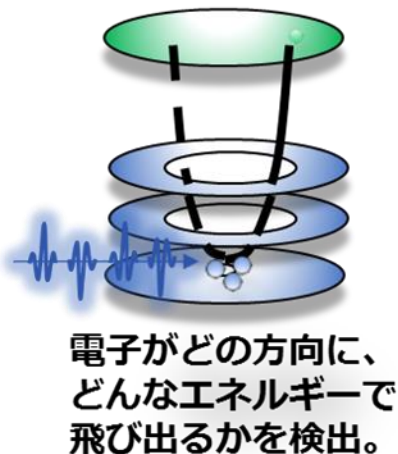
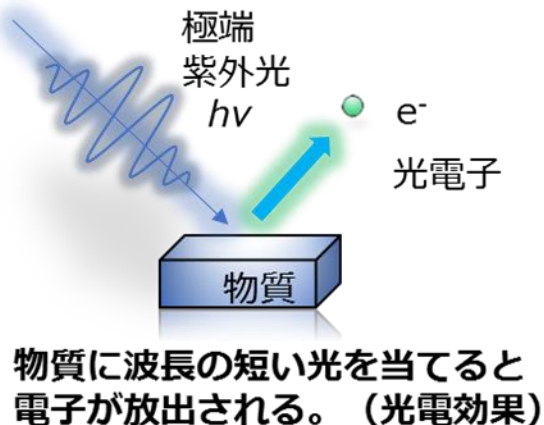


レーザーが当たると、電子が放出され、検出器のどこかに**粒**となって観測される。それを多数回繰り返すと、**電子の分布 (波動関数の自乗 $|\Psi|^2$ )**が見えてくる。

**Max Born** の確率解釈(1926) :

波動関数の自乗  $|\Psi|^2$  は電子が存在する**確率**を表す。

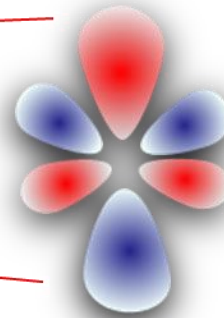
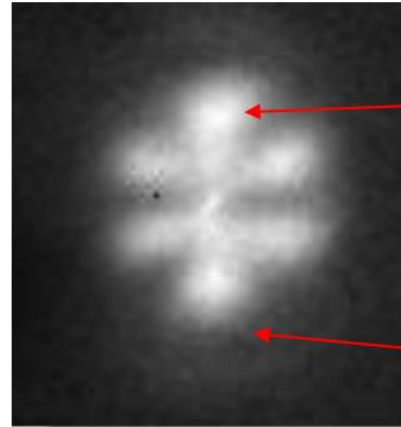
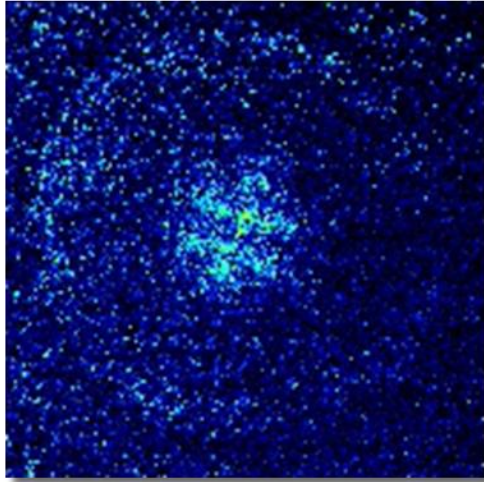
アト秒レーザーと赤外光による量子制御により、特定の磁気量子数の状態を選択。



Science 356, 1150 (2017)

**しかし！ 電子の波としての情報（位相）は、検出器に当たると消えてしまう。**

測定データ



電子の「位相（符号）」  
が違うはずだが  
「同じ粒として」観測さ  
れてしまう。

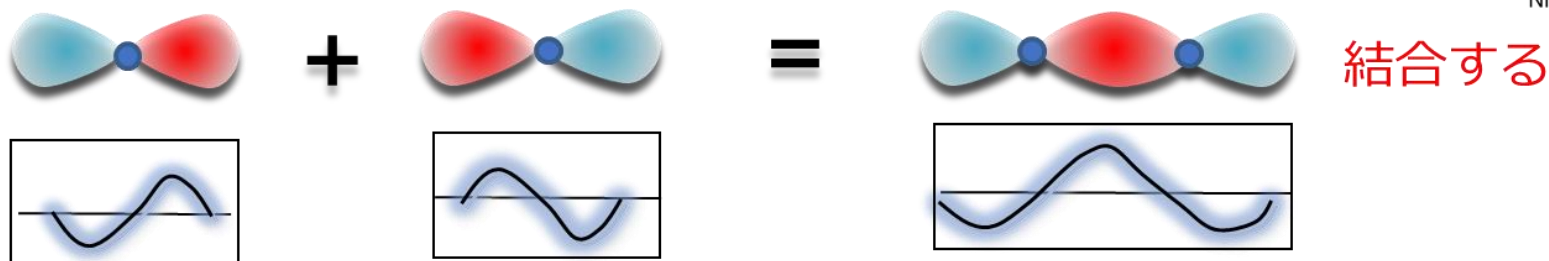
**波動関数の自乗（分布） $|\Psi|^2$ であって  
複素数の波動関数そのもの $\Psi$ は測定されない。**

振幅と位相、または実部と虚部の2つのパラメーターが必要。

**そこで、アト秒レーザーによる「電子の位相分布測定」が必要。**

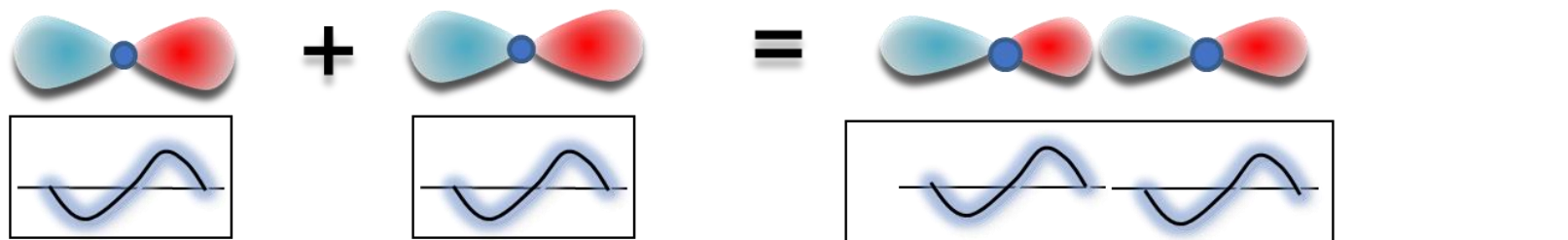
# 化学反応における電子の位相（複素数）の重要性

## (a) 同じ位相



波の出っ張っている部分同士が**強め合う**

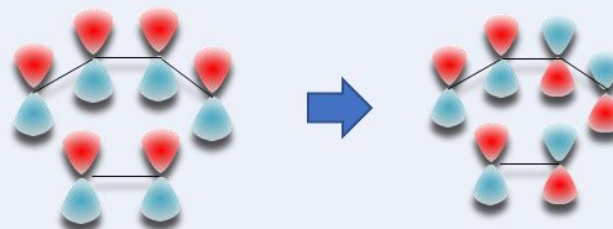
## (b) 違う位相



波の出っ張っている部分とへこんでいる部分が**打ち消し合う**

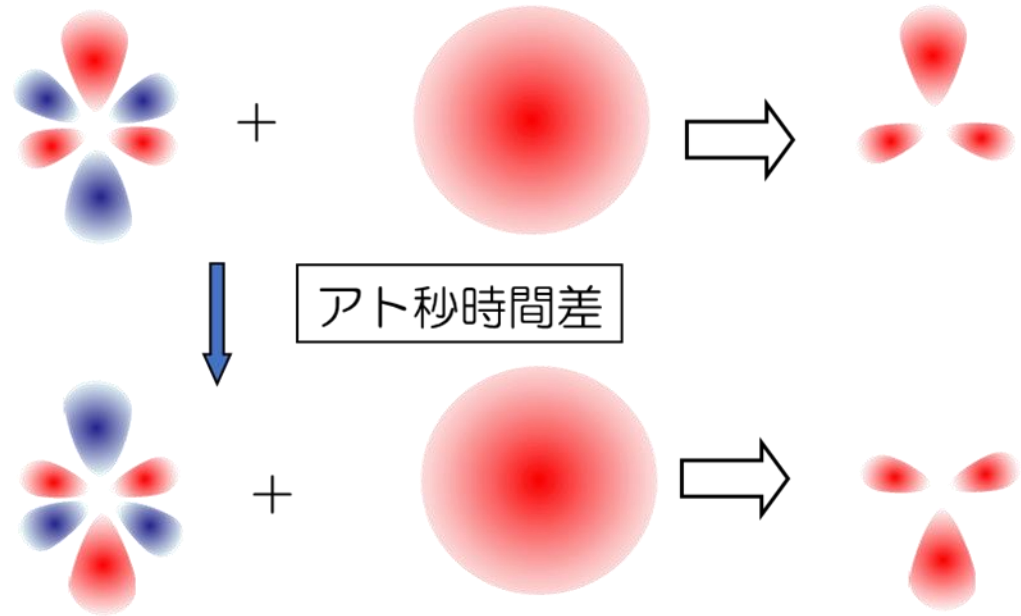
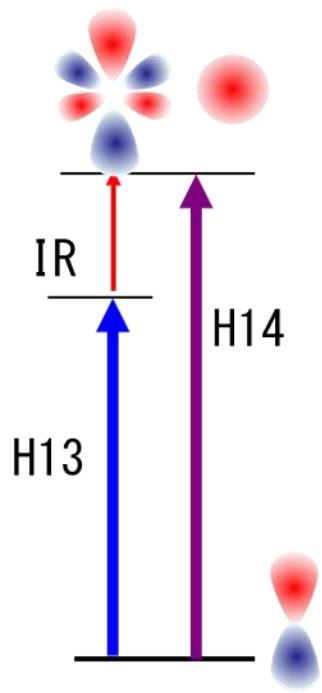
化学反応の理解には「電荷分布」だけではなく「**複素数の波動関数（位相情報）**」が必要。

ウッドワード・ホフマン則  
フロンティア軌道理論  
(福井謙一博士：ノーベル化学賞1981)



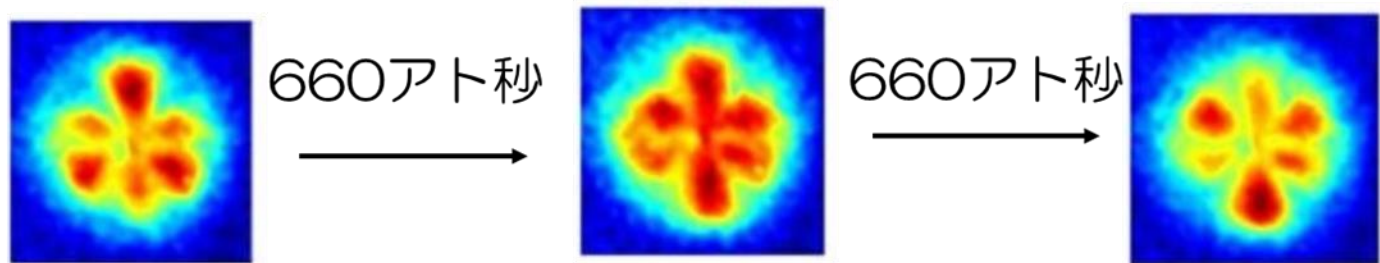
# アト秒レーザーで電子の位相を測定する

Science 356, 1150 (2017)



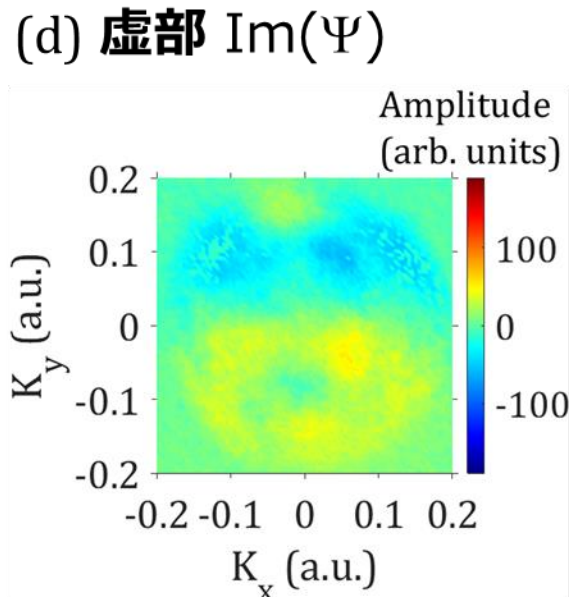
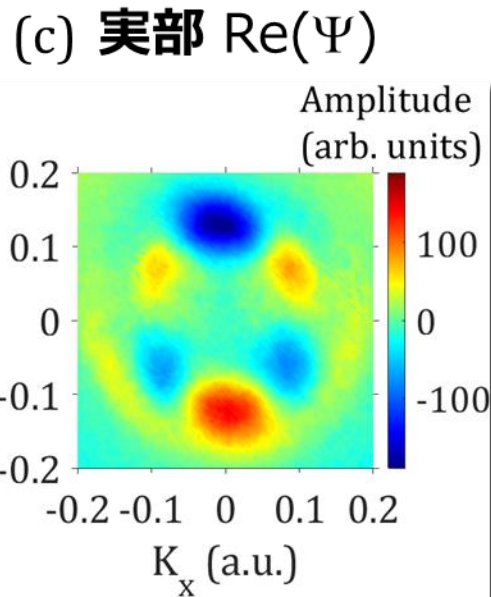
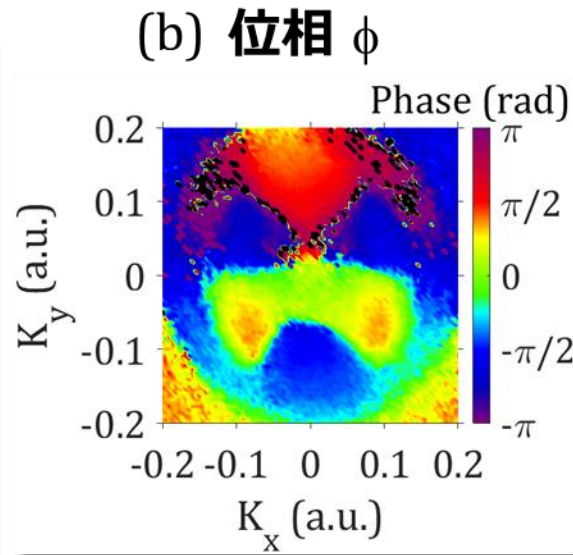
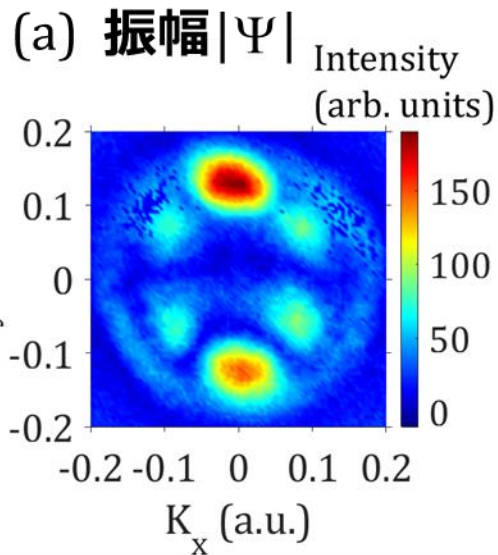
波長の異なるアト秒パルス＋赤外光とによる干渉を利用。

実験結果



50アト秒くらいの時間差ごとに測定。

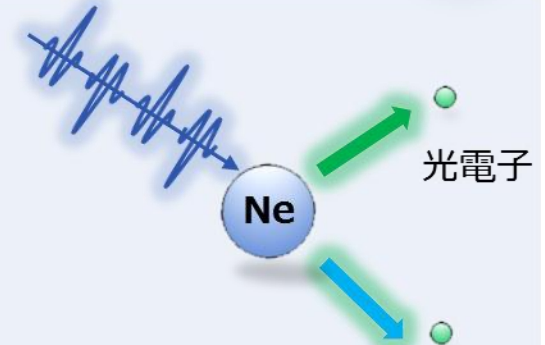
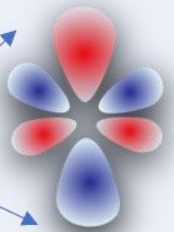
# 複素数の波動関数の可視化



赤色と青色で  
位相が  $\pi$  異なる。

位相の違い  
を可視化。

$\pi/2 \sim 660$  as



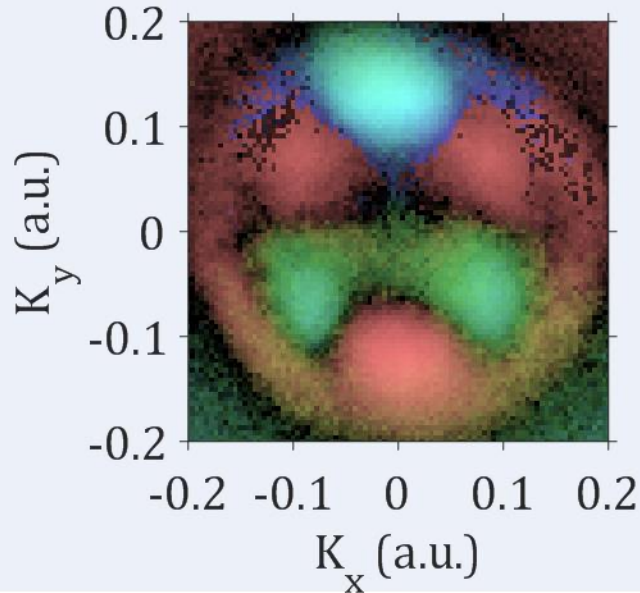
光電子

異なる方向・エネルギー  
(運動量:  $k_x, k_y$ )で放出され  
た電子の位相差を測定。

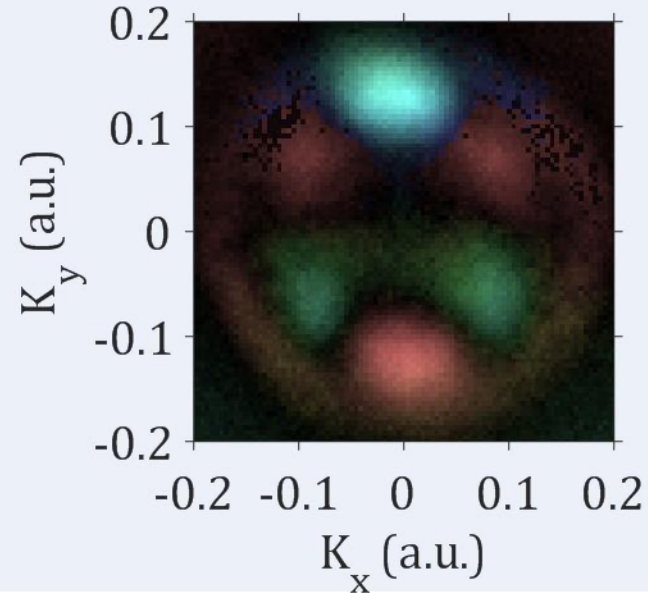
実部・虚部表示：  
プラスとマイナスの振幅  
をとっている。

a.u. : atomic unit

# 複素数の波動関数 (HSV表示)



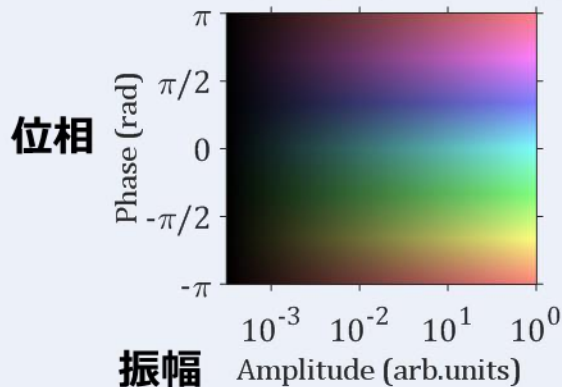
対数スケール



リニアスケール

**位相分布と振幅分布を一枚の図で表す。**

**HSV 表示** ・ ・ hue, saturation, value 3次元の色空間



位相(phase) ・ ・ ・ 色(color), hue

振幅(amplitude) ・ ・ ・ 明るさ, value

saturation=0.5 に設定。

(a) **測定結果** **過程B** **過程A**

$\Psi$  Phase (rad)  $\psi_b^*$  Phase (rad)  $\psi_a$  Phase (rad)

$K_y$  (a.u.)  $K_y$  (a.u.)  $K_y$  (a.u.)

$K_x$  (a.u.)  $K_x$  (a.u.)  $K_x$  (a.u.)

対数スケール リニアスケール

(b) Phase (rad) maps in the  $K_x$ - $K_y$  plane. The left map is on a logarithmic scale (対数スケール), the middle map is on a linear scale (リニアスケール) and is crossed out with a large 'X', and the right map is on a linear scale. The color bar indicates phase from  $-\pi$  to  $\pi$ . The time delay is  $\pi/2 \sim 660$  as.

**高分解能**で波動関数の位相の違いが可視化。  
主に過程Bで(a)と(b)の違いが生じたことがわかる。

# アト秒科学：複素数の電子波動関数の“顕微鏡”

- ・ **アト秒科学**・・・電子の姿とその変化（**位相**）を見る。
- ・ 2000年ころからアト秒・オングストローム科学が進展。物質科学の基盤。
- ・ アト秒レーザーパルス（高次高調波）、アト秒再衝突電子
- ・ 再衝突電子を用いた方法で、アト秒精度での測定や分子軌道イメージング。
- ・ **アト秒レーザーパルス**で、**複素数の電子**波動関数を可視化。

**“From Femto  
to Atto Clock”**

- ・ 従来のフェムト秒・ナノテクノロジーから  
アト秒・オングストロームの量子技術へ

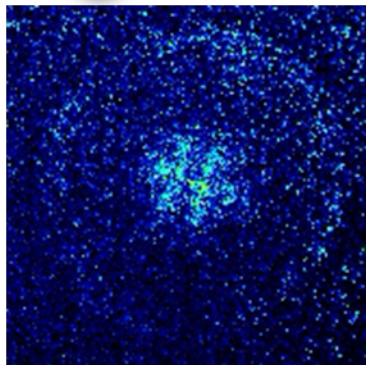
原子分子・生体分子・材料・半導体などすべてのものの  
構造や機能は、電子が関与している。

その電子の姿を直接見て、制御する。



カナダ国立研究機構（**National Research Council of Canada**）の  
P. Corkum 研で「アト秒に到達した」記念にもらったもの。1つしかない。  
（新倉研究室に飾ってあります）。

# 新倉弘倫 (Hiromichi Niikura)



2000 総合研究大学院大学 博士後期過程修了 博士 (理学)  
2000~2009 カナダ国立研究機構 (Paul Corkum研)  
(2004~2008 科学技術振興機構 さきがけ研究員)  
(2008~2012 科学技術振興機構 さきがけ研究員)  
2010 早稲田大学先進理工学部 准教授  
2012 文部科学大臣表彰科学技術賞 (研究部門)  
2013 日本学術振興会賞  
2015 早稲田大学先進理工学部 教授

## (A) 「アト秒再衝突物理」 (アト秒自撮り法) の構築 (Corkum研)

Nature **417**, 917 (2002) . . . アト秒再衝突物理の基礎

Nature **421**, 826 (2003) . . . アト秒振動運動測定

Phys.Rev.Lett.**107**, 093004 (2011) . . . アト秒分子内の電子運動

## (B) 複素数の電子波動関数イメージング (近年)

Science **356**, 1150 (2017)

Phys.Rev. A**106**, 063513(2022)

アト秒レーザーを使用。

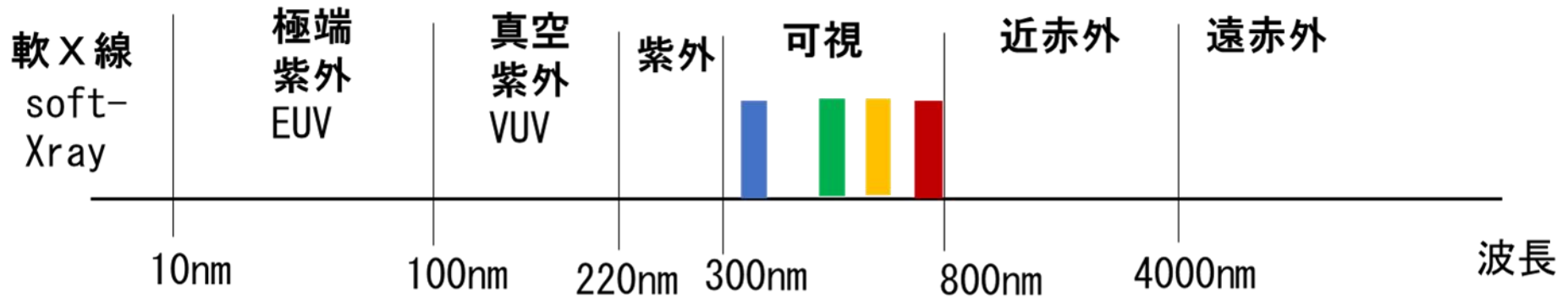
21世紀初頭にアト秒へのブレークスルーのひとつを行う。

詳しく知りたい人向け：

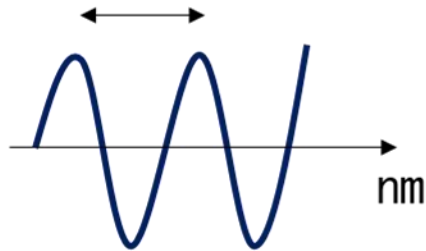
## APPENDIX

1. 高次高調波の「次数」とは
2. トンネルイオン化—電子再衝突過程の「波」描像
3. なぜ電子再衝突により高次高調波が発生するのか
4. High-harmonic spectroscopy (高次高調波分光)
5. 三段階モデル(semi-classical, three-step model)
6. RABBIT法
7. 電子ストリーク法
8. なぜ奇数次の高調波のみが発生するのか。

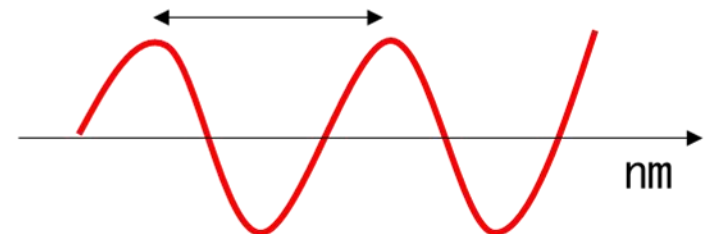
## 光の色（波長 $\lambda$ ）



波長が短い



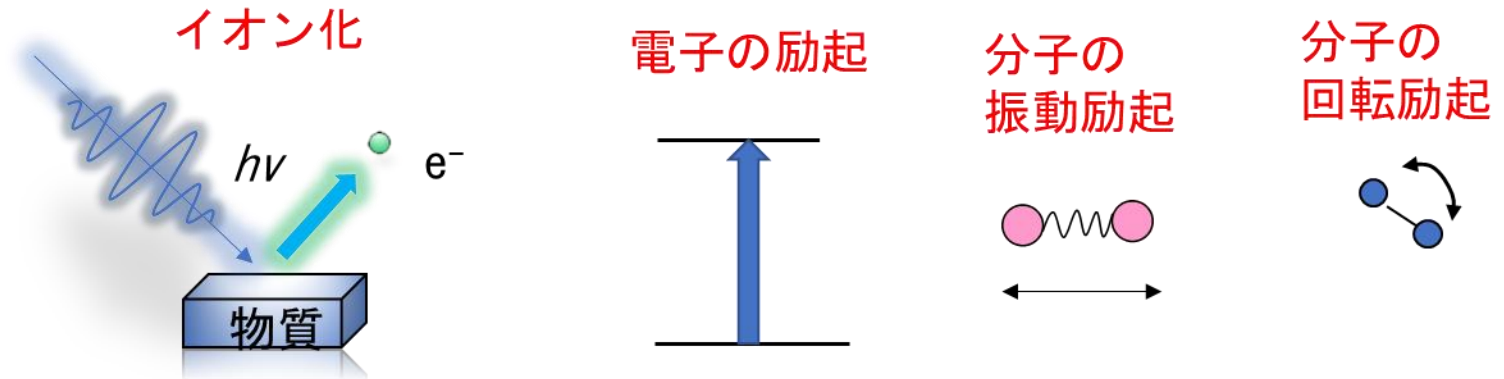
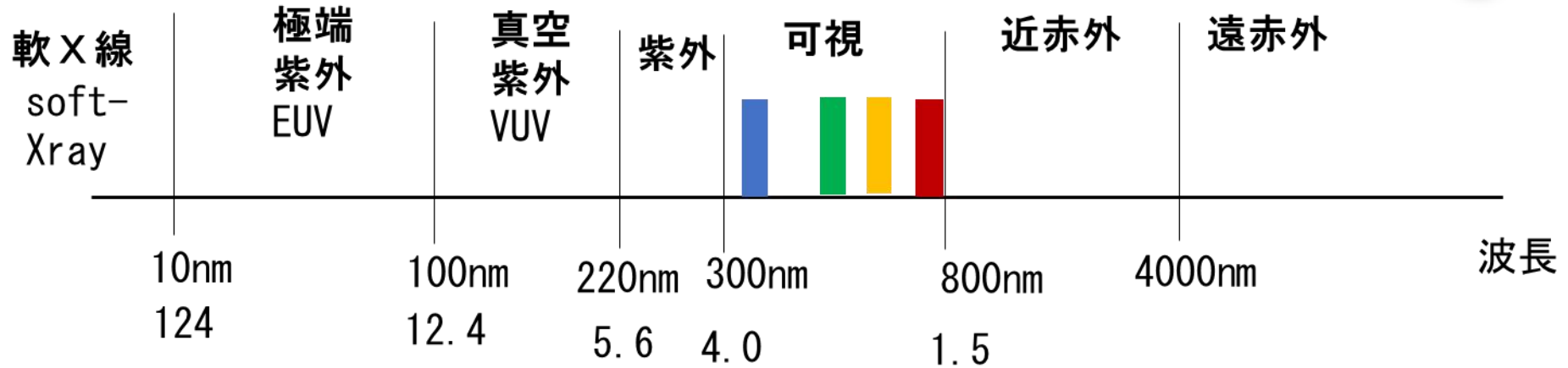
波長が長い



極端紫外～軟X線領域のレーザーは困難だった

- ・ アト秒高次高調波
- ・ X-FEL（大型放射光施設）

# 光の色（波長 $\lambda$ ）と物質



エネルギーと光の波長の関係

$$\Delta E = hc/\lambda$$

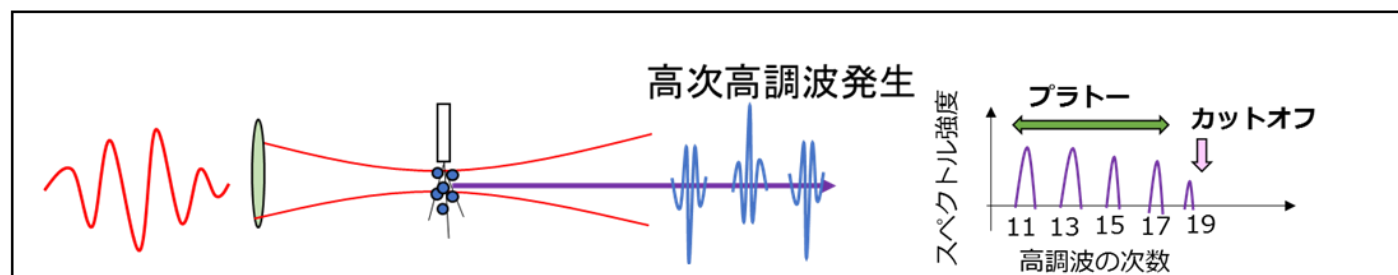
# 1. 高次高調波の「次数」とは

波長 (nm) = 1240 / エネルギー (eV)

極端紫外では、原子や分子から1光子で電子を取り除く（イオン化する）ことができる。

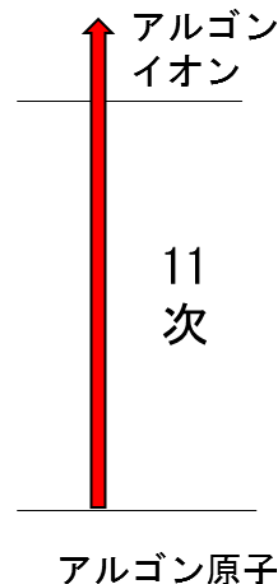
|      | 波長     |              | エネルギー                             |
|------|--------|--------------|-----------------------------------|
| 赤外   | 800 nm | 基本波          | 1.55 eV                           |
|      | 400 nm | 第2次高調波 (2倍波) | $1.55 \times 2 = 3.1 \text{ eV}$  |
| 紫外   | 266 nm | 第3次高調波 (3倍波) | $1.55 \times 3 = 4.65 \text{ eV}$ |
| 真空紫外 | 200 nm | 第4次高調波 (4倍波) | $1.55 \times 4 = 6.2 \text{ eV}$  |

従来はこの辺まで



極端紫外

|         |                |                                     |
|---------|----------------|-------------------------------------|
| 72.7 nm | 第11次高調波 (11倍波) | $1.55 \times 11 = 17.05 \text{ eV}$ |
| 61.5 nm | 第13次高調波 (13倍波) | $1.55 \times 13 = 20.15 \text{ eV}$ |
| 53.3 nm | 第15次高調波 (15倍波) | $1.55 \times 15 = 23.25 \text{ eV}$ |
| ...     | ...            | ...                                 |



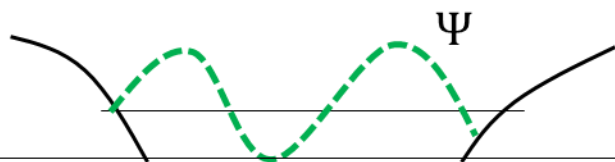
- ・ 次数が高くなる（波長が短くなる、エネルギーが高くなる）と、変換効率が急激に減少して、通常の方法では「高次の」高調波が作れなかった。
- ・ 次数の高い高調波が発生することを1988年のAL'Huillier博士らが発見。
- ・ 次数が高いから「**高次高調波**」。
- ・ スペクトルを分解すると、いくつかの高次高調波が含まれている。
- ・ なぜ奇数次のみか？→フーリエ変換（別なところで説明）

## 2. トンネルイオン化—電子再衝突過程の「波」描像

### 0. トンネルイオン化前

電子の波

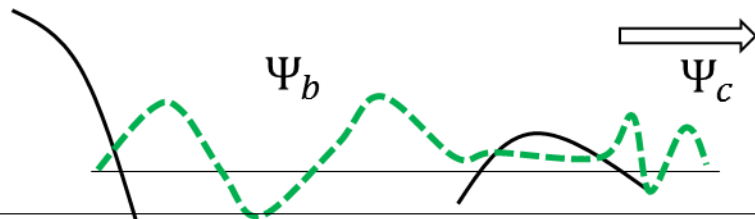
原子中に電子の波  
(波動関数 $\Psi$ )が存在する。



### 1. トンネルイオン化

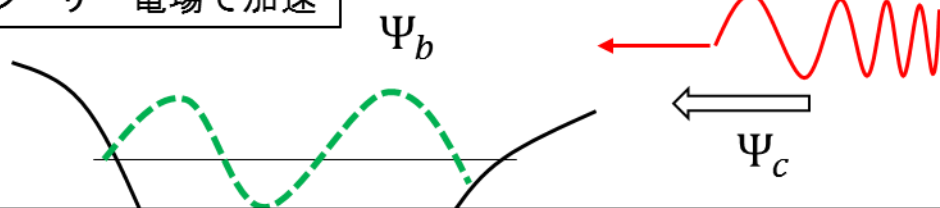
原子中の電子の波 $\Psi$ を、  
残る成分 $\Psi_b$  (束縛状態の波動関数) と  
外に出て行く成分 $\Psi_c$ の2つに分ける。

$$\Psi = \Psi_b + \Psi_c$$



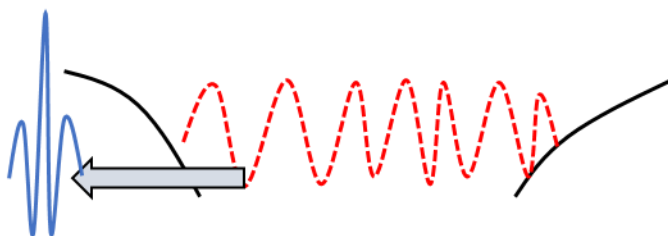
### 2. レーザー電場で加速

外に出て行く成分 $\Psi_c$  (再衝突電子) は加  
速される。



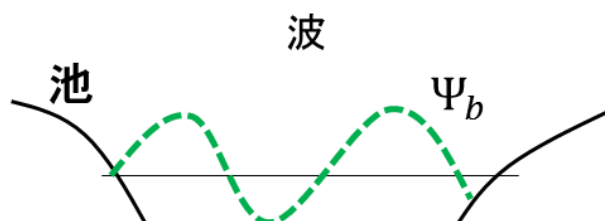
### 3. 電子再衝突で高次高調波発生

再衝突電子 $\Psi_c$ と原子に残った波動関数  
 $\Psi_b$ との干渉 (次ページ) により、高次  
高調波発生。



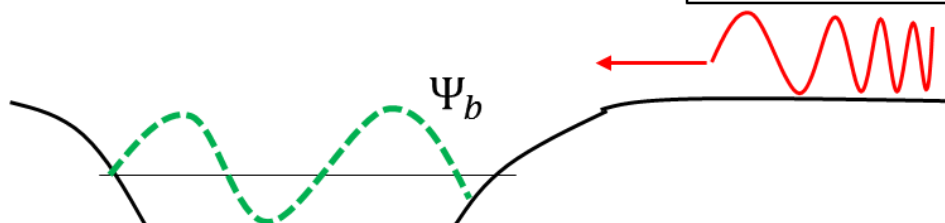
$$d(t) \sim \langle \Psi_b | -er | \Psi_c \rangle + \text{c.c.}$$

### 3. なぜ電子再衝突により高次高調波が発生するのか



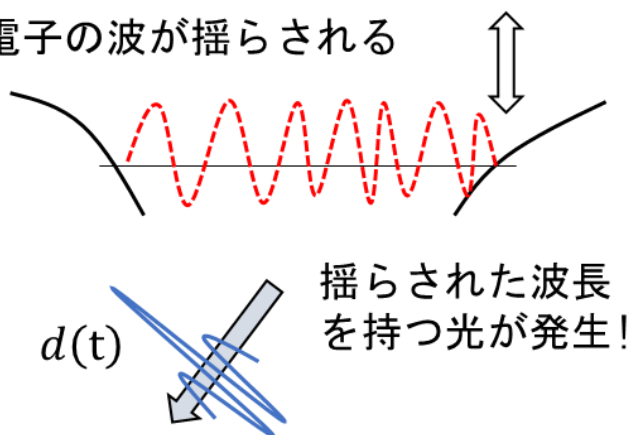
原子（分子）の「池」に  
**波**（原子軌道・分子軌道）が  
たっている。（束縛状態の波動関数 $\Psi_b$ ）

再衝突電子 $\Psi_c$



そこに、数十eVに加速された  
（＝波長 $\lambda$ が短い）  
再衝突電子 $\Psi_c$ の**津波**がやってくる。

電子の波が揺らされる



揺らされた波長  
を持つ光が発生！

**津波**によって、池の波が「おおよそ津波（再衝突電子の波長で）」**揺らされる**。

電子がある波長で揺らされると、その波長の光が放出される！（**双極子近似**）。

再衝突電子は数十eVに加速されているので、  
数十eV（と池の深さを加えた）の極端紫外光  
＝**高次高調波**が発生する。

$$d(t) \sim \langle \Psi_b | -er | \Psi_c \rangle + c. c.$$

※なお波・波長などは説明のために適当に描いています。

# 高次高調波(アト秒パルス) 発生機構 “再衝突の猫モデル” (“Re-collision Cat”)

※ツチノコではない

## (1) 赤外パルスを猫に照射する



IR

(0) 赤外パルスがないとき



## (2) 同じ一匹の猫が、違う2つの状態に分裂する(トンネルイオン化)。

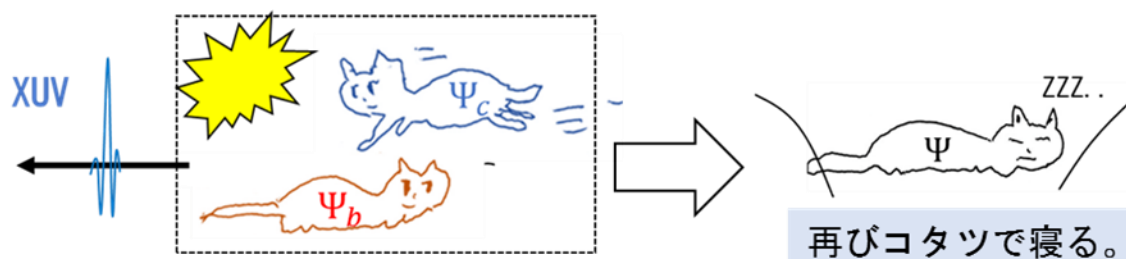


- ・そのままコタツの中にいる状態( $\Psi_b$ )
- ・暑くて外に出ている状態( $\Psi_c$ )

## (3) 電場中で猫は加速されて戻ってくる。



## (4) 再衝突して、一匹の猫に戻るときに光を放つ！

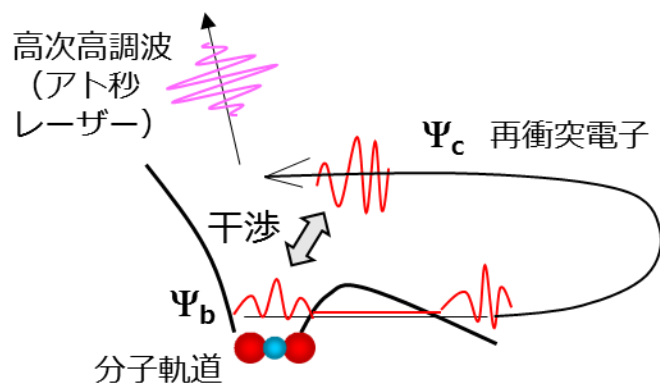


※高次高調波発生には2つの状態が必要。  
※猫がどちらの状態にいるのかわかる場合は、高次高調波が発生しない場合。  
※シュレーディンガーの猫の例えだと「生きている」状態に赤外パルス当てて「生きている」と「死んでいる」の重ね合わせをつくり、それが「生きている」に戻るときに、光が出る、となる。  
※つまり、この再衝突モデルの通りだとすれば「高次高調波発生過程」そのものが「電子の非局在性」を示していることになる。 $\Psi_c$ はコタツからかなり遠くまで行ってから戻ってくる。  
※「アト秒自撮り法：自分自身で自分自身を測定する」はこれを利用した測定法。

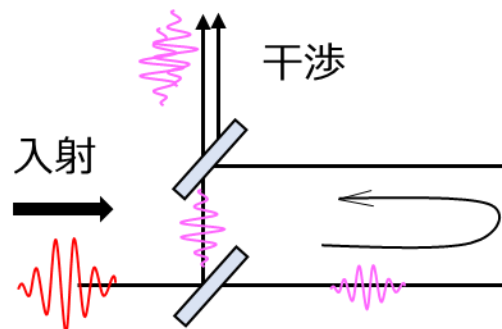
再びコタツで寝る。

# トンネルイオン化・電子再衝突過程と光学干渉計

## アト秒量子干渉計（電子）



## 光学干渉計

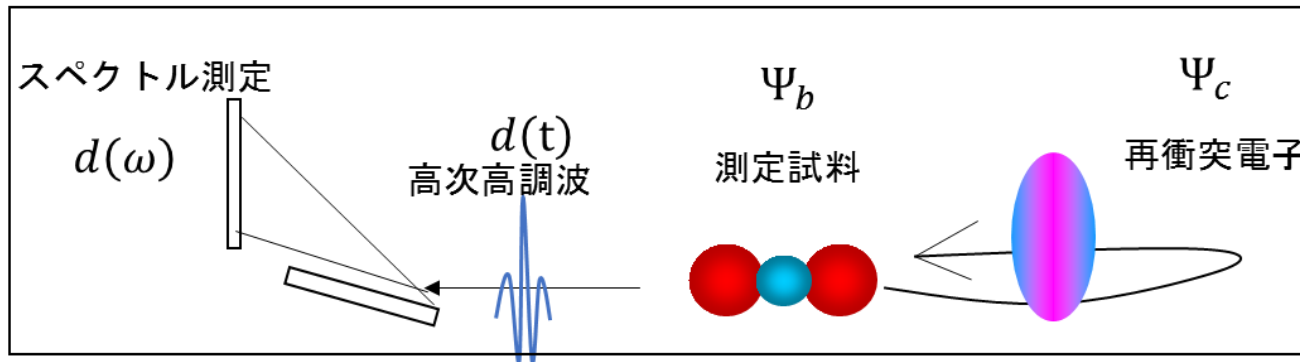


(Corkum先生の得意な説明)

1. 波を二つに分ける（**トンネルイオン化**）。
2. 異なるパスを走らせる（異なる時間発展）。
3. 波が重なり合わさり干渉する（**再衝突**）。
4. その干渉から、波についての情報を得る。
5. 電子と光とは、波として考えれば同様。

このことを利用した新たな分光法：**高次高調波分光**  
(high-harmonic spectroscopy)

## 4. High-harmonic spectroscopy (高次高調波分光)



$d(t)$ と $d(\omega)$ はフーリエ変換で

- ・ 測定対象（試料）に高強度の赤外レーザー電場を照射し、**トンネルイオン化**で、わずかに「**再衝突電子** $\Psi_c$ 」を引き出す。
- ・ 再衝突電子 $\Psi_c$ と、試料に残った電子波動関数 $\Psi_b$ （原子軌道・分子軌道）の**干渉**により、**高次高調波** $d(t)$ が発生。
- ・ 高次高調波の波の形 $d(t)$ は「再衝突電子 $\Psi_c$ と波動関数 $\Psi_b$ 」に依存。 $d(t) \sim \langle \Psi_b | -e\mathbf{r} | \Psi_c \rangle + \text{c.c.}$
- ・ すなわち**高次高調波のスペクトル強度と位相・偏光** $d(\omega)$ を測定すれば、試料の分子構造や電子構造、原子軌道・分子軌道、アト秒電子ダイナミクス・化学反応の情報が得られる！！

プローブ（再衝突電子）を**測定対象自身から**引き出している（自分撮り）ため、**試料とプローブ（再衝突電子）の「位相差」**は決まってる。位相の区別が出来る。  
（通常の電子衝突では、試料と電子パルスの位相差はランダム）。

### ・ 分子軌道

Nature 432, 867 (2004)

### ・ 振動運動

Science 312, 424 (2006)

### ・ 化学反応

Nature 466, 604 (2010)

Science 334, 208 (2011)

### ・ 固体

Nature 522 462, 2015

Nature Physics 2, 781 (2006)

**$\omega-2\omega$ 法**：再衝突電子を  
800nmと400nmを混ぜて発生。  
強力な方法！

## 5. 三段階モデル(semi-classical, three-step model)

トンネルイオン化—電子再衝突過程は、時間依存のシュレーディンガー方程式を解けば記述されるが、それでは性質が分からない。**レーザー電場中の電子の運動をニュートンの運動方程式**で古典的に解くことで、高次高調波の性質やアト秒パルス発生、アト秒パルス測定法など様々なことが説明される！！

P. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993).

### 運動方程式

$$m \frac{dV(t)}{dt} = eE(t) = eE_0 \cos(\omega t)$$

### 電子の速度

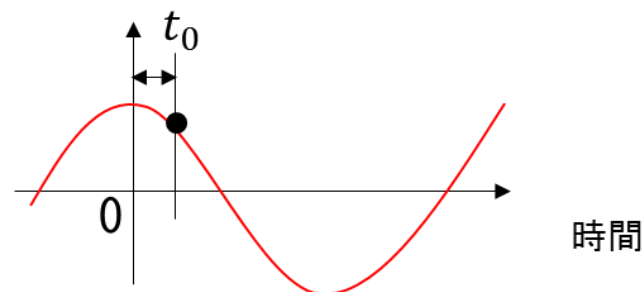
$$V(t) = \frac{eE_0}{m\omega} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)]$$

### 電子の位置

$$X(t) = -\frac{eE_0}{m\omega^2} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t_0)] - \frac{eE_0}{m\omega} \sin(\omega t_0) (t - t_0)$$

レーザー電場

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t)$$

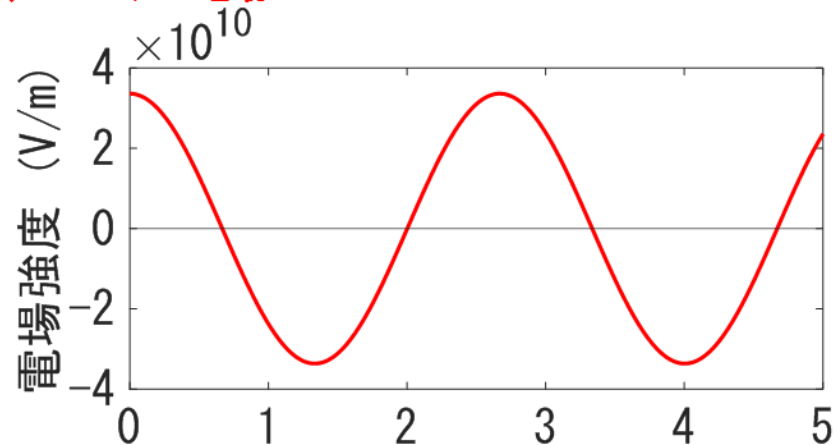


運動方程式を、イオン化した時刻 $t_0$ から時刻 $t$ まで積分して解く。

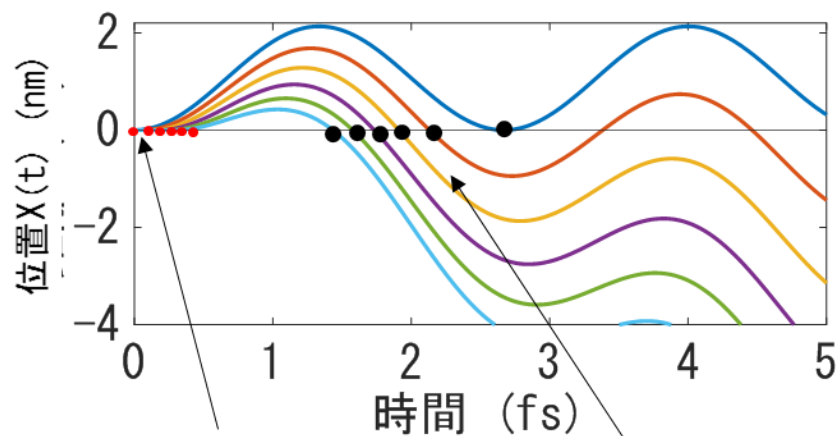
$V(t_0) = 0, X(t_0) = 0$ とする。

# 計算結果

(a) レーザー電場

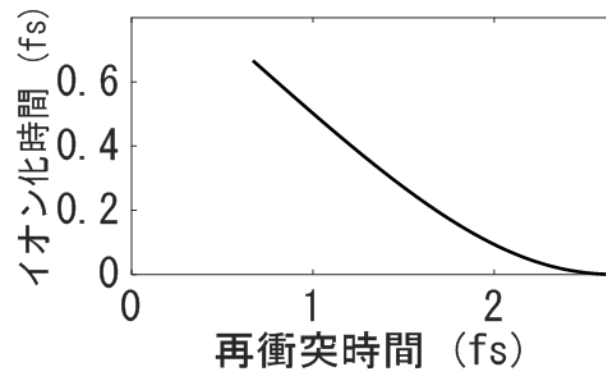


(b) 電子の位置

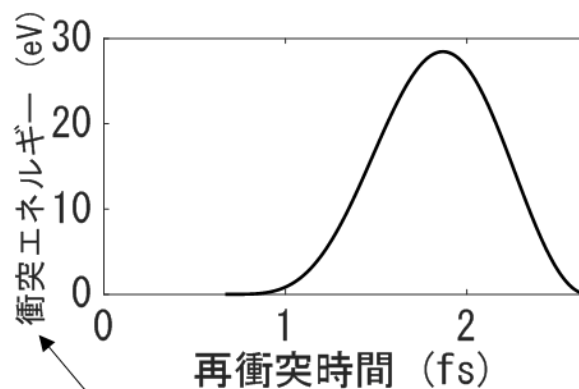


イオン化時刻  $t_0$  (少しずつずれている)      再衝突時刻  $t_c$  ( $t_0$  により異なる)。

(c) イオン化時刻  $t_0$  と再衝突時刻  $t_c$  の関係

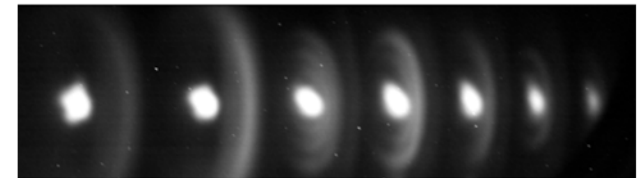
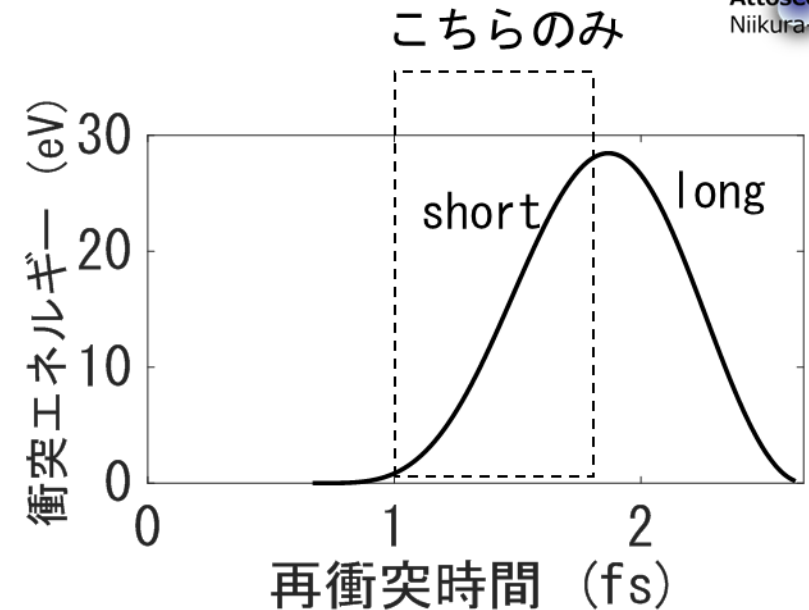
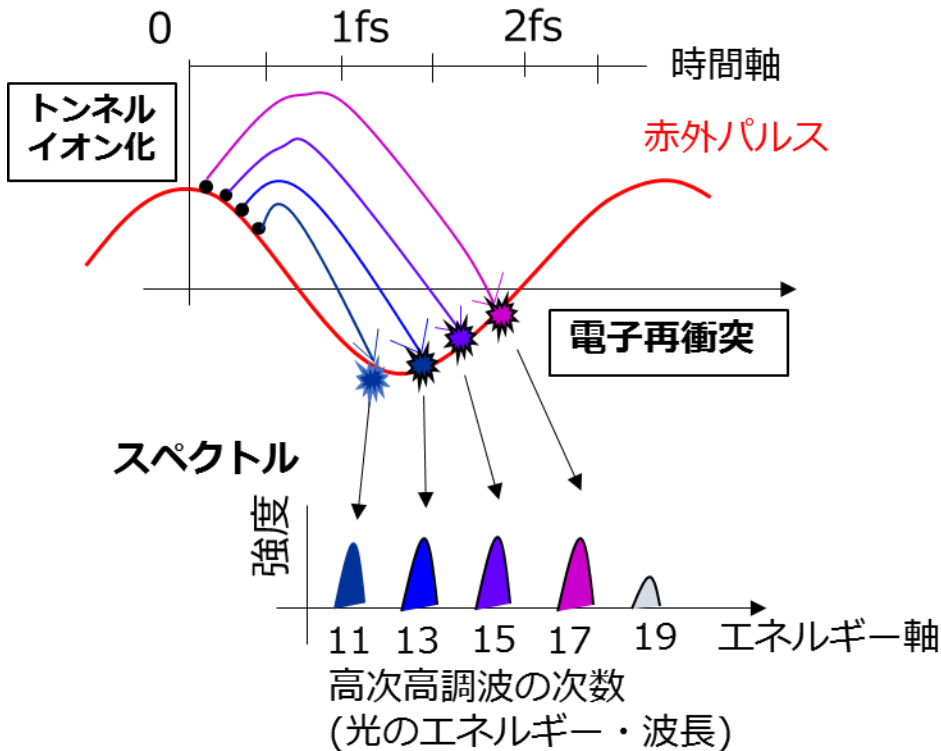


(d) 衝突エネルギーと再衝突時刻  $t_c$  の関係



衝突エネルギー  
(～高次高調波の光エネルギー)  
と再衝突時間  
(～高次高調波の発生時刻)  
には関係がある！！

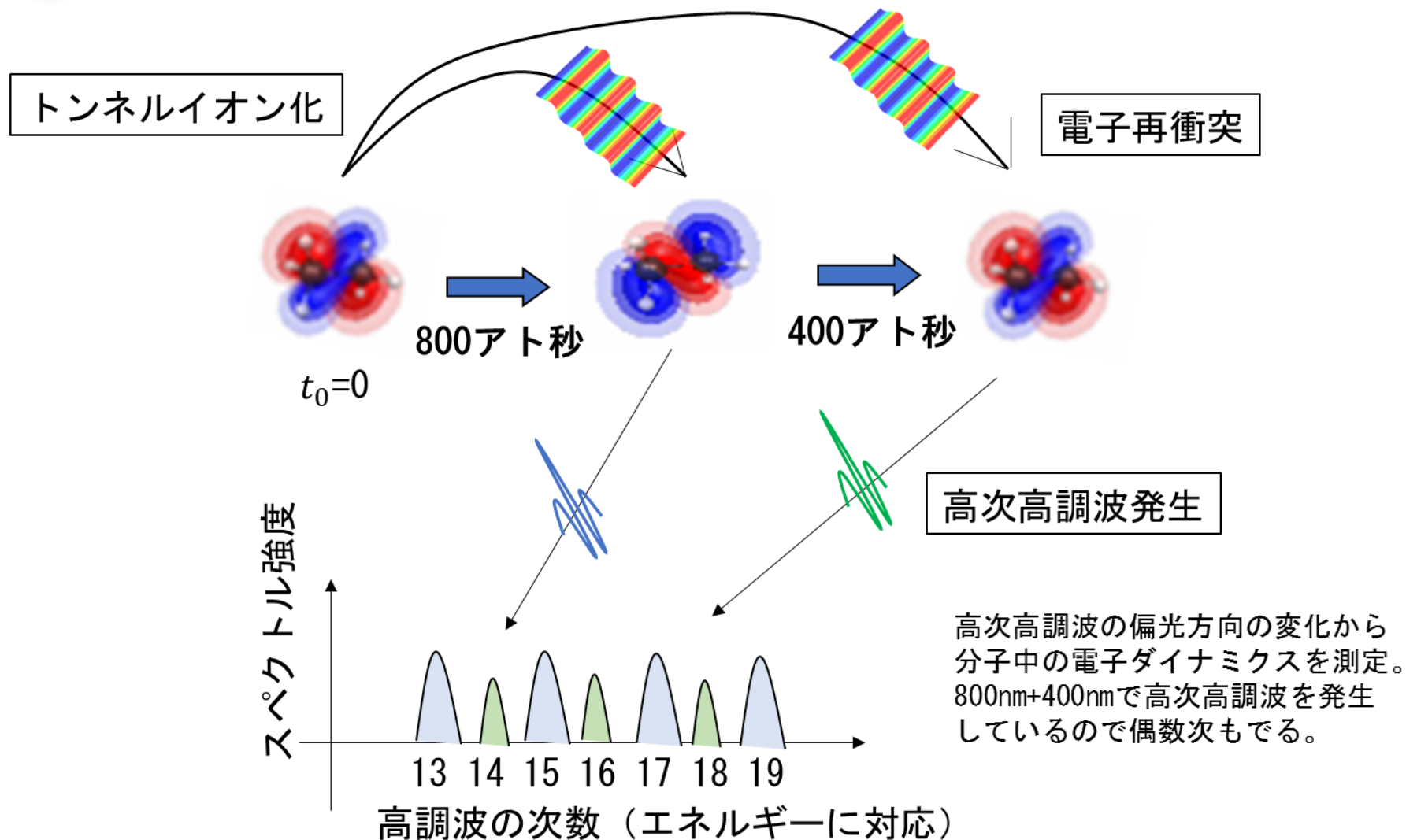
# 高次高調波のエネルギーと発生時刻の関係



short trajectoryによる高次高調波は真ん中に強く出る。そこだけを選ぶ。

- ・ Short trajectoryを取ると、**衝突エネルギー**（～高次高調波のエネルギー、次数）と**再衝突時刻**（高次高調波の発生時刻）は1 : 1に決まる！！
- ・ つまり「**高次高調波は、次数ごとに、すこし「ずれたタイミングで」発生している！！**」
- ・ もし全ての高調波で同じタイミングで発生したら、「一番短いパルス」が出来るが、「ずれ」が大きければ、パルスは長くなる。その「**高調波ごとの発生時刻のずれ**」の測定方法→**R A B B I T法**。ずれが分かればパルス幅を見積もることが出来る。

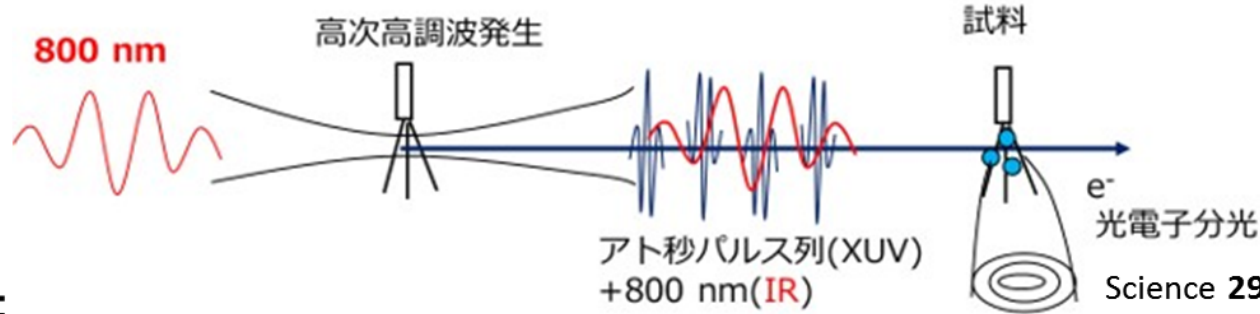
# 高次高調波のエネルギー(次数)と発生時刻の関係から アト秒電子ダイナミクスが測定できる



次数を時間軸に変換することが出来る。

H.Niikura et al., Phys. Rev. Lett. 94, 083003 (2005)  
H.Niikura et al., Phys. Rev. Lett. 107, 093004 (2011)

## 6. R A B B I T 法

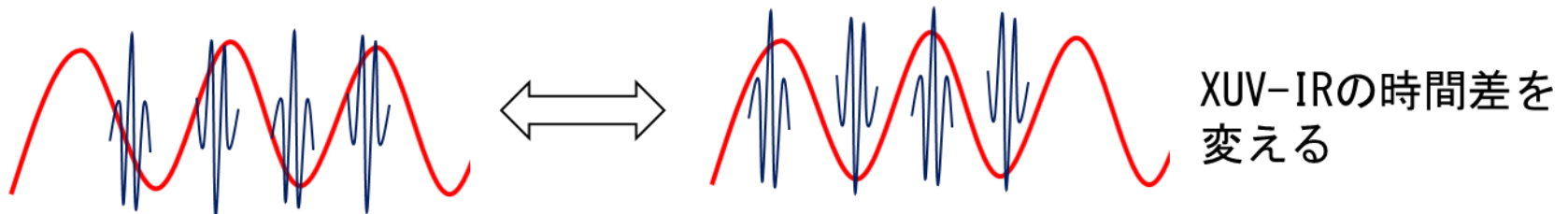


### 測定の原理：

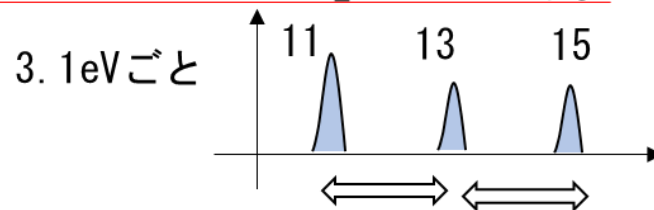
高次高調波は、高調波ごとに異なる時間で発生している。＝スペクトル位相が、高調波ごとに異なる。  
R A B B I T 法＝それぞれの高調波のスペクトル位相を測定する。  
スペクトル位相が分かれば、強度とともに、高次高調波の電場（パルス幅）を再構成・知ることが出来る。

### 測定方法：

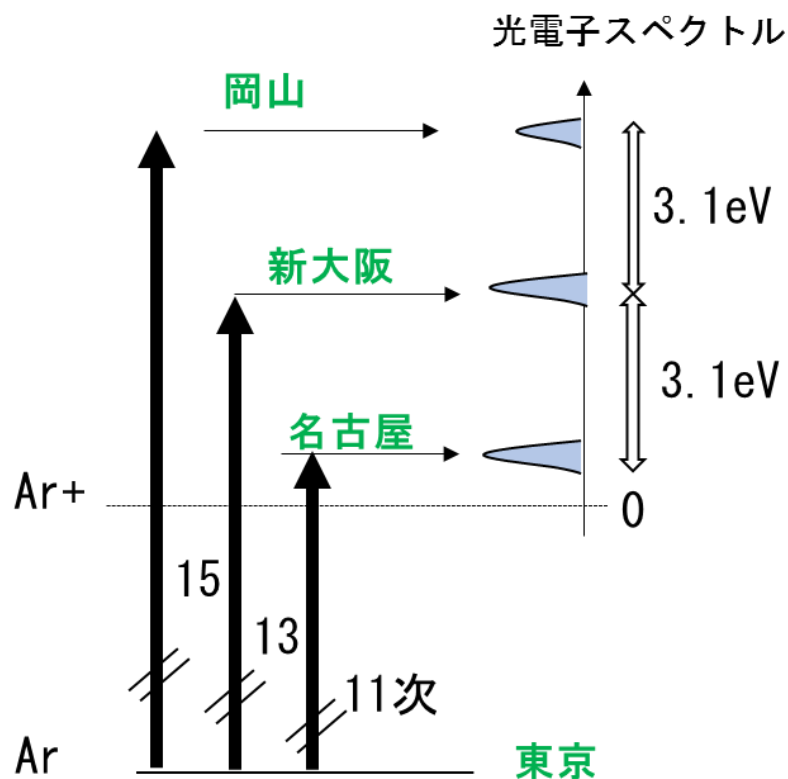
- (1) 高次高調波（アト秒パルス列XUV）と赤外光IRを重ねてイオン化。
- (2) 放出された光電子の運動エネルギー測定。
- (3) 偶数次の高調波でイオン化したときに相当する光電子に注目（サイドバンド）。
- (4) サイドバンドは、2つのイオン化過程  
（たとえば11次高調波とIR吸収(11+IR)、13次高調波とIRの放出(13-IR)）によって生じる＝干渉する。
- (5) XUVとIRの時間差を変えると、2つの過程の干渉が変わり、サイドバンドの信号強度が振動する。
- (6) サイドバンドの信号強度は、高調波の次数ごとに「ずれて」振動する。
- (7) その「ずれ」から、スペクトル位相を求める。
- (8) スペクトル位相と強度から、高次高調波パルスを再構成。



高次高調波 (XUV) のスペクトル：  
奇数次ごとにとびとび。



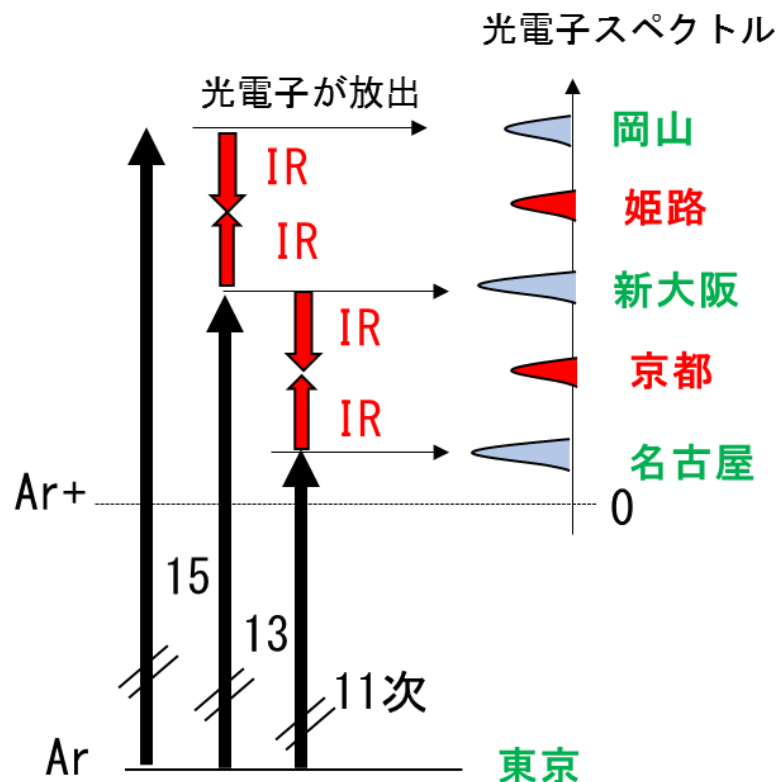
### (a) XUVのみでイオン化したとき



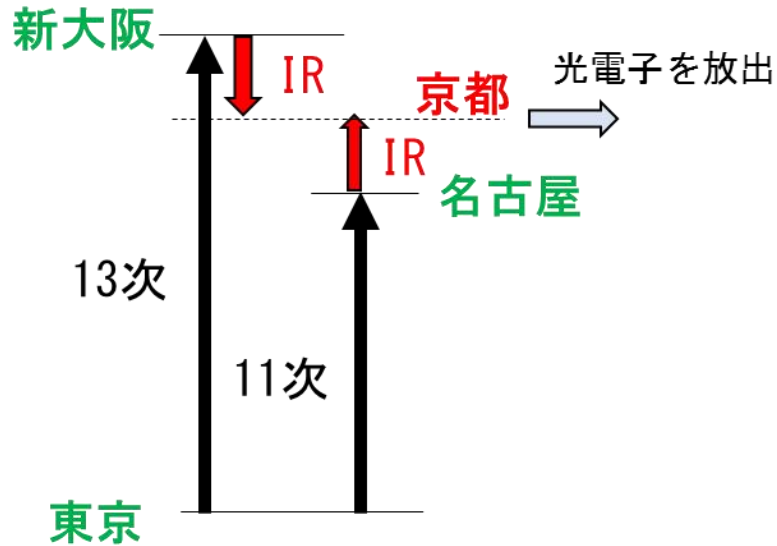
測定される光電子スペクトルは  
3.1 eVごとにとびとびになる。

それぞれの駅で光電子を放出

### (b) XUVとIRでイオン化したとき



11+IR, 13-IRなどIRが加わったことにより、  
間に光電子のピークが生じる（サイドバンド）



過程 A : 11次高調波とIRの2光子吸収

東京から名古屋まで新幹線 (11次高調波)

名古屋から京都まで在来線 (IR)

京都で光電子を放出。

過程 B : 13次高調波の吸収とIRの放出

東京から新大阪まで新幹線 (13次高調波)

新大阪から京都まで在来線 (IR)

京都で光電子を放出。

過程 A, 過程 B で放出された光電子はそれぞれ「干渉」する。

A: 東京——名古屋——京都

ぐるぐる回る時計を持って電車に乗る。

過程 A では X X 時間 X X 分 30 秒に京都に着いた。

B: 東京——新大阪——京都

過程 B では X X 時間 X X 分 10 秒に京都に着いた。

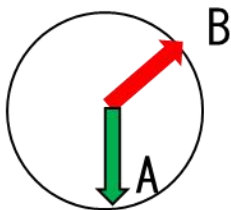
干渉・・・

A の針と B の針が重なっていれば、強め合う。

(光電子の強度が一番強くなる)

A の針と B の針が逆方向に向いていれば、弱め合う。

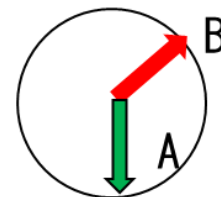
(光電子の強度が一番弱くなる)



## XUV-IR時間差を変えると、「干渉の仕方」が変わる。

XUV-IR時間差を変える

= 新幹線と在来線の乗り継ぎ時間を変える。

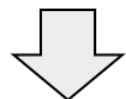


A: 東京----名古屋----京都

B: 東京----新大阪----京都

過程AではX X時間X X分30秒に京都に着いた。

過程BではX X時間X X分10秒に京都に着いた。



XUV-IRの時間差を変える。

A: 東京----名古屋(少し早める)----京都

B: 東京----新大阪(少し待つ)----京都

過程AではX X時間X X分20秒に京都に着いた。

過程BではX X時間X X分20秒に京都に着いた。



XUV-IRの時間差をもう少し変える。

光電子強度は強めあう

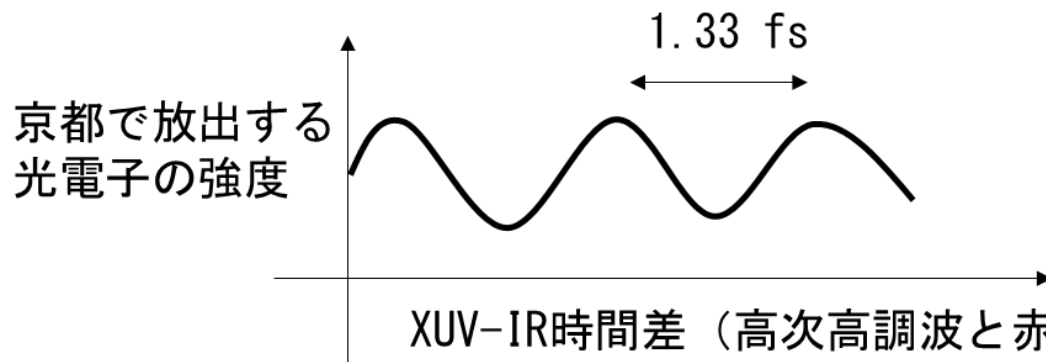
A: 東京----名古屋(もう少し早める)----京都

B: 東京----新大阪(もう少し待つ)----京都

過程AではX X時間X X分10秒に京都に着いた。

過程BではX X時間X X分30秒に京都に着いた。

光電子強度は弱くなる



光電子の強度は  
XUV-IRの時間差を変えると  
振動する。  
振動の周期は赤外光の半分の周期。



※説明のためですので、時刻は適当に書いています。過程AとBとで、「待つ」と「早める」が逆。

## 数式で書くと：光電子の強度 $I(\tau)$

東京一名古屋一京都の過程Aで放出された光電子の波動関数

待ち時間  
(XUV-IRの  
時間差)

$$I(\tau) = ||\Psi_a|\exp(i\varphi_a)\exp(-i\omega\tau) + |\Psi_b|\exp(i\varphi_b)\exp(i\omega\tau)||^2$$

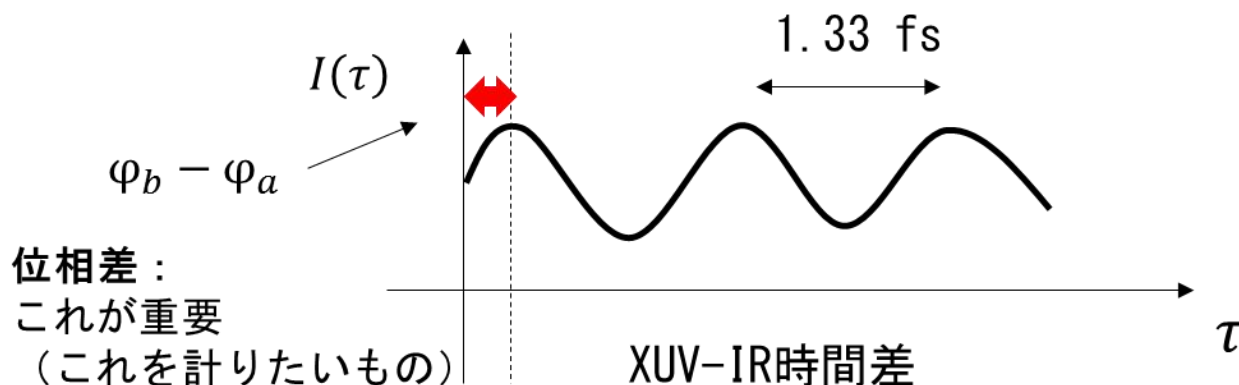
マイナス

東京-新大阪一京都の過程Bで放出された光電子の波動関数

$\varphi_a, \varphi_b \cdots$  それぞれの過程で放出された光電子の位相

$\omega \cdots$  IR光の角振動数

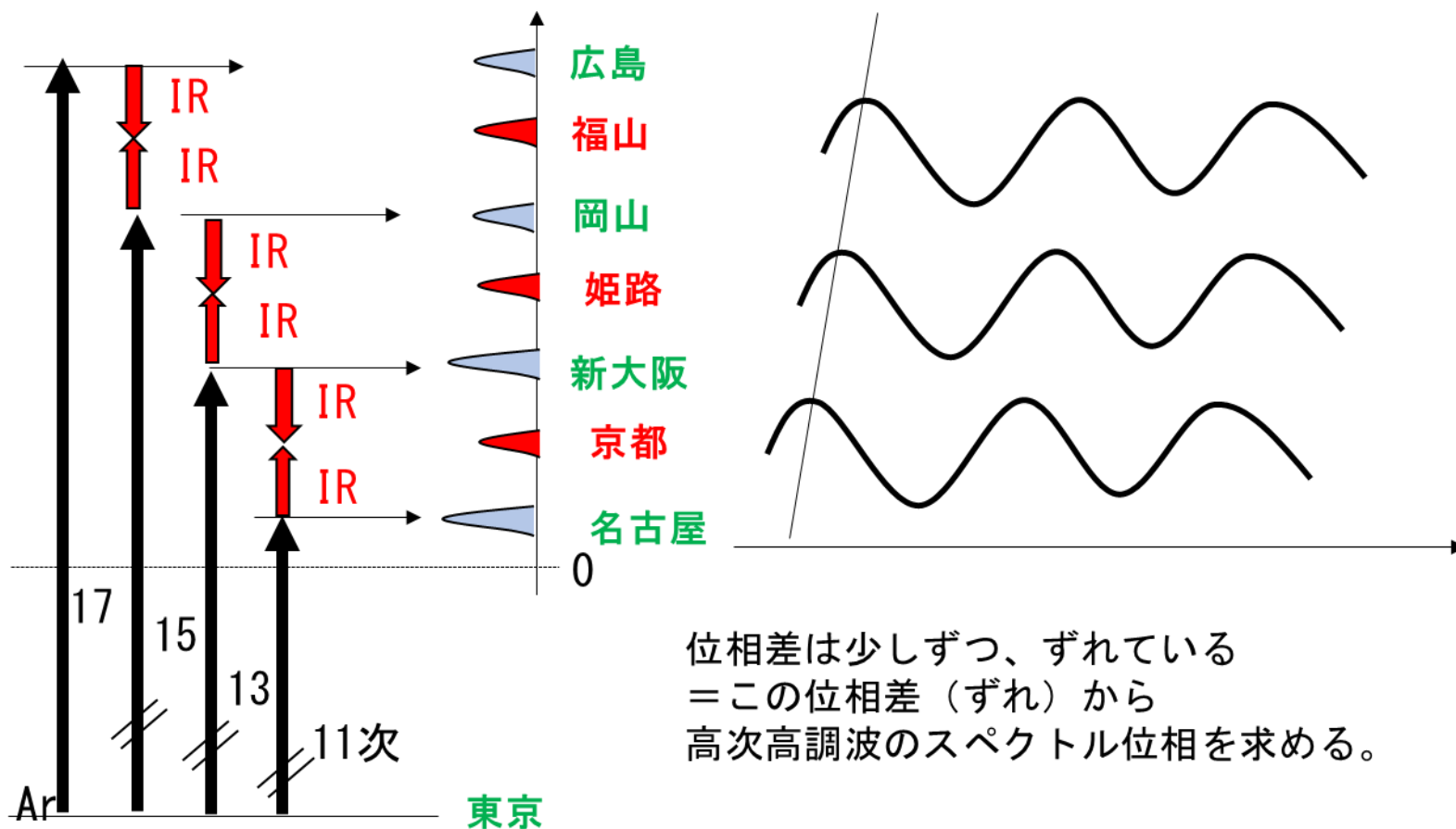
$$= |\Psi_a|^2 + |\Psi_b|^2 + 2|\Psi_a||\Psi_b|\cos(2\omega\tau + \varphi_b - \varphi_a)$$



IR光の周期T  
2.66fs  
 $2\omega\tau$ なので  
その半分で振動。

# 他のサイドバンドでの「位相差」も測定する

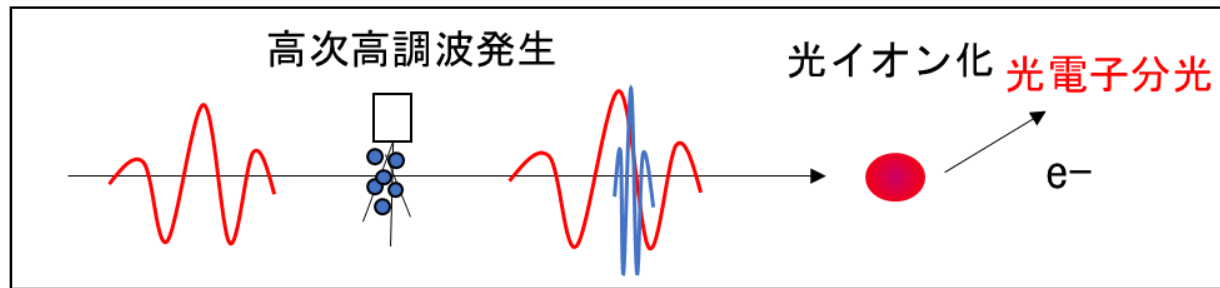
光電子スペクトル



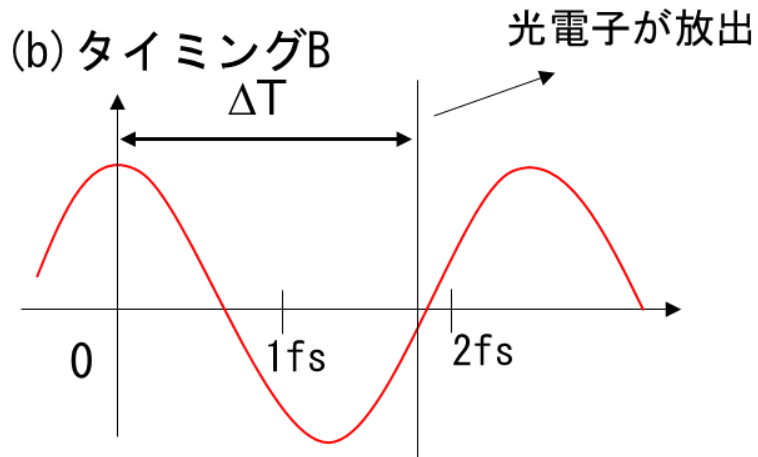
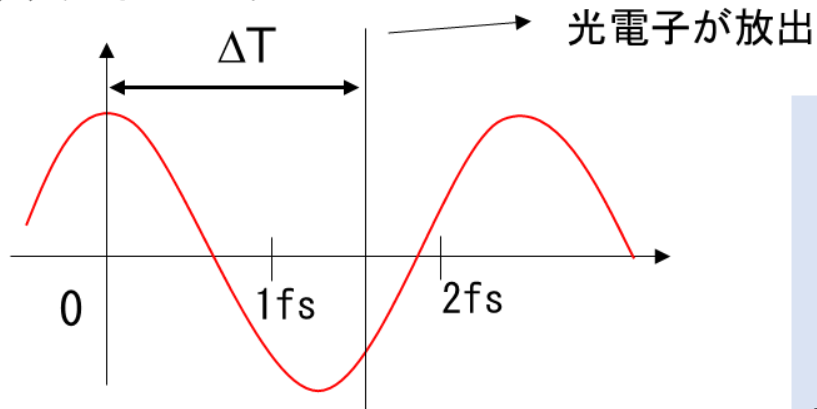
位相差は少しずつ、ずれている  
＝この位相差（ずれ）から  
高次高調波のスペクトル位相を求める。

注：光電子の位相差は、高次高調波の発生時刻のずれと、それぞれの原子固有の時間差（例えば岡山で乗り継ぎに余計な時間がかかるとか）の和になっている。それぞれスペクトル位相、原子位相という。スペクトル位相が分かれば、原子位相を決定できる。すなわち原子固有の位相差がわかる。（両方の完全決定：Phys. Rev. A 104, 053526 (2021)）

# 7. 電子ストリーク法



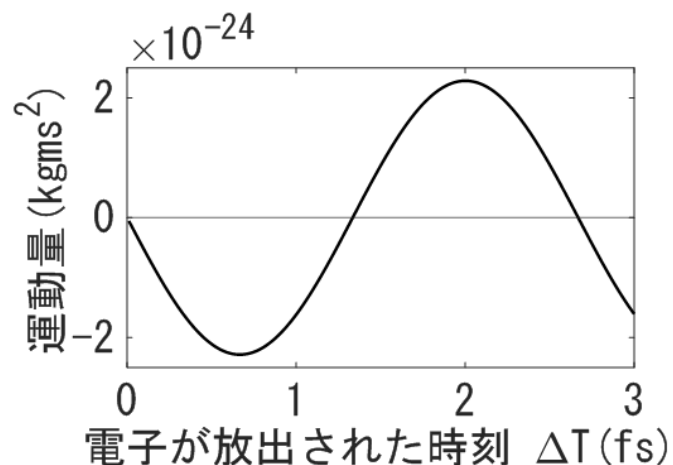
(a) タイミングA



- ・ 赤外光と単一アト秒パルスを重ねてイオン化。
- ・ 放出された光電子のエネルギーは、どのタイミングで電子が放出されたかに依存。
- ・ つまり光電子のエネルギーと方向を測定することで、「どのタイミングで光電子が放出されたか」が分かる。  
(光電子のエネルギーを時間軸に変換できる)
- ・ 実際の測定ではXUV-IRの時間差を変えて測定。

$$V(t) = \frac{eE_0}{m\omega} [-\sin(\omega\Delta T)]$$

# 光電子放出のタイミングと、測定される光電子のエネルギーの関係 (時間軸と光電子のエネルギーとの変換)



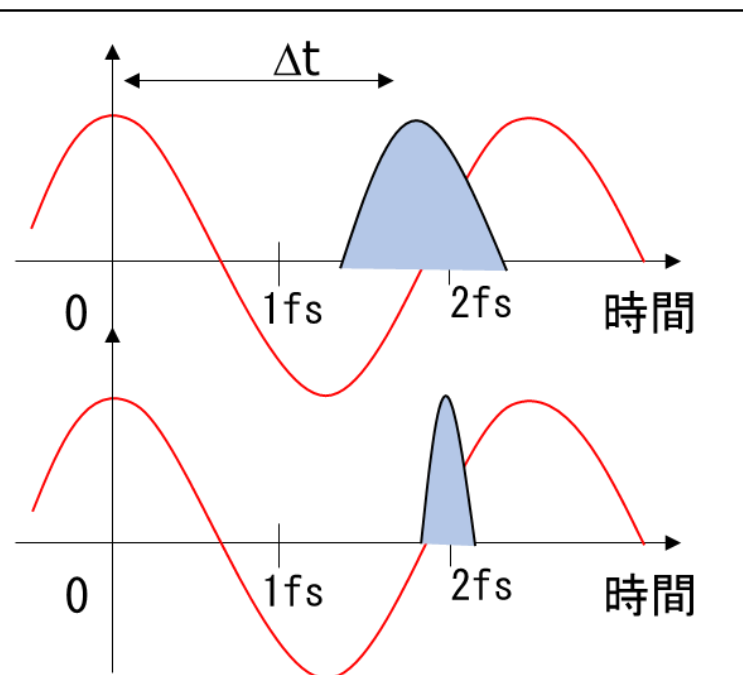
三段階モデルによると、  
時刻 $\Delta t$ で放出された光電子の速度 $V(t)$ は  
(p. 37でイオン化時刻 $t_0$ を $\Delta t$ にかえて)

$$V(t) = \frac{eE_0}{m\omega} [\sin(\omega t) - \sin(\omega \Delta t)]$$

電場が通り過ぎた後の電子の速度は、  
上の式で $\omega t$ の項を消して

$$V(t) = \frac{eE_0}{m\omega} [-\sin(\omega \Delta t)]$$

すなわち電子の速度 $V(t)$  (運動量) と  
 $\Delta t$ とが関係付けられる。



パルス幅が長ければ：  
測定される電子の速度 (運動量) 分布が広がる。  
パルス幅が短ければ：  
測定される電子の速度 (運動量) 分布が狭くなる。

## 電場中での電子の運動方程式

$$m \frac{dV(t)}{dt} = eE(t) = eE_0 \cos(\omega t)$$

解くと

$$V(t) - V(t_0) = \frac{eE_0}{m\omega} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t_0)]$$

ベクトルポテンシャルで書くと

$$mV(t) - mV(t_0) = -eA(t) + eA(t_0)$$

つまり

$$P = mV(t) + eA(t) = mV(t_0) + eA(t_0)$$

時刻 $t_0$ の時の(電子の運動量+そのときのベクトルポテンシャル)が保存する!

電場中での電子のラグランジアン

$$L = \frac{1}{2} mV^2 + eVA$$

電場中での電子のハミルトニアン

$$H = (P - eA)^2 / 2m$$

一般化運動量  $P = \partial L / \partial V = mV(t) + eA(t)$

## 電場

$$E(t) = E_0 \cos(\omega t)$$

ベクトルポテンシャル

$$A(t) = -\frac{E_0}{\omega} \sin(\omega t)$$

(スカラーポテンシャルは0とする。  
磁場の影響は無視)

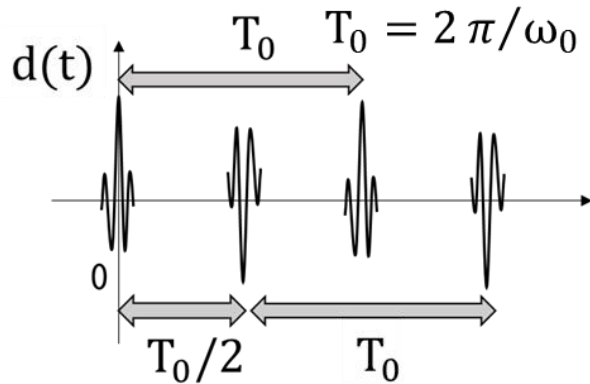
電子と電場の相互作用は、

- ・ 電子の速度 $V$ とベクトルポテンシャル $A$
- ・ 電子の位置 $r$ と電場 $E$

で表す2つの場合がある。

## 8. なぜ「奇数次のみの高次高調波」が発生するのか。

簡単のため、4つだけで考える。



赤外のレーザー電場 1 周期  $T_0$  につき、2 回単一アト秒パルス  $d(t)$  が発生。ただし方向が異なるので 1 つずつ電場が逆 ( $-d(t)$ ) になる。  
全体の高次高調波の電場  $D(t)$  は

$$\begin{aligned} D(t) &= d(t) - d\left(t - \frac{T_0}{2}\right) + d\left(t - \frac{2T_0}{2}\right) - d\left(t - \frac{3T_0}{2}\right) \\ &= \{d(t) + d(t - T_0)\} - \left\{d\left(t - \frac{T_0}{2}\right) + d\left(t - T_0 - \frac{T_0}{2}\right)\right\} \end{aligned}$$

フーリエ変換すると ( $d(\omega)$  は  $d(t)$  をフーリエ変換したもの)

$$\begin{aligned} D(\omega) &= d(\omega)(1 + \exp(-i\omega T_0)) - d(\omega)(1 + \exp(-i\omega T_0) \exp(-i\omega T_0/2)) \\ &= d(\omega)(1 + \exp(-i2\pi\omega/\omega_0)) - d(\omega)(1 + \exp(-i2\pi\omega/\omega_0)) \exp(-i\pi\omega/\omega_0) \\ &= \frac{d(\omega)(1 + \exp(-i2\pi n)) - d(\omega)(1 + \exp(-i2\pi n)) \exp(-i\pi n)}{1} \end{aligned}$$

$$\omega = n\omega_0$$

$n$  は高次高調波の次数

