

# 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～

小栗 克弥 <日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所 oguri.katsuya@lab.ntt.co.jp>

## 1. はじめに

筆者は現在、日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所において「超高速光物理」の研究を行っている。当研究所は日本電信電話株式会社の基盤的研究開発を担う11研究所・2センタの研究開発組織の一つであり、10～20年後の世界を見据え、速度・容量・サイズ・エネルギーなどの点で従来の通信ネットワーク技術の壁を越える新原理・新概念を創出することをミッションとしている。神奈川県ほぼ中央の厚木市森の里地区に位置し、自然豊かな環境の中で研究員約100名、海外・国内実習生30～50名程度の人員が日々研究を行っている。<sup>1)</sup>

筆者は、大学・大学院時代においては、地球惑星物理学を専攻し、特に、地球内部に匹敵する超高圧・超高温の極限環境下における物質のX線構造解析の研究を行ってきた。1998年に当研究所に配属された当初は、その経験を活かして、X線・軟X線領域における超短パルス発生並びに時間分解X線分光の研究を始め、X線物質科学に時間分解計測技術の概念を導入した「超高速X線物質科学」の勃興期に研究を推し進めた。さらに、X線発生に用いる超短パルスレーザー技術という観点から、超短パルスのキャリアエンベロープ位相安定化技術やそれを用いたアト秒(1 as = 10<sup>-18</sup> s)高次高調波パルス発生並びにアト秒光物性へと研究の方向性を拡げ、現在の「超高速光物理」研究のコンセプトを創り上げてきた。このように、筆者の学生時

代の研究分野と、現在の研究分野とは大きく異なっているわけであるが、「超高圧」と「超高速」という極限物性を探索するために、新たな研究装置を開発し、計測するという研究の基本スタイルは一貫している。企業の研究所という性格上、研究成果と社会とのつながりを常に意識できる環境を最大限活用し、他の研究機関との差別化を図るべく戦略を練っている。

本稿では、筆者らが進めているNTT物性科学基礎研究所の「超高速光物理」研究の概要について紹介する。特に、筆者自らがプレーヤーとして取り組んでいるアト秒光物理の研究を中心に紹介したい。

## 2. 「超高速光物理」研究の概要

21世紀に入り、光科学は、超高速光技術を母体として、新たに大きな二つの研究領域を開花させた。一つは、周波数領域における光の極限的制御を指向する光周波数コム研究である。<sup>2)</sup> もう一つは、極限的に短い時間領域における光の制御を追求するアト秒光物理の研究である。<sup>3)</sup> この二つの最先端光科学分野は、どちらも超短パルス光の包絡線に対する光電場の振動のタイミング(キャリアエンベロープ位相: CEP)を正確に制御する技術がブレークスルーとなり、<sup>4)</sup> ここ10年あまりで急速に発展した。その結果、可視光から近赤外光にかけての「光」の周波数、振動周期、そしてその位相は直接的に計測かつ制御可能な量と

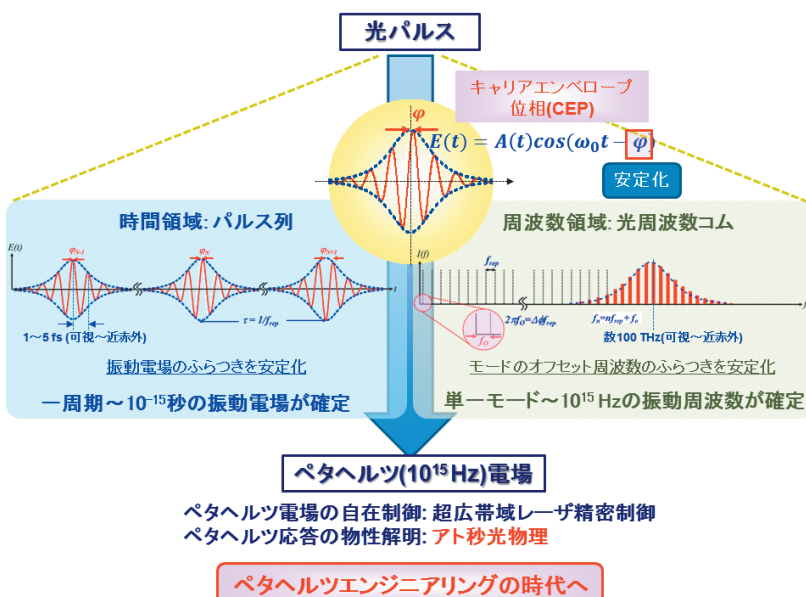


図1 NTT物性科学基礎研究所「超高速光物理」研究のコンセプト。

なり、従来、あまりに高い振動数・短い振動周期のため無視されてきた光の「電磁波」としての性質を活用できる可能性が切り拓かれることとなった。

筆者らは、この「光」に関する大きなパラダイム変換をより積極的に推進すべく、光周波数コム光源とアト秒高次高調波光源という2つの最先端光源を中核技術として、数百テラヘルツ (1 THz =  $10^{12}$  Hz) の周波数を持つ光電場を自在に計測・制御し、数フェムト秒 (1 fs =  $10^{-15}$  s) の周期を持つ光電場の時間スケールにおける光物性を探索する「ペタヘルツ (1 PHz =  $10^{15}$  Hz) 領域の光技術 = ペタヘルツエンジニアリング」創出を目指している (図1)。

光周波数コム光源研究における特徴は、位相変調レーザーをベースにして、小型・高繰り返し・波長可変光周波数コム光源を目指している点である。<sup>5,6)</sup> この方式は、狭線幅CW半導体レーザーを種光とし、マイクロ波により駆動することで25 GHzとといった極めて広いモード間隔と狭モード線幅を容易に実現できるため、モード同期レーザーをベースとした光周波数コムとは異なる応用が期待できる。一方、アト秒高次高調波光源研究における特徴は、単一アト秒パルス発生と極端紫外・軟X線) 領域の超高速時間分解分光技術を組み合わせることで、原子から分子、そして固体まで様々な試料におけるアト秒光物性研究を展開できる点にある。このようなアト秒時間領域の計測手法は、世界トップクラスの数研究室しか実現していない難易度の極めて高い技術であり、筆者らの研究の差別化技術である。さらに、本研究では、サブ10 fs時間分解能を有する高感度過渡反射率計測技術を組み合わせることで、アト秒からフェムト秒にかけての固体電子・格子系ダイナミクスの研究を包括的に進めている。<sup>7,8)</sup>

### 3. 単一アト秒パルス光源の開発

単一アト秒パルスは、近赤外域の高強度超短パルス光を

希ガス原子中に集光することで発生する、極端紫外から軟X線の高次高調波の一形態である (図2)。この高次高調波は、入射 (基本波) 光パルスの光電場によって一旦トンネリオン化した電子が、電場の向きが反転することでイオン化した元の原子と再結合した際に放射される。<sup>3)</sup> 3ステップモデルと呼ばれるこの一連の過程は、基本波の半周期毎に正確に繰り返されるため、高次高調波は基本波周波数 ( $\omega$ ) の2倍の間隔 ( $2\omega$ ) で次数が増加し、奇数次数 ( $(2n+1)\omega$ ) のみの櫛状のスペクトルを持つことになる。基本波として良く用いられる波長 800 nm 付近の近赤外光の半周期は 1 fs 程度であるため、高次高調波はアト秒オーダーのパルス幅を有する。すなわち、高次高調波は、アト秒パルスが基本波の半周期毎に放射されるパルス列となる。

図3は、我々が構築したアト秒光物理実験ステーション (NTT AttoSecond Station: NASS) における装置写真である。

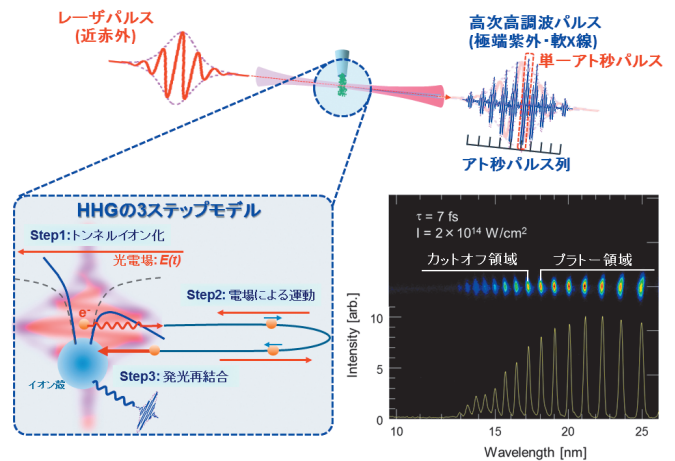


図2 高次高調波発生 (HHG) の模式図 (上) と典型的な高次高調波スペクトル (下右)。近赤外光の基本波と希ガス原子の相互作用により発生する高次高調波は、3ステップモデルにより説明される (下左)。スペクトル強度が次数にあまり依存しないエネルギー領域をプラトー領域、高調波の最大発生次数の領域で急速にスペクトル強度が減少するエネルギー領域をカットオフ領域と呼ぶ。

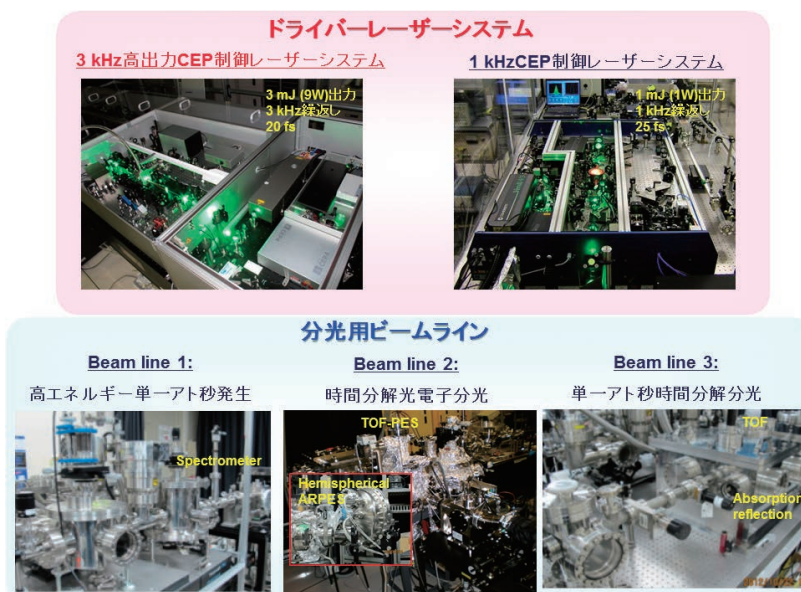


図3 NTT AttoSecond Station (NASS) の装置外観。単一アト秒パルス発生に用いるの高強度数サイクル近赤外光パルス発生するための CEP 制御高強度フェムト秒レーザーシステムを2台備えている (上)。ビームラインは、高エネルギー単一アト秒パルス発生・評価実験系 (下左)、フェムト秒時間分解光電子分光実験系 (下中央)、単一アト秒時間分解計測実験系 (下右) の3ラインを備えている。



上の2つは、高次高調波の基本波発生ドライバー用の高強度フェムト秒レーザーシステムである。中心波長 790 nm, パルスエネルギー 1~3 mJ, パルス幅 20~25 fs, キロヘルツ繰り返しの高強度フェムト秒レーザーマルチパス増幅器を2台配備している。各レーザーシステムには、CEP 安定化機構を組み込み、中空ファイバ圧縮器により、6~7 fs の数サイクルパルスが発生させる。また、下の3つは、単一アト秒パルスの発生ビームラインおよび高次高調波・単一アト秒パルスを利用した超高速時間分解分光法ビームラインである。このビームラインは、単一アト秒パルス波形の計測や、時間分解吸収・反射・光電子分光実験などを実施できる。

単一アト秒パルスの発生は、基本波(近赤外光)の半サイクル周期繰り返しで発生する高次高調波アト秒パルス列から一本を切り出すことにより実現される。<sup>9)</sup> 切り出す方法は、大きく分けて3種ある。一つは、パルス内で1~2周期程度の電場しか含まない極限的に短いパルスが発生させ、それを基本波として高次高調波が発生させる手法である。高次高調波発生は強い非線形現象であるため、1~2周期程度の幅を持つ光パルスの場合、最も強度の高い電場ピークでのみ実質的に単一のアト秒パルスが発生する(振幅ゲート法)。もう一つは、高次高調波が原理的に直線偏光の基本波で最も効率良く発生することを利用する方法である。互いに逆回転する円偏光を基本波とし、重ね合わせることによって、半周期程度の時間領域にだけ直線偏光の部分を作り出すことにより、アト秒パルスの発生を基本波の半サイクルのみに限定することができる(偏光ゲート法)。3つ目は、光電場イオン化の高い非線形性を利用して、サブサイクルの立ち上がりでイオン化させることによってアト秒パルス列発生を強制的に遮断する方法(イオン化ゲート法)である。我々は、振幅ゲート法による単一アト秒パルス発生と、偏光ゲート法をさらに改良した二重光学ゲート(Double Optical Gate: DOG)法<sup>10)</sup>による単一アト秒パルス発生の二種類の方法を実現している。

図4は、CEP制御したパルス幅6 fs(2周期程度)の基本波より発生させた単一アト秒パルスのスペクトルである。<sup>11)</sup> 振幅ゲート法の特徴は、基本波のCEPによって、切り出されるアト秒パルスの本数が変わり、その結果スペクトルの形が変化することである。ここでは、高次高調波の最大エネルギー領域(カットオフ領域)に対応する100 eV近傍で、CEP依存にしたスペクトル変化が明瞭に見られる。パルスの包絡線ピークと光電場ピークが一致し、パルス内に最も強い電場ピークが一つのみのコサイン型のパルスの場合、単一アト秒パルスに特徴的な連続状のスペクトルを示している(図4上)。一方、コサイン型から位相が $\pi/4$ ずれたパルスの場合、パルス内に最も強い電場ピークが2つ存在するため、発生時間が半周期分ずれた2つのアト秒パルスが発生する。それが干渉した結果、櫛状のスペクトルが現れることになる(図4下)。このように、

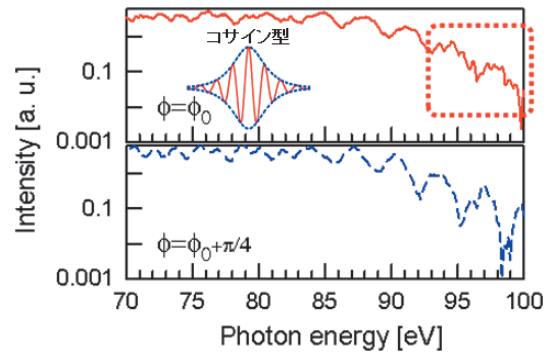


図4 振幅ゲート法により発生させた単一アト秒パルスの連続状スペクトル。コサイン型のCEP( $\phi$ )に安定化させた6 fsの基本波パルスをNeガスに集光すると、100 eV近傍のカットオフ領域で単一アト秒パルス発生を示す連続状スペクトルが発生する(上図点線枠内)。CEPをずらすと、2つ以上のアト秒パルスが発生することから、干渉効果により櫛状のスペクトルとなる(下)。

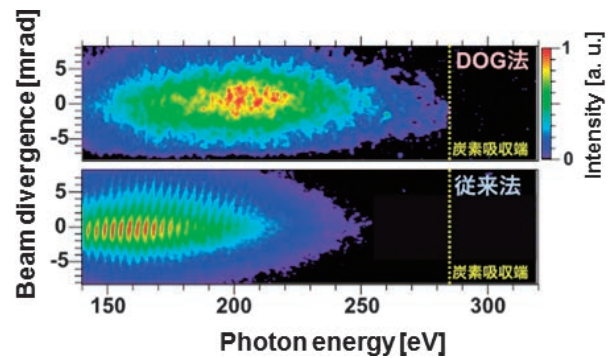


図5 二重光学ゲート(DOG)法により発生させた「水の窓」領域単一アト秒パルスの連続状スペクトル(上)。高次高調波のカットオフエネルギーが290 eVに位置する炭素のK吸収端(黄点線)に到達している。DOG法を用いない場合(従来法)、櫛状のスペクトル部分が残るとともに、カットオフエネルギーも相対的に伸びない(下)。

CEP安定化技術は、単一アト秒パルス発生に不可欠な技術である。

一方、図5は、DOG法で発生した「水の窓」領域の単一アト秒パルスのスペクトル画像である。<sup>10)</sup> 「水の窓」領域とは、生体細胞の主成分である水には透明である一方炭素に対しては不透明な、波長2.3~4.4 nmの軟X線を指す。従って、この波長領域の光源は、生体細胞を高いコントラストで計測可能な軟X線顕微鏡用の光源として期待されている。DOG法は、偏光ゲート法と、基本波とその倍波を重ね合わせることによって、最も強い電場ピークとその隣り合う電場ピークの強度コントラストを高める一種の振幅ゲート法を組み合わせた、単一アト秒パルス発生手法である。我々は、波長790 nmの基本波を短焦点レンズで高密度に集光することで、290 eVの炭素のK吸収端にまで達する、明瞭な単一アト秒パルスの超広帯域スペクトルの発生に成功した。このときの基本波のパルスエネルギーは、わずか250  $\mu$ J/pulseであり、「水の窓」領域の高次高調波発生としては世界最小である。フーリエ限界パルスを仮定すると、本スペクトルの帯域幅からそのパルス幅は、時間の原子単位である24 asよりも短い約20 asと見積もられ、極限的に短い単一アト秒パルス発生を示唆している。

以上のようにアト秒パルスのエネルギー領域を拡大することにより、これを光源とするアト秒時間分解分光において、様々な材料が計測可能となる。特に、炭素のK吸収端をカバーする「水の窓領域」の単一アト秒パルスは、近年注目が集まっているナノカーボン材料だけでなく、将来、生体材料への適用も期待できる。

#### 4. アト秒高次高調波光源を用いた新規超高速分光法の開発

これまでの超高速光物性研究では、主に可視から近赤外領域の光パルスを、物質系に瞬間的にエネルギーを注入する励起源として用い、励起された物質が元の状態に戻るまでの時間変化を計測して、素過程である電子や格子の散乱過程を理解することが主なターゲットであった。また、このような物理過程を利用して、物質状態を制御する光スイッチングといった応用技術も発展してきた。一方、励起光の電場の一周期よりも短いアト秒時間スケールでは、光を数100 THzという超高周波数の電場として取り扱う方が適切となる。このような光電場と物質系、特に電子系とのコヒーレントな相互作用が引き起こすダイナミクスを探求することは、従来の包絡線近似や回転波近似の枠組みを超えた光物性を切り拓くことにつながる。単一アト秒パルスをプローブとして用いたアト秒時間分解分光法は、このようなアト秒時間スケールの光物性を探索するための強力な実験手法である。この目標のために、我々は、まず高次高調波アト秒パルス列を光源とした超高速時間分解分光法の開発に取り組み<sup>13)</sup> これをさらに単一アト秒パルス光源に置き換えることを目指した。最近では、単一アト秒パルスによる希ガス原子の過渡吸収分光法にも成功した<sup>14)</sup>

図6は、Ne原子の内殻励起のリユードベリ状態における緩和過程をアト秒時間分解過渡吸収分光法で観測した例である。本研究では、パルス幅約7 fsの近赤外パルスをポンプ光とし、パルス幅約200 asの単一アト秒パルスをプローブ光とした時間分解ポンプ・プローブ分光装置を構築し、単一アト秒パルスによるNeの吸収スペクトルを遅延時間の関数として計測している。図6(a)は、本装置で計測したNeの2s-3pリユードベリ準位の吸収スペクトルである。この準位は、自動イオン化を伴うことから、いわゆるファノ型の非対称な吸収スペクトル形状を示す。そこに近赤外パルスを照射すると、近赤外光とアト秒パルスが時間的に重なる前(-16 fs)では、吸収スペクトルに変化は見られないが、両者が重なる(+5 fs)、吸収ピークがほぼ消失する。その後、近赤外光がアト秒パルスよりも遅れてNeガスに到着すると(+24 fs)、吸収ピークは再び回復する。吸収ピークの消失は、アト秒パルスにより2s-3pリユードベリ状態に励起された電子が、近赤外パルスによってさらに高いエネルギー状態まで励起される二重共鳴吸収過程と理解できる(図6(b)点線内)。吸収ピークを遅延時間の関数として計測することにより、2s-3pリユード

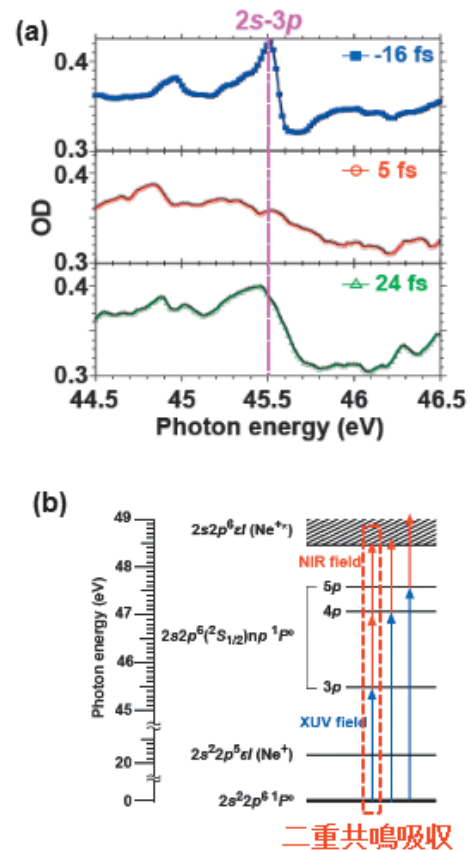


図6 Ne原子におけるアト秒時間分解吸収分光実験。(a) 2s-3p内殻励起リユードベリ状態の吸収スペクトルをアト秒パルスと近赤外パルスの遅延時間の関数として測定。(b) 本実験におけるNeのエネルギーダイアグラム。単一アト秒パルス(XUV field)により2s-3p内殻準位を励起し、それに続く近赤外パルス(NIR field)でイオン化連続状態まで二重共鳴励起を起こす。その結果、2s-3pのNeの吸収スペクトルは弱まる。

ベリ状態の寿命が約50 fsであることも計測できた。このように、アト秒時間分解吸収分光は、従来、高いエネルギーかつ高速緩和のため計測できなかった内殻励起状態の計測に強力な手法であることを示している。さらに我々は、2s-3pの共鳴準位とイオン化の連続準位が干渉している点に着目し、スペクトル干渉法(SPIDER法)による位相再構築の原理を応用することによって、2s-3pリユードベリ状態における双極子放射の電場位相を再構築することに成功した<sup>14)</sup>

以上の研究では、最も単純な希ガス原子が計測対象であったが、ベタヘルツエンジニアリングの要素技術としては、固体材料におけるアト秒電子系ダイナミクス計測への応用が必須となる。我々は、その第一歩として、高次高調波を用いたフェムト秒時間分解光電子分光法を実現し、半絶縁半導体GaAsにおける光励起キャリアの輸送ダイナミクス計測に応用した<sup>15,16)</sup> 本計測法の特徴は、92.5 eVのエネルギーを持つ59次高調波をプローブ光として用いることにより、原子1~2層レベルの高い表面敏感性ととともに、内殻準位の光電子分光を実現している点にある。表面における内殻光電子ピークのシフトは、固体の表面ポテンシャルを反映することが知られており、光励起の結果生ずる半導体の表面ポテンシャルの時間変化を、光電子エネルギー

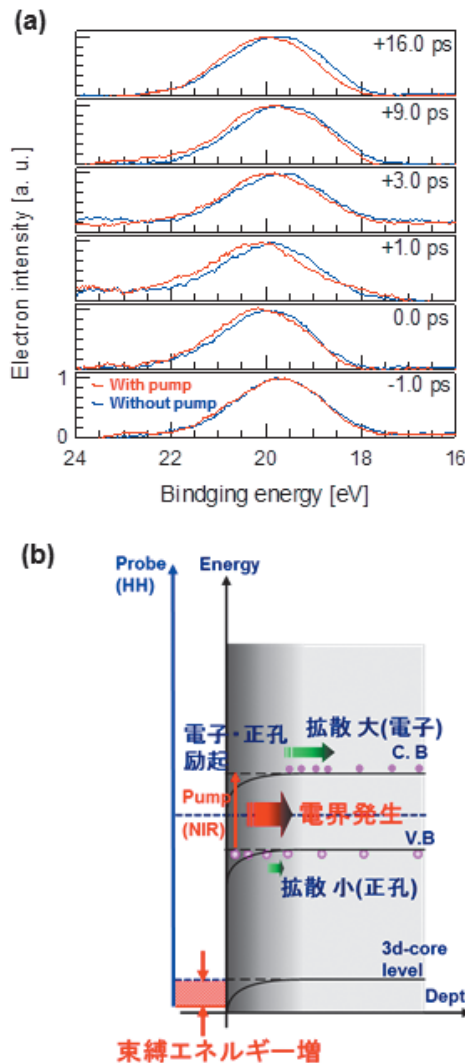


図7 半絶縁GaAsにおけるフェムト秒高次高調波を用いた時間分解内殻光電子分光実験。(a) 100 fsの近赤外パルス照射によるGa-3d内殻光電子エネルギースペクトルの時間変化。近赤外パルスの無照射時(青)と比べて、照射時(赤)の3d内殻ピークが高エネルギー側へシフトしている。(b) 本実験における半絶縁GaAsのバンド模式図。近赤外光照射により励起された電子・正孔は、表面から内部へと拡散するが、拡散係数が相対的に大きい電子が正孔より速く拡散するため(光デンプー効果)、電子と正孔が空間分離する。その結果生じる電場が表面ポテンシャルを変化させる。

のシフトとして直接計測できる。半導体における表面・界面近傍のポテンシャルによるキャリア輸送ダイナミクスは、光検出や光起電力(太陽電池)などを支配する光電変換機能のスピードや効率を決める重要なパラメータであり本計測手法はその計測に極めて有望である。

図7(a)は、本装置で計測した半絶縁GaAs(001)のGa-3d内殻光電子ピークに対応する光電子スペクトルである。100 fsの近赤外パルス光照射から1~2 psの間に、Ga-3dピークが高い束縛エネルギーへシフトしていることがわかる。これは生成した電子-正孔対が、拡散係数の大きな違いによって空間分離し、その結果新たに生じる電場が表面ポテンシャルを変化させることに対応する(図7(b))。このよ

うな現象は光デンプー効果として知られており、ピークシフトが起こる時間スケールは拡散による表面キャリア輸送に要する時間と考えられる。本研究は、光デンプー効果によるキャリア輸送ダイナミクスを時間領域で初めて計測した例である。以上のように、高次高調波を用いた光電子分光法は、フェムト秒時間分解能で電子状態を直接的に計測できる。本手法と単一アト秒パルスを組み合わせると、アト秒時間分解計測へと拡張することにより、固体電子系におけるアト秒ダイナミクス計測に利用することが可能である。

## 5. おわりに

ここで紹介した、アト秒パルス発生技術や光周波数コム技術といった光源技術は、アト秒光物性研究へと展開することによって、将来的には、ペタヘルツ周波数の電場を自在に操り、電場によって引き起こされる電子系応答を巧みに利用した「ペタヘルツエンジニアリング」分野を切り拓いていこう。現在のところ、筆者の研究チームは、5名の専任の研究員と4名の学生からなるこじんまりとしたものであるが、企業における基礎研究を担う研究チームとして、最先端の基礎的な光物理を、革新的な光技術へと発展させるべく日々研究を進めている。本稿により、我々とともに「超高速光物理」研究に参加したいなどの興味を持って頂ければ、筆者の望外の喜びである。

本稿で紹介した研究とともに推進しているNTT物性科学基礎研究所「超高速光物理」研究チームの増子拓紀博士、石澤淳博士、加藤景子博士、日達研一博士および実習生の角井貴信氏(横浜国立大学)、山口量彦氏(東京理科大学)に感謝する。また、4節で紹介した単一アト秒光物性に関する研究は東京理科大学須田亮教授との共同研究であり、ここに感謝を表したい。

## 参考文献

- 1) NTT物性科学基礎研究所のホームページ <http://www.brl.nittc.co.jp/J/>
- 2) T. Udem, R. Holzwarth and T. W. Hänsch: Nature **416** (2002) 233.
- 3) P. B. Corkum and F. Krausz: Nat. Phys. **3** (2007) 381.
- 4) D. J. Jones, et al.: Science **288** (2000) 635.
- 5) A. Ishizawa, et al.: Electron. Lett. **46** (2010) 1343.
- 6) A. Ishizawa, et al.: Opt. Express **21** (2013) 29186.
- 7) K. Kato, et al.: Appl. Phys. Lett. **97** (2010) 121910.
- 8) K. Kato, et al.: J. Appl. Phys. **111** (2012) 113520.
- 9) M. Chini, K. Zhao and Z. Chang: Nat. Photon. **8** (2014) 178.
- 10) H. Mashiko, et al.: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 103906.
- 11) H. Nakano, K. Oguri and A. Ishizawa: The 22nd Annual Meeting of the IEEE Photonics Society, MN3 (2009).
- 12) H. Mashiko, K. Oguri and T. Sogawa: Appl. Phys. Lett. **102** (2013) 171111.
- 13) K. Oguri, T. Nishikawa, T. Ozaki and H. Nakano: Opt. Lett. **29** (2004) 1279.
- 14) H. Mashiko, et al.: Nat. Commun. **5** (2014) 5599.
- 15) K. Oguri, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **51** (2012) 072401.
- 16) K. Oguri, et al.: Appl. Phys. Express **8** (2015) 022401.

(2015年1月9日原稿受付)