高強度フェムト秒フーリエ合成パルスによる固体中のイオンの並進運動制御の実証

東京農工大学　大学院工学研究院
教授　宮地　悟代
（2022 年度 一般研究開発助成 AF-2022214-B3）

キーワード：フェムト秒レーザー，フーリエ合成パルス，イオン，並進運動

１．研究の背景

１・１　レーザー電場による電子の運動制御

近年、レーザー科学および超高速光科学の発展により、光と物質との相互作用を極めて短い時間スケールで観測・制御する研究が急速に進展している。特に、フェムト秒あるいはアト秒といった超短パルスレーザーの登場によって、従来は平均化されて観測できなかった電子の運動そのものを直接観測・制御することが可能となった。電子は原子・分子・固体を構成する最も基本的な粒子の一つであり、その運動は化学反応、電気伝導、磁性、光吸収など、多くの物性現象の根源となっている。そのため、電子の運動を光によって自在に制御することは、物質の性質そのものを超高速かつ局所的に操作することにつながる。このような研究分野は近年、コヒーレント制御(coherent control)、あるいは、光波エレクトロニクス(lightwave electronics)として大きな注目を集めている [1]。

従来の電子デバイスでは、電圧や磁場を利用して電子の流れ、すなわち「電流」を制御してきた。トランジスタや集積回路はその代表例であり、情報通信技術の発展を支えている。しかし、半導体技術の中で微細化と高速化が進むにつれ、電子デバイスの動作速度は既に GHz から THz 領域へ到達しつつあり、さらなる高速化には物理的限界が見え始めている。例えば、電子移動に伴う RC 遅延やジュール加熱は、回路の高速動作において深刻な問題となっている。また、デバイスサイズがナノメートル領域へ縮小すると、量子トンネル効果や熱雑音などが無視できなくなり、従来型の電子回路の延長では限界があると考えられている。

これに対し、レーザー光の電場そのものを利用して電子を直接駆動することができれば、光の周波数である数百 THz 領域で電子デバイスを動作させる可能性が生まれる。例えば、可視光の光周期はおよそ 2〜3 fs 程度であり、これは現在の電子回路よりも数千倍高速である。そのため、レーザー電場によって電子の並進運動を制御する技術は、究極的にはペタヘルツ動作電子デバイスへの道を開く可能性がある。このような背景から、レーザー光による電子運動制御は、超高速科学のみならず、次世代情報技術の基盤としても期待されている。

レーザー光は、他の外場にはない特徴を持っている。第一に、高い時間的・空間的コヒーレンスを有しているため、電場振幅、位相、偏光状態を極めて精密に制御できる。第二に、空間的に強く集光できるため、ナノメートル〜マイ

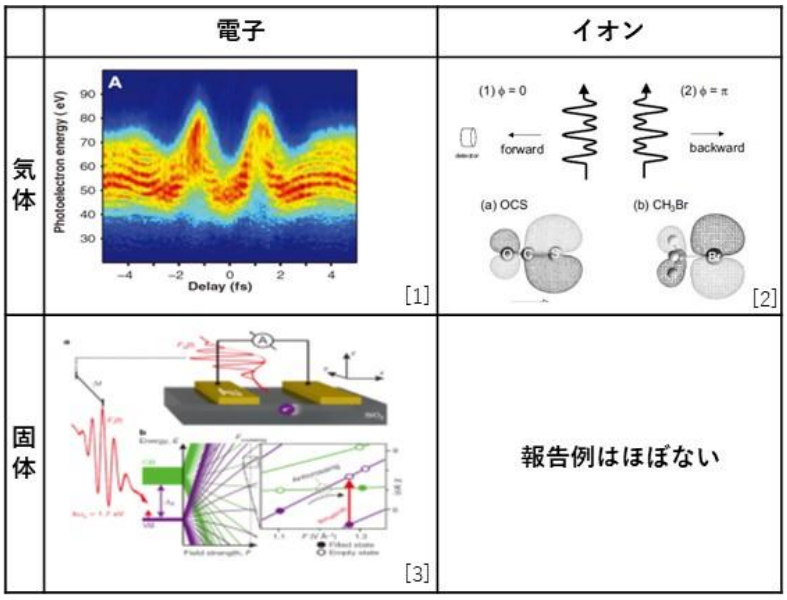


図 1.　レーザー電場により並進運動を制御された電子とイオン。

クロメートルスケールで局所的なエネルギー付与が可能である。第三に、非接触で物質と相互作用できるため、電極や配線を必要としない。このような特性から、レーザー光は電子や原子、分子の運動制御に極めて適したツールである。

初期の研究では、主にレーザー強度を利用した非線形光学現象が研究されていた。高強度レーザーを原子や分子へ照射すると、多光子吸収やトンネルイオン化が生じることが知られている。Keldysh は 1965 年に、強電場下でのイオン化現象を理論的に説明し、現在「Keldysh 理論」として知られる基礎理論を提案した[2)]。その後、超短パルスレーザー技術の進展により、これらの非線形現象を実験的に詳細観測することが可能となった。

1980 年代後半から 1990 年代にかけて、フェムト秒レーザーを用いた化学反応制御研究が急速に発展した。特に、A. H. Zewail はフェムト秒レーザーによって分子振動や化学反応過程をリアルタイム観測する「フェムト化学」を確立し、1999 年にノーベル化学賞を受賞している[3)]。この研究は、レーザーによって原子・分子運動そのものを観測・制御できることを示した重要な成果として広く知られている。

さらに 1990 年代以降、レーザーの「位相」そのものを制御する研究が始まった。従来のレーザー制御では主に強度や波長が利用されていたが、パルスのスペクトル位相を操作することで、時間波形そのものを自在に変形できることが分かってきた。特に、Weiner らによるパルス整形技術の発展は、超短パルスレーザー制御に革命をもたらした[4)]。この技術により、フェムト秒パルスの時間波形を精密に設計することが可能となり、コヒーレント制御研究が急速に発展した。

コヒーレント制御の代表的研究として、位相制御レーザーによる電子放出の方向制御がある。例えば、基本波と第 2 高調波を重ね合わせた二色レーザー場を用いることで、時間的に非対称な電場波形を形成できる。この非対称波形によって、電子に一方向性を持った加速を与えることができる。Paulus らは、二色フェムト秒レーザー場によって原子から放出される電子の運動方向が制御できることを報告している[5)]。また、Kling らは、分子解離においてレーザー波形制御によってイオン放出方向を選択的に制御できることを示した[6)]。

これらの研究では、レーザー電場のキャリアエンベロープ位相(carrier envelope phase, CEP)が重要な役割を果たしている。CEP とは、超短パルスの包絡線と光波そのものの位相関係を表す量であり、数サイクルパルスでは電子の並進運動に大きな影響を与える。Baltuška らは CEP 安定化技術を開発し、光波形そのものを安定的に制御できることを示した[7)]。この技術によって、光電場科学は急速に発展した。

2001 年には、Hentschel らによってアト秒パルス発生が実現された[8)]。これにより、電子運動をアト秒時間スケールで観測することが可能となり、超高速電子ダイナミクス研究は新たな段階へ入った。その後、Krausz と Ivanov は、アト秒科学全体を体系化し、電子運動制御の将来性を論じている[9)]。

これらの研究は当初、主に気体原子・分子を対象としていた。しかし近年では、同様の概念を固体へ応用する研究が活発化している。固体中では電子が周期ポテンシャル中を運動しており、そのダイナミクスはバンド構造に支配される。そのため、レーザー電場による電子制御は、気体とは異なる新しい物理を生み出す。

例えば、Goulielmakis らは、アト秒分解能で固体中電子運動を観測することに成功している[10)]。また、Schiffrin らは、強電場レーザーによって絶縁体中に超高速電流を誘起できることを報告した[11)]。この研究では、レーザー光の電場波形によって電流方向が制御されており、光波エレクトロニクスの代表的成果として知られている。

さらに、Luu らは、固体高次高調波発生(solid-state high harmonic generation)を観測し、固体中電子波束運動が高次非線形光学現象を引き起こすことを示した[12)]。これらの研究は、レーザー電場によって固体中電子運動を直接制御できることを示している。

1・2　レーザー電場によるイオンの運動制御

これまでの研究の大部分は「電子」の運動制御に関するものであり、「原子」や「イオン」の並進運動制御に関する研究は極めて少ない。電子は質量が小さく、レーザー電場によって容易に加速される。一方で、原子やイオンは電子より数千倍以上重く、さらに固体中では周囲の原子との結合によって拘束されている。そのため、レーザー光によって固体中のイオンを直接駆動することは困難であると考えられてきた。

固体中のイオン移動は、多くの機能性材料において極めて重要な役割を果たしている。例えば、リチウムイオン電池では Li イオン移動が充放電特性を支配している。固体酸化物燃料電池では酸素イオン伝導が重要であり、抵抗変化型メモリでは酸素空孔や金属イオン移動によって抵抗状態が変化する。また、ガラス材料においても、Na イオンなどのアルカリイオン移動は電気特性や化学特性に大きな影響を与える。

特に、ガラス中 Na イオン移動を利用した代表的技術として陽極接合が知られている。陽極接合は 1960 年代から研究されており、Wallis と Pomerantz によってシリコンとガラスの接合技術として報告された[13)]。この技術では、Na を含むガラスとシリコンを高温下で接触させ、数百 V の電圧を印加することで Na イオンを移動させ、界面近傍に空間電荷層を形成する。その結果、界面で酸化膜形成が進行し、強固な接合が実現する。

陽極接合は現在、MEMS、圧力センサ、マイクロ流体デバイスなどの製造に広く利用されている。しかし、この現象は本質的には固体中イオンの移動現象であり、外部電場による Na イオン輸送を利用している。したがって、もし

レーザー波形によって同様のイオン移動を誘起できれば、光のみで固体内部のイオン輸送や接合を制御できる可能性がある。

さらに、従来の電場印加型のイオン制御には、電極形成やジュール加熱、電極劣化などの問題が存在する。一方、レーザーによる制御では、非接触・局所的・超高速なイオン制御が可能となる可能性がある。また、レーザー波形や偏光状態を制御することで、イオンの移動方向や移動量を空間的・時間的に精密制御できる可能性もある。

近年では、光によるイオンの並進運動制御に関連する研究も徐々に報告され始めている。例えば、強電場 THz パルスによるイオン応答やフォノン励起制御の研究が進められている [14]。また、非線形フォノニクスと呼ばれる分野では、特定格子振動モードを光によって選択的に励起し、物性を制御する研究が行われている [15]。しかし、これらは主に格子振動の制御であり、実際のイオン輸送現象を光波形によって直接制御した例はほとんど存在しない。

２．実験方法

本研究では、このような背景のもと、位相制御したレーザー波形によって固体中の Na イオンの並進運動を直接制御できるかを検証することを目的とした。具体的には、Q スイッチ Nd:YAG レーザーから出力される基本波(1064 nm)と第 2 高調波(532 nm)を重ね合わせ、位相差を制御することで時間的に非対称な電場波形を形成した。このレーザーパルスをフーリエ合成パルスとよぶ。このパルス波形により、Na イオンへ方向性を持った力を与え、従来は直流電場でしか実現できなかったイオン移動を光電場のみで誘起することを目指した。

３．結果と考察

本研究成果報告書の執筆時までに、学会・論文誌等で成果報告を行っていないため、概要のみを報告する。これまで、陽極接合用のガラスをアルミ板と接触させ、フルーエンスを制御したフーリエ合成パルスをアルミとガラスの界面に照射した。レーザーのフルーエンスと位相条件を変えて照射したところ、この界面が接合する条件があることを見出した。今後、レーザーの位相を同時に観測し、レーザーの照射条件を最適化することにより、本現象の誘起過程について詳細に調べる。

４．結論

本研究は、単なるレーザー加工研究ではなく、光波形による固体中原子の並進運動制御という新しい概念の実証を目的とした。もしこの現象が実証されれば、電子制御に留まらず、イオンや原子レベルで物質を直接制御する新しい超高速材料科学の基盤技術となる可能性がある。また、将来的には光駆動型イオンデバイス、超高速材料改質、ナノスケール化学反応制御、さらには光による局所的材料接合技術などへの応用が期待される。

このように、本研究は超高速光科学、固体物理学、材料工学、非線形光学、イオン輸送科学を横断する学際的研究であり、レーザーによる物質制御の新たな可能性を切り拓く基礎研究として極めて重要な意義を有している。

謝　辞

本研究を遂行するにあたりご支援いただきました公益財団法人天田財団に心より感謝申し上げます。

参考文献

1) M. Borsch, M. Meierhofer, R. Huber, and M. Kira, Nature Rev. Mat., 8, 668 (2023).
2) L. V. Keldysh, Sov. Phys. J. Exp. Theor. Phys., 20, 1307 (1965).
3) A. H. Zewail, J. Phys. Chem. A, 104, 5660 (2000).
4) A. M. Weiner, Rev. Sci. Instrum., 71, 1929 (2000).
5) G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, and S. De Silvestri, Nature, 414, 182 (2001).
6) M. F. Kling, Ch. Siedschlag, A. J. Verhoef, J. I. Khan, M. Schultze, Th. Uphues, Y. Ni, M. Uiberacker, M. Drescher, F. Krausz, and M. J. J. Vrakking, Science, 312, 246 (2006).
7) A. Baltuska, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, and F. Krausz, Nature, 421, 611 (2003).
8) M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, Nature, 414, 509 (2001).
9) F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys., 81, 163 (2009).
10) E. Goulielmakis, Z.-H. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. S Yakovlev, S. Zherebtsov, T. Pfeifer, A. M Azzeer, M. F. Kling, S. R. Leone, and F. Krausz, Nature, 466, 739 (2010).
11) A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov, D. Gerster, S. Mühlbrandt, M. Korbman, J. Reichert, M. Schultze, S. Holzner, J. V. Barth, R. Kienberger, R. Ernstorfer, V. S. Yakovlev, M. I. Stockman, and F. Krausz, Nature, 493, 70 (2013).
12) T. T. Luu, M. Garg, S. Yu Kruchinin, A. Moulet, M. Th. Hassan, and E. Goulielmakis, Nature, 521, 498 (2015).
13) G. Wallis and D. I. Pomerantz, J. Appl. Phys., 40, 3946 (1969).
14) R. Mankowsky, A. Subedi, M. Först, S. O. Mariager, M. Chollet, H. T. Lemke, J. S. Robinson, J. M. Glownia, M. P. Minitti, A. Frano, M. Fechner, N. A. Spaldin, T. Loew, B. Keimer, A. Georges, and A. Cavalleri, Nature, 516, 71 (2014).
15) A. Subedi, A. Cavalleri, and A. Georges, Phys. Rev. B, 89, 220301 (2014).