

放射光によるコヒーレント制御



彦坂 泰正*1
Hikosaka Yasumasa



金安 達夫*2
Kaneyasu Tatsuo



加藤 政博*3,4
Katoh Masahiro

1 はじめに

光は波の性質を持っており、干渉により強め合ったり弱め合ったりする。この干渉を日常生活でも目にすることがある。日なたでシャボン玉の膜に見える虹色は、膜の表と裏で反射する光の干渉の結果である。光と物質の相互作用を通して、そのような光の波の振幅や位相を転写して物質内に量子的な“波”を作ることができる。2つのパルス状の光を使うことでさざ波を2つ物質内に作ってやれば、それらの量子的な波も干渉を起こす。この物質内の波の干渉を上手くデザインすることで、その物質の状態や反応を制御することができる。このような光による物質の状態や反応の能動的な制御は、コヒーレント制御と呼ばれている。もちろん、位相が乱雑な普通の光では、それを転写して形成する物質内の波の干渉をコントロールできない。そのため、位相の揃った光（コヒーレントな光）であるレーザー光がコヒーレント制御に用いられる。

このコヒーレント制御は1980年代後半に光化学反応の制御手法として提唱され¹⁾、原子の励起確率²⁾や光電子放出角度分布³⁾の制御、分子における解離反応⁴⁾の制御等が実現されてきた。現在では、その操作技術は高度化すると共に、対象も気相の原子・分子から液体や固体へと拡大してきている⁵⁾。ここでは、当初からの光反応制御の関心に加え、光物性や量子情報分野の基盤技術への応用が注目を集めて

いる。

コヒーレント制御の研究は、高度なレーザー操作技術の開発が進んでいる可視光やそれよりも長波長域で主に進められてきたが、その短波長化は最近の大きなトレンドである。短波長化によって、より高いエネルギーのプロセスを制御対象とすることができる。それと同時に、光の波の周期が短くなることから、より短い時間スケールの現象に焦点を当てられるようになる。レーザー高次高調波や自由電子レーザーの開発によって、極端紫外域でのコヒーレント制御も報告され始めている^{6,7)}。しかしながら、そのような実験には極めて先鋭的なレーザー技術が必要であり、その汎用化や更なる短波長化には大きな技術革新が必要である。

最近、筆者らは電子加速器によって作られる放射光を用いることでもコヒーレント制御が可能であることを実証した^{8,9)}。放射光はX線までもの幅広い波長域をカバーしており、そのような短波長領域でのコヒーレント制御も視野に入れることができる。つまり、放射光によるスキームは、レーザー利用とは異なる方向から、コヒーレント制御の短波長化・高時間分解能化の突破口を切り開くことができる。本稿では、筆者らがヘリウム原子の極紫外励起に対して行った放射光によるコヒーレント制御の実証実験について解説し、放射光によるコヒーレント制御の展望について述べる。



図 1(a) 10 周期磁場のアンジュレータを 2 つ直列に並べたタンデム型アンジュレータの概念図

アンジュレータ間にはウィグラーと呼ばれる電磁石が設置してあり、その磁場設定によって 2 つのアンジュレータ間の高エネルギー電子の回り道の長さを変えることができる

(b) タンデム型アンジュレータを通過する高エネルギー電子が放射する極紫外の放射波束ペア

2 放射光

放射光とは、ほぼ光の速さにまで加速された電子が磁場によって進行方向を変えられるときに放出する光である。国内でも理化学研究所の SPring-8 や高エネルギー加速器研究機構の Photon Factory をはじめ、いくつかの放射光施設が稼働している。放射光は赤外線から X 線までの波長域で明るく指向性が良いという優れた特性をもった光であり、物質科学や生命科学をはじめとした基礎科学研究や様々な産業技術開発において汎用的な光源として幅広く利用されている。

放射光の時間構造は、それを放射する高エネルギー電子の磁場中での運動を正確に反映する。周期的に極性が変化する磁場を形成するアンジュレータという放射光の光源装置がある。筆者らの実験で用いた 10 周期磁場のアンジュレータを 2 つ直列に並べたタンデム型アンジュレータの放射を見てみる。高エネルギー電子は、各アンジュレータ中で磁場の周期数分だけ振動して進行する (図 1a)。そのような電子の運動により、水平方向に 10 回振動する波束が 2 つ連なった波束ペアが放射される (図 1b)。アンジュレータ間にはウィグラーと呼ばれる電磁石が設置してあり、その磁場設定によって 2 つのアンジュレータ間の電子の回り道の長さを変えることができる。これにより、2 つの放射波束間の時間差を变化させることができる。筆者らの実験では、その時間差の調整を 10 アト秒の精度で行うことができる (アト秒 = 10^{-18} s)。この放射波束ペアを利用することによって、これまでレーザーでしか行うことができないと考えられてきたコヒーレント制御を放射光で実現することに成功した^{8,9)}。

3 ヘリウム原子のコヒーレント制御

放射光によるコヒーレント制御の実証実験は、分子科学研究所の放射光施設 UVSOR で行った。様々な物質のプロトタイプと言えるヘリウム原子を対象として、タンデム型アンジュレータからの中心波長 52 nm の極端紫外域の放射光を照射した。そのアンジュレータ放射のバンド幅は中心波長の 10% 程度である。そのため、ヘリウム原子の主量子数が 3 以上の多数の励起状態への遷移が一度に起こり、それらの励起状態の重ね合わせでさざ波である電子波束が作られる。続けてやってくる 2 つの放射波束が相互作用するのでヘリウム原子には 2 つの電子波束が形成されるが、放射波束間の時間差を变化することでそれらの電子波束の干渉の様子が变化することになる。

図 2 は、2 つの放射波束間の時間差を少しずつ変えながら、ヘリウム原子の励起状態の失活で放射される可視域の蛍光強度を測定したものである⁸⁾。蛍光強度には 170 アト秒程度の周期構造が見られ、その振幅が放射波束間の時間差と共にゆっくり変調する様子が観測された。170 アト秒程度の速い振動は、複数の励起状態の遷移周波数の中心値に相当する。その振幅の変調は、電子波束を古典的な軌道運動になぞらえた解釈により直感的に理解できる。最初の放射波束との相互作用で原子内に 1 つ目の電子波束が形成され、それはヘリウム原子核を原点とした極座標の動径方向に振動運動を始める。この電子波束が初期位置に戻ってきたタイミングで 2 つ目の電子波束を重ねると、2 つの電子波束は大きく重なり、振幅の変化が顕著となる。これが遅延時間 0 又は 4,000 アト秒付近である。一方、1 つ目の電子波

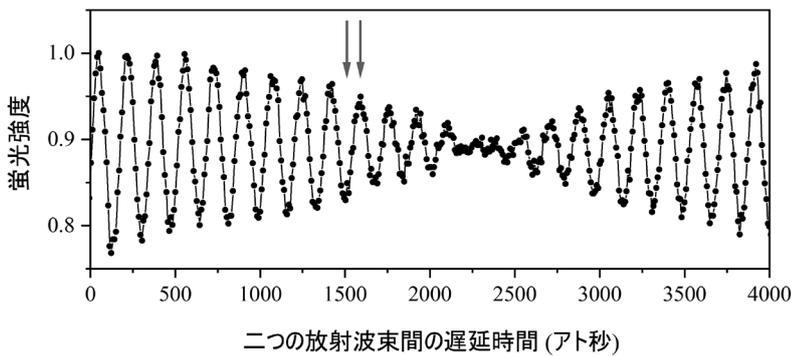


図2 2つの放射波束の間の遅延時間を変えながら計測したヘリウム励起状態からの蛍光強度

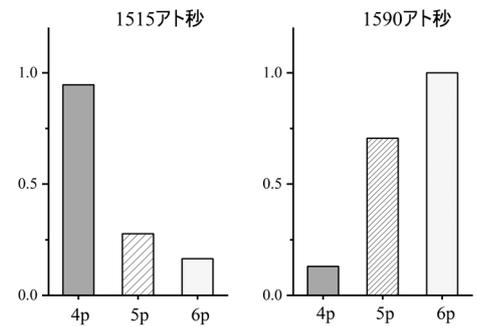


図3 2つの遅延時間(図2に矢印で示した遅延時間)での主要な3つの励起状態の寄与

束が遠くにあるタイミングで2つ目の電子波束を形成して重ねたところで、振幅の変化は大きくはならない(遅延時間2,000アト秒付近)。つまり、放射波束ペアを用いてヘリウム原子に2つの電子波束を生成でき、それらの電子波束が起こす干渉を捉えることができている。

放射波束との相互作用で生成している各励起状態は、異なる波長の蛍光を放出している。そのため、蛍光の波長選別によってそれらの状態の生成量を知ることができる。図2に矢印で示した2つ遅延時間における主要な励起状態の生成量を図3に示した。1,515アト秒の遅延時間では3つの励起状態のうち4p状態が多く生成しているが、1,590アト秒の遅延時間では逆に4p励起状態の生成は抑制されている。このように、放射波束ペアの遅延時間を設定することで、特定の励起状態の生成量を電子波束の干渉によって増加させたり抑制したりすることができる。

4 今後の展望

本稿では、タンデム型アンジュレータからの放射波束ペアを用いることでコヒーレント制御が可能であり、極端紫外域の励起状態の生成量をコントロールできることを示した。図2で周期構造がコントラスト良く観測されていることから分かるように、このコヒーレント制御では10アト秒の時間分解能を達成できている。この時間分解能は、最先端のレーザーで実現されているコヒーレント制御の最高分解能と同等のものである。本稿の実験では直線偏光の放射波束ペアを用いたが、アンジュレータの設定により容易に別の偏光状態の放射波束ペアも作るこ

ができる。筆者らは、左回りと右回りの円偏光からなる放射波束ペアを用いることによって、ヘリウム原子の励起状態の空間的な配向を制御できることも示している⁹⁾。

この放射光によるコヒーレント制御というスキームにより、X線までの広い波長範囲においてコヒーレント制御を実現できる。X線領域のコヒーレント制御では、X線の物質に対する高い透過力を活かして、気体試料や物質表面にとどまらず、液体や固体内部、更には大気圧下の反応等といった多様な環境下に置かれた様々な物質を対象を拡張できる。ここでは、反応制御だけでなく光物性のプローブとしても、コヒーレント制御を利用することができるものとする。また、X線によるコヒーレント制御では、特定の原子に局在する内殻電子を制御できるため、元素・サイト選択性を導入できる。例えば、分子内の特定のサイトにある原子の内殻電子を操作することにより、そのサイトを選択して解離反応を引き起こせる。このサイト選択的解離をプローブとして、ナノスケールデバイスの細部の構造分析を行えるかもしれない。

典型的な放射光のパルス幅は100ピコ秒程度であり(ピコ秒=10⁻¹²s)、これよりも高速の現象を放射光による実時間観測で追跡できるとはこれまでは考えられてはこなかった。ところが、筆者らの放射光によるコヒーレント制御では、10アト秒の時間分解能でフェムト秒スケールの電子波束の運動を捉えることができている(フェムト秒=10⁻¹⁵s)。更に、今回の10周期よりもっと少数の周期の放射波束を使えば、より短い時間スケールの現象を追跡できる。レーザー光についての少数周期の技術開発も進

んでいるが、極紫外よりも短波長域ではまだ十分な技術が確立しているとは言えない。一方、アンジュレータで作り出す放射波束の周期数は単純にアンジュレータ磁場の周期数で決まるため、単一周期の放射も原理的な困難はない。例えば、近年各国で建設が相次いでいる新第三世代と呼ばれる中型放射光加速器に本研究で用いたようなタンデム型アンジュレータを導入すれば、1アト秒を切る単一周期のX線放射波束ペアを発生させることができる。それを利用すれば、光電離過程やオージェ崩壊といった電子遷移での電子の動きを実時間で捉えることができるようになるかもしれない。放射波束ペアによるコヒーレント制御という新たな実験手法は、放射光科学に新展開をもたらす可能性がある。

本稿で紹介した放射光でのコヒーレント制御実験は、岩山洋士助教（分子科学研究所）、藤本将輝助教（分子科学研究所）との共同研究です。本研究は科学研究費補助金（17H01075, 18K03489, 18K11945）と自然科学研究機構新分野創生センター先端光科学研究分野プロジェクト（01211906）の支援を受けて

行われました。実験を行った UVSOR のビームライン BL1U は、文部科学省量子ビーム基盤技術開発プログラムの補助を得て建設されたものです。

参考文献

- 1) M.Shapiro and P.Brumer, *Chem. Phys. Lett.*, **126**, 541-546 (1986)
- 2) Ce Chen, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 507-510 (1990)
- 3) Yi-Yian Yen, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2353-2356 (1992)
- 4) L. Zhu, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 4108-4111 (1997)
- 5) K. Ohmori, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **60**, 487-511 (2009)
- 6) K. C. Prince, *et al.*, *Nat. Photonics.*, **10**, 176-179 (2016)
- 7) Y. Nabekawa, *et al.*, *Nat. Commun.*, **7**, 12835 (2016) (11pages).
- 8) Y. Hikosaka, *et al.*, *Nat. Commun.*, **10**, 4988 (2019)
- 9) T. Kaneyasu, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **123**, 233401 (2019)

(*1 富山大学 教養教育院, *2 佐賀県立九州シンクロトロン光研究センター, *3 広島大学 放射光科学研究センター, *4 分子科学研究所 極端紫外光研究施設)