

令和 4 年 9 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02637

研究課題名(和文) ペタヘルツ電子振動応答を用いた光物性起源の解明とアト秒時間制御

研究課題名(英文) Study of optical properties with attosecond pulse controlled Petahertz electron response

研究代表者

増子 拓紀(Hiroki, Mashiko)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・准教授

研究者番号：60649664

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、真空紫外領域にて発生する100京分の1秒のパルス幅を持つアト秒パルス光を用いて、ペタヘルツ(1000兆ヘルツ)超高周波数領域の電子物性を観測することを目的としている。本研究では、物質の複素応答(実数と虚数)の同時計測を可能とするため、世界最短級の2つのアト秒パルスを用いた超広帯域のスペクトル位相干渉光学系を構築した。また、超高速の運動過程を持つ原子系の内殻電子に対する過渡屈折分光(過渡位相分光)に成功した。本成果は、超高速領域における電子の波動性(波束・双極子位相・複素誘電率など)を調査する上で極めて重要であり、新たな電子のコヒーレントな波動制御を創生する可能性がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

極端紫外(XUV)の単一アト秒パルス(IAP: isolated attosecond pulse)光源は、100京分の1秒という極限的な時間分解能を有した光源であり、超高速で運動する電子の直接的な時間観測を可能とする。電子に対する複素応答(実数と虚数)の同時計測を実現するためには、広帯域かつ連続スペクトルを持つIAPの位相情報を加えた分光計測が望ましい。本研究では、世界最短級の2つのIAP(ダブルアト秒パルス)を用いて、超高速の運動過程を持つ内殻電子に対する過渡屈折分光を実現した。本成果は、物質中の電子の波動性(波束・双極子位相・複素誘電率など)を調査する上で重要な知見と成り得る。

研究成果の概要(英文)：An isolated attosecond pulse in extreme ultraviolet and soft x-ray region provides extreme high temporal resolution, which archives to petahertz frequency domain. Performing full characterization of the dynamical wave function of core-electron is an important for further understanding physical properties of material. Here we characterized complex dynamics in argon atomic core-electron by transient refraction spectroscopy with double attosecond pulses (DAPs). By obtaining the relative intensity and phase from transient refraction trace based on the spectral phase interferogram constructed by DAPs, the complex dynamics of core-electrons was fully characterized. The revealed core-electron complex dynamics will contribute for further exploring physical property in various materials, and it will lead to the coherent control technology in the extreme ultraviolet region.

研究分野：アト秒科学、高強度物理、超高速物理、超高速光学

キーワード：アト秒科学 アト秒パルス 超高速物理 高強度物理 超高速光学 量子エレクトロニクス 原子・分子光学物理 量子光学

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

近年、実現された 100 京分の 1 秒 (10^{-18} 秒: as) のパルス幅を持つアト秒パルス光源は、超高速の運動過程を持つ電子の実時間計測および制御を可能とする。従来、この波長領域では、軌道放射光が光源の主流であり、基礎物理、分析化学、固体物性、産業技術応用に至まで多岐の分野に渡り科学貢献してきた。アト秒パルスは軌道放射光よりもパルス幅が 100 万倍短い利点を持ち、その時間スケールは電子運動の時間観測を可能とし、次世代の光源として注目されている[1]。

一方で、アト秒レベルの高い時間分解能が実現したことにより、物質中で生じるペタヘルツ (10^{15} Hz : PHz) 級の電子振動 (双極子振動) の時間観測が可能となった[2-4]。この電子振動は、同周波数帯域に位置する可視・紫外領域の光電界が誘起する分極応答 (誘電分極) に起因しており、吸収・反射・屈折・発光・電流等の様々な光物性現象を生み出している。図 1 は、電子振動の周波数と時間周期に対する誘電率の定性的な応答特性を示す。この電子振動は、発光ダイオードや太陽電池、光合成等を通して我々の生活にも欠かせない物理応答である。このような可視・紫外領域に相当するペタヘルツ電子振動を捉えることは、光物質相互作用の根幹を理解することに役立つと同時に、光電界による電子運動の直接的な時間操作が可能となるため、新たな基礎研究領域を創生する可能性がある。

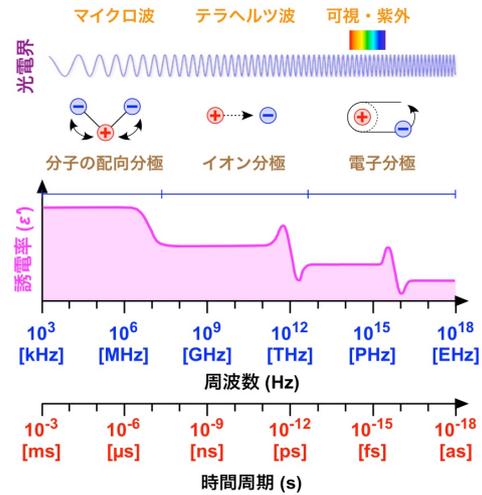


図 1 誘電率の周波数および時間特性。

2. 研究の目的

本研究は、極端紫外領域にて発生する 100 京分の 1 秒のパルス幅を持つアト秒パルス光を用いて、ペタヘルツ(1000 兆ヘルツ)周波数領域の電子物性の解明を目的としている。本研究では、物質の複素応答 (実数と虚数) の同時計測を可能とするため、世界最短級の 2 つのアト秒パルスを用いた超広帯域のスペクトル位相干渉光学系を構築し、超高速の運動過程を持つ原子系の内殻電子に対する過渡屈折分光 (過渡位相分光) を行う。本研究は、超高速領域における電子の波動性 (波束・双極子位相・複素誘電率など) を調査する上で極めて重要であり、新たな電子のコヒーレント波動制御技術に繋がる可能性がある。

3. 研究の方法

図 2 に実験概要図を示す。本実験では、広帯域連続スペクトルを持つ 2 つの単一化されたアト秒パルス (ダブルアト秒パルス) を用いた干渉光学系に、近赤外フェムト秒パルスを加えることで、アルゴン内殻電子の複素応答の検出を行う。本実験を遂行する上で、重要な技術となるのが高輝度な単一アト秒パルス (IAP: isolated attosecond pulse) の発生法であり、過去に代表研究者が開発した二重光学ゲート (DOG: double optical gating) 法は、極端紫外 (XUV: Extreme ultraviolet) 領域において広帯域かつ連続スペクトルを持つ IAP 発生を可能とする[5]。次に重要となるのが IAP を用いた干渉光学系の構築である。過去に IAP を用いたスペクトル干渉を観測した事例は無いため、本研究計画の序盤では IAP 干渉光学系の開発に従事した。発生した IAP は、高時間分解能 (遅延分解能: 0.6 as) かつ高安定 (遅延揺らぎ: 2.6 as) の空間分割ミラーに入射される。分割されたダブルアト秒パルスは、Mo/Si 多層膜球面ミラーにより集光される。同時に、近赤外 (NIR) フェムト秒パルス (パルス幅: 6 fs) も集光される。この焦点にアルゴン (Ar) ガスを充填したガスセル (相互作用長: 100 μm 、圧力: 100 mbar) を挿入し、Ar 原子の内

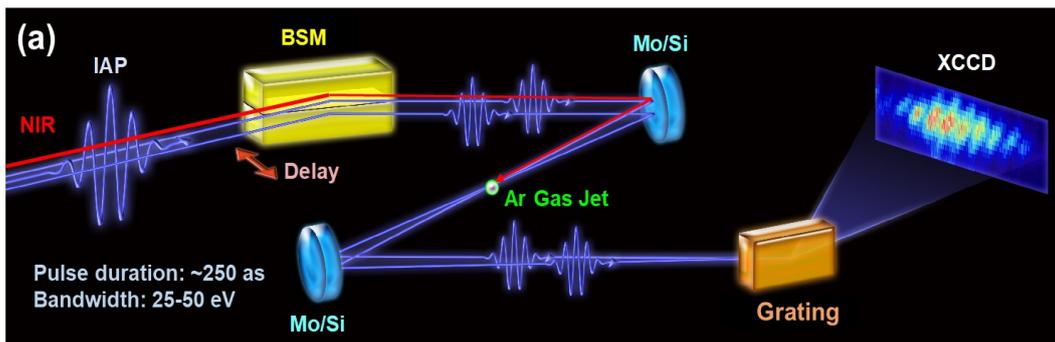


図 1. 極端紫外ダブルアト秒パルスを用いた過渡屈折分光法の実験概要。

殻電子を励起する ($3s-4p, 5p, 6p$ 【各緩和時間 : 8 fs、23 fs、50 fs】)。サンプルを透過したダブルアト秒パルスは極端紫外分光器に送られ、過渡屈折分光波形が検出される。

4. 研究成果

初めに、IAP を用いたスペクトル干渉画像を計測すること事態、過去に観測した事例が無いため、本研究計画の序盤において計測を試みた。図 3 に、計測された空間-スペクトル干渉画像を表す。遅延時間の正負において逆方向に傾きの異なる干渉画像が観測されているが、これは空間的に二分割された IAP が焦点において互いに逆方向の傾きを持つ波面を有するために生じる。この結果におけるコントラスト比は、最大 70%程度であった。本結果が示す最も重要な点は、広帯域かつ連続スペクトルを持つ IAP が、極めて良好な空間コヒーレンスを持つことである。次に、スペクトル-遅延干渉画像を図 4 (a) に示す。83-138 as 周期振動が連続スペクトル全域において観測されており、IAP が高い時間的コヒーレンスを有していることが分かる。図 4 (b) は (a) を遅延軸方向にフーリエ変換した干渉画像である。この AC 成分 (30-50 eV) から IAP 対の位相情報を抽出することは可能であり、これはダブルアト秒パルスを用いた位相検出が可能であることを示唆している[6]。

この構築した位相干渉光学系に、さらに励起光となる近赤外 (NIR) フェムト秒パルスと組み合わせた 3 つの超短パルス制御を図ることで、超高時間分解能を持つアト秒過渡位相分光の実現が可能となる。図 2 (a) が示すように、ダブルアト秒パルスによりアルゴン原子の内殻電子を励起し ($3s-4p, 5p, 6p$ 【各緩和時間 : 8 fs、23 fs、52 fs】)、さらに近赤外フェムト秒パルス (パルス幅 : 6 fs) により過渡的な屈折変調を誘起する。図 2 (b) に計測された過渡屈折分光像を示す。

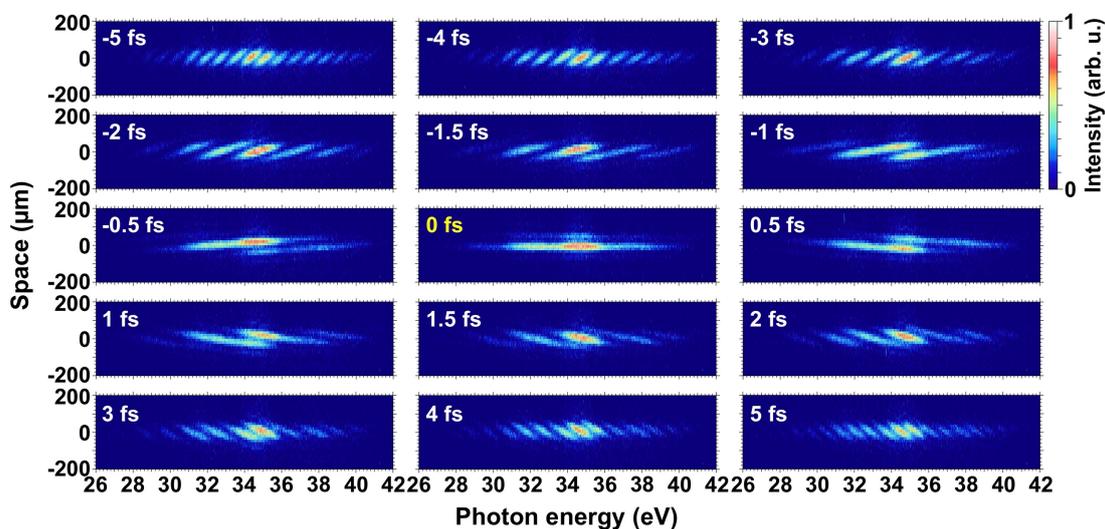


図 3. ダブルアト秒パルスを用いた空間分解スペクトル干渉計測 (スペクトル-遅延干渉像)。

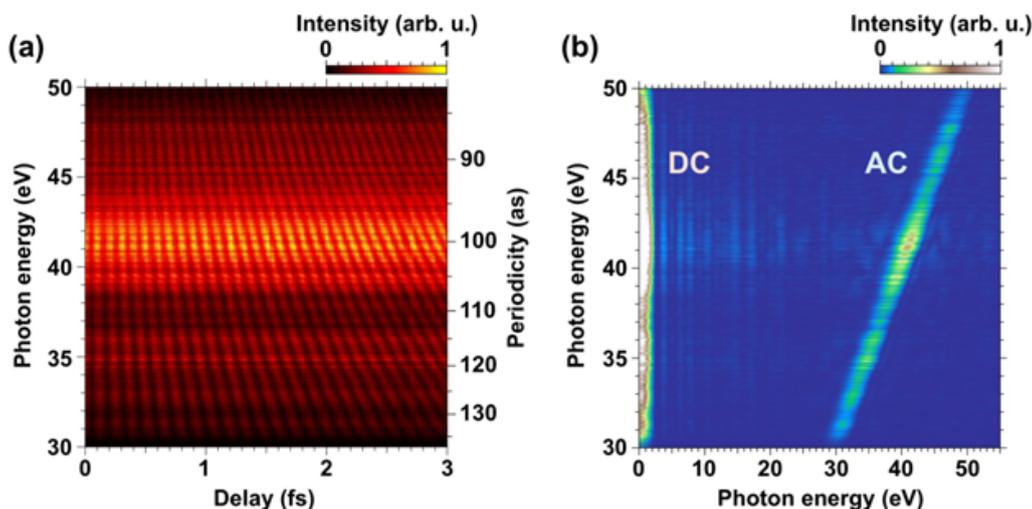


図 4. ダブルアト秒パルスを用いた時間分解スペクトル干渉計測。(a) スペクトル-遅延干渉像 (遅延ステップ : 12 as)、(b) 遅延軸方向に対するフーリエ変換により得られるスペクトル-スペクトル干渉画像。

この時、ダブルアト秒パルス間の遅延時間は 10 fs であり、NIR との第一 IAP 間の遅延を横軸に示している。本手法はスペクトル位相干渉を利用した計測であるため、単純なフーリエ変換により (c) 複素応答 (上図：振幅、下図：位相) を得ることができる。この結果は、内殻励起の過渡屈折 (吸収・分散) を捉えており、新たな内殻電子のコヒーレントな波動制御に役立つと考えられる。そして本手法は、電子の波動性 (波束・双極子位相・複素誘電率など) を調査する上で極めて重要であり、XUV 光学顕微鏡に転用することも可能な技術であるため、アト秒時間で応答する電子動画の撮影向けにも有望な知見となり得る。

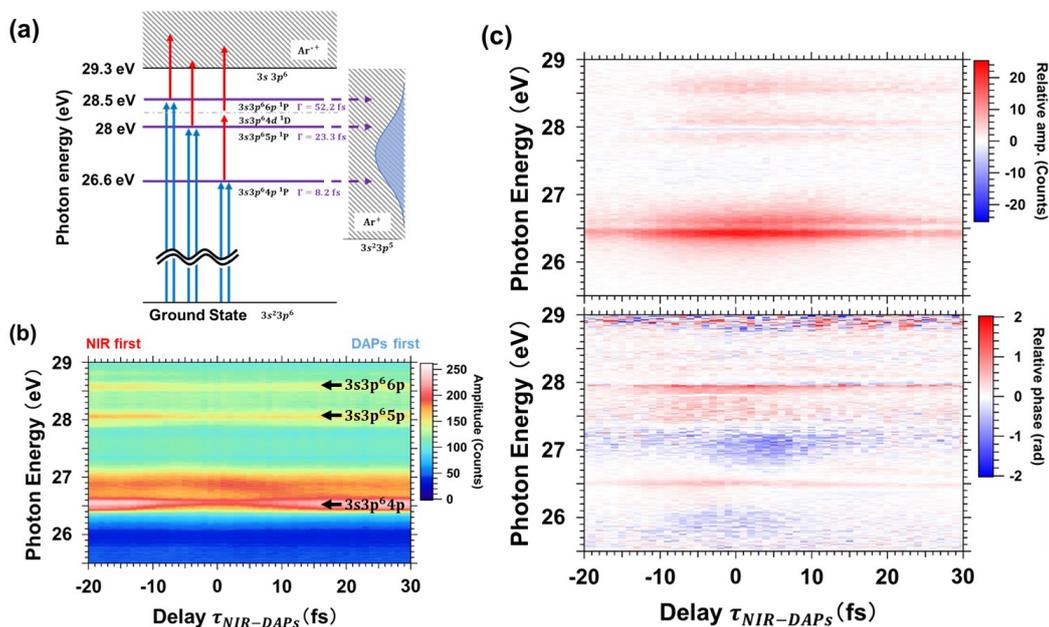


図 2. アルゴン原子系の内殻電子に対する過渡屈折分光計測。(a) エネルギー準位図。(b) 過渡屈折分光像。ダブルアト秒パルス間の遅延は 10 fs である。(c) 複素応答像 (上図：振幅、下図：位相)。

《参考文献》

- [1] F. Krausz et al., *Rev. Mod. Phys.* 81, 163 (2009).
- [2] R. Geneaux et al., *Philos. Trans. R. Soc., A* 377, 20170463 (2019).
- [3] H. Mashiko et al., *Nat. Phys.* 12, 741-745 (2016).
- [4] H. Mashiko et al., *Nat. Commun.* 9, 1468 (2018).
- [5] H. Mashiko et al., *Phys. Rev. Lett.* 100, 103906 (2008).
- [6] H. Mashiko et al., *Opt. Express* 28, 21025-21034 (2020). (Editor's Pick)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Chang Kuang-Yu, Huang Long-Cheng, Asaga Koji, Tsai Ming-Shian, Rego Laura, Huang Pei-Chi, Mashiko Hiroki, Oguri Katsuya, Hernandez-García Carlos, Chen Ming-Chang	4. 巻 8
2. 論文標題 High-order nonlinear dipole response characterized by extreme ultraviolet ellipsometry	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optica	6. 最初と最後の頁 484 ~ 484
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OPTICA.413531	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mashiko Hiroki, Chen Ming-Chang, Asaga Koji, Oshima Akihiro, Katayama Ikufumi, Takeda Jun, Nishikawa Tadashi, Oguri Katsuya	4. 巻 28
2. 論文標題 Spatially resolved spectral phase interferometry with an isolated attosecond pulse	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 21025 ~ 21025
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.393922	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kato Keiko, Mashiko Hiroki, Kunihashi Yoji, Omi Hiroo, Gotoh Hideki, Oguri Katsuya	4. 巻 28
2. 論文標題 Highly sensitive transient reflection measurement in extreme ultraviolet region for tracking carrier and coherent phonon dynamics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 1595 ~ 1595
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.381585	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計23件（うち招待講演 8件/うち国際学会 11件）

1. 発表者名 Hiroki Mashiko, Akihiro Oshima, Ming-Chang Chen, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, and Katsuya Oguri
2. 発表標題 Transient refraction spectroscopy with double attosecond pulses in inner-subshell electron
3. 学会等名 The Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim Conference 2022 (CLEO-PR 2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増子 拓紀、大島 彬広、加藤 景子、片山 郁文、武田 淳、小栗 克弥
2. 発表標題 アト秒干渉光学系を用いた副殻電子の過渡複素応答計測
3. 学会等名 第13回放射光学会若手研究会「先端的レーザー分光測定技術の進化とその応用」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増子 拓紀、加藤 景子、小栗 克弥、大島 彬広、山崎 友奨、Ming-Chang Chen、片山 郁文、武田 淳
2. 発表標題 過渡反射/屈折分光法を用いたアト秒電子物性の解明
3. 学会等名 理研シンポジウム：第8回「光量子工学研究」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増子 拓紀、小栗 克弥、千菅 雄太、片山 郁文、武田 淳、後藤 秀樹
2. 発表標題 固体電子系におけるペタヘルツ超高周波現象の時間応答特性
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小栗 克弥、増子 拓紀、當銘 賢人、加藤 景子、関根 佳明、日比野 浩樹、須田 亮、後藤 秀樹
2. 発表標題 ペタヘルツ波エンジニアリングに向けた固体超高速光物性
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第39回年次大会(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 増子 拓紀、小栗 克弥、浅賀 浩司、西川 正、大島 彬広、片山 郁文、武田 淳、Chen Ming-Chang
2. 発表標題 単一アト秒パルスを用いた超高速位相分光の実現に向けて
3. 学会等名 光・量子デバイス研究会（電気学会主催）（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Katsuya Oguri, Hiroki Mashiko, Keko Kato, and Hideki Gotoh
2. 発表標題 Attosecond electron dynamics in solids - toward petahertz-scale solid state technology
3. 学会等名 International Conference on Ultrafast Optical Science (UltrafastLight-2019)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Katsuya Oguri, Keiko Kato, and Hiroki Mashiko
2. 発表標題 Time-resolved ARPES of sub-10-fs intraband electric redistribution in graphite
3. 学会等名 Optics and Photonics International Congress 2020 (OPIC2020)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大島 彬広、増子 拓紀、片山 郁文、武田 淳、小栗 克弥
2. 発表標題 ダブルアト秒パルスを用いた過渡屈折分光法による内殻複素ダイナミクスの観測
3. 学会等名 応用物理学会フォトンクス分科会主催第6回フォトンクスワークショップ「光が拓く科学技術の未来！！」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大島 彬広、増子 拓紀、片山 郁文、武田 淳、小栗 克弥
2. 発表標題 ダブルアト秒パルスを用いた過渡屈折分光法による内殻励起ダイナミクスの観測
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Bing Xue, Hiroki Mashiko, Katsuya Oguri, Katsumi Midorikawa, and Eiji J. Takahashi
2. 発表標題 GW-scale 216-as soft-x ray isolated attosecond pulse created by a fully stabilized 50-mJ three-channel optical waveform synthesizer
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hiroki Mashiko, Akihiro Oshima, Ming-Chang Chen, Koji Asaga, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, Tadashi Nishikawa, and Katsuya Oguri
2. 発表標題 Supercontinuum spectral phase interferometry with isolated attosecond pulse
3. 学会等名 The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena (UP 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroya Yamaguchi, Keiko Kato, Hiroki Mashiko, Yoshiaki Sekine, Hiroki Hibino, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, and Katsuya Oguri
2. 発表標題 Dynamic electron energy and momentum mapping for ultrafast intervalley relaxation in layered WSe ₂
3. 学会等名 The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena (UP 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kuang-Yu Chang, Long-Cheng Huang, Koji Asaga, Pei-Chi Huang, Ming-Shian Tsai, Laura Rego, Luis Plaja, Hiroki Mashiko, Katsuya Oguri, Carlos Hernandez Garcia, and Ming-Chang Chen
2. 発表標題 High-Harmonic Dipole Response Characterized by Ellipsometry
3. 学会等名 The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena (UP 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大島 彬広、増子 拓紀、Chen Ming-Chang、片山 郁文、武田 淳、小栗 克弥
2. 発表標題 単一アト秒パルスを用いた超広帯域スペクトル位相干渉
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Akihiro Oshima, Hiroki Mashiko, Ming-Chang Chen, Koji Asaga, Tadashi Nishikawa, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, and Katsuya Oguri
2. 発表標題 Extreme ultraviolet interferometry with isolated attosecond pulse
3. 学会等名 The 9th advanced lasers and photon sources (ALPS 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浅賀 浩司、増子 拓紀、Ming-Chang Chen、大島 彬広、片山 郁文、武田 淳、西川 正、小栗 克弥
2. 発表標題 単一アト秒パルスを用いた空間分解スペクトル干渉計測
3. 学会等名 2020年第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 加藤 景子、増子 拓紀、国橋 要司、尾身 博雄、後藤 秀樹
2. 発表標題 極端紫外領域における高感度過渡反射計測法の確立
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口 大也、増子 拓紀、加藤 景子、片山 郁文、武田 淳、小栗 克弥、後藤 秀樹
2. 発表標題 マルチプレート圧縮法におけるスペクトル位相特性の評価
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroki Mashiko, Yuta Chisuga, Koji Asaga, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, Tadashi Nishikawa, Katsuya Oguri, and Hideki Gotoh
2. 発表標題 Attosecond correlation with actively stabilized extreme ultraviolet interferometer
3. 学会等名 The 7th Attosecond Science and Technology Conference (ATT02019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kento Toume, Katsuya Oguri, Hiroki Mashiko, Keiko Kato, Yoshiaki Sekine, Hiroki Hibino, Akira Suda, and Hideki Gotoh
2. 発表標題 Ultrafast redistribution snapshots of nonequilibrium photoexcited carrier in graphite probed by sub-5-fs high-harmonic-based time-resolved ARPES
3. 学会等名 he 7th Attosecond Science and Technology Conference (ATT02019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Koji Asaga, Hiroki Mashiko, Yuta Chisuga, Akihiro Oshima, Tadashi Nishikawa, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, Hideki Gotoh, and Katsuya Oguri
2. 発表標題 Actively stabilized XUV interferometer with attosecond time resolution
3. 学会等名 The International School and Symposium on Nanoscale Transport and phoTonics (ISNTT 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Koji Asaga, Hiroki Mashiko, Yuta Chisuga, Ikufumi Katayama, Jun Takeda, Tadashi Nishikawa, Katsuya Oguri, and Hideki Gotoh
2. 発表標題 Actively stabilized extreme ultraviolet attosecond interferometer
3. 学会等名 The 8th advanced lasers and photon sources (ALPS 8) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>1. 受賞名：第6回フォトニクスワークショップ「光が拓く科学技術の未来！！」優秀発表賞 主催団体名：応用物理学会フォトニクス分科会 受賞年月日：2021年11月6日 受賞者：大島 彬広 受賞業績名：ダブルアト秒パルスを用いた過渡屈折分光法による内殻複素ダイナミクスの観測</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	小栗 克弥 (Katsuya Oguri) (10374068)	日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・フロンティア機能物性研究部・主幹研究員 (92704)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	石澤 淳 (Atsushi Ishizawa) (30393797)	日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・フロンティア機能物性研究部・主任研究員 (92704)	
研究分担者	加藤 景子 (Keiko Kato) (40455267)	名古屋大学・理学研究科・准教授 (13901)	
研究分担者	日達 研一 (Kenichi Hitachi) (60564276)	日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員 (92704)	削除：2019年11月12日

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関