

令和 5 年 5 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05358

研究課題名（和文）運動量イメージング法を用いた軟X線領域でのアト秒ストリーク法の開発

研究課題名（英文）Development of attosecond streak in soft X-ray region using momentum imaging technique

研究代表者

水野 智也（MIZUNO, Tomoya）

東京大学・物性研究所・特任助教

研究者番号：90565227

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：軟X線高調波を用いたアト秒ストリークで問題となっていたフォトンフラックスと電離断面積の小ささを克服するため、捕集効率の大きい光電子分光器である運動量イメージング装置と磁気ボトル型光電子分光器を用いたアト秒ストリーク装置の開発を行った。実際に軟X線領域での電子スペクトル計測に成功した。このことによって、電子分光を用いた高調波発生による軟X線領域のアト秒物理への道が開けた。助成期間中にアト秒ストリークを行うところまで行けなかったが、技術的な問題は既に解決に至ったといえる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

軟X線高調波を用いた光電子分光やアト秒ストリーク計測はそのカウントレートの低さからこれまで困難であった。本課題において高捕集効率の光電子分光器を用いた計測手法を開発し、軟X線高調波を用いた光電子-Auger電子分光に成功した。このことはアト秒時間領域での軟X線電場波形の決定や物質の電子状態のアト秒時間領域での物理やその応用研究に道を開くものである。アト秒時間領域での電子状態や波形計測が実現すれば、既存の技術では不可能は超高速デバイスなどの応用への展開が期待され、非常に意義のある成果である。

研究成果の概要（英文）：We developed two attosecond streak apparatus in soft X-ray region using momentum imaging technique and magnetic bottle type time of flight method. Then, we successfully measured photoelectron and Auger electron from rare gas atoms using the developed apparatus in soft X-ray region. These apparatus enable us to achieve attosecond streak in soft X-ray region.

研究分野：原子分子物理

キーワード：アト秒計測 光電子分光 Auger電子分光

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

赤外光パラメトリックチャープパルス増幅光源(IR-OPCPA)の進展により、軟 X 線領域での孤立アト秒パルス発生が実現され、アト秒時間領域での軟 X 線分光が可能となってきた。しかしながらその軟 X 線アト秒パルスの時間波形計測については、真空紫外領域で既に確立している従来のアト秒ストリーク法を適応しようとする、その電離断面積と軟 X 線自体のフラックスの小ささから測定時間が非常にかかり実質実現が困難な状態であった。

そこで板谷研で新規に開発した高エネルギー光電子用の運動量イメージング分光装置を用いて 4 立体角にわたって一挙に光電子を測定することによって、アト秒軟 X 線パルスの時間波形を測定する実験手法の確立を目指した。また飛行時間型の光電子分光器との比較を行いどの測定手法が最も良く適しているか性能比較を行うことも目的のひとつとして考えていた。

2. 研究の目的

真空紫外領域で確立しているアト秒波形計測技術を軟 X 線領域まで拡大し、それによって軟 X 線領域の新しいアト秒科学を展開することが目標である。特に光電子分光に基礎をおいているアト秒ストリーク法を軟 X 線領域に拡張するには電離断面積とフォトンフラックスが小さいという問題を解消するために、広範囲の放出角度の光電子を一挙に測定する運動量イメージング型の光電子分光器や磁気ボトル型の飛行時間光電子分光器を用いたアト秒ストリーク技術の開発が不可欠である。そこでこれらの装置を用いたアト秒ストリーク法を開発し、軟 X 線アト秒パルスを用いた光電子計測技術とアト秒ストリーク法の確立を目指した。

3. 研究の方法

アト秒ストリーク法とは光電場で光電子の運動量を操作する光電子分光法であり、そこからアト秒パルスの時間波形を決定する手法の事である。その手法を軟 X 線領域まで拡張するため、運動量イメージング装置と磁気ボトル型光電子分光器を用いた光電子分光を高次高調波発生による孤立アト秒軟 X 線パルスで実現し、軟 X 線アト秒ストリーク法の確立を目指した。またどの測定手法が適しているか議論するため装置性能について比較検討を行った。

具体的にはアト秒高調波軟 X 線ビームラインに新規に開発した光電子分光器を接続し、軟 X 線領域での光電子分光を希ガス原子(Ar, Kr, Xe)を標的に測定を行った。また軟 X 線による内殻電離過程にともなう Auger 過程による Auger 電子の観測も行った。また並行して真空紫外領域で確立している強電場近似(SFA)に基礎を置いたアト秒ストリーク計測した光電子スペクトルからのアト秒パルスの波形再構築法の軟 X 線領域への拡張を行った。

4. 研究成果

運動量イメージング法は 4π 立体角にわたって光電子を一挙に測定でき、またその放出角度も決定できるため放出角度の情報が失われる磁気ボトル型の光電子分光器より有効であると研究開始当初考えていた。実際に軟 X 線アト秒ビームラインに開発した光電子分光器を接続し実際に光電子分光を行うと運動量イメージング法では電場によって光電子を検出器に引き出していることから迷光によって発生した二次電子によるバックグラウンドが大きいことが判明した。また当初から予見されていたことではあるが、運動量イメージング法では電子をフォスファースクリーン付き MCP 検出器で検出し、その蛍光を CCD カメラで撮影する検出システムであるため CCD カメラの位置分解能によって光電子のエネルギー分解能が決定される。その結果、他の手法と比べてエネルギー分解能が悪いという欠点があり、それが軟 X 線領域では顕著になった。

他方で当初過少評価していた磁気ボトル型光電子分光器による光電子分光ではバックグラウンドの電子が非常に小さいことが分かった。またエネルギー分解能は飛行管の長さで飛行時間を測定する multi-channel scaler (Fast Comtec 社製)の時間分解能で決まる。飛行管の長さを 2m として multichannel scaler の時間分解 100 ps の場合、軟 X 線領域(300 eV)においてもエネルギー分解能 2 eV 程度あり十分なエネルギー分解能を有していることが実際に確認できた。また飛行管に阻止電場を掛けられる電極を設置してあり、分解能を 1eV 以下まで上げられることも動作確認した。

軟 X 線領域のアト秒パルスを用いた光電子分光では電離断面積とフォトンフラックスが小さいため、バックグラウンドが大きい測定手法は適さない。言い換えると運動量イメージング装置を用いてアト秒ストリーク法を実現するには、バックグラウンドを抑えるための装置改良があらたに必要であることが分かった。

他方、磁気ボトル型光電子分光器では非常に高いエネルギー分解能で希ガス標的に対して軟 X 線領域の光電子分光が実現でき、内殻電離に伴う Auger 電子の計測にも成功した。図 1 に Ne を媒質に用いた高調波発生による軟 X 線アト秒パルスによる Ar 原子から放出された電子運動工

エネルギーを磁気ボトル型光電子分光器で計測したスペクトルを示す。明瞭に 2p 軌道の内殻電離に伴う LMM Auger line が三本観測されており、放射光で磁気ボトル型光電子分光器を用いて計測された結果と良く一致していることが分かった。また高い捕集効率を反映し、信号強度は飛行管が 2 m の通常の飛行時間型光電子分光器を用いた計測と比較し約 1000 倍近いカウントレートが得られている(50 cps 程度)。

当研究室で真空紫外領域でアト秒ストリークを行ったカウントレートと同等のカウントレートが軟 X 線領域でも実現できおり、アト秒ストリークの障害である低いカウントレートを高い捕集効率を持つ光電子分光器を開発することによって解決に至った。

磁気ボトル型光電子分光器では電子の放出角度に対する情報が失われるためエネルギースペクトルのストリーク解析のみから光電場の再構成を行わなければならない。そのためのプログラムを SFA を基礎に置いた波形再構築法の拡張を行った。現在、アト秒ストリークに向けてストリーク用の IR 光を同時に照射できるセットアップの構築中である。このセットアップは真空紫外でアト秒ストリークを行った時と技術的には同じセットアップであるため新規に開発する要素は無い。つまり技術的には軟 X 線アト秒ストリークの障害はない。

積み残しとなった課題としては、助成期間中に実現できなかったアト秒ストリークを磁気ボトル型光電子分光器を用いて早期に実現し、放出角度に対する情報を失ったことによる波形再構築への影響を検討することである。更に運動量イメージング分光を用いたアト秒ストリークも行い、懸念されているバックグラウンドの影響とエネルギー分解能の低さから来る波形再構築への影響を議論する必要もある。磁気ボトル型光電子分光器による計測によるバックグラウンドが小さく、エネルギー分解能が高いが放出角度に対する情報を失ったストリークスペクトルから電場波形を再構築する場合と運動量イメージング法を用いてエネルギー分解能が低く、バックグラウンドも大きい放出角度の情報も使える解析とでどちらが軟 X 線領域のアト秒ストリークにとって優位性をもっているか再検討を行うことである。

成果をまとめると軟 X 線高調波を用いたアト秒ストリークで問題となっていたフォトンフラックスと電離断面積の小ささを克服するため、捕集効率の大きい光電子分光器である運動量イメージング装置と磁気ボトル型光電子分光器を用いたアト秒ビームラインを構築した。実際にこれらの装置を用いて軟 X 線領域での電子スペクトル計測に成功した。このことによって、電子分光を用いた高調波発生による軟 X 線領域のアト秒物理への道が開けた。助成期間中にアト秒ストリークを行うところまで行けなかったが、技術的な問題は既に解決に至ったといえる。

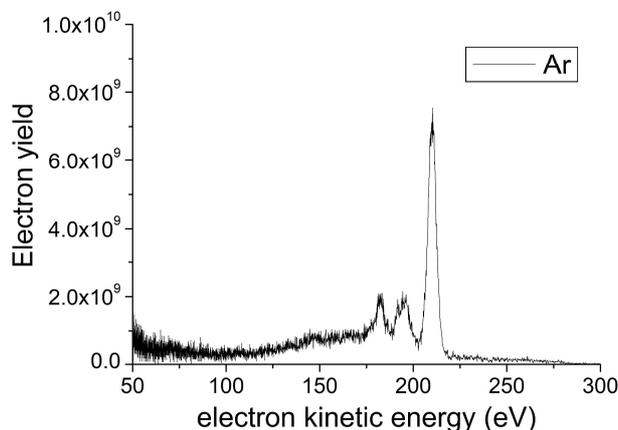


図1 Ne 媒質からの高調波を用いた Ar 標的から放出された電子運動エネルギースペクトル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|---------------------|
| 1. 著者名 Mizuno Tomoya, Yang Tianqi, Kurihara Takayuki, Ishii Nobuhisa, Kanai Teruto, Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru, Itatani Jiro | 4. 巻 107 |
| 2. 論文標題 Comparative study of photoelectron momentum distributions from Kr and CO ₂ near a backward rescattering caustic by carrier-envelope-phase mapping | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review A | 6. 最初と最後の頁 33101 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.107.033101 | 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 該当する |

| | |
|--|---------------------|
| 1. 著者名 Mizuno Tomoya, Ishii Nobuhisa, Kanai Teruto, Rosenberger Philipp, Zietlow Dominik, Kling Matthias F., Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru, Itatani Jiro | 4. 巻 103 |
| 2. 論文標題 Observation of the quantum shift of a backward rescattering caustic by carrier-envelope phase mapping | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review A | 6. 最初と最後の頁 43121 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.103.043121 | 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 該当する |

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 1件／うち国際学会 5件）

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Mizuno, T. Yang, T. Kurihara, N. Ishii, T. Kanai, O. I. Tolstikhin, T. Morishita, J. Itatani |
| 2. 発表標題 Multicenter and multiple elastic rescattering in CO ₂ molecules probed by carrier-envelope phase mapping |
| 3. 学会等名 The 12th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS2023) (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Mizuno |
| 2. 発表標題 Comparison of photoelectron momentum distributions of Kr and CO ₂ near a backward rescattering caustic by carrier envelope phase mapping |
| 3. 学会等名 International workshop on theory for attosecond quantum dynamics (IWTAQD) 26 (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 水野智也、楊添淇、栗原貴之、金井輝人、Oleg. I. Tolstikhin、森下亨、板谷治郎 |
| 2. 発表標題 再散乱光電子運動量分布のCEP依存性に現れる多中心多重散乱効果 |
| 3. 学会等名 第70回 応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 水野智也、楊添淇、栗原貴之、金井輝人、Oleg. I. Tolstikhin、森下亨、板谷治郎 |
| 2. 発表標題 再散乱光電子運動量分布のCEP依存性に現れる多中心多重散乱効果 |
| 3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第43回年次大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 水野智也、楊添淇、栗原貴之、金井輝人、Oleg. I. Tolstikhin、森下亨、板谷治郎 |
| 2. 発表標題 再散乱光電子収量のCEP依存性に現れる多中心散乱効果 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Mizuno, T. Yang, T. Kurihara, N. Ishii, T. Kanai, O. I. Tolstikhin T. Morishita, J. Itatani |
| 2. 発表標題 Degenerate singularities in backward rescattering processes induced by strong infrared fields |
| 3. 学会等名 Conference in Laser and Electro-optics Pacific Rim 2022 (CLEO-PR2022) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Mizuno, T. Yang, T. Kurihara, N. Ishii, T. Kanai, O. I. Tolstikhin T. Morishita, J. Itatani |
| 2. 発表標題 Experimental investigation of topological property of degenerate singularities in rescattering processes |
| 3. 学会等名 8th International Conference on Attosecond Science and Technology (ATT02022) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 栗原貴之, 石井順久, 金井輝人, Oleg I. Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 強電場現象を用いた散乱の量子論に現れる特異点の普遍性に関する研究 |
| 3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 栗原貴之, 石井順久, 金井輝人, Oleg I. Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 後方再散乱過程に現れる特異点とその近傍の普遍的な構造の検証 |
| 3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 栗原貴之, 石井順久, 金井輝人, Oleg I. Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 ハーフサイクルカットオフ近傍の光電子運動量分布と断熱理論を用いた分子標的の再散乱過程の研究 |
| 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 T. Mizuno, N. Ishii, T. Kanai, P. Rosenberger, D. Zietolow, M. Kling, O. Tolstikhin, T. Morishita, and J. Itatani |
| 2. 発表標題 Observation of the quantum shift of a backward rescattering caustic by carrier-envelope phase mapping |
| 3. 学会等名 Virtual International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC2021) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Mizuno, T. Yang, N. Ishii ¹ , T. Kanai, P. Rosenberger, D. Zietolow, M. Kling, O. Tolstikhin, T. Morishita, and J. Itatani |
| 2. 発表標題 Investigation of the quantum shift of a rescattering caustic by carrier envelope phase mapping |
| 3. 学会等名 第36回化学反応討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 石井順久, 金井輝人, Oleg Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 ハーフサイクルカットオフ近傍の再散乱光電子スペクトルにおける量子補正の検証 |
| 3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 石井順久, 金井輝人, 栗原貴之, Oleg I. Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 ハーフサイクルカットオフ近傍の再散乱光電子スペクトルにおける断熱理論に基づいた分離公式の実験的検証 |
| 3. 学会等名 原子衝突学会第45回年会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 石井順久, 金井輝人, Oleg I. Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 ハーフサイクルカットオフ近傍の光電子収量分布を用いた二重微分弾性散乱断面積の決定法の評価 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 水野智也, 楊添淇, 石井順久, 金井輝人, Oleg I. Tolstikhin, 森下亨, 板谷治郎 |
| 2. 発表標題 ハーフサイクルカットオフ近傍の光電子収量と断熱理論を用いた後方弾性散乱断面積の導出とその定量性評価 |
| 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 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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 |
|---------------------------|-----------------------|----|
| | | |

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 | | | |
|---------|---|--|--|--|
| | | | | |
| ドイツ | Max Planck Institute for Quantum Optics | Ludwig-Maximilians-Universitaet Munich | | |
| ロシア連邦 | Moscow institute of phys. and tech. | | | |