

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 17 日現在

機関番号：82401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26600123

研究課題名(和文) 偏光制御高強度アト秒パルスの発生：円偏光アト秒パルスによる磁気円二色性分光

研究課題名(英文) Generation of intense polarization-controlled attosecond pulse: magnetic circular dichroism spectroscopy with circularly-polarized attosecond pulse

研究代表者

沖野 友哉 (OKINO, TOMOYA)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・研究員

研究者番号：40431895

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：物質との相互作用領域での高強度円偏光アト秒パルスの発生のために必要な要素技術の開発を行った。時間波形のキャラクタリゼーションに必要な計測装置の改良を行い、信号雑音比が改善された。今後の改良によって、直線偏光以外の偏光を有するアト秒パルスが光と物質の相互作用領域で発生可能である。また、発生後にキラル分子の超高速ダイナミクスの計測および磁性材料の光磁性の二色性分光を行うことが可能である多層円筒電極から構成される超高真空対応の速度投影型運動量画像計測装置の開発を行った。

研究成果の概要(英文)：Elementary technology for generating intense circularly-polarized attosecond pulse at the light-matter interaction region is developed. The improvement of the equipment for characterizing the temporal profile of attosecond pulses are conducted and the signal-to-noise ratio is improved. With the future improvement of developed elementary technology, the attosecond pulses with different polarization can be generated exclusively at the light-matter interaction region. In addition, ultra-high vacuum compatible velocity map momentum imaging apparatus composed of multiple cylindrical electrodes is constructed for investigating ultrafast dynamics of chiral molecules and magnetic materials with the attosecond circular dichroism.

研究分野：物理化学

キーワード：アト秒 円偏光 運動量画像 高次高調波

1. 研究開始当初の背景

近年のレーザー技術の進展によって、高強度のフェムト秒レーザーを希ガスに集光照射することによってアト秒のパルス幅を有する超短パルス光の発生が可能となってきた。アト秒の分解能は、物質中の電子の運動および電子分布の変化を実時間追跡するために必要不可欠であるが、非線形過程を誘起するに十分な強度のアト秒パルスを発生することが課題の一つであった。また、アト秒パルスの偏光が自由自在に制御できることは、物質中の電子分布をマニピュレーションするために必要な技術の一つである。

直線偏光を有するアト秒パルスについてはパルスあたりマイクロジュールの出力が得られており、振動波束の実時間追跡等の非線形分子分光が可能状況にあるが、直線偏光以外の偏光を有するアト秒パルスについては、アト秒の時間構造を有していることの確認もできておらず、強度も非線形分光を実施するには不十分な状況であった。

特に、円偏光を有するアト秒パルスは、光誘起磁性の直接観測、キラル分子の分子ダイナミクスの解明および静磁場では誘起できない分子内に巨大磁場を発生することができると期待されているため、その発生手法の確立が切に求められている状況であった。

2. 研究の目的

物質中の電子運動および電子分布の変化を実時間追跡するためには、非線形過程を誘起するに十分な強度のアト秒パルスを発生することが必要である。また、アト秒パルスの偏光を自由自在に制御することは、「気相における電子分布の立体制御」および「光誘起磁性体による高速スイッチング過程の解明」に不可欠である。本研究では、光電場を時間・空間領域で高精度に制御することにより、偏光制御高強度アト秒パルスの発生および円偏光パルスによる磁性材料の磁気円二色性分光およびキラル分子の超高速分子ダイナミクスの解明を目的とする。

従来は、物質と相互作用を行うレーザー電場を相互作用領域から十分に離れた領域で生成し、それを伝播させて用いることがほとんどであったが、本研究では、物質との相互作用領域で重ね合わせることによって、円偏光高強度アト秒パルスの発生を行う。位相差の調整で、任意の楕円度のアト秒パルス発生が可能とする。

直線偏光と円偏光では、光学遷移選択則が異なるため、反応制御の自由度が大幅に向上する。直線偏光のアト秒パルスは分子内の電荷分布を偏光面内で制御することが可能であるが、3次元制御は困難である。一方、円偏光(楕円偏光)アト秒パルスを用いれば、分子内の電荷移動を3次元で制御が可能であり、電荷分布の制御性を大幅に向上させることができるものと考えられる。気相では、価電子のみならず内殻電子を含めた化学反

応制御の探索が可能となる。

また、軟X線領域で円偏光アト秒パルスを発生すれば、元素選択的な光誘起磁性ダイナミクスの実時間追跡が可能となる。

相対位相を高精度で制御した偏光の直交する直線偏光の2本のアト秒パルスを物質との相互作用領域でのみ重ね合わせることによって、円(楕円)偏光の高次高調波を発生することを到達目標とする。空間投影型運動量画像法を用いれば、集光領域からの信号のみを抽出することが可能であるため、直線偏光と異なる電場を有する光と物質と相互作用が計測可能である。すなわち、光と物質が相互作用する領域でデザインされたレーザー電場波形が合成できれば、伝播過程は最もエネルギーが出せる手法を選択することが可能であることを意味する。

3. 研究の方法

当初の研究方法は以下の3つに分けて計画を行った。

(1) 高精度位相制御のためのレーザービームポインティングの制御手法の確立

偏光制御アト秒パルスを発生させるためには、フェムト秒レーザーシステムの出力偏光の直交する基本波に二分するとともに、相対位相を制御する必要がある。第13次高調波の光学サイクルが約200アト秒であるため、相対位相を $1/10$ 以下の精度で制御するためには、10アト秒以下の精度で位相差を制御する必要がある。このためには、光路差の経時ドリフトを最小化することが重要である。ドリフトの最小化のため、レーザービーム位置の制御を行う。位相制御の精度については、ヘリウムネオンレーザーの干渉フリンジの安定性で確認を行う。

(2) 円偏光アト秒パルスのキャラクタリゼーション手法の確立

これまで申請者らが直線偏光を有する高強度アト秒パルスの時間波形の計測に用いてきたフリンジ分解自己相関波形計測法を円偏光へと拡張する。そのために、計測時間の短縮と信号雑音比の向上をサンプル導入部および計測部の改良によって実現する。

(3) 固体試料および気相キラル分子を導入可能な運動量画像計測装置の開発

従来に運動量画像計測装置では、蒸気圧の高い気体分子のみ計測が可能であった。気相キラル分子および固体磁性材料でのイオンおよび光電子運動量画像が計測できるように、新たに多層電極から構成される運動量画像計測装置を設計・製作を行う。超高真空(10^{-7} Pa)対応の自動ステージにより、サンプル試料および集光光学系の位置調整および走査を可能とする。また、ピンホールを備えた電極およびアインツェル電極を導入することによって、空間投影型の運動量画像計測装置への変換を可能とし、集光点からの信

号の選択的観測を実現する。

4. 研究成果

(1) 高精度位相制御のためのレーザービームポインティングの制御手法の確立

集光領域において、時間・空間重ね合わせおよび相対位相の制御によって円偏光アト秒パルスを発生させるためには、レーザービームポインティングの長時間制御が不可欠である。実験室内の温度および湿度の経時変化によって生じるビームポインティング変化の低減のため、ビーム位置安定化装置の導入を行った。これにより、2つのビーム位置の重ね合わせについては集光領域において5 μm (rms) および5 μrad (rms)で制御が可能であることを確認したが、光路差の変化による位相差に経時変化が生じることが明らかとなった。これについては今後、位相制御板を用いて位相補償を行う。

(2) 円偏光アト秒パルスのキャラクタリゼーション手法の確立

2光子吸収過程を非線形媒質の代替として用いるフリンジ分解自己相関波形を計測する手法が、アト秒パルスの強度および時間幅のキャラクタリゼーションを行うために適している。円偏光では直線偏光と比べて、ピーク電場強度が低下するため、計測系の信号雑音比の改善を行った。具体的には、ピエゾバルブをリペラー電極部に統合し、集光領域におけるサンプル密度を従来よりも少なくとも1桁以上高めることを可能とした。直線偏光のアト秒パルスを用いて、従来の半分以下計測時間でフリンジ分解自己相関計測が可能となることを確認を行った。運動量画像の読み出しに用いる科学計測用 CMOS カメラのファームウェアの更新によって、レーザー繰り返し周波数100 Hzで読み出し可能最大画素数が4倍となったため、従来よりも高運動エネルギー領域 ($E > 10$ eV)におけるエネルギー分解能が向上した。

(3) 固体試料および気相キラル分子が導入可能な運動量画像計測装置の開発

3枚の円筒電極から構成させる既存の運動量画像計測装置よりも運動量分解能を向上させるために、10枚の円筒電極から構成させる運動量画像計測装置の設計および製作を行った。ピエゾバルブから導入を行った窒素分子について、高強度フェムト秒レーザーパルスを用いたクーロン爆発過程を観測することによって、イオン光学シミュレーションソフトウェアSIMION8.0を用いた設計結果と一致する運動量分解能が得られることを確認した。この装置の特徴は、リペラー電極部に金属薄膜を取り付けることが可能であることにある。また、リペラー電極は、超高真空対応のXYステージ上に設置しているため、励起光を金属薄膜に照射時に、連続して同じ場所に励起光が当たることの無いよう

に位置を走査することが可能である。今後は、ピンホールを有する電極とアインツェルレンズを追加することによって、空間投影型の運動量画像計測装置として、集光領域を分解した運動量画像計測を可能にすることで、円二色性分光を実施する。

なお、本研究で開発した運動量画像計測装置においては、蒸気圧の低いアミノ酸等のキラル分子を金属薄膜に物理吸着させたのち、裏側から紫外および可視領域のナノ秒レーザーを照射することによって、脱離を誘起し、アミノ酸分子の導入が可能な装置でもある。すなわち、蒸気圧の比較的高いキラル分子については、ピエゾバルブを用いて分子線として導入するが可能である装置であるとともに、蒸気圧の比較的低いキラル分子については、レーザー音響脱離法を用いた導入が可能な装置となった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計9件)

(全て査読有り)

1. 沖野 友哉、鍋川 康夫、緑川 克美、「高強度数パルスアト秒パルス列を用いたアト秒電子波束の観測」、レーザー研究、45、212-216 (2017).

2. 沖野友哉、鍋川康夫、緑川克美、「高次高調波によるアト秒量子波束計測」、分光研究、65、81-91 (2016).

3. Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, K. Midorikawa, "Sub-10-fs control of dissociation pathways in hydrogen molecular ion with a-few-pulse attosecond pulse train", Nat. Commun. 7, 12835 (2016).

DOI: 10.1038/ncomms12835

4. 鍋川康夫、古川裕介、沖野友哉、山内 薫、緑川克美、「高強度アト秒パルス列を用いた水素イオン振動波束の研究」、レーザー研究、43、823-827 (2015).

5. 沖野友哉、古川裕介、鍋川康夫、山内 薫、緑川克美、「アト秒非線形フーリエ分子分光」、レーザー研究、43、217-221 (2015).

6. T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, A. Amani Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Direct observation of an attosecond electron wave packet in a nitrogen molecule", Sci. Adv. 1, e1500356 (2015).

DOI: 10.1126/sciadv.1500356

7. Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. Amani Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Settling time of a vibrational wavepacket in ionization", Nat. Commun. 6, 8197 (2015).

DOI: 10.1038/ncomms9197

8. Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. Amani Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Frequency-resolved optical gating technique for retrieving the amplitude of a vibrational wavepacket", *Sci. Rep.* 5, 11366 (2015).

DOI: 10.1038/srep11366

9. T. Okino, Y. Furukawa, T. Shimizu, Y. Nabekawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Nonlinear Fourier transformation spectroscopy of small molecules with intense attosecond pulse train", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 47, 124007 (2014). DOI:10.1088/0953-4075/47/12/124007

〔学会発表〕(計 13 件)

1. T. Okino, Y. Nabekawa, K. Midorikawa, "Observation of Quantum Wavepackets in Molecules with Intense Attosecond Pulse Trains", IOP Publishing Young Researchers' Meeting; *Frontiers in Fundamental and Applied Physics*, 2017.2.21, Tokyo (Japan).

2. T. Okino, Y. Nabekawa, K. Midorikawa, "Real-time Observation of Quantum Wavepackets of Molecules with a-Few-Pulse Attosecond Pulse Train", *International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (ISUILS15)*, 2016.10.3, Cassis (France).

3. 沖野友哉、鍋川康夫、緑川克美、「高強度アト秒パルス列を用いた超高速分子ダイナミクスの観測」、光・量子デバイス研究会、2016年9月20日、産業総合研究所、つくば。

4. 沖野友哉、古川裕介、鍋川康夫、宮部俊吾、アマニイランル、高橋栄治、山内薫、緑川克美、「高強度アト秒パルス列を用いた窒素分子におけるアト秒電子波束の観測」、第9回分子科学討論会、2015年9月18日、東京工業大学、東京。

5. T. Okino, "Observation of Attosecond Electron Wavepacket in a Nitrogen Molecule with Nonlinear Fourier Transform Spectroscopy", *The 7th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation*, 2015.9.1, Gwangju (Korea).

6. T. Okino, "Attosecond nonlinear Fourier transform spectroscopy of molecule with intense a-few-pulse attosecond pulse train: observation of vibrational and electron wavepackets", *Attosecond Physics 2015*, 2015.7.9, Quebec (Canada).

7. T. Okino, Y. Furukawa, A. A. Eilanlou, Y. Nabekawa, S. Miyabe, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, K. Midorikawa, "Direct observation of attosecond electron wavepacket in nitrogen molecule with a-few-pulse attosecond pulse train",

CLEO/Europe-EQEC2015, 2015.6.24, Munich (Germany).

8. 沖野友哉、「高強度アト秒パルス光源を用いた超高速分子ダイナミクスの実時間観測」、電気学会専門委員会：ナノメディシンに向けた光・量子ビーム応用技術調査専門委員会、2015年3月30日、東京理科大学神楽坂キャンパス、東京

9. 沖野友哉、「アト秒非線形フーリエ分光による超高速分子ダイナミクスの実時間追跡」、第26回先端光量子科学アライアンスシンポジウム、2015年3月19日、慶応大学日吉キャンパス、神奈川

10. 沖野友哉、鍋川康夫、緑川克美、「分子内超高速電荷マイグレーションを用いた化学反応制御実現への取り組み」、光・量子デバイス研究会、2016.1.24、氷見市ふれあいスポーツセンター、富山

11. 沖野友哉、古川裕介、鍋川康夫、宮部俊吾、アマニイランル、高橋栄治、山内薫、緑川克美、「周波数分解運動量画像法を用いた窒素分子における振動波束の観測」、第36回レーザー学会年次大会、2016.1.11、名城大学、愛知

12. T. Okino, Y. Furukawa, A. A. Eilanlou, Y. Nabekawa, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, K. Midorikawa, "Observation of Vibrational and Electron Wavepackets in Nitrogen Molecule with Intense a-Few-Pulse Attosecond Pulse Train", *Asian Symposium on Intense Laser Science 8*, 2014.11.27, Taipei (Taiwan).

13. 沖野友哉、「アト秒フーリエ非線形分子3光」、分光セミナー：超高速分子分光の新展開：気相～固相、2014年11月19日、科学技術館（東京都千代田区）

〔図書〕(計 1 件)

1. 沖野友哉、山内薫、CSJ カレントレビュー18 強光子場の化学「強光子場・アト秒科学の基礎と歴史」、日本化学会編、化学同人、14-25 (2015).

〔その他〕

ホームページ等

http://www.riken.jp/ExtremePhotonics/attosec/index_j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

沖野 友哉 (OKINO, Tomoya)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究領域・研究員

研究者番号：40431895