

令和 3 年 4 月 22 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03489

研究課題名(和文)近赤外強レーザーパルスによる原子の極紫外域多光子多重イオン化過程の量子操作

研究課題名(英文)Controlling XUV multi-photon ionization of atoms by intense IR laser pulses

研究代表者

彦坂 泰正 (Hikosaka, Yasumasa)

富山大学・学術研究部教養教育学系・教授

研究者番号：00373192

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：極紫外高強度レーザー場における原子分子過程の量子制御の実現に向け、自己増幅自発放射型FELと外部の光学レーザーとの高精度な時間同期に基づいた基盤計測技術の確立を図った。磁気ボトル型電子分析によるシングルショット光電子分光とタイミングモニターシステムを併用することにより、2つのレーザーパルスのタイミングジッターよりも1桁優れた時間分解能でターゲットプロセスを調査することができるようになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年の自由電子レーザー技術の革新により、極紫外域の高強度レーザー場と物質との相互作用に関する研究が大きく進展している。その研究のフロンティアの一つは、そのようなレーザー場における原子分子過程の量子制御の実現である。本研究では、自由電子レーザーと外部の光学レーザーとの高精度な時間同期に基づいた基盤計測技術の確立を実現した。磁気ボトル型電子分析によるシングルショット光電子分光とタイミングモニターシステムを併用することにより、2つのレーザーパルスのタイミングジッターよりも1桁優れた時間分解能でターゲットプロセスを調査できることを示した。

研究成果の概要(英文)：To realize quantum control of atomic and molecular processes in an extremely ultraviolet high-intensity laser field, we have established a basic measurement technology based on highly accurate time synchronization between a self-amplifying spontaneous emission type FEL and an external optical laser. By using single-shot photoelectron spectroscopy based on magnetic bottle-type electron analysis and a timing monitor system together, it has become possible to investigate target process with a time resolution that is an order of magnitude better than the timing jitter of two laser pulses.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：自由電子レーザー

1. 研究開始当初の背景

近年の自由電子レーザー (FEL) 技術の革新により、極紫外 (EUV) 域の高強度レーザー場と物質との相互作用に関する研究が大きく進展してきた。ここでは、生体分子イメージングや光スイッチ、高密度低温プラズマなどへの応用を視野に入れた、非線形光学現象の基礎的な理解が焦点となってきた。最もシンプルな物質群である孤立原子・分子は、この非線形光学現象を明らかにしていく上での格好のベンチマークである。これまでの FEL 利用研究によって、この非線形光学応答はフェムト秒の FEL パルスの中で起こる摂動的な多段階の光子吸収の描像によって基本的には理解されることが分かってきた。ただし、このような 1 光子のエネルギーがイオン化ポテンシャルを超えるような状況下での多光子吸収は、場合によっては内殻軌道の電子までも含む複数の電子が関与し、共鳴波長においては容易に多重イオン化が引き起こされることが見いだされている。この EUV 高強度レーザー場中原子分子過程の実験研究の次のフロンティアは、その多光子多重イオン化メカニズムの理解に基づいた、原子分子過程の量子制御の実現となっている。すなわち、多光子多重イオン化過程に関与する量子状態に能動的な操作をし、その進行をコントロールすることである。このような量子制御は、光エレクトロニクス、量子光学、量子情報などの基盤技術として重要であるだけでなく、FEL の応用分野への波及についても大きく期待されている。

2. 研究の目的

本研究では、EUV 域の高強度レーザー場中原子分子過程に対して、近赤外 (NIR) 域の光学レーザーの併用による量子制御の実現に向け、その基盤技術の構築を目的とした。その量子制御スキームでは、EUV 高強度レーザー場での共鳴遷移に関与する量子準位のエネルギーレベルを NIR レーザーパルスによりシフトさせて共鳴波長を変化させ、その共鳴遷移の抑制あるいは増強を起こし、多光子吸収過程全体の進行をコントロールする。これまでに申請者は、EUV 域の FEL で生成した量子状態に対する NIR レーザーによる 2 光子ラビ振動を観測し、量子状態の高効率操作のデモンストレーションに成功している (Nature Photonics 10, 102 (2016).)。ただし、そこでの FEL の役割は操作する量子状態の生成に留まり、EUV 高強度レーザー場自体に起因した原子過程の操作は実現できていない。

光エレクトロニクスや量子光学などの研究分野では、可視・近赤外などの光学レーザーを用いることにより様々な量子制御スキームが開発されている。一方、同様の量子制御を FEL のみを用いて EUV 域で実現することは困難である。これは、自発放射をシード光とした自己増幅自発放射型 FEL では、縦モード (時間コヒーレンス) はショットごとにカオティックな振舞を示し、スペクトルプロファイルや強度はショットごとに大きく揺らぐためである。本研究の量子制御スキームでは、パルス品質の良い NIR 域の強レーザーパルスを併用することによって、カオティックな縦モードをもつ FEL の欠点を補った量子状態制御が行えると考えた。すなわち、EUV 域における多光子吸収の誘起とその量子準位の制御のそれぞれを独立のレーザーパルス (FEL および NIR レーザー) で駆動することにより、EUV 域における量子状態の操作を実現できる。しかしながら、その実施には自己増幅自発放射型 FEL と外部の光学レーザーの高精度な時間同期を実現する必要があり、そのため、本実験ではその基盤技術の確立を図った。

3. 研究の方法

本研究では、理化学研究所の FEL 施設 SACLA において共用が開始された新規ビームライン BL1 (FEL 波長域: 10-30 nm) を利用し、そこに磁気ボトル型電子分析器を持ち込んで実験を行った。NIR レーザーパルスによる量子準位のエネルギーシフトは、強度や波長などのレーザーパラメータを用いて精密に制御することができるが、NIR レーザーのパルス幅に対応して概ね数百フェムト秒程度しか持続されない。つまり、FEL と NIR レーザーをフェムト秒の時間域で精密にオーバーラップさせる必要がある。しかしながら、自己増幅自発放射型 FEL と外部の光学レーザーの時間同期はこの研究計画の当初はピコ秒程度が限界であり、フェムト秒の時間オーバーラップを制御することはできなかった。このような状況での本研究の量子制御スキームの実現には、申請者がこれまでに開発してきた「磁気ボトル型電子分析器によるシングルショット光電子分光 (PRL 105, 133001 (2010).)」の利用が有効であると考えた。

磁気ボトル型電子分析器は磁気ミラー効果により光電子の全てを捕獲してエネルギー分析できる極めて高効率の電子分光技術であり、それにより FEL のショットごとに光電子計測できる。このシングルショット光電子分光により、FEL と NIR レーザーのタイミングを光電子ピークのサイドバンド生成によりモニターすることができる。このサイドバンドは、光電子が原子核からのクーロンポテンシャルを感じている範囲内で NIR レーザーが入射された場合にのみ生成する。すなわち、そのサイドバンドの強度によって 2 つのレーザーのタイミングをレーザーショットごとに光電子計測に基づき決定することができる。さらに、2 つのレーザーのタイミングジッターを逆手にとって、決定されたレーザーパルスのタイミングで光電子スペクトルをソートし直すことにより、フェムト秒領域の精密なレーザーパルス遅延における多光子多重イオン化経路

の変化の情報を抽出することが可能となる。

4. 研究成果

2018-2020 年度の研究実施期間において、計 5 回の SACLA 利用実験を実施した。最初に、FEL と NIR レーザーパルスとの時間同期におけるタイミングジッターによる時間分解能を評価した。シングルショット光電子分光により、He 原子の 40eV の FEL によるイオン化で放出される光電子ピークを FEL のショットごとに観測した。NIR レーザーが FEL に時間同期して入射されれば、NIR レーザーパルスの光子エネルギー 1.56 eV 分だけ光電子ピークの高エネルギー側にサイドバンドが出現することになる。チャンパー内に導入したピンホールにより同期レーザーと FEL との空間重なりを確認した後、2 つのパルス間の時間遅延を変化させたとき、ある遅延時間付近で光電子サイドバンド信号の生成を確認できた。ここでは、NIR レーザーラインの光路長を 6.7fs の最小遅延が可能な光学ステージで制御し、FEL と NIR レーザーパルス間の時間遅延を設定した。このときの時間分解能は、2 つのレーザーパルスのタイミングジッターによって制限される。このタイミングジッターによる時間分解能を評価するために、光電子サイドバンド強度を遅延時間の関数として測定した。それにより、タイミングジッターの半値全幅 (FWHM) は 0.81ps と決定された。次に、時間ゼロ付近でビームラインに導入されているタイミングモニターを利用することで、タイミングジッターに制限されないサイドバンド信号の時間変化を計測した。ここでは、シングルショット光電子分光と BL1 用に最近開発されたタイミングモニターシステムを併用し、ショットごとに記録された光電子スペクトルを FEL レーザーパルスと NIR レーザーパルス間の相対遅延時間の順にソートした。光子エネルギー 40eV の FEL 光を用いた場合にはサイドバンド信号の半値全幅は 85fs となった。このタイミングモニターシステムの併用により、タイミングジッターよりも 1 桁優れた時間分解能でターゲットプロセスを調査することができる。この手法は原子の多光子多重イオン化過程のコントロールのための基盤技術として今後利用可能である。

この FEL と NIR レーザーの時間同期手法の有用性を示すために、キセノン原子の光 2 重イオン化に対して、磁気ボトル型電子分光装置を用いたシングルショット光電子分光実験を行った。ここでは、FEL による 2 重イオン化過程において中間生成している一価イオン状態を NIR レーザーでイオン化してプローブした。ここでは、FEL パルスと NIR レーザーパルスの遅延を掃引することにより、中間生成しているイオン状態の寿命を計測することに成功した。この際、タイミングモニター技術を併用による fs 領域の時間分解能により、数百 fs と数 ps の 2 成分の寿命を観測できた。中間状態として 2 重イオン化連続状態とのカップリングが大きく異なる一価イオン状態が関与していることを示唆している。

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 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Owada Shigeki, Fushitani Mizuho, Matsuda Akitaka, Fujise Hikaru, Sasaki Yuuma, Hikosaka Yasumasa, Hishikawa Akiyoshi, Yabashi Makina	4. 巻 27
2. 論文標題 Characterization of soft X-ray FEL pulse duration with two-color photoelectron spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 1362 ~ 1365
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577520008516	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 Fushitani M., Sasaki Y., Matsuda A., Fujise H., Kawabe Y., Hashigaya K., Owada S., Togashi T., Nakajima K., Yabashi M., Hikosaka Y., Hishikawa A.	4. 巻 124
2. 論文標題 Multielectron-Ion Coincidence Spectroscopy of Xe in Extreme Ultraviolet Laser Fields: Nonlinear Multiple Ionization via Double Core-Hole States	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 193201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.193201	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 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 M. Fushitani, Y. Sasaki, A. Matsuda, H. Fujise, Y. Kawabe, K. Hashigaya, S. Owada, T. Togashi, K. Nakajima, M. Yabashi, Y. Hikosaka, A. Hishikawa
2. 発表標題 Electron-ion coincidence spectroscopy of Xe 4d double-core-hole states in strong XUV-FEL fields
3. 学会等名 35th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伏谷 瑞穂、佐々木 優馬、河辺 佳喬、藤瀬 光香、橋ヶ谷 かすみ、大和田 成起、富樫 格、中嶋 享、矢橋 牧名、松田 晃孝、彦坂泰正、菱川 明栄
2. 発表標題 電子-イオンコインシデンス分光によるXe4d内殻二重空孔状態の観測
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Sasaki, H. Fujise, Y. Kawabe, K. Hashigaya, A. Matsuda, Y. Hikosaka, M. Fushitani, A. Hishikawa
2. 発表標題 Formation of Xe 4d double-core-hole states in strong XUV-FEL fields studied by electron-ion coincidence spectroscopy
3. 学会等名 IRCCS The 2nd international symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Fushitani, Y. Kawabe, K. Hashigaya, A. Matsuda, S. Owada, T. Togashi, K. Nakajima, M. Yabashi, Y. Hikosaka, A. Hishikawa
2. 発表標題 Ultrafast photoelectron spectroscopy of autoionizing Xe+ formed by XUV FEL
3. 学会等名 34th symposium on chemical kinetics and dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018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