

令和 3 年 5 月 18 日現在

機関番号：87202

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K11945

研究課題名(和文) レーザー誘起蛍光法で探る希ガス原子のVUV渦励起

研究課題名(英文) Photoexcitation of rare gas atoms by optical vortex beam studied by laser-induced fluorescence

研究代表者

金安 達夫 (Kaneyasu, Tatsuo)

公益財団法人佐賀県地域産業支援センター (産業振興部研究開発振興課、九州シンクロトロン光研究センター)  
・加速器グループ・副主任研究員

研究者番号：90413997

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)：軌道角運動量を運ぶ光ビーム(光渦)と原子分子との相互作用の解明を目指し、光渦による平面波禁制遷移の検証に取り組んだ。平面波禁制励起を選択的に観測するため、レーザー誘起蛍光法の適用を考案し光渦ビームと赤外レーザー光を組み合わせた実験装置を開発した。本研究の期間内には平面波禁制遷移の観測には至らなかったが、一連の研究を進める中でアンジュレータ放射が持つ時空間構造の活用法を見出し、原子の量子状態制御や超高速時間分光といった新たな放射光利用法の手掛かりを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

シンクロトロン光源は基礎科学から産業応用までの幅広い研究分野を支える汎用的な高輝度光源である。本研究では真空紫外から軟X線の波長域で電磁放射の時空間構造に着目し、螺旋波面を持つ光やダブルパルス状の時間構造を持つ光と原子の相互作用の解明を進めた。そして原子の量子状態制御や超高速分光といった新たなシンクロトロン光利用法の手掛かりを得た。

研究成果の概要(英文)：A laser-induced fluorescence method was developed and used to study plane-wave forbidden transition of rare gas atoms induced by the optical vortex beam. In addition, we have found a new ability of synchrotron light source to achieve coherent control of atoms using a temporal coherence provided by a tandem undulator. We have also applied this approach to track the femtosecond Auger decay of the inner-shell excited state. This new capability of synchrotron light source will open the possibility of probing and controlling ultrafast phenomena in a wide range of research fields.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：光渦 放射光 量子状態制御 アンジュレータ

## 1. 研究開始当初の背景

螺旋状の波面を持ち、軌道角運動量を運ぶ特異な性質を有する光ビームは「光渦」と呼ばれている。光学素子を用いた波面操作の技術発展にともない、1990年代以降、主に可視から赤外の波長域でレーザー光渦の利用は急速に発展した。一方、より短波長の真空紫外から X 線領域では光学素子による波面の操作は大幅に困難となる。そのため短波長域では光渦の生成そのものが研究対象であり、光渦の利用は未開拓の分野であった。ところが近年、円運動を行う荷電粒子の放射は光渦の性質を有することが見いだされた。さらに実験室において荷電粒子が放射する光渦の典型例が円偏光アンジュレータ（シンクロトロン光源の一種）からの高調波放射であること、また実際に高調波放射が光渦性を有することが紫外および極端紫外波長域で実証された。この円偏光アンジュレータで得られる光渦ビームは真空紫外から X 線までの広い波長範囲をカバーする優れた特徴を有する。そのため未踏領域が広がる短波長域の光渦の利用がにわかに大きな関心を集めつつある。

光源開発の進展の一方、短波長域の光渦と物質との相互作用については、主として原子分子を対象とした理論研究が報告されるのみであった。とくに真空紫外より短い波長域では様々な物質の電子励起が可能となることから、電子遷移に対する渦の効果の理解が重要といえるが、実験研究による検証は殆ど行われてこなかった。たとえば短波長域の光渦と原子分子の相互作用では、螺旋波面に起因する特異な電子遷移が発現するなど興味深い現象が予測されているにもかかわらず、実験的な検証に基づく統一的な理解は示されていなかった。このような背景のもと、申請者らは極短紫外域の光渦によるヘリウム原子の光イオン化実験に取り組み、光電子の角度分布測定に成功したが、光渦と原子系の相互作用における特殊性を見出すことはできなかった。その原因は原子との相互作用における光渦の特殊性が渦の中心付近に限られることに起因しており、光渦による特異な電子遷移を検証するには相互作用領域を空間的に限定すること、さらに光渦によって許容となる励起過程のみを選択的に観測する手法の導入が重要とわかった。そこで本研究ではレーザー誘起蛍光法を開発し、それを用いて光渦による特異な電子遷移の検証に挑んだ。

## 2. 研究の目的

研究目的は、真空紫外領域の光渦(以下、VUV 渦)による希ガス原子の電気双極子遷移を観測対象として、電子励起に対する渦の効果を検証することである。具体的には、光渦による特異な効果“平面波禁制の磁気副準位への電子励起”を実証する。そして平面波禁制の遷移確率が、光渦ビームの軌道角運動量と集光ビーム径に依存することを明らかにする。

## 3. 研究の方法

実験は分子科学研究所のシンクロトロン光施設 UVSOR に設置された光源開発ビームライン BLIU で行った。このビームラインの光源は二台の直列配置された可変偏光アンジュレータである。実験では下流側のアンジュレータを円偏光へ設定し、高調波放射として得られる VUV 渦ビームを用いた。ビームラインにはミラーや回折格子等の光学素子は無く、光源から観測装置までの光輸送路で光渦の波面が乱れる可能性が取り除かれている。

VUV 渦ビームを希ガス原子へ照射し、平面波禁制となる磁気副準位への励起をレーザー誘起蛍光によって検証する。観測装置は赤外半導体レーザー、小型ガスセル、蛍光検出部を組み合わせた構造である。観測装置の上流部には、VUV 渦ビームの集光レンズを収納した真空チャンバーが接続されており、集光位置はレンズの前後移動で微調する。平面波禁制状態への遷移は VUV 渦ビームの集光によって強調されるため、 $MgF_2$  レンズを用いて VUV 渦ビームを数  $\mu m$  径へと集光した。一方、赤外レーザーで誘起される蛍光の検出器には簡便な光電子増倍管を用いた。

## 4. 研究成果

キセノン原子の電子励起を対象として VUV 渦が引き起こす平面波禁制遷移を検証した。円偏光アンジュレータの二次高調波として得た VUV 渦ビーム(波長 $\sim 120$  nm)を  $MgF_2$  レンズで数  $\mu m$  径へと集光しキセノン原子へ照射した。VUV 渦ビームの制御技術を確立しつつ禁制遷移に起因するレーザー誘起蛍光の検出に取り組んだが、本研究の期間内には VUV 渦による平面波禁制遷移の実証には至らなかった。実験の困難の大きな原因は、散乱レーザー光やガスセル周囲の環境光による多量のバックグラウンド信号および渦ビームとレーザー光の空間的な重ね合わせの調整であった。装置の改良や適当な測定対象を選定することで、実験開始当初に比べて大幅なバックグラウンド信号の低減を達成したが、それでも VUV 渦励起に由来する微弱な蛍光信号の検出は困難であった。電子遷移に対する光渦の影響を実証するには極めて高度な実験系を構築する必要がある。限られたビームタイムでは実証実験は困難との結論に至った。一方、一連の実験研究を進める中で、二台のアンジュレータからの放射を用いると原子の量子状態を制御出来ることを見出された。そこで急遽、そちらの研究を優先的に進める方針とした。

アンジュレータを通過する電子の放射波形は、アンジュレータの磁場周期と同じ回数だけ振動する時間構造を持つ。二台のアンジュレータを並べたタンデムアンジュレータならば電子はダブルパルス状の放射を発する。さらにダブルパルス間の時間間隔は一般的な加速器技術でアト秒レベルで制御可能である。このような光パルスは短パルスレーザーによる原子や分子の量子状態制御に使われてきたが、タンデムアンジュレータを使えば同等の光パルスが真空紫外から X 線の波長域で得られることになる。量子状態制御の短波長化は制御対象の拡大と高速化を一挙にもたらし、シンクロトロン光源の新たな利用展開に結びつく可能性が高い。そこでタンデムアンジュレータを用いて希ガス原子の量子状態の制御実験に挑んだ。

実験は UVSOR の BL1U で行った。制御対象はヘリウム原子の Rydberg 励起状態、光パルスの波長は極端紫外である。二台のアンジュレータは水平直線偏光で同一の放射波長とした。タンデムアンジュレータを通過する個々の電子は 10 サイクルのダブルパルス状の放射を発する。ダブルパルスの時間間隔は、アンジュレータ間に設置された位相子電磁石を用いてアト秒レベルで操作可能である。アンジュレータ放射を分光器を通すことなく直接ヘリウムガスへ照射して励起状態の生成量を蛍光検出法で観測した。その結果、遅延時間を操作することでヘリウム原子を特定の励起状態へ選択的に励起できることがわかった[1](図 1)。またタンデムアンジュレータを円偏光に設定し、左回りと右回りの円偏光パルスをヘリウム原子へ照射した。この方法によって遅延時間を制御パラメータとした励起軌道の空間形状の操作が可能なることも示した[2]。この一連の研究成果によって、シンクロトロン光源を用いて原子の量子状態制御が可能なることが世界に先駆けて示された。これらの研究成果はプレスリリースを行うとともに国内外の学会で発表し情報発信に努めた。なお、実際のシンクロトロン光源では多数の電子集団からの放射を用いる。そのためタンデムアンジュレータを通過する個々の電子はダブルパルスを発しても、異なる電子間の放射の相対位相は乱雑である。このインコヒーレントな放射を用いても量子状態制御が可能なることは実証されたが、理論的にも考察を行い実験結果を説明することができた[3]。またヘリウム原子の量子状態制御の研究を進めるうちに、ゼーマン量子ビートを利用した極端紫外光の簡便な偏光評価法を考案し実証実験に成功した[4]。

シンクロトロン光源による量子状態制御の応用として、軟 X 線波長域への短波長化とフェムト秒高速現象の時間観測を行った。制御対象はキセノン原子の 4d 内殻電子である。アンジュレータの放射波長を 4d 電子の 6p 軌道への共鳴励起エネルギー(~65 eV)に合わせて Xe ガスへ照射し、遅延時間を掃引しながら励起状態の生成量を蛍光収量法で測定した(図 2)。蛍光収量にはダブルパルスによる電子波束の干渉に起因する周期 63 アト秒の振動が生じるが、4d 内殻空孔の寿命(6 fs)によって遅延時間の増加とともに干渉構造が消失する。このフェムト秒域での干渉構造の減衰は理論計算で良く再現された。このことから、タンデムアンジュレータを用いてフェムト秒域の寿命を持つ内殻励起状態の崩壊を時間領域で観測することに成功したと結論した。本手法で捉えた内殻励起状態のフェムト秒崩壊は、従来の放射光実験の時間分解能(数十ピコ秒)に比べて圧倒的に早い時間領域である。今後、本手法はシンクロトロン光による超高速反応の研究へ新たな展開をもたらすと期待できる。本成果成果についてもプレスリリースを行うとともに国内外の学会で発表し情報発信に努めた。

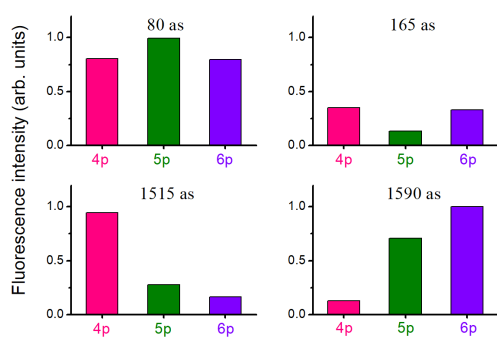


図 1. タンデムアンジュレータによるヘリウム原子の極紫外量子状態制御[1].

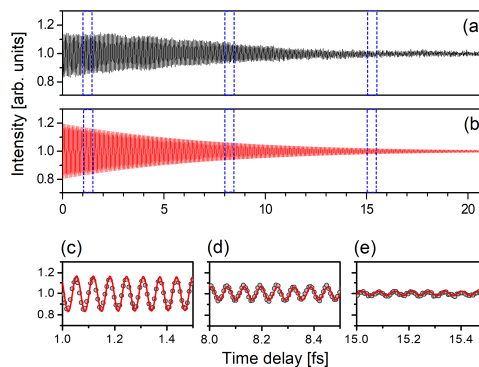


図 2. キセノン原子のフェムト秒電子緩和の時間観測[5]. (a) 蛍光収量の測定値, (b) 計算, (c)-(e) 実験と計算の比較.

#### 引用文献

- [1] Y. Hikosaka et al., Nature Communications **10**, 4988 (2019).  
 [2] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 233401 (2019).

- [3] T. Kaneyasu et al., *New J. Phys.* **22**, 083062 (2020).
- [4] Y. Hikosaka et al., *J. Synchrotron Rad.* **20**, 675 (2020).
- [5] T. Kaneyasu et al., *Phys. Rev. Lett.* **126**, 113202 (2021).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kaneyasu T., Hikosaka Y., Fujimoto M., Iwayama H., Katoh M.	4. 巻 123
2. 論文標題 Controlling the Orbital Alignment in Atoms Using Cross-Circularly Polarized Extreme Ultraviolet Wave Packets	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.233401	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 Hikosaka Y., Kaneyasu T., Fujimoto M., Iwayama H., Katoh M.	4. 巻 10
2. 論文標題 Coherent control in the extreme ultraviolet and attosecond regime by synchrotron radiation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-12978-w	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 -
1. 著者名 Hikosaka Yasumasa, Iwayama Hiroshi, Kaneyasu Tatsuo	4. 巻 27
2. 論文標題 Zeeman quantum beats of helium Rydberg states excited by synchrotron radiation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 675~680
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577520002829	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 Kaneyasu Tatsuo, Hikosaka Yasumasa, Fujimoto Masaki, Iwayama Hiroshi, Katoh Masahiro	4. 巻 22
2. 論文標題 Polarization control in a crossed undulator without a monochromator	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 083062~083062
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1367-2630/aba730	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 -

1. 著者名 Kaneyasu T., Hikosaka Y., Fujimoto M., Iwayama H., Katoh M.	4. 巻 126
2. 論文標題 Electron Wave Packet Interference in Atomic Inner-Shell Excitation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 1~6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.126.113202	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 金安達夫, 彦坂泰正, 加藤政博	4. 巻 33
2. 論文標題 放射光による原子のコヒーレント制御	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本放射光学会誌	6. 最初と最後の頁 327~333
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 彦坂泰正, 金安達夫, 加藤政博	4. 巻 771
2. 論文標題 放射光によるコヒーレント制御	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ISOTOPE NEWS	6. 最初と最後の頁 6~9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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24件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 中村永研, 和田真一, 高口博志, 保坂将人, 加藤政博
2. 発表標題 周波数・時間領域干渉法によるフェムト秒遅延時間の測定
3. 学会等名 原子衝突学会第45回年会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 Xe 4d内殻電子の軟X線波束干渉制御
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 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 Xe 4d内殻電子の軟X線波束干渉制御
3. 学会等名 UVSORシンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 中村永研, 和田真一, 高口博志, 保坂将人, 加藤政博
2. 発表標題 周波数・時間領域干渉法によるフェムト秒遅延時間の測定
3. 学会等名 UVSORシンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 Xe4d内殻電子の軟X線波束干渉制御
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Kaneyasu
2. 発表標題 Coherent Control of Atoms in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation
3. 学会等名 The 25th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 中村永研, 和田真一, 高口博志, 保坂将人, 加藤政博
2. 発表標題 周波数・時間領域干渉法によるフェムト秒遅延時間の測定
3. 学会等名 原子衝突学会第45回年会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 Xe 4d内殻電子の軟X線波束干渉制御
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 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 Xe 4d内殻電子の軟X線波束干渉制御
3. 学会等名 UVSORシンポジウム2020
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 中村永研, 和田真一, 高口博志, 保坂将人, 加藤政博
2. 発表標題 周波数・時間領域干渉法によるフェムト秒遅延時間の測定
3. 学会等名 UVSORシンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 Xe4d内殻電子の軟X線波束干渉制御
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Kaneyasu
2. 発表標題 Coherent Control of Atoms in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation
3. 学会等名 The 25th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金安達夫
2. 発表標題 シンクロトロン光源によるヘリウム原子の極紫外コヒーレント制御
3. 学会等名 原子衝突学会第44回年会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 極紫外フェムト秒放射波束対を用いたヘリウム原子のコヒーレント制御
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金安達夫
2. 発表標題 放射光による原子のコヒーレント制御
3. 学会等名 第25回HiSOR研究会「小型放射光リングによる多彩な量子ビームの発生と応用」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金安達夫
2. 発表標題 放射光を用いた原子のコヒーレント制御
3. 学会等名 UVSORシンポジウム2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama, M. Katoh
2. 発表標題 Coherent control with wave packet pairs from a tandem undulator
3. 学会等名 The 40th International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama, M. Katoh
2. 発表標題 Coherent control in photoexcitation of helium using synchrotron light source
3. 学会等名 The 31st International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 極端紫外ベクトルビームによるヘリウム原子のゼーマン量子ビート
3. 学会等名 原子衝突学会第43回年会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 極端紫外ベクトルビームによるヘリウム原子のゼーマン量子ビート
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama, M. Hosaka, E. Shigemasa, M. Katoh
2. 発表標題 Generation of XUV Vortex Beam and Its Application to Photoionization Study of Rare Gas Atoms
3. 学会等名 International Workshop on Trends in Advanced Spectroscopy in Materials Science (TASPEC) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金安達夫
2. 発表標題 極端紫外ベクトルビームによるヘリウム原子の量子ビート
3. 学会等名 研究会「光・物質・生命・宇宙におけるキラリティ」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 極端紫外ベクトルビームによるヘリウム原子のゼーマン量子ビート
3. 学会等名 UVSORシンポジウム2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金安達夫, 彦坂泰正, 藤本将輝, 岩山洋士, 加藤政博
2. 発表標題 極端紫外ベクトルビームによるヘリウム原子のゼーマン量子ビート
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019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
---------	---------