

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H00164

研究課題名（和文）放射光の位相構造制御法の開発

研究課題名（英文）Development of phase structure control of synchrotron radiation

研究代表者

加藤 政博（Kato, Masahiro）

広島大学・放射光科学研究センター・教授

研究者番号：30185871

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 32,800,000円

研究成果の概要（和文）：量子情報技術の基礎である物質系の量子状態制御には精密に位相制御されたレーザー光が必須と考えられている。本研究では、高エネルギー自由電子が放射する電磁波の位相構造は電子の運動を反映していることに着目し、極端紫外線からX線・ガンマ線に至る幅広い波長領域において位相制御された放射光波束の発生法の開拓を進めた。アンジュレータからの放射波束の時間構造がフェムト秒からアト秒の高い精度で制御できることを実証し、フェムト秒オーダーの超高速緩和現象の観測に成功するなどの応用展開にも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子情報技術や量子計測技術の基盤は精密に位相構造が制御されたレーザー光であるが、我々は、そのような光を、レーザー光ではカバーしきれない真空紫外線からガンマ線に至る広大な波長域で生成する試みた。時間的にはインコヒーレントであるが個々の波束の位相構造は精密に制御されている光を放射光の技術を用いることで生成可能であることを示すことができた。物質と強く相互作用する短波長の光を利用することで、全く新しい計測技術の基盤となるものと考えている。

研究成果の概要（英文）：Precisely phase-controlled laser pulse is considered essential for quantum control of matters, which is the basis of quantum information technology. In this study, we focus on the fact that the phase structure of electromagnetic waves emitted by high-energy free electrons reflects the motion of electrons. We have demonstrated that the time structure of radiated wave packets from undulators can be controlled with high accuracy in the range from femtoseconds to attoseconds. We have also succeeded in applying such undulator radiation to the observation of femtosecond-order ultrafast relaxation phenomena.

研究分野：ビーム物理学

キーワード：放射光 位相 電子 光子 アンジュレータ 加速器 干渉

1. 研究開始当初の背景

量子情報技術の基礎である物質系の量子状態制御には精密に位相制御されたレーザー光が必須と考えられている。これに対し研究代表者らは近年、シンクロトロン中に直列配置された2台のアンジュレータを用いて高エネルギー自由電子からの極端紫外放射光の中にアト秒精度で位相が固定されたダブルパルス状の波束を作り出し、電子群からの時間的に無秩序な自然放射を用いても個々の波束の位相構造を反映して原子の量子状態が制御できることを世界に先駆けて実証した。本研究ではこの全く新しい発想を応用展開するとともに、アンジュレータからレーザー逆トムソン散乱にも展開し、極端紫外線から X 線・ガンマ線に至る幅広い波長領域において位相制御された放射光波束の発生法を開拓することを計画した。直ちに研究を開始できる環境の整った小型シンクロトロンや小型直線加速器を活用し、世界に先駆けて量子ビームの新しい可能性を切り拓くことを目指した。

2. 研究の目的

本研究では、位相制御された放射光波束の生成法を、極端紫外線領域において精密化・高度化を進めつつ、波長域を X 線やガンマ線領域へ拡張する。さらに、このような光と原子・分子あるいは原子核などの物質系との相互作用を観測することで位相制御を実験的に検証する。そこで得られた知見を応用の開拓の基礎とする。加速器技術を駆使し高エネルギー自由電子の運動を制御することで高輝度光を作り出す放射光源は、物質・生命科学などの基礎研究から産業応用まで幅広い分野で標準的な分析用光源として利用されている。しかし、これまで波としての放射光の位相構造を陽に利用することは行われていなかった。これは、放射光がレーザー光とは異なり波束が無秩序に重畳した時間的にコヒーレントでない光であるという思い込みがあったためと考えられる。しかし我々の最近の実験は、個々の電子からの放射波束の位相構造を陽に利用することができる可能性を示している。これまで全く認識されていなかった放射光の新しい可能性を世界に先駆けて追求し、革新的な応用の開拓に結び付けることを目指した。なお、このような応用を可能とするには、放射光源が回折限界であることが重要である。これまで放射光源は輝度の向上へ向けて発展を続けてきたが、回折限界はこの輝度の向上に限界を与えるものである。本研究課題では、回折限界に達して初めて可能となる計測法の開拓に挑戦している。本研究の成果は、現在世界各地で建設・稼働が進んでいる最先端の回折限界放射光源の利用の拡大に貢献できる。

3. 研究の方法

本研究は、(1) 放射光位相制御の波長域の拡大、(2) 放射光位相制御の精密化・高度化の追求、の2つの課題に取り組み、さらに(3) 物質系との相互作用を利用した位相制御の実験的検証、を進めるという構想であった。

(1) 放射光位相制御の波長域の拡大

分子科学研究所の小型放射光源 UVSOR には直列に配置した2台のアンジュレータの間に位相子と呼ばれる電子軌道を大きく蛇行させ光に対し電子を遅延させる電磁石が置かれた特殊な光源装置が整備されている。UVSOR の電子エネルギー (750MeV) ではアンジュレータ放射の波長は紫外から極端紫外線領域となる。波長をさらに X 線領域へと拡張していくには、電子エネルギーの高い放射光源を用いるのが直接的であるが、電子エネルギー GeV 級の大型放射光施設で位相子を備えた直列アンジュレータが利用できる環境は現在のところ存在しない。本研究課題では、X 線を超えて更に波長の短いガンマ線領域までの拡張を視野に入れて、アンジュレータの代わりにレーザー光を用いることを考えた。レーザー逆トムソン散乱では電子はレーザー場の中で周期運動し電磁放射する。通常のアンジュレータ磁場周期が数 cm 程度であるのに対し、レーザー電磁場周期 (波長) は 1 ミクロン程度と短いことから、放射波長は X 線からガンマ線の領域となる。時間間隔を精密に制御したダブルパルスレーザーを逆トムソン散乱することで、2つの直列アンジュレータからの放射と同様に、ダブルパルス状の位相構造を有する X 線・ガンマ線波束を生成できるはずである。本研究課題では小型直線加速器とレーザーの組み合わせで X 線領域において、また、シンクロトロンとレーザーを用いてガンマ線領域において、ダブルパルス構造波束を生成することを計画した。位相構造の確認は、スペクトル計測を行いダブルパルス位相構造を反映した干渉効果により放射スペクトル中に微細構造が現れる効果を観測することで行うこととした。生成したガンマ線のスペクトル計測にはゲルマニウム検出器を基礎とする検出系を新規に構築することとした。

(2) 放射光位相制御の精密化・高度化の追求

レーザーを利用する従来の量子状態制御では位相のアト秒精度での制御が本質的に重要であるが、通常の光学的な手法では波長が短くなるにつれてその制御が実際上極めて困難なものとなることは容易に想像できる。ところがアンジュレータや逆トムソン散乱を用いると、単純に電子のエネルギーを上げることで放射波長とダブルパルス構造における時間差の両方が同様に小さくなるため、短波長化してもその位相制御精度は劣化しない。他方、電子ビームの角度拡がり

やエネルギー広がりにより時間差にばらつきが生じる効果が重要となってくる。このような位相制御精度を悪化させる様々な要因の実験的に検証することを試みる。また、位相の時間構造と空間構造の組み合わせである。我々は過去の研究で、アンジュレータ放射からの高次光が空間的に特異な位相構造を有していることを示してきた。位相構造の時空間構造を放射光スペクトルや物質系との相互作用を空間的に掃引しながら観測することでこれを実験的に検証し、さらに、個々の放射波束の位相構造を直接的に検証することを目指した。現在のアンジュレータは、上記のような精密観測を行うにはその内部での電子軌道の制御精度が十分ではない。このためにアンジュレータ中に軌道補正コイルを新たに設け、また時間構造を制御するための位相制御磁石の高度化に向けた開発研究を進めることとした。

(3) 物質系との相互作用を利用した位相制御の実験的検証

極端紫外域での研究代表者らのこれまでの実験で、従来は精密位相制御されたレーザーにより行われてきた孤立原子の励起における遷移確率の制御や電子軌道の方向制御などが放射光でも可能である可能性が示された。また、孤立原子系が垂直偏光波束と水平偏光波束からなるダブルパルス構造波束に対してその位相差に依って異なる偏光応答を示すことも実験で確認できた。本課題では、これらの実験から示唆される位相制御された放射光と物質系との相互作用を利用し、放射位相制御を実験的に検証する。このために、時間応答の速い内殻励起、異なる波長や偏光の波束の組み合わせなどの様々な位相構造を有する極端紫外線、X線、ガンマ線について系統的に実験を進める。実験は、これまで継続的に実験を行ってきた分子科学研究所の放射光源 UVSOR の BL1U ビームラインを使用して行うこととした。

4. 研究成果

量子情報技術の基礎である物質系の量子状態制御には精密に位相制御されたレーザー光が必須と考えられている。これに対し研究代表者らは最近、シンクロトロン中に直列配置された2台のアンジュレータを用いて高エネルギー自由電子からの極端紫外放射光の中にアト秒精度で位相が固定されたダブルパルス状の波束を作り出し、電子群からの時間的に無秩序な自然放射を用いても個々の波束の位相構造を反映して原子の量子状態が制御できることを世界に先駆けて実証した。本研究ではこのような実験をさらに発展させるとともに、その基礎となる放射波束の時間構造を実験的に検証することに最優先で取り組んだ。また、全く新しい発想をアンジュレータからレーザー逆トムソン散乱に展開し、極端紫外線からX線・ガンマ線に至る幅広い波長領域において位相制御された放射光波束の発生法を開拓してきた。

真空紫外領域における応用研究においては、アンジュレータ放射の時間構造を利用することでキセノン原子の内殻空孔状態が起こす数フェムト秒の電子的な緩和を追跡することに成功した。2フェムト秒だけ継続する放射光波束のペアの時間差をアト秒オーダーの高い時間精度で制御することで実現した(図1)。

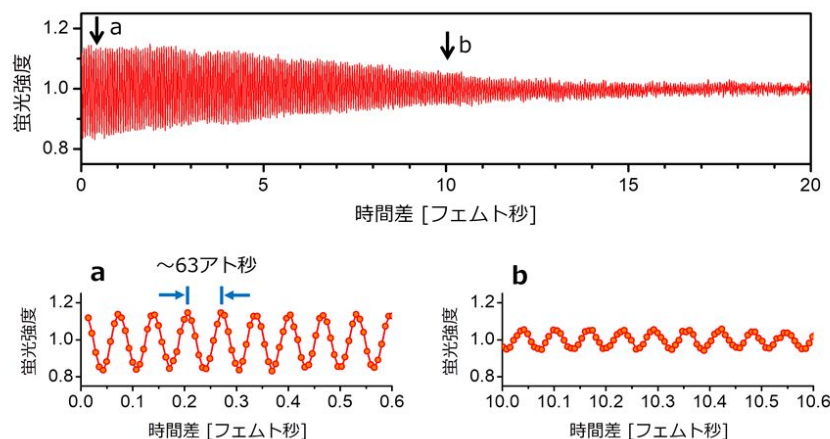


図1：上段：波束ペアの時間間隔を変えながら測定したキセノン原子の内殻空孔状態からの蛍光強度。下段：時間領域 a, b 付近の拡大図。二つの波束による量子状態の干渉効果のため、63 アト秒周期の変動が観測される。波束ペアの時間間隔が大きくなると内殻空孔状態の電子緩和のために周期変動の振幅が減衰する。[1]

上記のような応用研究の基盤となる、放射光波束の位相構造について、アンジュレータからの放射波束がアンジュレータ磁場周期数と同じサイクル数の超短パルス時間構造を有していること、また、その時間構造をフェムト秒からアト秒の精度で制御が可能であることを、干渉計による手法により実証することを試みた。マッハツェンダー型干渉計により放射光の自己干渉波形を観測した結果、実験で用いた10周期のアンジュレータから10サイクルの光波束が放射されており、また、このようなアンジュレータを2台直列に配置した場合、ダブルパルス構造を有する光波束が放射されていることを示すデータが得られた(図2)。

このような自己干渉波形は位相情報を含んでいないことから、さらに研究を進め、超短パルス

レーザーの電場波形計測に用いられている Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction (SPIDER)法を放射光に適用した。その結果、位相情報も含めてアンジュレータ放射波束の時間構造の復元に成功した(図3)。このような試みは世界的にも初めてであり、今後自由電子レーザーの性能評価などへの応用も期待される。

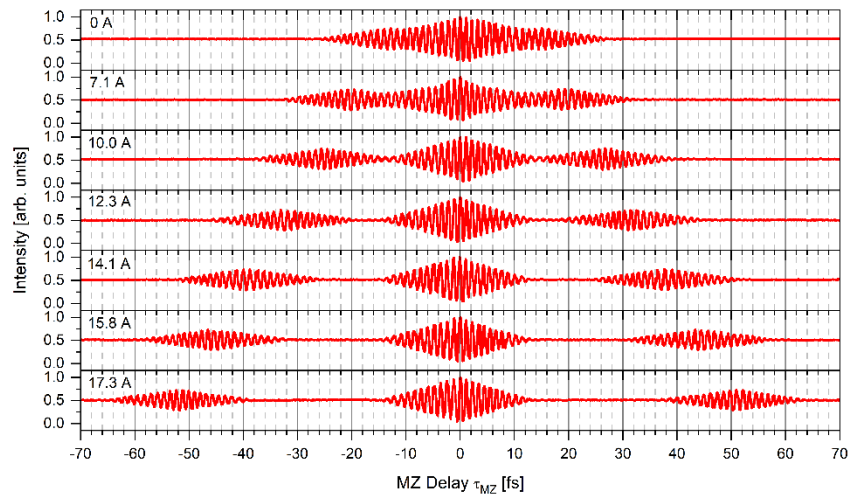


図2 .直列アンジュレータからの放射光の自己干渉波形の観測結果。ダブルパルス構造を反映して干渉波形が2つに分裂し、位相制御磁石の電流値を制御することでダブルパルス間の時間差をフェムト秒からアト秒の高精度で制御できていることがわかる。[2]

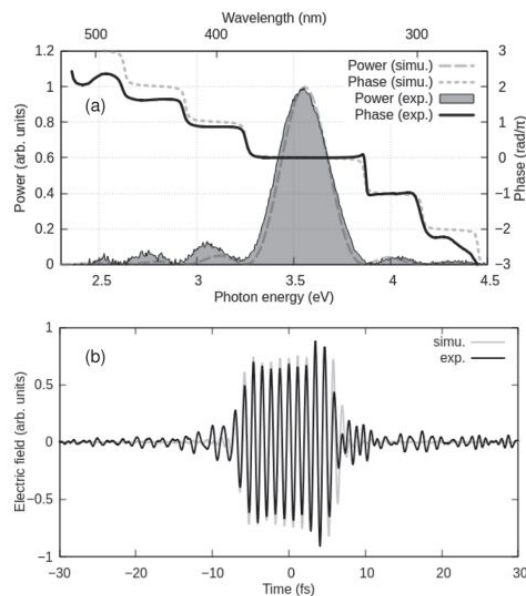


図3 . SPIDER 法によるアンジュレータ放射波束の電場構造の観測結果

2台のアンジュレータを使用し、周波数領域での位相情報を得決定し(上段)、時間領域の波形を復元した(下段)。[3]

紫外及び真空紫外線の領域でのアンジュレータを用いた実験では、位相子磁石の磁場精度が重要であるが、本来の目的(自由電子レーザー発振用)とは異なる目的での使用法であり、磁石の磁気履歴効果が大きく磁場精度の再現性が実験によっては十分でないという問題が見出されていた。これを解決するために、磁気履歴効果の小さい位相子電磁石の開発として、磁場計算及びモデル磁石の製作を進めた。その結果、現状の限られた空間内に設置可能で時期履歴効果の十分に小さい位相子磁石の製作が可能であることがわかった。今後、研究資金の獲得に努め位相子磁石の更新を行う。

X線・ガンマ線領域での放射波束の時間構造制御に向けて入射レーザーパルス成形装置の試作を進め、性能評価を行った。当初、小型線形加速器を利用する実験を計画していたが、研究分担者の配置転換の事情により、小型加速器の利用が困難となったことから、シンクロトロンを利用するガンマ線実験へ集中することとした。レーザー入射路の構築を行い、レーザー入射及びガンマ線スペクトル計測までを研究期間内に行うことができた。これまでに、目的の放射スペクトルを観測するには入射レーザー光の電子ビーム軌道上での集光条件を最適化する必要があることなど、いくつかの問題点が見出され、将来の実験へ向けての指針を得ることができた。実験デー

タの解析を進めつつ実験装置の改良を継続し世界に先駆けた成果の創出に努めたい。

本研究の主要な実験の多くは分子科学研究所の放射光源 UVSOR のビームライン BL1U を用いて行ってきた。本ビームラインは紫外線からガンマ線までの広範囲の電磁波の放射が可能であったが、本研究課題の多様な実験に柔軟に対応するために実験配置の切り替えが短時間・少人数で行えるようビームライン配置を見直し、効率的な運用が可能となった。このことにより、応用研究も含めた本研究の次の展開へ向けた研究基盤整備ができた。

当初、想定していなかった研究の展開として、単一電子蓄積に挑戦した。一個の電子が放射する単一光子の物理的特性を実験的に調べるための基礎技術である。通常、放射光源用電子蓄積リングには 10 の 10 乗個以上の電子が蓄積周回しているが、これに対してたった 1 個の電子が周回する運転状態を作り出す方法を確立することに成功した。光電子増倍管により放射光強度を計測することで、特定の RF バケットに 1 個の電子が捕獲された状態を 2 時間以上維持できることを確認することができた。またこのような運転状態を用いて、単一電子からの放射光の基礎的な性質を調べる実験に着手することができた。単一光子の位相構造を利用する全く新し計測技術の開拓に結び付けたいと考えている。

<引用文献>

- [1] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. 126(11) 1132202, 2021
- [2] T. Kaneyasu et al., Sci. Rep. 12(1) 9682, 2022
- [3] T. Fuji et al., Optica 10(2) 302, 2023

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 6件）

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 1132202-1-6
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 オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Salehi Elham, Katoh Masahiro	4. 巻 8
2. 論文標題 Spatial structure and angular momentum of electro-magnetic wave radiated from a relativistic electron moving on a spiral orbit	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Advanced Simulation in Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 87～97
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.15748/jasse.8.87	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 Taira Yoshitaka, Fujimoto Masaki, Ri Shien, Hosaka Masahito, Katoh Masahiro	4. 巻 22
2. 論文標題 Measurement of the phase structure of elliptically polarized undulator radiation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 093061～093061
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1367-2630/abb54a	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 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 Fuji Takao, Kaneyasu Tatsuo, Fujimoto Masaki, Okano Yasuaki, Salehi Elham, Hosaka Masahito, Takashima Yoshifumi, Mano Atsushi, Hikosaka Yasumasa, Wada Shin-ichi, Katoh Masahiro	4. 巻 10
2. 論文標題 Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of synchrotron radiation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Optica	6. 最初と最後の頁 302 ~ 302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/optica.477535	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 該当する

1. 著者名 Kaneyasu T., Hosaka M., Mano A., Takashima Y., Fujimoto M., Salehi E., Iwayama H., Hikosaka Y., Katoh M.	4. 巻 12
2. 論文標題 Double-pulsed wave packets in spontaneous radiation from a tandem undulator	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-13684-2	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 該当する

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 加藤慧悟、島田美帆、宮内洋、藤本将輝、真野篤志、保坂将人、高嶋圭史、加藤政博
2. 発表標題 放射光の時間干渉性を利用した断層撮像の試み
3. 学会等名 第35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 2022年

1. 発表者名 四之宮諒、島田美帆、宮内洋司、藤本将輝、加藤政博
2. 発表標題 放射光源電子蓄積リングにおける単一電子蓄積の試み
3. 学会等名 第35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 2022年

1. 発表者名 和田真一、太田寛之、真野篤志、藤本将輝、加藤政博
2. 発表標題 アンジュレータ放射光渦のダブルスリット回折カウンティング実験
3. 学会等名 第35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 2022年

1. 発表者名 T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama, M. Katoh
2. 発表標題 Coherent Control of Atoms in the Extreme Ultraviolet and Attosecond Regime by Synchrotron Radiation
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (招待講演)
4. 発表年 2022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 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加藤政博
2. 発表標題 放射光の時空間構造の制御とその応用の可能性
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 真野篤志, 木村信之介, 高嶋圭史, 保坂将人, 加藤政博
2. 発表標題 マイケルソン干渉を用いたアンジュレータ光のコヒーレンス長測定
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 和田真一, 太田寛之, 真野篤志, 加藤政博
2. 発表標題 アンジュレータ放射光渦のダブルスリット回折カウンティング実験
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021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
研究分担者	藤 貴夫 (Fuji Takao) (20313207)	豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授 (33924)	
研究分担者	高嶋 圭史 (Yoshifumi Takashima) (40303664)	名古屋大学・シンクロトロン光研究センター・教授 (13901)	
研究分担者	坂本 文人 (Sakamoto Fumito) (60504818)	秋田工業高等専門学校・その他部局等・准教授 (51401)	

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	平 義隆 (Yoshitaka Taira) (60635803)	分子科学研究所・極端紫外光研究施設・准教授 (63903)	
研究 分 担 者	豊川 弘之 (Hiroyuki Toyokawa) (80357582)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合セン ター・研究グループ長 (82626)	

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