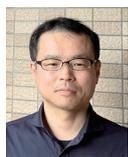


極紫外光パルスのアト秒位相制御と原子分子物理への応用



金 安 達 夫

九州シンクロトン光研究センター/分子科学研究所
kaneyasu@saga-ls.jp



彦 坂 泰 正

富山大学教養教育院
hikosaka@las.u-toyama.ac.jp



加 藤 政 博

広島大学放射光科学研究所/分子科学研究所
mkatoh@hiroshima-u.ac.jp

広帯域の超短パルス光を原子や分子に照射すると固有状態を重ね合わせた量子波束が生成される。ダブルパルスで原子や分子を励起すれば量子波束のペアが形成され、その位相差に応じた干渉が生じる。そこでは光電場の振幅と位相が波動関数に転写されるため、光パルスの電場波形を上手く制御することで量子波束の干渉を操作できることになる。1980年代には、そのような光による量子干渉の操作を化学反応制御へ応用するアイデアが提唱された。そして光学レーザーの発展とあいまって、1990年代以降、光による原子・分子の量子状態や反応過程の制御の研究は実験・理論の両面から急速に活発化していった。

高度な波形制御ができるレーザー光が、量子干渉の制御の実現をもたらした。ただし可視やその近辺の波長域をカバーする光学レーザーが得意とするのは、分子の振動、回転状態や束縛エネルギーの低い最外殻電子の制御である。またこの波長域では光電場の振動周期が数フェムト秒となるため、フェムト秒よりさらに短い時間スケールで進行する超高速反応の制御や追跡はできない。そのため極紫外（波長～数十nm）やさらに短い波長域において、光電場波形を精密に制御したダブルパルスを発生する光源の開発が待ち望まれていた。

そのようななか、2010年代に入り、高次高調波レーザーや**シード型自由電子レーザー**によって極紫外域の超短ダブルパルスの生成とアト秒レベルでの位相制御が実現された。この技術革新には、1990年代以降に急速に発展したフェムト秒レーザー技術や加速器によるコヒーレント光生成技術

が大きな役割を果たしている。一方、レーザー光源とは異なる方向性で、**シンクロトン放射**による極紫外ダブルパルスの生成技術も開発されている。これは放射光リングを周回する個々の電子からの放射波形を活用するアプローチであり、既存の加速器技術の枠組みで光電場波形をアト秒レベルで容易に操作できることが利点である。

これらの光源で実現した極紫外ダブルパルスを用いて、近年、原子、分子に関する基礎研究で先駆的な成果が報告されている。たとえば、2010年代後半には高次高調波と自由電子レーザーを用いて原子のイオン化や分子イオンの解離といった基礎的な原子分子過程の量子制御が実現している。またシンクロトン放射を用いた研究では、原子の励起状態の占有率や電子軌道形状の量子制御が実現した。

さらに、極紫外光の位相をアト秒レベルで制御できることから、これまでは周波数領域の分光手法で調べられていた短寿命状態のダイナミクスを時間領域で捉えられるようになってきた。内殻空孔のオーグメント過程や励起状態の自動イオン化、分子の原子間クーロン緩和など、極紫外光でなければ励起できない短寿命な状態の緩和過程がその対象となっている。また量子干渉を利用した原子の高励起状態の高精度分光は、基礎物理研究への応用が期待されている。

現在、さらなる短波長化や短パルス化へ向けた光源開発が急速に進んでおり、近い将来にはX線ダブルパルスの位相制御を駆使したzeptosecond域での原子分子物理が開拓される可能性があるだろう。

用語解説

シード型自由電子レーザー：自由電子レーザーでは周期磁場中で蛇行運動をしながら進む電子ビームが自身の放出する電磁波を増幅する。通常はこの電磁波の増幅は揺らぎから始まるが、増幅過程の種（シード）となる電磁波を外部から注入することで形成される電磁波のコヒーレンスを制御することができる。このような手法をシード型自由電子レーザーと呼ぶ。

シンクロトン放射：磁場中をほぼ光速で運動する電子からの電磁放射。一樣磁場中で放射される白色光に替わり、最近の放射光施設では、アンジュレータと呼ばれる装置を用いて電子ビームの軌道上に周期磁場を作り、蛇行運動する電子から放射される高輝度な準単色光を用いる場合が多い。下図は著者らがダブルパルスの発生に用いた、分子科学研究所の放射光施設UVSORに設置された二連のタンデムアンジュレータの概要。

