

放射光による原子のコヒーレント制御

金安 達夫

九州シンクロtron光研究センター

光を用いて物質の性質や機能を量子論に基づいて自在に制御することは、光科学・物質科学研究の究極的な目標の一つである。1990年代以降のレーザー技術の急速な発展は、高度に波形制御された光による物質の量子状態制御を実現した。今日ではレーザー光による量子状態の制御や計測は、光科学から量子情報科学まで幅広い分野で活用される基盤的な実験手法といえる。

我々は最近、タンデムアンジュレータ（図1 a）を使えば、放射光源でもアト秒レベルで波形が制御されたダブルパルスが容易に得られることに着目し、それを使った量子状態制御（コヒーレント制御）を考案した。そして分子研 UVSOR において気相原子を対象とした実証実験を行い、極端紫外域のダブルパルスによるヘリウム原子の状態占有率[1] や電子軌道形状[2]の量子制御を実現した[3]。さらに軟 X 線波長域へと本手法を拡張し、キセノン原子の内殻空孔状態のフェムト秒電子緩和の時間観測[4]に成功した。いずれの実験においても操作パラメータはダブルパルスの時間間隔である。これをアト秒レベルで調整することでダブルパルスによって生成された原子内部の量子波束を干渉操作し、原子系の量子状態の制御や崩壊過程の時間計測を実現した。本手法の短波長化には原理的な制約は見当たらず、将来的には放射光の新たな利用法を切り拓く可能性が高いと期待している。

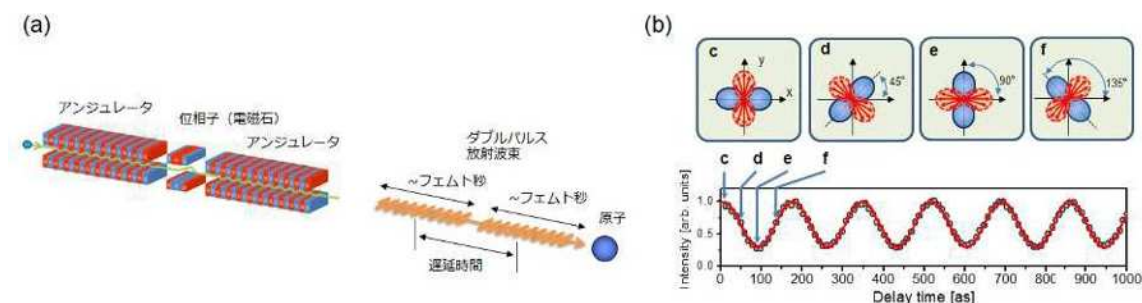


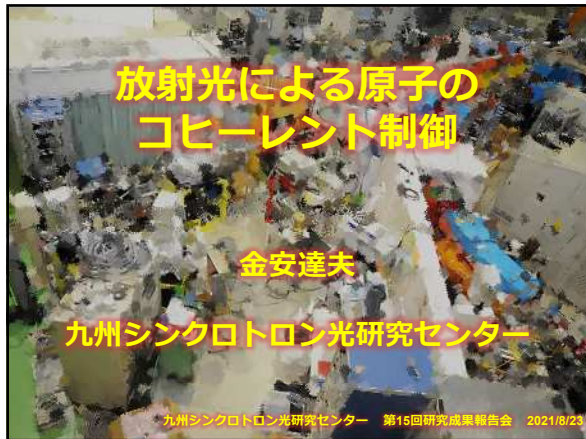
図1：(a) タンデムアンジュレータによるダブルパルス放射波束の発生，(b) ヘリウム原子の電子軌道形状のアト秒量子制御。

[1] Y. Hikosaka et al., Nat. Commun. **10**, 4988 (2019).

[2] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 233401 (2019).

[3] 金安達夫，彦坂泰正，加藤政博，日本放射光学会誌 **33**, 327-333 (2020)

[4] T. Kaneyasu et al., Phys. Rev. Lett. **126**, 113202 (2021).



Contents

- ✓ Background: coherent control
- ✓ Experimental: coherent control by synchrotron radiation
- ✓ Photoexcitation of He in XUV
 - wave packet interference
 - controlling the population and orbital alignment
- ✓ Wavepacket interference in atomic inner-shell excitation
 - excitation of 4d electron in Xe
 - tracking femtosecond Auger decay

XUV
Y. Hikosaka et al., Nat. commun. 10 (2019) 4988
T. Kaneyasu et al., PRL 123 (2019) 233401, NJP 22 (2020) 063062.

Soft x-ray
T. Kaneyasu et al., PRL 126, 113202 (2021)

Collaborators

富山大学
彦坂泰正

広島大学HiSOR, 分子研UVSOR
加藤政博

分子研UVSOR
藤本将輝, 岩山洋士

放射光の時空間構造の利用

加速器光源
VUV-X線域で時空間構造 (波面) を操る
アト秒・偏光制御ダブルパルス 円偏光渦放射

空間コヒーレンス・光操作技術
原子の光渦励起
パルス特性の利用

時間コヒーレンス
光を使って電子波束を操る (波束干渉)
量子状態制御 高速電子ダイナミクス

放射光研究の新展開
気相孤立原子から様々な物質系へ
光源高度化
・短波長化, 少サイクル化
X線コヒーレント制御, アト秒放射光科学

放射光科学30年の歩みと展望

渦放射光の生成とその応用の試み

長谷川 大
金安達 夫
加藤 政博

日本放射光学会誌 31, 84 (2018)

トピックス

放射光による原子のコヒーレント制御

金安達 夫
加藤 政博
藤本 将輝
岩山 洋士

日本放射光学会誌 33, 327 (2020)

Background: coherent control

Controlling the population and reaction in matter by light

Brumer-Shapiro ($3\omega_1/\omega_2$) scheme

Wave Packet Interferometry

UV
UV

L. Zhu et al., PRL 79 4108 (1997)

K. Ohmori et al., PRL 91 243003 (2003)

Short wavelength control (XUV+XUV)

High harmonic generation Dissociation pathways of H_2^+ molecules

Y. Nabekawa et al., Nat. Commun. 7 12835 (2016)

Seeded Free Electron Laser Ne 2p photoelectron angular distribution

K. C. Prince et al., Nat. Photonics 10 176 (2016)

$\lambda_{1st} \sim 62.97 \text{ nm}$
 $\lambda_{2nd} \sim 31.5 \text{ nm}$

Contents

- ✓ Background: coherent control
- ✓ Experimental: coherent control by double-undulator
- ✓ Photoexcitation of He in XUV
 - wave packet interference
 - controlling the population and orbital alignment
- ✓ Wavepacket Interference in atomic inner-shell excitation
 - excitation of 4d electron in Xe
 - tracking femtosecond Auger decay

Waveform of Undulator Radiation

Conventional Undulator

Relativistic Electron

N -period Undulator

N -cycle radiation wave packet

Waveform of undulator radiation

Double-Undulator

N -period Phase shifter N -period

Pair of N -cycle radiation wave packets

Contents

- ✓ Background: coherent control
- ✓ Experimental: coherent control by synchrotron radiation
- ✓ Photoexcitation of He in XUV
 - wave packet interference
 - controlling the population and orbital alignment
- ✓ Wavepacket Interference in atomic inner-shell excitation
 - excitation of 4d electron in Xe
 - tracking femtosecond Auger decay

Control scheme: wave packet interferometry

2nd pulse 1st pulse

Delay τ

Atom

Undulator radiation

Pair of Electron Wave Packets

$$|\psi_e(t)\rangle \cong \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k^{(1)} (1 + e^{i\omega_k \tau}) |e_k\rangle$$

controlling the interference by delay τ

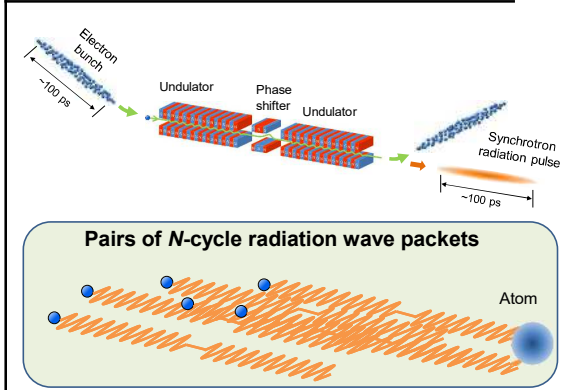
oscillation with optical cycle $2\pi/\omega_k$

$$n_k \propto 1 + \cos \omega_k \tau$$

Population

Delay τ

Double-undulator in synchrotron



Wave Packet Interferometry by Randomly Distributed Coherent Pulse-pairs

Electron Wave Packet Pairs

$$|\psi_e(t)\rangle \cong \sum_j \left\{ \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k e^{i\omega_k T_j} |e_k\rangle + \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k e^{i\omega_k T_j} |e_k\rangle \right\}$$

$$= \sum_j \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k (1 + e^{i\omega_k \tau}) e^{i\omega_k T_j} |e_k\rangle$$

Population

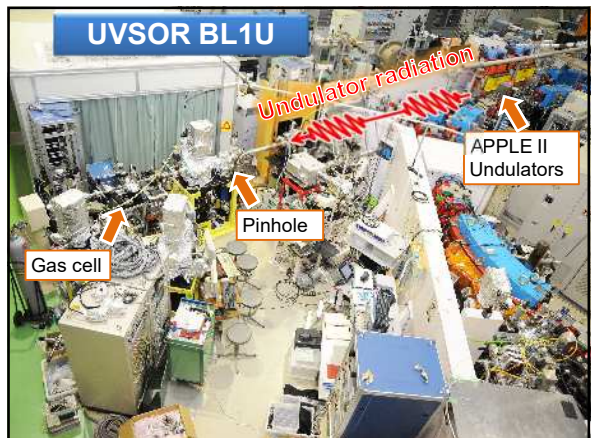
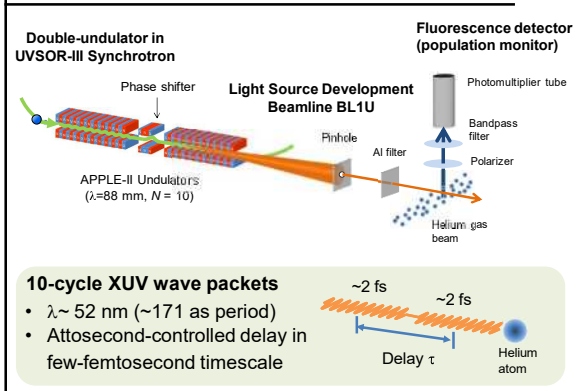
$$n_k = |\langle e_k | \psi_e(t) \rangle|^2 = e^{-i\omega_k t} a_k (1 + e^{i\omega_k \tau}) e^{+i\omega_k t} a_k^* (1 + e^{-i\omega_k \tau}) \sum_{lm} e^{i\omega_k (T_l - T_m)}$$

$$= 2N |a_k|^2 (1 + \cos \omega_k \tau)$$

cross terms are cancelled out

T. Kaneyasu et al., NJP 22 (2020) 083062

Experimental setup



Population control of He atom

Pair of linear polarized wave packets

Delay τ

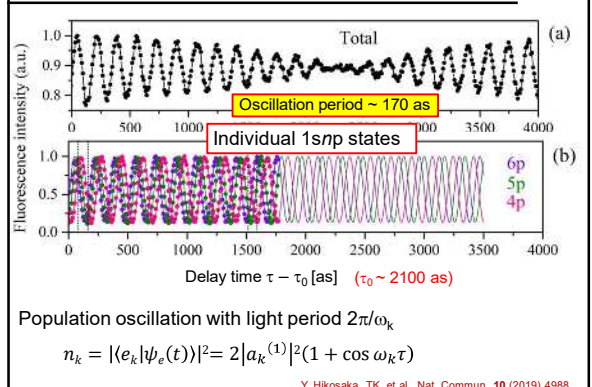
He atom

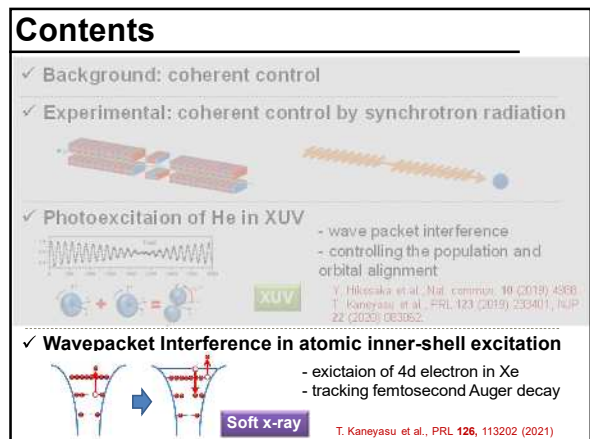
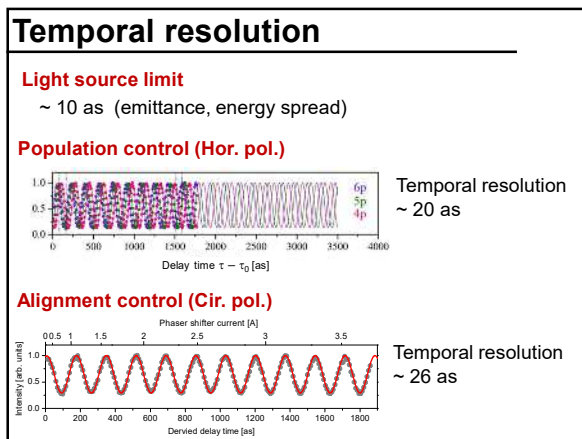
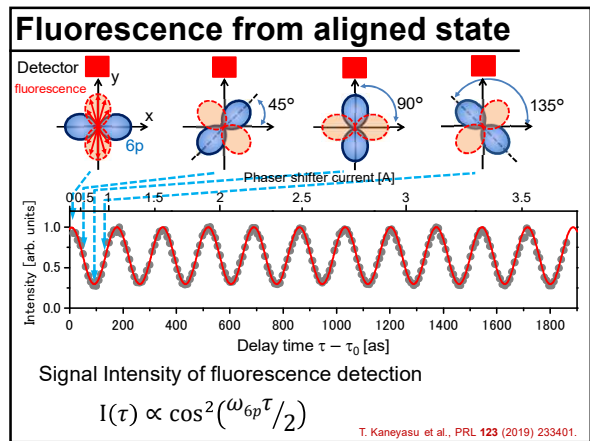
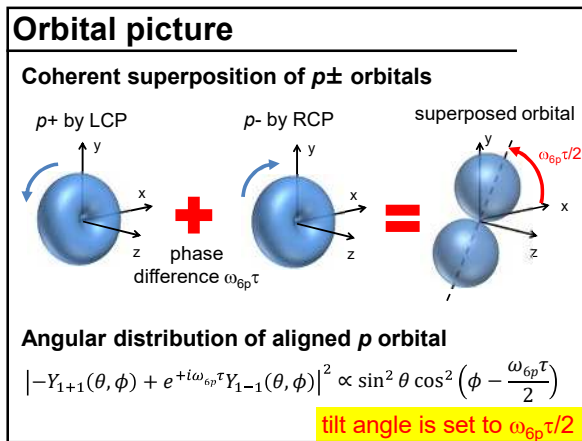
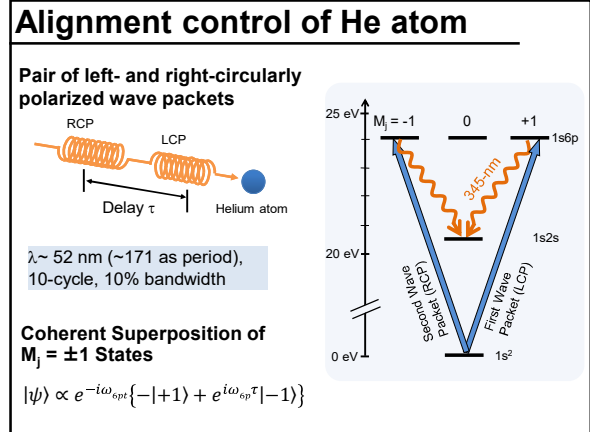
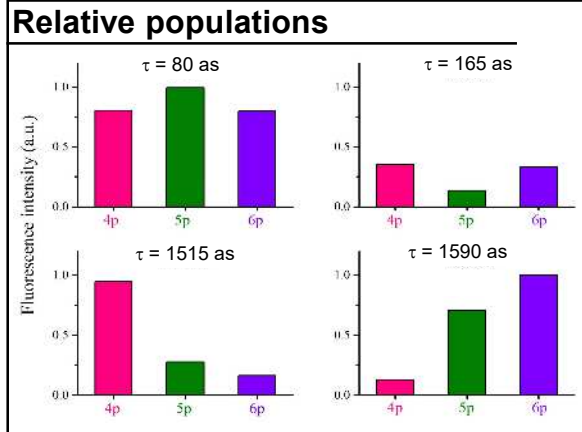
$\lambda \sim 52$ nm (~ 171 as period), 10-cycle, 10% bandwidth

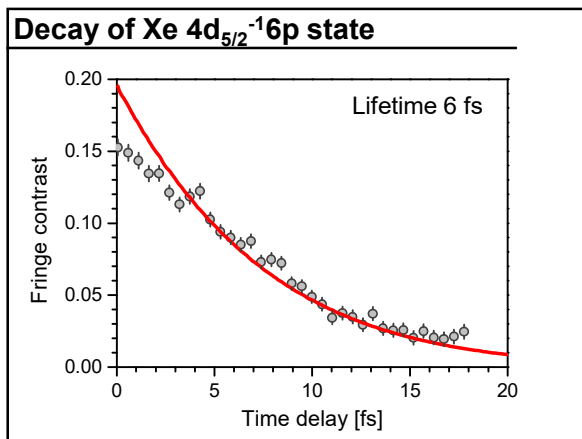
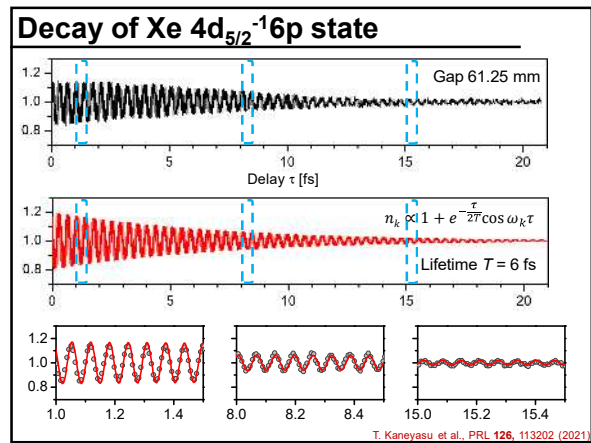
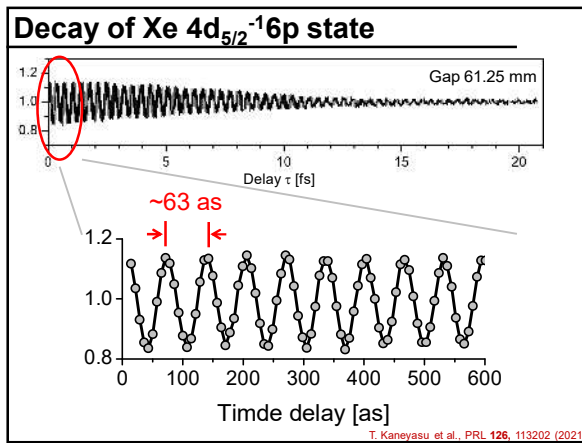
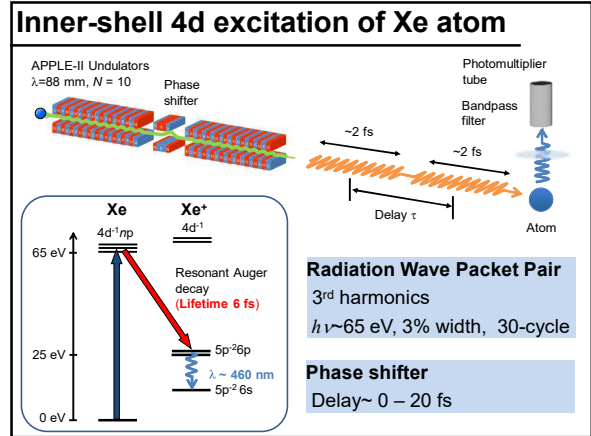
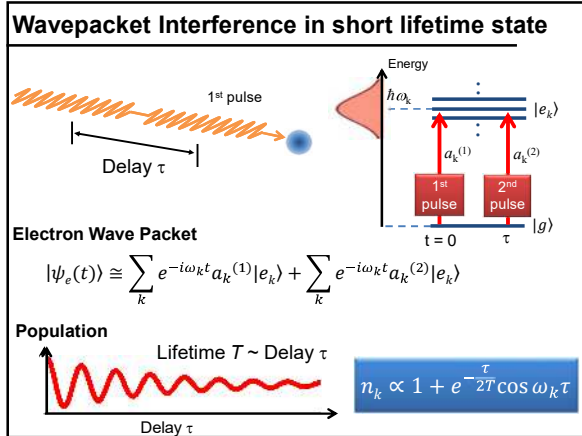
Rydberg electron wave packet

$$|\psi_e(t)\rangle \cong \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k (1 + e^{i\omega_k \tau}) |e_k\rangle$$

Fluorescence from 1snp states







Nature Research Highlights 2021/3/24

nature

ARTICLE IN ADVANCE

An atom shuffles its electrons at ultrahigh speed – and is caught in the act

T. Kaneyasu et al. | 1–5 | 24 March 2021

Scientists capture the movement of electrons in a transition, a phenomenon that occurs at a fraction of a quadrillionth of a second.

Fast light waves can be used to observe and manipulate single atoms in real time. In this experiment, researchers used a technique called attosecond spectroscopy to capture the movement of electrons in a transition, a phenomenon that occurs at a fraction of a quadrillionth of a second.

Physicists have long been able to observe and manipulate single atoms in real time. In this experiment, researchers used a technique called attosecond spectroscopy to capture the movement of electrons in a transition, a phenomenon that occurs at a fraction of a quadrillionth of a second.

Physicists have long been able to observe and manipulate single atoms in real time. In this experiment, researchers used a technique called attosecond spectroscopy to capture the movement of electrons in a transition, a phenomenon that occurs at a fraction of a quadrillionth of a second.

The authors suggest that their approach could be used to understand the transition for a wide range of elements.

Phys. Rev. Lett. (2021)

Atomic and molecular physics

Summary

- 放射光によるアト秒コヒーレント制御
 - タンデムアンジュレータからのダブルパルス
 - アト秒レベルの遅延制御, 波長や電場サイクル数・偏光設定に原理的制約なし
- 実証実験
 - ヘリウム原子の量子制御 (population, alignment)
 - 内殻電子の干渉制御とフェムト秒オージェ過程の時間観測

Acknowledgements

JSPS: 17H01075, 18K03486, 18K11945
Research Foundations for Opto-Science Technology
Frontier Photonic Sciences Project of National Institutes of
Natural Sciences (NINS): 01211906