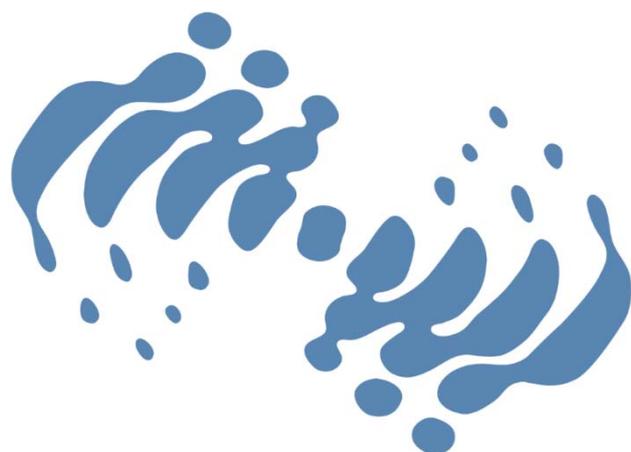


原子衝突学会誌

しょうとつ

第 15 巻
第 3 号
2018 年

解 説 極短紫外域の光渦を用いた原子分子の研究 金安達夫



**THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN**

原子衝突学会賛助会員（五十音順）

アイオーピー・パブリッシング・リミテッド（IOP 英国物理学会出版局）

Institute *of* **Physics**

<http://journals.iop.org/>

アドキャップバキュームテクノロジー株式会社



<http://www.adcap-vacuum.com>

有限会社イーオーアール



Electronics Optics Research Ltd.

<http://www.eor.jp/>

イノベーションサイエンス株式会社



<http://www.innovation-science.co.jp/>

株式会社オプティマ

Optima Corp.

<http://www.optimacorp.co.jp/>

クリムゾン インタラクティブ プライベート リミテッド

enago™

<http://www.enago.jp/>

<http://ulatus.jp/>

<http://www.voxtab.jp/>

株式会社サイエンス ラボラトリーズ



株式会社 サイエンス ラボラトリーズ

<http://www.scilab.co.jp/>

真空光学株式会社

真空光学株式会社 -Vacuum & Optical Instruments-

<http://www.shinku-kogaku.co.jp/>

スペクトラ・フィジックス株式会社



<http://www.spectra-physics.jp/>

ソーラボジャパン株式会社



<http://www.thorlabs.jp/>

ツジ電子株式会社



<http://www.tsujicon.jp/>

ツジ電子株式会社
株式会社東京インスツルメンツ



<http://www.tokyoinst.co.jp/>

株式会社ナバテック

真空機器の未来と歩む



<http://www.navatec.co.jp/>

仁木工芸株式会社



<http://www.nikiglass.co.jp/>

伯東株式会社



<http://www.g5-hakuto.jp/>

株式会社ラボラトリ・イクイップメント・コーポレーション



<http://www.labo-eq.co.jp/>

しょうとつ

第 15 卷 第 3 号



THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN

目 次

巻頭言 会長挨拶	城丸春夫	... 46
解説 極短紫外域の光渦を用いた原子分子の研究	金安達夫	... 47
原子衝突若手の会第 38 回秋の学校開催報告	松山嗣史	... 57
第 25 回原子衝突セミナー報告	前行事委員会委員長	... 58
第 25 回原子衝突セミナー参加報告	立花佑一	... 59
第 25 回原子衝突セミナー参加報告	飯田健介	... 60
第 19 回若手奨励賞受賞者決定のお知らせ	前顕彰委員会委員長	... 61
第 43 回原子衝突学会年会のお知らせ	行事委員会委員長	... 61
第 43 回原子衝突学会年会優秀ポスター賞実施のお知らせ	顕彰委員会委員長	... 62
2018 年度第 1 回運営委員会(文書持回)報告	庶務委員会委員長	... 62
2018 年度第 2 回運営委員会(新旧合同)報告	庶務委員会委員長	... 63
庶務委員会からのお知らせ	庶務委員会委員長	... 63
編集委員会からのお知らせ	編集委員会委員長	... 63
「しょうとつ」原稿募集	編集委員会事務局	... 64
ユーザー名とパスワード		... 64

会長挨拶

原子衝突学会会長

城丸春夫

shiromaru-haruo@tmu.ac.jp

原子衝突学会の新会長として、会員の皆様にごあいさつ申し上げますとともに、はなはだ雑駁ですが、今後の運営に対する抱負をお伝えいたします。

原子衝突学会は前身の原子衝突研究協会(1976-2011)の時代から数えて40年以上の歴史を有し、小規模ながらユニークな学会として、他学会からも高く評価されてきました。会員の皆様には、本学会が開催する年会やセミナー、また「しょうとつ」の内容について、今のところ概ねポジティブな評価を頂いております。まずは、この評価を落とすことの無いよう、これからも関連分野の研究の活性化や若手研究者の育成に貢献ができるよう、職務に当たる所存です。

多くの会員にとって、特に正会員にとって、本学会は所属する唯一の学術団体ではありません。おそらく本学会のような「分野に特化した中小規模の学会」と、物理学会、応用物理学会、化学学会のような「一万人以上の会員を擁し従来の学問領域を大きく網羅するような学会」の両方に所属して活動しておられるでしょう。それぞれの学会には研究領域の歴史を反映した独自の文化があり、年会の雰囲気も多種多様です。本学会の年会によく参加している方は、その雰囲気も気に入って下さっているのだと思います。私自身も小規模学会ならではのインフォーマルな手作り感が好きです。一方で、学会活動が内輪の会になってしまわないように、メンバーを固定化しないこと、近隣領域に目を向けることを意識していきたいと思います。

サイズが小さいということは組織としての inertia が小さく、変化を求めればどんどん変わっていく

ことが可能です。一方、本学会は長い歴史を持っており、その伝統は尊重されるべきものです。この、変わるもの、変わらないものの程よいバランスをどのあたりに持ってくるか、悩ましいところです。一般に、教育システムに変更を加えたとき、その効果を判断するには相当の時間がかかります。本学会は3年前に若手研究者に対する支援、表彰事業を「広く浅く」から「競争による集中」へと大きく転換しました。これには当時の高橋会長、鶴飼顕彰委員長の「学会として次世代研究者の育成に関与していく」というメッセージが込められています。学生会員の方々は申請書を書くのが大変だと思いますが、この方針はしばらく継続します。書類書きの経験は必ず役に立ちますので、頑張ってください。

最期に、個人的にこれはやりたいと思っている2つのことを書きます。年会には本学会に所属していない関連領域の研究者を積極的に招待しています。このような試みを年会で終わらせるのではなく、新しい研究グループの立ち上げに結びつくように、学会としても何かできないものでしょうか。新しい研究ネットワークの構築は新しい研究を生みます。皆様、ぜひアイデアをお寄せ下さい。もう一つ、これは長年の課題でもありますが、原子衝突研究協会時代の様々な資料や記録が散逸しないように整理すること、少なくともその道筋をつけることをやっていきたいと思います。

それではこれから2年間、よろしく願いいたします。

2018年4月

極端紫外域の光渦を用いた原子分子の研究

金安達夫

九州シンクロトロン光研究センター 〒 841-0005 鳥栖市弥生が丘 8-7

kaneyasu@saga-ls.jp

平成 29 年 11 月 30 日原稿受付

螺旋状の波面を持つ電磁波「光渦」は軌道角運動量を運ぶ光とも呼ばれる。従来、光渦の持つ軌道角運動量やドーナツ状の特異な強度分布を生かした様々な研究が可視から近赤外の波長域で行われてきたが、近年の短波長域における光渦生成技術の急速な発展に伴い、原子分子物理の分野でも光渦への関心が高まりつつある。本稿では光渦について簡単に解説するとともに、著者らが進めてきた研究を中心に、ヘリカルアンジュレータを利用した極端紫外域での光渦生成と原子分子実験への応用を紹介する。

1. はじめに

自由空間を伝搬する光ビームを表す波動方程式であるヘルムホルツ方程式の近軸解を求めると、その固有モードは直交座標系ではエルミート・ガウスモード、円筒座標系ではラゲール・ガウスモードで記述される。1次以上のラゲール・ガウスモードは光ビームの進行方向に沿った中心軸の周りに螺旋状の波面（等位相面）を持ち、「光渦」と呼ばれる。光渦の中心軸上では全ての位相が重なり合って強度がゼロとなり、そして中心軸は位相の定まらない位相特異点となる。光渦はビームの進行方向から見ると真ん中に穴の開いたドーナツ型の強度分布を持つ。光渦は螺旋状の波面とドーナツ型の強度分布によって特徴づけられる光ビームである。

光は円偏光に対応したスピン角運動量を持つことは古くから知られているが、光渦はスピン角運動量に加えて軌道角運動量に相当する物理量を運ぶ性質を有することが1992年にAllen等によって見いだされた [1]。このAllen等の研究を契機として光渦への関心が急速に高まり、今日では様々な研究分野で光渦が利用されている [2, 3]。たとえば光ピンセットによる微粒子の操作 [4]、金属表面への微細加工 [5]、光渦

の持つ軌道角運動量を利用した情報通信への応用 [6] などがあげられるだろう。また2014年のノーベル化学賞である超高解像度の蛍光顕微鏡 (STED) [7] では、光渦の持つドーナツ状の強度分布を巧みに利用することで、回折限界を超える空間分解能での顕微観察が実現された。このように光渦の応用は多岐の分野に渡るが、これらの研究で用いられる光渦は主に可視から近赤外の波長域のレーザーを利用したものであった。

近年、光渦の生成技術が急速に短波長領域へと拡大している。一般に真空紫外より短い波長域では光学素子による波面整形が困難となるため光渦を得ることが難しい。そのため短波長域の光渦の利用は未開拓の分野であったが、この技術的な困難さを克服して短波長域で光渦を生成・利用する試みが始まりつつある。本稿では短波長域の光渦発生に関する研究の状況を述べたのち、筆者らが進めてきた極端紫外域の光渦の生成とそれを用いた原子分子実験の試みを紹介する。

2. 光渦

2.1 特徴と生成方法

光渦の特徴を簡単に眺めておこう。図1に通

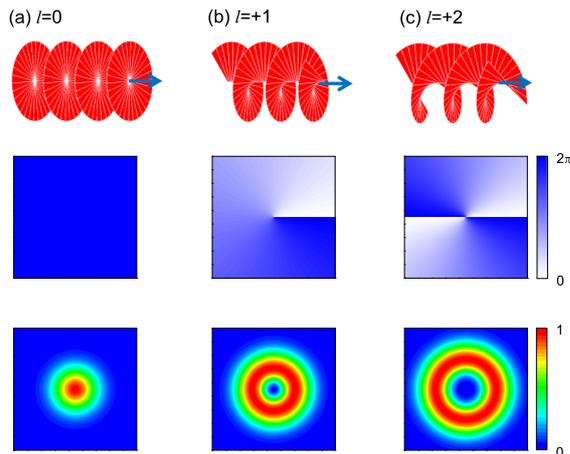


図 1: 通常の光ビーム（ガウスビーム）と光渦の波面，断面位相，強度分布の比較。(a) ガウスビーム ($l = 0$), (b) 光渦 ($l = +1$), (c) 光渦 ($l = +2$).

常の光ビーム（ガウスビーム）と螺旋波面を持つ光渦の波面，光進行方向に垂直な断面での位相分布と光強度の分布の比較を示す。光渦の螺旋波面は $\exp(il\phi)$ という光進行方向の中心軸周りの方位角 ϕ に依存した項 (l はトポロジカルチャージと呼ばれる整数) で表される。通常の光ビームでは断面位相は一定であるのに対し，光渦では位相が方位角に依存して変化することが分かるだろう。たとえば $l = 1$ のケースでは断面内で電磁波の位相が方位角方向に一周で 2π 変化する。また中心は位相が定義できない強度ゼロの特異点であり，この特異点を中心としたドーナツ状の強度分布も光渦の大きな特徴である。さらに電磁波の運ぶ軌道角運動量を中心軸に対して定義すれば，光渦は光子あたり lh の軌道角運動量を持つことが導かれる [1]。

光渦はどのように生成できるのだろうか？単純に考えると，何らかの方法で通常の螺旋波面を持たない光ビームの波面を整形すれば良い。とくに可視から近赤外の波長域では，様々な光学素子を利用して光ビームの波面を螺旋状へ整形することができる [2]。なかでも直感的に理解しやすいのは，厚みが螺旋状に変化する光学素子 (Spiral phase plate) による波面整形であろう。Spiral phase plate に対してガウスビームを入射すれば，螺旋状に変化する光路長のため出

射する電磁波は螺旋波面となる。ただしこの方法では光ビームと光学素子の軸合わせや工作精度などの困難もある。そこで実際には多くの場合，ホログラム回折格子やシリンドリカルレンズを用いてガウスモードのレーザー光を光渦へと変換する方法がとられるようだ。その他にも多様な方法が知られており，可視から近赤外域の光渦を生成する手法は十分に確立されていると言ってよいだろう。

2.2 短波長域の光渦

光の波長が短くなれば光学素子による波面操作は困難となることは想像に難くない。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。短波長域での光渦生成への挑戦は精密な光学素子の研究開発から始まり，2002年に米国の放射光施設 APS で X 線渦の発生に成功した [8]。この実験では放射光源 (アンジュレータ放射) で得た X 線ビームを，Spiral phase plate で波面整形する手法が用いられた。また軟 X 線領域でもアンジュレータ放射と螺旋状のゾーンプレートを組み合わせた光渦の生成が報告されている [9]。ただしこれらの方法では特定の波長域を狙って精密な光学素子を開発する必要があり，光渦を得るための技術的な困難は相当大きいと言えよう。

近年，短波長の光渦を光学素子を使わずに発生させる方法が急速に発展している。ひとつは超短パルスレーザーによる高次高調波発生 [10-13]，もうひとつは放射光源の利用 [14-20] である。ここでは我々の研究で採用した放射光源 (ヘリカルアンジュレータ) による光渦発生法を紹介する [14-18]。

ヘリカルアンジュレータとは挿入光源と呼ばれる装置の一種である (図 2 参照)。その多くは放射光源用の電子蓄積リングの直線部に設置されており，永久磁石 (電磁石も稀に使われる) を組み合わせて作った周期磁場を用いて相対論的速度の電子に螺旋運動をさせて，電子ビームの進行方向に円偏光の準単色光を放射させる。ヘリカルアンジュレータ放射の波長は，電子ビー

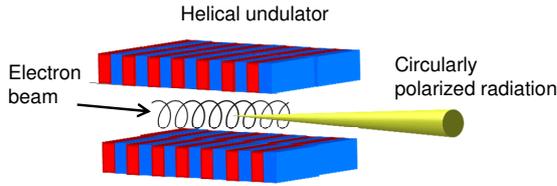


図 2: ヘリカルアンジュレータの概念図.

ムのエネルギーと磁場の強さおよび周期長で決まるが、一般的に真空紫外から X 線領域で波長可変の準単色光を得ることが出来る。

ヘリカルアンジュレータ放射は軸上では基本波のみが観測されるが、軸から外れた領域に高調波が放射される。この高調波が光渦の性質を有する。その主な性質は

- n 次の高調波は $|l| = n - 1$ の光渦。
- 電子の回転運動の向きと螺旋波面の回転の向きは一致する。つまり光のスピン角運動量と軌道角運動量の符号は一致。

である。これは 2008 年に Sasaki 等 [14] によって提唱され、その後、2013 年にドイツの放射光施設 BESSY-II において極端紫外域（光子エネルギー 99 eV）の光渦の実証実験に成功した [15]。さらに分子科学研究所の放射光施設 UVSOR で紫外域の光渦に対する精密な検証実験が進められ、高調波の次数が高まるにつれて光渦の軌道角運動量が大きくなることが確かめられた [16-18]。

このヘリカルアンジュレータを用いる方法の利点は、既存の装置を用いて真空紫外から X 線領域で光渦ビームを簡便に得られることにある。ただし高調波を持つ光渦の性質（螺旋波面）を検証するには、光の空間コヒーレンスを高くする必要があり、少なくとも光ビームの空間広がりと同程度のコヒーレンス長がないと螺旋波面を検証することは困難だ。そのためには電子ビームのエミッタンスが充分小さいことが重要であるが、これは短波長になるほど厳しい条件である。そのためこれまでのところ、ヘリカルアンジュレータによる光渦の生成が確認されたのは極端紫外領域までに限られている。

ところで、ヘリカルアンジュレータから螺旋波

面の電磁波が放出される源は、電子の円運動にある。円運動する電子が放射する電磁波が螺旋波面を持つこと、さらにそれが軌道角運動量を運ぶことは奇妙に思えるが、このことは古典電磁気学に基づいて Katoh 等 [17, 18, 21] によって理論的に示された。この円運動する電子の電磁放射をローレンツ変換すれば、相対論的電子によるヘリカルアンジュレータ放射に対応することは直感的にも理解できるだろう。

3. 光渦と原子分子の相互作用

前節で述べたように短波長の光渦の生成法は急速に発展しつつある。この光渦を用いてどのようなことが出来るのだろうか？これまで、光渦を用いた X 線吸収分光の提案 [22] や物質との相互作用における特異な現象の発現に関する理論研究 [23-25] が進められてきたが、実験研究はこれから始まると言ってよいだろう。とくに近年、物質との相互作用が大きい極端紫外域について光渦と原子分子の相互作用に関する理論研究 [23-29] が進展しつつあるが、実験研究の報告はごく最近まで皆無であった。そこで著者らはヘリカルアンジュレータで得られる光渦の利用を切り拓くことを目指し、まずは単純な原子分子をサンプルとして、光渦と物質の相互作用の解明を目的とした実験研究を進めている。

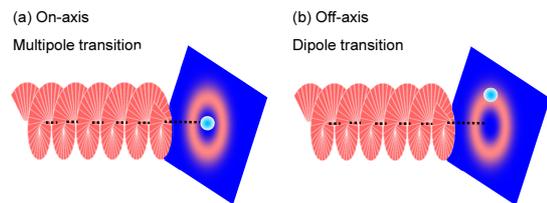


図 3: 光渦と原子の相互作用の概念図.

光渦と原子系との相互作用を理論予測に基づいて眺めてみよう。前提条件として通常は双光子遷移が支配的な極端紫外の波長域、さらに多光子遷移の寄与は無視できるものとする。光渦と原子の相互作用の特徴は位置に対する依存性にあると考えられている。そこで二つの極端なケースを考えてみる (図 3)。まず位相特異点上

に原子が位置する場合，原子の近傍では光電場の位相が急激に空間変化する．したがって円偏光ならば原子の周囲で光電場の向きが変化することになり，直線偏光ならば光電場の強度が空間変化する．そのため光の進行方向に対する電磁波の位相変化を無視しても，光進行方向に垂直な面内での光電場は一定とみなせず，何か特異な効果が生じるだろう．そこでラゲール・ガウスモードのベクトルポテンシャルを用いて，水素様原子の遷移行列要素を求めてみると，

$$T = \langle \Psi_f | (\sqrt{2\rho/w_0})^{|l|} e^{il\phi} e^{ikz} \boldsymbol{\varepsilon} \cdot \nabla | \Psi_i \rangle, \quad (1)$$

と書き表せる．ここで w_0 は光渦のビームサイズ， ρ, ϕ, z は円筒座標系で定義した電子座標， $\boldsymbol{\varepsilon}$ は偏光ベクトル， l は光渦の軌道角運動量である．電磁波を単一波数ベクトルの平面波と見なした扱いと比べると，相互作用の項に光電場の螺旋位相と動径方向の強度分布が加わっている．単純化のため光のスピンの軌道角運動量の符号は等しいとして，電磁波の進行方向の位相変化を無視 ($e^{ikz} \simeq 1$) した上で式を整理すると，遷移行列要素がゼロにならない条件，つまり電子遷移の選択則として，

$$\langle \Psi_f | r^{|l|+1} Y_{|l|+1}^{l+s} | \Psi_i \rangle \neq 0, \quad (2)$$

から，

$$|\Delta L| \leq |l| + 1 \leq L_i + L_f, \quad (3)$$

$$|\Delta M| = l + s, \quad (4)$$

$$|\Delta L| + l \text{ is odd}, \quad (5)$$

が得られる [23, 27]．ここで s は光のスピンの軌道角運動量， L, M は電子系の軌道角運動量子数と磁気量子数である．式 (3)~(5) の関係は電気多重極遷移が許容になることを示している．これを角運動量保存の観点から眺めれば，光の軌道角運動量が電子系へ移行したとも解釈できよう．なおこの選択則は，任意の光のスピンの軌道角運動量について成り立つ．

一方，渦の中心から十分に離れた領域ならば，原子周辺の光電場の位相の空間変化は無視できる．したがって原子と相互作用する電磁波を平面波とみなすことは充分良い近似となり，この空間領域では電気双極子遷移が支配的となる．この場合，光渦と電子系の角運動量が保存しな

いように思えるかもしれないが，これは光渦と電子系で角運動量を定義する中心軸が一致しないためである．つまり光渦の運ぶ軌道角運動量を原子の中心に対して改めて定義すれば，原子周辺で光の運ぶ軌道角運動量はゼロとなる．

電子遷移に対して渦の効果が顕在化するのには位相特異点近傍の狭い空間領域に限られる．平面波と光渦の差異が生じるのは，せいぜい波長程度の空間スケールと予測されている [24, 26, 29]．したがって電子遷移に対する渦の効果を検証するには，出来る限り集光した光渦を用いること，さらに極めて狭い空間領域を選択的に観測する実験手法が必要だろう．実際にごく最近，この特異な相互作用は，イオントラップで捕捉した単一の Ca^+ イオンと赤外のレーザー光渦を用いた巧妙な実験によって，位相特異点付近での四重極遷移の強調として観測された [30]．

4. 極端紫外光渦による希ガス原子の光イオン化

理論研究やレーザー光渦の実験結果をみる限り，電子遷移に対する渦の効果を短波長域で実証するのは非常に困難であろう．ただし実際にこのような描像が成り立つのかどうかの検証はごく最近まで皆無であった．またヘリカルアンジュレータで生成できる短波長域の光渦がどのような応用と結び付くのか現時点では未知数であるが，まずは単純な原子分子を用いて，光渦と物質の相互作用の理解を短波長域へと拡大することは重要であろう．そこで我々はヘリカルアンジュレータを利用した極端紫外域の光渦生成を検証し [31]，それを用いて希ガス原子の光イオン化に関する実験研究を行った [32]．

4.1 極端紫外光渦の検証実験

実験は分子科学研究所の放射光施設 UVSOR のビームライン BL1U で進めてきた．まず干渉法を用いて極端紫外域の光渦の生成を検証した [31]．干渉実験の概要を図 4 に示す．光源は APPLE-II 型のヘリカルアンジュレータを二台用いた．この二台は UVSOR 蓄積リングの直線

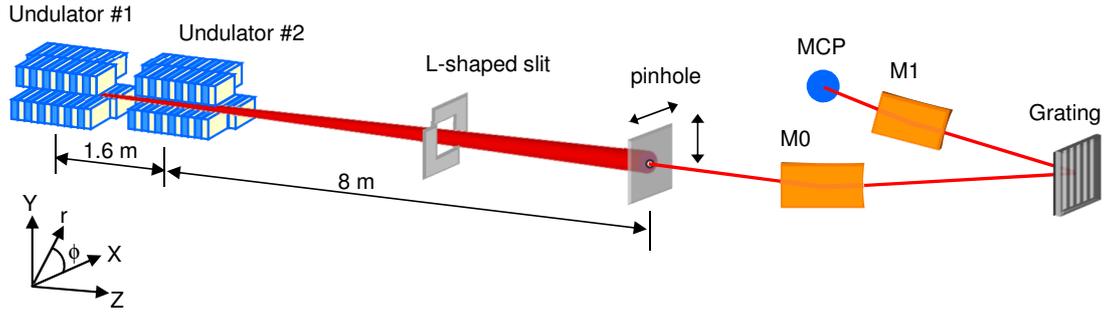


図4: ヘリカルアンジュレータ放射による極短紫外光渦の生成 [31]. 干渉法による螺旋波面の検証実験.

部にタンデム配置されているものである. このうち上流側のアンジュレータ U#1 では光子エネルギー 20.6 eV の基本波 (通常光) を発生させ, 下流側のアンジュレータ U#2 は基本波を光子エネルギー 10.3 eV へ設定し, 20.6 eV の二次高調波 (光渦) を発生させる. 上下流のアンジュレータ放射の偏光は, 左回りまたは右回り円偏光へ揃える. 二台のアンジュレータからの光ビームを空間的に重ね合わせ, 瀬谷・波岡型分光器を用いて単色化 (1/300 程度) して 20.6 eV の光強度を測定する. 通常光と光渦の干渉パターンは分光器の上流に取り付けたピンホールを二次元スキャンして測定した. ここで何故, 分光器で単色化する必要があるのか, 疑問に思う方もおられよう. これは干渉パターンを得るために必須だ. 元々, 二台のアンジュレータからの放射パルス (エネルギー幅 10% 程度の準単色光) には時間的な重なりが無い. ところが分光器を通して単色化することで放射パルスは時間方向に伸長され, 光進行方向にも重なることになる.

干渉パターンの測定結果を図5に示す. 上段が測定結果である. 螺旋状の干渉パターンが観測されたこと, 螺旋の向きは左右円偏光で逆転することがわかる. このパターンは螺旋波面を持つ光が渦ではない基本波と干渉した結果であり, 明線の構造は点光源モデルでよく説明できる. 点光源モデルでは, 螺旋状の明線は以下の式で表される.

$$(n-1)\phi = \pm \left[\frac{\pi d}{\gamma^2 \lambda} - \frac{\pi d}{L(L+d)} r^2 \right] + 2m\pi, \quad (6)$$

$$m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$$

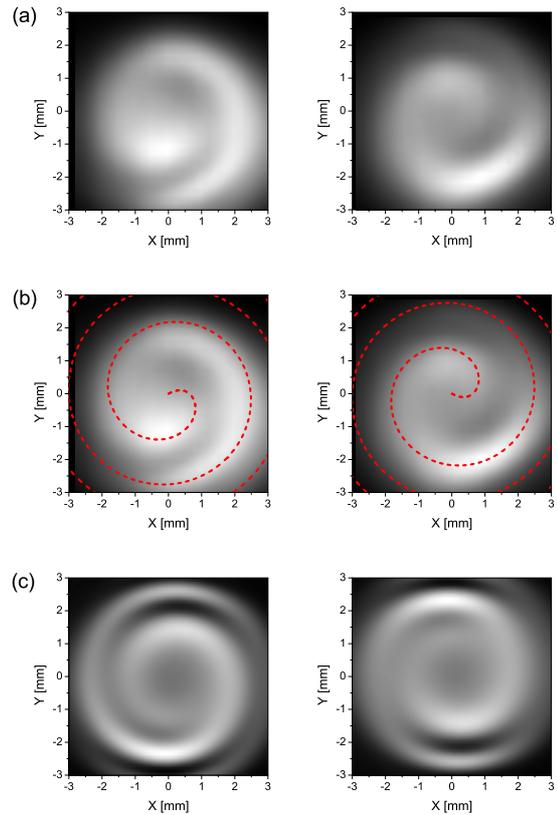


図5: 通常光と光渦の干渉パターン [31]. 左列は左回り円偏光, 右列は右回り円偏光. (a) 測定結果, (b) 測定結果と点光源モデルによる明線パターンの比較, (c) シミュレーション結果.

ここで n は高調波次数, ϕ は方位角, r は動径方向の距離, γ は電子ビームのローレンツ因子, λ は光の波長, d は二台のアンジュレータの中心間隔, L は下流アンジュレータ中心から観測点までの距離, 符号は左右円偏光に対応する. 簡単なモデルであるが, 図5中段に示したように測定結果の特徴を良く再現する. さらに実験条件

の詳細（アンジュレータの長さ，アンジュレータ周期磁場の端部構造，電子ビームエミッタンス）を考慮した電磁放射シミュレーションにおいても実験との一致は良好であった．以上の結果から，UVSORのヘリカルアンジュレータを用いて極端紫外域の光渦が確かに得られると結論づけた．

4.2 光イオン化実験

極端紫外域で光渦を実際に生成できるとわかれば，次のステップは原子分子との相互作用研究である．そこで光渦と原子の相互作用を検証することを目的として，希ガス原子の光イオン化実験を行った [32]．図6に光イオン化実験の概要を示す．ヘリカルアンジュレータを用いて極端紫外域の基本波および光渦である高調波を生成し，光電子イメージング法を用いて希ガス(He, Ne)の光電子角度分布を測定した．アンジュレータ放射のピーク光子エネルギーは基本波および各高調波についてHeではおよそ30 eV, Neではおよそ26 eVである．偏光状態は左回り円偏光($s = +1$)，したがって光渦の持つ軌道角運動量の符号も正である．

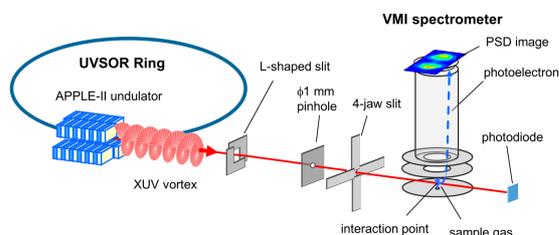


図6: 極端紫外光渦による希ガス原子の光イオン化．ヘリカルアンジュレータで生成した光渦ビームの中央部をピンホール(直径1 mm)で切り出して気相試料へ照射する．光渦の波面の乱れを防ぐため光ビームの輸送路に光学素子はない．

実験では準単色のアンジュレータ放射をそのまま気相試料へ照射する形式を採用した．これはアンジュレータで生成した光渦の螺旋波面が光学素子によって乱れる可能性を取り除くためである．すなわち高調波に付与された軌道角運動量の性質は相互作用領域まで保持されている．

相互作用領域の直前には直径1 mmのピンホールが取り付けられており，光ビームの中心付近を切り出して使用した．試料ガスの供給方法は漏れ出し分子線であるため，相互作用領域では希ガス原子は光ビームの断面内にほぼ均一に分布していると見なせる．光電子の角度分布測定にはVelocity map imaging (VMI) spectrometerを用いた．

アンジュレータ放射で得られる光ビームのプロファイルを把握するため，計算コードSPECTRA [33]を用いたシミュレーションを行った．図7は相互作用位置(発光点から11 m)における基本波，二次，三次高調波の空間分布(光子エネルギー30 eV)のシミュレーション結果である．基本波は螺旋波面を持たない通常の光であり強度分布はガウス分布に近い．一方，高調波は光渦であるためドーナツ状の強度分布となる．ただし理想的な光渦とは異なり中心の強度はゼロではない．これは電子ビームのエミッタンスの効果である．つまり単一の電子は中央が位相特異点となる渦放射を発するが，個々の電子の運動にはバラつきがあるため，電子集団の放射が重畳されたことで強度分布がぼやけたと理解できる．

ヘリカルアンジュレータ放射の基本波と光渦である二次，三次高調波を用いて測定したHe原子の光電子角度分布を図8に示す．実線は双極子近似による曲線フィット，点線は光渦で許容となる多重極遷移の光電子角度分布を示している．円偏光の場合，双極子遷移による光電子の角度分布は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma}{4\pi} \left[1 - \frac{1}{2} \beta P_2(\cos\theta) \right], \quad (7)$$

と表される．ここで σ はイオン化断面積， β は光イオン化の異方性パラメータ， $P_2(\cos\theta)$ は二次のルジャンドル関数， θ は光の進行方向に対する光電子の放出角度である．光渦によるイオン化でも光電子の角度分布は双極子近似で良く再現された．式(7)による曲線フィットの結果，異方性パラメータは基本波，二次，三次高調波についてそれぞれ， 1.96 ± 0.09 , 1.92 ± 0.09 , 1.99 ± 0.09

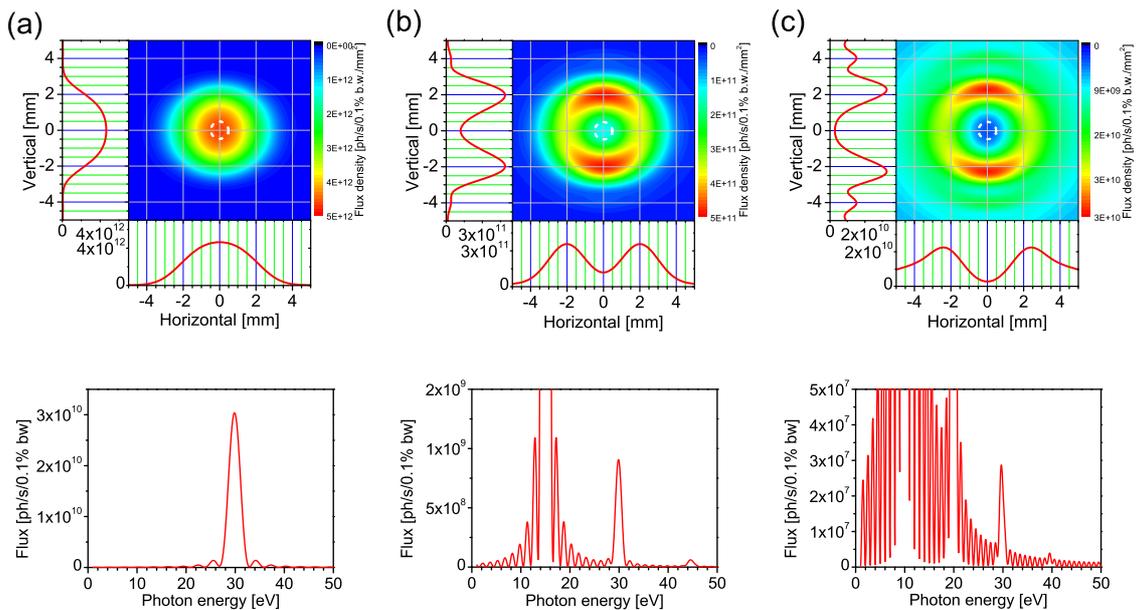


図 7: ヘリカルアンジュレータ放射のシミュレーション. 電子ビームのエネルギーは 750 MeV, ビーム電流は 1 mA. (a) 基本波 ($l = 0$), (b) 二次高調波 ($l = +1$), (c) 三次高調波 ($l = +2$). 上段は相互作用位置 (発光点から 11 m) における 30 eV の光強度分布. 点線は直径 1 mm のピンホールで切り出される範囲を示している. 二次元の強度分布とともに中心点を通る軸上の強度も示した. 下段はピンホール透過後のスペクトル.

と求まった. 基本波と光渦で光電子の角度分布に有意な差異は見られず, 光電子角度分布の異方性パラメータは双方とも理論値 ($\beta = 2$) と誤差の範囲で一致した. 一方, 光渦による多重極遷移では $l = 1, 2$ の渦に対して光電子の角度分布は球面調和関数 Y_2^2, Y_3^3 の二乗に比例する形となる. したがって, それぞれ $\sin^4 \theta, \sin^6 \theta$ に比例することになるが, 実験結果にその寄与は見いだせなかった.

図 9 に Ne 2p 光電子の角度分布の測定結果を示す. いずれも異方性パラメータがほぼ 0 の等方的な分布が得られた. この傾向は双極子近似で良く再現されることが知られており [34], Ne の場合も光渦による多重極遷移の寄与は無視できるとわかった. なお曲線フィットで得た異方性パラメータは基本波, 二次, 三次高調波についてそれぞれ, $0.15 \pm 0.09, 0.0 \pm 0.09, -0.05 \pm 0.09$ である. 異方性パラメータのばらつきが誤差より大きい, これは測定ごとの光子エネルギーの設定のずれが要因である.

本実験の条件下では光渦との相互作用においても双極子遷移が支配的とわかった. 光渦の位

相特異点近傍では多重極遷移が許容になると予測されるが, 測定結果にはそのような効果は見出されなかった. これは光渦と原子の相互作用の空間特性を反映していると考えられる. つまりこの実験では光渦ビームの断面内に非局在化した原子をサンプルとして使用しているため, 検出された光電子の大多数は, 位相特異点から離れた領域で光と相互作用した原子から放出されたと解釈できる (図 3(b) に対応). 今回の測定結果には理論との矛盾は見られず, 光渦による特異な効果を見出すには, 光ビームの集光や狭い空間領域の観測を実現する高度な実験手法の導入が必須とわかった.

また電子ビームの持つエミッタンスによって, 光渦ビームの位相特異点がぼやけることも問題と分かった. 発光源である電子の運動方向にばらつきがあるため, アンジュレータで得られる光渦ビームの中心は強度ゼロではなく強度極小となる (図 7 参照). したがって現状では, イオントラップなど, 何らかの手段で単一原子を光渦ビームの強度極小の点においたとしても, そこから放出された光電子は必ずしも特異点で相

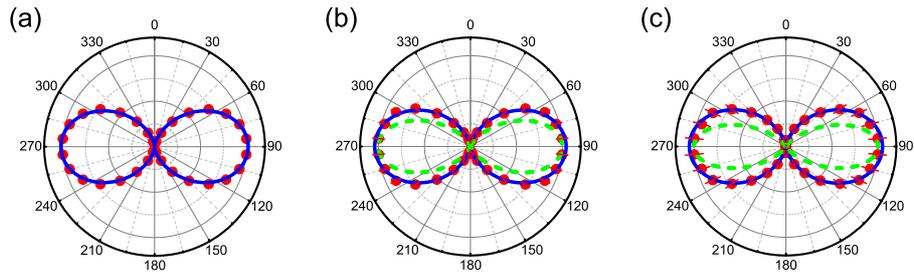


図 8: 基本波 (通常光) と高調波 (光渦) による He 光電子角度分布の測定結果. (a) 基本波 ($l = 0$), (b) 二次高調波 ($l = +1$), (c) 三次高調波 ($l = +2$). 光子エネルギーはおおよそ 30 eV. 実線は双極子遷移による角度分布の曲線フィット, 破線は光渦による多重極遷移で期待される角度分布.

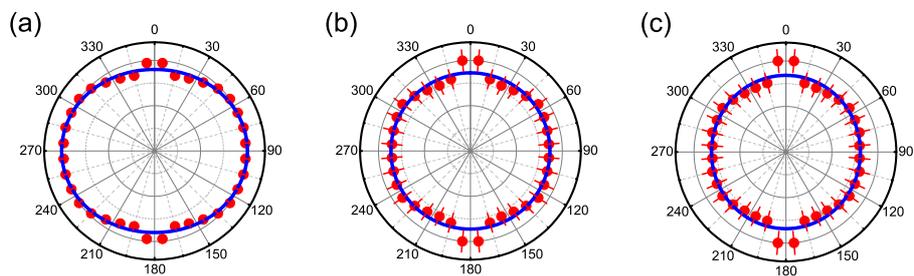


図 9: 基本波 (通常光) と高調波 (光渦) による Ne 2p 光電子角度分布の測定結果. (a) 基本波 ($l = 0$), (b) 二次高調波 ($l = +1$), (c) 三次高調波 ($l = +2$). 光子エネルギーはおおよそ 26 eV. 実線は双極子遷移による角度分布の曲線フィット.

相互作用したものではない. なぜならば, ある電子の放射では特異点だったとしても, それとは別の運動方向が多少異なる電子による放射もその点へ寄与するからである. 特異点付近での相互作用を検証するには電子ビームのエミッタンスを十分に小さくし, 単一電子による渦放射と同等の空間分布を持つ光渦ビームを得ることが重要である.

5. まとめと展望

近年急速に発展しつつある真空紫外より短い波長域での光渦生成を紹介し, 著者らが行ったヘリカルアンジュレータ放射による極端紫外光渦の生成とその原子分子実験への応用を述べた. 電子遷移に対する渦の効果を検証することを目的として, 光渦による希ガス原子の光電子角度分布を測定したが, 実験結果に特異な効果は見いだされなかった. これは光渦と原子系の相互

作用の空間特性を反映していると考えられる. そこで現在, 光渦と物質との相互作用の理解をより短い波長域へと拡張することを目指し, 新たな実験を計画している. ポイントとなるのは電子ビームのエミッタンスを下げることで, 平面波禁制の電子遷移の高感度検出を可能とする測定手法の導入である.

低エミッタンスビームを得るには電子ビームのエネルギーを下げればよく, 単純に UVSOR リングを低エネルギー運転 (400 MeV) するだけでも本稿で紹介した実験の波長域ならばほぼ理想的な光渦ビームを生成できる. また最新の極低エミッタンスリング [35] を活用すれば軟 X 線領域でもアンジュレータ放射で理想的な光渦ビームが得られるだろう. 一方, 光渦による平面波禁制遷移の検証ではレーザーの併用を検討している. 具体的には平面波禁制遷移による励起状態をさらにレーザーで選択的に励起して蛍光を観測する. 実験の技術的な困難はあるもの

の、レーザー誘起蛍光は十分な信号強度で検出できると見積もっている。

他方で高次高調波レーザーでも光渦の生成方法の研究のみならず、物質との相互作用の研究も始まりつつある。たとえば極端紫外域のアト秒光渦パルスによる希ガス原子のイオン化では、波面が螺旋状の光電子が放出されるなど興味深い現象 [11] が報告されている。アンジュレータ放射と高次高調波レーザーそれぞれの特徴を生かし、今後の実験研究の進展が待たれる。

本研究で用いたヘリカルアンジュレータ放射による光渦発生の源が電子の円運動であることを最後に強調しておこう。つまり電子による光渦放射は自然界で普遍的な現象と考えられる [17]。今後は光渦を実験室にのみ存在する特殊な光と見なすのではなく、自然界にありふれた存在と捉えなおすことで新たな研究が発展する可能性もあるだろう。

謝辞

本稿で紹介した極端紫外光渦の生成と光イオン化実験は富山大の彦坂泰正教授、分子研UVSORの繁政英治准教授、岩山洋士助教、加藤政博教授、許斐太郎助教（現 KEK）、藤本将輝助教、名古屋大の保坂将人准教授との共同研究による成果である。また光渦によるイオン化については上智大の小池文博教授から貴重な助言を得た。皆様に感謝の意を表す。本研究は分子科学研究所共同利用研究（協力研究）の助成を受けて行われた。また本研究の一部は松尾学術振興財団および光科学技術研究振興財団より助成を受けて行われた。

参考文献

- [1] L. Allen *et al.*, Phys. Rev. A **45**, 8185 (1992).
- [2] A. M. Yao and M. J Padgett, Adv. Opt. Photonics **3**, 161 (2011).
- [3] 尾松孝茂, 光学 **42**, 586 (2013).
- [4] M. Padgett and R. Bowman, Nature Pho-

- tonics **5**, 343 (2011).
- [5] T. Omatsu *et al.*, Optics Express **18**, 17967 (2010).
- [6] J. Wang *et al.*, Nature Photonics **6**, 488 (2012).
- [7] S. Hell, Nat. Biotechnol. **21**, 053901 (2006).
- [8] A. Peele *et al.*, Optics Letters **27**, 1752 (2002)
- [9] A. Sakdinawat and Y. Liu, Optics Letters **32**, 2635 (2007).
- [10] G. Gariepy *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 153901 (2014).
- [11] R. Geneaux *et al.*, Nat. Commun. **7**, 12583 (2017).
- [12] D. Gauthier *et al.*, Nature Communications **8**, 14971 (2017).
- [13] C. Hernandez-Garcia *et al.*, Photonics **4**, 28 (2017).
- [14] S. Sasaki and I. McNulty, Phys. Rev. Lett. **100**, 124801 (2008).
- [15] J. Bahrtdt *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 034801 (2013).
- [16] 佐々木茂美, 加速器 **11**, 221 (2014)
- [17] M. Katoh *et al.*, Scientific Reports **7**, 6130 (2017).
- [18] 加藤政博, 加速器 **14**, 104 (2017).
- [19] E. Hemsing *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 164803 (2011).
- [20] P. R. Ribič *et al.*, Phys. Rev. X **7**, 031036 (2017).
- [21] M. Katoh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 094801 (2017).
- [22] M. van Veenendaal and Ian McNulty, Phys. Rev. Lett. **98**, 157401 (2007).
- [23] A. Picón *et al.*, New J. Phys. **12**, 083053 (2010).
- [24] A. Afanasev, C. E. Carlson, and A. Mukherjee, Phys. Rev. A **88**, 033841 (2013).
- [25] J. Wätzel *et al.*, Carbon **99**, 439 (2016).

- [26] O. Matula *et al.*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **46**, 205002 (2013).
- [27] J. D. Rodrigues, L.G. Marcassa, and J.T. Mendona, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **49**, 074007 (2016).
- [28] R. A. Müller *et al.*, Phys. Rev. A **94**, 041402R (2016).
- [29] A. Afanasev *et al.*, J. Opt. **18**, 074013 (2016).
- [30] C. T. Schmiegelow *et al.*, Nat. Commun. **7**, 12998 (2016).
- [31] T. Kaneyasu *et al.*, Journal of Synchrotron Radiation **24**, 934 (2017)
- [32] T. Kaneyasu *et al.*, Phys. Rev. A **95**, 023413 (2017).
- [33] T. Tanaka and H. Kitamura, Journal of Synchrotron Radiation **8**, 1221 (2001).
- [34] Lynch *et al.*, Phys. Lett. **40A**, 349 (1972).
- [35] M. Eriksson, J. Synchrotron Radiation **21**, 837 (2014).

2018 年度 役員・委員会

会長

城丸春夫（首都大学東京）

幹事

平山孝人（立教大学）〔副会長〕

彦坂泰正（富山大学）

吉井裕（放射線医学総合研究所）

土田秀次（京都大学）

松本淳（首都大学東京）

運営委員

岡田邦宏（上智大学）

佐甲徳栄（日本大学）

星野正光（上智大学）

東俊行（理化学研究所）

加藤大治（核融合科学研究所）

土田秀次（京都大学）

平山孝人（立教大学）

松本淳（首都大学東京）

小田切丈（上智大学）

中村信行（電気通信大学）

本橋健次（東洋大学）

鵜飼正敏（東京農工大学）

田沼肇（首都大学東京）

彦坂泰正（富山大学）

間嶋拓也（京都大学）

吉井裕（放射線医学総合研究所）

常置委員会

編集委員会 委員長：彦坂泰正（富山大学）

行事委員会 委員長：土田秀次（京都大学）

広報渉外委員会 委員長：吉井裕（放射線医学総合研究所）

顕彰委員会 委員長：平山孝人（立教大学）

庶務委員会 委員長：松本淳（首都大学東京）

編集委員 大橋隼人, 岡田邦宏, 金安達夫, 北島昌史,
中井陽一, 彦坂泰正, 松田晃孝, 森下亨



しょうとつ 第15巻 第3号 (通巻82号)

Journal of Atomic Collision Research

©原子衝突学会 2018

<http://www.atomiccollision.jp/>

発行: 2018年5月15日

配信: 原子衝突学会事務局 <acr-post@bunken.co.jp>