

放射光による原子のコヒーレント制御

金安達夫

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

分子科学研究所 〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38

彦坂泰正

富山大学 教養教育院 〒930-0194 富山県富山市杉谷2630

加藤政博

広島大学 放射光科学研究センター 〒739-8526 広島県東広島市鏡山 2-313

分子科学研究所 〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38

要旨

電子蓄積リングの直線部に配した二台のアンジュレータを用いて、極端紫外領域における原子のコヒーレント制御に成功した。コヒーレント制御は物質の波動関数を光で操作する技術であり、これまでは極めて高精度に制御されたレーザーでのみ可能と考えられてきた。本稿では我々が考案した放射光によるコヒーレント制御法と UVSOR で行った実証実験を紹介する。

1. はじめに

光電場波形を高度に制御した光を用いると、物質の波動関数を能動的に操作して量子状態を制御することが出来る。このような物質制御はコヒーレント制御や量子状態制御と呼ばれ、1980年代後半に光化学反応の制御を目的としてその理論が提唱された¹⁾。この提唱から時をおかず、1990年代になると早くも気相の原子分子に対して様々なコヒーレント制御が実現され始めた。典型的な例としては、二色の準連続レーザー光や同一波形のダブルパルスを使った原子の励起確率²⁻⁴⁾や光電子の角度分布⁵⁾の制御、分子における解離反応⁶⁻⁸⁾の制御などが挙げられる。さらに、1990年代以降のレーザー光源や光操作技術の目覚ましい発展に歩調を合わせ、コヒーレント制御の技術は高度化するとともに、研究対象も気相の原子分子から液体や固体へと急速に拡大してきている⁹⁻¹³⁾。

この30年間の研究の進展によって、今日では可視・紫外域のレーザーによる気相の原子分子についてのコヒーレント制御は確立の域に近づいている。実験技術としては、光が持つ波としての性質を如何に上手く操るかということにつきるが、この手法を真空紫外より短い波長領域で使うことは出来ないだろうか。コヒーレント制御の短波長化は、制御対象の拡大と高速化を一挙にもたらす可能性がある。例えば極端紫外 (XUV) 領域まで拡張すれば、これまでは比較的束縛エネルギーが小さい原子種に限られていた電子波束の制御を様々な物質に対して展開できることになる。さらに X 線領域まで到達すれば、内殻電子の制御が浮かび上がる。これにより、X 線による元素選択的な

励起を生かした新たなコヒーレント制御の応用が生み出されるかもしれない。一方、短波長化はフェムト秒以下の時間幅を持つ超短パルスの生成も可能とするため、制御対象の時間スケールもアト秒領域へと拡張でき、より高速な現象も制御できるようになるだろう。

近年、光源技術の発展により XUV 領域でのコヒーレント制御が実際に報告され始めた。このブレークスルーを実現した光源技術は二つあり、そのひとつはシード型自由電子レーザー、もうひとつは高次高調波レーザーである。2016年にイタリアの FERMI で、二色の XUV パルスペアを使ったネオン原子の光電子角度分布の制御が行われた¹⁴⁾。この実験では、シーディングによって光電場波形が安定した二色の XUV パルスを発振させ、それらの相対位相を電子ビーム軌道の調整によりアト秒オーダーで制御している。この実験と同年に、Nabekawa らは高次高調波レーザーによる XUV アト秒パルスのペアを使って、水素分子の光解離をサブ10フェムト秒の時間スケールで高速制御することに成功している¹⁵⁾。この実験では、ダブルパルス化と遅延時間の操作のためにミラーを用いたレーザー高次高調波の波面分割が用いられた。同様の実験手法は、原子分子内の電子波束の時間発展をフェムト秒からアト秒域で観測する研究¹⁶⁻¹⁸⁾でも利用されている。

このように、シード型自由電子レーザーや高次高調波の利用によって XUV 領域のコヒーレント制御が実現された。しかし、いずれの利用においても非常に高度な光源技術が必要であるため、現段階では XUV 領域のコヒーレント制御は極めて先鋭的な実験と言える。また、これらの光源のさらなる短波長化には技術的な困難が伴う。シード型

自由電子レーザーにおいては、光学レーザーを利用したシードでの短波長化には限界があり、X線領域でのコヒーレント制御にはセルフシード^{19,20}のダブルパルスへの応用など更なる技術開発が必要になると思われる。高次高調波の利用においても、ミラーによるダブルパルスの遅延時間の操作は短波長になるほど位置精度の要求が厳しくなる。

最近、我々は放射光によるコヒーレント制御を着想し、ヘリウム原子の光励起を対象としてXUV領域での実証実験に成功した^{21,22}。我々が考案した方法の利点は、既存の加速器技術の枠組みで短波長のコヒーレント制御を簡便に行えることにある。用いる光源は一般的な蓄積リングにインストールされた普通のアンジュレータであり、二台を直列に配したこと以外は標準的な光源装置である。アンジュレータ放射の光電場波形は、アンジュレータの磁石周期や配列を調整すれば自由にデザインでき、波長域についてもX線領域への拡張に原理的な制約はない。二台のアンジュレータによりダブルパルス形状の光電場が形成されるが、その時間間隔は一般的な加速器技術によりアト秒オーダーで制御できる。このようなアンジュレータ放射の特徴を上手く使いこなすことにより、XUV領域でのコヒーレント制御を今回実現した。このコヒーレント制御手法は、放射光の新たな実験技術として多くの研究分野で今後活用できる可能性がある。本稿では、まず我々が利用したコヒーレント制御の手法（波束干渉法）とそれへの放射光源の適用をなるべく平易に解説し、その後、ヘリウム原子を使った放射光によるコヒーレント制御の実証実験を紹介する。

2. 放射光によるコヒーレント制御

2.1 波束干渉法

我々が行った放射光によるコヒーレント制御では、波束干渉法（Wave Packet Interferometry: WPI）と呼ばれる同一波形のダブルパルスを使う制御手法^{11,12}を用いた。この手法では、ダブルパルス間の遅延時間を制御のためのパラメータとして用いる。この波束干渉法の原理を簡単に

述べる。**Fig. 1**にダブルパルスと相互作用する原子を模式的に示した。複数の固有状態をカバーするほどバンド幅が広い、言い換えれば波の継続時間が短いパルス光での原子の励起を考えてみよう。このとき、励起状態は固有状態のコヒーレントな重ね合わせ（電子波束）として表される。ダブルパルスとの相互作用であれば電子波束は時間差 τ を置いて原子内に二つ作られる。そのため、最終的に形成される電子波束は、

$$\begin{aligned} |\psi_e(t)\rangle &\cong \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k^{(1)} |e_k\rangle + \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k^{(2)} |e_k\rangle \\ &= \sum_k e^{-i\omega_k t} a_k^{(1)} (1 + e^{i\omega_k \tau}) |e_k\rangle \end{aligned} \quad (1)$$

と表される。ここで、光電場の振幅は十分小さく、基底状態の振幅の変化や多光子過程の寄与は無視できるとした。 ω_k は基底状態からの遷移周波数である。また $a_k^{(1)}$ 、 $a_k^{(2)}$ はそれぞれ一つ目、二つ目のパルスによる確率振幅であり、両者は位相が異なるだけで絶対値は等しい。式(1)を眺めると、遅延時間 τ を調整することにより波束の干渉を操作できることがわかる。このとき、波束を構成するある固有状態の population は、

$$n_k = |\langle e_k | \psi_e(t) \rangle|^2 = 2 |a_k^{(1)}|^2 (1 + \cos \omega_k \tau) \quad (2)$$

と求まる。遅延時間を掃引すれば、この遷移周波数の population が正弦波状に変化することが分かる。つまり遅延時間を適切に選べば、狙いとする量子状態の population を制御することができるわけである。ただし、可視光でも光周期は数フェムト秒であるから、少なくともサブフェムト秒のオーダーで遅延時間を操作しなければ、目的とする量子状態への励起を制御することはできない。XUV領域ならば光周期は100 as程度になるので、遅延時間をアト秒オーダーで精密に操作する技術が不可欠となる。なお本稿では原子の電子波束のみを扱うが、波束干渉を起こすことができる量子状態は様々である。たとえば、原子に比べてコヒーレンスの緩和が顕著な分子系に対しても、波束干渉法によって振動波束の極めて精密な干渉制御が実現されている¹²。

2.2 放射光源を用いた波束干渉法

可視・紫外域のレーザー光ならば、ハーフミラーで分割すれば同じ波形のダブルパルスは比較的簡単に得られるが、放射光源でも似たような光パルスを作れないだろうか？ じつは40年近く前に考案された加速器光源技術を使えば、コヒーレント制御に適したダブルパルスを簡単に得られる。それが二台のアンジュレータとその中間にある位相子（Phase shifter）から構成されるタンデムアンジュレータである（**Fig. 2a**）。このシステムは、可変偏光クロスアンジュレータ²³や自由電子レーザー用の光学クライ

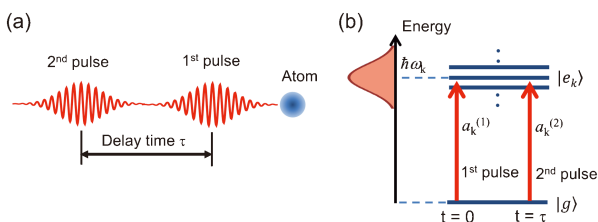


Fig. 1 (Color online) Schematic illustration of the wave packet interferometry scheme. (a) Pulse pair separated by the delay time τ interacts with an atom. (b) Energy level diagram of the atomic system. The atom is excited from a ground state into two sets of coherently superimposed excited states.

ストロン²⁴⁾として良く知られている。

この光源を使うとどのような波形の電磁波が得られるだろうか。タンデムアンジュレータを通過する単一電子の放射波形を考えてみよう。アンジュレータは二台とも同一として磁石周期は N 回とすると、電子は上流側のアンジュレータで N 回の蛇行運動をして N サイクルだけ振動する電磁波（本稿では“放射”波束と呼ぶ）を発する。下流のアンジュレータでも同様だから、結局タンデムアンジュレータを通過する電子は、Fig. 2b に示すように N サイクルの放射波束のペアを発することになる。ダブルパルス間の遅延時間を増加させるためには、アンジュレータ間に設置された位相子で電子を少しだけ蛇行させればよい。説明は省略するが、相対論的速度の電子を扱う限り、位相子の磁場を調整して遅延時間をアト秒オーダーで操作することは難しくない。つまりタンデムアンジュレータを使えば、遅延時間がアト秒精度で制御され、かつ光電場の波形も良くデザインされた放射波束のペアが簡単に得られるのである。

実際の放射光源の利用では、単一の電子ではなく電子バンチからの放射を用いることになる (Fig. 2c)。それでも放射波束ペアの性質をそのままコヒーレント制御に使えるのか、という疑問が生じるかもしれない。これは波束干渉法による量子状態制御では問題にならない。一般的な放射光源用の蓄積リングで電子バンチがタンデムアンジュレータを通過することを前提として、まず大雑把な説明を試みる。よく知られているように、電子バンチからの放射パルスの長さは 100 ps 程度である。バンチ内の電子は乱雑に分布しているため、Fig. 2c に示したようにこの 100 ps のパルスの中にはバンチを構成する個々の電子が発した放射波束のペアが無秩序に含まれていると見なせる。ここで、放射波束の相対位相は揃っていないが、光電場波形は同じである。つまり単一原子が放射波束ペアの一つと相互作用すると見れば、原子と電磁場との相互作用はレーザーのダブルパルスの場合と同等となる。

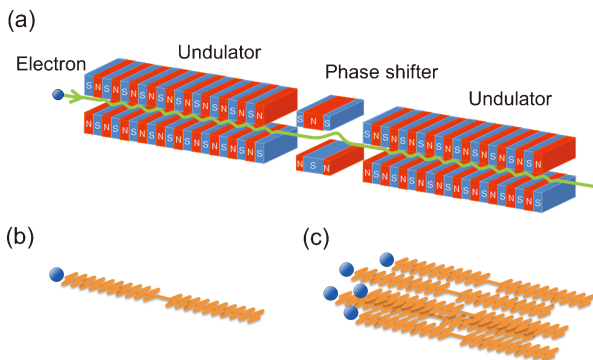


Fig. 2 (Color online) (a) Schematic view of the tandem undulator configuration. (b) Waveform of the radiation from an electron passing through the tandem undulator. (c) Waveform of the radiation from a bunch of electrons.

次に、もう少し現実に即した解釈へと発展させよう。上述の議論はバンチ内の電子密度が十分低ければそのまま適用できるが、実際の放射光利用の条件ではバンチを構成する多数の電子からの放射が空間的に重なり合うことは避けられない。したがって単一原子は多数の放射波束ペアと相互作用することになり、原子内には多数の電子波束ペアが形成される。しかしながら、この場合には異なる放射波束の寄与は相対位相の乱雑さによって打ち消され、観測には個々の電子が発する放射波束ペアの性質だけが残るのである²⁵⁾。なお、どちらの解釈でも式(2)と同じ結果が得られるし、実験結果を説明することも出来る。

3. ヘリウム原子のコヒーレント制御

3.1 実験の概要

実験は分子科学研究所の放射光施設 UVSOR の光源開発用ビームライン BL1U で行った。ヘリウム原子の光励起 ($1s \rightarrow np$; $n \geq 3$) を制御対象とし、二種類の制御実験を行った。ひとつは水平直線偏光の放射波束ペアを用いた population 制御²¹⁾であり、もうひとつは左右円偏光の放射波束ペアを使った alignment 制御²²⁾である。どちらの制御実験においても遅延時間の関数として励起状態の生成量を観測した。

実験装置の概要を Fig. 3a に示す。光源は直列に配置された二台の APPLE-II 型アンジュレータ (磁石周期 88

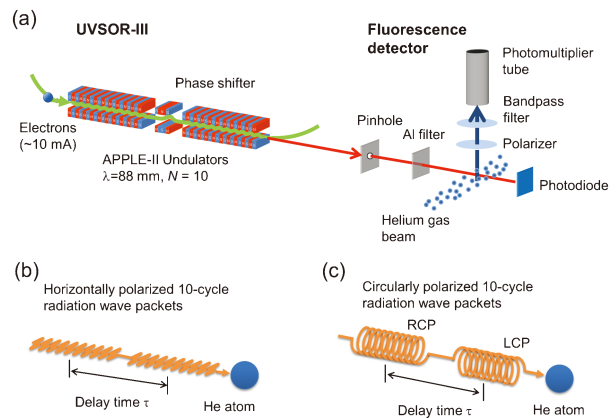


Fig. 3 (Color online) (a) Experimental setup for coherent control in the photoexcitation of helium atoms. The tandem undulator consists of two APPLE-II undulators and each relativistic electron in the bunch emits a pair of 10-cycle XUV radiation wave packets. The delay time between the wave packets is controlled by the phase shifter magnet between the two undulators. The undulator radiation interacts with a helium gas beam and fluorescence photons are detected by the photomultiplier tube. Helium atom is excited by a pair of (b) horizontally and (c) circularly polarized radiation wave packets in the population and alignment control, respectively. The undulators are set to provide the pair of left-circular polarization (LCP) and right-circular polarization (RCP) wave packets in the alignment control.

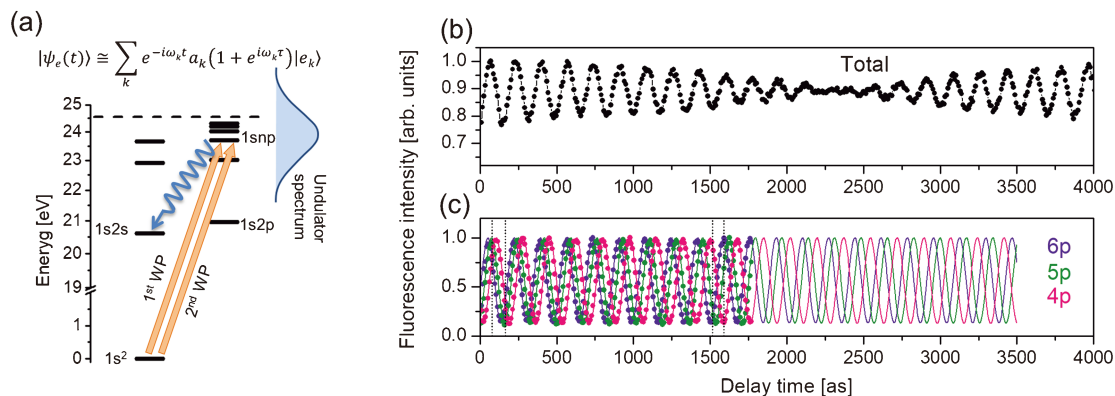


Fig. 4 (Color online) (a) Experimental scheme of the population control. The helium atom is excited into the 1snp superposition states by the pair of horizontally polarized XUV radiation wave packets. Fluorescence intensities are measured as a function of the time delay between the radiation wave packets²¹. (b) Total fluorescence in the visible and ultraviolet regions. (c) Contributions from the 1snp excited states of $n=4-6$.

mm, 周期数10)である。アンジュレータ放射の基本波の中心波長をヘリウム原子の $1s \rightarrow 6p$ 励起に合わせて約52 nm (光周期はおよそ170 as) へ設定した。そのバンド幅は10%程度であるため、Fig. 4aに示すように $n=3$ 以上の 1snp 状態への励起がカバーされる。タンデムアンジュレータを通過する電子は10サイクルの放射波束のペアを発する。二種類の制御実験における放射波形の様子を Fig. 3b, cに示した。アンジュレータの間には位相子が設置されており、放射波束ペアの遅延時間をアト秒精度で調整できる。放射波形を保つために、分光器は使わずにアンジュレータ放射を実験チェンバーへ導いている。ヘリウム原子の励起状態の生成量は、可視域の蛍光収量 (1snp \rightarrow 1s2s 蛍光緩和) を観測することでモニターした。このとき、バンドパスフィルターを切り替えることで、観測対象の 1snp 状態を弁別することが可能である。

3.2 Population 制御

この実験では水平直線偏光の放射波束ペアをヘリウム原子へ照射する。Fig. 4aに示すように、放射波束ペアとの相互作用によって、ヘリウム原子には $n=3$ 以上の 1snp 状態を重ね合わせた電子波束のペアが生成される。放射光による電子波束の干渉を検証するため、まず、バンドパスフィルターを使わずに可視域の全蛍光収量を遅延時間の関数として測定した (Fig. 4b)。アンジュレータ内で電子が光に追い越される効果*によって、位相子がゼロ磁場の場合

(Fig. 4b, cの時間原点)でも放射波束ペアには2 fs 秒程度の遅延時間が生じる。そのため、Fig. 4b, cの横軸はその2 fs 秒程度からの遅延時間の増加量を表している。

Fig. 4bの蛍光収量の測定結果を見ると、およそ170 as 周期で振動し、さらに4 fs 程度の周期での緩やかな振動が重畳されていることが分かる。この結果は、タンデムアンジュレータで得られる放射波束ペアによって、電子波束の干渉が引き起こされていることを示している。170 as 秒程度の速い振動は、複数の励起状態の遷移周波数の中心値に相当する。一方、4 fs 程度の比較的遅い振動は、励起状態ごとに遷移周波数が異なることで生じるビートである。観測されたビートの構造は、電子波束の時間発展を古典的な軌道運動と捉える解釈が直感的に理解しやすい^{3,4})。すなわち原子が放射波束ペアと段階的に相互作用する場合、最初に発生した電子波束が時間発展して初期位置に戻ってきたタイミングで二つ目の電子波束が生じれば、二つの電子波束の空間的な重なりが大きい。このタイミング近辺に遅延時間を調整すれば干渉による振幅の変化が顕著となる (遅延時間0または4 fs 付近)。一方、二つの電子波束が空間的に離れていけば逆の傾向となる (遅延時間2 fs 付近)。ただし、実際に観測されたビート構造は、励起断面積と蛍光緩和の分岐比および実験条件 (アンジュレータスペクトル分布, 光電子増倍管の検出効率) の影響も受けている。

前節で示したように、個々の固有状態に着目すれば、その population は遅延時間の関数として正弦波状に変化するはずである。そこでバンドパスフィルターを使って 1snp 状態 ($n=4-6$) の生成量を個別に測定したところ、Fig. 4cに示したように正弦波状の強度変化が明瞭に観測できた。励起状態ごとに遷移周波数が異なるために、遅延時間の増加によって振動の位相が徐々にずれていく様子が見て取れる。そのため、ある遅延時間に着目すれば、そこで各励起状態の生成比は励起断面積比とは異なったものと

* 光のスリッページと呼ばれる効果。電子はアンジュレータ内で蛇行運動することで、自身が発した電磁波から徐々に遅れていく。基本波の場合、磁場一周ごとに一放射波長だけ遅れる。そのため、アンジュレータを通過した直後には電子は自らが発した放射波束の最後尾に位置することになる。本研究の場合、スリッページによっておよそ1.7 fsの遅延時間が生じる。さらに二台のアンジュレータ間のドリフトスペースでも放射波束に対する電子の遅れが生じるため、放射波束ペアの遅延時間は最小で2 fs程度となる。

なっている。たとえば、Fig. 5 に示したように、遅延時間が80 as では $n=4-6$ の励起状態はいずれも多く生成されているが、165 as ではそれらの生成は抑制されている。また、特定の励起状態だけその生成を強調あるいは抑制することも可能である。遅延時間1515 as と1590 as を比べると、1s4p 状態を選択的に操作できていることがわかるだろう。すなわち、遅延時間の操作により量子状態の population 制御を実現することができた。

3.3 Alignment 制御

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の放射波束ペアをヘリウム原子へ照射した。Fig. 6a に制御法を模式的に示す。放射波束ペアとの相互作用によって実際には $n=3$ 以上の励起状態が重ね合わされるが、ここでは説明を簡略化して1s6p 状態だけを取り上げる。ヘリウム原子と円偏光ペアとの相互作用によって、1s6p 状態の二つの磁気副準位 ($M_j = \pm 1$) がコヒーレントに重ね

合わされた状態が生成される。遅延時間を操作することによりその干渉を制御できることになるが、これを原子の電子軌道の観点から考察してみよう。最初に左回り円偏光との相互作用によって励起状態は p^+ 軌道の確率振幅を持つ。次にある遅延時間で右回り円偏光と相互作用することで、 p^- 軌道の確率振幅がコヒーレントに重ね合わされる。このとき波動関数の空間分布の角度依存性は、

$$|-Y_{1+1}(\theta, \phi) + e^{+i\omega\tau} Y_{1-1}(\theta, \phi)|^2 \propto \sin^2 \theta \cos^2 \left(\phi - \frac{\omega\tau}{2} \right) \quad (3)$$

となる。ここで、 ω は基底状態から1s6p 状態への遷移周波数、 $Y_{1\pm 1}(\theta, \phi)$ は球面調和関数である。すなわち、 xy 平面内のある方向に傾いた p 軌道が生成することになる。円偏光ペアの遅延時間を操作すれば、その p 軌道の傾き(方位角)を制御できることがわかる。

Fig. 6b に遅延時間の関数として測定した蛍光収量を示す。蛍光検出器は鉛直方向 (y 軸上) に置き、バンドパスフィルターにより1s6p 状態からの蛍光のみを弁別して観測した。測定結果には1s6p 状態の遷移周波数に相当する約170 as 周期での振動が見られる。これを alignment 制御の観点で解釈してみよう。式(3)に示されるように、遅延時間を連続的に変えていけば、重ね合わせによってできた p 軌道の方位角は回転する。その回転の周波数は遷移周波数の半分となる。生成した p 軌道の失活で s 軌道へ双極子遷移するとき、蛍光は軌道の傾きに直交する方向を中心として放出される。遅延時間と軌道の傾きおよび蛍光の放出方向の関係を Fig. 6b の上段パネルに図示した。したがって、遅延時間を変化させると遷移周波数での正弦波振動が生じることになる。実験結果はこのモデルでよく再現できている、円偏光を使うことによって量子状態の alignment

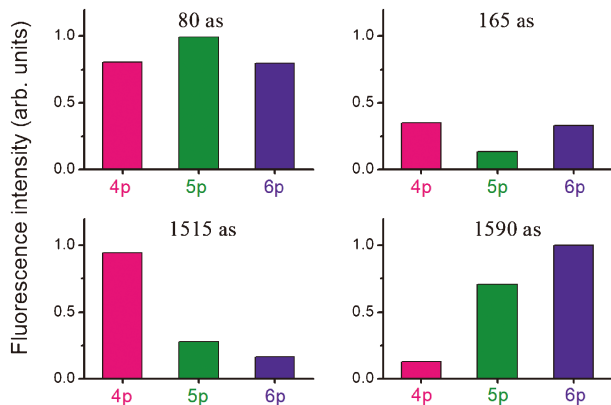


Fig. 5 (Color online) Populations of 1snp states at four different time delays between the radiation wave packets²¹⁾.

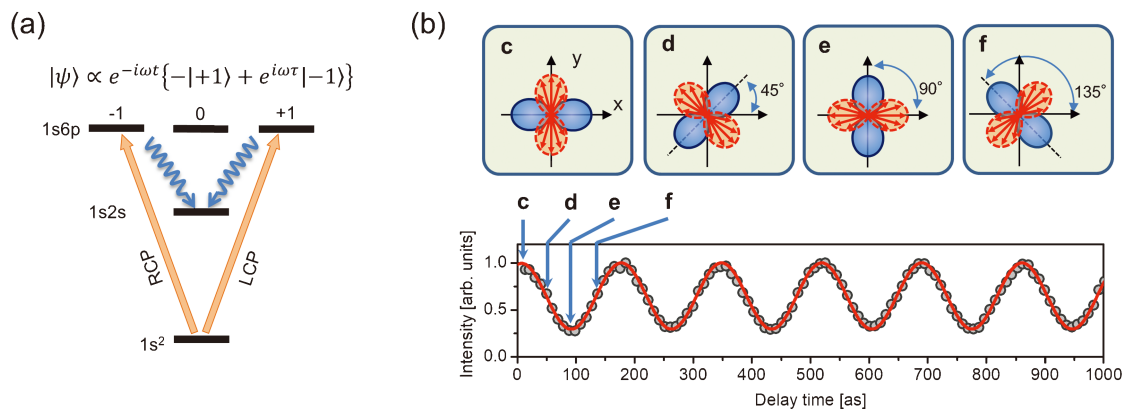


Fig. 6 (Color online) (a) Experimental scheme of the alignment control. The helium atom is excited into the 1s6p superposition state which consists of the $M_j = \pm 1$ substates associated with the first (LCP) and second (RCP) parts of the wave packet pair. (b) Fluorescence yield measured as a function of the delay time. The gray circles are measured data and the red line shows the theoretical curve. Polar plots of the aligned 6p orbital (blue) and dipole emission pattern (red) in the xy plane are also shown in top panels (c-f).

を制御できることが分かった。

3.4 時間分解能

最後に遅延時間設定の時間分解能について簡単に触れておこう。今回示したコヒーレント制御実験における蛍光収量の周期変動のコントラストは理想的な条件では1となるはずであるが、実際には0.6~0.8程度であった。このコントラストの低下は遅延時間設定の時間分解能を反映している。この時間分解能の形状としてガウス関数を仮定して簡単な計算を行ったところ、時間分解能は水平偏光の実験で20 as (1σ)程度、円偏光を使った実験で26 as (1σ)程度と求まった。アンジュレータ放射を起こす個々の電子の運動状態のばらつきがこの時間分解能の要因となるが、UVSORの電子ビームのパラメータからは10 asの時間分解能が原理的な限界として推定される。この原理的な制約には、電子ビームのエミッタンスが支配的である。一方、我々の実験ではその他の要因(二台のアンジュレータからの放射の空間重なり等)もコントラストの低下に寄与しているものと考えられる。

4. まとめと展望

本稿ではタンデムアンジュレータを使ったコヒーレント制御法とそれを用いたXUV領域のコヒーレント制御の実証実験を紹介した。タンデムアンジュレータが発する放射波束ペアの遅延時間をアト秒オーダーで調整することで、ヘリウム原子の励起状態の生成量や電子軌道の傾きを自在に操作できることが実証された。

本手法の利点は、既存の加速器光源技術の枠組みで、真空紫外より短い波長域でのコヒーレント制御を簡便に行えることである。原理的には波長や光電場サイクル数の設定に制限はなく、またアンジュレータの磁石周期や配列を制御目的に応じて最適化することもできる。本手法をXUV領域からさらに短波長化する際には、現実的には遅延時間の分解能が電子ビームの性能で制限されることが問題となるが、現在のUVSORの光源性能でも軟X線領域までならば、我々の手法で十分なコヒーレント制御実験が可能と見積もっている。また最新の低エミッタンス光源と測定側でのピンホール利用等の工夫を組み合わせれば、X線領域でのコヒーレント制御も十分に視野に入るだろう。その一方で、量子干渉により高いコントラストが求められるケースでは回折限界光源の利用が望ましい。

今後、真空紫外からX線までの広い波長範囲で様々な物質系への本手法の適用が期待される。一方、多光子励起を利用した多彩な制御には自由電子レーザーや高次高調波が必要であり、これらの光源を用いれば本手法では望めないフェムト秒レーザーとの同期を利用した制御^{26,27)}も可能である。現在の放射光、自由電子レーザー、高次高調波の光源技術の進歩の速さを考えれば、X線コヒーレント制

御という新たな研究分野がいずれ開拓されるのは間違い無い。そこではこれら特性の異なる光源を制御の用途に応じた相補的に活用していくことが肝要となるであろう。

謝辞

本稿で紹介したコヒーレント制御実験は岩山洋士助教(分子科学研究所)、藤本将輝助教(分子科学研究所)との共同研究として行われました。また本研究は科学研究費補助金(17H01075, 18K03489, 18K11945)および自然科学研究機構新分野創生センター先端光科学研究分野プロジェクト(01211906)の支援を受けて行われました。UVSOR BL1Uは文部科学省量子ビーム基盤技術開発プログラムの補助を得て建設されたものです。

参考文献

- 1) M. Shapiro and P. Brumer: *Chem. Phys. Lett.* **126**, 541 (1986).
- 2) Ce Chen, Yi-Yian Yin and D. S. Elliot: *Phys. Rev. Lett.* **64**, 507 (1990).
- 3) L. D. Noordam, D. I. Duncan and T. F. Gallagher: *Phys. Rev. A* **45**, 4734 (1992).
- 4) M. W. Noel and C. R. Stroud, Jr: *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1252 (1995).
- 5) Yi-Yian Yen, Ce Chen, D. S. Elliot and A. V. Smith: *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2353 (1992).
- 6) S. M. Park, S.-P. Lu and R. J. Gordon: *J. Chem. Phys.* **94**, 8622 (1991).
- 7) V. D. Kleiman, L. Zhu, J. Allen and R. J. Gordon: *J. Chem. Phys.* **103**, 10800 (1995).
- 8) L. Zhu, K. Suto, J. A. Fiss, R. Wada, T. Seideman and R. J. Gordon: *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4108 (1997).
- 9) R. J. Gordon and S. A. Rice: *Annu. Rev. Phys. Chem.* **48**, 601 (1997).
- 10) M. Shapiro and P. Brumer: *Rep. Prog. Phys.* **66**, 859 (2003).
- 11) C. Rulliere, *Femtosecond Laser Pulses* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2005).
- 12) K. Ohmori: *Annu. Rev. Phys. Chem.* **60**, 487 (2009).
- 13) C. Brif, R. Chakrabarti and H. Rabitz: *New J. Phys.* **12**, 075008 (2010).
- 14) K. C. Prince *et al.*: *Nat. Photonics* **10**, 176 (2016).
- 15) Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanocuchi and K. Midorikawa: *Nat. Commun.* **7**, 12835 (2016).
- 16) E. Skantzakis, P. Tzallas, J. E. Kruse, C. Kalpouzos, O. Faucher, G. D. Tsakiris and D. Charalambidis: *Phys. Rev. Lett.* **105**, 043902 (2010).
- 17) P. Tzallas, E. Skantzakis, L. A. A. Nikolopoulos, G. D. Tsakiris and D. Charalambidis: *Nature Physics* **7**, 781 (2011).
- 18) T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, A. A. Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanocuchi and K. Midorikawa: *Sci. Adv.* **1**, e1500356 (2015).
- 19) J. Amann *et al.*: *Nat. Photonics* **6**, 693 (2012).
- 20) I. Inoue *et al.*: *Nat. Photonics* **13**, 319 (2019).
- 21) Y. Hikosaka, T. Kaneyasu, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: *Nat. Commun.* **10**, 4988 (2019).
- 22) T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: *Phys. Rev. Lett.* **123**, 233401 (2019).
- 23) K. Je Kim: *Nucl. Instrum. Methods* **219**, 425 (1984).

- 24) P. Elleaume: J. Phys. **44**, 333 (1983).
 25) T. Kaneyasu, Y. Hikosaka, M. Fujimoto, H. Iwayama and M. Katoh: New J. Phys. **22**, 083062 (2020).
 26) P. Ranitovic *et al.*: PNAS **111**, 912 (2014).
 27) C. W. Hogle, X. M. Tong, L. Martin, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn and P. Ranitovic: Phys. Rev. Lett. **115**, 173004 (2015).

著者紹介

**金安達夫**

九州シンクロトロン光研究センター 副主任研究員

E-mail: kaneyasu@saga-ls.jp

専門：原子分子物理学・加速器科学

【略歴】

2004年東京都立大学大学院理学研究科博士課程修了。博士（理学）。東京大学、分子科学研究所での博士研究員を経て、2008年より九州シンクロトロン光研究センター研究員、2009年より現職。2018-2019年分子科学研究所客員准教授。

**加藤政博**

広島大学放射光科学研究センター 教授
自然科学研究機構分子科学研究所 特任教授

E-mail: mkatoh@hiroshima-u.ac.jp

専門：加速器・ビーム物理学

【略歴】

1986年東京大学大学院中退。博士（理学）。1986年高エネルギー物理学研究所助手。2000年岡崎国立共同研究機構分子科学研究所助教授。2004年同教授。2020年より現職。

**彦坂泰正**

富山大学教養教育院 教授

E-mail: hikosaka@las.u-toyama.ac.jp

専門：原子分子物理学・分子科学

【略歴】

1997年東京工業大学理工学研究科博士課程修了，博士（理学）。分子科学研究所，日本学術振興会，オックスフォード大学，物質構造科学研究所での博士研究員，分子科学研究所・助手/助教，新潟大学・准教授を経て，2015年より現職。

Coherent control of atoms by synchrotron radiation

Tatsuo KANEYASU

SAGA Light Source, Tosu 841-0005, Japan
Institute for Molecular Science, Okazaki 444-8585, Japan

Yasumasa HIKOSAKA

Institute of Liberal Arts and Sciences, University of Toyama, Toyama 930-0194, Japan

Masahiro KATOH

Hiroshima Synchrotron Radiation Center, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima 739-0046, Japan
Institute for Molecular Science, Okazaki 444-8585, Japan

Abstract We report on a new application of coherence in synchrotron radiation — the coherent control of excited state population and alignment. The performance of our scheme is demonstrated by the photoexcitation of helium atoms in the extreme ultraviolet wavelength region. Our method is based on the use of the twin undulator for the generation of longitudinally coherent wave packets with attosecond-controlled spacing, and is extendable to much shorter wavelengths. This new capability of synchrotron radiation will open up the possibilities of probing and controlling ultrafast phenomena in a broad range of physics research.