

内殻イオン化を用いた超高速反応イメージング： レーザー高次高調波光源の開発

(分子研¹, 総研大², JST さきがけ³) ○伏谷瑞穂^{1,2}, 松田晃孝¹, 高橋栄治^{1,2,*}, 菱川明栄^{1,2,3}

[序] 高強度フェムト秒レーザーパルスを用いた希ガスなどの非線形媒質に集光することによって、軟 X 線領域にまで達する高次高調波が発生する[1]。レーザー高次高調波は(i)高い光子エネルギー (~100eV), (ii)フェムト秒からアト秒領域の極めて短いパルス幅, (iii)高い時間・空間コヒーレンスを備え, (iv)他のレーザー光源との同期が容易である, などの他の光源にはない際立った特徴をもつ。我々のグループでは, 特にこのレーザー高次高調波による内殻イオン化過程に伴う光電子散乱 (ホログラフィー) およびクーロン爆発過程に着目し, これを利用した超高速反応イメージングの実現に向けて研究を進めている。本研究ではレーザー高次高調波の光源開発とその性能評価を行った。

実験装置は図 1 に示すようにレーザー高次高調波発生部, 特定次数の高調波を選択的に取り出すためのビームライン, および電子・イオンコインシデンス計測部で構成されている。

[レーザー高次高調波発生] 音響光学分散フィルターによって波形整形したフェムト秒レーザーパルスを再生増幅し, 高強度フェムト秒レーザーパルス (>30 fs, ~800 nm, ~2 mJ/pulse, 1 kHz) を得た。このレーザーパルスを平凸レンズ (f = 600 mm) を用いて高真空チャンバー内に置かれた高調波セル (媒質: Ne) 中に集光し, 高次高調波を発生させた。収差補正凹面回折格子および蛍光スクリーン付 MCP を用いて, 波長範囲 10~30 nm のレーザー高次高調波スペクトルを観測した。非線形媒質として Ne 130 Torr を用いた場合の 2 次元レーザー高次高調波スペクトル像を図 2 に示す。33 次から 63 次までほぼ一定の強度を持ついわゆる「プラトー領域」が観測された。媒質 Ne ガス圧が ~130 Torr の時に, 59 次高調波 (~91 eV) の発散角は最小 (1.1 mrad) となり, 基本波と高次高調波の位相整合が最適となることがわかった。軟 X 線用 Si フォトダイオードを用いて強度を測

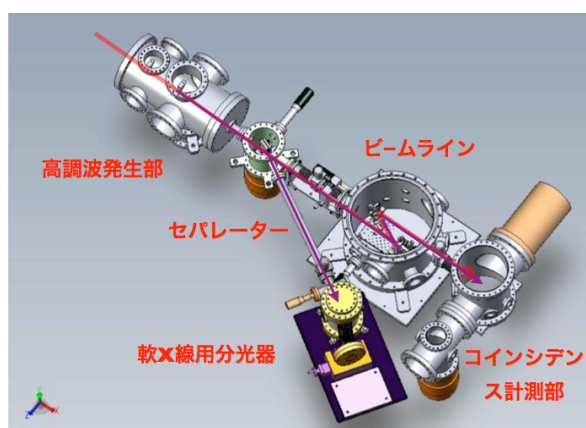


図 1 実験装置の概略図。高調波発生部で発生したレーザー高次高調波はビームラインで単色化され, コインシデンス計測部へと導かれる。発生したレーザー高次高調波のスペクトルおよび発散角の評価はセパレーター下流に設置した軟 X 線用分光器を用いて行う。

* 現所属: 理化学研究所 緑川レーザー物理工学研究室

定したところ、このとき 59 次高調波の強度は最大となり、光子フラックスは 3.4×10^9 photons/s であった。

[ビームラインの構築] 発生したレーザー高次高調波の計測系への導入は同軸 2 重構造を持つミラー部と集光用 Mo/Si 凹面ミラーを備えたビームラインを用いる。同軸ミラー部は、内側に高次高調波反射用の Mo/Si 多層膜ミラー、外側に基本波 (~800 nm) 反射用の銀ミラーから構成され、その相対位置をピエゾ素子を用いて制御することで、基本波および高次高調波パルス間の遅延時間をコントロールする。図 3 に、この目的のために製作した Mo/Si 多層膜ミラーの反射率特性を示す。計測は分子科学研究所、極短紫外光研究施設、UVSOR のビームライン BL8B1 で行った。反射帯域は半値幅で約 2.5 eV であり、これを用いて 90 eV 近傍の高調波だけを選択的に取り出すことが可能である。

[Xe4d 内殻光電子の観測] 入射角 5 度に設定した 2 枚の Mo/Si 多層膜ミラーを用いて単色化した 59 次高調波を励起光源として、Xe の光電子スペクトルを計測したところ、Xe の 4d 内殻光電子に対応する二重線（束縛エネルギー、67.5eV および 69.5eV）およびオージェ電子の鋭いピークが多数観測された。観測された 4d 内殻光電子は高次高調波の周波数帯域を反映して、幅の広いスペクトルピークを示し、その半値全幅 (1.1eV) から 59 次高調波のパルス時間幅はフーリエ限界で 1.8fs であると見積もられた。

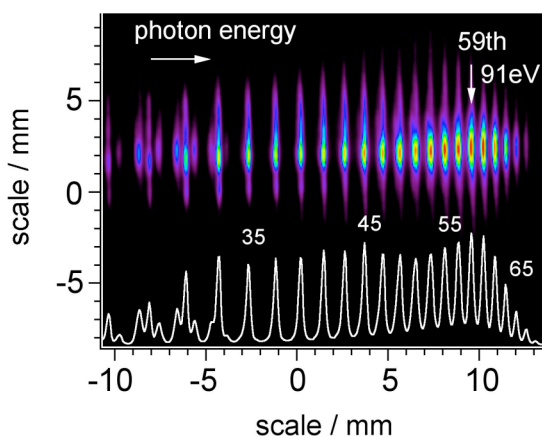


図 2 軟 X 線分光器におけるレーザー高次高調波の 2 次元スペクトル像。非線形媒質 Ne (圧力 130Torr)。69 次までの高次高調波が発生し、各次数の高調波のビームサイズは蛍光面上で 2mm 程度であることがわかる。

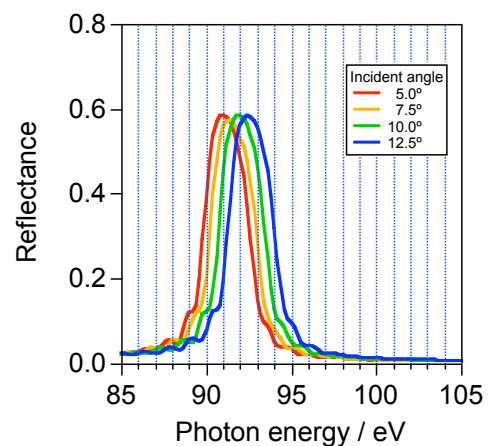


図 3 Mo/Si 多層膜ミラーの反射率および角度依存性。

[参考文献]

- [1] T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000)