

3A06 高強度 XUV-FEL 光による原子・分子の2光子イオン化過程の波長依存性

(東大院理1, 理研XFEL2, KEK 物構研3, 慶大理工4, 原子力機構5, 理研6, NTT 物性基礎研7)○佐藤 堯洋1,2, 岩崎 純史1,2, 石橋 和樹1,2, 沖野 友哉1, 中井 克典1, 山内 薫1,2, 足立 純一2,3, 柳下 明2,3, 矢澤 洋紀2,4, 神成 文彦4, 青山 誠2,5, 山川 考一5, 緑川 克美6, 中野 秀俊7, 矢橋 牧名2, 永園 充2, 東谷 篤志2, 石川 哲也2

[序] 近赤外から可視域における高強度光源の発展により、超閾イオン化、クーロン爆発、多光子イオン化、トンネルイオン化、水素マイグレーション等の強光子場中の原子や分子の振舞いを観測することが可能となった¹⁾。また、高次高調波や極短波長 FEL (free electron laser) の発展により真空紫外域から極端紫外域における高強度光による原子・分子ダイナミクスの研究例が数多く報告されるようになってきた。その中で理研播磨に建設された SCSS 試験加速器は極端紫外域で高強度、波長可変という特長を持つため、極短波長領域での原子・分子ダイナミクスへの利用応用が期待される。

FEL を利用した非線形過程の観測は、欧州の FLASH (Free electron LASer in Hamburg) において数多く実施され、特に希ガス原子のイオン化では、He の 2 光子 2 電子イオン化における詳細なイオン化過程や Ne、Ar や Kr における 7 価、Xe のイオン化において 21 価にも達する逐次イオン化、波長依存性など、高次高調波の場合とは異なったイオン化の観測結果が報告されている²⁾。一方、炭化水素分子のイオン化ポテンシャルが 10 eV 程度と FEL の光子エネルギーに対して低く、10 eV から 20 eV 程度の光子エネルギーにおいて、種々の解離チャンネルによるフラグメントイオンが報告されている。そのような炭化水素分子に対して高強度極短波長光を照射したときの解離反応を含めた多重イオン化ダイナミクスは明らかにされていない。我々は高強度極端紫外光源である XUV-FEL の波長可変性を生かした原子・分子のイオン化ダイナミクスの解明を目指して、He、Ar およびエタノールにおける光イオン化の波長依存性の観測を行った。

[実験] XUV-FEL 光(発振波長 50~60 nm, 20 Hz) を高真空(5×10^{-7} Pa)のチェンバーに導入し、焦点距離 100 mm の SiC ミラーによって、パルスバルブおよびスキマーを用いて噴射した原子・分子線(1.2 atm)に対し、非同軸後方集光で照射した(集光強度 $\sim 10^{14}$ W/cm²)。FEL 光の偏光方向は飛行時間型質量分析器(TOF-MS)の軸方向に並行とした。サンプルとして、He と H₂ との混合ガス(混合比 97:3)、Ar、エタノールを用いた。原子イオン、多価イオン、親分子イオンおよびフラグメントイオンの生成量の波長依存性を観測した。FEL のパルスエネルギーは施設設備のアルゴンイオンモニターによって TOF シグナルと同時にオシロスコープで計

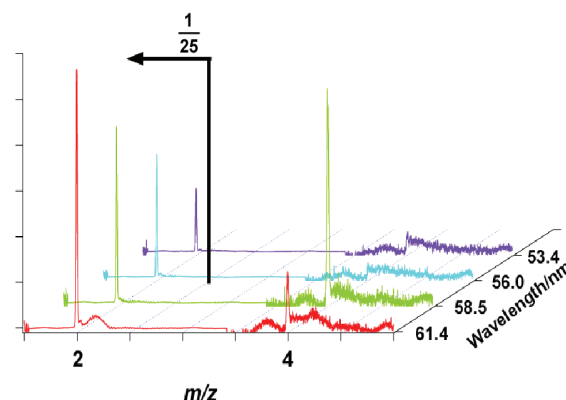


図 1. He/H₂ 混合ガスにおける質量スペクトルとその波長依存性

測した。

【結果と考察】図1に示したHeの質量スペクトルでは2光子イオン化によって He^+ ($m/z = 4$)が観測された。 H_2^+ ($m/z = 2$) 収量が短波長側で単調減少しているのに対して、 He^+ では58.5 nmにおいて顕著な収量増加が観測された。これは1s-2p遷移による2光子共鳴イオン化に由来する。強度依存性を調べたところ、非共鳴波長では1.9(2)と2次に近い非線形性を示したが共鳴波長においては1.7(2)次と低く算出された。これは高強度FEL光による非摂動の電子相関で生じた電子励起状態間のカップリングによる飽和現象であると考えられる。

次に52 nmにおけるArの光イオン化観測結果を図2に示す。Arの質量スペクトル中には、多価イオンに対応するピークが観測され、7価に達する逐次イオン化が生じている。これはFLASH(13.7 nm、 $1.8 \times 10^{15} \text{W/cm}^2$)で報告されている価数と同じであり、18光子吸収を要する。波長51.4 nmでも同様に7価までの逐次イオン化を観測した。両波長において Ar^{n+} のパルスエネルギーに対する強度依存性を調べたところ、51.4 nmの場合のみ、FEL

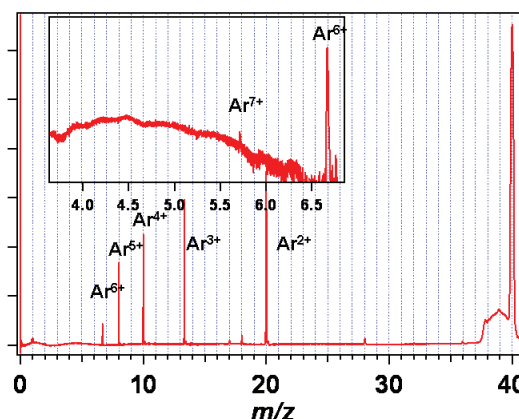


図2. Arにおける質量スペクトル (波長：52 nm)

パルス強度の増加に伴い、2価イオン収量の増加が確認された。これは2価へのイオン化過程において、共鳴3光子過程の寄与が増加したと考えられる。

図3に示したエタノールの質量スペクトル中には、 $\text{C}_2\text{H}_i\text{O}^+$ ($i = 0 \sim 6$)、 CH_mO^+ ($m = 0 \sim 4$)、 C_2H_l^+ ($l = 0 \sim 5$)、 H_nO^+ ($n = 0 \sim 3$)、 CH_j^+ ($j = 0 \sim 3$)、 H_k^+ ($k = 0 \sim 3$)に加えて、2価イオンで安定構造を持つ $\text{C}_2\text{H}_2\text{OH}^{2+}$ (b)が観測された。波長61 nmでは CH_3^+ のピークはサイドピーク(a)を伴っており、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^{2+}$ がクーロン爆発して CH_3^+ が放出されたことを示している。 CH_3^+ の生成量の強度依存性を調べたところ、サイドピークは1.8(6)次の依存性を示し、エタノールの第2イオン化ポテンシャル(28 eV)、FEL光の光子エネルギー(20.3 eV, 61 nm)から、エタノールが高強度FEL光を2光子吸収して2価イオン生成後、クーロン爆発したことを示している。波長51 nmではクーロン爆発および $m/z = 25$ 、24、13、12のピークが観測されておらず、2光子過程よりも1光子過程による解離の寄与が大きいことがわかった。また、波長61 nmでは、2光子過程による多価イオン生成だけでなく、超励起状態あるいは逐次的な光吸収により水素原子の脱離が生じていることを示唆している。

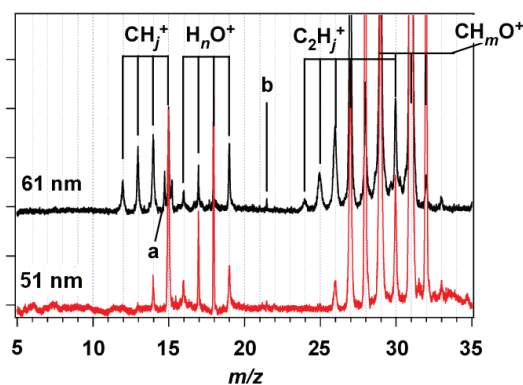


図3. エタノールにおける質量スペクトル ($m/z = 5 \sim 35$)

1. K. Yamanouchi, *et al.*, Eds. "Progress in Ultrafast Intense Laser Science I ~ III," Springer, (2006-2008).
2. M. Richter, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 163002.