2A03 深紫外強レーザー場中原子のシングルショット光電子分光: Ar の多光子 2 重イオン化過程の解明

(分子研¹, 総研大², 理研 XFEL³, 新潟大院・理⁴, 名大院・理⁵, JASRI⁶) ○ 伏谷 瑞穂^{1,2,3}, 彦坂 泰正^{1,2,3,4}, 松田 晃孝^{1,3}, 曾 建銘^{1,3}, 菱川 明栄^{1,2,3,5}, 繁政 英治^{1,2,3}, 永園 充³, 登野 健介³, 富樫 格^{3,6}, 大橋 治彦^{3,6}, 木村 洋明^{3,6}, 仙波 泰徳⁶, 矢橋 牧名³, 石川 哲也³

【序】近年,軟X線・深紫外域における高強度レーザー場と物質の相互作用が関心をあつめ, 低温高密度プラズマの生成[1],光スイッチング[2]や生体分子のイメージング[3]等の応用とと もに,その物理過程の基礎的理解を目指した原子・分子の非線形ダイナミクスの研究が進め られるようになった [4-8]。その結果,原子・分子の典型的な非線形応答として多光子吸収多 重イオン化が起きることが示され,生成したイオンの収量や運動量の計測に基づいてその機 構についての理解が進められて来た[6-8]。本研究では,深紫外強レーザ場における多光子吸 収多重イオン化過程を明らかにするため,イオン化過程において生成した中間状態や終状態 を直接反映する光電子の分光計測を行った。特に,ショット毎に光電子スペクトルの計測か ら決定した FEL 光の波長を非線形過程に由来する信号と同時にモニターすることで,多光子 吸収多重イオン化における共鳴の効果を明らかにすることを目指した。

【実験】理化学研究所播磨研究所 SCSS 試験加速器より得られた深紫外域自由電子レーザー (FEL)光 (~21 eV, 30 μJ,~100 fs, 20 Hz)を楕円ミラーおよび円筒ミラーからなる前置集光系を 用いて相互作用領域に集光した。スポットサイズの直径は約 25μm であり,FEL 光の強度は ~5 TW/cm² と見積もられた。FEL 光の強度はビームライン上流に設置された Ar ガスアッテネ ーターを用いて制御・計測した。この FEL 光は自己増幅自発放射(SASE)方式により発振して いるため,そのエネルギースペクトルにはショット毎の揺らぎがある。このショット毎のス ペクトル揺らぎを光電子ピークの揺らぎとして検出するため,磁気ボトル型光電子分光器を 用いたシングルショット計測を行った。イオン化により発生した光電子は永久磁石によって 形成された磁気ミラーおよびソレノイドによる誘導磁場により全立体角に渡る高い捕集効率 で検出器側へと導かれる。このため,試料ガスの圧力を低く抑えることができ(10⁸ Torr),ス ペクトルゆがみの原因となる空間電荷効果の影響を抑制できた。また,長さ約1.5mの飛行管 を用いることで,エネルギー分解能の向上を図った (E/ΔE = 20)。光電子のエネルギー校正は FEL 光 (24.4eV)の3倍波(73.2eV)によって放出される Xe のオージェ電子スペクトルを用い て行った。

【結果と考察】 波長 58.0 nm(21.4 eV)の FEL 光照射における Ar の光電子スペクトルを図1に示 す。5.6 eV に観測されたピークはエネルギー保存則より1 光子吸収による1 価 Ar イオン状態に起因 する光電子(Ar⁺ 3p⁻¹)と帰属した。このピークの他に、10~16 eV のエネルギー領域に3本の光電子ピ ークが観測された。これらのピーク強度は FEL の光強度に対し非線形な振る舞いを示した。この FEL 強度依存の解析の結果、これらの光電子ピークは1 価 Ar イオン状態が生成した後に2 光子吸収に よって2価Ar イオン状態(Ar²⁺ 3p⁻²)が生成する多段階的3光子2重イオン化によるものと帰属した (図1):(i)Ar + $hv \rightarrow Ar^+$ + e⁻,(ii)Ar⁺ + $2hv \rightarrow Ar^{2+}$ + e⁻。これら3本のピークはそれぞれ2価Ar イ オンの異なる終状態(¹S, ¹D, ³P)に対応している。図2にAr²⁺ 3p⁻²ピークのFEL 波長依存性 (21.0~21.4 eV)を示す。FEL 波長はAr⁺ 3p⁻¹の光電子ピークをショット毎に測定することで決定した。 各々のピークは光子エネルギーが高くなるにつれ、ピーク強度が増大している。このことは、2価Ar イオンの生成過程において1価Ar イオンの励起状態への共鳴が重要であることを明瞭に示している [9]。

【参考文献】

[1] Nagler, et al., Nat. Phys. 5, 693 (2009).

- [2] Yoneda, et al., Opt. Exp. 17, 23443 (2009).
- [3] Neutze, et al., Nature 406, 752 (2000).
- [4] Nagasono, et al., Phys. Rev. A 75, 051406(R) (2007).
- [5] Sorokin, et al., Phys. Rev. Lett. 99, 213002 (2007).
- [6] Moshammer, et al., Phys. Rev. Lett. 98, 203001 (2007).
- [7] Sato, et al., Appl. Phys. Lett. 92, 154103 (2008).
- [8] Motomura, et al., J. Phys. B 42, 221003 (2009).
- [9] Hikosaka, et al., submitted.



図1 FEL 光 (hv = 21.4eV) 照射によって観 測された Ar の光電子スペクトル (積算 15000 ショット)。Ar の1 光子イオン化によ る光電子ピーク (Ar⁺ 3p⁻¹) の他に Ar⁺の 2 光子イオン化に起因する 3 本の光電子ピー ク (Ar²⁺ 3p⁻²) が観測された。(挿入図) シ ングルショット毎に Ar⁺ 3p⁻¹ ピークから求 めた FEL の平均光子エネルギーと FEL 強度 との相関プロット。



図 2 シングルショット計測による Ar²⁺光電子 ピークの FEL 波長依存性。平均光子エネルギ ーは 3 つの FEL の光子エネルギーの設定 (21.0eV, 21.2eV および 21.4eV)で測定した Ar⁺3p⁻¹ピークより決定した。ショット毎のス ペクトルを平均光子エネルギーに対してソー トし, 30 meV の光子エネルギー範囲で積分 した光電子スペクトルをプロットしている。