

## 2A12 高強度 XUV-FEL 光による窒素分子の解離性多光子光イオン化の波長依存性

(東大院理<sup>1</sup>, 理研 XFEL<sup>2</sup>, KEK 物構研<sup>3</sup>, 慶大理工<sup>4</sup>, 原子力機構<sup>5</sup>, 理研<sup>6</sup>, NTT 物性基礎研<sup>7</sup>)

○佐藤 堯洋<sup>1,2</sup>, 岩崎 純史<sup>1,2</sup>, 沖野 友哉<sup>1</sup>, 山内 薫<sup>1,2</sup>, 足立 純一<sup>2,3</sup>, 宮内 直弥<sup>2,3</sup>, 柳下 明<sup>2,3</sup>, 神成 文彦<sup>4</sup>, 青山 誠<sup>2,5</sup>, 山川 考一<sup>5</sup>, 緑川 克美<sup>6</sup>, 中野 秀俊<sup>7</sup>, 矢橋 牧名<sup>2</sup>, 永園 充<sup>2</sup>, 富樫 格<sup>2</sup>, 登野 健介<sup>2</sup>, 石川 哲也<sup>2</sup>

[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<sup>1</sup>. 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<sup>2</sup>. 理研播磨の 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・分子ダイナミクスの観測への応用が期待される. 我々は高強度 XUV-FEL 光 (50~60nm)を窒素分子(N<sub>2</sub>)に照射することによって光イオン化を行い, 多光子多重イオン化と, その解離過程について, 波長依存性を観測した.

[実験] 理研播磨に建設された SCSS 試験加速器からの出力パルス光 (50~60nm, 20 Hz) (以下, XUV-FEL 光と呼ぶ.) を高真空(5×10<sup>-7</sup> 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分子線に対し, 非同軸後方集光で照射した(集光強度 ~5×10<sup>13</sup> W/cm<sup>2</sup>). FEL 光の波長はアンジュレーターギャップを調整することによって, 60 nm, 58 nm, 56 nm, 54 nm, 51 nm と変化させ, 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. XUV-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. XUV-FEL 光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測した.

[結果・考察] XUV-FEL 光を照射して得られた TOF 質量スペクトルには親分子イオン N<sub>2</sub><sup>+</sup>, ならびに, フラグメントイオンである N<sup>+</sup>, N<sup>2+</sup>が観測された. N<sup>+</sup>および N<sup>2+</sup>は N<sub>2</sub>が直接あるいは段階的な 2 光子以上の多光子吸収に伴って解離して生成したフラグメントイオンである. 図 1 に, FEL 光の波長を変えることによって得られた N<sup>+</sup>の運動量スペクトルを示す. フラグメントにおける運動量スペクトルの構造が波長によって異なることが明らかとなった. 図 1 に示したスペクトルにおいて, (i)のピークは, 運動エネルギー放出量が 1 eV から 4 eV の範囲であることから窒素分子の 1 価イオン解離に起因すると考えられる. (i)の外側 90~100×10<sup>3</sup> amu m/s にピーク(ii)が観測された. この運動量放出は 6~8 eV の運動エネルギー放出に相当し, その運動エネルギー放出量から, 1 価イオン解離および N<sub>2</sub><sup>2+</sup>のクーロン爆発に由来すると考えられる. さらにその外側の(iii)120~150×10<sup>3</sup> amu m/s には N<sub>2</sub><sup>3+</sup>のクーロン爆発による N<sup>2+</sup>と N<sup>+</sup>の解離に由来すると考えられるピークが観測された.

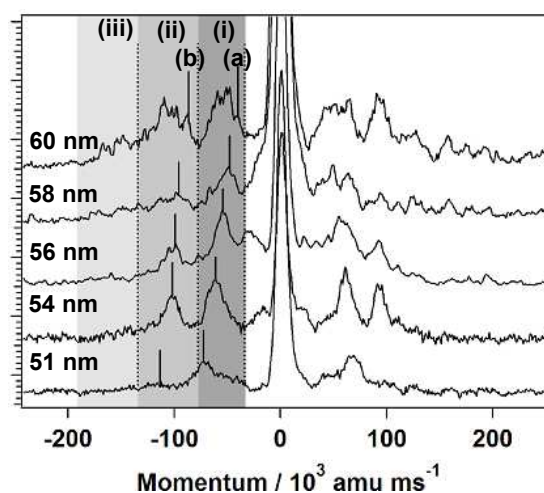


図 1. N<sub>2</sub> から生じた N<sup>+</sup>の運動量スペクトル

各波長における 2 光子吸収過程において、 $N_2^+$  の Franck-Condon 領域におけるポテンシャルカーブを考慮すると、本実験で到達できる最も高エネルギーの 1 価イオン解離限界は  $^2\Sigma_u^+$  を経由した 34.692 eV となる<sup>3)</sup>。光子エネルギーの増加に伴って、フラグメントイオンの運動エネルギー放出量が増加していることから、経由した解離性ポテンシャルに対して光子の余剰エネルギーは小さいと考えられる。直接 2 光子吸収を考慮した場合、到達できるエネルギーは、各波長の光子エネルギーの 2 倍である、60 nm: 41.2 eV, 58 nm: 42.8 eV, 56 nm: 44.2 eV, 54 nm: 45.8 eV, 51 nm: 48.6 eV となる。60 nm におけるピーク (i) は広がった分布を持ち、その運動エネルギー放出量は、 $^2\Sigma_u^+$  を経由した場合の解離限界と直接 2 光子到達エネルギーの差にほぼ一致する。しかし、各波長のピーク (i) における運動エネルギー放出量である (a) に対しては 2eV~10 eV 程度大きくなり、解離限界と 2 光子到達エネルギーとの差には一致しない。従って、FEL 光 1 光子吸収によって、イオン化した後、それら  $N_2^+$  の電子状態を中間状態として、さらに 1 光子を吸収することによって、解離性ポテンシャルを経由して解離したと考えられる。過去の XUV 領域の実験結果から<sup>3,4)</sup>、XUV 領域の光イオン化において、 $N_2^+$  の  $X(^2\Sigma_g^+)$ ,  $A(^2\Pi_u)$ ,  $B(^2\Sigma_u^+)$  状態における振動量子数の低い状態に励起されることが知られている。FEL 光の光子エネルギーに対して、各波長の (a), (b) におけるフラグメントイオンの放出運動エネルギー値をプロットしたところ、図 2 に示す様に、放出運動エネルギーが FEL 光の光子エネルギーに対して比例して増加した。仮定した中間状態 (X, A, B) の内、 $N_2^+$  の  $X(^2\Sigma_g^+)$  を経由した 2 光子過程の場合には、外挿により算出された解離限界は、(a) 34.6 eV, (b) 31.2 eV となった。これらの値は 2 光子吸収後に解離性ポテンシャル  $^2\Sigma_u^+$  を経由した、 $N_2^+$  の 1 価解離における解離限界の理論計算値である 34.629 eV ( $N^+(^3P) + N(3s^4p)$ ) および 30.728 eV ( $N^+(^1S) + N(^2P^o)$ ) の値にそれぞれほぼ一致し、2 光子イオン化における中間状態および解離生成物が帰属された。

高強度 XUV-FEL による  $N_2$  の非線形イオン化において、波長依存性を計測することによって、 $N_2$  の 1 価イオン解離が、イオンの基底状態を経由した段階的な 2 光子過程に起因すること、その結果生じた解離生成物についても、中性原子および原子イオンの電子状態が明らかとなった。

本研究は文部科学省 X 線自由電子レーザー利用推進研究によって遂行された。実験にあたり多大なご協力を頂いた理化学研究所 XFEL 計画合同推進本部のスタッフの皆様に感謝申し上げます。

1. K. Yamanouchi, *et al.*, Eds. "Progress in Ultrafast Intense Laser Science I~V," Springer, (2006)-(2010).
2. 例えば T. Sato, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **96**, 154103 (2008).
3. T. Aoto, *et al.*, J. Chem. Phys. **124**, 234306 (2006).
4. 例えば P. Baltzer, *et al.*, Phys. Rev. A **46**, 5545 (1992).

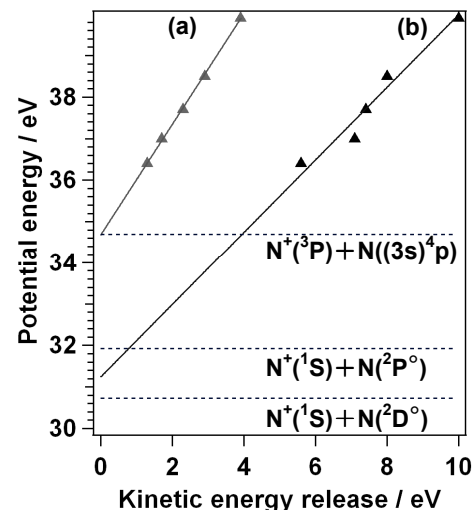


図 2.  $N_2^+X(^2\Sigma_g^+)$  状態を経由した 2 光子による到達エネルギー (15.58 eV+hv) (縦軸)  $N_2^+$  の解離における全放出運動エネルギー (横軸). 点線はポテンシャル近傍における解離限界を示す。