

超高速多チャンネル光イオン化における 光電子とイオンコアの相関波束

(原子力機構・関西研¹, 名大院・理², 日大・理工³)

○板倉隆二¹, 伏谷瑞穂², 菱川明栄², 佐甲徳栄³

Wavepacket of correlated photoelectron and ion core in ultrafast multichannel photoionization

(JAEA KPSI¹, Nagoya Univ.², Nihon Univ.³) ○R. Itakura¹, M. Fushitani², A. Hishikawa², T. Sako³

【序】光電子分光は、様々なイオンのエネルギー準位を一度に決めることができ、イオンの物性研究のみならず、共鳴イオン化などと組み合わせ、中性分子の励起状態の解明にも多大な貢献をしてきた。フェムト秒ポンプ・プローブ法と組み合わせることによって、超高速励起状態ダイナミクスの研究にも威力を発揮している。しかし、イオン化光源の超高速化が進むと観測される光電子のエネルギー広がりも大きくなり、光電子エネルギーからイオンの状態を決めることが困難となる。また、光イオン化によって誘起される単分子反応のダイナミクスなども議論されているが、観測したイオンコアと放出された光電子の関係まで考慮されてこなかった。イオン化生成物のダイナミクスは、相関する光電子の状態ごとに独立した量子系となり、全体としては独立した量子系の集合体とみなせる。孤立原子、分子の光イオン化の場合、放出する光電子とイオンコアの同時計測が実現可能であり、集合体の中の独立した量子系を分離し、その詳細について調べることができる。本研究では、光イオン化において放出される光電子と残されたイオンコアの間の相関について定式化し、Arのイオン化におけるスピン軌道分裂2準位への2チャンネルイオン化をモデルケースとして取り上げる。

【理論】中性原子・分子の単一状態を初期状態としても、光イオン化において生成したイオンは、光電子放出によって様々なエネルギーや位相を取ることになる。しかし、イオンと光電子の両方を洩れなく考慮すれば、イオン化が起きても、閉じた系として成り立つ。特定の波数ベクトル \mathbf{k} の光電子に関連した系の波動関数は a 番目の状態（エネルギー E_a ）のイオンコアの波動関数 $\theta_a(\mathbf{R})$ と光電子の波動関数 $\chi_a(\mathbf{k})$ の積によってあらわすことができる。異なる光電子状態について和を取ることで全系の時間 t に依存した波動関数は原子単位系を用いて、以下のように表される。

$$\Psi(\mathbf{k}, \mathbf{R}, t) = \int d\mathbf{k} \sum_a C_a(\mathbf{k}) \{ \chi_a(\mathbf{k}) \exp[i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\frac{k^2}{2}t] \theta_a(\mathbf{R}) \exp[-iE_a t] \}$$

ここで \mathbf{R} はイオン内部空間座標を示す。係数 $C_a(\mathbf{k})$ は波数ベクトル \mathbf{k} を持つ光電子と a 番目のイオンコア状態との相関を示す。光電子スペクトルのピーク線幅が十分に細ければ、特定のエネルギーをもつ光電子は単一イオンコア状態とのみ相関し、定常状態となるが、イオン化過程が十分に早く、ピーク線幅が広がり、隣のピーク同士が重なる場合（図1）は、光電子状態を指定しても、イオンコアは複数の状態を取り得ることとなり、重

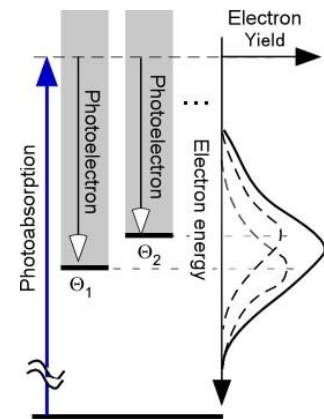


図1. 広帯域多チャンネルイオン化概念図

ね合わせ状態、すなわち、波束となる。

【計算結果】本研究では、極端紫外 (EUV) パルス(光子エネルギー 17 eV, スペクトル幅 0.2 eV, FT 限界 6 fs FWHM、直線偏光)による Ar 原子の 1 光子イオン化について数値計算を行った。イオン化によって中性 Ar の基底状態 $1S$ からイオンのスピン軌道分裂 2 準位 $2P_{3/2}$ と $2P_{1/2}$ へ遷移が起こる。本研究では、光イオン化自体ではなく、イオン化した後の光電子とイオンコアの状態に着目する。光電子が放出され、十分にイオンコアから遠方に離れた時、光電子波束の波動関数は位置座標空間で表記するとエネルギー分散により時間に比例して広がり無限遠へと進行するが、運動量座標空間で表示すれば、光電子スペクトルに相当する有限範囲の分布に収束する。 $m_l = 0, \pm 1$ からのすべての遷移について考慮し、初期状態である HOMO (3p) 電子の異なる(m_l, m_s) の組み合わせ、およびイオンコア終状態の異なる (J, M_J) の組み合わせに関しては、インコヒーレントな足し合わせとなる。今回は、光電子の運動エネルギーとイオンコアの軌道角運動量の極角度の関数として 2 次元分布を求めた。他の座標については積分した。

まず、EUV パルスが FT 限界の 6 fs のパルスの時の 2 次元波束(図 2)の時間発展をみると、軌道角運動量分布は、相関した光電子のエネルギーによらず、スピン軌道の振動周期 $T_{SO} = 23$ fs で、位相を揃えて動くことが示された。光電子エネルギーについて積分して、イオンコアの軌道角運動量を見ても、角運動量分布の振動が明確にわかる。次に、EUV パルスを同じスペクトルのままチャープさせ、60 fs にまで伸ばすと図 3 に示すような 2 次元分布の時間発展となる。一見、何が起きているかわかりにくく、光電子エネルギーについて積分すると軌道角運動量分布の変化はほとんど見られなくなる。しかし、特定の光電子エネルギーに相関した角度分布の時間発展を切り出してみると、6 fs パルスの時と同様に T_{SO} の周期で振動している。つまり、 T_{SO} よりも長いパルスで励起してもイオンコア波束は振動するが、相関する光電子エネルギーによって異なる位相となることが示された。これは、同じパルス幅でも定常状態を生成する狭帯域パルスによるイオン化とは本質的に異なるものである。

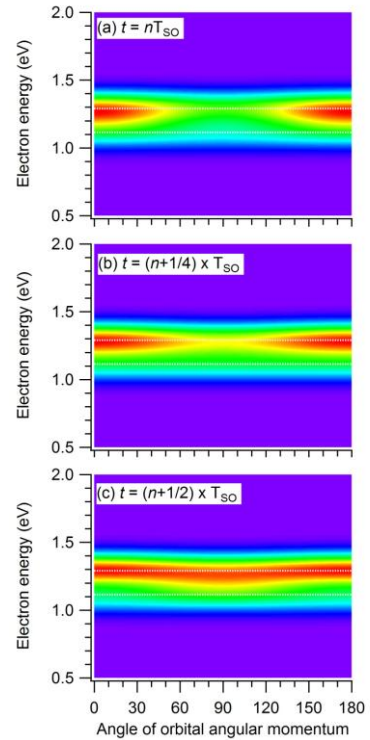


図 2. Ar の光電子-イオンコア相関波束の時間発展. イオン化パルスは 6 fs. 時刻: (a) nT_{SO} , (b) $(n+1/4)T_{SO}$, (c) $(n+1/2)T_{SO}$.

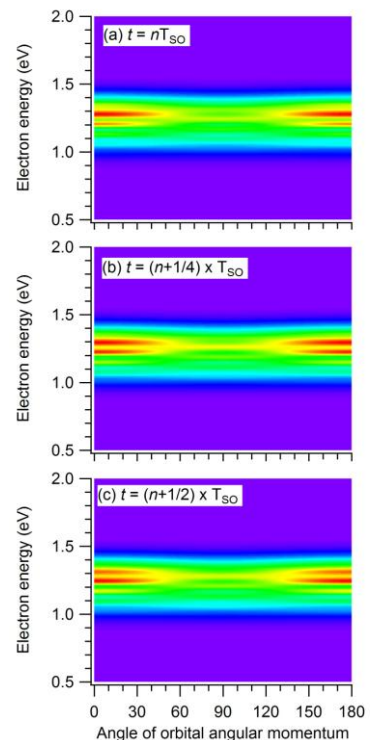


図 3. Ar の光電子-イオンコア相関波束の時間発展. イオン化パルスは 60 fs. 時刻: (a) nT_{SO} , (b) $(n+1/4)T_{SO}$, (c) $(n+1/2)T_{SO}$.