

高強度 UV レーザー場中 Kr および Xe の  
イオン化におけるスピン軌道 2 準位への分岐  
(原子力機構・関西研) ○中野 元善、乙部 智仁、板倉 隆二

Branching into two spin-orbit levels in ionization of Kr and Xe in intense UV laser fields

(JAEA) ○Motoyoshi Nakano, Tomohito Otohe, Ryuji Itakura

【序論】高強度レーザー場にさらされた原子や分子は、容易に光イオン化を起こす。多光子イオン化やトンネルイオン化により生成するイオンの状態は、一般に 1 つに限らない。レーザー強度が摂動的に取り扱える領域では、 $n$  光子イオン化の場合、イオン化確率は  $n$  次の遷移双極子モーメントとレーザー強度の  $n$  乗に比例する。したがって、同じ光子数のイオン化である限り、イオンの状態分布比は、レーザー強度に依存せず、遷移モーメントに比例した一定の比となる。一方、高強度極限にあるトンネルイオン化は、半古典的なトンネル確率に指数関数因子  $\exp\{-2(2Ip)^{3/2}/3F\}$  ( $Ip$ : イオン化ポテンシャル、 $F$ : 電場強度) が含まれるため、エネルギー的に下の準位、つまり基底状態のイオン生成が優勢となる。しかし、これら 2 つの極限の中間領域におけるイオン化機構は、まだよくわかっていない。特に、強レーザー場中の多電子ダイナミクスの解明において、多チャンネルイオン化過程の分岐を決める要因を明らかにすることは、極めて重要である。

本研究では、電子の自由度に限定するため、希ガス原子 (Kr 及び Xe) を対象とした。1 価イオン電子基底状態のスピン軌道 2 準位である  $^2P_{3/2}$  と  $^2P_{1/2}$  の 2 つの状態の生成比及び光電子角度分布に着目し、それらのレーザー強度依存性を明らかにした。本研究では、中間共鳴状態の寄与を少なくするため、また、光電子スペクトルにおいて状態選別を容易にするために、1 光子エネルギーの大きい紫外レーザーパルスを用いた。

【実験】チタン・サファイア再生増幅器からの出力パルスを、BBO 結晶に入射し、第 2 高調波 (398 nm、80 fs (FWHM)、直線偏光) を発生させ、超高真空チャンバー中の Xe 及び Kr ビームに集光し、光電子運動量イメージング測定を行った。Xe については、レーザー強度 8 – 24 TW/cm<sup>2</sup>、Kr については、11 – 21 TW/cm<sup>2</sup> の範囲の複数のレーザー強度にて測定を行った。レーザー強度  $I$  は光電子エネルギーのポンデラモーティブシフトから見積もった。光電子はイメージング分光法 [1] により 3 次元運動量を測定した。

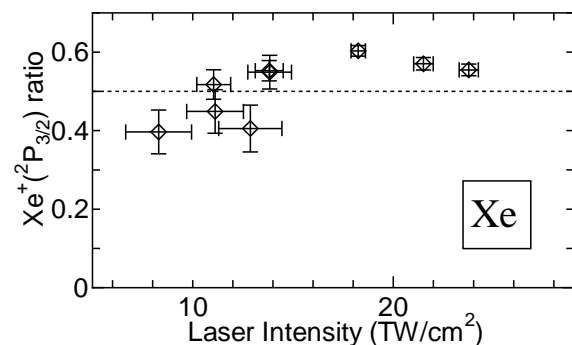


図 1: Xe の 5 光子吸収 ( $\lambda = 398\text{nm}$ ) により生じた  $\text{Xe}^+(\text{}^2\text{P}_{3/2})$  の分岐比  $R_{3/2}/(R_{3/2} + R_{1/2})$ 。

【結果・考察】 j) Xe の 5 光子イオン化

レーザー電場のない条件下における  $\text{Xe}^+$  スピン軌道 2 準位へのイオン化ポテンシャル ( $^2\text{P}_{3/2}$ : 12.13eV、 $^2\text{P}_{1/2}$ : 13.44eV) は、紫外パルス 4 光子エネルギー 12.46eV の上下にあり、4 光子では

$\text{Xe}^+ 2P_{3/2}$  状態へのみイオン化される。本研究では、スピン軌道 2 準位の両方が、イオン化可能な最低光子数である 5 光子過程に着目した。 $2P_{3/2}$  状態と  $2P_{1/2}$  状態の分岐比を  $R_{3/2}$ 、 $R_{1/2}$  とし、そのレーザー強度依存性が図 1 に示すように観測された。ここでは、 $R_{3/2} + R_{1/2} = 1$  とした。レーザー強度  $I < 11 \text{ TW/cm}^2$  の領域では、 $2P_{1/2}$  状態の生成比の方が大きいのにに対し、 $I > 11 \text{ TW/cm}^2$  の領域では、逆に  $2P_{3/2}$  状態の分岐比の方が大きく、生成比の逆転を観測した。

レーザー強度の増加に伴う  $\text{Xe}^+(2P_{3/2})$  状態の分岐比の増加は、i) 多光子イオン化からトンネルイオン化への変遷過程と考えられるが、そのほかにも、レーザー強度  $I$  の増加に伴い、イオン化閾エネルギーと Rydberg エネルギー準位がポンドラモーティブシフトするため、ii) 終状態である光電子散乱状態のエネルギー準位が変わることの影響、iii)  $2P_{3/2}$  状態をイオンコアとしたイオン化閾エネルギー近傍に密集する高 Rydberg 準位を経由した 4 光子近共鳴の影響なども考慮する必要がある。

レーザー強度  $I \sim 12 \text{ TW/cm}^2$  にて、 $\text{Xe}^+(2P_{1/2})$  状態の生成強度が特異的に増加するのは、その状態をイオンコアとした  $\text{Xe}(5p^5(2P_{1/2})7p)$  準位がポンドラモーティブシフトによって 4 光子で共鳴することが原因と考えられる。

今回のレーザー強度測定範囲において、 $\text{Xe}^+$  の分岐比の変化が観測された一方で、光電子角度分布の変化は観測されなかった。

## ii) Kr の 5 光子イオン化

イオン化に必要な最低光子数は、Kr の場合 ( $2P_{3/2}$ : 14.00eV、 $2P_{1/2}$ : 14.67eV)、 $2P_{3/2}$ 、 $2P_{1/2}$  両状態ともに 5 光子 (15.58 eV) であり、ここでは、5 光子イオン化に着目する。Kr の 5 光子吸収により生じる  $\text{Kr}^+$  の  $2P_{3/2}$ 、 $2P_{1/2}$  2 準位の分岐比は、レーザー強度 11 – 21  $\text{TW/cm}^2$  の範囲において ( $R_{3/2} : R_{1/2}$ )  $\sim 1 : 4$  とほぼ一定であった。一方、光電子角度分布については、図 2 に示すように、レーザー強度の変化に応じて、大きく変化することが明らかとなった。終状態 ( $2P_{3/2}$ 、 $2P_{1/2}$ ) による違いも明瞭であり、特に  $2P_{3/2}$  状態への光電子角度分布の強度依存性が顕著に変化する。レーザー偏光に対して直交方向に放出される光電子収量の変化が、 $2P_{3/2}$  と  $2P_{1/2}$  状態で逆の振舞をしている。すなわち、 $2P_{3/2}$  の場合、直交方向の光電子収量はレーザー強度の増加とともに減少していくのに対し、 $2P_{1/2}$  は増加していくことがわかる。このように角度分布が大きく変化するにも関わらず、分岐比に変化が見えないことは、共鳴状態の有無等で、単純に説明することができない。現在、イオンコアのスピン軌道相互作用を考慮した時間依存密度汎関数法を用いて、励起電子の実時間実空間分布を計算しており、スピン軌道 2 準位へのイオン化分岐に伴う電子励起過程の違いを明らかにすることを目指している。

### 【文献】

[1] K. Hosaka, A. Yokoyama, K. Yamanouchi, and R. Itakura, *J. Chem. Phys.*, **138** (2013) 204301

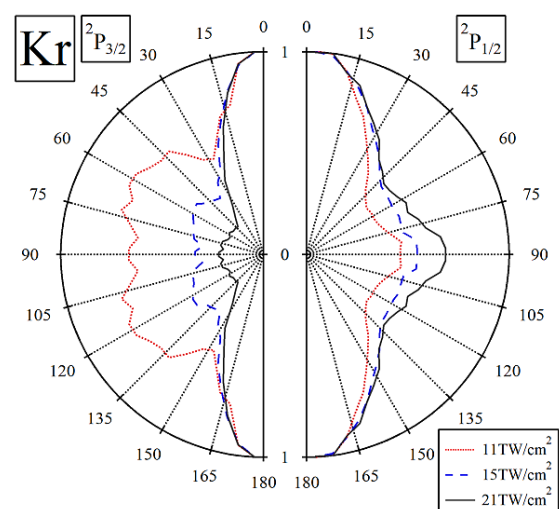


図 2: Kr の 5 光子イオン化により生じた光電子角度分布。終状態は、 $\text{Kr}^+$  (左)  $2P_{3/2}$  状態、(右)  $2P_{1/2}$  状態。