

非連続二価イオン化による Ar^{2+} の状態選択的生成

(東大院・理*, 理化学研究所**) ○山田佳奈*, 岩崎純史*, 佐藤堯洋*, 緑川克美**, 山内薫*

State selective preparation of Ar^{2+} by non-sequential double ionization(Univ. of Tokyo*, RIKEN**) ○Kana Yamada*, Atsushi Iwasaki*, Takahiro Sato*,
Katsumi Midorikawa**, Kaoru Yamanouchi*

【序】 最外殻電子配置 ns^2np^6 を持つ希ガス原子を真空紫外光の照射により二重イオン化すると、電子配置 ns^2np^4 を持つ $^3P_{0,1,2}$, 1D_2 , 1S_0 状態が主生成物として得られる[1]。統計的重率に従えば、これらの状態の生成比は $^3P : ^1D : ^1S = 9 : 5 : 1$ となるが、二重イオン化過程に依存して、これらの生成比は様々に変化することが報告されている。一光子二重イオン化過程においては、光子のエネルギーが二重イオン化閾値に近い場合、放出される二つの電子の全軌道角運動量、全スピン角運動量およびパリティの偶奇が全て一致する過程が優先される傾向があることが知られている(Wannier の法則)。例えば Ar の場合、 3P 状態が統計的比率よりも多く生成する[1]。また、一価イオンの励起状態を経由する、Ar の三光子二重イオン化過程においては、経路する一価イオンの励起状態を変えると、得られる二価イオン状態の生成比が変化することが報告されている[2]。

本研究では、高強度 Ti:サファイアレーザー光を用いて発生させた高次高調波を Ar 原子に照射し、放出される電子のコインシデンス測定を行った。その結果、最外殻電子配置 $3s3p^5$ を持つ 1P 状態の二価イオンのみを生成する一光子共鳴二光子二重イオン化過程の存在が示唆された。

【実験】 実験装置は、高次高調波発生部分、平面結像型 EUV 分光器、高調波の次数選択のための光学系、磁気ボトル型光電子分光装置から成る(図 1)。高次高調波は、Ti:サファイアレーザーパルス(~9 mJ, ~40 fs, 1kHz, 802 nm)を、長さ 15 mm のセル中の Ar ガス媒質へ、焦点距離 2 m のレンズを用いて集光させることによって発生させた。EUV 分光器を用いて高調波スペクトルを観測することによって、第 29 次までの高調波が発生されていることを確認した。得られた高調波は、Si ミラーと SiC/Mg 多層膜ミラーにより反射させ、さらに Al フィルターを透過させることによって、第 25 次高調波付近の高調波を選択した。この高調波を SiC/Mg 多層膜平面凹ミラーを用いて磁気ボトル型光電子分光装置内に後方集光し、シリンジノズル針より導入した Ar ガス試料に照射し、光電子分光測定を行った。

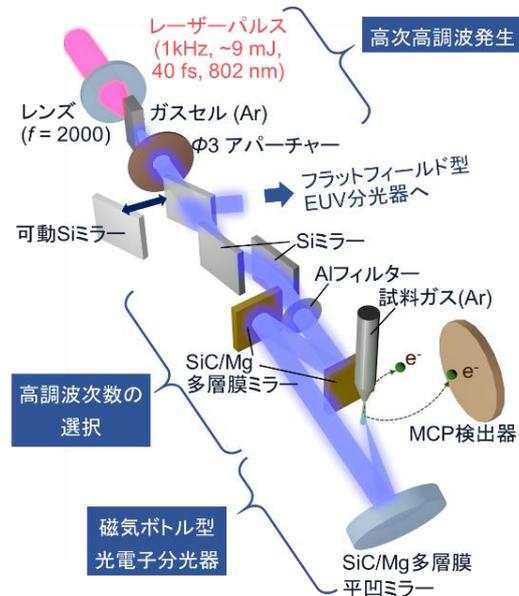


図 1: 高次高調波光源による光電子分光計測。

【結果と考察】 第 25 次高調波が他の次数より高い強度を持つ条件で高調波を発生させ、これを Ar 原子に照射した際に放出される電子の相関スペクトルを測定したところ、一定のエネルギーが様々な比率で二つの電子に分配されたことを示す構造が観測されたことから、この過程は二光子

が同時に放出される非連続 (non-sequential) 二重イオン化過程であることが示された。観測された過程には、第 25 次高調波が関わっていると考えられるが、第 25 次高調波は Ar を二重イオン化するために必要な光子エネルギーを持たないため、観測された二重イオン化過程はさらに他の光子が関わった多光子過程であると考えられる。また、第 25 次高次高調波は弱く、それだけでは多光子吸収を起こすとは考えられないため、中性 Ar の励起状態(Ar*)を共鳴的に経由した一光子共鳴二光子二重イオン化が起きたと考えられる。以上のことから、観測された過程は図 2 に示すように、Ar が第 19 次高調波の一光子吸収によって Ar* ($3s3p^6$)をイオンコアとして持つ Rydberg 状態 Ar* ($3s3p^6np$)の 1P_0 状態へと共鳴的に励起され、さらに第 25 次高調波を吸収することによって Ar²⁺ ($3s3p^5$)の 1P_0 状態となるという一光子共鳴二光子二重イオン化過程であると考えられる。これまでに報告されてきた一光子または三光子二重イオン化過程においては、主に $3s^23p^4$ の電子配置を持つ Ar²⁺の生成が報告されているが、本過程において生成した Ar²⁺は $3s3p^5$ の電子配置を持つことが示された。また、電子配置 $3s3p^5$ を持つ状態としては $^3P_{0,1,2}$ 状態および 1P_0 状態があるが、これらの内、 1P_0 状態のみの生成が観測された。

Ar* ($3s3p^6np$)を経由して Ar²⁺ ($3s3p^5$)を生成する場合には、最外殻の np と $3p$ 電子が各一つ放出されることが考えられるが、Ar²⁺ ($3s^23p^4$)を生成するためには、これらの電子の放出に加え、 $3p$ 電子が $3s$ 軌道に脱励起される必要がある。しかしながら、Ar* ($3s3p^6np$)においてこの脱励起過程が起こるためには数 ns の時間を要することが知られており[3]、100 fs 以下のパルス幅を持つ高調波の照射時間内には脱励起過程はほぼ起こらず、 $3s3p^5$ の電子配置を持つ状態のみが生成していると考えられる。このように、これまで報告された過程と異なり、Ar* ($3s3p^6np$)を経由するため、よりエネルギーの高い Ar²⁺($3s3p^5$)が主に生成されたと考えられる。

また、He 励起状態($1s2s$)を経由した非連続二重イオン化においては、一重項の He 励起状態の方が、二電子同時放出による二重イオン化が起こりやすいことが、理論計算によって示されている[4]。もし、このように逆方向のスピンの持った二電子が放出されやすいという傾向が、本研究における Ar の一光子共鳴二光子二重イオン化過程においても成り立つならば、励起状態 Ar* ($3s3p^6np$)と放出される二電子の全スピン角運動量がどちらもゼロであることから、全スピン角運動量の保存により、生成する Ar²⁺の全スピン角運動量もゼロになり、一重項状態が主に生成されることになる。このことは、一重項 1P_0 状態が選択的に生成することを示しており、実験結果と一致している。したがって、Ar の場合においても、非連続二光子二重イオン化では、放出する二つの電子のスピンは互いに逆向きとなる傾向にあると考えられる。

【引用文献】

- [1] R. I. Hall, *et al.* *Z. Phys. D* **23**, 377 (1992).
- [2] N. Miyauchi, *et al.* *J. Phys. B* **44**, 071001 (2011).
- [3] G. B. Armen and F. P. Larkins, *J. Phys. B* **24**, 741 (1991).
- [4] H. W. van der Hart, K. W. Meyer, and C. H. Greene, *Phys. Rev. A* **57**, 3641 (1998).

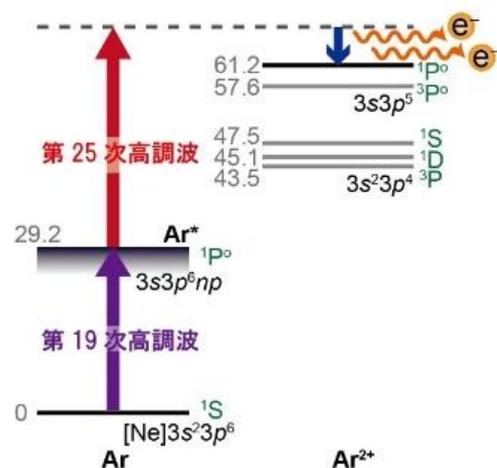


図 2: 高次高調波による Ar の一光子共鳴二光子二重イオン化過程。