

自由電子レーザー・フェルミを用いた

1光子レーザー場誘起オージェ崩壊の観測とコヒーレント制御

¹東大院工, ²東北大多元研, ³オーストラリア国立大, ⁴ミラノ工科大, ⁵ELI-ALPS, ⁶フライブルク大学, ⁷European XFEL, ⁸マックス・プランク核物理, ⁹シンクロトロン・エレットラ, ¹⁰ENEA C.R. Frascati, ¹¹スウィンバーン工科大

○石川顕一¹, D. Iablonskyi², 上田潔², A. Kheifets³, G. Sansone^{4,5,6}, P. Carpeggiani⁴, M. Reduzzi⁴, A. Comby⁴, T. Csizmadia⁵, S. Kühn⁵, E. Ovcharenko⁷, T. Mazza⁷, M. Meyer⁷, A. Fischer⁸, C. Callegari⁹, O. Plekan⁹, P. Finetti⁹, E. Allaria⁹, L. Giannessi^{9,10}, B. Diviacco⁹, D. Gauthier⁹, E. Roussel⁹, E. Ferrari⁹, K. C. Prince^{9,11}

Observation and Coherent Control of Single-Photon Laser-Enabled Auger Decay Using the Free-Electron Laser FERMI

○Kenichi L. Ishikawa¹, D. Iablonskyi², Kiyoshi Ueda², A. Kheifets³, G. Sansone^{4,5,6}, P. Carpeggiani⁴, M. Reduzzi⁴, A. Comby⁴, T. Csizmadia⁵, S. Kühn⁵, E. Ovcharenko⁷, T. Mazza⁷, M. Meyer⁷, A. Fischer⁸, C. Callegari⁹, O. Plekan⁹, P. Finetti⁹, E. Allaria⁹, L. Giannessi^{9,10}, B. Diviacco⁹, D. Gauthier⁹, E. Roussel⁹, E. Ferrari⁹, K. C. Prince^{9,11}

¹The University of Tokyo, Japan ²Tohoku University, Japan

³Australian National University, Australia ⁴Politecnico di Milano, Italy

⁵ELI-ALPS, Hungary ⁶Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Germany

⁷European XFEL, Germany ⁸Max Planck Institute for Nuclear Physics, Germany

⁹Elettra-Sincrotrone Trieste, Italy ¹⁰ENEA C.R. Frascati, Italy

¹¹Swinburne University of Technology, Australia

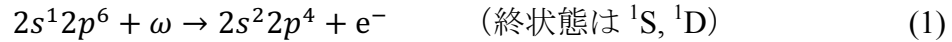
【Abstract】 The correlation-driven ultrafast dynamics of holes created through light-matter interaction is central to a variety of physical, chemical, and biological processes. The theoretically predicted process of single-photon laser enabled Auger decay (spLEAD) is one whose magnitude depends on the extent of electron correlation. Here, we report the first observation of spLEAD in Neon by highly sensitive homodyne spectroscopy with coherent, bichromatic free-electron laser pulses. At the same time, we demonstrate coherent control over the angular distribution of the emitted electrons. The experimental results are well supported by the theoretical modeling.

【序】 オージェ過程は、軽元素の内殻正孔が崩壊するチャンネルの中で断然速いものであるため、表面科学をはじめとして現代物理学において重要な役割を果たしている。しかし、最終2価カチオン状態のエネルギーが最初のカチオンより低い場合には、オージェ過程は禁制となる。

そのようなカチオンが高強度赤外レーザー光を多光子吸収することで崩壊する新しい過程が最近発見され、レーザー場誘起オージェ崩壊(laser-enabled Auger decay, LEAD)と呼ばれている[1]。短波長光の1光子吸収でもLEADが起こりうることが理論的に予言されていたが[2]、これまでのところ観測されていなかった。この1光子レーザー場誘起オージェ崩壊(single-photon LEAD, spLEAD)は、電子相関のある系でのみ起こりうることから、分子中における相関誘起の超高速電荷マイグレーションに関する新しい情報を得ることができると期待される。

本講演では、spLEAD の初観測について報告することに加え、spLEAD による電子放出のコヒーレント制御にも成功したので発表する[4]。

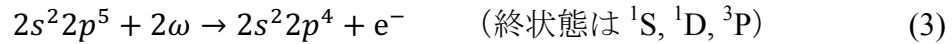
【方法】 spLEAD は、 Ne^+ の $2s$ 正孔状態について、以下のように起こる。



この $2s$ 正孔状態は、基底状態のカチオンを 1 光子共鳴励起することで準備する。



このために、 ω は $2s$ - $2p$ 遷移エネルギーである 26.9 eV に合わせる。同時に、2 倍波(2ω) で基底状態のカチオンを直接 1 光子イオン化する。



実験はイタリア・トリエステにある自由電子レーザー・フェルミを用いて行った。フェルミは、高強度かつ位相制御可能な 2 波長極端紫外パルスを発生できることが特長である[3]。これを生かして、 ω - 2ω 相対位相を変えながら光電子角度分布を測定し、その非対称性の振動を通して、(2)+(1) パスと(3)パスの干渉を検出した。

【結果・考察】 Fig. 1 から明確に分かるように、終状態が ^1S および ^1D の場合については、光電子角度分布の非対称性は、相対位相に依存して振動することを見出した。 ^3P 状態に対応する信号の振動は小さくエラーバーの範囲内では相対位相に依存せず一定であった。spLEAD[式(1)]の終状態は ^3P にはならないため、 $^1\text{S}, ^1\text{D}$ 終状態には干渉が見られ ^3P 終状態には見られないことが予想されるが、まさにその通りに結果になっている。このことは、spLEAD を検出したことが事実であることを物語る通り、さらに、我々は (広い意味で) オージェ崩壊をコヒーレント制御することに成功したといえる[4]。非対称性の振動の振幅は、 ^1S 終状態の場合で 2.4% 、 ^1D 終状態の場合で 2.3% であった。理論モデルによって評価した値はそれぞれ 0.82% 、 1.4% であり、整合性がとれているといえる[4]。

【謝辞】 This work was supported by MEXT, IMRAM, JSPS, JST (Japan), Alexander von Humboldt Foundation (Germany), MIUR, CNR (Italy), and Horizon 2020 (EU). We thank the machine physicists of FERMI and Vitali Averbukh.

【参考文献】

- [1] P. Ranitovic *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **106**, 053002 (2011).
- [2] B. Cooper and V. Averbukh *Phys. Rev. Lett.* **111**, 083004 (2013).
- [3] K. C. Prince *et al.* *Nature Photon.* **10**, 176 (2016).
- [4] D. Iablonskyi *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, in press; arXiv:1705.01812 (2017).

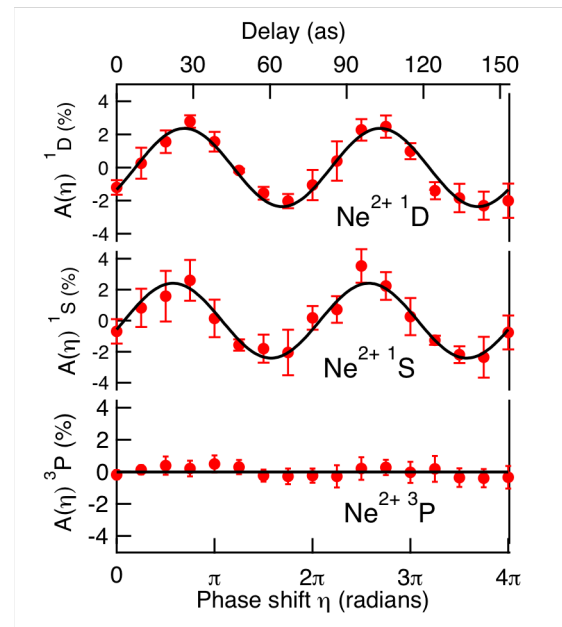


Fig. 1 Left-right asymmetry of photoelectron angular distributions corresponding to final Ne^{2+} states ^1S , ^1D , and ^3P , as a function of ω - 2ω relative phase (taken from [4]).