

極紫外自由電子レーザー照射によるネオン二量体及びクラスターの 多重励起に誘起された原子間クーロン緩和過程

¹東北大多元研, ²ハイデルベルク大, ³Elettra-Sincrotrone Trieste, ⁴京大院理, ⁵ルンド大,
⁶ミラノ大, ⁷CNR-IFN, ⁸フライブルク大物理, ⁹CFEL, ¹⁰ベルリン工科大,
¹¹フライブルク大, ¹²CNR-ISM, ¹³CNR-IOM, ¹⁴Max-Born-Institut, ¹⁵コネチカット大,
¹⁶ノヴァ・ゴリツァ大, ¹⁷カッセル大

○高梨司¹, Iablonskyi Denys¹, Golubev Nikolay², Callegari Carlo³, 永谷清信⁴,
福澤宏宣¹, 本村幸治¹, 熊谷嘉晃¹, Mondal Subhendu¹, 立花徹也¹, 西山俊幸⁴,
松波健司⁴, Johnsson Per⁵, Piseri Paolo⁶, Sansone Giuseppe^{7,8}, Dubrouil Antoine⁷,
Reduzzi Maurizio⁷, Carpeggiani Paolo⁷, Vozzi Caterina⁷, Devetta Michele⁷, Negro Matteo⁷,
Faccialà Davide⁷, Calegari Francesca^{9,7}, Trabattoni Andrea^{9,7}, Castrovilli Mattea⁷,
Ovcharenko Yevheniy¹⁰, Möller Thomas¹⁰, Mudrich Marcel¹¹, Stienkemeier Frank¹¹,
Coreno Marcello¹², Alagia Michele¹³, Schütte Bernd¹⁴, Berrah Nora¹⁵, Kuleff Alexander²,
Jabbari Ghazal², Plekan Oksana³, Finetti Paola³, Spezzani Carlo³, Ferrari Eugenio³,
Allaria Enrico³, Penco Giuseppe³, Serpico Claudio³, De Ninno Giovanni^{3,16}, Nikolov Ivaylo³,
Diviacco Bruno³, Di Mitri Simone³, Giannessi Luca³, Prince Kevin^{13,3}, Cederbaum Lorenz²,
Demekhin Philipp¹⁷, 上田潔¹

Interatomic Coulombic decay processes induced by multiple excitation in neon dimers and clusters by XUV free-electron laser irradiation

○Tsukasa Takanashi¹, Denys Iablonskyi¹, Nikolay Golubev², Carlo Callegari³,
Kiyonobu Nagaya⁴, Hironobu Fukuzawa¹, Koji Motomura¹, Yoshiaki Kumagai¹,
Subhendu Mondal¹, Tetsuya Tachibana¹, Toshiyuki Nishiyama⁴, Kenji Matsunami⁴,
Per Johnsson⁵, Paolo Piseri⁶, Giuseppe Sansone^{7,8}, Antoine Dubrouil⁷, Maurizio Reduzzi⁷,
Paolo Carpeggiani⁷, Caterina Vozzi⁷, Michele Devetta⁷, Matteo Negro⁷, Davide Faccialà⁷,
Francesca Calegari^{9,7}, Andrea Trabattoni^{9,7}, Mattea Castrovilli⁷, Yevheniy Ovcharenko¹⁰,
Thomas Möller¹⁰, Marcel Mudrich¹¹, Frank Stienkemeier¹¹, Marcello Coreno¹²,
Michele Alagia¹³, Bernd Schütte¹⁴, Nora Berrah¹⁵, Alexander Kuleff², Ghazal Jabbari²,
Oksana Plekan³, Paola Finetti³, Carlo Spezzani³, Eugenio Ferrari³, Enrico Allaria³,
Giuseppe Penco³, Claudio Serpico³, Giovanni De Ninno^{3,16}, Ivaylo Nikolov³, Bruno Diviacco³,
Simone Di Mitri³, Luca Giannessi³, Kevin Prince^{13,3}, Lorenz Cederbaum²,
Philipp Demekhin¹⁷, Kiyoshi Ueda¹

¹ IMRAM, Tohoku University, Japan,

² Theoretische Chemie, Universität Heidelberg, Germany, ³ Elettra-Sincrotrone Trieste, Italy,

⁴ Department of Physics, Kyoto University, Japan,

⁵ Department of Physics, Lund University, Sweden,

⁶ CIMAINA and Dipartimento di Fisica, Università degli Studi di Milano, Italy,

⁷ CNR-IFN, Italy, ⁸ Physikalisches Institut Albert-Ludwigs-Universität, Germany,

⁹ Center for Free-Electron Laser Science, DESY, Germany,

¹⁰ Institut für Optik und Atomare Physik, Technische Universität Berlin, Germany,

¹¹ Physikalisches Institut, Universität Freiburg, Germany, ¹² CNR-ISM, Italy,

¹³ CNR-IOM, Italy, ¹⁴ Max-Born-Institut, Germany,

¹⁵ Department of Physics, University of Connecticut, USA,

¹⁶ Laboratory of Quantum Optics, University of Nova Gorica, Slovenia,

¹⁷ Institut für Physik und CINSA, Universität Kassel, Germany

【Abstract】 The interatomic Coulombic decay (ICD) processes in multiply excited neon (Ne) dimers and clusters were investigated by using seeded intense extreme ultraviolet free-electron laser (XUV FEL) FERMI. Doubly excited neon dimers $[\text{Ne}^*(2p^{-1}3s)]_2$ undergo ICD and produce Ne_2^+ as a dominant product. According to the theoretical prediction, we succeeded seeking the resonant energy for $[\text{Ne}^*(2p^{-1}3s)]_2$ by measuring the yield of Ne_2^+ with scanning photon energy of XUV FEL. Moreover, measuring the yield of Ne_2^+ as a function of delay between the XUV and UV pulses, we extracted the lifetime of $[\text{Ne}^*(2p^{-1}3s)]_2$ as ~ 390 fs. In clusters, we found that the relaxation of cluster surface atoms proceeds via sequence of ICD processes while ICD of bulk atoms is additionally affected by the surrounding excited medium via inelastic electron scattering.

【序】 極紫外自由電子レーザー (XUV FEL) 施設 FERMI は世界唯一のシード XUV FEL であり、時空間コヒーレンスを持つ大強度の XUV パルスが高い波長安定性で供給している。本研究では、XUV FEL を用いてネオン (Ne) 二量体及びクラスターの多重励起状態を始状態とする原子間クーロン緩和 (ICD) 過程の観測を行った[1,2]。

ICD 過程は電子励起された化学種がクーロン相互作用によって励起エネルギーを隣接した化学種に移行し、イオン化することで脱励起する効率的な緩和過程である[3]。

近年、Ne 二量体 (Ne_2) において XUV 二光子吸収によって生成する二電子励起状態を始状態とする新しい ICD 過程が理論的に提案された[4]。この過程では、 Ne_2 中の各 Ne 原子サイトの $2p$ 電子が XUV 二光子吸収により同時に $3s$ 軌道へと励起される。生成した二電子励起状態 $[\text{Ne}^*(2p^{-1}3s)]_2$ は ICD 過程により、一方の $3s$ 電子を ICD 電子として放出することでもう一方の $3s$ 電子は脱励起し、 Ne_2^+ イオンを生成する。我々は、XUV FEL パルス照射により Ne_2 の二電子励起状態を生成し、さらに UV レーザーをプローブ光に用いて二電子励起状態を始状態とする ICD 過程の時間分解測定を試みた。

【方法】 測定はイタリアの FEL 施設 FERMI の Low Density Matter (LDM) エンドステーションで行った。 Ne_2 及びクラスターはバルブを用いてパルス導入した。FEL パルスは標的の共鳴エネルギーに合わせた 17 eV 程度の複数の光子エネルギーを用い、 30 μm (FWHM) に集光して試料に照射した。ポンプ - プローブ測定には、パルス幅 ~ 200 fs、光子エネルギー 4.75 eV の UV レーザーをプローブ光に用いた。生成したイオンと電子はそれぞれ飛行時間型質量分析計と Velocity Map Image (VMI) 分光計で検出した。

【結果・考察】 始めに XUV FEL の光子エネルギーを変化させながら ICD 過程の生成物である Ne_2^+ イオン収量を測定した。イオン収量曲線は光子エネルギー 16.39 eV に極大を持つ共鳴構造を示し、得られた共鳴エネルギーは理論計算値と極めて良い一致を示した[4]。次に、二電子励起状態への共鳴エネルギーである光子エネルギー 16.39 eV の FEL パルスを用いて ICD 過程の時間分解測定を行った。XUV FEL パルスに対する UV レーザーパルスの遅延時間の関数として Ne_2^+ イオン収量を測定すると、時間原点で収量は減少を示し、UV レーザーの遅延時間が正の方向に大きくなるにつれ収量は再び増加した。この時間構造から ICD 過程の緩和時間を得るため、測定点に対して量子力学的動力学計算によるフィッティングを行った。その結果、本 ICD 過程の緩和時間として 390 ($-130/+450$) fs が得られ、この値は精密な第一原理計算結果とよく一致した[4]。講演では、XUV FEL パルス照射で生成する Ne クラスターの $2p \rightarrow 3s$ 多重励起状態を始状態とする ICD 過程についても議論する。

【謝辞】 本研究は XFEL 重点戦略研究課題と JSPS 科研費の援助により行われました。

【参考文献】

- [1] T. Takanashi *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **118**, 033202 (2017).
- [2] D. Iablonskyi *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **117**, 276806 (2016).
- [3] L. S. Cederbaum *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **79**, 4778 (1997).
- [4] Ph. V. Demekhin *et al.* *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46**, 021001 (2013).