

が (6.4 eV) で励起すると、Franck-Condon 的には不利であるが、断熱イオン化点 (6.80 eV) にぎりぎりまで到達するからである。したがって基底電子状態のゼロ振動準位から 1 光子イオン化はない。図中で示したように、FEL に対して ArF レーザを先に照射した時は、偶然なんらかのリドベルグ状態に励起されることになるが、その場合でも速い失活のため FEL でイオン化するとは考えられず、イオン化信号は得られない。したがって、FEL と同時または FEL を先に照射した場合に、イオン信号が観測されることになる。また、ペリレンは硬い分子であり低振動数モードはなく、この励起準位の振動過剰エネルギーでも状態密度はそれほど大きくないと予想される。したがって、ローカルモードとしての弱冠の振動再分配はあっても、再分配先からのイオン化も起こると考えられる。

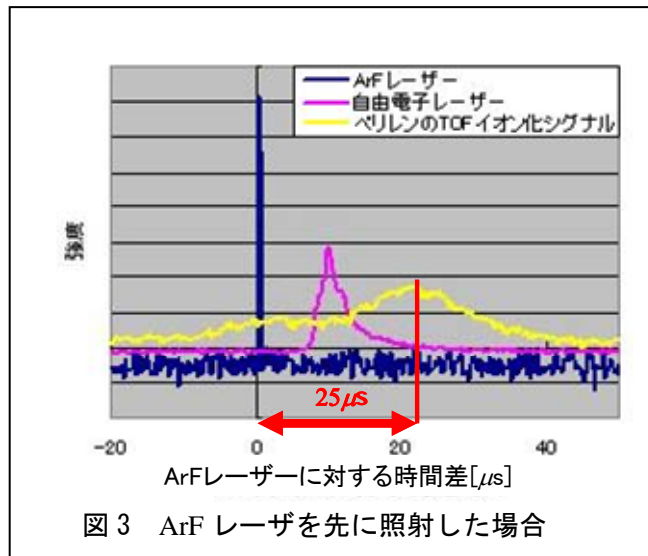


図3 ArF レーザを先に照射した場合

図3と図4が今回の結果である。図3で観測された黄色のイオン信号は、ArF レーザによる 2 光子イオン化信号である。光強度依存性から確認した。ArF レーザに対し TOF 時間 25 μs に出現している。ドリフト長から推定されるペリレンの質量数と一致している。幅が広く観測されているのは、微小な信号を観測するために、1 M Ω で終端された電流増幅器を用いているからである。

図4はふたつのレーザを同時照射した場合である。イオン信号は2倍になった。増加分はTwo-Color イオン化による信号である。最低励起一重項電子状態の振電準位を経由する通常のTwo-Color イオン化では、いわゆるエンハンスメントは20~100程度である。それと比べると今回の結果は極めて小さい。SN比で1ということになる。不可視の赤外光との共軸条件が困難であったことは否定できない。または、以下の理由も考えられる。図3、4で紫色のピークがFELの光で、5 μs (FWHM) ほどの時間幅をもっている。これはマクロパルスであり、その中に時間幅300

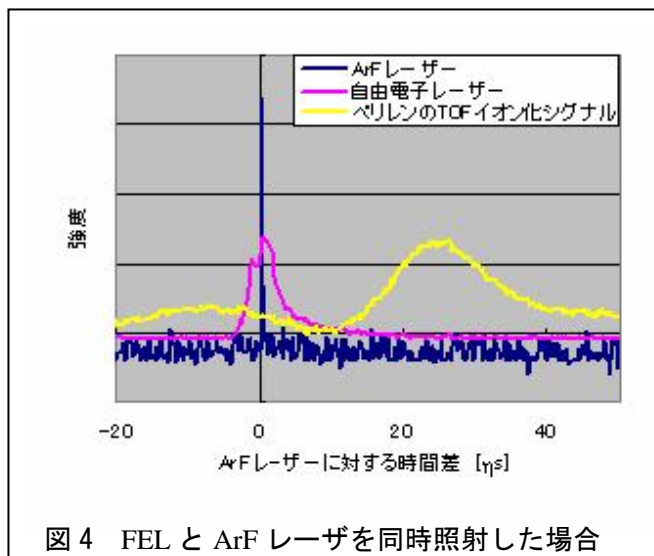


図4 FEL と ArF レーザを同時照射した場合

fs のマイクロパルスが 350 ps 間隔で 2 万本くらい並んでいる。したがって、励起振動準位の失活が速く緩和先からのイオン化が望めなかったならば、時間的に重なったときのみイオン信号が現れることになる。ArF レーザの照射時間 20 ns の中に、FEL のマイクロパルス幅を合算すると 17.1 ps になり、1/1200 の重なりしかないことになる。これがイオン信号の観測量が小さかった第二の理由とも考えられる。今後、この兆候を基に改良を重ね、良好な結果を得たいと考えている。また、Two-Color 分光の相手レーザとしてマクロパルス YAG レーザを計画している。稼動すれば、マイクロパルスレベルでの完全同期も可能と考えられる。