



## EUV SASE-FEL を用いた原子の多光子多重イオン化過程の研究

彦坂泰正<sup>1</sup>, 伏谷瑞穂<sup>2,3</sup>, 菱川明栄<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup>新潟大学理学部自然環境科学科

〒950-2181 新潟県新潟市西区五十嵐 2 の町8050番地

<sup>2</sup>分子科学研究所

〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38

<sup>3</sup>名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻 (化学系)

〒464-8602 愛知県名古屋市千種区不老町

**要旨** 短波長強レーザー場に対する原子の非線形光学応答として最も顕著な現象は、多光子吸収による多重イオン化である。磁気ボトル型電子分析技術を利用した光電子分光は、この多光子多重イオン化過程の詳細を解明するための有力な手法である。この手法により、SASE-FEL スペクトルのばらつきをモニターし、多光子多重イオン化過程の光子エネルギー依存の詳細を鮮明にできることを示す。

極端紫外 (EUV) 領域の SASE-FEL の登場により、短波長強レーザー場における非線形光学現象についての実験研究が活況を呈している。これは、1 光子のエネルギーがイオン化ポテンシャルを超えるような状況下での多光子吸収ダイナミクスというこれまで研究が困難であった非線形光学過程に対する基礎的な興味に加え、本特集号中でも紹介されているような低温高密度プラズマ生成や光スイッチング、生体分子イメージング等の将来的な FEL 応用への基礎的知見として、この非線形光学現象の理解が重要視されているためである。最もシンプルな物質系である孤立原子は、新たな非線形光学過程を明らかにするうえで、格好のベンチマークである。実際、先行してユーザー利用が始まったドイツの FLASH においても、その利用の当初から現在まで、原子あるいは簡単な分子を対象とした非線形光学現象の研究がユーザー利用の大きな割合を占めている。

短波長強レーザー場における原子の非線形光学応答として最も顕著な過程は、多光子吸収による多重イオン化である。この過程の認識自体は、生成したイオンを検出することにより比較的簡便に行うことができる。例えば、13.3 nm の FEL による  $7.8 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  のレーザー場において、Xe の多光子多重イオン化により  $\text{Xe}^{21+}$  が生成することが見いだされている<sup>1)</sup>。この  $\text{Xe}^{21+}$  の生成には 57 光子分のエネルギーの付与が必要であるが、これが常識的な多光子吸収で理解できるのかは理論研究も含めて大きな関心が寄せられている<sup>2)</sup>。また、幾つかの多光子多重イオン化のケースについて、イオン収量の FEL 強度依存から吸収される光子数が見積もられ、その多重イオン化のメカニズムが推定されている<sup>3)</sup>。さらに、多光子多重イオン化におけ

る光電子放出の反跳によって得るイオンの運動量の観測から、多重イオン化における光電子放出が逐次的か非逐次的かを識別することに成功している<sup>4)</sup>。

このようにイオン検出によって多光子多重イオン化過程の研究が進められてきたが、多価イオンの生成にいたる多光子吸収がどのように進行するかについての理解は未だ限定的である。一方、イオン化過程において生成する中間状態または終状態の電子状態は、その過程で放出される光電子の運動エネルギーに直接的に反映されることから、光電子分光により多光子多重イオン化過程についてより詳細な情報を導き出すことができる<sup>5)</sup>。これに加えて、SASE モードの FEL の宿命であるスペクトルのばらつきをショットごとにモニターすることができるため、光電子分光によって多光子多重イオン化の光子エネルギー依存性を精密に調べることが可能となる。

放射光を光源とした高分解能光電子分光実験では、静電半球型の光電子分析器の利用が現在の主流である。しかしながら、大尖頭出力の FEL を光源とする光電子分光実験では、検出効率の低い静電半球型のような光電子分析器の利用は適さない。これは、多数の荷電粒子が一度に生成することによる空間電荷効果を避けるために、極めて低い光電離イベントレートで測定することが要求されるためである。我々は、磁気ミラー効果を利用した超高効率の光電子分光手法、磁気ボトル型電子分析を FEL 実験に利用している。Fig. 1 に我々が用いている磁気ボトル型光電子分光器の概念図を示す。磁気ボトル型光電子分析器では、永久磁石とソレノイドコイルによって形成した磁場勾配によって、光電離で放出された全電子を全立体角にわたって捕集する。実際、数十 eV 以下の電子に対する検出効率は、検

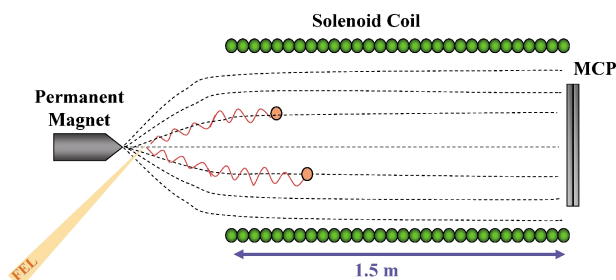


Fig. 1. Schematic view of the magnetic bottle electron energy analyzer which has been adapted for our photoelectron spectroscopic study with EUV SASE-FEL.

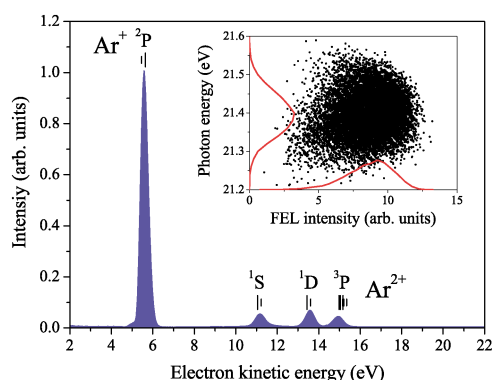


Fig. 2. Photoelectron spectrum of Ar obtained by 15000 FEL shots at a photon energy setting to 21.4 eV. The photoelectron kinetic energies expected in two-photon ionization of  $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$  into  $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$ , as well as those expected in one-photon ionization of Ar into  $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ , are indicated. In the inset, the mean photon energies determined from the  $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$  peak energies in the individual single-shot spectra are plotted against the intensities of the corresponding FEL shots which are monitored by a photoion yield detector.

出器マイクロチャンネルプレートの検出感度（50-60%程度）によって決定されており、磁場による捕集の取りこぼしは見られない。これは、現在の標準的な静電半球型電子エネルギー分析器が全立体角の0.1%程度しか捕集していないことを考えると、立体角で2桁以上も効率が良い。ただし、磁気ボトル型光電子分析では光電子の飛行時間により運動エネルギー分析を行うため、高い運動エネルギー分解能を得ることが難しい。我々の装置では1.5 mの長い飛行区間と阻止電場により分解能の向上を図っており、数十 eV 以下の電子に対し数%以下の分解能を達成している。

この磁気ボトル型光電子分析器を用いた光電子分光によって、現在までに幾つかの典型的な多光子多重イオン化過程を観測し、そのメカニズムの詳細を明らかにすることに成功している。ここでは、Arの3光子2重イオン化のケース<sup>6)</sup>について概説する。Fig. 2は、光エネルギー21.4 eV、レーザー電場約 5 TW/cm<sup>2</sup>によって得られたArの光電子スペクトルである。このスペクトルは、15000ショットのFELパルスについての積算である。1光子イオン

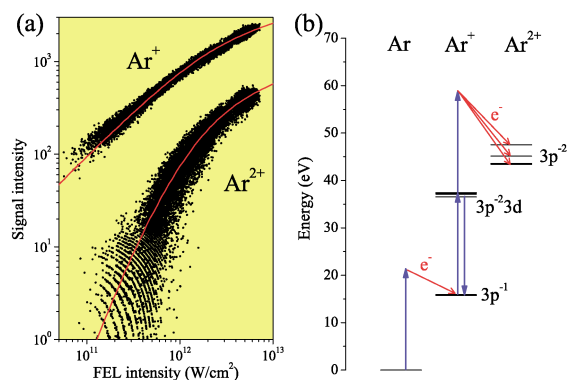
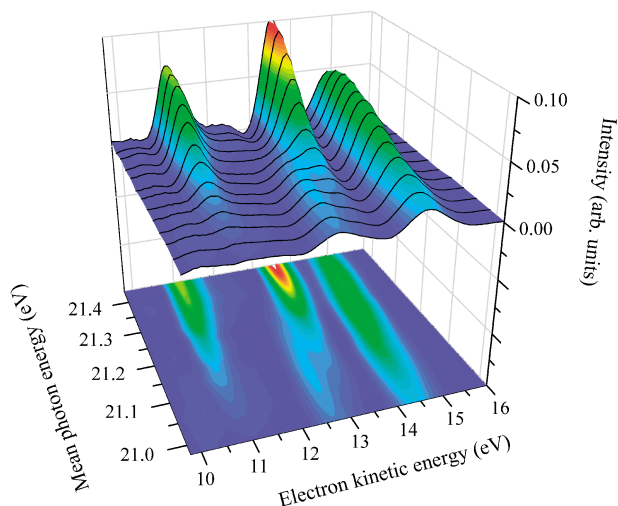


Fig. 3. (a) Intensity of the  $\text{Ar}^+$  photoelectron peak and total intensity of the  $\text{Ar}^{2+}$  ones (peaks in the kinetic energy range of 10–16 eV) as a function of the FEL power, derived from the shot-by-shot analysis of the photoelectron spectra at an FEL setting to 21.4 eV photon energy. The curves show the fits with a set of rate equations formulated for the sequential three-photon double ionization mediated by  $\text{Ar}^+$  resonances. (b) Energy diagram depicting sequential double ionization due to three photon absorption.

化による  $\text{Ar}^+$  生成に対応するピーク（運動エネルギーが 5.5 eV 付近）に加え、三本のピークが10–16 eVに観測される。この10–16 eVの構造は、1光子イオン化では全く解釈できず、明らかに多光子吸収に起因する。実際に10–16 eVのピーク構造の強度をFELパルス強度に対してプロットすると（Fig. 3(a)）、1光子イオン化による  $\text{Ar}^+$  生成のピーク強度の依存性に比べて傾きが急峻であり、非線形な応答を見てとれる。これらの3本のピークは、その運動エネルギーから、 $\text{Ar}^+$  からの2光子イオン化により  $\text{Ar}^{2+}$  基底電子配置の異なる3つの準位が生成したものと帰属できる。すなわち、全過程ではFig. 3(b)のエネルギー図に示したような3光子吸収による段階的な2重イオン化過程が起きていることになる。 $\text{Ar}^+$  から  $\text{Ar}^{2+}$  への2光子イオン化においては、中間状態となり得る  $\text{Ar}^+$  の励起状態が存在する。この中間状態への共鳴のために多重イオン化過程はFELの光エネルギーに鋭敏に依存することが期待される。しかしながら、SASEモードのFELではショットごとにFELスペクトルにばらつきがあり、これにより共鳴効果は不鮮明になってしまう。

1光子イオン化による光電子ピークのプロファイルはFELスペクトルを反映する。そのため、光電子ピークのプロファイルをショットごとに観測すれば、SASEモードでの各FELスペクトルのばらつきをモニターすることが可能である。実際、Fig. 2の測定のショットごとの光電子スペクトルを調査すると、FELスペクトルのばらつきを反映して、 $\text{Ar}^+$  ピークの運動エネルギーが各ショットで変化していることが見出せる。Fig. 2の挿入図は、そのショットごとの  $\text{Ar}^+$  ピークの運動エネルギーから見積もったFELスペクトルの中心エネルギーを、その各FELパルスの強度（ビームラインに備えられた光強度モニターか

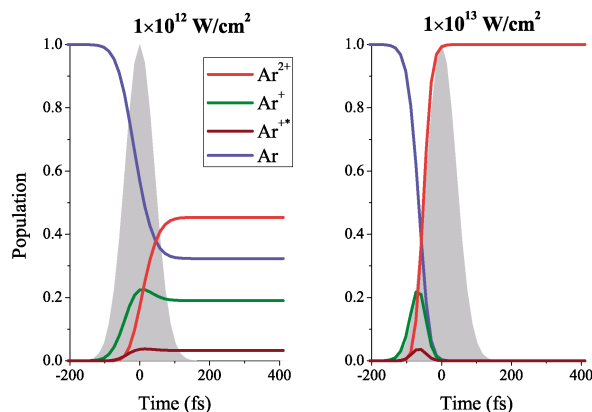


**Fig. 4.** Photoelectron spectra in the range of the  $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$  peaks, derived from a single-shot-basis analysis. In the analysis, the single-shot photoelectron spectra obtained at three different nominal FEL photon energies of 21.0, 21.2 and 21.4 eV were sorted by the mean photon energies determined from the  $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$  peak energies, and then averaged within narrow photon energy ranges that divide the whole photon energy range into 13 segments.

らの信号強度) に対してプロットしたものである。0.13 eVの半値全幅をもつ中心エネルギーのばらつきが観測されるが、この分布は別の光学的手法による観測と極めて良く一致する<sup>7)</sup>。すなわち、この光電子分光によるショットごとの光子エネルギーのモニターは妥当に機能しており、これを利用して FEL スペクトルに鋭敏に依存する多光子多重イオン化過程の共鳴効果にアプローチすることが可能となった。

**Fig. 4** は、個々の FEL ショットの光電子スペクトルについて、 $\text{Ar}^+$  ピーク位置から見積もられた光子エネルギーでソートし、30 meV の光子エネルギー範囲について積分することにより得られた  $\text{Ar}^{2+}$  ピーク構造の光子エネルギー依存性である。この 0.4 eV の光子エネルギー領域をカバーするために、FEL の光子エネルギーの中心値の設定を 21.0 eV, 21.2 eV, 21.4 eV とし、それらでの測定を接合している。終生成する  $\text{Ar}^{2+}$  の 3 つの準位は、いずれも光子エネルギーが高い側で生成量が増大することが見てとれる。これは、中間状態となる  $\text{Ar}^+$  の励起状態への共鳴が 21.2–21.4 eV 付近に存在することに対応する。この強度変化のより詳細な解析から、終生成する  $\text{Ar}^{2+}$  の準位に応じて異なる  $\text{Ar}^+$  の励起状態への共鳴が関与していることが分かる<sup>6)</sup>。また、光子エネルギーの増加に伴う運動エネルギーの変化にも、この共鳴効果を読み取れる<sup>6)</sup>。

**Fig. 3(a)** の光電子強度の FEL パルス強度依存は、**Fig. 3(b)** に示された 3 光子 2 重イオン化過程に対するレート方



**Fig. 5.** Time evolution of state populations of Ar irradiated with FEL pulses of the laser fields of  $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  and  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , which are derived from the fit with rate equations of the FEL intensity dependences of the  $\text{Ar}^+$  and  $\text{Ar}^{2+}$  signal intensities plotted in Fig. 3(a).

程式でフィットすることができる。このフィットから得られた FEL パルスの入射に応じた Ar の状態分布の変化を **Fig. 5** に示した。レーザー場強度  $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  における Ar は、その 40% 以上は最終的に 2 価イオンに達することが分かる。さらに、レーザー電場が  $1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  では、実質的に全ての状態分布は 2 価イオンとなる。このような顕著な 2 価イオン生成は、この光子エネルギーでの効率的な  $\text{Ar}^+$  の励起状態への共鳴によるものである。

本稿では、シングルショット光電子分光に基づく、原子の多光子多重イオン化過程の詳細な研究について紹介した。現在、光学レーザーと FEL との併用による多光子多重イオン化過程のより深い理解とその制御に向けた研究を進めている。

## 謝辞

本稿で紹介した、磁気ボトル型光電子分析器を用いた原子の多光子多重イオン化についての光電子分光実験は、繁政英治准教授、松田晃孝博士、曾建銘博士(分子研)と理研 X 線自由電子レーザー計画合同推進本部利用グループとの共同研究によるものです。

## 参考文献

- 1) A. A. Sorokin et al.: Phys. Rev. Lett. **99**, 213002 (2007).
- 2) M. G. Makris et al.: Phys. Rev. Lett. **102**, 033002 (2009).
- 3) 例えば, H. Wabnitz et al.: Phys. Rev. Lett. **94**, 023001 (2005).
- 4) R. Moshhammer et al.: Phys. Rev. Lett. **98**, 203001 (2007).
- 5) M. Nagasono et al.: Phys. Rev. A **75**, 051406(R) (2007).
- 6) Y. Hikosaka et al.: Phys. Rev. Lett., in press.
- 7) T. Shintake et al.: Nat. Photon. **2**, 555 (2008).

● 著者紹介 ●



**彦坂泰正**

新潟大学理学部自然環境科学科・准教授  
E-mail: hikoska@env.sc.niigata-u.ac.jp  
専門：原子分子科学

**【略歴】**

1997年東京工業大学工学研究科博士課程修了，博士（理学）。分子科学研究所，日本学術振興会，オックスフォード大学，物質構造科学研究所での博士研究員，分子科学研究所・助手/助教を経て，2009年9月より現職。



**伏谷瑞穂**

分子科学研究所 光分子科学第三部門  
助教

E-mail: fusitani@ims.ac.jp

専門：アト秒およびフェムト秒レーザーパルスを用いた原子分子の超高速分光

**【略歴】**

1997年京都大学理学部化学専攻卒業，2002年京都大学大学院理学研究科博士課程修了，博士（理学），同年 ベルリン自由大学実験物理研究所 長期博士研究員，2006年分子科学研究所 基礎光科学研究部門 助手，2007年より現職。



**菱川明栄**

名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻（化学系）教授

E-mail: hishi@chem.nagoya-u.ac.jp

専門：光物理化学，強レーザー場科学

**【略歴】**

1989年京都大学工学部物理工学科卒，1994年同大学大学院工学研究科博士課程修了，工学博士，同年東京大学大学院総合文化研究科助手，1997年同大学院理学系研究科助手，1998年同講師，1999年同助教授。2003年4月分子科学研究所准教授，2005年10月-2009年3月 さきがけ研究員兼務。2010年4月より現職。

## Multi-photon multiple ionization of atoms irradiated with EUV SASE-FEL pulses

Yasumasa HIKOSAKA<sup>1</sup> Mizuho FUSHITANI<sup>2,3</sup> and Akiyoshi HISHIKAWA<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup>Department of Environmental Science, Niigata University, Niigata 950-2181, Japan

<sup>2</sup>Institute for Molecular Science, Okazaki 444-8585, Japan

<sup>3</sup>Department of Chemistry, Graduate School of Science, Nagoya University, Nagoya 462-8602, Japan

**Abstract** Multi-photon multiple ionization is a typical non-linear response of atoms in intense EUV laser fields. Photoelectron spectroscopy utilizing with a magnetic-bottle-type electron spectroscopic technique is a useful mean to study the details of multi-photon multiple ionization processes. We present that the method enables us to monitor the fluctuation of SASE-FEL spectra and to derive precisely photon energy dependences of the multi-photon multiple ionization processes.