



EUV-FEL によるクラスターの多重イオン化ダイナミクス

永谷清信¹, 福澤宏宣², 上田潔², 八尾誠¹

¹京都大学大学院理学研究科 〒606-8502 京都市左京区北白川追分町

²東北大学多元物質科学研究所 〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

要旨 我々はクラスターと FEL の相互作用を調べるための多粒子同期計測装置とパルス・クラスター源を新たに開発した。本稿では EUV-FEL 照射によるクラスターのイオン化で見いだされたイオン化の抑制機構や、高強度 FEL 照射時の高エネルギー多価イオン放出過程について解説する。

はじめに

近年の短波長領域の自由電子レーザー (FEL) の開発により、コヒーレント光と物質の相互作用についての新たな研究領域が拓かれた¹⁻¹⁰⁾。光源の特徴である高強度、短パルス性、高い干渉性を活かして、原子・分子の多光子イオン化や、分子の超高速分光による反応ダイナミクスの解明、さらには単分子の X 線回折による構造決定といった研究が可能となってきている。我々は FEL と物質の相互作用を詳細に理解することを目的として、原子が数個から数万個程度凝集したクラスターに着目して研究を行っている^{9,10)}。

クラスターは原子分子と凝縮系を橋渡しする系であり、サイズ依存性を詳細に検討することで、原子から凝縮系に至る物質と光の相互作用について包括的な理解が得られると期待される。特に、真空中に孤立したクラスターではエネルギー散逸の経路が限られており、放出される全ての粒子を観測する事で光吸収から緩和に至る反応経路を詳細に検討できると期待される。ただし、実験的には FEL 照射によってクラスターから放出される著しく多数の粒子を弁別可能な新しい多粒子計測手法が必要となる。

我々はクラスターと FEL の相互作用を詳細に検討するために、多粒子検出を可能とする dead-time free (不感時間ゼロ) 検出のためのイメージ検出器及び計測システムと広い温度範囲で動作可能なパルス・クラスター源を開発した。本稿では実験方法について解説した後、典型的な実験例として、いくつかの希ガス・クラスターの結果について紹介する。

実験装置

装置は Fig. 1(a) に示すように、検出器真空槽、クラスター源と、検出器真空槽を極高真空 ($\sim 10^{-9}$ Pa) に保つための複数の差動排気真空槽で構成されている。クラスター源側作動排気室には 4 象限のブレードスリットを設置し、入射するクラスタービームの成形およびイオン化領域の粒子数の制御を行っている。また、FEL 側の差動排気真空槽には、散乱光の抑制のために複数のスキマーを設置した。Fig. 1(b) に検出器真空槽の概略を示す。EUV-FEL 光とクラスタービームは図中 A で交差する。生成されたイオンは電場によって上方に加速され、六角形型ディレーライン位置検出器 (B, RoentDek HEX80 または HEX120) により検出される¹¹⁾。イオン検出信号はパルス波形のまま高速デジタイザ (Acqiris DC282) で取り込み、保存した波形をソフトウェア処理によりパルス検出時間を求め、イオンの飛行時間と検出位置を得ることができる¹²⁾。検出する粒子の種類やエネルギーに応じて、飛行距離が短い下方の検出器 (C) を使用する。これとは独立に 4 本の飛行時間型電子分光器 D, E, F, G を備えており、field free 条件で電子スペクトルの計測も可能である。D と F は直線偏光 FEL 光の電気ベクトルの向きに対して 0° 方向、E と G は同一水平面内 55° に配置されている。

Fig. 1(c) にクラスター源を示す。本装置では低温での動作が報告されている電磁バルブ (Series 99 valve, Parker Instrum. Corp.) を採用した¹³⁾。パルスバルブを 4 本の銅製ロッドを介して液体ヘリウム冷却可能なコールドユニットに接続することで、常温から 10 K 程度までの間で温度制御を実現している¹⁴⁾。ノズルの温度および噴出ガスの圧力を制御することでクラスターサイズを制御した。

FEL の集光には、直入射球面鏡 (焦点距離 250 mm) あ

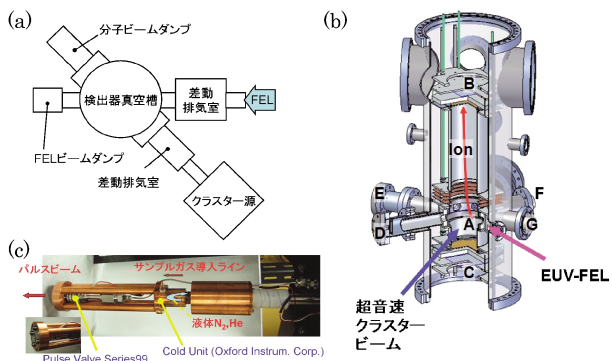


Fig. 1 (a) Schematic diagram of apparatus. (b) Schematic drawing of detection chamber. (c) Photograph of pulsed cluster source¹⁴.

るいは射入射集光鏡（焦点距離 1 m）を実験目的に応じて使い分けた。FEL パルスのエネルギー，ミラーの反射率，集光径などを考慮して見積もられた集光点での光強度は，球面鏡の場合で 10^{14} W/cm²，斜入射鏡で 10^{13} W/cm²程度である。

実験結果

我々は，SCSS 試験加速器¹⁶を用いていくつかの希ガス・クラスターについて計測を行い，多光子吸収過程とその後の解離過程について新しい知見を得た。ここでは典型的な結果として，吸収される光子数の増大に伴うイオン化の抑制^{9,10}と，高エネルギー多価イオン放出^{14,16}について紹介する。

イオン化の抑制

FEL の強度としては比較的弱い 10^{12} W/cm² 以下の光強度でも，クラスターでは興味深い現象が観測された。ここでは，Ar や Xe クラスターに FEL 照射したときに生成される子イオンの運動エネルギー分布の，光強度やクラスターサイズに対する依存性について紹介する。Fig. 2(a)に 10^{11} W/cm² の FEL 照射によって生成するイオンの質量スペクトルを示す。Ar⁺ や Ar₂⁺ 等の 1 価イオンでは，孤立原子に由来するスパイクに加えて，広い線幅をもつクラスター由来の高エネルギー成分が観測されている。しかし，多価イオンについては原子由来のスパイクのみであることから，FEL 照射後のクラスターはクーロン爆発によって多数の 1 価イオンへと解離していることが分かる。

Fig. 2(b) は Ar⁺ イオンの運動エネルギー分布のクラスターサイズ依存性である。クラスターサイズの増加と共にイオンの平均運動エネルギーは増加している。即ち，光イオン化により生成する電荷数が増加している事を示している。しかし，Fig. 2(c) に丸で示すように，クラスターサイズの増加と共に平均エネルギーが頭打ちになる傾向が見ら

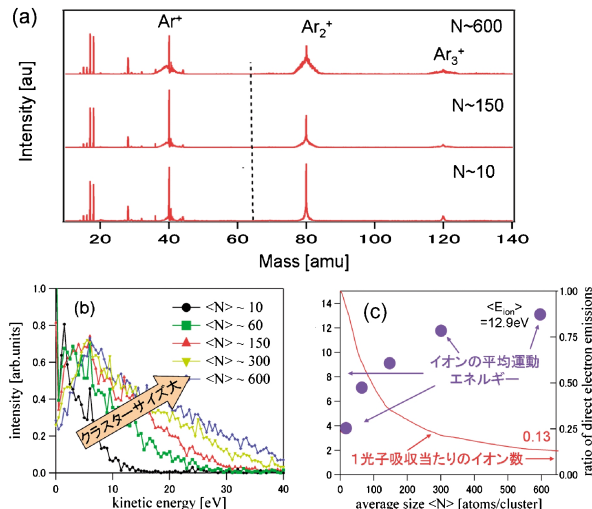


Fig. 2 (a) Time of flight spectrum of Ar cluster beam recorded at 61 nm. Laser power density was 10^{11} W/cm². (b) Kinetic energy distribution of Ar⁺. (c) Cluster Size dependence of experimental average kinetic energy (dots) and estimated number of ions generated by one photon absorption (solid line). N in (a) and $\langle N \rangle$ in (b) is average cluster size⁹.

れる。我々は FEL 照射によってクラスターが吸収する光子数と，生成するイオンの運動エネルギーの関係について考察を行い，1 価イオンのみが放出される場合の吸収光子数とイオンの運動エネルギーの関係式を導いた⁹。実験で得られたイオンの運動エネルギーを用いて 1 個の光子吸収当たり生成するイオン数を見積もると，Fig. 2(c) の実線のようにクラスターサイズの増大と共に大きく減少することから，クラスターでは光イオン化の抑制が起こっていると考えられる。FEL パルス内でのクラスターの光イオン化を逐次的多光子吸収の描像で考えると，イオン化抑制効果は次のように理解できる。まず，クラスターが 1 光子を吸収すると 1 価クラスターが生じる。この場合は，クラスター内の 1 原子の光イオン化である。引き続き光吸収が起こると，2 光子吸収で 2 原子，N 光子吸収で N 原子がクラスター内で個別にイオン化する (inner ionization) と考えられる。一方，FEL 照射によって生じたクラスターイオンを更にイオン化するには，個別原子のイオン化に加えて，クラスターイオンが作るクーロンポテンシャルを電子が逃げる (outer ionization) ためのエネルギーが必要となる。したがって，孤立原子の 1 光子イオン化と比較して，みかけの平均イオン化断面積 (1 光子吸収当たりの生成イオン数) は著しく減少する⁹。

巨大クラスターからの多価イオン生成

前項のイオン化抑制効果は，平均サイズ 150 のキセノン・クラスターから放出される子イオンの運動エネルギー分布を，光強度が 10^{11} から 10^{12} W/cm² の範囲で測定した場合にも観測している¹⁰。さらに，光強度やクラスターサ

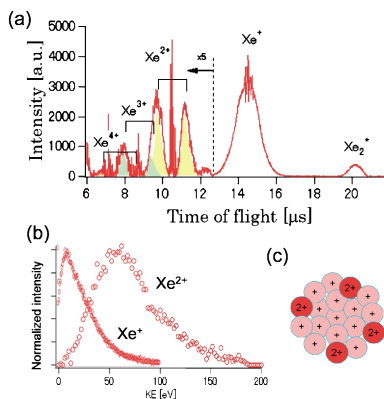


Fig. 3 (a) TOF spectrum of xenon cluster recorded at 62 nm. Laser power density was 2×10^{14} W/cm². (b) Kinetic energy distribution of Xe⁺ and Xe²⁺. (c) Schematic diagram of charge distribution within cluster expected from experimental results^{14,16}.

イズを大幅に増加させると、質的に異なる顕著な変化が現れる。**Fig. 3(a)**に平均サイズ1万のキセノン・クラスターに62 nm, 10^{14} W/cm²程度のFELを照射して得られた解離イオンの飛行時間スペクトルを示す。このような高強度では、キセノン原子も多光子吸収を起こして多価イオンを生成するため、スペクトルには残留キセノンガスに由来する最大5価までのシャープなキセノン多価イオンピークが見られる。さらにスペクトルには、クラスター由来と考えられるブロードな1価Xeイオンや2価, 3価の多価Xeイオンが観測された。しかも、1価イオンと多価イオンのピーク形状は大きく異なっており、多価Xeイオンのピークは完全に分離した2つのピークであるのに対して、1価イオンピークは巾の広い1つのピークを形成している。これをイオンの運動エネルギー分布に換算すると、クラスターから生成する2価Xeイオンは常に高いエネルギーで放出されるのに対して、1価Xeイオンは0から数十eVにわたって広い分布をもって放出されていることが分かる(**Fig. 3(b)**)。クーロン爆発後の運動エネルギー分布が、爆発直前の電荷分布を反映していることから、このようなイオンの運動エネルギー分布の違いは、1価イオンがクラスター中に一様に分布しているのに対して、多価イオンがクラスター表面に存在していると結論される。

我々は実験で観測された多価イオンの運動エネルギー分布を理解するために、イオンが生成する際のクラスターイオン全体のエネルギーを考察した。光吸収によって生成した電荷は自身のクーロンエネルギーを最小にするように再分配されるとすると、2価イオンが生成される場合にはクラスター表面に分布する場合がエネルギー最小になる。2価イオン生成がエネルギー的に許容となる条件を一様帯電球モデルから計算すると、全電荷数 Q , クラスターの半径 R , 第1イオン化ポテンシャル I_p , 第2イオン化ポテンシャル I_{pp} の間に次に様な不等式が成り立つ¹⁶⁾。

$$\frac{2(Q-2e^2)}{R} \geq 5(I_p - I_{pp}) - \frac{12e^2}{R} \quad (1)$$

式(1)の左辺はクラスター表面で生成する2価イオンの受けるクーロンポテンシャルの形になっており、クーロン爆発の際にイオンの運動エネルギーへと転換される。上の考察によって得られた式の右辺の値は、2価イオンが出現し始める条件での運動エネルギーのピーク位置を説明できる¹⁶⁾。このような結果から、FEL照射によって生成したクラスター中で電荷の再配分が起こり、**Fig. 3(c)**に示すような不均一な電荷が実現している事が示唆される。

最後に、近赤外レーザーを用いた研究などとの違いに言及する。近赤外レーザーや波長100 nmの紫外FELの実験でもエネルギーの高い多価イオンの生成は観測されており、逆制動輻射(IBS)過程によるエネルギー吸収の増加によって説明されている^{6,17,18)}。即ち、光イオン化によってクラスターはナノプラズマを形成し、ナノプラズマ中でレーザー電場によって加速された電子が非弾性散乱を起こすことによってクラスターが加熱されて、著しくエネルギーの高い多価イオンの放出に至ると考えられている。これに対し、我々が用いた波長50-60 nm領域では、波長の二乗に比例するponderomotive energyが著しく小さいことから、近赤外領域でのエネルギー注入機構を適用することはできない。実際、我々の実験では高エネルギーの2価イオンの出現前後で一価イオンの運動エネルギー分布は特に大きく増加することはなく、またイオン化の抑制が起こっていることも、クラスターに生成された全電荷数の見積もりから明らかになっている¹⁶⁾。さらに、IBS機構が強く働く場合には、熱的に励起された電子がMaxwell-Boltzmann分布に従う事が知られている¹⁸⁾が、我々が行った波長52 nmでサイズ1万のキセノン・クラスターの光電子スペクトル計測には、そのような証拠はなく、むしろイオン化の抑制に起因する、電子エネルギーの赤方偏移が観測されている¹⁹⁾。

謝辞

本研究は、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で行われました。全員のお名前を記す紙面がありませんが、本研究の遂行に当たっては岩山洋士博士(現分子研)や本村幸治博士を初めとする京都大学と東北大学の多くの共同研究者の協力を頂きました。実験では産総研の斎藤則生室長、東北大学の山本正樹教授、LBNLのA. Belkacem博士、MPIのJ. Ullrich教授、フランクフルト大のR. Doerner教授、ミラノ大のP. Piseri博士らのグループのご協力を受けました。本研究は科研費およびX線自由電子レーザー利用推進研究課題として文部科学省から援助を受けました。ここに感謝を申し上げます。

参考文献

- 1) A. A. Sorokin *et al.*: Phys. Rev. Lett. 99, 213002 (2007).
- 2) M. Nagasono *et al.*: Phys. Rev. A 75, 051406(R) (2007).
- 3) A. Rudenko *et al.*: Phys. Rev. Lett. 101, 073003 (2008).
- 4) A. Frolisch *et al.*: Phys. Rev. A 76, 013411 (2007).
- 5) T. Sato *et al.*: Appl. Phys. Lett. 92, 154103 (2008).
- 6) H. Wabnitz *et al.*: Nature (London) 420, 482 (2002).
- 7) K. Motomura *et al.*: 2009 J. Phys. B, 42, 221003 (2009).
- 8) Y. Nishino *et al.*: Phys. Rev. Lett. 102, 018101 (2009).
- 9) H. Iwayama *et al.*: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 134019 (2009).
- 10) H. Fukuzawa *et al.*: Phys. Rev. A, 79, 031201(R) (2009).
- 11) X.-J. Liu *et al.*: Rev. Sci. Instrum. 80, 053105 (2009).
- 12) K. Motomura *et al.*: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 606, 770 (2009).
- 13) M. N. Slipchenko *et al.*: Rev. Sci. Instrum. 73, 3600 (2002).
- 14) K. Nagaya *et al.*: J. Electron Spectroscopy Related Phenom. 181, 125 (2010).
- 15) T. Shintake *et al.*: Nature Photonics 2, 555 (2008).
- 16) H. Iwayama *et al.*: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 43, 161001 (2010).
- 17) R. Santra and C. H. Greene, Phys. Rev. Lett. 91, 233401 (2003).
- 18) T. Laarmann *et al.*: Phys. Rev. Lett. 95, 063402 (2005).
- 19) K. Nagaya *et al.*: in preparation.

● 著者紹介 ●



永谷清信

京都大学大学院理学研究科 助教
E-mail: nagaya@scphys.kyoto-u.ac.jp
専門：不規則系物理学

【略歴】

1995年京都大学大学院理学研究科 博士後期課程単位取得退学，1995年京都大学理学部教務職員，1998年京都大学大学院理学研究科助手，2003年博士（理学）取得（京都大学），2007年より現職。



福澤宏宣

東北大学多元物質科学研究所助教
E-mail: fukuzawa@tagen.tohoku.ac.jp
専門：原子・分子・クラスター科学

【略歴】

2005年東京工業大学大学院理工学研究科化学専攻博士後期課程修了，博士（理学），首都大学東京大学院理学研究科リサーチ・アシスタント，東北大学多元物質科学研究所教育研究支援者，同産学官連携研究員を経て2009年より現職。



上田 潔

東北大学多元物質科学研究所教授
E-mail: ueda@tagen.tohoku.ac.jp
専門：原子分子科学，電子分子動力学

【略歴】

1982年3月京都大学大学院工学研究科後期課程修了，工学博士，同年4月より東北大学科学計測研究所助手，1985-1987年米国メリーランド大学客員研究員，1990年6月より東北大学科学計測研究所助教授，1992-1993年英国ダークペリー研究所招へい研究員，1996-1997年仏国パリ南大学客員教授，2003年4月より現職。



八尾 誠

京都大学大学院理学研究科 教授
E-mail: yao@scphys.kyoto-u.ac.jp
専門：不規則系物理学

【略歴】

1982年京都大学理学博士，1983年フンボルト財団奨学研究員，1985年京都大学理学部助手，1990年京都大学理学部講師，1993年京都大学理学部助教授，2003年より現職。

Multiple photoionization dynamics of clusters by EUV-FEL

Kiyonobu NAGAYA¹, Hironobu FUKUZAWA², Kiyoshi UEDA², Makoto YAO¹

¹Department of Physics, Graduate School of Science, Kyoto University, Kyoto 606-8502 Japan

²Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

Abstract We have developed a multi-particle coincidence detection system and a pulsed cluster source to study interaction of clusters with EUV-FEL pulses. Here, we introduce our recent work on frustration of direct photoionization of clusters and emission of energetic multiply charged ions induced by intense EUV-FEL pulses.