

光のゆらぎを利用した極端紫外域における原子分子の非線形光学過程の研究

Non-linear optical processes of atoms and molecules in extreme ultraviolet studied by light fluctuation

(日本物理学会推薦)

代表研究者 新潟大学 彦坂 泰正 Niigata University Yasumasa HIKOSAKA
協同研究者 名古屋大学 菱川 明栄 Nagoya University Akiyoshi HISHIKAWA

The recent advances in free electron laser (FEL) technology allow us to investigate non-linear optical processes in the extreme ultraviolet (EUV) region. Nonlinear responses of materials against EUV FEL turned out to be different from those observed in visible and infrared. Shot-by-shot photoelectron spectroscopy, in which photoelectrons emitted from multi-photon process are detected on a single FEL shot basis while monitoring each FEL spectrum with the photoelectron peak due to a one-photon process, can be a powerful experimental means for studying non-linear optical processes of atoms and molecules in intense EUV laser fields. In this work, we have applied shot-by-shot photoelectron spectroscopy to studies on nonlinear processes in isolated atoms, and have gained new information on the multi-photon multiple ionization processes in atoms. The investigations with shot-by-shot photoelectron spectroscopy to three-photon double ionization of Ar at photon energies around 21 eV and to three-photon double excitation of He at photon energies around 24.1 eV are summarized in this report.

研究目的

極端紫外域の自由電子レーザー (FEL) の登場により、極端紫外強レーザー場における原子や分子の非線形光学過程の研究が近年大きな進展をみせている。ここでは、多光子吸収による多重電離が最も典型的な原子分子の非線形光学応答の一つであることが分かってきた。この多光子吸収による多重電離は、基本的には摂動的な多段階の光子吸収の描像によって、極紫外強レーザー場での原子や分子の非線形光学応答は理解されると考えられている。これは、レーザー電場から受ける電子の動重力エネルギーは波長の自乗に比例するため、極紫外域では強いレーザー場とはいえ、光と物質の相互作用は摂動論の領域を超えることは考えづらいためである。摂動論的な多光子吸収は赤外・可視域において光学レーザーの利用により理解が進んできている。最外殻の電子が一電子的に多光子吸収に与るのが一般的な長波長域のモデルである。しかし、極端紫外域では場合によ

っては内殻電子までも含む複数の電子が1つの多光子吸収過程に関与し得る。そのような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の理解は、未だ極めて限定的である。

光電子分光は、極端紫外域での多光子多重電離過程についての詳細な情報を引き出すことができる有力な手法である。これは、多重電離過程で放出される光電子の運動エネルギーには、イオン化過程において生成する終状態または中間状態の電子状態の情報が反映されるためである。しかしながら、光電子分光による多光子多重電離過程の研究はこれまで数例に限られており、それらにおいても光電子分光の有効性が最大限に発揮されたとは言い難い。これは、大尖頭出力かつ短波長のFELを光源とする光電子分光では、次の特有な問題を克服する必要があるためである：(1)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のために、分解能が制限されると

ともに、電子の運動エネルギーの絶対値を正しく測定できない、(2)金属の仕事関数は1光子のエネルギーよりも小さいため、真空槽表面等から極端に多くの電子がたやすく発生し、それによるバックグラウンドが深刻となる。

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である「磁気ボトル型電子分析技術」を利用することにより、これらの問題を克服した。さらに、この手法の極めて高い検出効率を利用して、FELのショット毎に光電子計測することにより、自己増幅自発放射モードのFELの宿命であるスペクトルのショット毎のばらつきを検出することに成功した[Hikosaka et al, Phys. Rev. Lett., 105, 133001 (2010).]。このショット毎にFELスペクトルをモニターしながら光電子分光を行う「シングルショット光電子分光」の実現により、レーザーパルスの波長ゆらぎを、これまでのような観測を鈍らせる原因ではなく、レーザー光の波長を掃引する手段として利用することが可能となった。

本研究では、このシングルショット光電子分光を利用することにより、極端紫外強レーザー場における原子の多光子多重電離過程の理解を大きく進展させることを目指した。特に、多光子多重電離において複数の電子放出が逐次的に起こる過程における共鳴効果に着目した研究展開を行った。

研究経過

シングルショット光電子分光により、原子の多光子多重電離過程において幾つかの新規の過程を見出

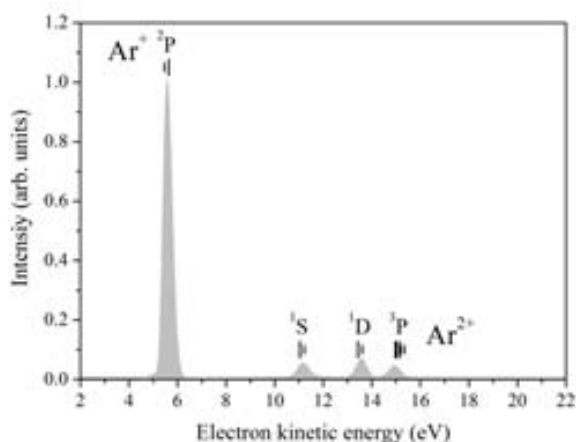
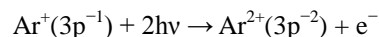


Fig. 1 Photoelectron spectrum of Ar obtained by 15000 FEL shots at a photon energy setting to 21.4 eV.

すことに成功した。本研究報告では、特にアルゴン原子の3光子吸収による2重イオン化過程とヘリウム原子の増強3光子イオン化に対する成果について概説する。

波長 58.0 nm (21.4 eV) の FEL 光照射における Ar の光電子スペクトルを図 1 に示す。このスペクトルは、15000 ショットのシングルショット光電子スペクトルの平均である。5.6 eV に観測されたピークは、Ar の 1 光子イオン化による $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ の生成によるものと帰属される。一方、10~16eV のエネルギー領域に見られる 3 本の光電子ピークは 1 光子吸収では説明がつかない。実際、それらの運動エネルギーから、1 光子イオン化によって生成した $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ からの 2 光子イオン化による $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2} (^3P, ^1D, ^1S)$ の生成に帰属できる[Hikosaka et al, Phys. Rev. Lett., 105, 133001 (2010).]。すなわち、この極端紫外強レーザー場においては、



という逐次的な 2 重イオン化過程が進行していることが明らかとなった。

この第 2 段階のイオン化過程を詳細に調べるために、シングルショット解析を行った。ここでは、 Ar^+ の光電子ピークの運動エネルギーから FEL 光のショット毎の波長を決定し、各シングルショットの光電子スペクトルを光子エネルギー順に並べ替えた。これにより得られた Ar^{2+} ピーク領域の電子収量の 2 次元マップ（電子収量についての光電子エネルギーと光子エネルギーの 2 変数関数での表示）を図 2 に示す[Hikosaka et al, Phys. Rev. A, 88, 023421

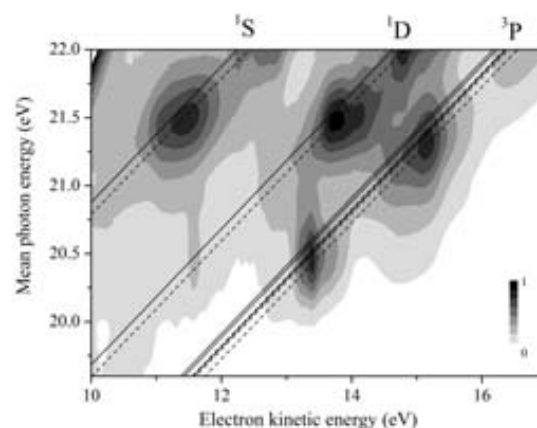


Fig. 2 Two-dimensional map showing $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$ photoelectron spectra as a function of mean photon energy.

(2013).]. この図から、 $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$ の各成分 ($^3P, ^1D, ^1S$) の生成量は、FEL 波長に対して鋭敏に変化することが明らかとなった。このことは、第 2 段階の光イオン化過程において Ar^+ の励起状態への共鳴が重要であることを示している。ここで、 $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$ ($^3P, ^1D, ^1S$) の生成量は、光子エネルギーが 20.5 eV と 21.5 eV 付近で増大している様子が見て取れる。ただし、これら 2 つの光子エネルギー領域の共鳴構造は、2 次元マップ上に異なった形状として現れている。20.5 eV 付近の構造は、幅が狭くて縦に伸びた形状である。一方、21.5 eV 付近の構造は幅が広く、若干斜めに傾いている。これらの違いは、異なるタイプの共鳴状態が関与していることによる。すなわち、20.5 eV 付近に見られる共鳴は、 $\text{Ar}^+ 3p^1$ 状態から 2 光子レベルに存在する Ar^+ 自動イオン化状態への共鳴であり、21.5 eV 付近では $\text{Ar}^+ 3p^1$ 状態から 1 光子レベルに存在する Ar^+ 励起状態を中間状態とした 2 光子イオン化が起きている [Hikosaka et al, Phys. Rev. A, 88, 023421 (2013).].

He については、FEL の波長設定 51.4 nm (光子エネルギー 24.1 eV) において、3 光子吸収によるイオン化過程を見出した。光電子スペクトルには、多光子吸収過程に由来するピークが 7 eV、24 eV、48 eV に観測された。7 eV のピークは、3 光子吸収による He^+ の電子励起状態 ($N=2$) へのイオン化に帰属される。一方、24 eV と 48 eV のピークの運動エネルギーは、それぞれ 2 光子吸収と 3 光子吸収による He^+ ($N=1$) へのイオン化と合致する。ここで、7 eV のピークには FEL 強度に対する顕著な非線形性が見られたものの、24 eV と 48 eV のピークは FEL 強度に対する変化量が僅かであった。これは、24 eV と 48 eV のピークの強度の殆どは FEL 光に含まれている高調波による 1 光子イオン化によるためである。この高調波の寄与を除いたピーク強度は、3 光子吸収が 2 光子吸収よりも 1 ケタ以上も効率よく進行していることを示している。光電子ピーク形状のシングルショット解析により、7 eV のピークの生成には、1 つの電子が主量子数 $N=3$ の準位、他方が $n=4-8$ の準位に励起した 2 電子励起状態への 3 光子吸収での共鳴が関与していることが分かった。また、光学レーザー (250 nm, 50 fs) を併用することにより、FEL の 1 光子目の吸収に対しても He^+ ($N=1$) へ収斂する Rydberg 状態が共鳴として関与していることが明らかとなった。すなわち、1 光子吸収により 1 つの電子が $n=4-8$ へ励起

し、さらに 2 光子吸収で他方の電子が $N=3$ へ励起するという 3 光子吸収が起こることによって、2 光子吸収よりも 3 光子吸収が極めて優勢となっているものと理解できる。

考察

本研究では、シングルショット光電子分光を用いた、極紫外強レーザー場における原子の多光子イオン化の実験研究を展開した。このシングルショット計測により、FEL のショットごとのスペクトルをモニターし、それを利用して FEL 波長の揺らぎ幅以下の分解能で非線形現象を捉えることが可能となった。分子においても同様な計測が可能であり、特に近赤外レーザーパルスを用いた非断熱配列制御によって、その非線形過程の詳細を明らかにしていくことができると期待される。シングルショット光電子分光のように、FEL 光を非破壊でなお且つショットごとに FEL スペクトルの計測を行うことは他の手法では容易ではない。そのため、この手法は本研究の孤立原子分子の非線形過程への適用に限らず、FEL の利用研究における基盤技術として有用となりうる。昨年度より X 線自由電子レーザー (SACLA) の供用運転が始まった。この利用の主役は生体分子の構造解析やナノテクノロジーなどの応用研究となるのは間違いないが、この展開を支える X 線領域の新しい光と物質の相互作用の基礎的概念の構築において、原子分子物理分野の基礎研究が重要な役割を果たしていくものと考えられる。我々も本研究のシングルショット光電子分光を利用した、X 線強レーザー場における原子や分子の非線形光学過程の研究を開始した。ここでは、深い内殻電子が関与する多光子吸収過程を明らかにすることを目指している。

研究の発表

口頭発表

1. “EUV-FEL による多光子多重電離の研究”, 彦坂泰正, 日本物理学会 2011 年秋季大会 シンポジウム「短波長自由電子レーザーによる物質科学の展開—EUV-FEL による成果から XFEL 利用に向けて—」, 富山大学, 富山, 2011 年 9 月 21-24 日
2. “短波長自由電子レーザーによる原子分子科学の新展開”, 彦坂泰正, 分子研シンポジウム 2012 岡崎, 愛知, 2012 年 6 月 1-2 日

3. “シングルショット光電子分光による EUV/X 線自由電子レーザー場中の原子過程”, 菱川明栄, レーザー学会学術講演会第 33 回年次大会, 姫路商工会議所, 姫路, 2013 年 1 月 28-30 日
 4. “Atoms in intense EUV/X-ray FEL fields studied by single-shot photoelectron spectroscopy”, 菱川 明栄, 第 13 回光量子科学シンポジウム, 日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所, 木津川, 2012 年 11 月 15-16 日
 5. “Atoms in intense EUV/X-ray laser fields studied by single-shot photoelectron spectroscopy”, A. Hishikawa, The 10th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP10), Taipei, Taiwan, October 23-30, 2012
 6. “EUV/X 線自由電子レーザー場における原子過程”, 菱川明栄, 分子研研究会 「新しい光の創成と物質科学 — 精密計測と操作への展開」岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2012 年 10 月 11-12 日
 7. “極短波長自由電子レーザー場中の非線形原子過程”, 菱川明栄, 光化学討論会(ランチョンシンポジウム) [X 線自由電子レーザーが切り拓く新しい光科学の世界], 東京工業大学, 大岡山, 2012 年 9 月 12 日
 8. “深紫外強レーザー場中原子のシングルショット光電子分光”, 菱川明栄, 原子衝突学会第 37 回年会, 電気通信大学, 調布, 2012 年 7 月 28-29 日
 9. “Single-shot photoelectron spectroscopy of atoms in intense EUV/X-ray laser fields”, A. Hishikawa [invited], The 5th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation (5th AWCXR), Kashiwa, Japan, June 27-29, 2012
 10. “Atoms in intense EUV FEL fields”, A. Hishikawa, The 13th IRTG Joint Symposium University of Münster and Nagoya University, Münster, Germany, May 7-8, 2012
 11. “光のゆらぎで探る: 極短波長自由電子レーザー場中の原子過程”, 菱川明栄, 第 3 回超高速光エレクトロニクス研究会, 東京大学柏キャンパス, 柏, 2012 年 3 月 19 日
 12. “Enhanced non-linear double excitation of He in intense EUV laser fields”, A. Hishikawa, Extreme Photonics Seminar, Wako, Japan, August 8, 2011
 13. “Non-linear processes of atoms in intense EUV FEL fields studied by shot-by-shot photoelectron spectroscopy”, A. Hishikawa, XXVII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC 2011), Belfast, Northern Ireland, July 27-August 2, 2011
 14. “光のゆらぎで探る: 自由電子レーザー場中の原子”, 菱川明栄, シンポジウム「X 線自由電子レーザー」—国家基幹技術 XFEL 施設の完成とその利用に向けて—, パシフィコ横浜, 横浜, 2011 年 4 月 21 日
 15. “強レーザー場中偏極 He(2^1P)原子のイオン化過程”, 伏谷瑞穂, 松田晃孝, 遠藤友随, 樋田裕斗, 森下亨, 永園充, 富樫格, 彦坂泰正, 菱川明栄, 日本物理学会第 68 回年次大会, 広島大学, 東広島, 2013 年 3 月 26-29 日
 16. “Ultrafast nonlinear double excitations of He in intense EUV FEL fields”, M. Fushitani, Y. Hikosaka, A. Matsuda, C.-N. Liu, T. Morishita, E. Shigemasa, A. Hishikawa, XVIIIth International Conference on Ultrafast Phenomena (UP2012), Lausanne, Switzerland, July 8 -13, 2012
 17. “EUV-FELによるHeの多光子2電子励起”, 伏谷瑞穂, 彦坂泰正, 松田晃孝, Liu Chien-Nan, 森下亨, 繁政英治, 永園充, 登野健介, 富樫格, 大橋治彦, 木村洋明, 仙波泰徳, 矢橋牧名, 石川哲也, 菱川明栄, 日本物理学会 第 67 回年次大会, 関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス, 西宮, 2012 年 3 月 27 日
 18. “極端紫外強レーザーパルスによる He の多光子 2 電子励起”, 伏谷瑞穂, 彦坂泰正, 松田晃孝, Liu Chien Nan, 森下亨, 繁政英治, 永園充, 登野健介, 富樫格, 大橋治彦, 木村洋明, 仙波泰徳, 矢橋牧名, 石川哲也, 菱川明栄, 第 5 回分子科学討論会 2011, 札幌コンベンションセンター, 札幌, 2011 年 9 月 23 日
- 誌上発表
1. “Resonances in three-photon double ionization of Ar in intense extreme-ultraviolet free-electron laser fields studied by shot-by-shot photoelectron spectroscopy”, Y. Hikosaka, M. Fushitani, A. Matsuda, T. Endo, Y. Toida, E. Shigemasa, M.

Nagasono, K. Tono, T. Togashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and A. Hishikawa, *Physical Review A*, 88, 023421 (2013).

2. “極紫外自由電子レーザー場における原子の非

線形過程”, 伏谷瑞穂, 彦坂泰正, 菱川明栄, 日本物理学会誌, 印刷中.