

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

新潟大学 彦坂 泰正

極端紫外域の自由電子レーザー (FEL) の近年の登場により、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。ここで、レーザー電場から受ける電子の揺動エネルギーは波長の自乗に比例するため、極端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簡単ではない。しかしながら、これまでの研究によって、摂動的な多段階の光子吸収による多重電離では単純に説明がつかないような高い価数のイオンの生成が極端紫外強レーザー場において観測されている。このことから、長波長レーザーで積み上げられてきた非線形光学現象の知見から類推される概念を超えた新しい多重電離メカニズムの存在が予期されている。

光電子分光は、こ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ているとは言い難い。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ばらつきを検出することに成功した。このFELのショット毎のスペクトルのモニターの実現により、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。この磁気ボトル型光電子分析器を用いた光電子分光を行うことにより、アルゴン原子の3光子吸収による2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た。ここでは、個々のFELショットの光子エネルギーを観測し、それに基づき光電子スペクトルをソートすることによって $\text{Ar}^{2+}$ の生成に対応する光電子構造について光子エネルギー依存性を得た。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21.4eV付近で生成量が増大することが見てとれた。これは、中間状態となる $\text{Ar}^+$ の励起状態への共鳴がこのエネルギー付近に存在することに対応している。