

平成 30 年 6 月 8 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05228

研究課題名(和文)原子の内殻空孔崩壊過程の実時間追跡

研究課題名(英文)Real-time probing atomic core-hole decay

研究代表者

彦坂 泰正 (Hikosaka, Yasumasa)

富山大学・大学院医学薬学研究部(薬学)・教授

研究者番号：00373192

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では理化学研究所の自由電子レーザーSACLAを利用し、自由電子レーザー(FEL)と近赤外(NIR)域フェムト秒レーザーの併用によって、原子の電子放出過程の観測を行うことを目指した。SACLAのX線ビームラインBL3を利用して、希ガスのオージェ過程で放出されるオージェ電子にNIRレーザーでサイドバンド形成を確認した。このサイドバンド強度を指標として、2つのレーザーの入射・時間遅延を調整し、空間的および時間的な重なりを最適化することが可能となった。また、軟X線ビームラインBL1においてNIRレーザーを併用して、キセノンの1価イオンの高励起状態をプローブし、その崩壊を実時間観測した。

研究成果の概要(英文)：In this research, we aimed to observe the electron emission process of atoms by using free electron laser SACLA of RIKEN, combined use of free electron laser (FEL) and near infrared (NIR) femtosecond laser. Using X-ray beamline BL 3 at SACLA, side-band formation by NIR laser was observed in the Auger electron spectra of rare gases. The sideband intensity enables us to optimize the spatial and temporal overlap by of the two lasers. In addition, a highly-excited states of single-charged xenon was probed by using NIR laser in combination with soft X-ray beamline BL1, and their decay was probed in real time.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：原子の内殻空孔崩壊過程

1. 研究開始当初の背景

原子や分子と短波長の光との相互作用において、光電効果は主要な過程である。また、その電離に引き続き、生成したイオン状態の内部エネルギーが十分であれば、さらなる電子放出が起こる。このような電子放出過程のメカニズムの理解は、放出される電子の運動エネルギー測定により主に進められてきた。この多段階の電子放出過程の時間スケールは、深い内殻空孔の崩壊はフェムト秒以下で進行し、その崩壊により生成した浅い内殻空孔からのオージェ電子放出は数百 fs 以下であることが一般的である。さらに、内殻空孔が生じないケースにおいても十分な内部エネルギーを保持すれば自動イオン化による電子放出が可能であり、これはピコ秒までの長い時間スケールになり得る。このような電子放出の時間スケールは、放出される電子の運動エネルギーの自然幅から決定することができる。この場合、数 fs の寿命による自然幅の観測は容易であるが、時間スケールが数十 fs 以上となる過程に対しては、それに対応する自然幅の観測は難しい。そもそも後段のオージェ過程や自動イオン化過程については、異なるプロセスからピークが近接した運動エネルギーを持つことも多く、一般的には単なる電子エネルギー分光による帰属は任意性が大きい。そのため、後段のオージェ過程や自動イオン化過程を含めた多電子放出過程の包括的理解は進んでおらず、短波長域の光電効果の後にどのような時間スケールでイオン価数の上昇が進行しているかについて明確な理解は無い。

2. 研究の目的

本研究では、X線自由電子レーザーと光学レーザーを併用し、原子の内殻空孔状態からの電子放出過程の実時間追跡を行う。ここでは、磁気ボトル型電子分光器を用いた超高効率な電子分光によって高精度の電子エネルギースペクトルを測定し、光学レーザー吸収による電子ピークのサイドバンドを観測する。2つのレーザーパルスの遅延時間を変化させてサイドバンドの強度を観測することにより、数百 fs 以下から数 ps までの時間スケールの電子放出プロセスにおいて中間生成する電子状態のポピュレーションの時間変化を明らかにすることを目指した。

3. 研究の方法

本研究では、超高効率の電子エネルギー分析技術を利用した磁気ボトル型電子分光器を用いる。この測定手法では、イオン化領域の側方に強力な永久磁石を置き、それとソレノイドコイルを対向させて配置することにより、イオン化領域に不均一磁場を形成する。この磁場による磁気ミラー効果によって、イオン化により放出された全ての電子の速度ベクトルの方向は、ソレノイドの軸方向に揃えられ、ソレノイドの終端部の電子検出器に

導かれる。この全立体角に亘る極めて高い検出効率から、空間電荷効果を抑制できるような低いイベントレートにおいても、FELのシングルショットごとの電子スペクトルを計測できる。さらに、阻止電場機構の利用により、関心のある運動エネルギー領域の電子を十分減速させて飛行させ、その領域について分解能を向上させて計測することも可能である。この磁気ボトル型電子分光器による電子分光の有用性については、我々のこれまでのFEL利用実験において実証された。この中で、SCSS試験加速器利用において光学レーザーを併用した電子分光実験を実施しており、FELと光学レーザーの併用実験についての基礎技術を獲得してきた。さらに、2013年には本申請の予備的な実験をSACLAにおいて行い、XFELと光学レーザーのタイミングモニターや光学レーザーのポインティングモニターが目的とする測定のために有効に機能することを確認できている。この予備実験において、XFELと光学レーザーとの空間的オーバーラップを有効に得るためのアライメント調整に注意を払う必要があることが分かった。そのため、本研究の実施にあたっては、ピンホールを設けたセリウムYAG結晶を用いた新しいアライメント調整機構を導入した。このアライメント調整機構の準備作業はSACLAでの実験に先立ち大学において周到に行い、主たる実験は、理化学研究所播磨研究所のXFEL施設SACLAを利用して、そこに現有の磁気ボトル型電子分光装置を持ち込んで行った。

4. 研究成果

平成27年度には、原子の内殻空孔からの多段階のオージェ崩壊過程の実時間追跡の要素技術の確立を目指し、X線自由電子レーザー吸収によるNe1s内殻イオン化後のオージェ過程で放出されるオージェ電子の光学レーザー吸収によるサイドバンド生成についての測定を行った。X線エネルギー4.70 keVで観測したNeのオージェ電子スペクトルは、近赤外レーザーの入射により2pbオージェバンドの強度は減少し、高エネルギー側にサイドバンドが観測される。サイドバンドの分布幅は近赤外レーザーパルスの強度に応じて増加し、強度8.3 mJ/pulse (レーザー場強度150 TW/cm²)では、サイドバンドが15 eVにわたって観測された。これは近赤外光子(hν = 1.55 eV)の約10個分に相当する。このサイドバンドの強度を遅延時間の関数として測定することで2つのレーザーパルスの相互相関関数が得られる。得られた相互相関関数はガウス型の形状を示し、このピークからX線自由電子レーザーと近赤外レーザーパルス間の時間遅延原点が決定できる。また最小自乗法による解析から相関関数の半値全幅(FWHM)として2.0(2) psが得られた。すなわち、近赤外レーザーパルスによって生成したオージェ電子のサイドバンドを利用することで、X線自由電子レーザーと外部同期

レーザーの時間原点とタイミングジッターを非破壊で決定できることを実証できた。これにより、2つのレーザーを併用した実時間計測において必須となる実験技術を確立することができた。

平成28年度には、SACLAにおいて新しく共用された軟X線ビームラインBL1の利用し、希ガスの極紫外域イオン化により放出された電子の観測を行った。近赤外レーザーをFELに時間同期して入射することにより、Heの光電子ピークにサイドバンドを形成できることを確認した。この2つのレーザーの時間遅延を変化させることにより、BL1が供給する軟X線FELと光学レーザーのタイミングジッターの決定に成功した。これにより、より典型的な崩壊を示す浅い内殻イオン化後の後続過程を追跡することを視野に入れることができるようになった。まずは、観測が比較的容易であると考えられる数百fs領域のプロセスの観測を行った。具体的には、Xeを41eV程度のFEL光でイオン化し、その多重電離において生成する準安定イオン状態を近赤外レーザーでプローブした。2つのレーザーの遅延時間が数百fs以下としたときには、近赤外レーザーによるイオン化により1eV以下の運動エネルギー領域に新規のピークが観測された。これはXe²⁺コアをもつRydberg状態に帰属することができると考えられ、その寿命を決定することができた。

平成29年度もビームラインBL1を利用して、希ガスのオージェ過程で放出されるオージェ電子にNIRレーザーでサイドバンド形成の観測を継続した。FELの光子エネルギーを67eVとした場合には、NIRレーザー照射により、40eVの場合とは異なる光電子ピークが観測された。これは、Xe4d(J=5/2)内殻正孔崩壊に伴って生成したXe²⁺の準安定状態からのイオン化であるものと考えられる。このとき、時間ゼロ近傍においては内殻正孔崩壊に伴うオージェ電子のスペクトル構造に明瞭な変化が見出された。この結果は多重イオン過程の過渡的变化を示しており、近赤外レーザーによる量子状態操作に起因する可能性が示唆される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

1) “XFELにおける電子-イオンコインシデンス分光法の開拓”, 松田晃孝, 伏谷瑞穂, 遠藤友随, 樋田裕斗, 彦坂泰正, 菱川明栄, SACLA 利用研究成果集 5 (2017) 291-294 [DOI: 10.18957/rr.5.2.291], 2016, 査読有

2) “近赤外強レーザーパルスによるXFELオージェ電子サイドバンド計測”, 伏谷瑞穂, 松田晃孝, 遠藤友随, 樋田裕斗, 菱川明栄,

彦坂泰正, SACLA 利用研究成果集 4 (2016) 344-347 [DOI: 10.18957/rr.4.2.344], 査読有

[学会発表](計4件)

1) “EUV 励起による Xe 多電子ダイナミクスの時間分解光電子計測”, 河辺佳喬, 橋ヶ谷かすみ, 伏谷瑞穂, 松田晃孝, 彦坂泰正, 菱川明栄, 統合物質機構第3回国内シンポジウム, 京都大学, 宇治, 2017年10月30-31日

2) “EUV-NIR time-resolved photoelectron spectroscopy of Xe at SACLA”, Y. Kawabe, K. Hashigaya, M. Fushitani, A. Matsuda, S. Owada, T. Togashi, K. Nakajima, M. Yabashi, Y. Hikosaka, A. Hishikawa, 33rd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Nagoya University, Noyori Conference Hall, Nagoya, June 7-9, 2017

3) “Single-shot photoelectron spectroscopy of nonlinear ionization of He in intense EUV FEL fields”, A. Hishikawa, Y. Hikosaka, M. Fushitani, A. Matsuda, T. Endo, Y. Toida, E. Shigenasa, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (PACIFICHEM 2015), Honolulu, USA, December 15-20, 2015

4) “Ultrafast two-photon Rabi oscillations in excited He driven by femtosecond intense laser fields”, M. Fushitani, C. Liu, A. Matsuda, T. Endo, Y. Toida, Y. Hikosaka, T. Morishita, A. Hishikawa, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (PACIFICHEM 2015), Honolulu, USA, December 15-20, 2015

6. 研究組織

(1) 研究代表者

彦坂 泰正 (Hikosaka, Yasumasa)
富山大学・医学薬学研究部・教授
研究者番号: 00373192

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

菱川 明栄 (Hishikawa, Akiyoshi)
名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・教授
研究者番号: 50262100

伏谷 瑞穂 (Fushitani, Mizuho)
名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・助教
研究者番号: 50446259

松田 晃孝 (Matsuda Akitaka)
名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・助教
研究者番号：10413999