

令和元年9月6日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05016

研究課題名(和文) 多数の励起原子集団での原子間クーロン緩和とカスケード現象

研究課題名(英文) Interatomic coulombic decay and its cascade in the many excited atoms

研究代表者

永谷 清信 (Kiyonobu, Nagaya)

京都大学・理学研究科・助教

研究者番号：30273436

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、近年見出されたクラスター内の多原子の励起状態からの電子緩和過程をはじめとして、励起原子集団が関与するダイナミクスの解明を目指して、主として短波長自由電子レーザー(FEL)を用いた実験的な観測手法の開発を行い、分子や希ガスクラスターなどを標的として研究を行った。強力なX線パルスなどの照射によりクラスター中に励起原子集団を生成し、フェムト秒からピコ秒程度のごく短時間で多体の励起原子間のエネルギー緩和による電子緩和や構造変化が起こることを時分割の電子分光やX線構造解析の手法を用いて明らかにし、その素過程の解明をすすめた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

様々な高強度・短パルスレーザーの開発は、これを用いる研究の高度化にとどまらず、レーザー利用の日常化と技術革新を通して我々の生活に変化をもたらしてきた。物質への強力なレーザー照射によって引き起こされる過程は、物質の高励起状態が関わる複雑な過程であり、その素過程を理解することは新しい非平衡系物理の開拓という意味での基礎的科学として興味深いだけでなく、レーザー利用の高度化にもつながる重要な研究である。理論的な取扱が非自明あるいは困難な場合が現れるため、実験的な知見の蓄積が重要な役割を担っており、将来的には理論研究との協力により理解を深めることができる。

研究成果の概要(英文)：We have studied the dynamics of collective decay of many excited atoms in the clusters/molecules. Clusters/molecules were irradiated by intense laser pulses to produce many excited atoms in the nano-scale space, and electronic and structural changes were traced by time-resolved spectroscopy. We constructed the experimental setup for pump-probe experiments using x-ray free electron laser (FEL) pulses to observe the electronic and structural change in the clusters and molecules with high temporal resolution. We have confirmed the ultrafast dynamics occurring within sub-pico second timescale after the irradiation of intense laser pulses. We revealed the importance of collective decay process for the understanding of the ultrafast dynamics triggered by intense lasers.

研究分野：量子ビーム

キーワード：自由電子レーザー クラスター 原子間クーロン緩和

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年の放射光光源の発展および短波長領域の自由電子レーザー (FEL) の開発により、極紫外から X 線領域の高強度光を用いた新規な状態の生成と観測が可能となっている。申請者は自由電子レーザーを用いたクラスター研究を進める中で、極紫外自由電子レーザーによってネオン・クラスター中の多数の原子を Rydberg 状態に励起することで発現する全く新しい電子緩和機構を見出した。ネオン・クラスターに 3s や 3d などの Rydberg 状態に多数生成すると、励起原子間でのエネルギー交換により励起電子が基底状態の 2p に遷移してイオン化する原子間クーロン緩和 (Interatomic Coulombic Decay: ICD、図 a) が理論的に予想されていた[1]。これを検証するために、申請者らは 5000 原子からなるネオン・クラスターに極紫外自由電子レーザーを照射することで高密度の 3d 励起状態を生成し、電子スペクトルの観測を行った所、当初予想されていた図 a のようなタイプの ICD が観測されず、図 b のように 3p や 3s Rydberg 状態を経由した ICD が主に起こる事が示された。さらに、クラスターは ICD のカスケード (図 c) を経ることで多重イオン化することを実験から見出した。このような過程は物質中に複数の励起原子が生成すれば普遍的に生じると予想され、カスケードを経ることで図 a に示す通常の ICD と比べて多数の ICD 電子が放出される。また、FEL 以外の励起手段、例えば高エネルギー電子線や X 線などの照射によって多数の励起原子が生成されれば、同様な緩和過程により多数の低エネルギー電子を放出し、強い放射線損傷の原因となることが予想される。その素過程の解明は原子分子の物理として興味深く、さらに生体への放射線損傷なども含む、多くの分野に関連した問題である。

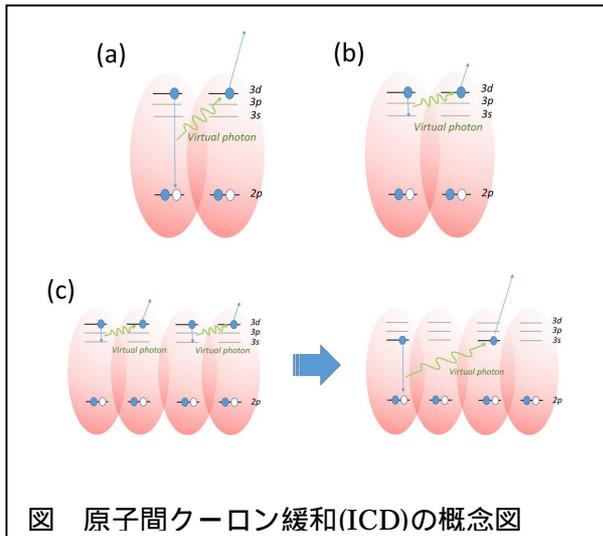


図 原子間クーロン緩和(ICD)の概念図

[1] Kuleff et al., Phys. Rev. Lett. 105, 043004 (2010).

2. 研究の目的

本研究では、上記の新しく見出された多原子の励起状態が関与する電子緩和過程をはじめとして、励起原子集団のダイナミクスについて、実験的な観測手法の開発と素過程の解明を目的とした。短波長自由電子レーザー (FEL) や放射光 X 線を用いてクラスター中に励起原子集団を生成し、イオン・電子スペクトル計測やポンプ-プローブ計測などの時分割計測の手法を用いて、多体の励起原子間のエネルギー緩和の素過程の解明をすすめた。

3. 研究の方法

研究期間を通して、サイズが制御された高強度のクラスタービームを生成可能なクラスター生成装置および FEL と赤外/可視レーザーを用いるポンプ-プローブ計測のための装置と実験手法の開発を進め (発表論文) 日本の FEL 施設である SACLA から得られる高強度 FEL パルスを用いて実験を行った。SACLA では波長が 0.1nm 程度の硬 X 線、10nm 程度の軟 X 線でそれぞれ強力な FEL パルスが利用可能である。いずれの波長でも、施設で整備されたタイミングモニタを利用することで、FEL と赤外/可視レーザーを用いたポンプ-プローブ計測により数十フェムト秒程度の高い時間分解能を得ることが可能である。それぞれの X 線波長で、X 線の特性を活かした測定手法とタイミングモニタを組み合わせた実験装置を構築し、これを用いて短パルスレーザーで誘起される高速現象の観測を実現した。

軟 X 線 FEL では、特に高速な電子緩和過程の観測を目的として、電子・イオン分光とポンプ-プローブ計測を組み合わせ、高時間分解能の分光装置を用いた実験を行った (右図)。これによりクラスターや多原子分子を標的とした時分割イオン・電子分光実験を行った。

硬 X 線 FEL では、短波長を生かして原子スケールの空間分解能を有する X 線回折実験が可能である。従来の電子・イオンの計測手法に加え、時分割で X 線回折を行う手法の開発を進めた。これらを用いて、短パルスレーザーによる強い試料損傷について電子・イオン計測から情報を得るとともに、試料損傷時の構造変化の詳細を測定し、その関係について解明を進めた。

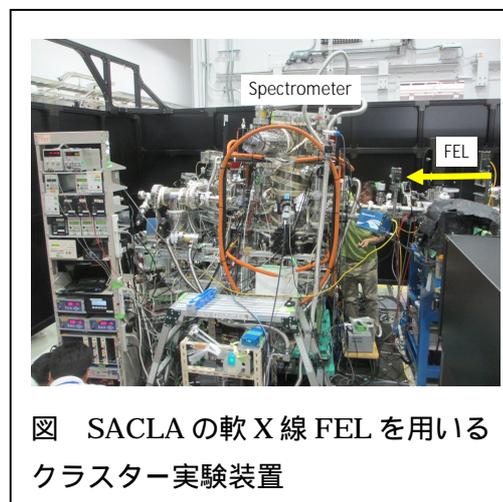


図 SACLA の軟 X 線 FEL を用いるクラスター実験装置

4. 研究成果

FEL と赤外レーザーを用いてフェムト秒の時間分解能でのポンプ-プローブ計測を行い、希ガスクラスターや多原子分子を試料とした実験を行った。主な成果を以下に列記する。

(1) 波長が6keV程度の硬X線FELと赤外レーザーを用いて時分割のイオン分光実験を実施した。FELパルスをクラスターに照射することでナノプラズマと呼ばれるナノメートルスケールの高密度なイオンと電子の集団を生成し、ポンプ-プローブ計測によりイオンごとの生成量を数十フェムト秒程度の高い時間分解能で観測し、ナノプラズマの生成過程を詳細に観測することに成功した。XFELと赤外レーザーとの遅延時間に対して、生成イオンスペクトルに観測されたイオン種ごとに顕著な違いが見られた(右図)。XFEL照射後1ピコ秒以下の生成初期過程においてFELによって生成した多数の励起状態が共同的な電子緩和を起しイオン化が促進されていることが実験と理論計算との比較等から示唆されるとともに、そのダイナミクスについて明らかにした(発表論文)。

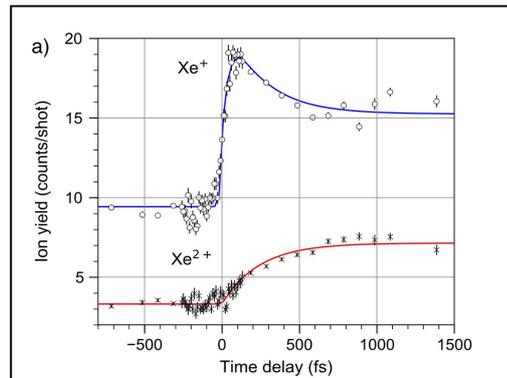


図 クラスターから生成した Xe^+ 、 Xe^{2+} イオンの収量の遅延時間依存性。発表論文 より転載。

(2) 波長が100eV程度の軟X線FELパルスを用いた実験で、電子分光を用いてキセノンのクラスターへのFEL照射によって生成するナノプラズマの生成過程を観測した。系統的にFELの強度を変化させて電子スペクトルを測定し、ナノプラズマ生成に伴う熱電子放出があるFEL強度から顕著になることを見出した。さらにナノプラズマ生成を示す電子スペクトルの詳細な検討を進め、ナノプラズマ生成から膨張・崩壊過程にいたる一連の過程のダイナミクスに関する情報を得た。特に、ナノプラズマ膨張に伴うイオンと電子の再結合が多数の励起原子を生成し、それらが共同的な電子緩和を引き起こすことが実験結果から示唆されている。更に詳細なダイナミクスの解明を目指し、構築した時分割光電子分光の実験装置を用いた計測を進めている。

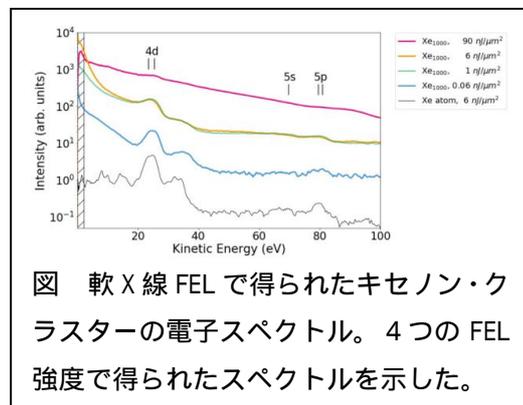


図 軟X線FELで得られたキセノン・クラスターの電子スペクトル。4つのFEL強度で得られたスペクトルを示した。

共同研究グループと共に、少数原子系の参照モデルとして多原子分子を標的とした実験も実施し、時分割計測を通して、レーザー照射による分子反応や分子解離などのダイナミクス解明を進めた(発表論文)。

5. 主な発表論文等

(研究代表者は下線)

[雑誌論文](計 6 件)

E. Kukk, H. Myllynen, K. Nagaya, S. Wada, J. D. Bozek, T. Takanashi, D. You, A. Niozu, K. Kooser, T. Gaumnitz, E. Pelimanni, M. Berholts, S. Granroth, N. Yokono, H. Fukuzawa, C. Miron, and K. Ueda, Coulomb implosion of tetrabromothiophene observed under multiphoton ionization by free-electron-laser soft-x-ray pulses, Phys. Rev. A, 99, 023411 (2019), 査読有。

Y. Kumagai, H. Fukuzawa, K. Motomura, D. Iablonskyi, K. Nagaya, S. Wada, Y. Ito, T. Takanashi, Y. Sakakibara, D. You, T. Nishiyama, K. Asa, Y. Sato, T. Umemoto, K. Kariyazono, E. Kukk, K. Kooser, C. Nicolas, C. Miron, T. Asavei, L. Neagu, M. Schöffler, G. Kastirke, X.-J. Liu, S. Owada, T. Katayama, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, N. V. Golubev, K. Gokhberg, L. S. Cederbaum, A. I. Kuleff, and K. Ueda, Following the birth of a nanoplasma produced by an ultrabrief hard-x-ray laser in xenon clusters, Phys. Rev. Phys. Rev. X 8, 031034 (2018), 査読有。

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.8.031034>

Yoshiaki Kumagai, Zoltan Jurek, Weiqing Xu, Hironobu Fukuzawa, Koji Motomura, Denys Iablonskyi, Kiyonobu Nagaya, Shin-ichi Wada, Subhendu Mondal, Tetsuya Tachibana, Yuta Ito, Tsukasa Sakai, Kenji Matsunami, Toshiyuki Nishiyama, Takayuki Umemoto, Christophe

Nicolas, Catalin Miron, Tadashi Togashi, Kanade Ogawa, Shigeki Owada, Kensuke Tono, Makina Yabashi, Sang-Kil Son, Beata Ziaja, Robin Santra, and Kiyoshi Ueda, Radiation-induced chemical dynamics in Ar clusters exposed to strong x-ray pulses, Phys. Rev. Lett. 120, (2018), 223201, 査読有.

Hiroobu Fukuzawa, Kiyonobu Nagaya, Kiyoshi Ueda, Advances in instrumentation for gas-phase spectroscopy and diffraction with short-wavelength free electron lasers, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 907, (2018), 116-131, 査読有,
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.03.017>

D. You, H. Fukuzawa, Y. Sakakibara, T. Takanashi, Y. Ito, G. Maliyar, K. Motomura, K. Nagaya, T. Nishiyama, K. Asa, Y. Sato, N. Saito, M. Oura, M. Schoffler, G. Kastirke, U. Hergenbahn, V. Stumpf, K. Gohkberg, A. I. Kuleff, L. S. Cederbaum, & K. Ueda, Charge transfer to ground state ions produces free electrons, Nat. Comm., 8, Article number: 14277 (2017) 査読有, doi:10.1038/ncomms14277.

K. Nagaya, K. Motomura, E. Kukk, H. Fukuzawa, S. Wada, T. Tachibana, Y. Ito, S. Mondal, T. Sakai, K. Matsunami, R. Koga, S. Ohmura, Y. Takahashi, M. Kanno, A. Rudenko, C. Nicolas, X.-J. Liu, Y. Zhang, J. Chen, M. Anand, Y. H. Jiang, D.-E. Kim, K. Tono, M. Yabashi, H. Kono, C. Miron, M. Yao, and K. Ueda, Ultrafast Dynamics of a Nucleobase Analogue Illuminated by a Short Intense X-ray Free Electron Laser Pulse, Phys. Rev. X, 6, 021035 (2016).

〔学会発表〕(計 5 件)

Kiyonobu Nagaya, Tracing the laser induced ultrafast destruction of giant Xe clusters by time resolved x-ray diffraction measurements, Conference on Laser Synchrotron Radiation Combination Experiment (LSC 2018) (招待講演)(国際学会) 2018 年

Kiyonobu Nagaya, Ultrafast dynamics of atomic clusters proved by XFEL, 30th International Conference on Photonic Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC XXX) (招待講演)(国際学会) 2017 年

Kiyonobu Nagaya, Ultrafast structure change of laser induced nano-plasma traced by time-resolved x-ray diffraction, 14th International Conference on Multiphoton processes (招待講演)(国際学会) 2017 年

Kiyonobu Nagaya, Dynamics in XFEL induced nano-plasma, Physical Chemistry Colloquium 2017@Sendai (口頭発表)(国際学会) 2017 年

Kiyonobu Nagaya, Ultrafast charge and nuclear dynamics of XFEL irradiated 5-iodouracil molecule studied by ion momentum spectroscopy combined with numerical simulations, 39th International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics (VUVX2016) (ポスター発表)(国際学会) 2017 年

6 . 研究組織

該当なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。