

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03430

研究課題名（和文）短波長高強度レーザー場での多光子多重イオン化メカニズム

研究課題名（英文）Multi-photon multiple ionization mechanism in short-wavelength intense laser field

研究代表者

彦坂 泰正（Hikosaka, Yasumasa）

富山大学・学術研究部教養教育学系・教授

研究者番号：00373192

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、磁気ボトル型電子エネルギー分析器を利用した電子エネルギー分光によって、軟X線領域の多光子吸収過程についての理解を進展させることを目的とした。高開口率型のマイクロチャンネルプレートを検出器として新たに導入することにより、同時計測効率の大幅な向上を図った。電子検出効率を高めた磁気ボトル型電子エネルギー分析器を用い、Kr原子の非線形イオン化過程の観測を行い、内殻軌道間遷移が関与する多光子過程を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

極紫外からX線領域の自由電子レーザーの登場を契機として、短波長高強度レーザー場と物質との相互作用についての新たな光科学のフロンティアが拓かれた。そこでは、生体分子イメージングや光スイッチ、高密度低温プラズマなどへの応用も視野に入れ、非線形光学現象の理解が焦点となってきている。その基礎的な理解を深めるためには、最もシンプルな物質群である孤立系原子・分子の非線形光学応答が格好の対象となる。本研究では、クリプトン原子の軟X線領域の非線形イオン化過程について調査し、内殻軌道間遷移が関与する新しい多光子過程を見出した。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to advance our understanding of multiphoton absorption processes in the soft X-ray region by electron energy spectroscopy using a magnetic bottle-type electron spectrometer. A new microchannel plate of a high aperture ratio was introduced into the spectrometer to significantly improve the efficiency of coincidence measurements. Using the magnetic-bottle electron energy analyzer with improved detection efficiency, we observed a nonlinear ionization process of Kr atoms in the soft-x ray region, in which a multiphoton process associated with core-to-core transitions.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：自由電子レーザー 同時計測

### 1. 研究開始当初の背景

極紫外から X 線域の自由電子レーザー (FEL) の登場を契機として、短波長高強度レーザー場と物質との相互作用についての新たな光学のフロンティアが拓かれた。そこでは、生体分子イメージングや光スイッチ、高密度低温プラズマなどへの応用も視野に入れ、非線形光学現象の理解が焦点となってきている。その基礎的な理解を深めるためには、最もシンプルな物質群である孤立系原子・分子の非線形光学応答が格好の対象となる。これまでの原子・分子に対する研究によって、フェムト秒の FEL パルス中で起こる摂動的な多段階の光子吸収の描像で非線形光学応答が解釈されることが分かってきた。この多光子吸収では、場合によっては内殻軌道の電子までも含む複数の電子が加担し、多重イオン化が極めて容易に起こる。そこでは、内殻空孔崩壊と拮抗した光吸収や通常の線形吸収では現れない共鳴等が関与し、多彩なプロセスの競合が見られると期待される。そのような FEL による多重イオン化のメカニズムに対して、高効率の電子捕集技術を利用した磁気ボトル型の電子エネルギー分析技術を用いた電子分光は有力な手法の一つである [PRL **105** (2010) 133001; PRL **107** (2011) 243003; Nat. Photonics **10** (2016) 102]。さらに、その磁気ボトル型電子エネルギー分析器を利用した多電子・イオン同時計測法によって、個々の多重イオン化過程を分離し、その多光子吸収経路を明らかにできるようになってきた [PRL **124** (2020) 193201]。

### 2. 研究の目的

本研究は、磁気ボトル型電子エネルギー分析器を利用した電子エネルギー分光によって、軟 X 線領域の多光子吸収過程についての理解を進展させることを目的とした。さらに、その電子エネルギー分光に光学レーザーの併用をした新たな実験スキームを構築することを視野に入れた装置開発も企画した。光学レーザーによって中間生成する電子状態からの光イオン化を起こし、それによって放出される電子の運動エネルギーを観測することができれば、各光吸収経路に関わる電子状態を直接的に決定できる。そのような多重イオン化メカニズムの理解をこれまでよりも格段に深めることができる新規実験に対する装置・手法開発も本研究の目的とした。

### 3. 研究の方法

磁気ボトル型電子エネルギー分析では、永久磁石とソレノイドコイルによりイオン化領域周辺に形成された不均一磁場によって、光イオン化で放出された電子は全立体角にわたって捕集される。そのため、磁気ボトル型電子エネルギー分析での電子検出効率は、検出器 (マイクロチャンネルプレート) の検出感度によってほぼ決定されることになる。マイクロチャンネルプレートの検出感度は検出面の細孔の開口率が上限となるが、通常のものでは開口率は 60% 程度である。本研究において、浜松ホトニクス社が開発した高開口率型のマイクロチャンネルプレートを検出器として新たに導入することにより、同時計測効率の大幅な向上を図った。分子科学研究所の放射光施設 UVSOR の軟 X 線ビームライン BL4B において希ガスの多電子・イオン同時計測を実施し、検出効率の向上を確認した。その電子検出効率を高めた磁気ボトル型電子エネルギー分析に基づき、理化学研究所の FEL 施設 SACLA において共用されている軟 X 線自由電子レーザー-BL1 を利用した軟 X 線域の多光子吸収過程の研究を行った。

### 4. 研究成果

開口率 90% のマイクロチャンネルプレートを導入した磁気ボトル型電子エネルギー器を用い、Xe 原子の 3d 内殻イオン化と後続する 4 重オージェ崩壊で放出される 3d 光電子、4 つのオージェ電子、Xe<sup>5+</sup> イオンの 6 重同時計測を行った。図 1 は 6 重同時計測によって得られた 4 重オージェ崩壊の後段で放出される 2 つのオージェ電子のエネルギー相関である。検出効率の向上により、このような高次の同時計測についても十分な統計で計測可能であることが示された。この測定によって見積もられる電子の検出効率は 70% 程度、Xe<sup>5+</sup> イオンの検出効率は 80% 程度であった。開口率 90% から期待される検出効率には達していないものの、従来の検出器よりもより効率的な同時計測を実施できることを確認できた。

電子検出効率を高めた磁気ボトル型電子エネルギー分析器を用い、Kr 原子の非線形イオン化過程の観測を行った。光子エネルギー 120eV の軟 X 線 FEL を集光して Kr に照射した。光強度が  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> 程度 のとき、4 価までの Kr イ

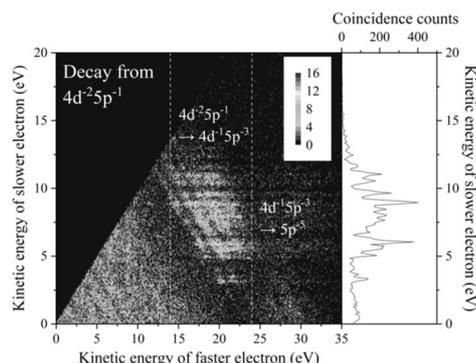


図 1 6 重同時計測によって得られた Xe<sup>+</sup> 3d<sup>-1</sup> 状態の 4 重オージェ崩壊の後段で放出される 2 つのオージェ電子のエネルギー相関図。

オンの生成が観測された。このうち、3 価の Kr イオンとの同時計測で指標した電子スペクトルを抽出したところ、Kr の 4p 光イオン化で生じる光電子ピークに加え、80 eV 付近に 1 光子イオン化では生成し得ないピークを見出した。そのエネルギーは 3p 内殻空孔崩壊によって生じるオージェ電子と一致する。その電子ピークの FEL 強度依存性 FEL の光強度に対して 2 次の依存性を示した。また、FEL 波長を変化させたところ、3d-3p 準位間のエネルギー差に相当する 120.6 eV で最大の信号強度を示した。このことから、Kr 原子の非線形イオン化過程において、1 光子目の光吸収で 3d 空孔状態が生成した後、2 光子目の光吸収で 3d-3p 内殻軌道間の共鳴遷移が起きているものと解釈できる。このような内殻軌道間の光遷移の非線形イオン化への直接的な関与が見出だされたのは初めてである。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Mizuho Fushitani, Makoto Yamada, Hikaru Fujise, Shigeki Owada, Tadashi Togashi, Kyo Nakajima, Makina Yabashi, Akitaka Matsuda, Yasumasa Hikosaka, and Akiyoshi Hishikawa	4. 巻 107
2. 論文標題 Capturing transient core-to-core resonances in Kr in intense extreme-ultraviolet laser fields by electron-ion coincidence spectroscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 L021101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.107.L021101	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yasumasa Hikosaka	4. 巻 106
2. 論文標題 Sequential quadruple Auger decay pathways from the Xe 4s core-hole state	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 62814
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.106.062814	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yasumasa Hikosaka and Stephan Fritzsche	4. 巻 24
2. 論文標題 Coster-Kronig and super Coster-Kronig transitions from the Xe 4s core-hole state	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 17535-17541
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CP02149H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Yasumasa Hikosaka	4. 巻 255
2. 論文標題 Multi-electron-ion coincidence spectrometer with a high-efficiency microchannel plate detector	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena	6. 最初と最後の頁 147158
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elspec.2022.147158	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Y. Hikosaka
2. 発表標題 Efficient Multi-Electron - Ion Coincidence Spectroscopy with a Magnetic Bottle Electron Spectrometer
3. 学会等名 International Workshop on Photoionization (IWP) and Resonant Inelastic X-ray Scattering (RIXS) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伏谷瑞穂, 山田誠, 藤瀬光香, 大和田成起, 富樫格, 中嶋享, 矢橋牧名, 松田晃孝, 彦坂泰正, 菱川明栄
2. 発表標題 極紫外自由電子レーザー場中Kr原子の共鳴内殻軌道間遷移の観測
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第43回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 彦坂泰正
2. 発表標題 多電子-イオン同時計測によるXe4s空孔状態の多重オーージェ崩壊の研究
3. 学会等名 第36回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伏谷瑞穂, 小泉舜矢, 田口直人, 山田誠, 藤瀬光香, 大和田成起, 富樫格, 中嶋享, 矢橋牧名, 松田晃孝, 彦坂泰正, 菱川明栄
2. 発表標題 電子-イオンコインシデンス計測によるKr原子の極紫外非線形内殻イオン化過程の観測
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 彦坂泰正
2. 発表標題 磁気ボトル型電子分析器を用いた高効率な多電子-イオン同時計測
3. 学会等名 原子衝突学会第46回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 彦坂泰正
2. 発表標題 磁気ボトル型電子分析器を用いた高効率な多電子-イオン同時計測
3. 学会等名 日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	菱川 明栄  (Hishikawa Akiyoshi)  (50262100)	名古屋大学・物質科学国際研究センター・教授    (13901)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------