

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 1 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540425

研究課題名(和文) 極端紫外域強レーザー場における原子や分子の多重電離の研究

研究課題名(英文) Multi-ionization of atoms and molecules in intense short-wavelength laser fields

研究代表者

彦坂 泰正 (Hikosaka, Yasumasa)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：00373192

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、短波長強レーザー場における原子の多光子吸収過程を光電子計測により明らかにすることを目的とした。磁気ミラー効果を利用した超高効率の光電子分析技術である「磁気ボトル型電子分光技術」を利用することにより、大尖頭出力かつ短波長の自由電子レーザーを光源とする光電子分光に特有な問題を解決した。この手法の利用により、アルゴン原子の3光子吸収による2重イオン化過程について、幅広い波長領域で観測し、異なる共鳴状態の関与を明らかにすることができた。ここでは、中間状態への共鳴に加え、自動イオン化状態への2光子遷移も見出すことができた。

研究成果の概要(英文)：Multi-photon absorption processes of atoms in intense short-wavelength laser fields has been studied by photoelectron spectroscopy. We have applied the magnetic bottle electron spectroscopic method, to achieve effective photoelectron spectroscopic researches with light sources of ultra intense and high photon energy. We have studied the three-photon double ionization of Ar in intense extreme ultraviolet free-electron laser fields over a photon energy range of 19.6-22.0 eV. It is found that the double ionization to Ar²⁺ proceeds sequentially via the formation of singly charged Ar⁺ states and is enhanced around photon energies of 20.5 and 21.5 eV. Two types of resonances are identified in the two-photon ionization of the Ar⁺ states: (i) resonances to intermediate states at the one-photon energy level and (ii) those to autoionizing states above the Ar²⁺ ionization threshold.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：原子分子物理学

1. 研究開始当初の背景

近年の短波長域の自由電子レーザーの登場により、短波長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。そこで最も典型的な原子分子の非線形光学応答は、多光子吸収による多重電離である。しかし、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、短波長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容易ではない。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も予想されており、短波長強レーザー場における原子や分子の多光子吸収過程は大きな関心を集めている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、短波長強レーザー場における原子の多光子吸収過程を光電子計測により明らかにすることである。特に、多光子吸収における中間状態への共鳴に焦点を当て、(1)その共鳴状態や共鳴機構の理解と(2)光学レーザーの併用による多光子吸収経路の操作、を目指した。

3. 研究の方法

短波長強レーザー場におかれた原子や分子が起こす多光子吸収による多重電離過程の認識自体は、この過程により生成したイオンを検出することにより比較的簡便に行うことができる。そのため、これまでの多くの実験はイオン検出に基づくものである。ここでは、生成したイオンの価数やそのレーザー強度依存によって多重電離に関わる光子数が推定でき、そこから多重電離のメカニズムが推論されている。さらにより高度には、光電子放出の反跳によって得るイオンの運動量を観測することにより、その多光子多重電離における多電子の放出が逐次的か非逐次的かを識別することが可能である。しかしながら、このようなイオン検出による多重電離のメカニズムについての議論は任意性が強く、また多重電離の中間状態または終状態の電子状態についての情報は乏しい。一方、光電子分光を利用すれば、多光子多重電離過程についてより詳細な情報を引き出すことができる。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や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、そのいずれ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自由電子レーザーを光源とする光電子分光では、次の特有な問題が生じるためである：(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めて多くの電子が容易に発生し、それによるバックグラウンドが深刻となる。

研究者らの開発してきた磁気ミラー効果を利用した超高効率の光電子分析技術である「磁気ボトル型電子分光技術」を利用することにより、これらの問題を克服することができる。この手法では、強力な永久磁石とそれに対向するソレノイドコイルにより自由電子レーザー光の集光点付近に不均一磁場を形成し、これによりサンプルガスの光電離によって放出された全ての電子を全立体角にわたって捕集することができる。この極めて高い電子捕集効率によって、空間電荷効果の影響が顕著でないような低い光電離イベントレートで光電子分光を実施することが可能となる。また、自由電子レーザー光の集光点とは異なった位置から発生したバックグラウンド電子は検出器への有効な軌跡を描けないため、バックグラウンドが極めて抑制される。これらの自由電子レーザー利用の光電子分光に生じる問題点の克服に加えて、この手法の極めて高い検出効率を利用して、自己増幅自発放射モードの自由電子レーザーの宿命であるスペクトルのばらつきをレーザーショットごとにモニターすることに成功した。この自由電子レーザーショット毎のスペクトルのモニターにより、これまでは観測を鈍らせる原因であった自由電子レーザーパルスの波長ゆらぎを、自由電子レーザー波長を精細に掃引する手段として利用することが可能となった。

4. 研究成果

平成24年度には、希ガスの多光子多重電離に対する光電子分光実験を実施した。理化学研究所の極端紫外自由電子レーザーをサンプルガスに集光し、多光子多重電離を引き起こす。光電子分光装置は、磁気ミラー効果を利用した超高効率の光電子分析技術である「磁気ボトル型電子分光技術」を導入した。この分析技術の導入により、短波長の自由電子レーザーを光源とした光電子分光に特有な種々の問題を克服し、多光子多重電離過程についてより詳細な情報を引き出すことが可能となった。特に、この技術による極めて高い検出効率を活かし、自由電子レーザーのショット毎に光電子計測を行った。これにより、自己増幅自発放射モードの自由電子レ

ザーの宿命であるスペクトルのばらつきを検出することが可能となっている。これにより、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できる。この磁気ボトル型光電子分析器を用いた光電子分光をアルゴン原子の3光子吸収による2重イオン化過程に適用した。この過程ではアルゴンの1価イオンの励起状態への共鳴が関与していることが、我々の研究により明らかにされている。今回、この過程をより幅広い波長領域で観測し、異なる共鳴状態の関与を明らかにすることができた。ここでは、中間状態への共鳴に加え、自動イオン化状態への2光子遷移も見出すことができた。

平成25年度には、理化学研究所のX線自由電子レーザーを利用し、X線領域の希ガスの多光子多重電離に対する光電子分光実験を実施した。キセノンに5 keV程度のX線パルスを集光したところ、多光子吸収による多価イオン生成に対応すると考えられるスペクトル構造を見出した。さらに、その多光子吸収を引き起こしているイオン状態についての詳細な情報をえるために、電子-イオンコインシデンス計測を試行した。レーザー場強度が10W/cm²以下の条件下での測定に対しては、良好なコインシデンス信号を観測することができ、この実験によって初めてX線自由電子レーザーで電子-イオンコインシデンス計測が可能であることを実証できた。

平成26年度も引き続き、理化学研究所のX線自由電子レーザーを利用し、希ガスの多光子イオン化過程に関する実験研究を行った。特に、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の観測により、原子の内殻空孔の多段階のオージェ崩壊過程を実時間で追跡することを目指した。磁気ボトル型電子分光器に導入したリターディング機構によって、Ne1s オージェ電子を十分に高分解能で観測できることを確認した。また、自由電子レーザーと光学レーザーとのタイミングのモニターや光学レーザーのポインティングモニターが、目的の測定のために有効に機能することを確認することができた。しかしながら、自由電子レーザーと光学レーザーとの空間的オーバーラップを十分に得ることができなかったため、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の観測には至らなかった。ただし、空間的オーバーラップを除く、その他の必要な実験技術はほぼ確立できたと考えており、原子の内殻空孔の多段階のオージェ崩壊過程の実時間追跡の達成に対する目算が立った。

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7件)

1) “Five-photon sequential double ionization of He in intense extreme-ultraviolet free-electron laser fields”

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, 90, 053403 (2014) (5 pages). 査読有

2) “Nonresonant EUV-UV two-color two-photon ionization of He studied by single-shot photoelectron spectroscopy”

M. Fushitani, Y. Hikosaka, A. Matsuda, T. Endo, E. Shigemasa, M. Nagasono, T. Sato, T. Togashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, and A. Hishikawa, Physical Review A, 88, 063422 (2013) (6 pages). 査読有

3) “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) (6 pages). 査読有

4) “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 68, 794-801 (2013). 査読有

5) “Progress in Ultrafast Intense Laser Science: Volume IX (Springer Series in Chemical Physics / Progress in Ultrafast Intense Laser Science)”, eds. Kaoru Yamanouchi and Katsumi Midorikawa, Springer, (2013), ISBN 3642350518, Chap. 9 (pp. 151-164), “Shot-by-Shot Photoelectron Spectroscopy of Rare Gas Atoms in Ultrashort Intense EUV Free-Electron Laser Fields”, Mizuho Fushitani, Yasumasa Hikosaka, Akitaka Matsuda, Eiji Shigemasa and Akiyoshi Hishikawa, 査読有

6) “Ultrafast Nonlinear Double Excitations of He in Intense EUV 自由電子レーザー Fields”, M. Fushitani, Y. Hikosaka, A. Matsuda, C.-N. Liu, T. Morishita, E. Shigemasa, and A. Hishikawa, EPJ Web of Conferences 41, 02009 (2013) (3 pages). 査読有

7) “短波長自由電子レーザーによる原子分子

光物理 第二回 極紫外自由電子レーザー場における原子のシングルショット光電子分光 “, 彦坂泰正, 伏谷瑞穂, 菱川明栄, しょうとつ 9, 5-10 (2012). 査読有

〔学会発表〕(計 9 件)

1) “近赤外強レーザー場における He 原子の超高速 2 光子ラビ振動過程”, 伏谷瑞穂, Liu Chien-Nan, 松田晃孝, 遠藤友随, 樋田裕斗, 永園充, 富樫格, 彦坂泰正, 森下亨, 菱川明栄, 第 8 回分子科学討論会 2014, 広島大学, 東広島, 2014 年 9 月 21 日-24 日

2) “Two-photon rabi oscillations of excited He atoms in ultrafast strong laser field ionization”, M. Fushitani, C. Liu, A. Matsuda, T. Endo, Y. Toida, Y. Hikosaka, M. Nagasono, T. Togashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Morishita, A. Hishikawa, 19th International Conference on Ultrafast Phenomena (UP2014) Okinawa, Japan, July 7-11, 2014

3) “Determination of absolute cross-sections of nonresonant EUV-UV two-color two-photon ionization of He”, M. Fushitani, Y. Hikosaka, A. Matsuda, T. Endo, E. Shigemasa, M. Nagasono, T. Sato, T. Togashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, A. Hishikawa, 19th International Conference on Ultrafast Phenomena (UP2014), Okinawa, Japan, July 7-11, 2014

4) “He 原子の非共鳴 EUV-UV2 色 2 光子イオン化”, 伏谷瑞穂, 彦坂泰正, 松田晃孝, 遠藤友随, 繁政英治, 永園充, 佐藤堯洋, 富樫格, 菱川明栄, 日本物理学会第 6 9 回年次大会, 東海大学, 平塚, 2014 年 3 月 27 日-30 日

5) “シングルショット光電子分光による Ar 原子の 3 光子 2 重イオン化の研究”, 彦坂泰正, 伏谷瑞穂, 松田晃孝, 遠藤友随, 樋田裕斗, 繁政英治, 菱川明栄, 第 27 回日本放射光学学会年会, 広島国際会議場, 広島, 2014 年 1 月 11 日-13 日

6) “偏極 He(21P)原子の多光子イオン化過程における偏光依存性”, 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 2013 年 秋季大会, 徳島大学, 徳島, 2013 年 9 月 25 日-28 日

7) “偏極 He 原子の強レーザー場イオン化におけるコヒーレント 2 光子共鳴過程の観測”, 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, 第 7 回分子科学討論会 2013, 京都テル

サ, 京都, 2013 年 9 月 24 日-27 日

8) “強レーザー場中偏極 He(21P)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 6 8 回年次大会, 広島大学, 東広島, 2013 年 3 月 26 日-29 日

9) “Ultrafast Nonlinear Double Excitations of He in Intense EUV 自由電子レーザー 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

6. 研究組織

(1)研究代表者

彦坂 泰正 (Hikosaka, Yasumasa)
新潟大学 / 自然科学系 / 准教授
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