

論文内容の要旨

論文題目 **Multiphoton ionization of atoms and molecules by EUV free electron laser
and generation of intense full coherent-EUV light**

(EUV 自由電子レーザーによる原子・分子の多光子イオン化および
高強度フルコヒーレント EUV 光の発生)

氏名 佐藤 堯洋

I. 序

高強度短パルス光源の発展により、高強度レーザーによって生成される強光子場の波長領域は紫外~赤外領域に拡張されており、原子分子の多光子イオン化、トンネルイオン化、分子配向や分子構造変形など強光子場中において顕著な現象が報告されてきた。近年におけるレーザー高次高調波(HHG; High Harmonic Generation)の急速な発展と、EUV 領域に発振波長をもつ SASE(Self Amplified Spontaneous Emission)方式の自由電子レーザー(FEL ;Free Electron Laser)の登場によって、その研究対象は、より短波長領域である極端紫外(EUV ; Extreme Ultraviolet)から軟 X 線領域へと広がりつつある。EUV 領域における光子エネルギーによって、原子分子の光イオン化や、電子励起状態、分子における解離性ポテンシャルへの励起を誘起する。その様な EUV 領域において、HHG を用いた光イオン化計測では、直接 2 光子イオン化や直接 2 光子 2 重イオン化に代表される中間状態を経由しない 2 光子過程が支配的であることが示された。一方で、パルス幅が 15~300 fs と比較的長い FEL においては、逐次的な多光子過程によって、 Ar^{7+} や Xe^{21+} 等の多価イオンが生成されることが報告されている。本研究では、高強度 EUV-FEL である SCSS(SPring-8 Compact SASE Source)試験加速器を用いて、光イオン化計測を窒素分子およびメタノール、エタノールに適用し、飛行時間型質量分析器(TOF-MS)を用いて、多光子イオン化過程と、解離過程の解明を試みた。さらに、He の 2 光子イオン化を SCSS の波長可変性を利用して観測し、イオン化断面積の波長、ならびに強度依存性について明らかにした。また、強光子場科学への応用において

SASE方式の課題である時間コヒーレンスの欠如を解決するため、HHGシード光源として、SCSS試験加速器のシード光増幅実験を行い、フルコヒーレントEUV光の発生に成功した。

II. 高強度極端紫外光による原子分子の多光子イオン化

II.1 窒素分子の光イオン化

窒素分子にEUV-FELを集光照射したところ、図1に示すTOF質量スペクトルが得られた。 $m/z=28$ は親分子イオン、 $m/z=14$ はセンターおよび両サイドのピークから構成され、HHGによる報告例とは異なった運動量放出分布を示した。センターのピークは $N_2 \rightarrow N_2^{2+}$ あるいは $N_2 \rightarrow N_2^+ \rightarrow N^+ + N$ によって生成したと帰属した。一方、サイドピークはクーロン爆発を伴う2重イオン化を経由した $N_2 \rightarrow N_2^{2+} \rightarrow N^+ + N^+$ 、あるいは ~ 7 eVの運動エネルギー放出を伴う解離性ポテンシャルを経由した $N_2 \rightarrow N_2^+ \rightarrow N^+ + N$ の可能性がある。窒素分子のイオン化ポテンシャルや解離性のポテンシャルを考慮すると、2重イオン化による2価イオン生成、もしくは高い運動エネルギー放出を伴う解離性の励起状態の親イオンを生成するためには、2光子以上の吸収が必要である。さらに、得られた N^+ の収量について、強度依存性を調べたところ、2.2次を示し、これらの過程が2光子以上が吸収された結果、誘起されていることが明らかとなった。さらに、 $m/z=7$ には、本実験で用いたFELの強度と同等の集光強度を持つHHGの照射実験では観測されなかった2価のフラグメントイオンである N^{2+} が観測され、窒素分子が3光子以上を吸収することによって多重イオン化した後、解離したことが明らかとなった。

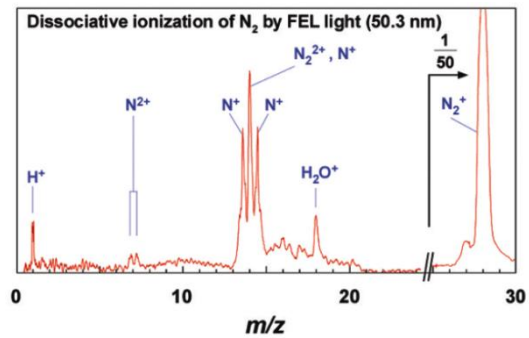


図1: 窒素分子の光イオン化質量スペクトル

II.2 メタノール、エタノールの光イオン化

メタノールを51 nmおよび61 nmのFEL光によって光イオン化した。C-O結合の解離を伴う $m/z=10\sim 22$ の質量スペクトルを図2に示す。1光子過程によって生成した、親分子イオンや解離イオンのピークに加えて、2光子吸収以上が生成に必要な、多価イオン種のピークである $CHOH^{2+}$ 、逐次的にHが脱離した $CH_n^+(n=0\sim 1)$ のピークが観測された。

さらに、 H_3O^+ が観測された。 H_3O^+ が生成するためには、メチル基側からHが2個OH基側に移動する必要がある。この水素移動を確認するため、メチル基の水素を重水素置換した CD_3OH を光イオ

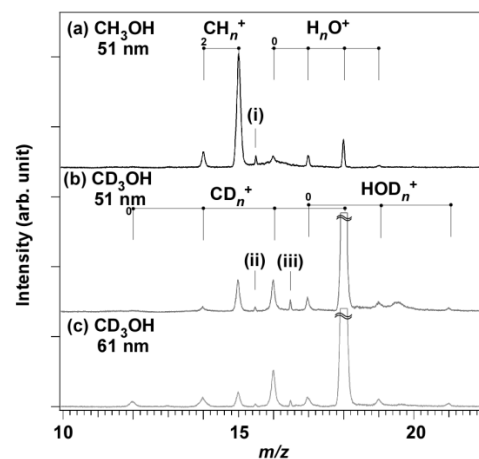


図2: メタノールにEUV光を照射して得られた光イオン化質量スペクトル ($m/z=10\sim 22$) (a) CH_3OH , (b) CD_3OH (波長51 nm), (c) CD_3OH (波長61 nm)

ン化したところ、 D_2OH^+ が観測された。このことからメチル基側から OH 基に水素が移動する分子内水素マイグレーションが誘起されたことが明らかとなった。また、エタノールを EUV-FEL で光イオン化したところ、メタノールの場合と同様に、1 光子吸収によって生成したイオン種に加えて、2 光子以上の吸収が必要である $C_2H_2OH^{2+}$ 、2 価以上のイオンに生じたクーロン爆発に起因するサイドピークを伴った CH_3^+ 、 CH_2^+ さらに逐次的に H が脱離した CH^{n+} ($n=0\sim 1$) のピークが観測された。

II. 3 He 原子の 2 光子イオン化と 2 光子イオン化断面積の波長・強度依存性

He と H_2 の混合ガス(97:3)に、EUV-FEL 光を集光照射した。本実験では FEL の波長を 61.4 nm、58.4 nm、56.0 nm、53.4 nm に変化させ、多光子イオン化の波長依存性の観測を行った。その結果、 H_2^+ の収量が FEL の波長に対して、単調な減少を示したのに対して、 He^+ の収量は波長 58.4 nm において大幅に増加した。これは $1s^2 \rightarrow 1s2p$ の共鳴を経由した増強効果によるためである。また、それぞれの波長におけるイオン収量の強度依存性は非共鳴領域において、2 次の非線形性を示すのに対して、共鳴領域では 0.8~1.1 次を示した。さらに、本実験では、1 光子イオン化断面積が既知である H_2 を He に混合することによって、He の 2 光子イオン化断面積の波長依存性を決定した。その結果、図 3 に示す様に、共鳴領域あるいはその近傍である波長 58.4 nm および 53.4 nm では、非共鳴領域である 61.4 nm と 56 nm と比較して、2 光子イオン化断面積の値が、強度に対して大きな減少傾向を示すことが明らかとなった。

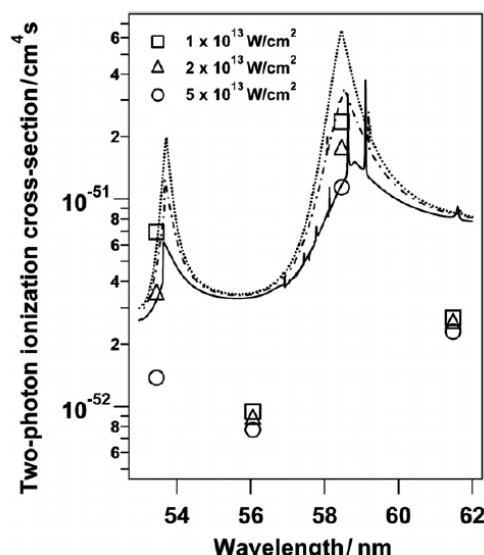


図 3: He2 光子イオン化断面積波長依存性
曲線は R-matrix Froquet 法による理論計算値

III. フルコヒーレント EUV 光発生を目的とした FEL のシード化

Ti: Sapphire laser (800 nm, 30 mJ) を焦点距離 4 m のレンズを用いて、Xe ガスに集光照射することによって HHG を発生した。得られた 13 次高調波を、発振波長が 61.4 nm となるようにギャップ間隔を調整した 2 台のアンジュレータに、250 MeV に加速した電子とともに導入した。発生した FEL 光をシングルショットの分光器を用いて観測した。その結果、図 4 に示す様に、複数のピークを含む SASE 光に対して、単一ピークをもつスペクトルが観測された。さらに、そのパルスエネルギーは SASE のパルスエネルギー(0.7 μ J) の約 1.8 倍である 1.3 μ J が得られており、HHG を用いたシーディングに成功したことを示している。

さらに、アンジュレータの共鳴波長を変化させるギャップ値を変えたところ、シード化された FEL のスペクトルは観測されなかった。これは、FEL の共鳴増幅波長に対して、シ

ード光の波長が一致していないことを示している。シード化 FEL 光の発生に成功した一方で、3000 ショット中に 10 ショット程度のみがシード化 FEL の特徴を持っていたことが明らかとなった。この時のシード率が約 0.3 % であった。この低いシード率は HHG と電子バンチ間に存在するタイミングのジッターおよびタイミングのドリフトに起因するものである。

シード化が達成された一方で、シード時において、アンジュレータの余剰長によって寄生的に増幅される SASE 成分は、SASE 光に対するシード光のコントラストを悪化させることが明らかとなっている。原子分子へ応用するためには、FEL 光出力における、シード化成分と SASE 成分のコントラストおよびシード率の向上が必要である。そのため、電子バンチ長を 600 fs に伸長した上で、SCSS のアンジュレータを 1 台のみ用いてシーディング試験を実施した。さらに、シード化 FEL におけるパルスエネルギーおよびコントラストに関する最適条件のシミュレーションを行った。

シーディングの結果、図 5 に示す様な強度分布が得られた。SASE 光に対するシード光のパルスエネルギー比は最大で 18 倍であった。得られた FEL 光のパルスエネルギーには、ドリフトが観測され、シード化率が低い時間領域が観測された。これは電子バンチに対する HHG のタイミングにおいて、短時間のドリフトが存在するためである。このようなタイミングのずれについては、統計的に揺らぐタイミングジッターの影響を電子バンチの伸長によって軽減し、環境の変動などに起因するドリフトを電子とレーザーの相対時間差を計測する Electro Optic sampling などを用いて、フィードバックする

ことで解決できる。また、シード化 FEL はシード光発生用レーザーの一部をポンプ・プローブ計測用に分割することによって、ジッターフリーポンプ・プローブ計測に応用することが可能である。今後、シード化 FEL とポンプ・プローブ計測を組み合わせることによって、EUV 領域における原子分子の多光子イオン化と解離過程が、より詳細に、かつ時間分解計測を用いて観測されることが期待される。

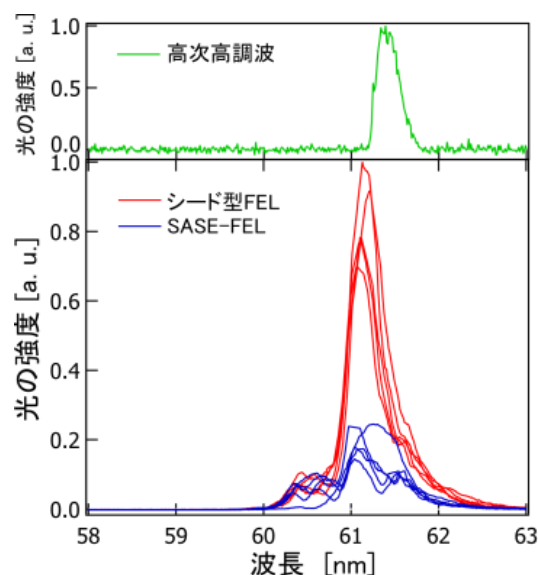


図 4: FEL 出力シングルショットスペクトル
(a) 赤: シード FEL 青:SASE 緑:高調波

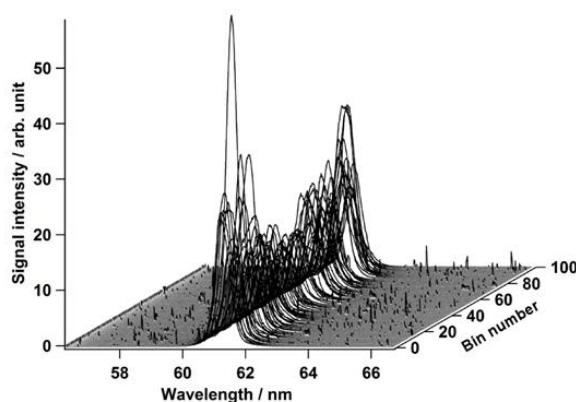


図 5: 13 次高調波によるシード化 FEL のスペクトル
(3000 ショットについて 30 ショットごとの平均)