

# 極紫外自由電子レーザーを用いた超高速非線形原子過程の光電子計測

伏谷瑞穂

東海国立大学機構 名古屋大学大学院 理学研究科 物質理学専攻(化学系)

光に対して物質がどのように応答するかを理解することは物理、化学、生物など様々な分野において基本的な役割を果たす。1960年のレーザー誕生以降、主に可視・近赤外波長領域における光と物質の相互作用、特に光に対する物質の非線形光学過程に関する理解が大きく進展した。近年、自由電子レーザー (FEL) 技術の進歩によって極紫外 (EUV) および X 線域においても高強度超短パルスを用いた実験が可能となり、これらの波長域における非線形光学応答の研究に注目が集まっている。これは、従来の可視・近赤外域の強レーザー場中では光に応答するのは主に最外殻の電子であるのに対し、一光子の光子エネルギーがイオン化エネルギーを超えるような EUV・X 線域では内殻電子など複数の電子が光応答に関与するためである。これまで、日本および独国、米国などの FEL 施設を中心に最も基礎的である原子分子を対象とした多くの実験研究が進められ、典型的な非線形応答として多光子吸収に伴う多重イオン化を示すことがわかってきた[1]。

筆者らの研究グループでは、多光子過程ゆえに複数の経路が関与する多重イオン化機構を詳細に理解するため、理化学研究所の FEL 施設 (SACLA, SCSS) において、磁気ボトル型光電子分光器を用いた先端的な電子分光実験を進めてきた。光電子分光の特徴は、電子の運動エネルギーから中間状態や終状態を決定し、各段階のイオン化過程に関与している電子状態を識別できる点にある。しかしながら、自発放射から立ち上がる FEL 光はショット毎に波長や強度などがゆらぐパルス特性をもつため、通常の電子分光手法では共鳴過程など波長敏感な非線形現象の詳細がこのゆらぎによって覆い隠されてしまうという問題があった。そこで、筆者らは、これまで欠点とされてきた FEL 光の「ゆらぎ」を逆に利用したシングルショット光電子分光を独自に開発し、物質の非線形光学応答とともに FEL 光のスペクトル情報を同時に計測する手法を確立した[2-5]。このシングルショット光電子計測により、希ガス原子の共鳴的な非線形イオン化[2,4]や He の非線形多重励起[3]といった価電子が関与した新奇現象を見出すなど、EUV 域における非線形光学過程に関する基礎的な知見を得ることに成功している。

一方、内殻電子が大きく関与する多光子多重イオン化過程では、内殻正孔の崩壊に伴うオージェ電子の放出が引き起こされ、電子スペクトルには

終状態のエネルギー準位に応じた多数のピークが出現する。EUV や X 域の強レーザー場中では、こうした内殻正孔の崩壊過程が価電子帯の関与するイオン化とともに連鎖的に進行し、多数の電子ピークが幅広く重畳した光電子スペクトルが計測されるため、非線形過程に由来する微弱な光電子信号を精度よく測定することは容易ではない。そこで、筆者らは最近、電子だけでなくイオンを同時に計測する多電子-イオン同時計測手法の開発を行った。これは、一般に EUV や X 線領域における非線形吸収過程では高次過程になるほど価数の高いイオンが生成する傾向があるため、イオンの価数を「標識」として電子信号を分別することで、幅広い 1 光子過程の信号に埋もれている微弱な非線形信号を取り出せるためである。この多電子-イオンコインシデンス計測法を Xe 原子に応用したところ、2 光子吸収によって、Xe の 4d 内殻準位から 2 つの電子を光脱離して形成される 4d 内殻二重空孔 (Double-Core-Hole: DCH) 状態の観測に初めて成功し、この測定で決定した DCH 状態生成の断面積は当初の予想よりも最大で 3 倍程度大きな値を示すことを見出した[6]。この原因の一つとして、4p-4d 内殻軌道間の共鳴遷移が 4d 内殻空孔崩壊 (寿命 6 fs) と競合して、4d DCH 生成断面積の増大に寄与していることが示唆された。

EUV 域の物質の非線形応答およびそのダイナミクスの実時間分析には、FEL 同期レーザーを併用した計測が必須となる。筆者らは FEL 同期レーザーを用いたシングルショット光電子計測により、He 原子の EUV-UV 2 波長 2 光子非線形吸収断面積[7]を実験的に初めて決定した。この測定では、同期精度に起因するジッター幅により、時間分解能が 1ps 程度に制限されていたが、最近 SACLA 軟 X 線ビームライン (BL1) に導入されたタイミングモニターの利用によって、時間分解能が大きく改善され、1ps を大きく下回る約 22fs の精度で計測を行うことが可能となっている。筆者らはタイミングモニターを併用したシングルショット光電子計測を He のサイドバンド光電子計測に応用することで、BL1 における FEL のパルス幅を 28(5)fs と精密に評価することに成功しており[8]、現在、原子だけでなく分子を対象とした EUV 非線形超高速ダイナミクスの実時間計測に向けて準備を進めているところである。

本講演では、EUV-FEL で誘起される超高速非線形原子過程について、筆者らが行ってきた光電

子計測の研究を中心に、最近の成果を交えて紹介する。

【謝辞】本研究は菱川明栄教授（名古屋大学）、彦坂泰正教授（富山大学）、繁政英治先生（分子科学研究所）および松田晃孝講師（名古屋大学）らとの共同研究による成果であり、理研 XFEL ビームライン研究開発グループの支援を受けて行われた。本研究の一部は科学研究費補助金、分子科学研究奨励森野基金などの助成を受けて遂行された。

【参考文献】

[1] e.g. M. Yabashi *et al.*, J. Phys. B **46**, 164001

- (2013).  
[2] Y. Hikosaka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 133001 (2010).  
[3] A. Hishikawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **107**, 243003 (2011).  
[4] Y. Hikosaka *et al.*, Phys. Rev. A **90**, 053403 (2014).  
[5] M. Fushitani *et al.*, Nat. Photon. **10**, 102 (2016).  
[6] M. Fushitani *et al.*, Phys. Rev. A **88**, 063422 (2013).  
[7] M. Fushitani *et al.*, Phys. Rev. Lett. **124**, 193201 (2020).  
[8] S. Owada *et al.*, J. Synchrotron Rad. **27**, 1362 (2020).