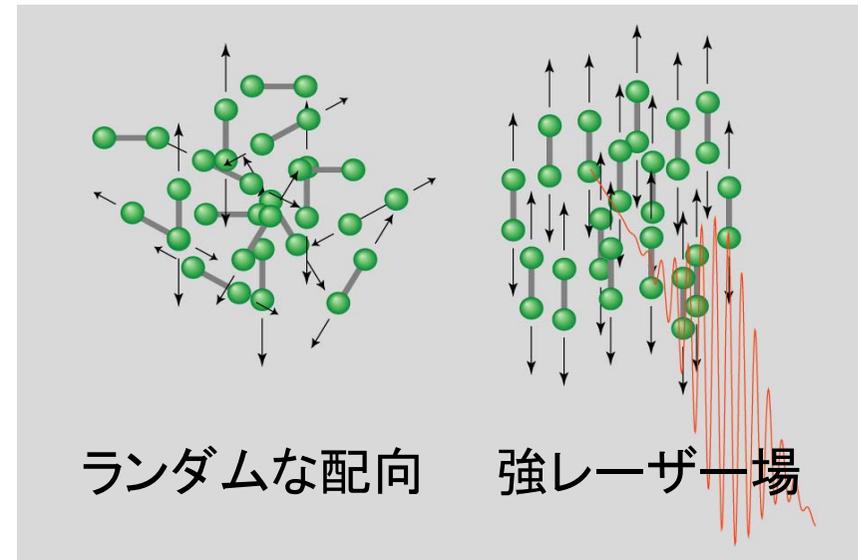
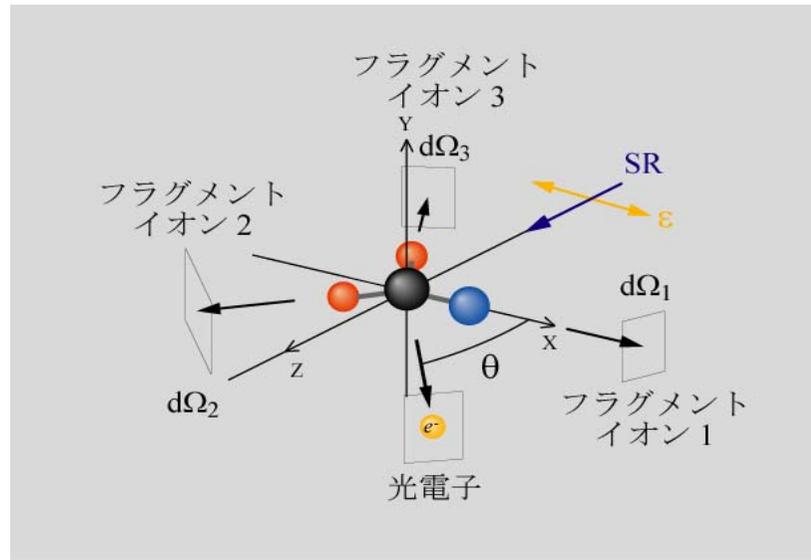


第2回 コンパクト ERL サイエンスワークショップ

cERL による強レーザー場中の 分子挙動の研究

Photon Factory 足立純一

光電離の立体ダイナミクスの解明



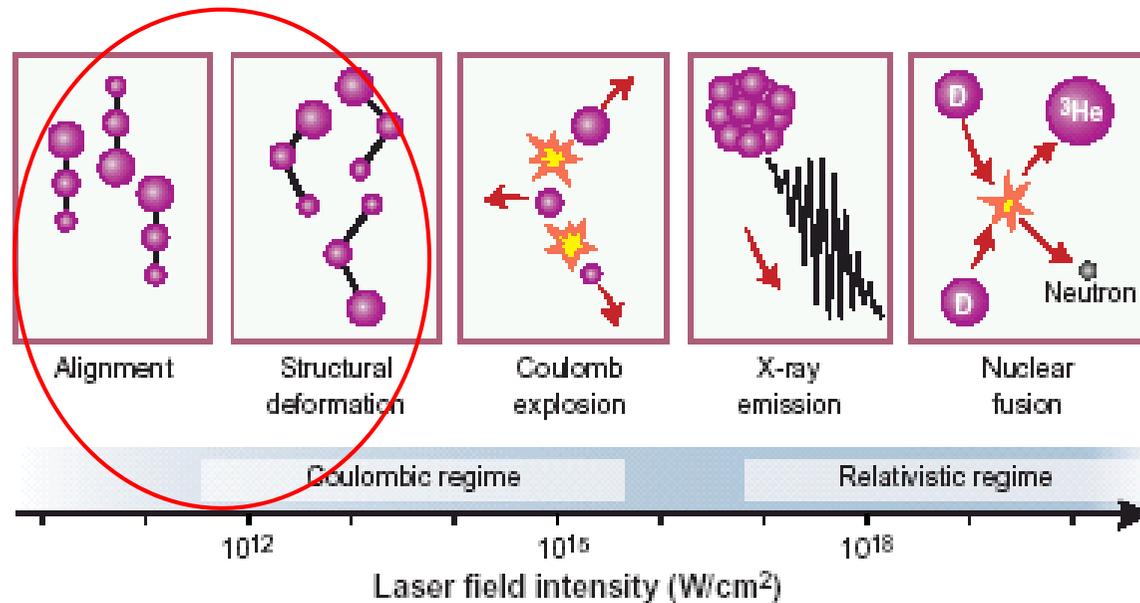
- 4重コインシデンス [$e^- + frag^+_1 + frag^+_2 + frag^+_3$]:
信号強度非常に弱い
- レーザーによる配向/援用
- レーザーポンプ-ERLプローブ
 - 非 Franck-Condon 領域・振動波束の生成

空間配向分子の光電離

- 夢: 分子をある配向で静止
 - 基板に固定して観測 ← 満足できない
 - 量子力学的純粋状態の観測ではない
- “選択” または “制御”, “制御 & 選択”
 - 選択 ← 内殻過程の特徴 + コインシデンス法
- 分子の空間配向の制御・選択 + ERL
 - DC 電場・AC 電場による制御・選択
 - レーザー場による制御
 - ERL の短パルス性 (≈ 0.1 ps)

強レーザー場中の原子・分子・クラスター

- 新奇的な対象: 強レーザー場中にある原子分子
- 中程度のパワー密度: 10^{11} - 10^{12} W cm⁻²
 - 分子の配列あるいは変形
 - Coulomb 爆発が起こる領域よりも低いパワー密度

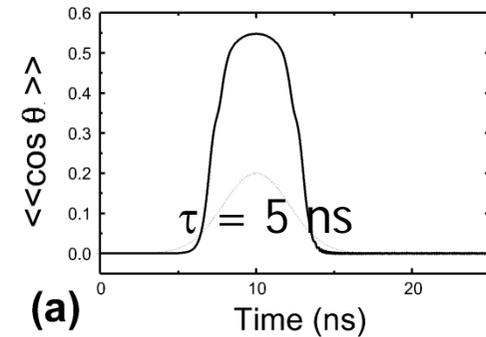


K. Yamanouchi, Science **295**, 1659 (2002).

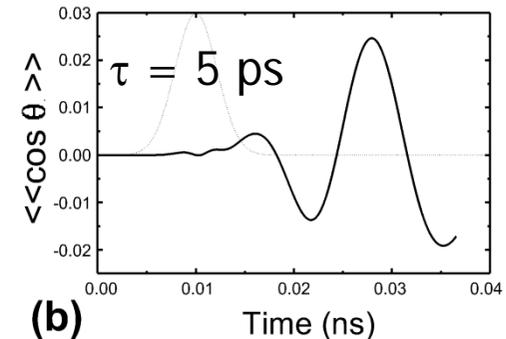
レーザー場による分子配向

FCN 分子 $1.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$

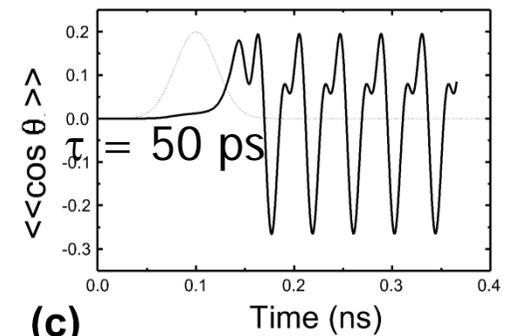
- 3つのタイプに分類できる
 - H. Stapelfeldt and T. Seideman, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 543 (2003).
 - 断熱的配向 $\tau \gg \tau_{\text{rot}}$
 - 非断熱的配向 $\tau \ll \tau_{\text{rot}}$
 - 急激遮断 $\tau_{\text{on}} > \tau_{\text{rot}}, \tau_{\text{off}} \ll \tau_{\text{rot}}$
- 断熱的配向
 - 時間同期はすでに実現できている
 - 完全な自由場での実験にはならない
- 非断熱的配向
 - プローブも短パルスである必要性



(a)



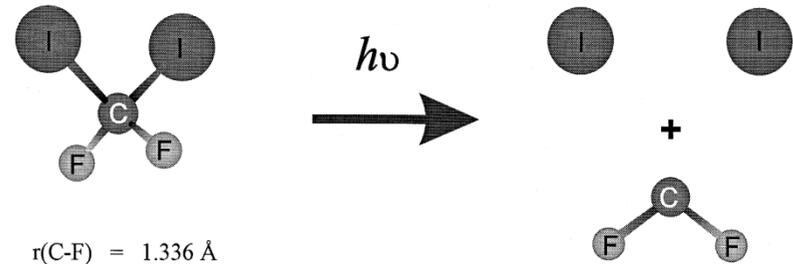
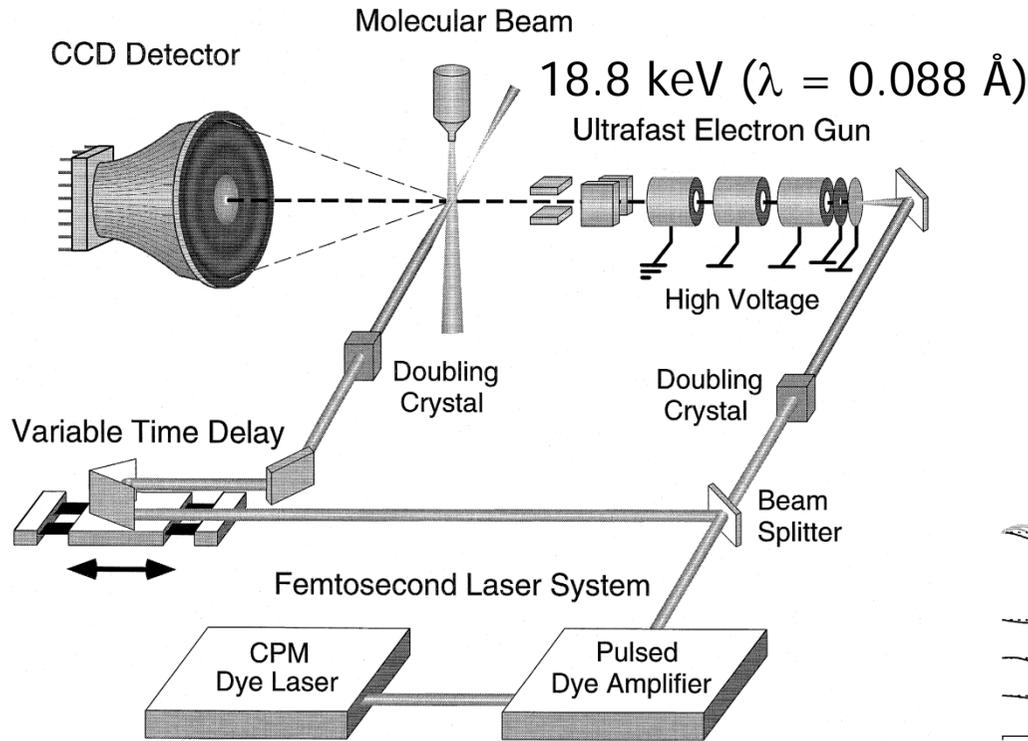
(b)



(c)

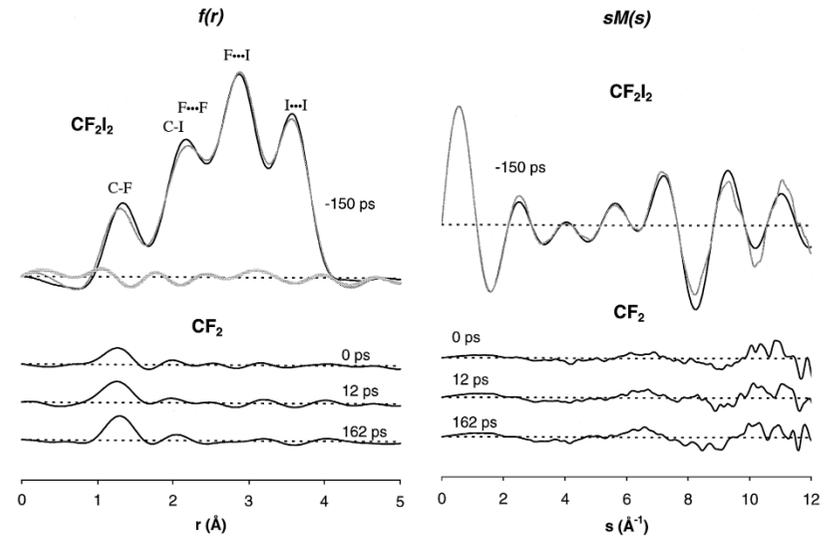
電子線回折による高速現象の解明の例

J. Cao, H. Ihee and A.H. Zewail,
Chem. Phys. Lett. 290, 1 (1998).



$r(\text{C-F}) = 1.336 \text{ \AA}$
 $r(\text{C-I}) = 2.148 \text{ \AA}$
 $r(\text{F}\cdots\text{F}) = 2.182 \text{ \AA}$
 $r(\text{F}\cdots\text{I}) = 2.870 \text{ \AA}$
 $r(\text{I}\cdots\text{I}) = 3.572 \text{ \AA}$

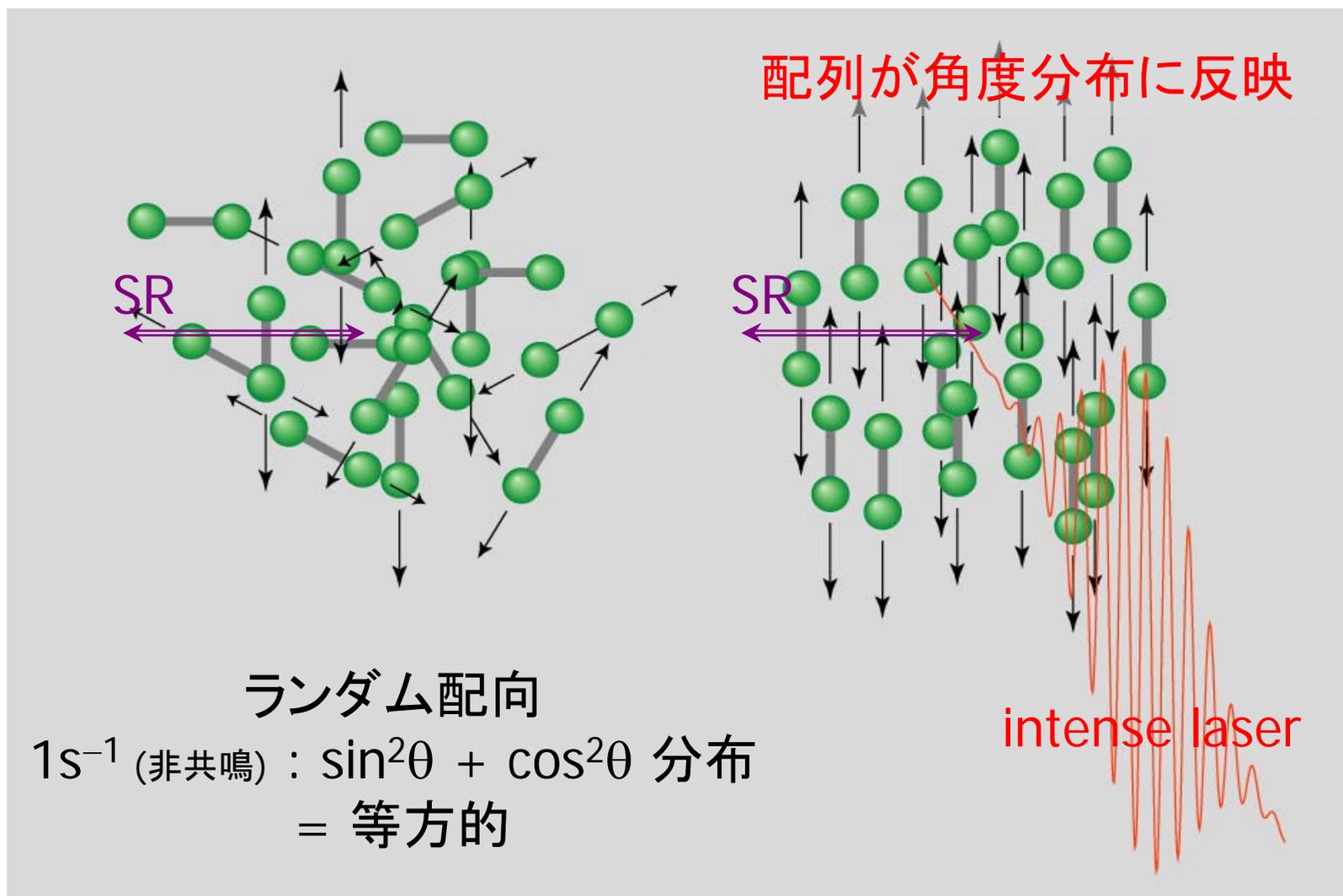
$r(\text{C-F}) = 1.30 \text{ \AA}$
 $r(\text{F}\cdots\text{F}) = 2.06 \text{ \AA}$



気相分子の光電子回折パターン測定

- 電子線回折よりも局所的な情報が得られる可能性
- 一般的な光電子回折パターン
 - 前方散乱方向への強度の集中
 - 解析の手法が確立されている？
- 低速光電子回折 ($KE \leq 250 \text{ eV}$)
 - 後方散乱方向での強度の大きな変動 \Rightarrow EXAFS 変動
 - 化学シフトの大きさの違いによるサイト選択性
 - 振動準位分離

第一歩: レーザー配列した分子の アンジュレータ光によるプローブ



強レーザー場中 CS₂ 分子

- 強レーザー場中での分子
 - 分子の断熱的配向
 - 分子のドレスト状態における構造変形
 - 参考文献
 - H. Stapelfeldt and T. Seideman, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 543 (2003).
 - 星名賢之助ら, *J. Chem. Phys.* **118**, 6211 (2003).
 - これまでのところ有効なデータは得られていない

SR と Nd:YAG レーザーの組合せ

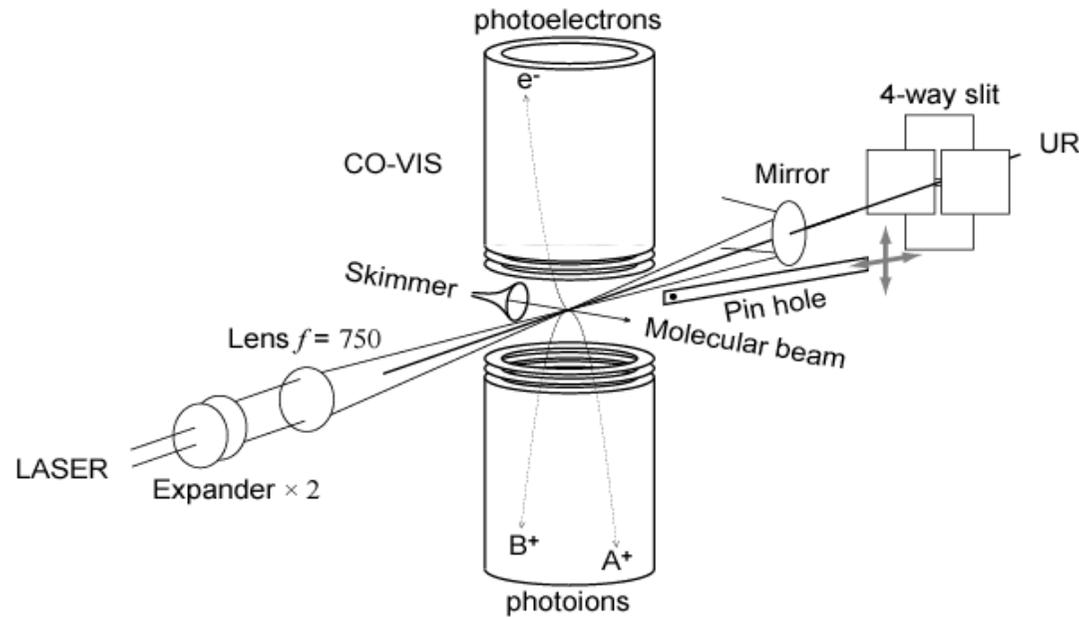
特性

- UR @ BL2C PF
 - 250~1400 eV
 - 1.6 MHz (シングルバンチ時)
 - $\sim 10^{10}$ photons/s/0.02%BW
($\sim 5 \times 10^3$ ph/pulse/0.02%BW)
 - パルス幅 100 ps のオーダー
- パルス Nd:YAG レーザー
 - 1064 nm (fundamental)
 - 1 J/p \times 30 Hz (保有機器)
 - パルス幅 7-10 ns

レーザーとの比較

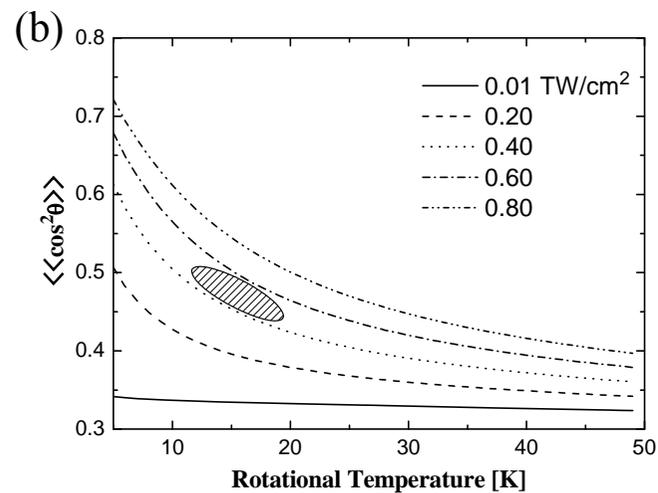
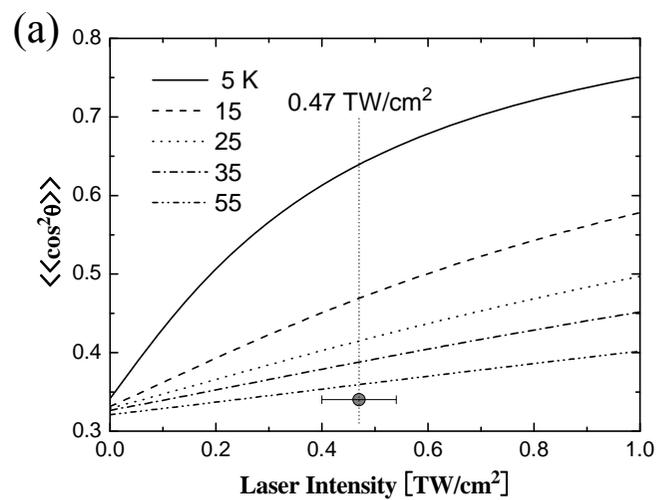
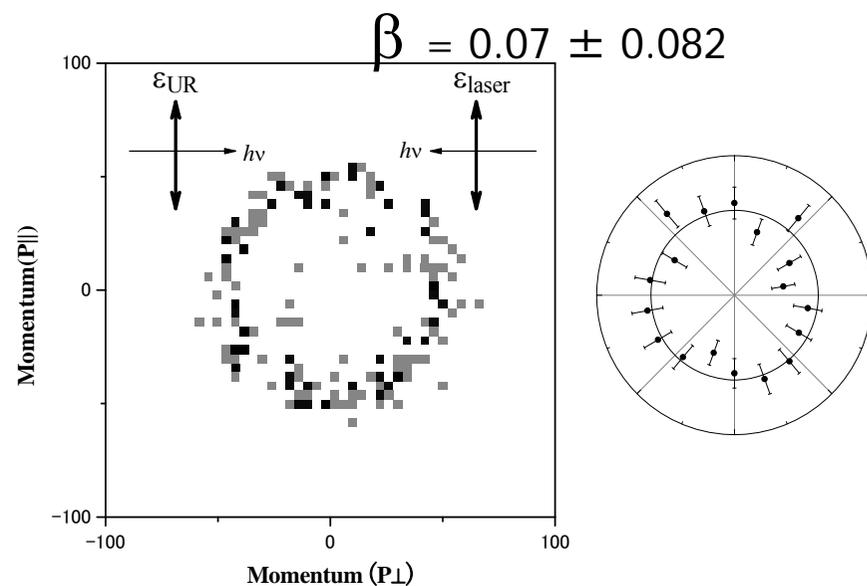
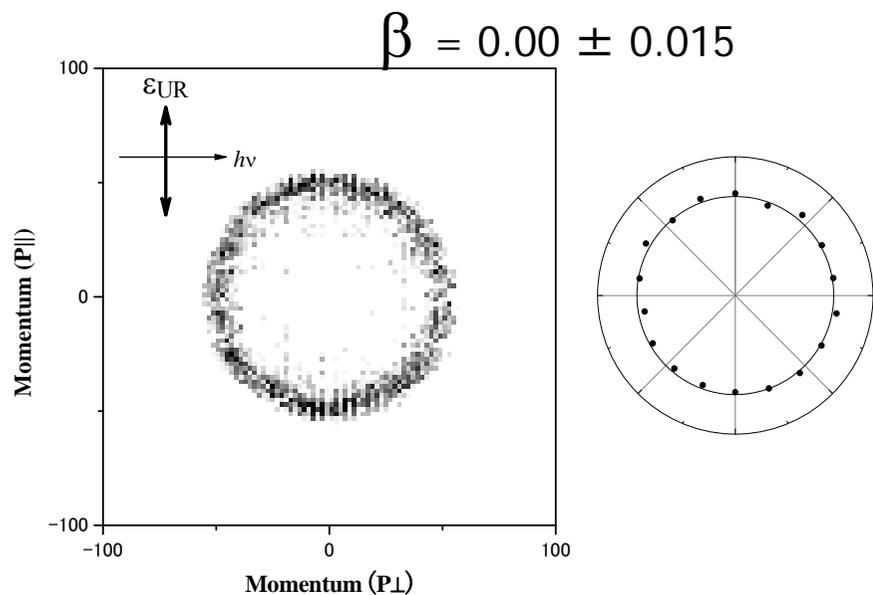
- 放射光の利点:
 - 高い波長掃引性
 - 高いエネルギー
 - 真空紫外領域以上
 - 荷電粒子生成
- 放射光の欠点
 - 光子数/パルスが少ない
 - 非常に低いコヒーレント性
 - 光の操作はすべて真空中
 - (他光源との同期は困難)

強レーザー場中分子の分光計測



- 寺本高啓ら, *AIP Conf. Proc.* **879**, 1805 (2007). “SRI2006”
- ナノ秒パルスNd:YAGレーザー: $0.4 \sim 0.5$ TW/cm²
 - 1064 nm, パルス幅 ~ 8 ns, $0.8 \sim 1$ J/pulse $\times 30$ Hz
 - ビーム広がり < 0.5 mrad / 2 (エクスペンダー), $f = 750$ mm $\rightarrow 125$ μ m
- PF BL2C
 - 0次光 (アンジュレータから光を分光せずに使用)
 - 四象限スリットにてスポットサイズを限定

結果: レーザー光子場中 CS_2 分子からの 解離イオン角度分布

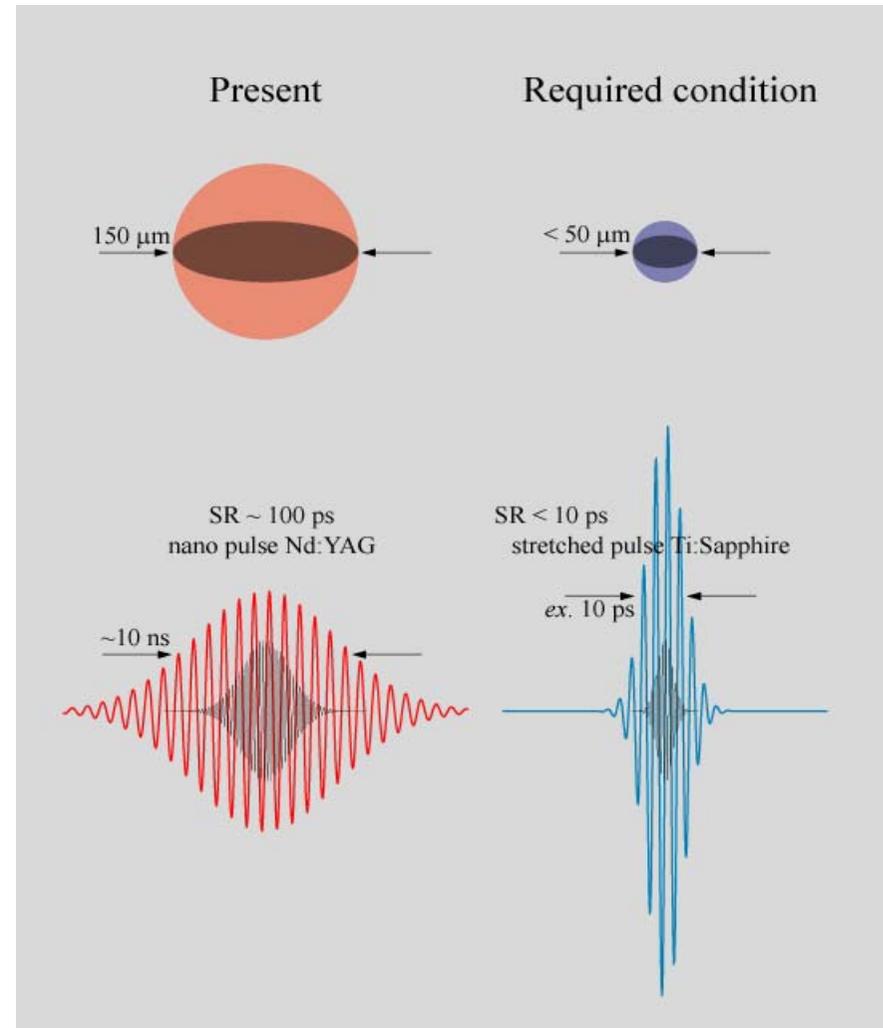


有効なデータが得られていない要因

- 重ね合わせの精度が不十分であった
 - 現在は 1 点での位置合わせは改善されてきている
- レーザーの集光サイズよりも放射光のほうが大きい
 - 観測されているイベントは強レーザー場の外からの寄与
 - 四象限スリットがレーザーにより破損
- CS₂ 分子由来のイベントが少ない
 - 50000 cps 以上は処理し切れていない？
 - 冷却により分圧が低くなりすぎた
 - 0 次光のすそのエネルギー成分は不明確

現状より高度な実験に向けて

- スポットサイズの適合性
 - 現状では
 - SR: $\geq 100 \mu\text{m}$
 - レーザー: 焦点距離に依存
 - SR スポットをより絞る必要
- パルス幅の適合性
 - 強いピークパワーのレーザー
 - Nd:YAG: 10 ns
 - Ti:Sapphire: 1ps–10fs
 - パルス幅の伸長が必要?
 - SR
 - 現世代リング $\sim 100 \text{ ps}$
 - 次世代技術が必要



60-200 MeV ERL における CSR-ICS

TABLE I: Optical cavity scheme in the Compact ERL : Horizontal acceptance angle are 50 mrad for $\lambda = 190 \mu\text{m}$ and 110 mrad for $\lambda = 1900 \mu\text{m}$ for mode matching. Bandwidth of the on-axis X-ray is considered to be $\Delta\lambda_X/\lambda_X \sim \Delta\lambda/\lambda \sim 0.1$ (10%). Pulse duration of the X-ray is same as σ_z/c .

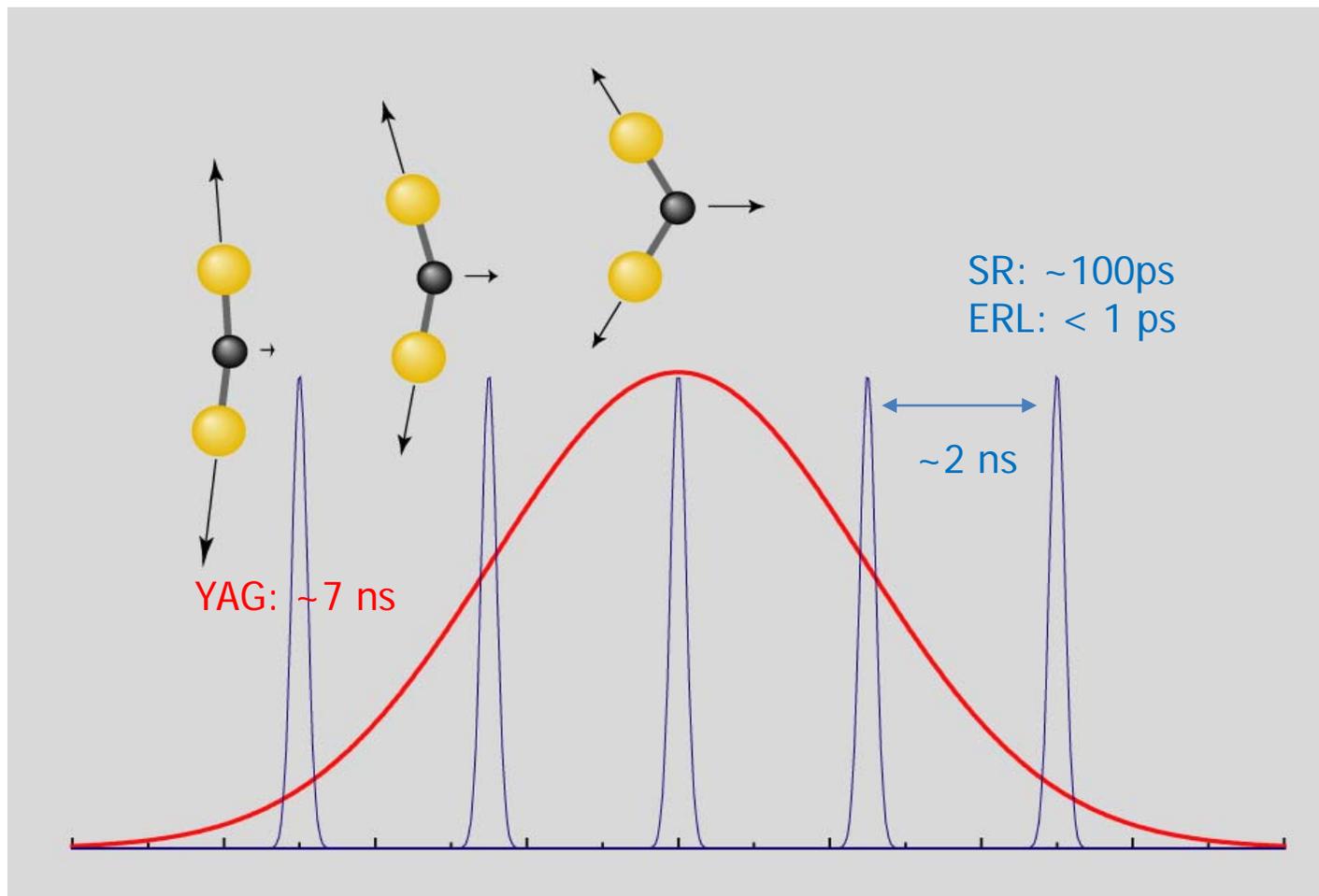
Electron energy [MeV]	Charge [nC]	σ_z/c [ps]	Spot size [mm \times mm]	CSR energy [mJ]	K	X-ray energy [keV]	N_X [phs./pulse]	N_X [phs./s]
60	0.077	0.1	0.3×0.3	0.14	0.013	0.4	1×10^4	2×10^{13}
60	0.5	1	3×3	0.6	0.009	0.04	4×10^4	0.7×10^{13}
200	0.2	0.1	0.3×0.3	1.0	0.034	4	2×10^5	1×10^{14}
200	1	1	3×3	2.5	0.017	0.4	3×10^5	3×10^{13}

- Number of photons of X-ray (b.w.10%)
 - Number of photons per pulse : $\sim 10^{4-5}$ phs/pulse.
 - Flux : $\sim 10^{13-14}$ phs/s.
- Energy range of X-ray
 - From **0.04 to 4 keV**.
 - 10 keV X-ray is possible at electron energy of 200 MeV and bunch length 50 fs, which is accomplished in tracking simulation.
- Pulse duration of X-ray is **100 fs – 1 ps**.
- Electron transverse beam size is much smaller than the focus size of focused CSR.

測定スキーム 1

強レーザー場中にある直線分子の変形

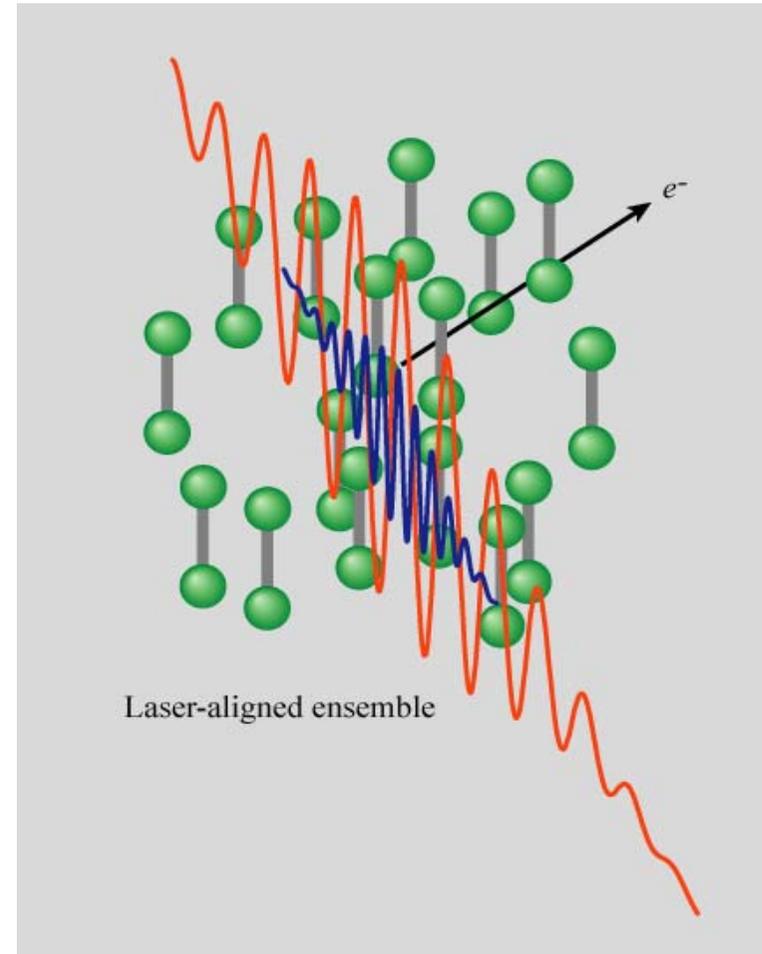
- 内殻光電子回折パターン \Rightarrow 構造変形
- 断熱的配向 + 非断熱結合



測定スキーム 2

非断熱的レーザー配列・配向させた分子からの 光電子角度分布測定

- 非共鳴過程による分子配列
 - 非断熱過程 (sub ps)
 - 高強度フェムト秒レーザー
 - 断熱-非断熱中間領域
 - 高強度フェムト秒レーザー
+ パルス伸長
- “着衣”分子についての新しい情報が得られる可能性？
- 非解離性電離過程についての MFPAD 測定に適用？



まとめ

- 時間コヒーレント性なしでは本質的に異なる研究は困難
- 強レーザー場中原子分子の挙動・電子的構造
 - 試みの実験からは有効なデータが得られてない
 - ナノ秒パルスレーザー場 + 100 ps SR プローブ
- CSR-ICS による軟 X 線は利用可能
 - 10%BW でも pulse あたりはアンジュレータ光と同程度
 - 光学レーザーのより早い繰返しが必要
 - 新しい情報を得るためには異なる測定スキーム
- ERL実機で時間分解光電子回折実験を展開

謝辞: これまでの実験・計算

- 実験
 - 柳下明 教授
 - 山内薫 教授
 - 寺本高啓 博士
- 実験アドバイス
 - 酒井広文 准教授
 - 峰本紳一郎 博士
 - 岩崎純史 博士
- PFスタッフの皆様
- 散乱理論計算
 - 藤川高志 教授
 - 篠塚寛志 博士
 - 風間美里 氏
- 研究助成
 - 松尾学術振興財団
 - 科研費
 - 特定領域研究
“強光子場分子制御”

この他多くの方々の協力により
研究を進めることができました
ありがとうございました