

極紫外励起分子ダイナミクスの現状と将来展望

見附孝一郎 (分子科学研究所・総研大)

現在フォトンファクトリーが提案しているエネルギー回収型ライナックと長尺アンジュレータを組合わせた Multi-turn Accelerator Recuperator Source (MARS)の計画案[1]は、原子分子物理や光化学反応の研究者にとってもかなり魅力的な光源です。過去5年以上に渡り、我々は大型の第3世代高輝度電子蓄積リングを用いた研究計画を詳細に吟味してきました。今回提案されている MARS を、第3世代蓄積リングの長尺アンジュレータと比較すると、高輝度性や狭線幅などの特長はほぼ同等です。しかし時間特性やコヒーレンス等に本質的な違いが見られます。本稿ではこの相違点に注目し、気相孤立系を対象に MARS から供給される位相の揃った超短極紫外光パルスを利用することで、どのような研究が芽生え発展していくと予想されるのかを考えていきたいと思います。

1. サブピコ秒のパルス幅

まず MARS からのアンジュレータ光は 100fs オーダーまでパルス幅 T_{UR} を狭めることができます。この時間幅は分子の解離、内部転換、項間交差等の寿命に比べて短いので、時間分解ポンププローブ実験によって極紫外電子励起分子の無輻射緩和の動的挙動を観測できるでしょう。この場合、放射光と同期させる光とのジッタを如何にしてサブピコ秒まで抑えるかが成否のかぎを握ります。例えば最新鋭の LD 励起レーザーポンプのフェムト秒モードロックレーザー (70~90MHz) が相手ならば、ジッタを 1ps 以下まで落とせます。

一方、自動イオン化や共鳴オージェイオン化等の電子遷移現象は通常 100fs ではほぼ終結してしまうので、上記の時間分解測定を適用することはできません。ただし、短寿命の内殻励起状態を経由した 2 重共鳴実験や光イオン化ダイナミクスの研究等は十分に実行できる可能性があります。これらの実験は、パルス幅が 50 ピコ秒以上の放射光では光のピーク尖頭強度が小さすぎて極めて困難と想像されます。事実、気相分子については私の知る限りこれまで報告例がありません。

そこで、短寿命状態を経由した2重共鳴実験でどの程度の信号量が見込めるのかを概算してみます。放射光とレーザーの同期実験を想定し、MARS の長尺アンジュレータ ($L=50\text{m}$, $\lambda_u=4\text{cm}$) と第3世代蓄積リングの標準的なアンジュレータ ($L=4.4\text{m}$, $\lambda_u=10\text{cm}$) とでカウントレートを比較してみましょう。ここでは、図1のスキームに示すとおり、基底状態分子 M を放射光で内殻励起して M^* を生成し、さらに 790nm のレーザーを同軸に照射して M^{**} に励起する 2 光子励起を考えます。また、信号を稼ぐために、分光器無しでアンジュレータ光を 30m 離れた試料にそのまま照射するとします。 M^* の寿命 τ が放射光のパルス幅 T_{UR} 以下であると仮定すれば、毎秒生成する M^{**} の個数 $dN_{M^{**}}/dt$ は次の式で表されます[2]。

$$\frac{dN_{M^{**}}}{dt} = \frac{\sigma_M \sigma_{M^*} \Phi_{UR} \Phi_L n_M \ell}{S \cdot R_{UR}} \times \frac{\tau}{T_{UR}} \quad (1)$$

ここで σ は励起断面積を、 Φ は光のフラックスを、 n_M は基底状態分子の濃度を、 ℓ は観測領域の長さを、 S は試料点での集光面積を、 R_{UR} は放射光の繰返し周波数を表します。添字の意味は図1を参照してください。MARS の第1段アンジュレータからは光子エネルギー 158eV の軟 X 線が、 $R_{UR}=1.3\text{GHz}$, $\Phi_{UR}=1 \times 10^{14} \text{photons} \cdot \text{s}^{-1} \cdot 0.1\% \text{BW}^{-1}$, $T_{UR}=100 \text{fs}$, $S=1.5 \times 10^{-3} \text{cm}^2$ の仕様で供給されます。Linac の電子

銃の周波数を 16 分周し、位相同期ループでモードロックレーザーの周波数 81.3MHz と厳密に同期させます。それに対して、蓄積リングの標準的アンジュレータから得られる 158eV の光の仕様を $R_{UR}=508\text{MHz}$, $\Phi_{UR}=3.5\times 10^{14}\text{photons}\cdot\text{s}^{-1}\cdot 0.1\%\text{BW}^{-1}$, $T_{UR}=50\text{ ps}$, $S=1.6\times 10^{-2}\text{cm}^2$ と想定します。この場合は、蓄積リングの RF ピックアップ周波数を 6 分周し、周波数 84.7MHz モードロックレーザーと同期させればよいでしょう。以上の数値を式(1)に代入すると、 $dN_{M^{**}}/dt$ の値は蓄積リングに比べて MARS の方が約 600 倍大きくなるのがわかります。さらに、電子ビームのエミッタンスがスペクトル幅に及ぼす効果は蓄積リングの方が大きいので、標準的アンジュレータについては有効に使えるフラックスがかなり減少するはずで、この影響を考慮すれば、MARS の長尺アンジュレータを用いた方が 3 桁近く有利になるはずで、

式(1)の励起断面積を両者とも 10Mb とすれば、試料圧 10^{-4}Torr 、レーザーパワー 2W の条件下で、MARS の長尺アンジュレータを用いたときの $dN_{M^{**}}/dt$ は $1.4\times 10^4\text{counts}\cdot\text{s}^{-1}$ と求められます。我々は 1996 年に UVSOR の 2.2m アンジュレータとチタンサファイアレーザーの第 3 高調波でヘリウム原子のポンププローブ実験を行いました[2]。装置のセットアップを図 2 に示します。He($1s^2\ ^1S \rightarrow 1s2p\ ^1P$) 遷移の励起断面積は $\sigma=2.2\times 10^5\text{Mb}$ と極端に大きいのですが、それでも当時の信号カウントレートはたった $0.3\text{counts}\cdot\text{s}^{-1}$ しかありませんでした。このことから短寿命励起状態が絡んだポンププローブや 2重共鳴の実験に、MARS の長尺アンジュレータから得られる超短極紫外光パルスがいかに絶大な威力を発揮するかがよく分かっていただけたと思います。

2. コヒーレンシー

MARS からの放射光の第 2 の特徴は、低いエミッタンスのおかげでコヒーレンスを上げられるという点です。小林・山本が報告した MARS の設計方針 [3] に基づけば、例えば、1GeV 加速された電子ビームの推定エミッタンス $0.102\text{nm}\cdot\text{rad}$ は、第 1 段アンジュレータから得られる 158eV の放射光(偏向係数 $K=1$)の回折限界 $0.623\text{nm}\cdot\text{rad}$ よりも小さくなります。光源の実効的な角度発散とサイズの積は $0.772\text{nm}\cdot\text{rad}$ と見積られます。また、光自身の角度発散 $1.25\times 10^{-5}\text{rad}$ に比べて電子ビームの角度発散は無視できます。この条件であれば 1 次コヒーレンスは十分にあると予測され、放射光による分子の光反応制御・光分子設計への道が開けると期待されます。複数の超短放射光パルスを同時照射することができれば、内殻励起状態のポテンシャルエネルギー曲面上の核波束を移動させたり(ポンプダンプ制御)、遷移経路間の干渉効果を利用して励起状態からの反応分岐比を変えたり(位相制御)することができるようになるでしょう。後者の目的のためには、MARS に設置されたアンジュレータから 2 本を選択し、異なる 2 種類の波長を試料に同時照射するのが最も都合がいいかも知れません。その際に、放射光同士の位相差を厳密に制御する必要があります。

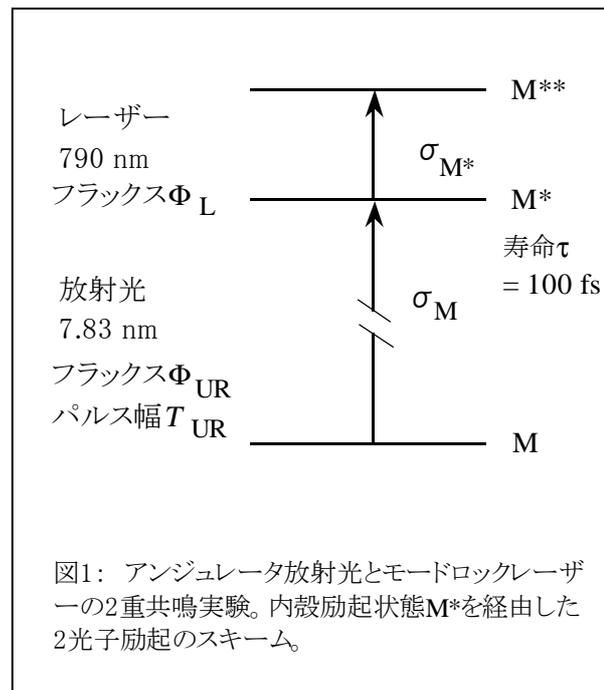


図1: アンジュレータ放射光とモードロックレーザーの2重共鳴実験。内殻励起状態M*を経由した2光子励起のスキーム。

3. 強い光子場強度

MARS からの放射光の第3の特徴は、光源サイズが小さく真円に近いので、ゾーンプレート等を用いることで微小領域への集光が効率よく行えるということです[1,4]。仮に 1 パルス当たり 7.7×10^4 photons-pulse⁻¹ の光子数を持つ 158eV の放射光を、パルス幅 100fs の下で 50 nmφまで絞れるとすれば、 10^{12} W·cm⁻² の強い光子場強度を得ることができます。光子場がこの程度まで上昇すれば多光子イオン化は十分に可能です。ただしこの見積りでは、分光器を通すことによる強度の減少(光学素子の反射率やスリットによる損失など)は考慮していません。

さらに、MARS 第 2 期計画の大電流化に成功すれば、 10^{16} photons·s⁻¹·0.1%BW⁻¹ のフラックス、従って 10^{14} W·cm⁻² の光子場強度が達成されるかもしれません。チタンサファイアレーザーを代表とする可視・赤外レーザーの場合なら、トンネルイオン化やクーロン爆発等の「摂動領域を越えた光子場と原子分子との相互作用」が起こり始める強度領域です。しかし、軟 X 線放射光の振動数は可視・赤外レーザーに比べて2桁大きいので、電子が抜けきる前に光の高周波電磁場の符号が逆転してしまいトンネルイオン化が抑制される恐れがあります。トンネルイオン化現象が始まる光子場強度 I がどの程度なのかは、波長 λ の光の交番電場中で自由電子が獲得するポンデラモーティブエネルギー[5]

$$U_p [\text{eV}] \approx 9.3 \times 10^{-20} \cdot I [\text{W/cm}^2] \cdot \lambda^2 [\text{nm}^2] \quad (2)$$

と原子分子のイオン化ポテンシャル I_p の大小関係から判断できます。経験上、レーザー周波数 ω と電子のトンネイオン化周波数 ω_t の比である Keldysh パラメータ

$$\gamma_K = \omega / \omega_t = (I_p / 2U_p)^{1/2} \quad (3)$$

が1よりも小さくなればトンネルイオン化が支配的となることが知られています。式(2)に $I=10^{14}$ W·cm⁻² と $\lambda=7.83$ nm を代入すると $U_p = 0.57$ meV となり、トンネルイオン化にはまだ 4 桁近くも光子場強度が不足していると結論されます。極端紫外放射光を利用した強光子場ダイナミクスの研究は、MARS を以ってしても、まだはるかに先の道のりと言えるでしょう。

参考文献

- [1] 野村昌治「最近の放射光源とPFの将来計画」 <http://pfwww.kek.jp/pf-sympo/19/nomuran.pdf>.
- [2] 見附孝一郎、放射光学会誌 **10** 巻 5 号 (1997) 463-479.
- [3] 小林幸則、山本 樹「入射器に特徴を持たせた蓄積リング型光源」 <http://pfwww.kek.jp/pf-sympo/19/yukinori1.pdf>.
- [4] 羽島良一、放射光学会誌 **14** 巻 5 号 (2001) 323-330.
- [5] 宮崎健創、レーザー研究 **23** 巻 10 号 (1995) 846-857.

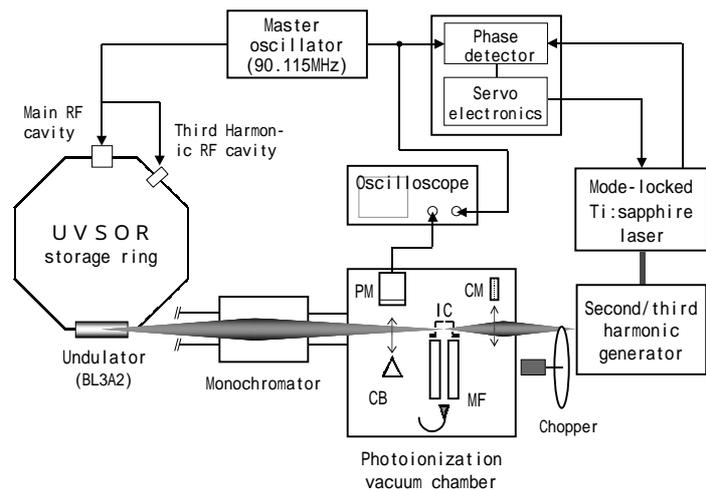


図 2: 放射光とレーザーの同期実験装置。PM, 光電子増倍管; CM, 金メッシュ光束モニター; IC, イオン化セル; CB, 銅ブロック; MF, 四極子型マスフィルター