高強度EUV-FEL光による原子・分子のイオン化過程と高調波シード化FEL

岩崎 純史^{1,2,3}, 佐藤 堯洋³, 大和田 成起^{1,3}, 富樫 格⁴, 高橋 栄治⁵, 緑川 克美⁵,
青山 誠⁶, 山川 考一⁶, 神成 文彦⁷, 柳下 明⁸, 永園 充³, 矢橋 牧名³, 石川 哲也³, 山内 薫^{1,2,3}

¹東京大学大学院 理学系研究科化学専攻 (〒113-0033 東京都文京区本郷7-3-1)

²東京大学大学院 理学系研究科超高速強光子場科学研究センター (〒113-0033 東京都文京区本郷7-3-1)

³理化学研究所 播磨研究所放射光科学総合研究センター XFEL研究開発部門 (〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1)

⁴高輝度光科学研究センター (〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都1-1-1)

⁵理化学研究所基幹研究所 エクストリームフォトンクス研究グループ (〒351-0198 埼玉県和光市広沢2-1)

⁶日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 (〒619-0215 京都府木津川市梅美台8-1-7)

⁷慶應義塾大学 理工学研究科 (〒223-8522 神奈川県横浜市港北区日吉3-14-1)

⁸高エネルギー加速器科学研究機構 物質材料科学研究所 フォトンファクトリー (〒305-0801 茨城県つくば市大穂1-1)

Photoionization of Atoms and Molecules by Intense EUV-FEL Pulses and FEL Seeded by High-Order Harmonic of Ultrashort Laser Pulses

Atsushi IWASAKI,^{1,2,3} Takahiro SATO,³ Shigeki OWADA,^{1,3} Tadashi TOGASHI,⁴ Eiji J. TAKAHASHI,⁵
Katsumi MIDORIKAWA,⁵ Makoto AOYAMA,⁶ Koichi YAMAKAWA,⁶ Fumihiko KANNARI,⁷
Akira YAGISHITA,⁸ Mitsuru NAGASONO,³ Makina YABASHI,³
Tetsuya ISHIKAWA,³ and Kaoru YAMANOUCHI^{1,2,3}

¹Department of Chemistry, School of Science, the University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

²Center of Ultrafast Intense Laser Science, School of Science, the University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

³XFEL Research and Development Division, RIKEN SPring-8 Center, RIKEN Harima Institute
1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148

⁴Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148

⁵Extreme Photonics Research Group, RIKEN Advanced Science Institute, RIKEN, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198

⁶Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency, 8-1-7 Umemidai, Kizukawa-city, Kyoto 619-0215

⁷Graduate School of Science and Technology, Keio University, 3-14-1 Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama, Kanagawa 223-8522

⁸Photon Factory, Institute of Material Science, 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801

(Received June 29, 2012)

The advantages of SPring-8 Compact SASE Source as a light source for spectroscopic measurements in the extreme ultraviolet (EUV) wavelength region are introduced by referring to our recent study of non-linear photoionization processes of He, in which the absolute two-photon ionization cross sections of He at four different wavelengths in the 54~62 nm region were determined using intense pulses of the free-electron laser (FEL). In addition, our recent effort to generate intense full-coherent EUV light pulses are introduced, in which significant amplification of the 13th harmonic of ultrashort laser pulses at 800 nm was achieved by FEL seeded with the 13th harmonic.

Key Words: Extreme ultraviolet (EUV), Free-electron laser (FEL), High-order harmonic, Seeded FEL, Photoionization

1. はじめに

近赤外域の高強度超短パルスレーザー光源の出現は、近年の光科学研究を格段に発展させた。その高強度の超短パルスレーザーの高次高調波として、波長域が100 nm から10 nmの極端紫外域(Extreme ultraviolet: EUV)のコヒーレントパルス光源が開発されるようになり、EUV域における原子・分子の多光子吸収や多光子イオ

ン化などの非線形光学過程が観測されるようになった。実際、高次高調波を利用して、 $\text{He}^{(1)}$ や $\text{H}_2^{(2)}$ の2光子イオン化過程が観測されている。また、このような非線形光学過程は、アト(10^{-18})秒領域のパルス時間幅の計測に応用されている^{3,4)}。EUV領域の高次高調波やレーザープラズマで発生させたEUV光をレーザープラズマによって増幅するという方式での高輝度EUV光源の開発も進められているが⁵⁻⁷⁾、高次の非線形光学過程の観測を実現

するため、さらに強度の高いEUV域の光源の出現が待ち望まれていた。EUV域の自由電子レーザー(free electron laser: FEL)は、この期待に応えることのできる高輝度光源として注目を集めている。

DESY (Deutsches Elektronen-Synchrotron Ein Forschungszentrum der Helmholtz-Gemeinschaft) 研究所においては、2000年Tera-Electronvolt Superconducting Linear Accelerator Test Facilityを用いて、109 nmの発振が確認され、2007年には13.4 nmの発振をFLASH(Free electron LAsEr in Hamburg)を用いて達成している⁸⁾。国内では、(独)理化学研究所と(財)高輝度光科学研究センター(JASRI)が共同で組織する、X線自由電子レーザー計画合同推進本部(XFEL推進本部)によって、SPRING-8 Compact SASE Source(SCSS)試験加速器が、理化学研究所播磨研究所に建設された。2006年には51~62 nmにおいて発振が確認され⁹⁾、日本でも様々な実験研究が行われるようになった。

我々の研究グループでは、SCSS試験加速器のEUV-FEL光源の立上げ時から、FEL光源を使った実験研究を推進してきた。N₂が2光子および3光子以上のEUV光を吸収して多価イオンとなりN⁺、N²⁺フラグメントが生成することを示し¹⁰⁾、さらに、Heの絶対2光子イオン化断面積の波長依存性を明らかにする^{11,12)}などの成果を上げてきた。

我々は、将来FEL光源と超短レーザーパルスを用いたポンプ・プローブ分光の実現が重要になると考え、レーザー発振器と加速用高周波との同期回路の製作などの技術開発を進めて来た。その結果、FELパルスとレーザーパルスを用いた時間分解2色イオン化収率計測法によって、2つのパルスの時間同期計測を可能とした。さらに2010年には、これらの実験研究で培ったFELとレーザーとの同期技術や計測技術に基づいて、超短レーザーパルスを用いて発生した高次高調波をアンジュレータに導入することによって、EUV領域の高次高調波を増幅し、フルコヒーレントなEUVパルスの発生に世界で初めて成功した。

現在では、X線領域まで発生可能なFEL光源として、米国スタンフォード大学SLACのLCLS¹³⁾、日本のSACLA¹⁴⁾が既にユーザー運転を開始している。また、DESYのEuropean-FELが2014年に完成を予定している。これらの施設では、硬X線~EUV領域の短波長光パルスを用いた利用実験が可能となり¹⁵⁾、今後の短波長領域における非線形光学過程の研究の展開が期待される。

2. SCSS試験加速器利用の一例：FEL光を用いたHeの2光子イオン化断面積の決定

我々は、SCSS試験加速器を光源として、Fig. 1に示した実験装置を用いて、N₂およびHeの多光子イオン化過程の研究を行った。EUV光パルス(1~10 μJ/pulse, 20 Hz)を、SiC製の $f = 100$ mmの凹面ミラーを用いて集光し、真空中に噴出した試料ガスビームに集光照射した。発生したイオン種を、飛行時間型質量分析計(Time-

Fig. 1 Experimental setup of the TOF-MS apparatus installed at SCSS Test Accelerator.

of-flight mass spectrometer: TOF-MS) によって質量選別し、検出した。EUV光のパルス出力は、ショット毎にそのスペクトル形状と強度が揺らぐため、TOF質量スペクトルとFEL強度を1ショット毎に同時に記録した。

SCSS試験加速器のEUV-FELは、51~62 nmの範囲で発振波長が可変である。Heの2光子イオン断面積は、58.433 nmに $2^1P(1s2p) \leftarrow 1^1S(1s^2)$ 共鳴遷移が存在するため、光電場が $10^{13} \sim 10^{14}$ W/cm²にまで強くなると、光強度に依存してイオン化断面積が変化することが⁶⁾、これまでの理論研究によって予想されていた¹⁶⁻¹⁸⁾。我々は、FEL光源が波長可変であり、かつ、高強度であるという特徴を生かして、Heの2光子イオン化収率を計測した。既にイオン化の絶対断面積が知られているH₂を参照試料¹⁹⁾として、H₂⁺とHe⁺を同時に検出し、収率を比較することによって、Heの2光子イオン化断面積を求めた。

分子線中のHeとH₂の混合ガス(分圧比 $p(\text{He}) : p(\text{H}_2) = 97 : 3$)に、EUV-FEL光(波長: 61.4 nm, 58.4 nm, 56.0 nm,

Fig. 2 Ionization yields of He at (a) 58.4 nm and (b) 61.4 nm. The height of the histogram in each pulse-energy bin shows the number of shots used to obtain the ionization yield.

53.4 nm)を集光した。これらの波長は、光子のエネルギーに換算すると20.2～23.2 eVとなり、 H_2 のイオン化ポテンシャル(15.43 eV)よりも高いため、 H_2 は1光子イオン化によって H_2^+ となる。 H_2^+ と He^+ の収量を比較することによって He の2光子イオン化の絶対断面積を求めることができる。

Fig. 3に、波長が(a)58.4 nmの場合と(b)61.4 nmの場合について、 He^+ の収率のFEL光のパルスエネルギーに対する依存性を示す。波長が58.4 nmの場合には、イオン化収率はFELのショット毎のパルスエネルギーに対して約1次の依存性を示している。これは、 $2^1P(1s2p)$ 準位を経由した共鳴2光子イオン化によって He^+ が生成するためである。一方、61.4 nmにおいては、2光子イオン化は非共鳴過程となるため、 He^+ の収率は、パルスエネルギーに対して、約2次の依存性を示している。

He のイオン化断面積 $\sigma_{He}^{(2)}$ は、今回の実験で得られた He イオン収率 Y_1 、 H_2 分子イオン収率 Y_2 、既に報告されている各波長における H_2 のイオン化断面積 $\sigma_{H_2}^{(1)}$ ¹⁹⁾を用いて次のように表すことができる。

$$\sigma_{He}^{(2)}(\lambda, I) = \frac{n_2 \cdot Y_1(\lambda, I) \cdot \sigma_{H_2}(\lambda)}{n_1 \cdot Y_2(\lambda, I)} \cdot \left(\frac{\lambda I}{hc} \right) \quad (1)$$

ここで、 n_1 、 n_2 は集光点での He と H_2 の濃度を示している。なお、本波長領域において、1光子のエネルギーは He の第一イオン化ポテンシャルより低いいため、1光子では He^+ は生成しない。

EUV-FEL光の集光強度が 10^{13} W/cm^2 の場合の He の2光子イオン化断面積 $\sigma_{He}^{(2)}$ として、波長ごとに、 $2.6(6) \times 10^{-52} \text{ cm}^4 \text{ s}$ (61.4 nm)、 $2.3(7) \times 10^{-52} \text{ cm}^4 \text{ s}$ (58.4 nm)、 $0.9 \times 10^{-52} \text{ cm}^4 \text{ s}$ (56.0 nm)、 $7(5) \times 10^{-52} \text{ cm}^4 \text{ s}$ (53.4 nm)の値が得られた。Fig. 3に示すように、得られた2光子イオン化断面積 $\sigma_{He}^{(2)}$ の値は、R-matrix Floquet法をもちいた理論計算による予

Fig. 3 Variation of the two-photon ionization cross-section of He as a function of the wavelength. The two-photon cross-sections are shown for the three different light field intensities: (□) $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (△) $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$, (○) $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. The theoretical two-photon cross-section curves obtained by R-matrix Floquet method are shown for the corresponding intensities: $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (dotted line), $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (dashed line), and $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ (solid line).

測¹³⁾に近い値を示している。

同様に、EUV-FEL光の集光強度が、 $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、 $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ の場合についても He の2光子イオン化断面積 $\sigma_{He}^{(2)}$ を求めた。その結果をFig. 3に示す。波長61.4 nm、56.0 nmにおいては、共鳴遷移からは波長が大きく離れているため、二光子イオン化断面積は、集光強度には大きく依存せず、ほぼ一定の値を示している。それに対して、58.4 nmの場合には、 $1s2p \leftarrow 1s^2$ 共鳴遷移が存在するため集光強度が増加するに従って二光子イオン化断面積が減少する。また、53.4 nmにおける2光子イオン化断面積も、FEL強度の増加とともに大きく減少しており、これは、 $1s3p \leftarrow 1s^2$ 共鳴遷移のためであると考えられる。

3. 高次高調波シード型EUV域FELの開発

3.1 フルコヒーレントFEL光源開発の必要性

EUV-FEL光源は、超短パルスレーザーの高次高調波光源と比較して、そのパルス強度が極めて高いという特徴を持つ。ところが、このFEL光は、自然放出光が増幅された自己増幅自発放射(Self-amplification of spontaneous emission: SASE)であり、1つの光パルスの中に複数のランダムに増幅されたマイクロパルスが存在し、それぞれのマイクロパルス間には決まった位相関係は存在しない。このため、発生したパルスの時間コヒーレンスが低いと予測されている。つまり、発生するパルス光の強度は極めて高いものの、そのパルス光の時間プロファイルと波長プロファイルがパルス毎に揺らぐという問題があるため、EUV-FELパルスの照射に伴って観測される多価イオン生成過程の解釈を難しいものになっている。

一方で、超短パルスレーザー光による高次高調波光源は、時間的にも空間的にもコヒーレンスが高いフルコヒーレント光であり、パルス毎の時間プロファイルと波長プロファイルは一定である。この高次高調波光の持つ優れた性質をFEL光に付与することができれば、高いパルス強度と安定した時間と波長のプロファイルを持つ、フルコヒーレント光源を実現できると期待される。そのためには、高次高調波をシード光としてアンジュレータ部に導入すれば良い。しかし、実際には、電子バンチと高次高調波パルスを、パルス幅(～200 fs)程度の時間重なりで重ね、かつ、空間ビームサイズ(～100 μm)程度の空間重なりで重ねなければならない、その作業は非常に難度の高いものである。実際、極端紫外域でFELのシード化を達成したという報告は国内外ともに無い状況であった。

3.2 SCSS試験加速器におけるシードしたEUV-FEL発生

パルスエネルギー30 mJ、繰り返し30 Hz、パルス幅160 fs(FWHM)の超短パルスレーザー光を $f = 4,000 \text{ mm}$ の平凸レンズでXeガスセルに集光し、高次高調波を発生させた。この時、超短パルスレーザーの発振器の繰り返し周波数を、238 MHzの加速器マスタークロックに同期するように、共振器内部に設置したピエゾ素子を取り付

けたミラーをフィードバック制御して動作させた。また、13次の高調波強度が最も強くなるように、高次高調波発生条件の最適化を行った。その高調波パルスは2枚のSiCの高調波分離ミラーと、2枚の白金製凹面ミラーによって、1台目のアンジュレタ内に集光した。加速した電子バンチとレーザーパルスの時間重なりは、ストリークカメラ(浜松ホトニクスFESCA-200)を用いて確認した。アンジュレタにおいて増幅されたシード光は、ドライブレーザーの基本波を除去するためのSnフィルターを透過した後、EUV分光器に導入され、ショット毎のスペクトルを記録した。

3.3 実験結果

ショット毎に得られた13次高調波スペクトルをFig. 4(左下)に重ねて示す。レーザー光パルスと電子バンチとのジッターのため、同期が実現された場合においてのみ、高次高調波が、そのスペクトル特性を維持したまま増幅されていることが分かる。シードした場合に得られたFELのパルスエネルギーは1.3 μJ であり、Fig. 4(左上)に示したシード光の強度(2 nJ)に比べると650倍となる。

また、高次高調波のスペクトルと比較すると、増幅されたシード型FELスペクトルの中心波長は0.3 nm程度短波長側にシフトして観測されていることが分かる。これはアンジュレタ内におけるシード光の増幅過程において、電子バンチ中の電子が加速されたり減速されたりした結果、マイクロバンチ構造の圧縮が起こったためと考えられる。

EUV域における高調波シード型のFEL光源を開発するためには、電子ビームとレーザーを高い精度で同期することが必要である。我々は世界で初めて、EUV域の高調波シード型FEL光源を実現した²⁰⁾。このようなシード型FEL光を用いれば、その高次高調波を発生させることによって、さらなる短波長化が可能となる。現在、シード型FEL光源の更なる短波長化のための技術開発が世界中で進められている^{†1,†2)}。我々は、このフルコヒーレントEUV-FELパルスを用いて、原子や分子の多光子イオン化などの非線形光学過程の計測を行う予定である。

Fig. 4 (a) Observed (left) and (b) simulated (right) spectra of EUV-FEL light. upper: the 13th high-order harmonic (dashed-dotted line); lower: EUV-FEL light seeded with the 13th high-order harmonic (solid line) and non-seeded SASE EUV-FEL (dotted line).

謝 辞

X線自由電子レーザー計画合同推進本部の皆様との共同研究として推進されたものである。ここに御支援、御協力をいただいた方々に感謝する。また、本研究の一部は、東京大学を中核機関とする文部科学省科学技術試験研究委託事業「XFEL光と先端レーザー光による原子・分子・クラスターのポンプ・プローブ計測」、エクストリームフォトンクス研究(理化学研究所)、ならびにPresident's Discretionary Fund of RIKENの支援を受けて行われた。

参考文献

- 1) H. Hasegawa, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, K. L. Ishikawa, and K. Midorikawa: Phys. Rev. A **71** (2005) 023407.
- 2) K. Hoshina, A. Hishikawa, K. Kato, T. Sako, K. Yamanouchi, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **39** (2006) 813.
- 3) Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett. **97** (2006) 153904.
- 4) Y. Nabekawa, T. Shimizu, Y. Furukawa, E. J. Takahashi, and K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 213904.
- 5) Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallow, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, *et al.*: Nature **431** (2004) 426.
- 6) Y. Wang, E. Grnados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca: Phys. Rev. Lett. **97** (2006) 123901.
- 7) M. Nishikino, M. Tanaka, K. Nagashima, M. Kishimoto, M. Kado, T. Kawachi, K. Sukegawa, Y. Ochi, N. Hasegawa, and K. Kato: Phys. Rev. A **68** (2003) 061802.
- 8) W. Ackermann, G. Asova, V. Ayvazyan, A. Azima, N. Baboi, J. Bahr, V. Balandin, B. Beutner, A. Brandt, A. Bolzmann, *et al.*: Nature Photonics **1** (2007) 336.
- 9) T. Shintake, H. Tanaka, T. Hara, T. Tanaka, K. Togawa, M. Yabashi, Y. Otake, Y. Asano, T. Bizen, T. Fukui, *et al.*: Nature Photon. **2** (2008) 555.
- 10) T. Sato, T. Okino, K. Yamanouchi, A. Yagishita, F. Kannari, K. Yamakawa, K. Midorikawa, H. Nakano, M. Yabashi, M. Nagasono, *et al.*: Appl. Phys. Lett. **92** (2008) 154103.
- 11) T. Sato, A. Iwasaki, K. Ishibashi, T. Okino, K. Yamanouchi, J. Adachi, A. Yagishita, H. Yazawa, F. Kannari, M. Aoyama, *et al.*: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **16** (2011) 161001.
- 12) T. Sato, A. Iwasaki, K. Ishibashi, T. Okino, K. Yamanouchi, J. Adachi, A. Yagishita, H. Yazawa, F. Kannari, M. Aoyama, *et al.*: Europhysics News **42**(5) (2011) 10.
- 13) P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. Bucksbaum, R. Coffee, F.-J. Decker, *et al.*: Nature Photon. **4** (2010) 641.
- 14) T. Ishikawa, H. Aoyagi, T. Asaka, Y. Asano, N. Azumi, T. Bizen, H. Ego, K. Fukami, T. Fukui, Y. Furukawa, *et al.*: Nature Photon. **6** (2012) 540.
- 15) A. A. Sorokin, S. V. Bobashev, K. Tiedtke, M. Wellhöfer, and M. Richter: Phys. Rev. A **75** (2007) 051402.
- 16) H. W. van der Hart and P. Bingham: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **38** (2005) 207.
- 17) L. A. A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **34** (2001) 545.
- 18) A. Saenz and P. Lambropoulos: J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **32** (1999) 5629.
- 19) Y. M. Chung, E. M. Lee, T. Masuoka, and J. A. R. Samson: J. Chem. Phys. **99** (1993) 885.
- 20) T. Togashi, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, M. Aoyama, K. Yamakawa, T. Sato, A. Iwasaki, S. Owada, T. Okino, K. Yamanouchi, *et al.*: Opt. Express **19** (2011) 317.

^{†1} URL: <http://www.elettra.trieste.it/science/top-stories/fisrt-laser-light-in-the-euv-region.html>.

^{†2} URL: <http://sflash.desy.de/> "An experiment at FLASH for a seeded VUV-FEL".