

「SACLA 利用装置提案課題」 報告書 2 (研究内容)

「SACLA 利用装置提案課題」で整備した「単分子光電子回折計」の 3D 図を図 1 に示す。

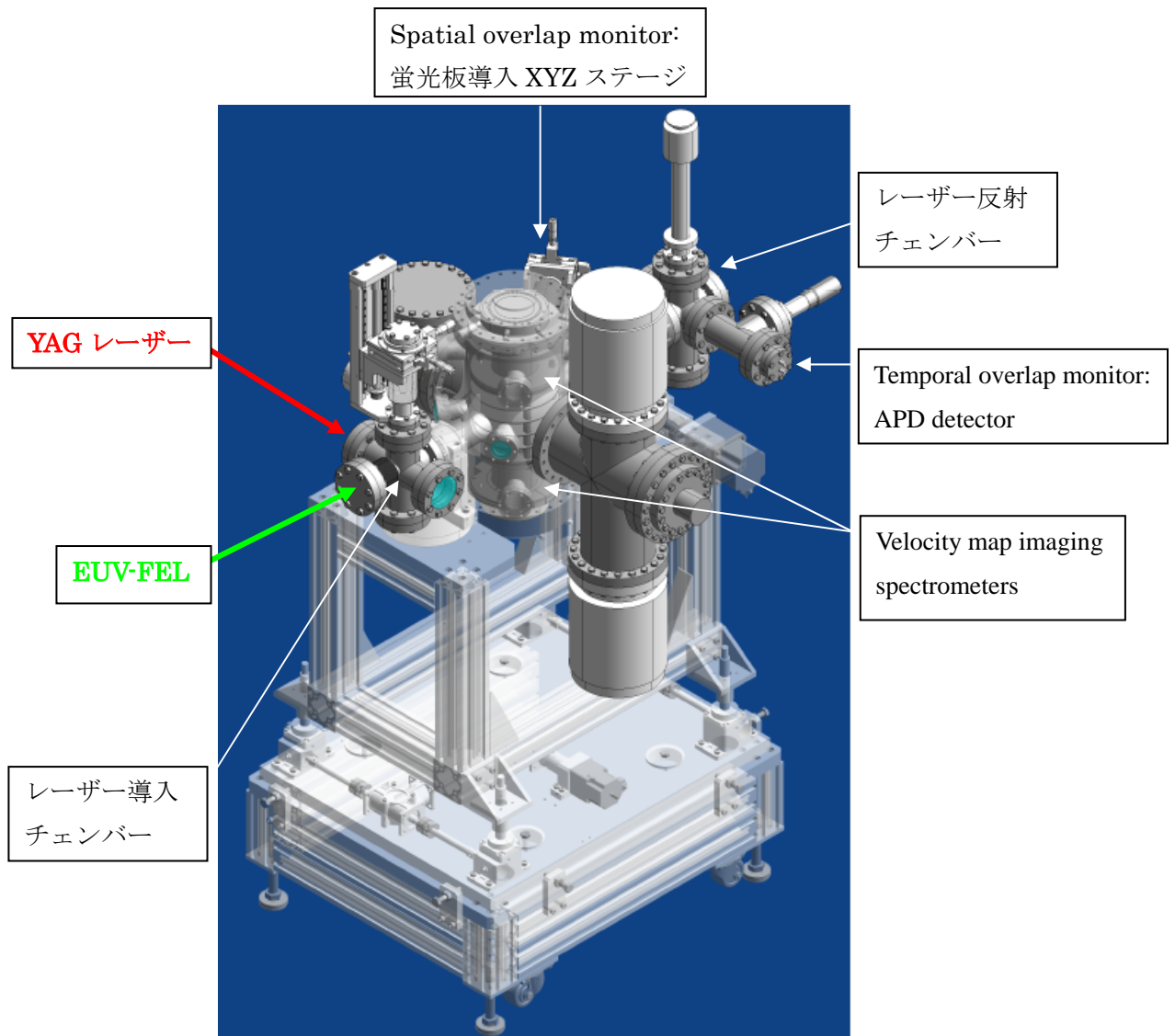


図 1 単分子光電子回折計の 3 次元図

パルス YAG レーザーは、レーザー導入チェンバー内に設置したミラーで反射され、衝突中心の集光点で EUV-FEL と合流する。衝突中心を通過した YAG レーザーおよび EUV-FEL は、レーザー反射チェンバー内のメッシュで反射され APD 検出器でこれらのパルス波形が測定される。衝突中心で生成された光電子および光イオンは、velocity map imaging spectrometers でこれらの運動量分布が測定される。パルス分子線は、紙面の左手奥から右手前に向かって衝突中心を通過して噴出される。

図1の「単分子光電子回折計」を用いて、試験加速器 SCSS からの EUV-FEL を利用した予備実験を実施したので、以下にその結果を報告する。

【分子配向用の YAG とプローブの FEL との temporal overlap】

レーザー反射チェンバー内のメッシュで反射され APD 検出器で測定されたレーザーパルス出力をデジタルオシロスコープで記録した。パルス YAG レーザーと EUV-FEL のパルス波形を図2に示す。パルス YAG レーザーのパルス幅 (FWHM=10ns) は広いので、temporal overlap の調整は容易である。パルス YAG レーザーのピークトップが EUV-FEL のパルスのピークトップと重なるように、パルス YAG レーザーの外部トリガーのディレイを変えて調整して temporal overlap を実現した (図2(c))。

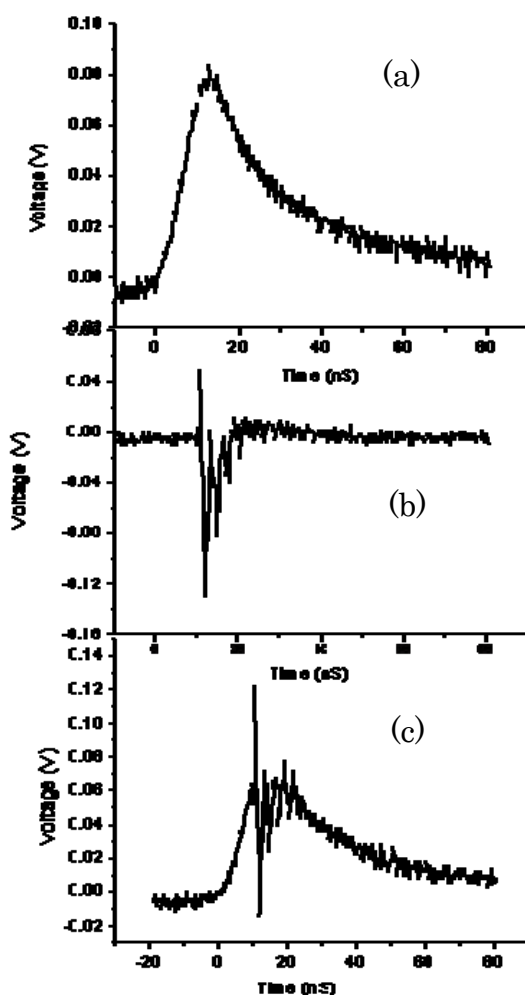


図2 レーザーのパルス波形

(a) YAG レーザーのパルス波形 (b) EUV-FEL のパルス波形

(c) (YAG レーザー)+(EUV-FEL) のパルス波形

【分子配向用の YAG とプローブの FEL の spatial overlap】

spatial overlap monitor 用の蛍光板を、衝突中心（集光点）を通過するように差し込んで、蛍光板で反射される IR の YAG レーザーをマイクروسコープで結像し CCD カメラでモニターした。図 3 に、CCD カメラで撮影した YAG レーザーの集光イメージを示す。この実験では、不調だったビーム・エキスパンダーを使っていないために、集光サイズは $\sim\phi 300\ \mu\text{m}$ となっている。ビーム・エキスパンダーを使った場合の集光サイズは、 $\sim\phi 100\ \mu\text{m}$ 以下になるように光学系は設計されている（この集光サイズでは、パルス YAG レーザーの強度は $\sim 1\text{TW}/\text{cm}^2$ になり、断熱的に分子を配向させることができる）。次のステップで、EUV-FEL が蛍光板に当たって発する蛍光をマイクروسコープで結像し CCD カメラでモニターすることを試みた。EUV-FEL の集光イメージを図 4 に示す。YAG レーザーの集光イメージが EUV-FEL の集光イメージを包括するように、YAG レーザービームを微調して同期実験をおこなった。

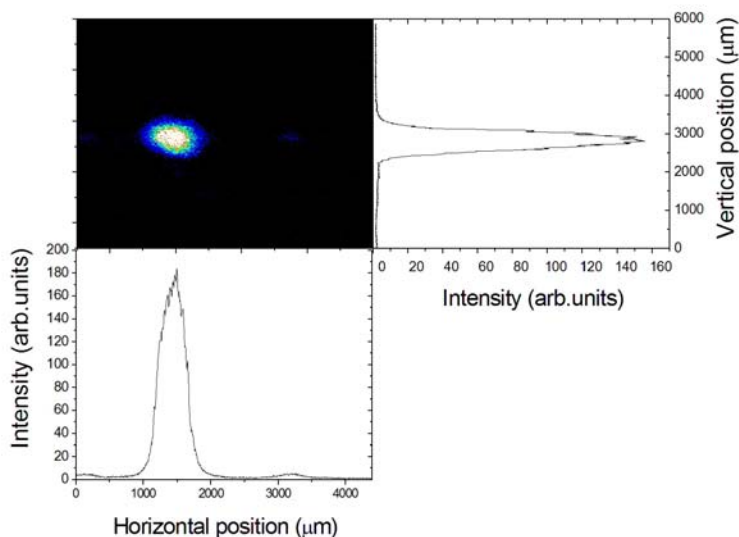


図 3 YAG レーザーの集光イメージ

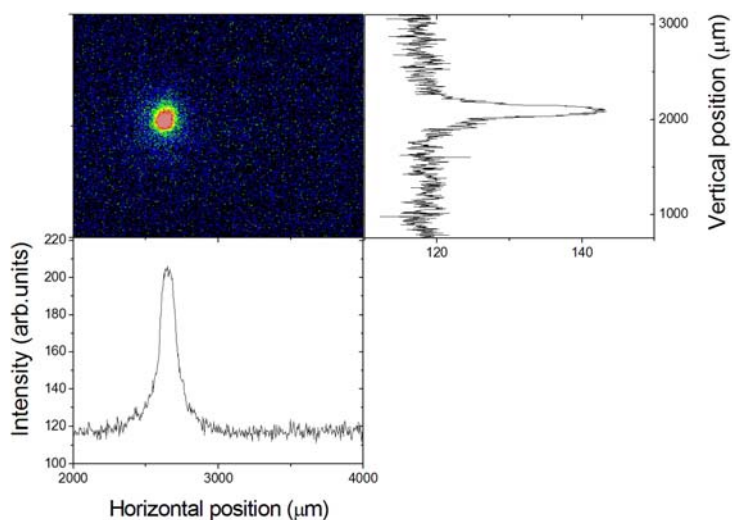


図 4 EUV-FEL の集光イメージ

【光電子の2次元運動量画像】

58nm(21.4eV)の EUV-FEL の光電離で放出される Ar3p 光電子 (運動エネルギー = 5.6eV) の 2次元運動量画像を図5の左図に示す。x-軸は EUV-FEL の進行方向で、y-軸は EUV-FEL の偏光方向。図5は、Ar3p 光電子の3次元運動量分布を x-y 面に射影したものとなっている。リングの外周の明るい部分の偏光方向に対する強度分布は、実験室系における Ar3p 光電子の角度分布を与える。

58nm の EUV-FEL と temporal & spatial overlap させたパルス YAG レーザーを照射して、Ar3p 光電子のサイドバンドの測定を試みた (図5の右図)。しかし、この図からわかるように、十分な強度でサイドバンドを測定することはできなかった。この原因は、パルス YAG レーザーの集光が不十分で、YAG レーザーの強度 ($\sim 0.1\text{TW}/\text{cm}^2$) が弱かったために、サイドバンドが十分な強度で現れなかったものと思われる。

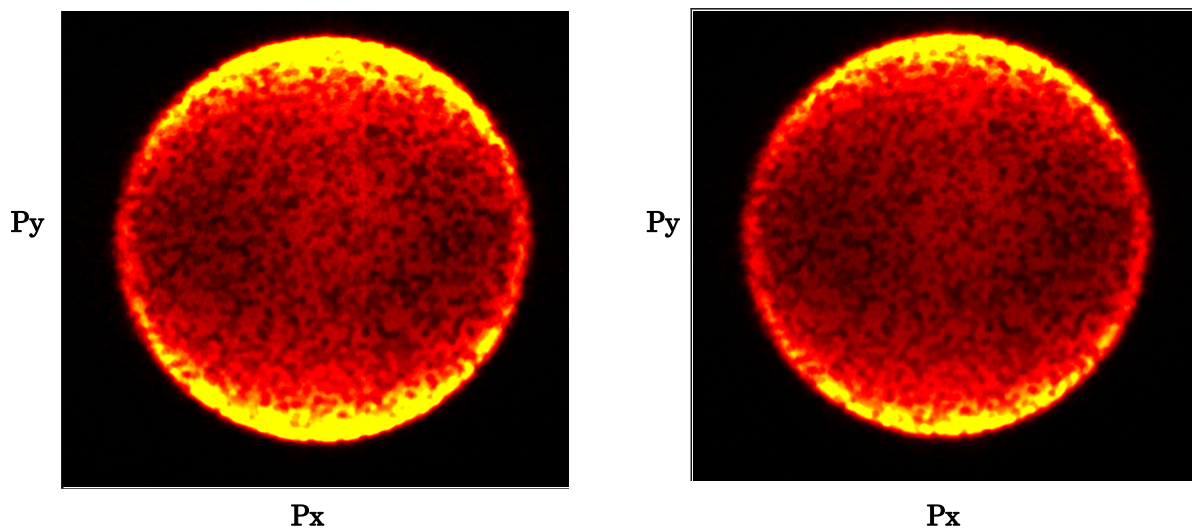


図5 Ar3p 光電子の2次元運動量画像

左図 : EUV-FEL 右図 : EUV-FEL + YAG

【解離イオンの2次元運動量画像】

CS₂ のパルス分子線に 60.2nm(20.6eV)の EUV-FEL を照射した時の time-of-flight mass spectrum を図6に示す。ここで、検出器のMCPに目的の解離イオン種に相当する flight time にパルス・ゲートを印加すると、目的の解離イオン種だけの2次元運動量画像を得ることが出来る。その一例 (CS⁺解離イオンの運動量画像) を図7の左図に示す。中心部の明るい円は運動エネルギーが小さなCS⁺解離イオンで、薄くて大きな円は運動エネルギーが大きなCS⁺解離イオンに相当する。60.2nmのEUV-FELとtemporal & spatial overlapさせたパルスYAGレーザーを照射して、YAGレーザーの偏光方向に配列したCS₂分子からのCS⁺解離イオンの運動量画像の測定を試みた(図7の右図)。しかし、この図からわかるように、YAGレーザー電場が在る無しに関わらず、CS⁺解離イオンの運動量画像に差異は見られなかった。この原因は、パルスYAGレーザーの集光が不十分で、YAGレーザーの強度 (~0.1TW/cm²) が弱かったために、ランダムに配向したCS₂分子を十分に配列させることができなかったためと思われる。

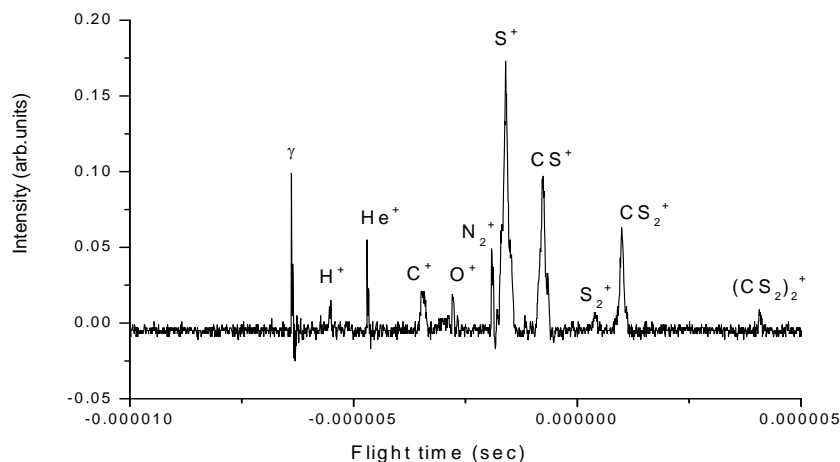


図6 CS₂分子のtime-of-flight mass spectrum

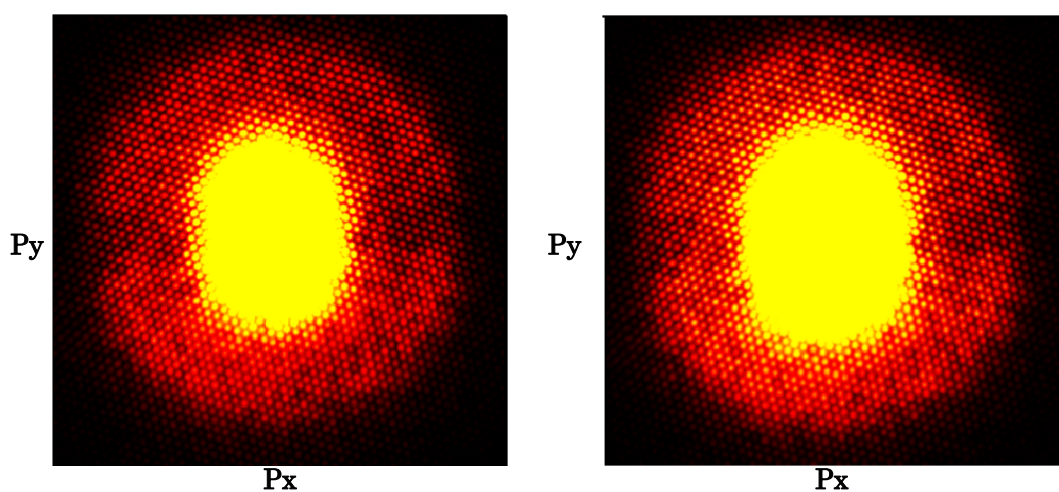
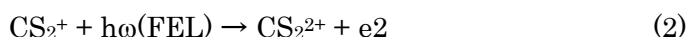
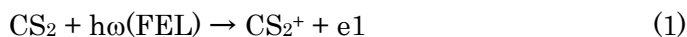


図7 CS⁺解離イオンの2次元運動量画像

左図 : EUV-FEL 右図 : EUV-FEL + YAG

【2色シグナルの検出】

CS₂のパルス分子線に60.2nm(20.6eV)のEUV-FELを照射した時の価電子軌道の光電子2次元運動量画像を逆Abel変換した画像を図8に示す。この運動量画像を変換して、光電子のエネルギースペクトルにしたものを図9に示す。この光電子スペクトルには、価電子軌道の光電子e1に加えて、以下の逐次イオン化過程によるCS₂⁺分子イオンからの光電子e2も現れている。



この実験で用いた、EUV-FELのパルス強度(~0.1TW/cm²)の領域では、2価の分子イオン(CS₂²⁺)生成の主たるチャンネルは逐次イオン化であることが、本光電子測定によって初めて直接的な方法で明らかにされたことになる。

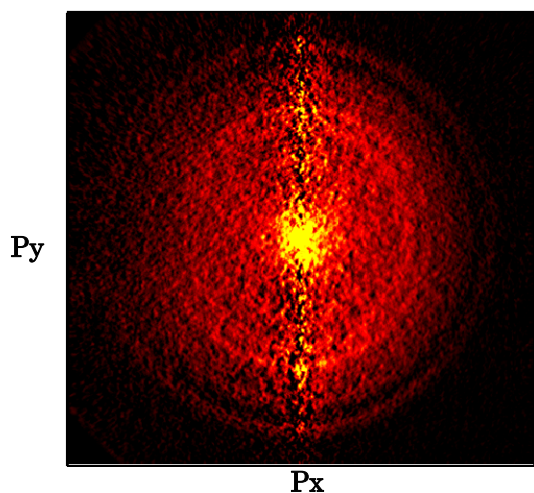


図8 CS₂分子の光電子の2次元運動量画像

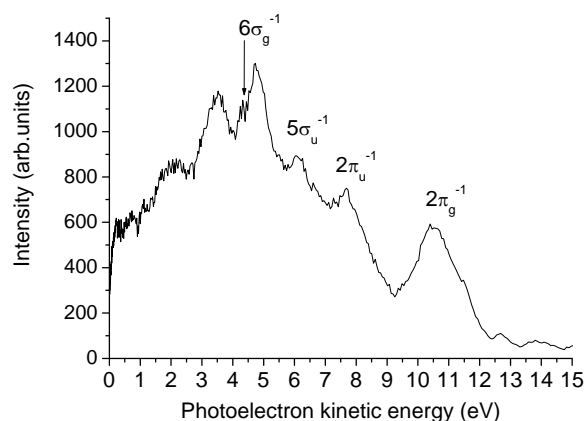


図9 CS₂分子の光電子スペクトル

60.2nmのEUV-FELとtemporal & spatial overlapさせたパルスYAGレーザーを照射して測定したCS₂分子の光電子2次元運動量画像を図10に示す。YAGレーザーを同期させることによって、運動エネルギー0.24eVの光電子に相当する中心近くの明るいスポットが新たに現れた。

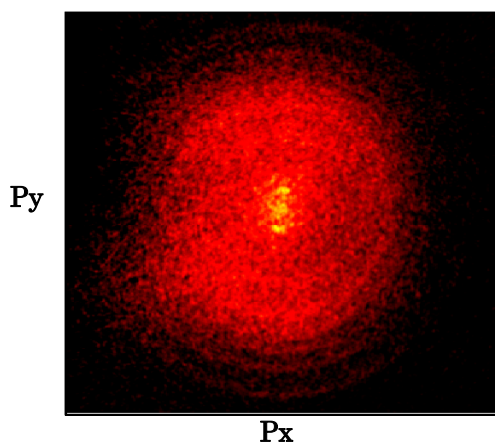


図10 CS₂分子の光電子の2次元運動量画像
EUV-FEL+YAG

この運動エネルギー0.24eVの光電子の由来は、以下の3段階によるものと同定された。



すなわち、その光電子は、1(FEL)+1(YAG)の Resonance Enhanced Multi-Photon Ionization (REMPI)によるものであることを確認した。この REMPI 過程は $nd\sigma_g$ リュードベルク軌道の YAG レーザーによる光イオン化なので、YAG レーザーの強度 ($\sim 0.1\text{TW}/\text{cm}^2$) が弱くとも、十分なシグナル強度が得られている。上の3段階の反応では、(4)と(5)過程が興味深い。(4)の過程は、 $\sigma \rightarrow \sigma$ の電気双極子遷移なので、EUV-FELの偏光ベクトルの方向に配列した CS_2^+ イオンのアンサンブルが選択的にリュードベルク状態へ励起されている。したがって、(5)の過程では、リュードベルク状態励起の配列した $\text{CS}_2^+(5\sigma_u^{-1}nd\sigma_g)$ イオンのリュードベルク軌道 ($nd\sigma_g$) を配列方向に平行な偏光ベクトルを持つ YAG レーザーで光イオン化している。この条件の下では、 $nd\sigma_g \rightarrow p\sigma_u$, $f\sigma_u$ 遷移が光学許容であるが、 $nd\sigma_g \rightarrow p\sigma_u$ は minor component なので、 $nd\sigma_g \rightarrow f\sigma_u$ 遷移が支配的となる。実際のところ、図10の運動エネルギー0.24eVの光電子に相当する中心近くの明るいスポットの部分の極座標表示したところの図11から明確にわかるように、運動エネルギー0.24eVの光電子の角度分布は、 $f\sigma_u$ 様の角度分布になっているが実証された。

ここで説明した実験成果：“配列した励起分子イオンからの光電子の角度分布測定”は、世界に前例が無い。

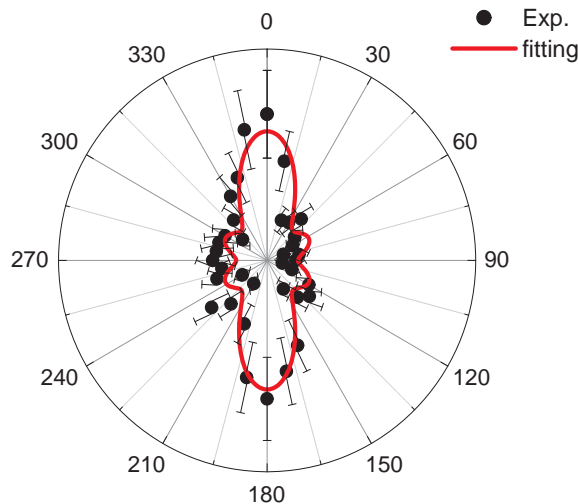


図11 運動エネルギー0.24eVの光電子角度分布の極座標表示
EUV-FEL および YAG レーザーの偏光ベクトルは $0^\circ - 180^\circ$ の方向。
励起 CS_2^+ イオンは $0^\circ - 180^\circ$ の方向に配列している。

ここで報告したように、光電子回折計の心臓部である Velocity Map Imaging spectrometer (VMI) は設計どおりの性能が得られていることを確かめた。ここでは、報告していないが、放射光軟 X 線アンジュレータ光を利用した VMI のテスト・オペレーションでも、設計どおりの性能が得られていることを確認した。さらには、EUV-FEL とパルス YAG レーザーとの temporal & spatial overlap を高精度で安定に実現する計測法も確立した。その結果の反映が、1(FEL)+1(YAG)の REMPI 実験の成功をもたらした。YAG レーザー用のビーム・エキスパンダーが不調だったために、高強度 (~1TW/cm²) のパルス YAG レーザーを使うことはできなかったが、高品質のビーム・エキスパンダーを導入することによって、これは容易に克服できる。

EUV-FEL では、「単分子光電子回折計の整備」の本来の目的である光電子の回折実験はできないので、「単分子光電子回折計の整備」を推進するために SACLA からの XFEL の早期の利用が望まれる。