

中赤外自由電子レーザーによる気体のトンネルイオン化電子のエネルギー計測

ENERGY MEASUREMENT OF ELECTRONS GENERATED FROM TUNNELING IONIZATION OF GAS MOLECULES DRIVEN BY A MID-INFRARED FREE ELECTRON LASER

川瀬啓悟^{#,A)}, 羽島良一^{A)}, 大垣英明^{B)}, 全炳俊^{B)}
Keigo Kawase^{#,A)}, Ryoichi Hajima^{A)}, Hideaki Ohgaki^{B)}, Heishun Zen^{B)}
^{A)} QST
^{B)} Kyoto University

Abstract

As the result of continuing development for the beam qualifications and intensity improvement of the free electron laser (KU-FEL) at the institute of advanced study in Kyoto University, the focal intensity of the infrared laser pulse is reached over 10 TW/cm² at the high charge operation with the photocathode electron gun. In such an intense field of the infrared radiation, the tunnel ionization of gas molecules easily happens, and it will be possible to make a study for the atomic and molecular sciences in the intense field at KU-FEL. In this work, we try to evaluate the FEL focal intensity in the low density gas by analyzing the energy of the electron emitted through the tunnel ionization. We report and introduce the experimental results and discussions so far.

1. はじめに

量子的な離散的エネルギーの集積として見られる多光子吸収によるイオン化と異なり、強い電場中ではトンネル効果により原子や分子が半古典的にイオン化することがケルディッシュにより示されている[1]。ここではパラメータ γ が次のように定義され、その現象が特徴化される。

$$\gamma = \omega \frac{(2m\varepsilon_i)^{\frac{1}{2}}}{eE_0} = \left(\frac{\varepsilon_i}{2U_p} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

ここで ω は輻射場の角振動数、 m は電子の静止質量、 ε_i は考えている原子あるいは分子のイオン化エネルギー、 e は素電荷、 E_0 は輻射場の電場である。ここで U_p はポンドロモティブエネルギーと呼ばれ、

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad (2)$$

で定義される輻射場に関する量で、レーザー集光においては、波長の自乗と集光強度に比例する。 γ はケルディッシュパラメータと呼ばれ、トンネルイオン化を特徴付けるだけでなく、イオン化現象において、トンネルイオン化領域($\gamma \ll 1$)か多光子吸収領域($\gamma \gg 1$)のどちらかという判断にもよい指標である[2]。

これまでにレーザー集光によるガス分子のイオン化については、長年の間、実験的な研究が数多く実施されてきた。初期には Agostini *et al.*により、Nd ガラスレーザーをキセノンガスの封入したチャンバーに集光し、イオン化で発生した電子のエネルギー分析をすることで多光子吸収を確認した[3]。Corkum *et al.*は、炭酸ガスレーザーを用いてトンネルイオン化による電子のエネルギー計測とそのスペクトルを示しており[4]、その結果は Delone *et al.*によるトンネルイオン化の理論的な解釈とよく一致した[5]。

ここでは直線偏光した電場によるトンネルイオン化で発生する電子スペクトルは γ の3乗で減衰することが示されている。従って、イオン化電子スペクトルのエネルギースペクトル測定からポンドロモティブエネルギーが算出でき、イオン化を引き起こしたレーザー集光強度を評価することができる。レーザーのパルスエネルギーは集光前に容易に計測できるため、集光強度から集光点領域でのレーザーの集光半径を見積もることができる。そこで本研究では、トンネルイオン化による発生電子スペクトルを計測することにより、集光した FEL の相互作用領域での集光半径を評価することを目的として実験を実施した。以下に、本実験の実施概要とこれまでに得られた実験結果とその考察について記述する。

2. 実験

実験は京都大学エネルギー理工学研究所の中赤外自由電子レーザー(KU-FEL)を用いて実施した。FEL を駆動する電子ビームはレーザーパルスにより光陰極でバンチ列として発生され、常伝導 S バンド電子線形加速器で加速される。電子ビームは 29.75 MHz 間隔で、7 μ s 程度のバンチ列として、FEL 発生装置へ輸送される。加速器の運転繰り返し数は 2 Hz である。FEL パルスは、光共振器とアンジュレータからなる FEL 発生装置で発生、増幅される。この実験では、中心波長 9 μ m の FEL を用いた。典型的なパルス長は FWHM で 150 fs と見積もられている[6]。電子ビームの繰り返しとパルス数に従い、FEL は数 μ s で強度を増大していき、電子パルス列の終端部で最大強度を示し、その後、光共振器の周回折損失で減少する三角波に近い時間構造のパルス列を持つ。共振器ミラーの結合孔から取り出された FEL パルス列はいくつかのミラーを用いて実験エリアまで輸送される。実験エリアでの FEL パルス列の総エネルギーは 4 mJ 程

[#] kawase.keigo@qst.go.jp

度である。パルス列形状とパルス間隔から評価した最大パルスエネルギーは 36 μJ と見積もることができる。FEL パルス列は反射防止コートされた ZnSe 窓を通して、密閉されたチャンバーへ入射される。このチャンバーは真空ポンプで排気され、パルスバルブにより間欠的にガスが導入される。チャンバー内に入射された FEL は、焦点距離 12.7 mm の ZnSe 非球面レンズで集光され、雰囲気中のガスを電離し、光電子を発生させる。Figure 1 に実験セットアップの概要を示す。なお、集光点における FEL のパルス長はチャンバー入射用窓とレンズの厚みの影響で 200 fs 程度であると見積もられる。

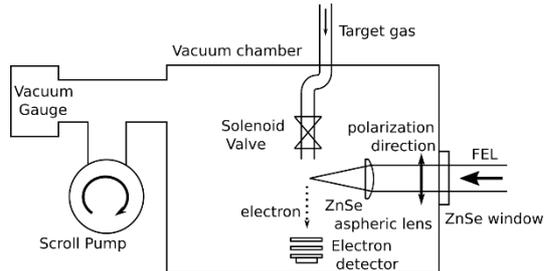


Figure 1: Schematic drawing of the experimental setup.

FEL と同期したソレノイドバルブ駆動で集光点直近でのガス放出を試みたが、バルブ構造体へのレーザー照射により発生するバックグラウンド信号が大きく、バルブ位置を焦点から遠ざけてガスを放出した。その際、同期動作では計測がうまく行かず、非同期で真空度を参照しながらガス放出してイオン化計測を実施した。

電子検出器は、KEK の間瀬グループが開発したマイクロチャンネルプレート(MCP)を用いた阻止電場の印加によるエネルギー分析が可能な検出器を参考に作製した[7]。直径 15 mm の開口を持つ2枚のステンレス鋼円板電極に独立に電圧を印加する。開口部はタングステンメッシュ(線径 0.03 mm, 100 mesh)をスポット溶接している。MCP には、ターゲットガスを真空チャンバー内で放出して実験を実施するため、最大動作圧力 1 Pa と比較的真空環境下で動作できる浜松ホトニクス製 F14844 を用いている。MCP には抵抗分割で MCP 出力部と MCP アノード部に高電圧を印加し、コンデンサを介して信号を取り出している。高電圧は 1.7 kV で、MCP 出力部と接地間で 1.62 kV、MCP 出力部とアノード部間で 0.08 kV がそれぞれ印加される。信号はオシロスコープ(Tektronix DPO3054)で時間波形として記録される。FEL 波形は焦電素子検出器で検出し、MCP 信号とともに記録される。測定では、低エネルギー電子の収集および陽イオン侵入の遮断のために第1電極に+5 V の電圧を印加し、電子のエネルギー分析のために第2電極に印加する遮蔽電圧を-5 V から-1000 V 程度まで変化させて電子を検出した。検出器は ICF70 真空フランジへ取り付けられており、真空チャンバーへ直接設置される。集光点から 40 mm の距離に第1電極が来るように設計されている。Figure 2 に作製した電子検出器の写真を示す。

このような実験セットアップで、標的ガスで満たされた真空チャンバー内において波長 9 μm の FEL パルス列を集光し、そこから発生する電子のエネルギースペクトルの計測を実施した。標的ガスとしては、窒素、アルゴン、

酸素を用い、0.07 – 0.4 Pa 程度のガス圧で計測を実施した。ガス圧の下限については MCP による有意な信号が得られる領域、上限は MCP の動作範囲である 1 Pa とした。

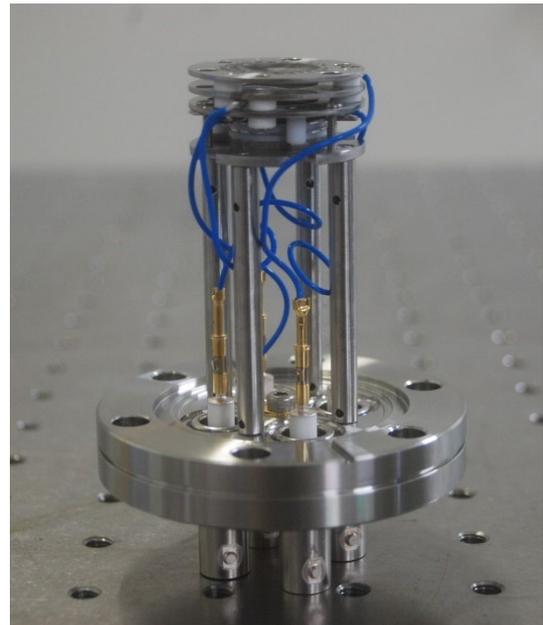


Figure 2: Electron energy analyzer.

3. 結果と考察

FEL を標的ガスに集光した時に発生する電子の MCP 信号波形は FEL 強度波形におおよそ追従し、遮蔽電圧が低いほど強い信号強度を示した。得られた MCP 信号波形のデータ処理としては、ある閾値電圧を設定し、閾値を超えた電圧のみを積分することで、電子の発生数に比例する量とした。FEL 強度波形を参照するために、0.5 μs ずつの積分区間で区切ってデータ評価を実施した。

窒素ガスからの FEL 集光によるトンネル電離で発生する電子の異なるガス圧で得られたエネルギースペクトルを Fig. 3 に示す。この実験では 400 V 以下の遮蔽電圧領域において指数関数的な信号減少が見られたが、500 V 以上では電氣的なノイズによるバックグラウンドが支配的であった。従って遮蔽電圧 400 V までのデータに対して、指数関数フィットにより、電子のエネルギースペクトルの指数関数の傾きとゼロエネルギーでの強度を得る。スペクトルの指数関数の傾き η は先行研究によりケルディッシュパラメータ γ を用いて

$$\eta = \frac{2\gamma^3}{3\hbar\omega} \quad (3)$$

と関係付けられている[5]。ここで $\hbar\omega$ は輻射場の光子エネルギーで本実験の場合、0.138 eV である。

時間分解したエネルギースペクトルの測定結果に対して指数関数フィットで得られるポンデロモータティブエネル

ギーは、標的ガス圧 0.2 Pa, 0.08 Pa において、それぞれ 563 ± 37 eV, 544 ± 44 eV と、誤差の範囲で一致するという結果を得た。しかしながら、ポンドロモティブエネルギーは定義式(2)よりレーザー強度に比例するが、本計測結果はレーザー強度に依らず一定値であることを示唆している。また、ゼロエネルギー電子発生量がレーザー強度の増加とともに増加しているが、最大レーザー強度時に低下する振る舞いが見られる。現在のところ、これらの振る舞いについての原因究明が本実験における未解決課題となっている。

この2つの基本的な問題はアルゴン、酸素についても共通してみられる振る舞いであり、実験セットアップ上の問題と考え、原因となる可能性を検討しているが、まだ特定には至っていない。これらの問題を解決することが本研究を進める上でまず必要な課題である。

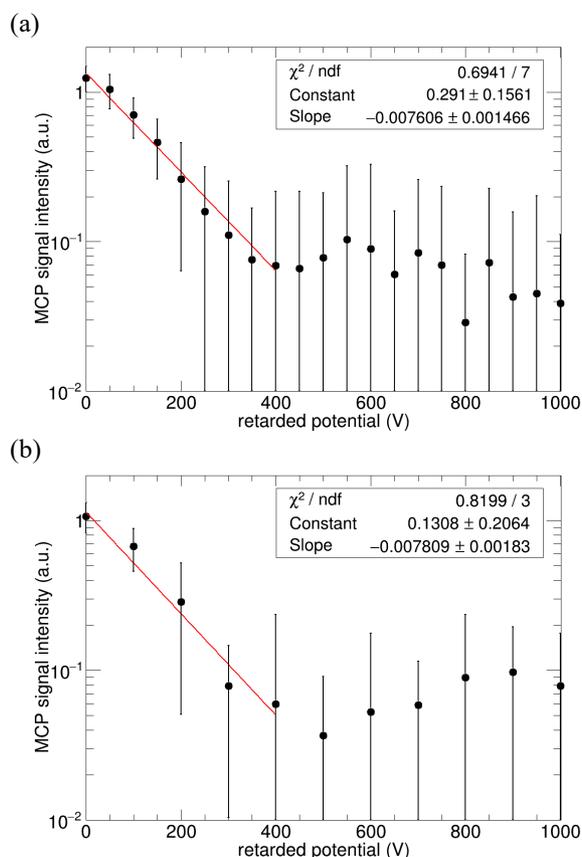


Figure 3: Electron energy spectra with respect to the retarded potential from the Tunnel ionization of N_2 gas. (a) shows the result at the pressure of 0.2 Pa and (c) shows at the pressure of 0.08 Pa. The red lines on each plot show the exponential fitting with the range from 0 to 400 V. It should be noted that the results at the potential range higher than 500 V are dominated by the electric background at that time.

4. まとめ

高強度赤外 FEL によるガス分子のトンネルイオン化で発生する電子のエネルギースペクトル計測から、FEL 集

光点の実験的評価を実施する研究を開始している。現状として、基本となるポンドロモティブエネルギーの評価がその定義の振る舞いと一致しない。この問題についての原因究明が本研究のまず解決すべき課題である。

謝辞

本研究は文部科学省平成 30 年度光・量子飛躍フラッグシッププログラム次世代レーザー基礎基盤研究「自由電子レーザーで駆動する高繰り返しアト秒光源のための基礎基盤技術の研究」(課題番号 JPMXS0118070271)の下で実施している。

参考文献

- [1] L.V. Keldysh, Sov. Phys. JETP 20, 1307 (1965).
- [2] P. Colosimo *et al.*, nature physics 4, 386 (2008), doi:10.1038/nphys914
- [3] P. Agostini *et al.*, Phys. Rev. Lett. 42, 1127 (1979), doi:10.1103/PhysRevLett.42.1127
- [4] P.B. Corkum *et al.*, Phys. Rev. Lett. 62, 1259 (1989), doi:10.1103/PhysRevLett.62.1259
- [5] N.B. Delone and V.P. Krainov, J. Opt. Soc. Am. B 8, 1207 (1991).
- [6] H. Zen, R. Hajima and H. Ohgaki, Sci. Rep. 13, 6350 (2023), doi:10.1038/s41598-023-33550-z
- [7] N. Fujita and K. Mase, J. Vac. Soc. 50, 583 (2007), doi:10.3131/jvsj.50.583