

# XFEL による希ガス原子の段階的多光子多重イオン化

東北大学 多元物質科学研究所 福澤 宏宣\*, 本村 幸治  
 京都大学大学院 理学研究科 永谷 清信  
 広島大学大学院 理学研究科 和田 真一  
 京都大学大学院 理学研究科 八尾 誠  
 東北大学 多元物質科学研究所 上田 潔

We have investigated multiphoton multiple ionization of argon and xenon atoms by 5 keV and 5.5 keV X-ray free-electron laser (XFEL) pulses provided by a new XFEL facility, the SPring-8 Angstrom Compact free electron LAsER (SACLA). We have identified that highly charged xenon ions with the charge states of up to +22 and +26 are produced at 5 keV and 5.5 keV, respectively. Understanding of ionization dynamics of heavy atoms exposed to high-intensity hard-X-ray beams provides useful input for future molecular imaging experiments using XFELs.

**Keywords:** X-ray free-electron laser, sequential multiphoton multiple ionization

## 1 はじめに

自己増幅自発放射 (Self-Amplified Spontaneous Emission; SASE) 型の自由電子レーザー (FEL) の発展に

Sequential multiphoton multiple ionization of rare-gas atoms by X-ray free-electron laser

Hironobu FUKUZAWA\* and Koji MOTOMURA (*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University*), Kiyonobu NAGAYA (*Department of Physics, Graduate School of Science, Kyoto University*), Shin-ichi WADA (*Department of Physical Science, Graduate School of Science, Hiroshima University*), Makoto YAO (*Department of Physics, Graduate School of Science, Kyoto University*), Kiyoshi UEDA (*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University*),

〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目1番1号 東北大学 多元物質科学研究所

TEL: 022-217-5383, FAX: 022-217-5380,

E-mail: fukuzawa@tagen.tohoku.ac.jp

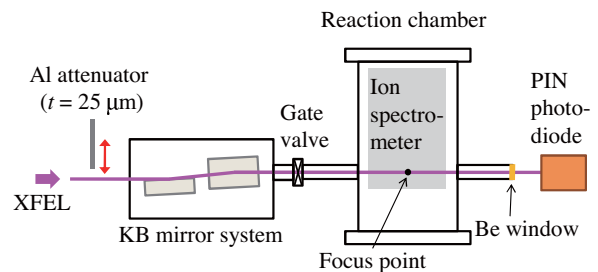


Figure 1 実験装置配置の概略図.

伴い、極短波長領域でのレーザー光を利用することが可能となり、その波長領域はついに X 線領域まで到達した。米国の X 線自由電子レーザー (XFEL) 施設 Linac Coherent Light Source (LCLS) に続き、日本にも XFEL 施設 SPring-8 Angstrom Compact free electron LAsER (SACLA) が完成し<sup>1)</sup>、非常に強力な極短 X 線パルスが利用可能となった。この XFEL パルスを利用すると、例えば化学変化において超高速で起こる個々の原子の動きのように、これまで見えなかった超微細、超高速な現象が見えるようになると期待されているが、これを実現するためには非常に強力な X 線パルスが原子によって散乱される様子を正しく記述することが必要である。しかし、このような強力 X 線はこれまで存在しなかったため、強力 X 線パルスの散乱を記述するための原子データを得ることが急務となっている。本稿では我々のグループが SACLA で行った、希ガス原子に XFEL を照射し、多光子多重イオン化過程を観測した研究<sup>2,3)</sup>を紹介する。

## 2 実験方法

実験は SACLA のビームライン BL3, 実験ハッチ EH3 で行った. 装置配置の概略を図 1 に示す. ビームラインに常設の Kirkpatrick-Baez (KB) ミラー集光系<sup>4)</sup>により  $1\ \mu\text{m}$  程度に集光した XFEL 光を, 超音速分子線として真空中に導入した試料ガスに照射し, 生成したイオンを飛行時間型質量分析器で検出した. 質量分析器はディレイライン型位置敏感検出器 (RoentDek HEX80) を備えている. イオン検出信号はパルス波形のまま高速デジタイザ (Acqiris DC282) で取り込み, ソフトウェア処理によりパルス検出時間を求め, 飛行時間と検出位置を算出する<sup>5)</sup>. イオン質量分析において, 飛行時間だけでなく検出位置情報も用いることで質量分解能を向上させている<sup>3)</sup>. 反応領域を通過した XFEL 光はベリリウム窓を通して大気中に引き出し, PIN フォトダイオードで検出することで光強度データ相対値を各 XFEL パルスごとに得た. イオン収量の強度依存性を広範囲に取得する測定では, KB ミラー集光系の上流にアルミ箔を挿入することで XFEL 光の強度を減衰させた.

図 2 に  $5.5\ \text{keV}$  の XFEL を照射して観測されたキセノン原子の飛行時間質量スペクトルを示す. 最大で +26 価もの多価キセノン原子イオンが, 同位体を分離して観測されていることが分かる.

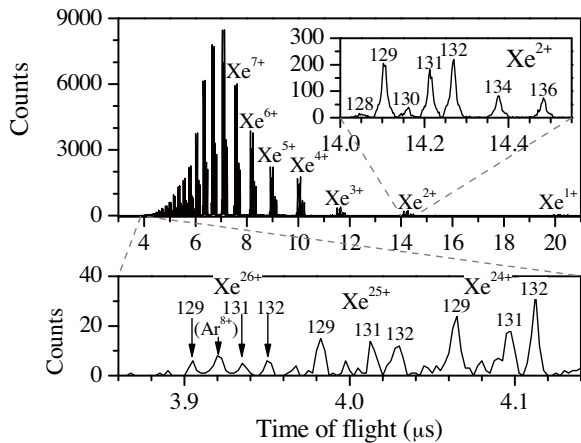


Figure 2 キセノン原子に  $5.5\ \text{keV}$  の集光 XFEL を照射して得られた飛行時間質量スペクトル.

## 3 結果と考察

### 3.1 アルゴン原子の 2 光子多重イオン化

図 3(a) に  $5.5\ \text{keV}$  の XFEL を照射して得られたアルゴン原子イオンの価数分布を示す. 最大で +10 価のアルゴン原子イオンが観測された. アルゴン原子に K 殻イオン化しきい値 ( $3.2\ \text{keV}$ ) よりも高エネルギーの X 線を照射すると, K 殻イオン化に引き続きおこるオージェ過程により価数が上昇する. 例えば, K 殻イオン化の後に  $\text{KL}_{2,3}\text{M}$  オージェ過程が起こると, 続いて起こる  $\text{L}_{2,3}\text{MM}$  オージェ過程により  $\text{Ar}^{3+}$  が生成し,  $\text{KL}_{2,3}\text{L}_{2,3}$  が起きた場合には  $\text{L}_{2,3}\text{MM}$  オージェ過程が 2 回起こり,  $\text{Ar}^{4+}$  が生成する<sup>6)</sup>. しかし, 1 光子の X 線吸収によって +10 価ものアルゴン原子イオンを生成することはない.

イオン収量が XFEL 光の強度に対してどのような依存性を持つか見てみよう. 図 3(b) には  $\text{Ar}^{3+}$ ,  $\text{Ar}^{4+}$ ,  $\text{Ar}^{8+}$  および  $\text{Ar}^{9+}$  の収量を XFEL 光のピークフルエンスに対してプロットした. 1 光子吸収によって生成する  $\text{Ar}^{3+}$  と  $\text{Ar}^{4+}$  の収量はピークフルエンスに対して 1 次の依存性を示すが,  $\text{Ar}^{8+}$  と  $\text{Ar}^{9+}$  の収量はピークフルエンスに対して 2 次の依存性を示すことが分かる. このことは,  $\text{Ar}^{8+}$  と  $\text{Ar}^{9+}$  は 2 光子吸収によって生成していることを示している.

なお,  $\text{Ar}^{3+}$  と  $\text{Ar}^{4+}$  の収量と  $\text{Ar}^{8+}$  と  $\text{Ar}^{9+}$  の収量の比から, 1 光子過程に対して 2 光子過程がどれだけ寄

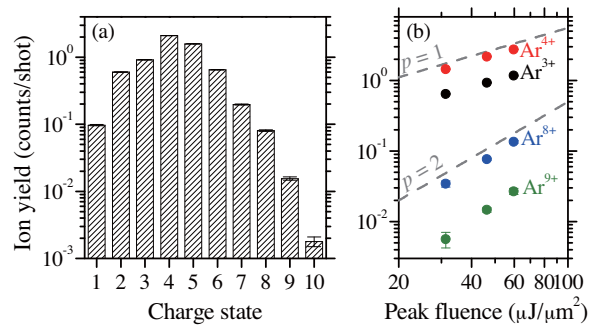


Figure 3 アルゴン原子に  $5.5\ \text{keV}$  の XFEL 光を照射した実験結果. (a) 価数分布. XFEL 光のピークフルエンスは平均  $47\ \mu\text{J}/\mu\text{m}^2$ . (b) イオン収量のフルエンス依存性. ‘ $p = 1$ ’ および ‘ $p = 2$ ’ とラベルした破線は, ピークフルエンスに対して 1 次および 2 次の依存性を持つ線を目安として表示したものである.

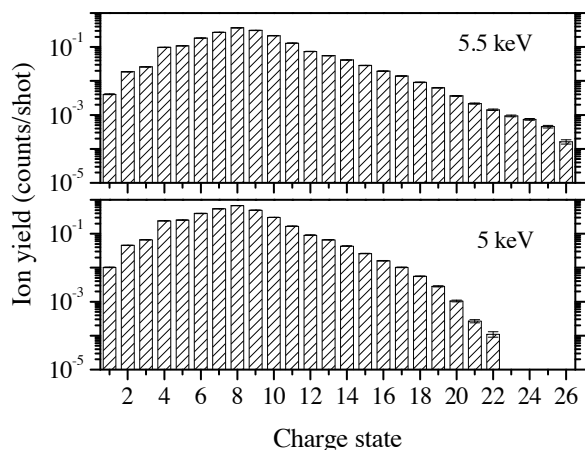


Figure 4 キセノン原子に 5 keV および 5.5 keV の XFEL 光を照射して得られた価数分布. XFEL 光のピークフルエンスはいずれも平均  $47 \mu\text{J}/\mu\text{m}^2$ .

与しているかを相対的に見積もることができる. このイオン収量比を本実験結果を良く再現する理論計算の結果と比較することで, XFEL パルスのピークフルエンス絶対値を決定することが可能となる<sup>2,3)</sup>. 本稿中で示すピークフルエンス絶対値はすべてこのようにして決定したものである.

### 3.2 キセノン原子の多光子多重イオン化

次に, X 線と強く相互作用する重原子の代表として, キセノン原子を試料とする. キセノン原子の L 殻吸収端は 5 keV 付近であり, 本研究で用いる光子エネルギーでの光吸収断面積はアルゴン原子と比べると 1 桁程度大きく, より多くの光子を吸収することが期待される. 図 4 に 5 keV および 5.5 keV の XFEL 光照射により得られるキセノン原子イオンの価数分布を示す. 5.5 keV では前述したように, 最大で +26 価もの多価イオンが観測された. キセノン原子に 5.5 keV の X 線を照射すると, L 殻の電子が光電子として放出されたのち, オージェカスケードにより電子が次々と放出される. 本実験の結果は, XFEL パルスを照射されたキセノン原子が, X 線吸収による光イオン化とオージェカスケードを, 10 fs 程度の XFEL のパルス幅の時間内に複数回繰り返して, 最大で 26 個の電子を放出したことを示している.

キセノン原子についてもイオン収量が XFEL 光の強度に対してどのような依存性を持つか見てみよう. 図 5 に  $\text{Xe}^{8+}$ ,  $\text{Xe}^{14+}$ ,  $\text{Xe}^{18+}$  および  $\text{Xe}^{24+}$  の収量を,

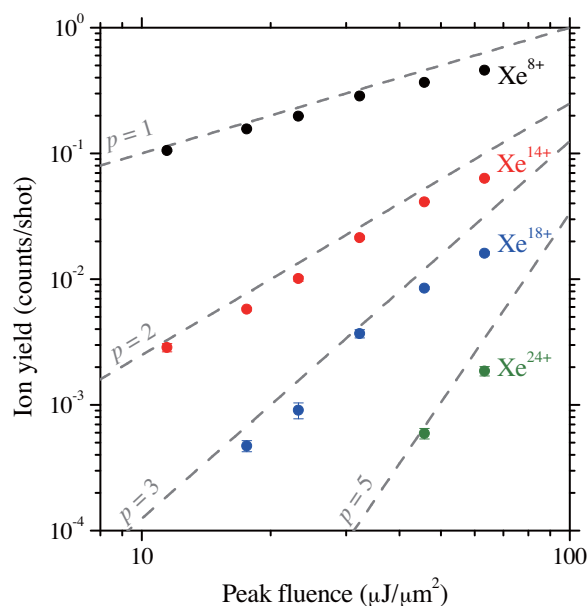


Figure 5 キセノン原子イオン収量のフルエンス依存性. XFEL の光子エネルギーは 5.5 keV. ピークフルエンスに対して, 1, 2, 3, 5 次の依存性を持つ線を目安として表示した.

XFEL 光のピークフルエンスに対してプロットした, 広範囲のピークフルエンス領域を得るため, KB ミラーの上流にアルミ箔を挿入し, XFEL 光強度を減衰させた測定も行った. 図 5 に示したそれぞれのイオンは, ピークフルエンスに対して異なる依存性を示しており, それぞれ異なる数の光子が関与していると考えられる. まず, 1 光子吸収で生成する  $\text{Xe}^{8+}$  に注目してみよう. 低ピークフルエンス領域では 1 次の依存性を示しているが, 高ピークフルエンス側では傾きが小さくなってきている. これはイオン化が飽和してきていることを示している.  $\text{Xe}^{14+}$  と  $\text{Xe}^{18+}$  はイオン化の飽和が起こるよりも低いピークフルエンス領域ではそれぞれ 2 次および 3 次の依存性を示している. これは  $\text{Xe}^{14+}$  と  $\text{Xe}^{18+}$  はそれぞれ 2 光子過程および 3 光子過程で生成していることを示している. 一方で  $\text{Xe}^{24+}$  はイオン化の飽和が起こる領域でしか観測されていない. このため, 図 5 だけからでは  $\text{Xe}^{24+}$  生成のために何個の光子が関与しているかを判別することが難しい. 本実験結果を良く再現する理論計算から, +24 価以上のキセノン原子イオンは光イオン化とオージェカスケードを 5 回繰り返して生成することが示されている<sup>2)</sup>.

光子エネルギー 5 keV では観測されたイオンの価数は最大で +22 価であった (図 4). 5.5 keV では +23 価までのキセノン原子イオンの L 殻電子を 1 光子でイオン化することが可能であるのに対して, 5 keV では +11 価までのキセノン原子イオンしか 1 光子 L 殻イオン化ができない. このため 5 keV では 5.5 keV ほど価数が上昇しないが, それでも +22 価まで価数が上昇するのは共鳴状態を経由することでイオン化が促進しているためだと考えられる<sup>3)</sup>. このような過程も 10 fs 程度の XFEL のパルス幅の時間内に進行している.

#### 4 まとめと展望

本研究から, SACLA の強力な X 線パルス照射された重原子では, SACLA の 10 fs のパルス幅の間に, X 線吸収により複数のオージェ電子を放出する過程を何度も繰り返して, 急激にイオン化が進行することが明らかになった. このことは, SACLA の非常に強力な X 線パルスを用いた構造解析では, このような重原子の動的な過程を正確に記述することが不可欠であることを意味する. 本稿では詳細は省いたが, 我々は強力 X 線パルス照射された重原子の挙動を理論的に記述することにも成功している<sup>2)</sup>. 本研究により, SACLA を用いた未知の物質の構造決定や構造の超高速変化を追跡する際に必要となる重要な知見の一つが得られた.

#### 〈謝 辞〉

本研究は文部科学省の X 線自由電子レーザー利用推進研究課題および X 線自由電子レーザー重点戦略研究課題, 科研費, 理化学研究所の SACLA 利用装置提案課題の支援を受け行われました. 参考文献<sup>2,3)</sup> の共著者の皆様, SACLA のスタッフの皆様にご感謝いたします.

#### 〈参 考 文 献〉

1) T. Ishikawa, H. Aoyagi, T. Asaka, Y. Asano, N. Azumi, T. Bizen, H. Ego, K. T. Fukui, Y. Furukawa, S. Goto, H. Hanaki, T. Hara, T. Hasegawa, T. Hatsui, A. Higashiya, T. Hirono, N. Hosoda, M. Ishii, T. Inagaki, Y. Inubushi, T. Itoga, Y. Joti, M. Kago, T. Kameshima,

H. Kimura, Y. Kirihara, A. Kiyomichi, T. Kobayashi, C. Kondo, T. Kudo, H. Maesaka, X.M. Maréchal, T. Masuda, S. Matsubara, T. Matsumoto, T. Matsushita, S. Matsui, M. Nagasono, N. Nariyama, H. Ohashi, T. Ohata, T. Ohshima, S. Ono, Y. Otake, C. Saji, T. Sakurai, T. Sato, K. Sawada, T. Seike, K. Shirasawa, T. Sugimoto, S. Suzuki, S. Takahashi, H. Takebe, K. Takeshita, K. Tamasaku, H. Tanaka, R. Tanaka, T. Tanaka, T. Togashi, K. Togawa, A. Tokuhisa, H. Tomizawa, K. Tono, S. Wu, M. Yabashi, M. Yamaga, A. Yamashita, K. Yanagida, C. Zhang, T. Shintake, H. Kitamura, N. Kumagai, *Nat. Photonics*, 6 (2012) 540.

2) H. Fukuzawa, S.-K. Son, K. Motomura, S. Mondal, K. Nagaya, S. Wada, X.-J. Liu, R. Feifel, T. Tachibana, Y. Ito, M. Kimura, T. Sakai, K. Matsunami, H. Hayashita, J. Kajikawa, P. Johnsson, M. Siano, E. Kukk, B. Rudek, B. Erk, L. Foucar, E. Robert, C. Miron, K. Tono, Y. Inubushi, T. Hatsui, M. Yabashi, M. Yao, R. Santra, K. Ueda, *Phys. Rev. Lett.*, 110 (2013) 173005.

3) K. Motomura, H. Fukuzawa, S.-K. Son, S. Mondal, T. Tachibana, Y. Ito, M. Kimura, K. Nagaya, T. Sakai, K. Matsunami, S. Wada, H. Hayashita, J. Kajikawa, X.-J. Liu, R. Feifel, P. Johnsson, M. Siano, E. Kukk, B. Rudek, B. Erk, L. Foucar, E. Robert, C. Miron, K. Tono, Y. Inubushi, T. Hatsui, M. Yabashi, M. Yao, R. Santra, K. Ueda, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 46 (2013) 164024.

4) H. Yumoto, H. Mimura, T. Koyama, S. Matsuyama, K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Sato, T. Tanaka, T. Kimura, H. Yokoyama, J. Kim, Y. Sano, Y. Hachisu, M. Yabashi, H. Ohashi, H. Ohmori, T. Ishikawa, K. Yamauchi, *Nat. Photonics*, 7 (2013) 43.

5) K. Motomura, L. Foucar, A. Czasch, N. Saito, O. Jagutzki, H. Schmidt-Böcking, R. Dörner, X.-J. Liu, H. Fukuzawa, G. Prümper, K. Ueda, M. Okunishi, K. Shimada, T. Harada, M. Toyoda, M. Yanagihara, M. Yamamoto, H. Iwayama, K. Nagaya, M. Yao, A. Rudenko, J. Ullrich, M. Nagasono, A. Higashiya, M. Yabashi, T. Ishikawa, H. Ohashi, H. Kimura, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 606 (2009) 770.

6) K. Ueda, E. Shigemasa, Y. Sato, A. Yagishita, M. Ukai, H. Maezawa, T. Hayaishi, T. Sasaki, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 24 (1991) 605.