

修士学位論文

TW レーザーを用いた多価イオン生成過程の研究

平成 14 年度

広域科学専攻相関基礎科学系

16923

島田 紘行

指導教官 山崎 泰規

TW レーザーを用いた多価イオン生成過程の研究 (要旨)

16923 島田 紘行

指導教官 山崎 泰規

はじめに

強光子場中の原子の振る舞いは近年多くの人々の興味をひきつけている。水素原子の 1s 電子を感じる電場に匹敵する強さの振動電場は既に実現されており、そのような場の中では多電子原子は容易に多重イオン化される。このような多重イオン化の際、途中に生成されるイオンの電子状態は今まであまり議論されてこなかったが、これが荷電分布や光電子スペクトルに大きな違いをあたえる可能性が指摘されている [1]。

本研究では強光子場中の Ar の多重イオン化の実験を行い、荷電分布と磁気量子数に関する考察を行った。

実験

近赤外のフェムト秒テラワットレーザー (波長 775 ± 8 nm、時間幅 190 fs、パルス当たりのエネルギー 160 mJ) から得られた光を超高真空槽内の軸外し放物面鏡で集光し (ビームの直径約 $130 \mu\text{m}$)、ピーク強度 $1.25 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ の強光子場を得る。この強光子場中で Ar を多重イオン化し、飛行時間 (TOF) 型分析器で価数選別した。イオン検出には microchannel plate (MCP) を電流モードで使用した。このようにして得られた TOF スペクトルとその積分波形 (ステップの高さが収量に比例する) を図 1 に示す。

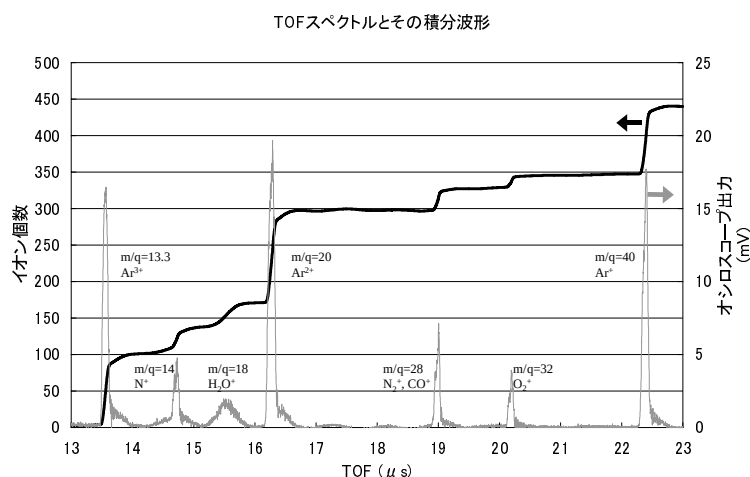


図 1

収量の計算

反応時間の逆数に対してイオン化レートが非常に大きいため、収量は単純にレートに比例しない。また、光強度の時間的空間的分布も考慮に入れる必要があるため、光のパルス

波形を考慮に入れてレート方程式を数値積分し、測定した光強度の空間的分布に従って積分した。イオン化レートは磁気量子数 m に大きく依存すると予測されるため、途中に生成されるイオンの電子状態をどうとるかにによって、得られる価数分布は大きく異なる。図 2,3 には 2 つの極端な場合の計算結果を示した。図 2 は途中に生成されるイオンの、 $m=0$ である 1 電子軌道に常に電子がいる場合に相当する。一方、図 3 は $\text{Ar}^{(2-5)+}$ の $m=0$ の 1 電子軌道は空であるとした計算結果である。

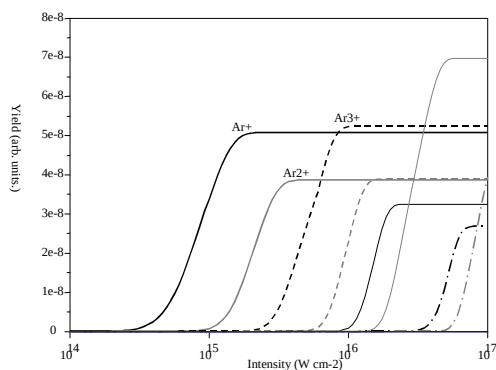


図 2

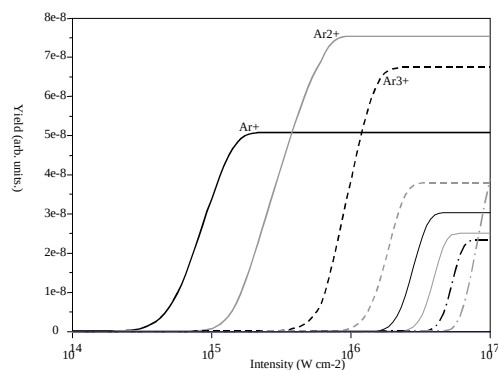


図 3

考察

簡単なモデルとして電磁場を断熱的に変化するものとして取り扱い、途中生成されるイオンの電子状態の考察を行った。その結果より、Ar から生成された 3 価イオンの $3p(m=0)$ 軌道に電子が存在するかどうかは、Stark split の大きさと束縛電子間の Coulomb 相互作用の大小関係で規定されることが考えられる。また、これまで考慮に入れていなかったが、 $3s$ 軌道の寄与も無視できないことも判明した。

参考文献

[1] R. Taieb *et al*, Phys. Rev. Lett. **87**, 053002 (2001)

目次

1. はじめに.....	1
2. 実験の概要	3
3. 実験装置.....	4
3-(a) フェムト秒テラワットレーザー	4
3-(b) 超高真空槽	13
3-(c) 飛行時間 (time-of-flight, TOF) 型分析器	15
3-(d) MCP.....	18
4. 実験	21
4-1. ターゲットガスの調整とイオン収量	21
4-2. P_b とピーク幅との関係	26
5. 考察	30
5-1. 収量の計算値との比較	30
5-2. 強光子場中のイオンの固有状態 (断熱的取り扱い)	35
5-3. Ar のイオン化過程と生成された状態	40
5-4. 考察のまとめ.....	45
6. まとめと展望	46
Appendix.....	47
参考文献	50

1. はじめに

レーザー技術の発展に伴い、従来では実現することの難しかった非常に強い光の発生が可能になってきた。最近の CPA (chirped pulse amplification) 法 [1] に代表される、大きなエネルギーをもった超短光パルスの発生法を用いることで、瞬間的な光強度が $10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ を越えるような光は現在容易に手に入る。

このような強光子場中に原子や分子がさらされると、様々な現象を引き起こすことが知られているが、それらの現象の中で最も基本的かつ重要であるのがイオン化である。強光子場中のイオン化の問題は古くから多くの人々の興味をひきつけてきた。たくさんの研究がなされてきたが、それらの研究の中で最も先駆的かつ重要なものの一つが 1965 年になされた Keldysh の研究である [2]。今日では広く知られている、光強度が上がるにつれて外部電磁場の断熱的取り扱いが正しい記述を与えるという議論は、彼の結果に基づくものである。このような、外部電磁場の断熱的取り扱いのもとでのイオン化の記述はどのようなものであるかという、ゆっくり変化する外部電場によって歪められた原子ポテンシャルの中を電子が運動し、あるときバリアの中をトンネリングして連続状態へと移る、といったものになる (fig. 1-1)。このトンネリングイオン化のレートはよく研究されており、完全に定量的とはいえないものの、桁などは正しい結果を与えるものとして広く使われている [3]。

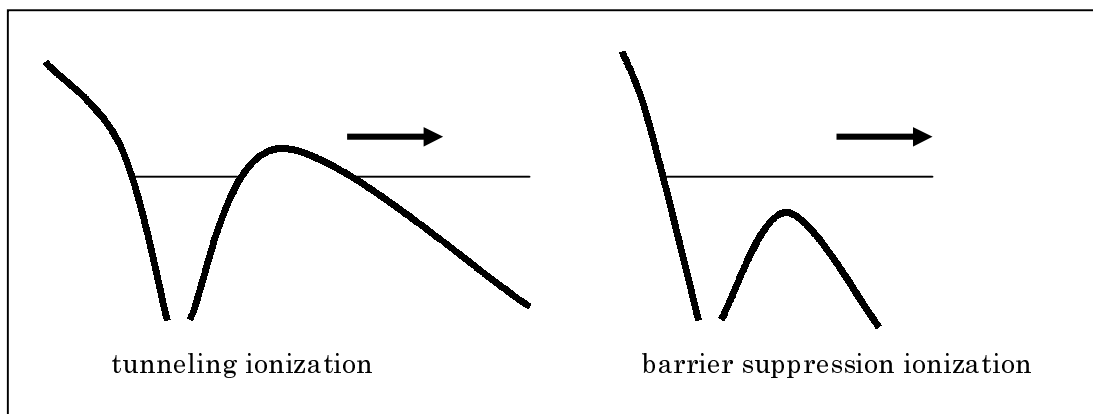


Fig. 1-1: 強光子場中イオン化の断熱的記述

外部電磁場の断熱的取り扱いのもと、更に光強度を増していくとどうなるか？ バリアの頂点の高さは光強度と共に下がっていき、あるところで、頂点の高さは電子の束縛の深さと一致する。これよりも光強度を上げていくと、最初に束縛されていた電子は古典力学的にもイオン化が可能になる。これは barrier suppression ionization (BSI) とよばれている [4]。簡単な考察から、BSI が起こり始めるような電場振幅 F_{BSI} は次式で表されることが分かる。

$$F_{\text{BSI}} = \frac{I_p^2}{4Z},$$

ここで I_p はイオン化ポテンシャルで、 Z はコアの電荷である。

トンネリング領域に比べると BSI 領域でのイオン化レートは研究の歴史が浅く、近年になって簡単な原子に対して静電場中でのレートがいくつか計算されたに過ぎない。トンネリングレートを拡張した形式のものも提出されてはいるが、満足な結果を与えるものではない。

一方、現在広く使われているトンネリングレートは、自由な原子の 1 電子軌道から連続状態への遷移の形で書かれている。これは、始状態の磁気量子数に非常に大きく依存する。ところが、高い光強度での多重イオン化においては、途中生成されるイオンの磁気量子数の分布がどのようなものになっているかは現在までのところ全く明らかになっていない。更に、Stark effect の影響を考慮に入れると、自由な原子を始状態にとった議論が適切であるかという疑問もある。

この研究においては、 $10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ を越える強度の赤外光を Ar に照射して多重イオン化を起こし観測した。その結果から、強光子場中で Ar 原子とそのイオンがどのような状態にありどのようにイオン化されるかについての考察を行った。

2. 実験の概要

フェムト秒テラワットレーザーから発生した光を集光して、瞬間的に $10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ 以上の強光子場を発生させる。この強光子場にさらされた Ar 原子は多重イオン化されるが、このように生成された様々な価数のイオンを飛行時間 (TOF) 型質量分析器と microchannel plate (MCP) の組み合わせで検出する (fig. 2-1)。イオンを引き出すための静電場を光の偏光方向にとることで、イオンの価数のみならず、生成されたイオンの運動量の偏光方向成分の大きさも同時に測定が可能である。

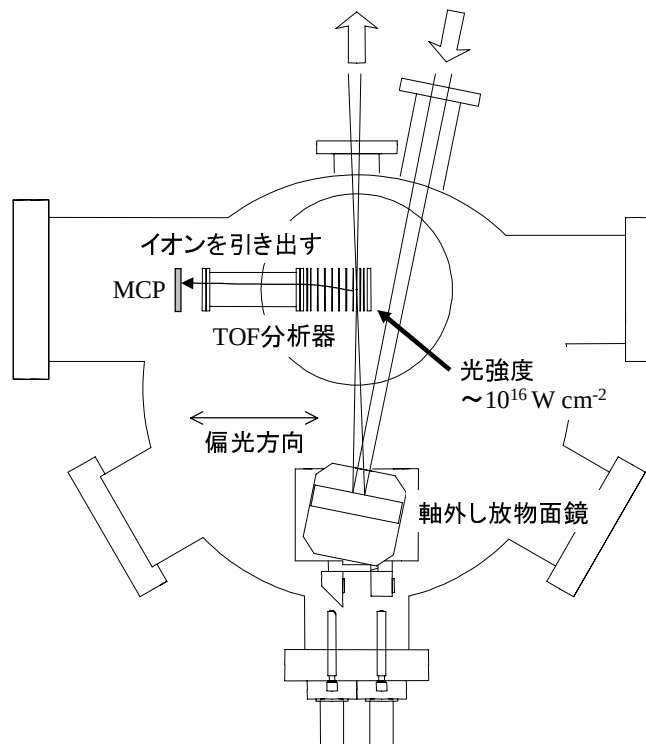


Fig. 2-1 : 実験装置の概略図。軸外し放物面鏡で集光された光の強度は $10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ に達し、Ar を多重イオン化する。生成されたイオンは偏光方向と同一の向きの静電場で引き出された後、MCP で検出される。TOF の測定から、Ar イオンの荷電状態と、偏光方向の運動量成分がわかる。

3. 実験装置

実験に用いられた装置は、(a)フェムト秒テラワットレーザー、(b)ガスターゲット、(c)飛行時間型分析器の 3 つの部分からなる [5-7]。

(a) フェムト秒テラワットレーザー

まず大強度の短パルス光発生 の原理について簡単に触れておく。

従来、大強度光の発生は増幅媒質の損傷閾値によって制限されてきた。この制限は、損傷閾値にまで増幅した幅の長いパルスを、透過型でない光学素子で時間的に圧縮できれば克服できる。このような増幅は chirped pulse amplification (CPA) 法の発見によって可能となった[1]。CPA の基本的な原理は次のようなものである (fig. 3-1)。

1. 増幅したい光短パルスを、反平行な 2 つの回折格子を通すことにより正の群速度分散を与え線形にチャープさせる (ストレッチャ)
2. チャープを与えられたパルス光は時間幅が増加しているためにパワーが下がる。この光を損傷閾値程度にまで増幅する
3. 増幅されたチャープ光は、平行な回折格子対によって負の群速度分散が与えられ、線形チャープは元に戻り再び短パルスとなる (コンプレッサ)

コンプレッサはパルス幅を元に戻す働きがあるため、この部分の調整は短パルス及び高ピーク出力を得るために非常に重要である。平行な回折格子対の光学的性質や、ミスマインメントがコンプレッサに与える影響については[8-10]に詳しく論じられている。

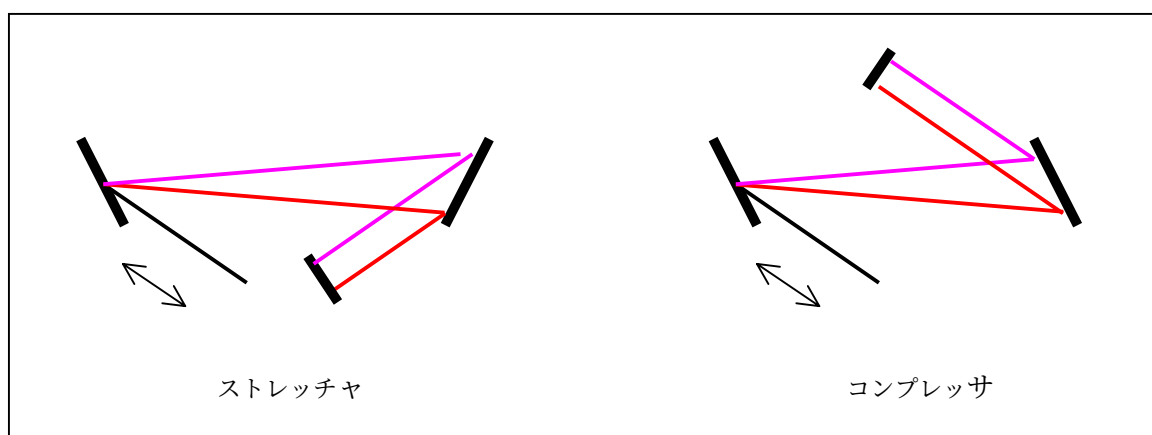


Fig. 3-1 : Chirped pulse amplification (CPA) 法で用いられる stretcher と compressor の図。群速度分散を変化させることでパルスの時間幅を変えられる。

今回の実験で用いたレーザー装置は、シード光発生部分と増幅部分との 2 つの部分に大

別できる (Fig. 3-2)。シード光発生部分には Clark MXR 製 CPA2001 を用いた。この部分は、LD によって励起された Er ファイバーレーザー (発振部)、上に述べたストレッチャ、YAG レーザーによって励起された再生増幅器からなる。光の波長は 775 ± 7.8 nm (FWHM)、偏光状態は直線偏光、パルス幅約 1 ns、パルス当りのエネルギー約 1 mJ であり 10 Hz で運転される。

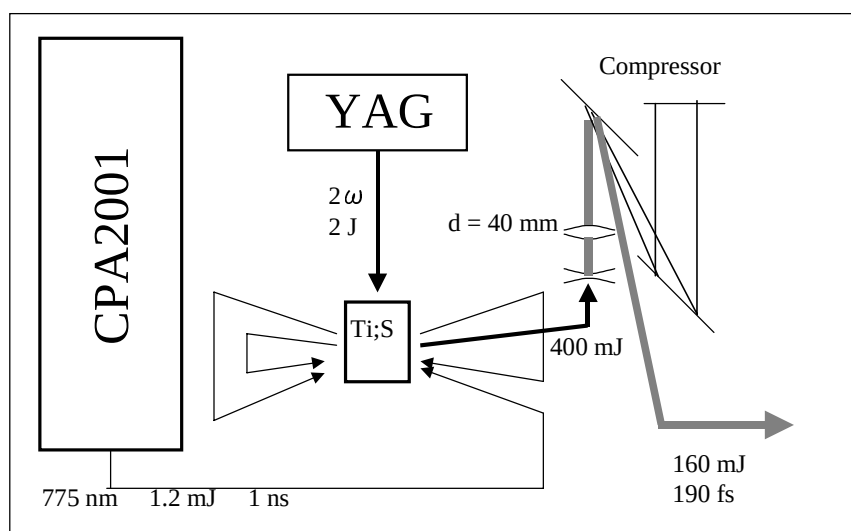


Fig. 3-2 レーザー装置の概要

このようにして得られた光は、外部に設けた 4-pass amplifier で更に増幅される。この増幅器の媒質は Ti:Sapphire であり、広帯域の媒質として短パルスレーザーに近年広く用いられている。この Ti:S 結晶は、約 2 J の YAG の 2 倍波で励起され、入射したシード光は約 400 mJ にまで増幅される。

4-pass amplifier で増幅された光はビームエキスパンダで直径約 40 mm に広げられた後、コンプレッサに入る。ここでパルス幅は 190 fs (FWHM) に圧縮される (fig.3-3)。コンプレッサでは回折の 1 次光だけを取り出すことになるため、0 次光などが失われてしまうために生ずるロスが避けられない。本装置においても Compressor 入射時に 400 mJ あった光は、通過後に約 160 mJ に下がってしまう。

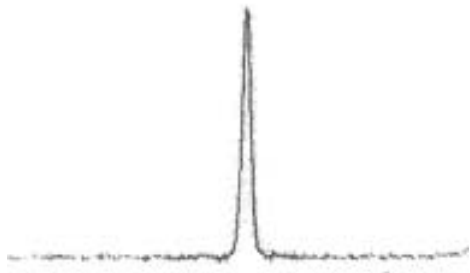


Fig. 3-3 : auto correlator で測定したパルス波形 (190 fs FWHM)

このようにして得られた短パルス光は、熔融石英窓を通して超高真空槽内に入射し、軸外し放物面鏡 ($F = 300 \text{ mm}$) によってガスターゲット上に集光される (fig. 3-4)。集光の様子は減光された上で射出方向に置いた CCD を用いて測定される。放物面鏡は XY ステージ上に置かれており、真空槽の外側から操作が可能である。このようにして得られたビームプロファイルを fig.3-5 に示す。

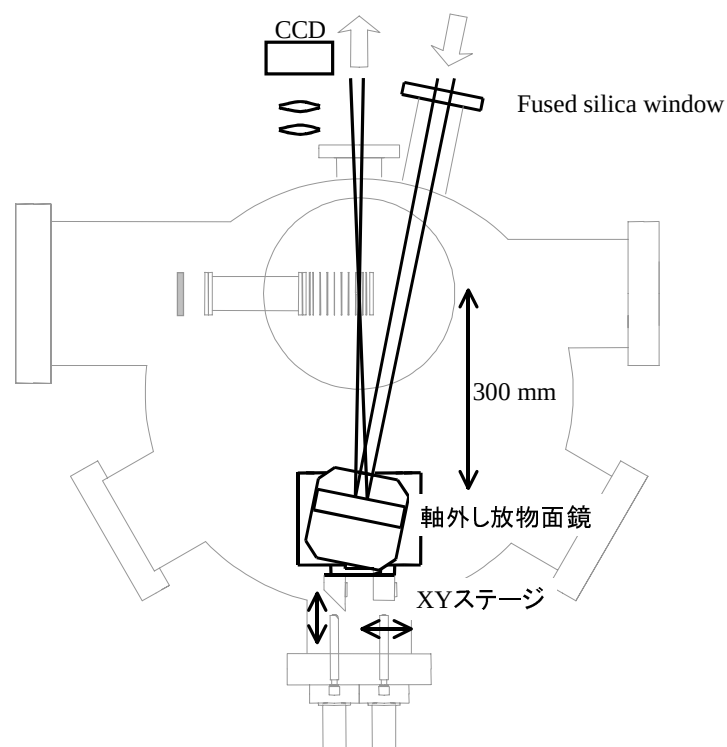


Fig. 3-4 : レーザーの集光点付近の装置図

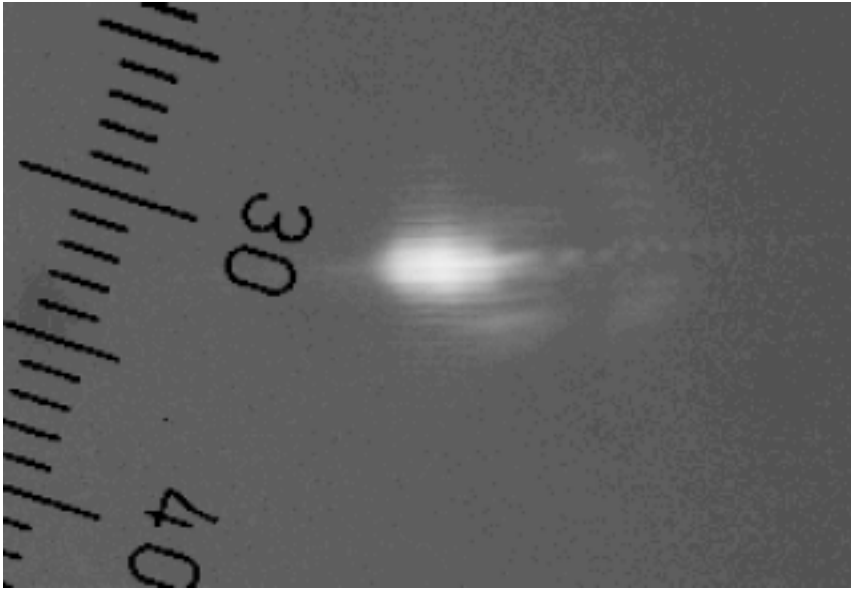


Fig. 3-5 : CCD で撮影されたビームプロファイル。1 目盛はおよそ $50\mu\text{m}$ である。図の水平方向は偏光方向にとってある。更に図の水平面は、集光に用いた回転放物面の入射軸と焦点とを含む。

理想的な放物面鏡に平行光線を入射させた場合、放物面の焦点に向かって集光する光束が得られることは、簡単な幾何光学的考察からわかる。このように放物面鏡は、球面収差を生じない光学素子となっている。今回の実験において軸外し放物面鏡を採用した理由はこのほかにも、高い光強度のために適当な透過型素子が見当たらないこと、球面鏡あるいは同軸放物面鏡では戻り光がレーザー装置にダメージを与えてしまうことなどがある。

ところが、このように幾つかの優れた性質を備えている軸外し放物面鏡は、実際の使用にあたっては非常に精密なアラインメントを要求する。[11, 12] によって論じられているように、(i) 完全に平行な光が放物面の軸に対して傾いて入射した場合、非点収差による広がりを生じる。また、(ii) 更に入射光が平行でなく角度広がりを持っている場合、コマ収差による広がりを生じる、ことが知られている。

現在までのところ、fig. 3-5 に示してあるように偏光方向に扁平なビームプロファイルが得られている。ビーム径は、回折限界より期待される値 (ビームの半径 $\sim f\lambda/D \sim 7\mu\text{m}$) より大きい。これらの原因として考えられるものは、①軸外し放物面鏡のミスアラインメントによる収差、②コンプレッサのミスアラインメントによる空間的分散、などである。これらそれぞれの影響の評価も含めた集光状態の改良は今後の課題である。

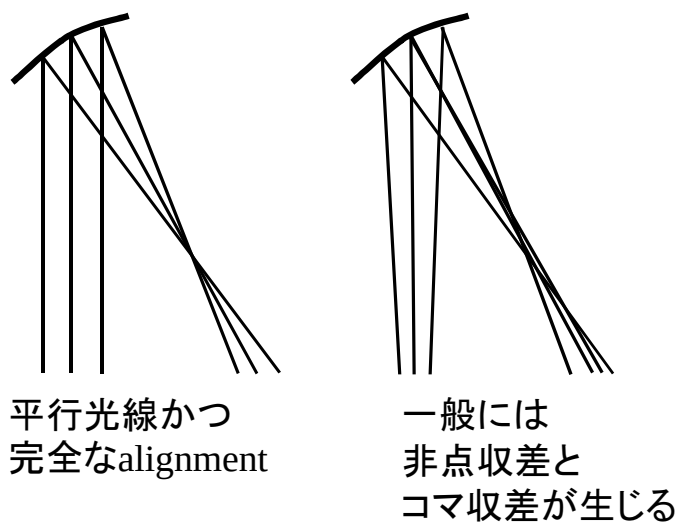


Fig. 3-6 : 理想的でない場合の軸外し放物面鏡の振る舞い

Fig. 3-5 に図示したビームプロファイルの光強度分布についてより詳しく調べてみる。ピクセル明るさのデータ (16bit) を用いて作成した、光強度分布のヒストグラムと累積度数分布図とを fig. 3-7,8 に示す。ピクセルの 1 辺の長さは $5.36 \mu\text{m}$ である。ヒストグラムからは明るさが 5000 前後のピクセルが突出していることがわかるが、これは迷光によるものだと考えられる。

次に、このヒストグラムの部分和を明るい側から取っていき、累積度数分布曲線を作成した。この累積度数分布曲線は、ある光強度 I よりも強度が高い部分の面積 $S(I)$ を表している。ビームが Gaussian プロファイルをもてば、 $S(I)$ を $\ln(I)$ に対してプロットしたものは直線になる (式 3-1) ので、これは Gaussian プロファイルからのずれを示す 1 つの尺度となる。Fig. 3-8 から、明るさが 10000 以上では 2 線分によく近似されることがわかる。2 線分は明るさが 28000 付近で交わる。

$$I = I_0 \exp \left[- \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \right], \quad (3-1)$$

$$S(I) = \pi r^2 = \pi r_0^2 (\ln(I_0) - \ln(I))$$

フォーカス付近でのビームプロファイルから作成した
CCD のピクセル明るさのヒストグラム (16-bit)

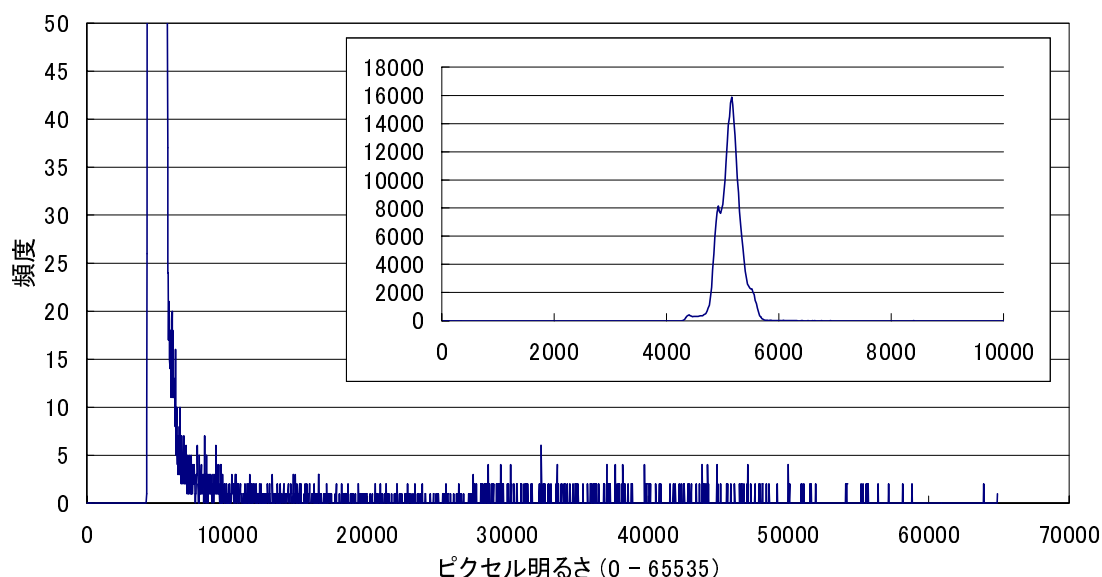


Fig. 3-7 : fig. 3-5 から作成したピクセル明るさ (16bit) のヒストグラム。明るさ 4000-6000 にあるピークは迷光であると考えられる。

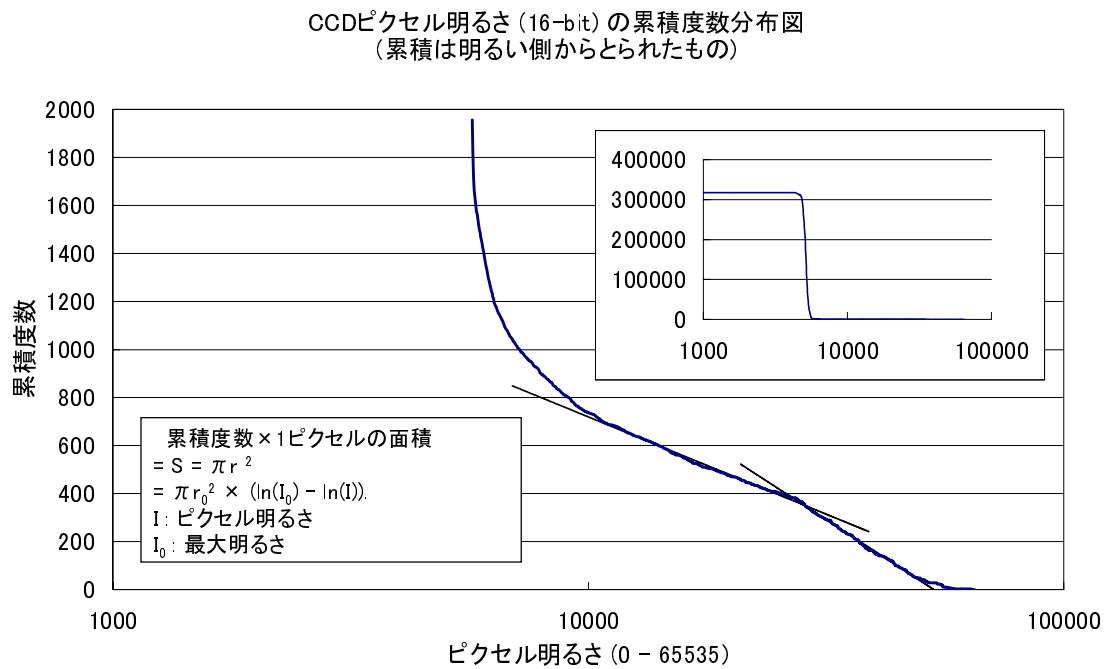


Fig. 3-8 : fig. 3-7 から作成したピクセル明るさ (16bit) の累積度数分布曲線。明るさ 28000 で折れ曲がる 2 線分で良く表せる。

この 2 線分で表される光強度分布は、2 つの区分的 Gaussian (fig. 3-9 参照) が与える分布と等価である。Fig. 3-9 内の点線は迷光のレベルを表している。

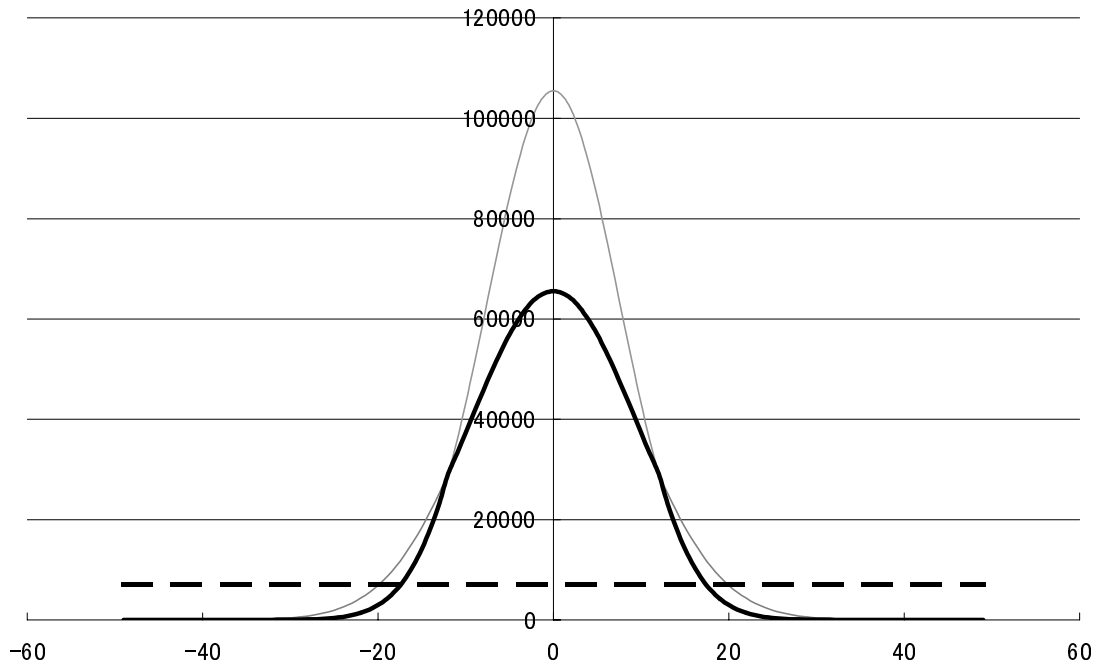


Fig. 3-9 : 測定結果と等しい分布を与える、2 つの区分的 Gaussian。

この分布を与える式は次のようになる。

$$I = I_0 \times \begin{cases} \exp\left[-\left(\frac{r}{r_1}\right)^2\right] & (|r| < r_c) \\ 1.61 \times \exp\left[-\left(\frac{r}{r_2}\right)^2\right] & (|r| > r_c) \end{cases}$$

ここで r は半径、 $r_1=13.3$ 、 $r_2=10.6$ は Gaussian ビームの半径、 $r_c=12.0$ は fig. 3-9 でカーブが折れ曲がる半径である (単位はピクセル数)。

Fig. 3-5 における全光エネルギー流を計算すると、パルス当たりのエネルギーとピーク強度の関係がわかる (面積はピクセルを単位として測った場合)。

$$\int I dS = I_0 \pi r_1^2 \left\{ 1 - \exp\left[-\left(\frac{r_c}{r_1}\right)^2\right] \right\} + 1.61 \times I_0 \pi r_2^2 \exp\left[-\left(\frac{r_c}{r_2}\right)^2\right].$$

左辺は、パルス当たりのエネルギー 160 mJ をパルス幅 190 fs で割って、全光エネルギー流 $8.42 \times 10^{11} \text{ W}$ となる。一方右辺をピクセルサイズ $5.36 \mu\text{m} \times 5.36 \mu\text{m}$ を用いて計算し、左辺と比較すると、ピーク強度 $I_0 = 7.19 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ を得る。このような手続きで求めたピーク強度 $I_0 = 6.27 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ は Poynting ベクトルの大きさを表しているのであるが、一般に文献 (例えば[13]など) で見られる光強度の値は Poynting ベクトルの大きさではなく $E \times H$ の最大瞬時値で表してある。以下では一般的な記法にあわせて、光強度といったときは瞬時値の意味に統一する。すると、瞬時値の意味で (見かけ上は先ほどの 2 倍の値の) $I_0 = 1.25 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ の強光子場が得られていることになる。この対応関係を用いてもう 1 度 fig. 3-9 を詳しく調べてみると、カーブの折れ曲がっている点の光強度は $5.36 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ であること、また迷光によって $1.53 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ 以下の光強度を与える部分の面積はこの測定では正確には求められていない事などがわかる。ピーク強度 $I_0 = 1.25 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ を電場に直すと $F = 0.60 \text{ a.u.} = 3.03 \times 10^{11} \text{ V m}^{-1}$ である。比較のため、Ar の様々な荷電状態に対する F_{BSI} などの値を table 1 にまとめておく。

	Z	I_p		F_{BSI}	I_{BSI}
		eV	au	au	$W\text{ cm}^{-2}$
Ar^+	1	15.76	0.58	0.08	2.47E+14
Ar^{2+}	2	27.63	1.02	0.13	5.83E+14
Ar^{3+}	3	40.74	1.50	0.19	1.22E+15
Ar^{4+}	4	59.68	2.19	0.30	3.17E+15
Ar^{5+}	5	75.12	2.76	0.38	5.10E+15
Ar^{6+}	6	90.99	3.34	0.47	7.62E+15
Ar^{7+}	7	124.33	4.57	0.75	1.95E+16
Ar^{8+}	8	143.46	5.27	0.87	2.65E+16
Ar^{9+}	9	422.50	15.53	6.70	1.57E+18

Table 1 : Ar^{q+} をBSIで生成するのに必要な電場振幅 F_{BSI} と光強度 I_{BSI}

(b) 超高真空槽

Fig. 3-10 に示したように真空槽は大きく 2 つの部分に分かれており、放物面鏡や検出器が置かれている上側の部分と、ターゲットガス導入用のノズルがある下側の部分とはスキマーで区切られている。上側部分には更にターゲットガスを排気するダンパーが設けられ、400 l/s のターボ分子ポンプ (TMP) 3 台で排気されている。イオンゲージで測定された残留ガスの圧力は 3×10^{-10} Torr 程度であった。また、四重極型分圧計での測定結果、残留ガスの成分は H_2 約 65%、 H_2O 約 30% であった。この真空を達成するために 120°C 、60 時間のベーキングを 3 度行った。

下側部分は、ターゲットガスを上側部分に導入するために設けられている。まずターゲットガスはリザーバからノズルを通して流出し、その後スキマーで切り出されて上側部分に入る。スキマーではじかれた残りの部分は 250 l/s の TMP 2 台で排気される。Fig. 3-11 のように、ノズルの直径は $30\text{ }\mu\text{m}$ 、またスキマーの直径は $500\text{ }\mu\text{m}$ であり、これらは約 1 cm 離れて配置されている。ノズル、スキマーと後述するイオン用スリットの alignment は、真上に望遠鏡と CCD を配置して位置を確認しながら行った。

実際のガスターゲットの動作の様子は、実験結果の項で詳しく述べる。

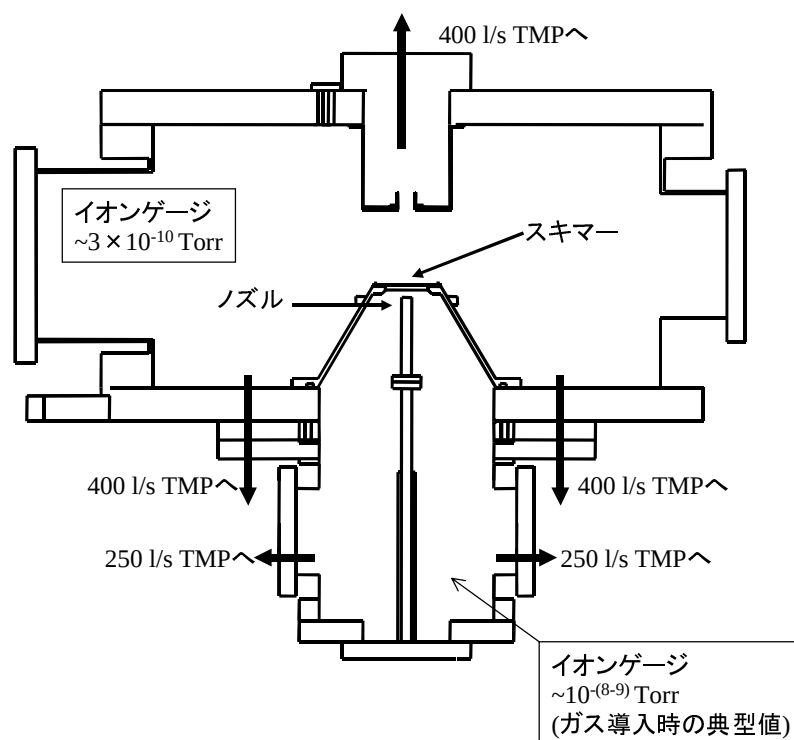


Fig. 3-10 排気系の模式図。真空槽は上下に区切られ、差動排気されている。イオン分析器や検出器は上側にあるが、図では省かれている。

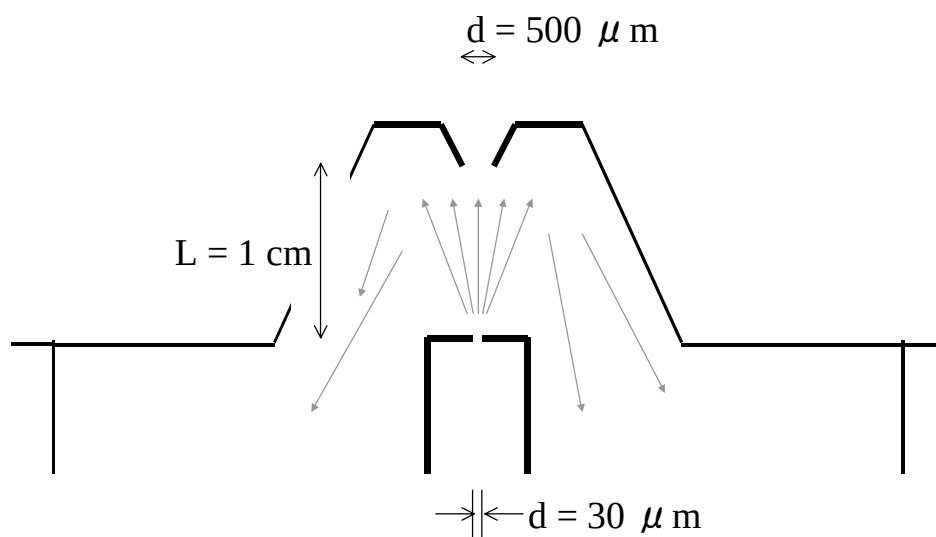


Fig. 3-11 ノズルとスキマーとの幾何学的配置図

(c) 飛行時間 (time-of-flight, TOF) 型分析器

全体の大きさは $60\text{ mm} \times 60\text{ mm} \times 240\text{ mm}$ である。75 mm の加速部分と 150 mm のドリフト部分からなる (fig3-12,13)。レーザー入射の時刻からイオンが microchannel plate (MCP) で検出されるまでの時間が飛行時間 (TOF) であり、ここからイオンの m/q や生成直後の運動量の引き出し方向成分 $p_{\parallel}$ が算出できる。

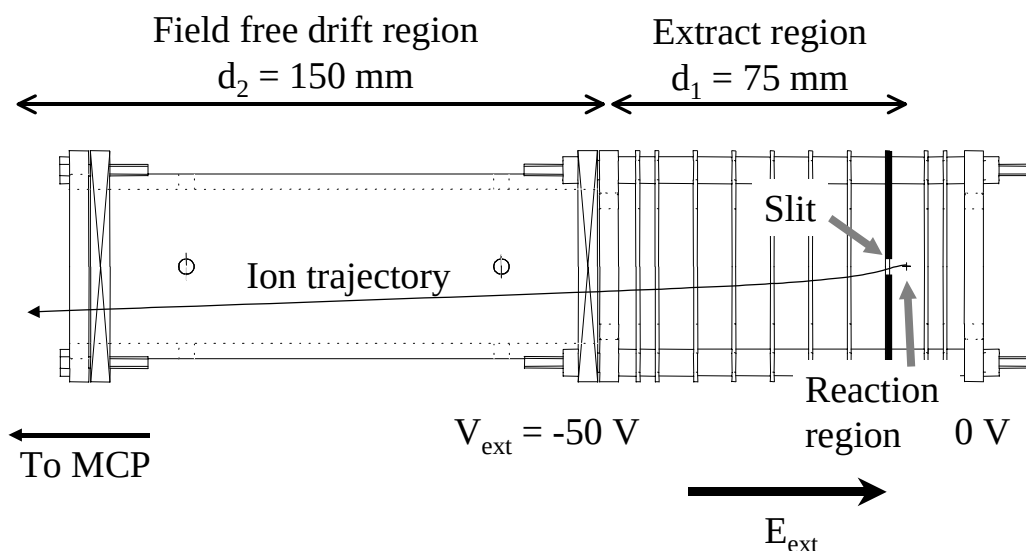


Fig3-12 飛行時間型分析器の側面図。光は紙面に垂直に入射する。Reaction region で生成されたイオンは E_{ext} によって加速された後、ドリフト領域を通過して最後に MCP で検出される。Reaction region の左側にはスリットが入れてある。

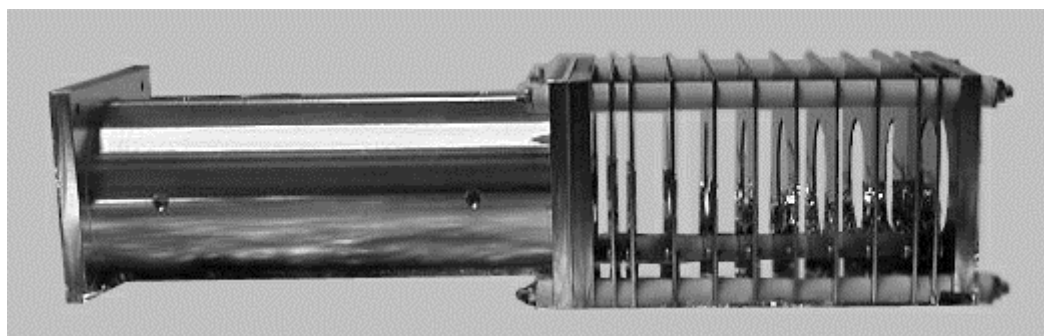


Fig3-13 飛行時間型分析器の写真。スリットが入っていない状態のものである。

生成されたイオンは、まず一様な静電場で加速される。この電場方向は光の偏光方向と同一方向にとってある。今回の実験で用いた典型的な電場の大きさ E は 5.5 V cm^{-1} である。この引き出し電場によって $d_1 = 75\text{ mm}$ の間加速された後、イオンは全長 $d_2 = 150\text{ mm}$ のドリフト領域 (電場のない領域) を通過する (実際にはドリフト領域のうち最後の 8 mm は MCP 入射用の再加速領域に用いられている)。原点から出発したイオンの TOF は以下のよ

うに m/q と運動量成分 $p_{//}$ に依存する。

$$t = \sqrt{\frac{2m}{qE}} \left(2\sqrt{d_1} + \frac{d_2}{\sqrt{d_1}} \right) + \frac{p_{//}}{qE} \quad (3-2)$$

このように TOF は、イオンの m/q の平方根に比例する部分と運動量成分 $p_{//}$ に比例する部分からなる。なお、この式では $p_{//}^2/2m$ を qEd_1 に対して小さい量であるとして 1 次の項までをとった。この仮定は今回の実験では一般に満たされている。

以上の計算ではイオンは一点から出発するものとして取り扱ってきた。実際の実験ではガスターゲット、レーザービーム共に有限の大きさを持っている。これに関しては、加速領域の長さ d_1 とドリフト領域との長さ d_2 の比を 1:2 にとることで、time focusing condition として知られている条件を満たすことができ、以下のように有限の反応体積の影響を小さくすることができる (fig.3-14)。今回の実験では、 d_2 の最後の 8mm に電場を印加しているため、 $1 - d_2/(2d_1)$ は 0 ではなく、近似的にのみ条件を満たしている。

$$\frac{\partial t}{\partial d_1} = \sqrt{\frac{2m}{qEd_1}} \left(1 - \frac{d_2}{2d_1} \right) = 0$$

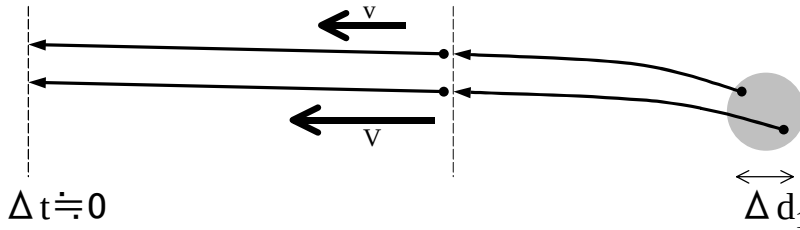


Fig.3-14 Δd_1 と Δt との関係

反応体積のすぐ隣にある電極には 2 mm (図の上下方向) $\times$ 500 μ m (光の進行方向) のスリットを設けた (fig.3-15)。このスリットは、光強度の高い部分で起きる現象を選択的に観測するために設けてある。残留ガスイオンは光強度の比較的弱い周辺部からも大量に生成されるのであるが、スリットによりそれらも制限されることになるため、バックグラウンドレベルが下がることになる。また、複雑であった空間的光強度分布が、単純な円筒対称性を有するようになり、実験と計算との比較が著しく簡単化される[14]。

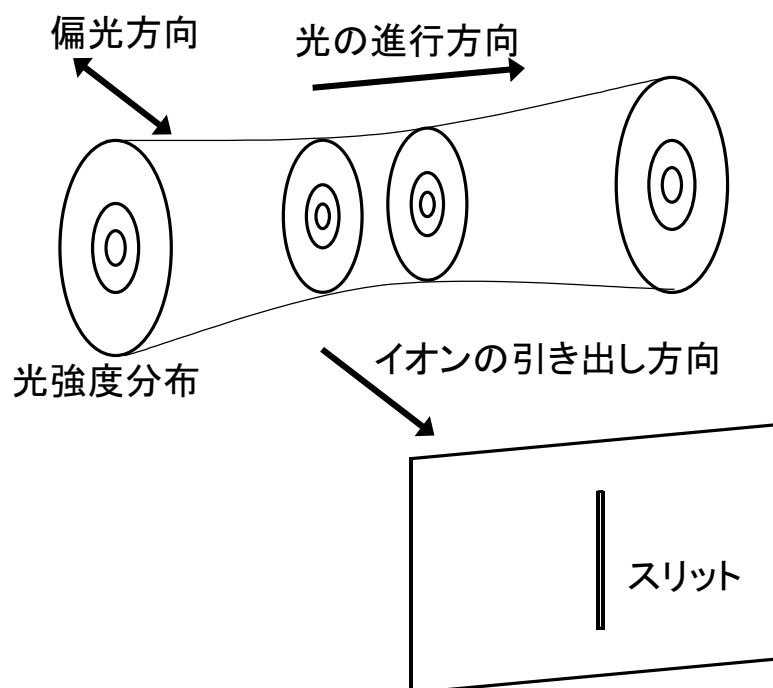


Fig. 3-15 : スリットとレーザーとの幾何学的配置

(d) MCP

MCP の構造と動作原理についてここで簡単に触れる (fig. 3-16)。MCP は内径外径共に数 μm オーダーの円筒が多数集まった構造をしており、厚さは数 mm である。材質は 2 次電子放出の効率などの観点から鉛ガラスが広く用いられている。MCP の両面は金属コーティングされており、一様な電圧がかけられるようになっている。十分なバイアス電圧をかけておくことで (典型的な値は 1 枚当たり $\sim 1\text{ kV}$) 入射粒子によって放出された最初の 2 次電子が、新たな 2 次電子放出を次々と引き起こし、2 枚重ねて使用した場合最大で 10^7 程度の電子が数百 ps の間に放出される。

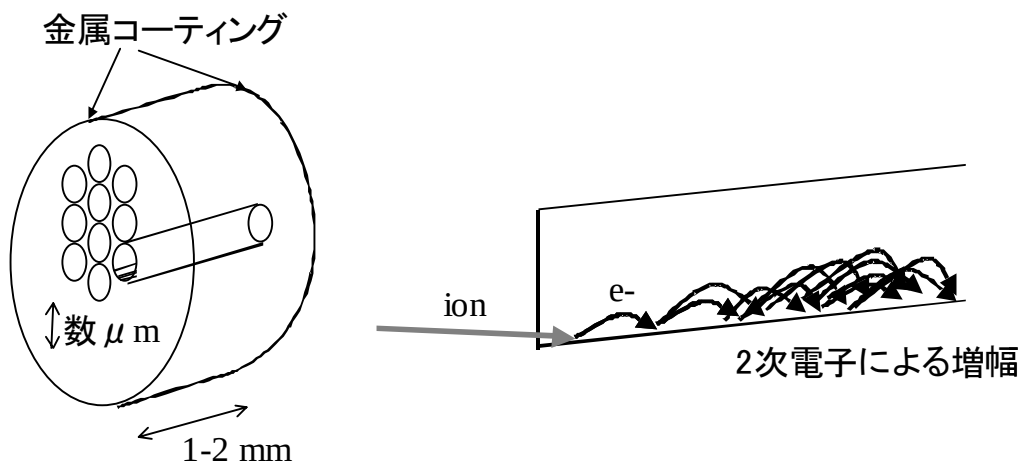


Fig. 3-16: MCP の構造と動作原理

以上のように、MCP の 1 粒子当たりのゲイン¹は、最初の 2 次電子放出量に依存する。イオン検出に用いる場合、最初の 2 次電子放出は MCP 表面とイオンとの相互作用によって決定される。この相互作用は potential process と kinetic process との両方の寄与があることが知られている。前者はイオンの価数に大きく依存し、価数が増すにつれ寄与は非常に大きなものとなる。また、イオンを静電場で加速する場合は運動エネルギーは価数に比例するため、後者の寄与も価数とともに増加する。この 2 つの理由のため、価数の高いイオンほど最初の 2 次電子放出量が増すことになる。

今回の実験では、主に $\text{Ar}^{(1-3)+}$ を測定したが、この場合の入射イオン 1 個辺りの放出電荷量 γ の価数依存性を、以下のように見積もった。まず、kinetic process による 2 次電子放出量 γ_K は、イオンの価数にはあまり依らない事が知られている。また、今回考えている入射エネルギー領域では、potential process の寄与 γ_P は入射エネルギー E_K にあまり依存しないと考えられている。すなわち、次式が成り立つと仮定する。

¹ これと似た概念であるカレントゲインとは、1 粒子当たりのゲインを入射粒子の電荷で割ったものである。

$$\gamma_{\text{TOTAL}}(\text{Ar}^{q+}, E_K) = \gamma_K(\text{Ar}^{q+}; E_K) + \gamma_P(\text{Ar}^{q+})$$

右辺第 1 項は E_K の関数で、価数 q に依存しない。逆に第 2 項は価数 q のみの関数で、 E_K の依存しない。

すると、静電場加速の場合には価数 q と入射エネルギー E_K との間には比例関係 $E_K(\text{Ar}^{q+}) = q \times E_K(\text{Ar}^+)$ が成り立つので、 γ_K に関する次の式が導かれる。

$$\gamma_K(\text{Ar}^{2+}; 2.4 \text{ keV} / q) = \gamma_K(\text{Ar}^+; 4.8 \text{ keV})$$

$$\gamma_K(\text{Ar}^{3+}; 2.4 \text{ keV} / q) = \gamma_K(\text{Ar}^+; 7.2 \text{ keV})$$

次に、potential process の大きさの評価であるが、ここでは大まかな見積もりとして、 $\text{N}^{q+} \rightarrow \text{Au}$ における 2 次電子放出量 γ の測定結果 [15] を引用する。ここに述べられている結果によれば、potential process の大きさを示すと考えられる量、つまりイオンの価数に依存している部分

$$|\gamma_P(\text{N}^{2+})| = |\gamma_{\text{TOTAL}}(\text{N}^{2+}; 2.4 \text{ keV} / q) - \gamma_K(\text{N}^+; 4.8 \text{ keV})|,$$

$$|\gamma_P(\text{N}^{3+})| = |\gamma_{\text{TOTAL}}(\text{N}^{3+}; 2.4 \text{ keV} / q) - \gamma_K(\text{N}^+; 7.2 \text{ keV})|$$

は、ともに γ_{TOTAL} の値の 10% 程度であった。このことから、非常に大まかな見積もりとしては、入射エネルギー $2.4 \text{ keV} / q$ においては kinetic process が支配的であると考え potential process を無視しても構わないと考えられる。

Kinetic process が支配的であるときの、MCP のゲインの入射エネルギー依存性、すなわち γ_K との関係は [16] に与えられている。ここに示された値を用いると、入射エネルギー $2.4 \text{ keV} / q$ の場合のゲインは、次のような比率になる。

$$G(\text{Ar}^+) : G(\text{Ar}^{2+}) : G(\text{Ar}^{3+}) = 1 : 1.46 : 1.8$$

TOF 分析器で引き出されたイオンは MCP に入射する前に再び加速され、 $2.4 \text{ keV} / q$ の運動エネルギーを与えられる。MCP は 2 枚重ねて用い、全体で 2.4 kV のバイアス電圧をかけた。Fig. 3-17 に示されているように MCP 前面の信号をオシロスコープで測定した。

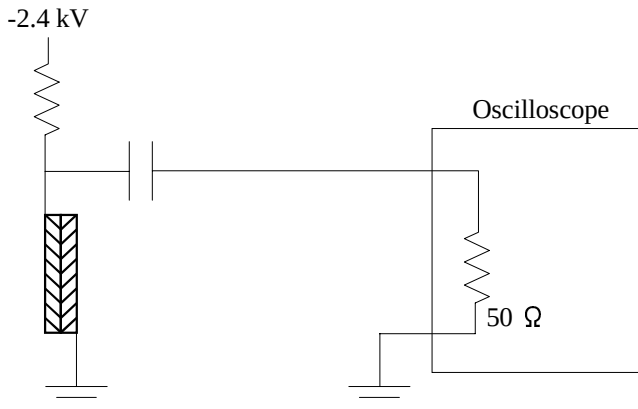


Fig. 3-17 : MCP 信号の取り出し

Fig. 3-18 に実際の MCP の応答波形を示した。この波形はイオンゲージをつけた状態で MCP の前面に-2.4kV を印加し、後面を GND に落とした状態で観測したものである。つまり、入射イオンは残留ガス由来の H_2^+ や H_2O^+ イオンであると考えられる。オシロスコープのトリガは 1 mV に設定し、512 回平均をとった。イオン種が良く定義されていないことと、得られる波高はトリガの設定値に依存しており 10 % 程度変化することの 2 点から、ここで得られたゲインはあまり正確なものとは考えられないが、イオン収量のたまかな見積もりを得るには役に立つ。

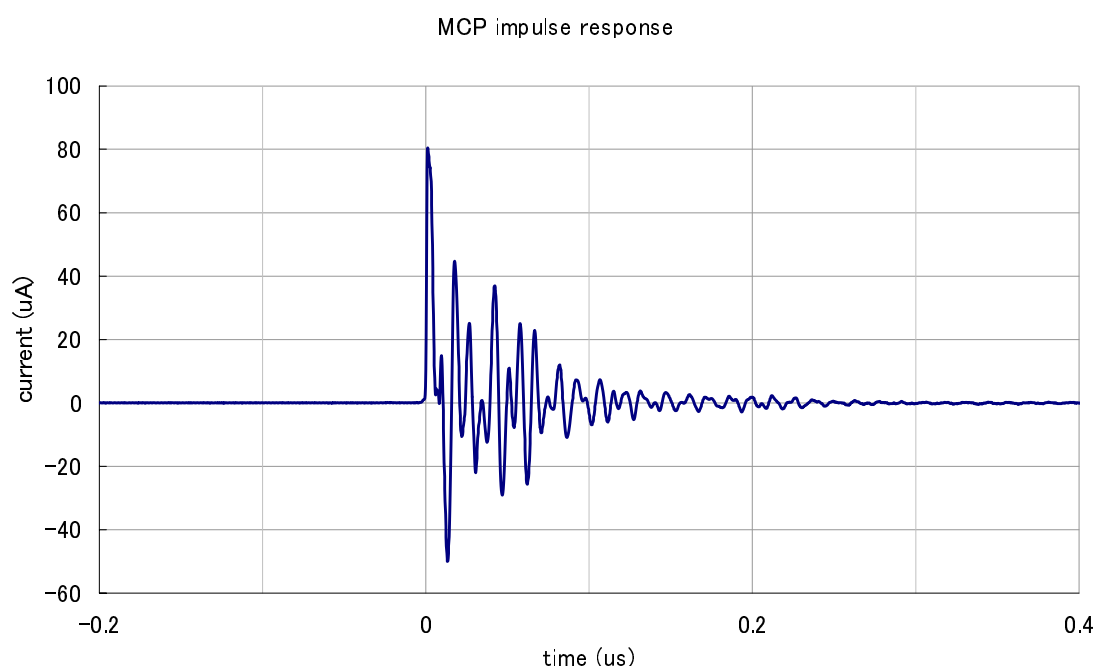


Fig. 3-18: イオンゲージから放出されるイオンに対する MCP の応答波形

この波形を積分して得られた電荷量は $2.3 \times 10^6 e$ であった。今後、2.4 keV で入射した 1 個の Ar^+ によって放出される電荷量を、この値をもって代用する。

4. 実験

1. ターゲットガスの調整とイオン収量

ターゲットには Ar を用いた。今回用いた装置では、実験的にターゲットガス密度を正確に知る手段が無い。実験で測定できるのはガスリザーバの圧力 P_r と真空槽下部の圧力 P_b 、光を入射したときのイオン収量 $N_{q, \text{exp}}$ のみである。

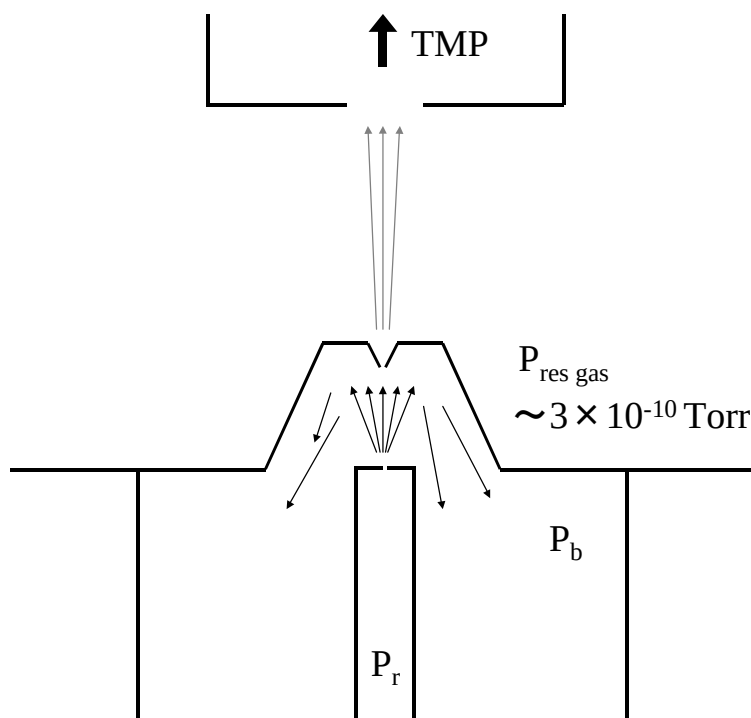


Fig. 4-1 : ガスリザーバの圧力 P_r と真空槽下部の圧力 P_b の定義

リザーバ圧力 P_r は、クリスタルゲージを用いて、また真空槽下部の圧力 P_b はイオンゲージを用いてそれぞれ測定された。まず最初にこれら 2 つの圧力の関係を調べた。Fig. 4-2 にはノズルの直径 $30 \mu\text{m}$ を用いて算出された計算値も示してある。 P_b の計算値は測定値よりも 1.7 倍ほど大きくなっている。このずれの原因としてはノズルの工作精度が考えられる。イオンゲージの Ar に対する感度補正 1.33 を考慮に入れると、計算との不一致はさらに大きくなる。なお、ノズルのコンダクタンスが一定であれば両者は比例関係となるはずであるが、得られた曲線は 12 Pa 付近で折れ曲がっている¹。

¹ 9 Pa から 12 Pa の範囲でクリスタルゲージが実際より高い値を出力している可能性が高い。

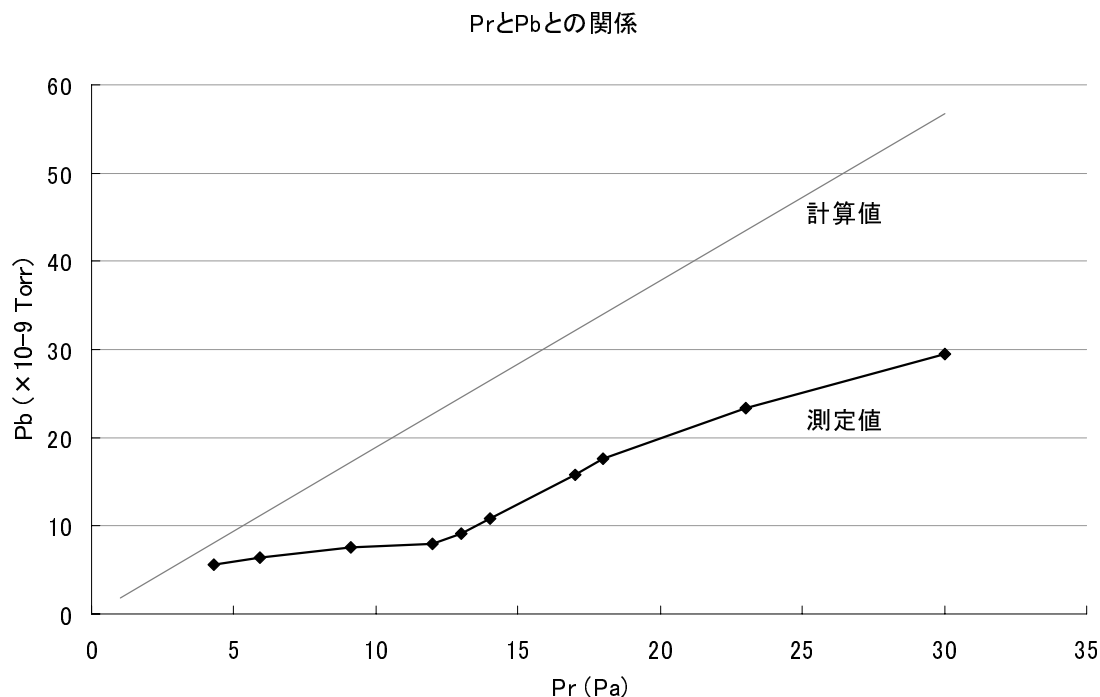


Fig. 4-2 : ガスリザーバ圧力 P_r と真空槽下部圧力 P_b の関係

次に、イオン収量 $N_{q, \text{exp}}$ と下部圧力 P_b との関係を測定した。下の議論で明らかになるように、シングルイオンカウンティングはイオンの数が多すぎるため現在のところ不可能である。今回測定行った圧力範囲の大部分では、生成されるイオンが非常に多いため、パルスの分離が出来ない。このためイオン収量は、シングルイオンカウンティングの代わりに各イオンのピーク面積を積分して求めた。典型的な信号波形とそれを積分したものを fig. 4-3 に示す。ここに示したのは Ar を P_b が 2.95×10^{-8} Torr になるまで導入したときのものである。イオンの MCP 入射エネルギーは 2.4 keV/q であり、MCP バイアスは 2.4 kV とした。またイオンを引き出すための静電場の大きさは 5.56 V/cm である。積分値は MCP から流れ込んだ電荷量を表しているが、これを以前に求めた MCP のイオン 1 個当たりのゲイン 2.3×10^6 で割ったものをイオンの個数とした。ゲインのイオン価数依存性は、先ほどの議論のように大まかな見積もりしか得られていないため、ここでは考慮に入れていない。これは計算値と比較するときに考慮する。

価数依存性の問題のほかにも、イオン収量の測定を難しくしている要因がある。もとの波形 (灰色) における広いピーク幅と長いリングングのため、積分波形でのステップはなまってしまっており、ステップの高さを正確に求めることが難しい。さらにもう 1 つの難しい要因は、波形のベースラインをきちんと定めることが困難であることである。このため、このようにして得られたイオン収量の誤差は 10 % 程度であると見積もられている。なお、512 回の測定を平均した値を用いているため、統計的な誤差はこれよりはるかに小さく問題

にならない。

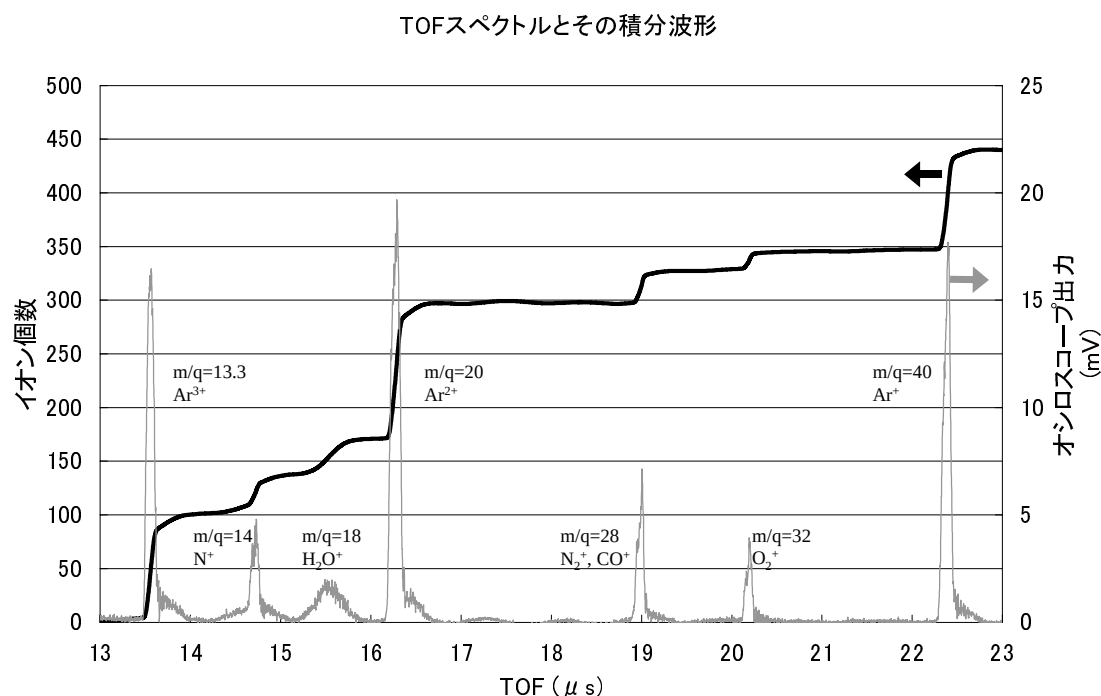


Fig. 4-3 : TOF スペクトルとその積分波形。積分波形における各ステップの高さは、そのイオン種に対応して MCP が出力した電荷量に相当する。

このようにして求められたイオン収量は、 P_b が 5.61×10^{-9} Torr のとき Ar^+ 3.4 個、 Ar^{2+} 4.1 個、 Ar^{3+} 3.1 個、また P_b が 2.95×10^{-8} Torr のとき Ar^+ 91.4 個、 Ar^{2+} 123 個、 Ar^{3+} 90.2 個である。各イオンのピーク幅 (後に詳しく調べる) は数十 ns であるので、通常手に入る電子回路を用いてシングルイオンカウンティングを行うためには、 P_b は 10^{-10} Torr 程度でなければならないことが分かる。

Fig.4-4 には、これらのイオン収量を圧力 P_b に対してプロットした。 P_b が 1.5×10^{-8} Torr よりも高いところでは比例しているように見える。より正確に調べるために、イオン収量を圧力 P_b で割ったものをプロットした (fig4-5)。 1.5×10^{-8} Torr を境界にしてそれよりも低い圧力では比例関係が崩れているらしいことが見て取れる。さらに低い圧力 ($\sim 3 \times 10^{-9}$ Torr) では異なる値に収束していくように見える。現在この領域での流量コントロールが難しいことと、下部真空槽の残留ガス圧力が 1×10^{-9} Torr 程度であることから、低い圧力での振る舞いを正確に測定することは困難であると思われる。

Fig. 4-5 に示した振る舞いは、 1.5×10^{-8} Torr 前後でガスの流れの質的变化が起きている事を示唆する。まず考え付くのは漏れ出し分子線から超音速ジェットへの遷移であるが、以下の理由からこれは当てはまらない。まず、リザーバ内の平均自由行程はここで問題にしている圧力では cm のオーダーであり、ノズルの大きさに比べはるかに大きい。また、仮

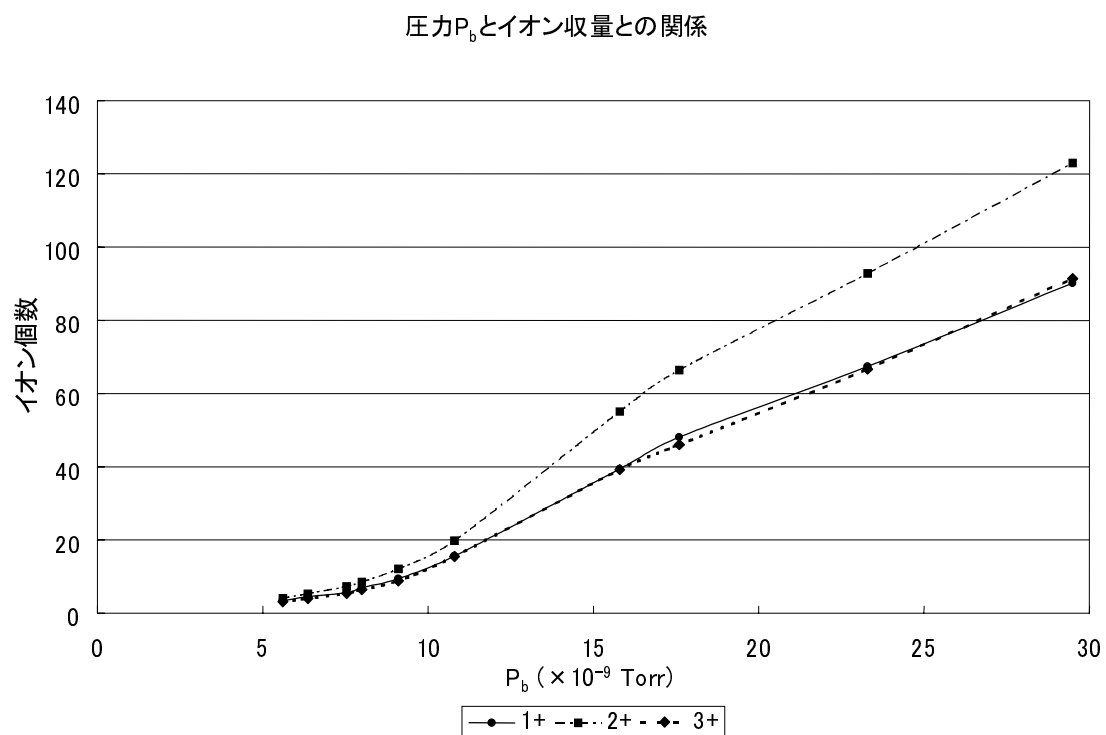


Fig. 4-4 : 圧力 P_b とイオン収量との関係

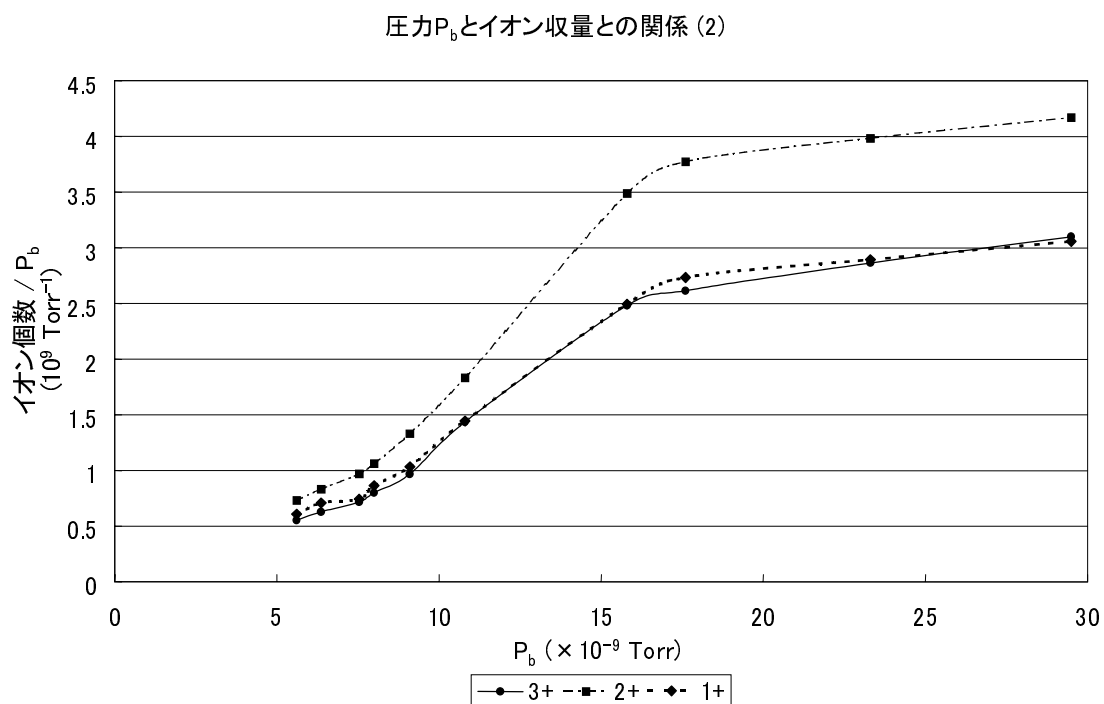


Fig. 4-5 : P_b に対し規格化されたイオン収量

に超音速ジェットが実現されているものと仮定して分子間の衝突が起こらなくなる位置 (quitting surface と呼ばれる) を [17] にしたがって計算してみると、これは負の値を示す (ノズル内にある)。これらの事実から、超音速ジェットを実現するのに必要な条件の 1 つである局所熱平衡条件は、衝突回数の不足のために満たされていない事がわかる。このように、ターゲットの状態は漏れ出し分子線であり超音速ジェットへの遷移は 1.5×10^{-8} Torr 前後では起こりえない。

なお、高い圧力で近似的に収量が比例していることから、MCP の飽和は起きていないと考えられることもわかった。これは fig. 4-6 のように 1 価の収量に対して規格化した収量曲線がほぼ一定であることからわかる。低圧側で 2 価と 3 価が減っているのは、小さいピーク面積を求める際の、特に波形のベースラインに起因する誤差によるもの大きいと考えられる。

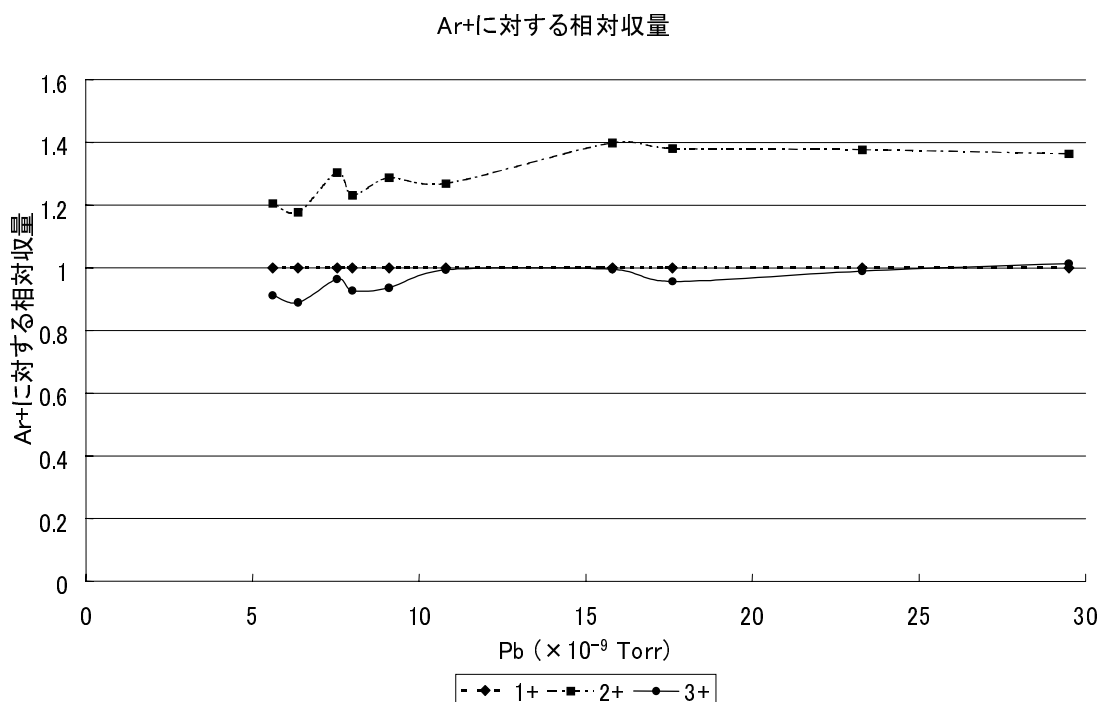


Fig. 4-6 : 1 価イオン収量に対し規格化された各価数イオン収量

2. P_b とピーク幅との関係

同じデータセットに対しピーク幅を次のような手続きで求めた。

- まずピーク高さを適当に求め高さ 1 に規格化した。この高さを求める際に、最大で 10% 程度の任意性が入り込む。これは波形が理想的な単一峰でなく振動していること、またベースラインをきちんと定めることが難しいことの 2 点が原因である。
- 次に波高が 0.5 を横切る点を求め、時間幅を計算する。ここでも波形の振動のために 10% 程度のエラーが生じる。

Ar^{2+} のピークの拡大図を fig. 4-7 に、圧力とピーク幅の関係を fig. 4-8 に示す。生成直後のイオンの運動量のうち偏光方向に平行な成分 $p_{\parallel}$ は、次式によって TOF のシフトと結び付けられる (3-2 式参照)。

$$\Delta t = \frac{p_{\parallel}}{qE_{\text{ext}}}$$

この関係を用いて、TOF のピーク幅から、対応するイオンの運動エネルギーを求めることができる (fig. 4-9)。TOF ピーク幅の典型的な値は数十 ns であった。それに対応するイオンの運動エネルギーは数 meV 程度である。分子流の横向き運動が単純にノズルとスキマーの幾何学的配置と Maxwell 分布とから決まっているものと仮定して、その大きさを求めてみる。Maxwell 分布から決まる横向き運動エネルギーは約 30 meV である。また、ノズルとスキマーのうち大きいほうの直径は ($d = 0.5\text{mm}$) で、ノズルとスキマー間の距離は ($l = 10\text{mm}$) であるから、結局幾何学的に決まる分子流の横向き運動エネルギーは大体 $30\text{ meV} \times (d/l)^2 = 0.075\text{ meV}$ であることがわかった。

残留ガスである水分子イオンの値は、 $P_b = 2.95 \times 10^{-8}\text{ Torr}$ において TOF 幅 260 ns、運動エネルギー 30.8 meV であった。この水分子イオンは、もともと真空槽内に存在していた水分子に由来するものが大部分で、ノズルとスキマーを通して供給されたものはわずかである。このため、水分子イオンの運動エネルギーの大きさは室温によって決まっており、分子流の横向き運動に比べはるかに大きい。

Fig. 4-8 と Fig. 4-9 からいくつかのことがわかる。

- Ar^{q+} の運動エネルギーは、圧力の高いところで圧力の 2 乗に比例しているかのように振舞う。これは TOF 幅が直線のように振舞うことから判る。
- TOF 幅を見る限りでは、圧力の低いところでは一定値に収束していくように見える。ただしこの辺りでは幅を決める際のエラーも大きい (10-20 %程度)。
- 運動エネルギーはイオンの価数にも大きく依存する。
- 1 価イオンの運動エネルギーは、圧力を下げていくと 0.1 meV 程度にまで下がる (Fig. 4-9)。分子流の横向き運動は各価数に共通であり、この値より小さいことから、分子流の横向き運動が非常に小さいことが確認された。

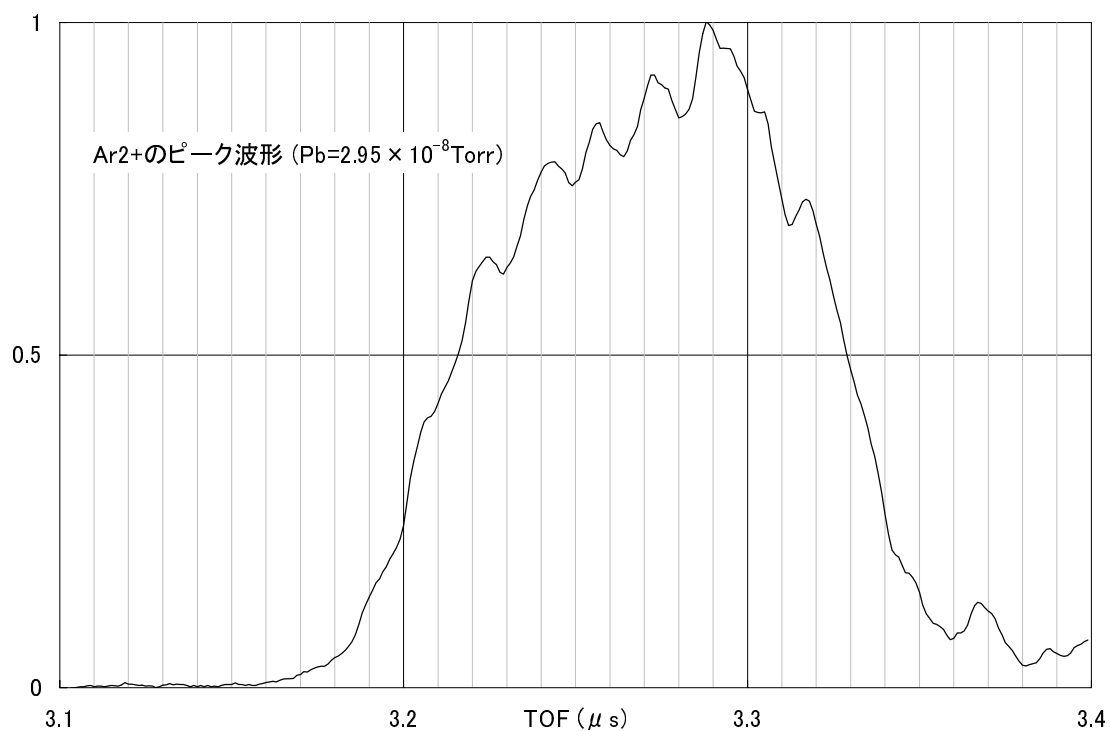


Fig. 4-7: ピーク幅を求める例。図には比較的高いターゲット密度での Ar^{2+} のピークを拡大したものが示されている。

圧力 P_b とピーク幅との関係

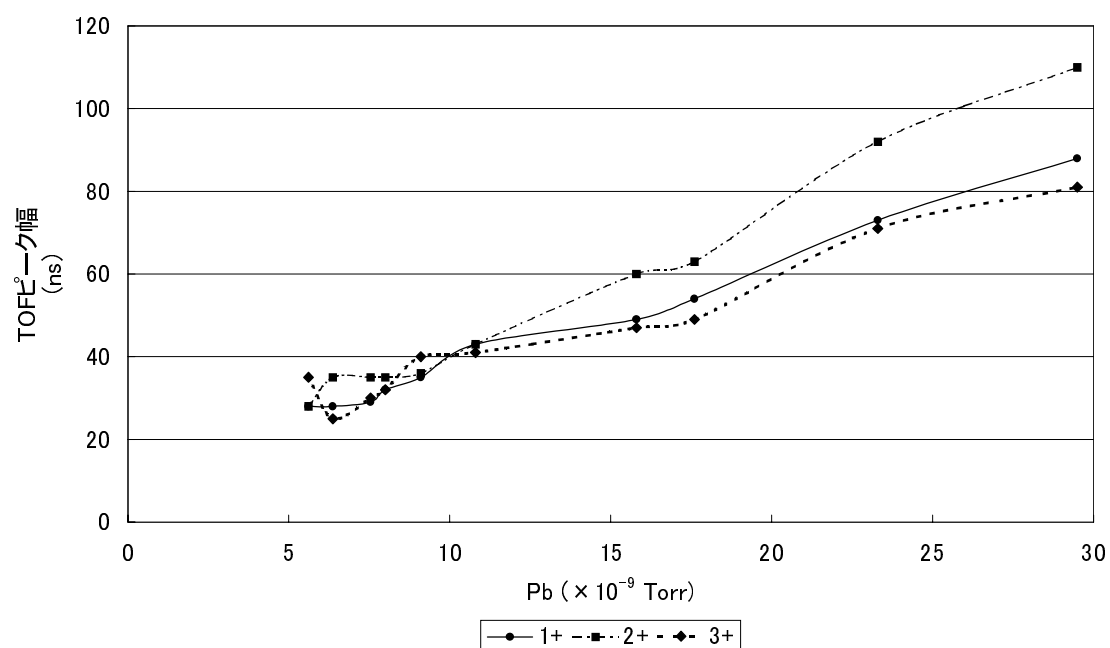


Fig. 4-8: 圧力 P_b とピーク幅との関係。高圧側では P_b に比例しているかのように振舞う。

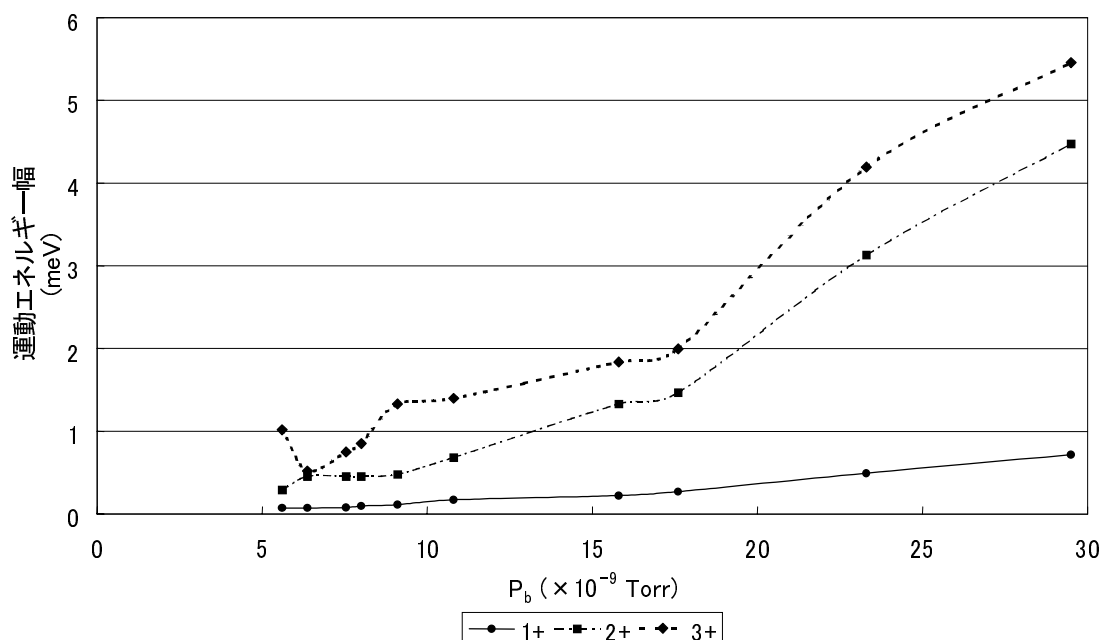


Fig. 4-9: 圧力 P_b と運動エネルギーとの関係。

文献[18]では、今回の実験のような、ガスターゲットに大強度レーザーを照射して得られるイオンの空間電荷の影響について論じられている。[18] にしたがって、電子は初期運動エネルギーと引き出し電場のために、すぐに反応領域を離脱すると仮定する。すると、反応領域にはイオンバンチのみが残され、その電荷分布から定まる Coulomb ポテンシャルを獲得する。また、現在考慮している電荷密度では、引き出し電場のイオンによるスクリーニングは無視できる。生成されたイオンは Coulomb 斥力で膨張すると共に、それぞれの m/q の値に応じてバンチを形成することになる。

[18] によると 30 meV の運動エネルギーを持つ原子から生成されたイオンバンチ (半径 $10^{-2} \cdot 10^{-3} \text{ cm}$) においてイオンの運動が空間電荷の影響を受けないための条件は、電荷密度が $10^8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ と同程度か、より小さいことである。 $P_b = 10^{-8} \text{ Torr}$ であることから、ターゲットの全てが電離したと考えると電荷密度はこの範囲にある。また、ここでは示していないが、実験の結果 H_2O の幅が P_b によってほとんど変化しないことが分かっているが、この事実は、以上の議論と合致する。また、イオンが強光子場から受ける運動エネルギーの典型的な大きさは 0.1 meV 程度であるが [19]、これを測定するためには $P^b = 10^{-10} \text{ Torr}$ 程度でなくてはならないこともわかる。

このように、現在観測している運動エネルギーは空間電荷に由来するものであると考えられるのだが、最も単純に考えると、イオンのもつエネルギーは生成された時点での空間電荷が作る電位によって決まると思われる。この電位は、同じ大きさのイオンバンチを考

えれば電荷密度に比例することになるが、実験結果はターゲット密度の 2 乗に比例しているように見える。この不一致の原因は、現在までのところ明らかになっていない。

5. 考察

5-1. 収量の計算値との比較

前章で得られたイオン収量を理論値と比較するために、2 章で述べた方法に従ってイオン収量を計算する。この計算は以下の条件の下に行われた。

a. イオン化は sequential である。つまり re-scattering による non-sequential ionization [20]は考慮に入れない。

b. イオン化レートには ADK 理論の値を用いた[21]。

また、トンネリングイオン化レートは非常に大きな m 依存性を示すが、(i) 常に $m=0$ の軌道からイオン化が起こる場合、と (ii) $\text{Ar}^{(3-6)+}$ イオンは $|m|=1$ の軌道からイオン化が起こる場合、との 2 通りについて計算を行った [22]。(i) の場合というのは、強光子場中にあるイオンの sub level configuration が保たれずに $m = 0$ の軌道にも電子が常にある割合で存在する場合に相当する。逆に (ii) の場合とは、たとえば Ar^{2+} の 1 電子軌道のうち $m=0$ のものは空であることに相当する。

a.については、光強度が比較的弱いところで non-sequential ionization が効いてくることが知られている。この過程を無視したことについての考察は後ほど行う。また、b.については BSI 領域では ADK レートは大き目の値を示すとの指摘がある[3, 13, 22]。現在のところ BSI 領域でのイオン化レートに関しては様々な議論があり決定的なものがないことと、一般に BSI 領域においても ADK レートが広く使われていることとの 2 点からここでは ADK レートを採用した。

$$W_{\text{ADK}} = C_{n^*l}^2 f(l, m) I_p \left(\frac{3F}{\pi(2I_p)^{3/2}} \right)^{\frac{1}{2}} (2(2I_p)^{3/2} / 3F)^{2n^* - |m| - 1} \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right),$$

$$C_{n^*l} = \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{n^*} (2\pi m^*)^{-1/2}, \quad f(l, m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} |m|! (l-|m|)!}.$$

ここで

F : 周期外場の振幅

I_p : イオン化ポテンシャル

n^* : 実効主量子数 ($= Z / \sqrt{2I_p}$, Z は core の電荷、 I_p はイオン化ポテンシャル)

l, m : 軌道、磁気量子数 (量子化軸は電場方向にとる)

e : 2.71828...

である。

パルス波形は FWHM 190 fs の Gaussian を仮定した (fig. 3-3)。特にパルスの立ち上がりの振る舞いは実験的な決定が難しい。収量がパルス波形にどの程度鋭敏に振舞うかを調べるために、2 倍のパルス幅 (380 fs) で計算を行ったが、以下で問題にする価数分布への影響はほとんどみられなかった。また、空間的分布は fig. 3-9 のようなテールの切られた Gaussian を仮定した。このように仮定することは、 $1.76 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ 以下の光強度を与える部分の面積を fig. 3-9 に従って外挿することに等しい。後の計算によって、大部分の Ar^+ は $1.76 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ 以下の光強度によって生成されることが示される。このため、 Ar^+ の収量の計算値と実験値との比較には注意が必要である。

レート方程式の数値積分には Scilab [23] を用いた。時間範囲は $[-380, +380] \text{ fs}$ を 20000 分割し、パルスエンベロープは Gaussian を用いた。考慮に入れた最高価数は 9 価で、中性原子も含めて計 10 次元のレート方程式を積分した (詳しくは Appendix 参照)。 I_p の値は NIST database の値を用いた [24]。 n^* 、 l はここから一意に定まるが、 m の値には任意性が残る。この点に関しては前に述べた。

積分には組み込み関数 'ode' (Ordinary Differential Equation) を特にオプションは指定せずに用いた。計算結果 (各価数の収量) の収束を確かめるため分割数を $0.5 \cdot 2$ 倍に変化させ、積分区間も 2 倍に変化させたところ、4 桁目以降のみが変化することを確認した。積分に要する時間は Windows 2000、PentiumIII 550MHz、RAM 384MB で数秒だった。このように得られた典型的な $n_q(t; I)$ のグラフを以下に示す。横軸は時間 $[-380, 380] \text{ fs}$ を表している。

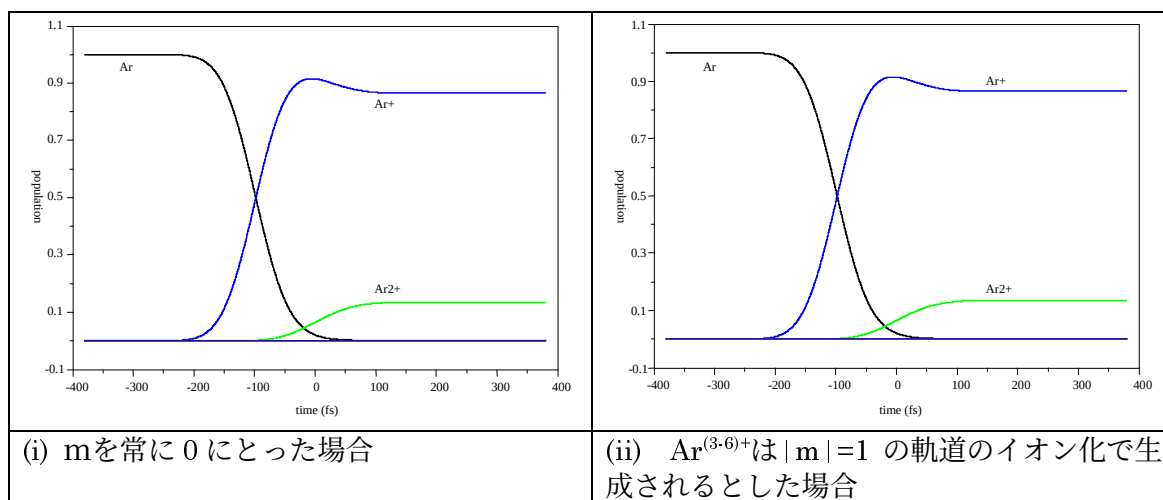


Fig. 5-1: ピーク強度 $10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ の場合。ほとんどの Ar は 1 価イオンになり、わずかに 2 価イオンが生成される。また、1 価イオンは光強度がピークに達する 50 fs 前に約半数が生成される。2 価イオンの生成までは、磁気量子数の違いは全く無い。

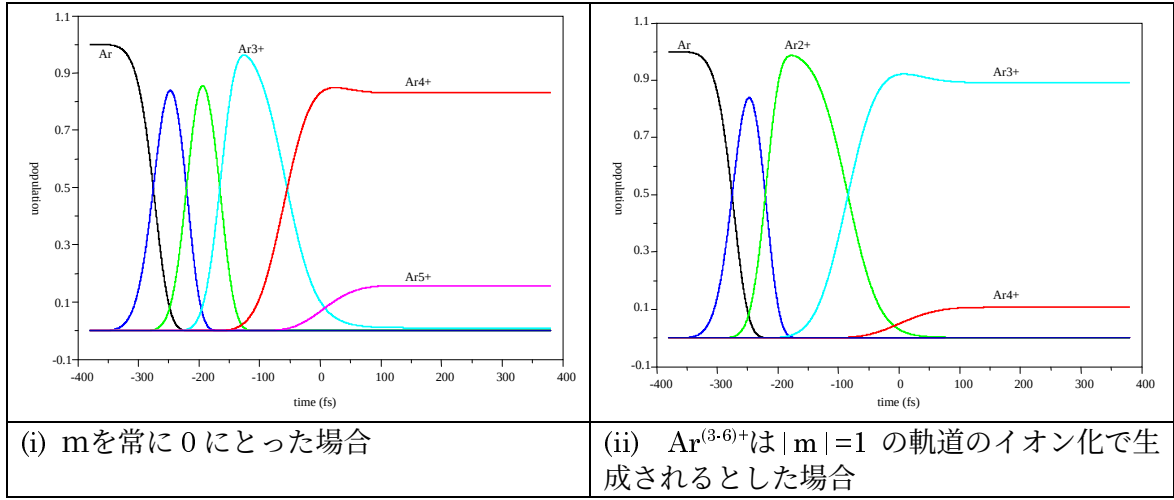


Fig. 5-2: ピーク強度 10^{16}Wcm^{-2} の場合。左図では 4 価と 5 価イオンの生成がわかる。 Ar^+ は $t = -175 \text{ fs}$ において最も大きな割合を占めるがその後急速に減少する。一方、 $(3-6)+$ イオンが生成されにくい右図では 5 価の生成は確認できない。

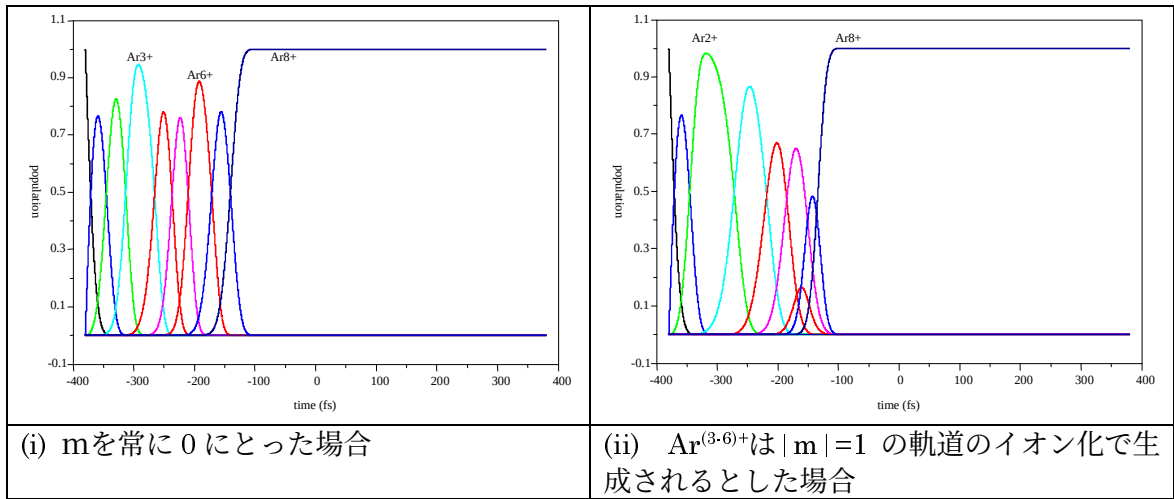


Fig. 5-3: ピーク強度 10^{17}W cm^{-2} の場合。左右いずれの場合も、ほとんどの Ar は 8 価イオンとなる点では一致しているが、途中の population 変化に大分違いがある事がわかる。

このようにして得られた $n_q(t;I)$ の $t \rightarrow \infty$ の極限をとり、 $N_q(F)$ を得る。これはある与えられたピーク強度 I を持つ平面波の (空間的に一様な、という意味) 光が通過したときの価数 q の分布を表している。これを I に対してプロットすると Fig. 5-4 のような曲線が得られる。特に Ar^{3+} を生成するためには、右側の図ではより強い光が必要であることが見て取れる。

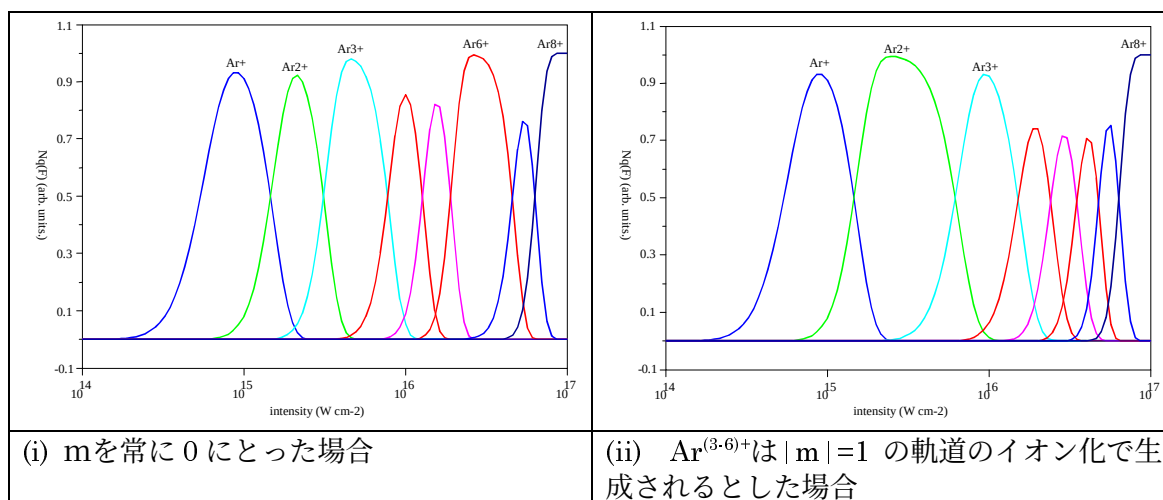


Fig. 5-4 : 空間的に一様なパルス光 (光強度のピーク値 I) が通過したときの価数 q の分布 $N_q(F)$

この図と、 $\text{Ar}^{(1-3)+}$ の F_{BSI} に対応する光強度 2.47×10^{14} 、 5.83×10^{14} 、 $1.22 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ とを比較すれば、 F_{BSI} はイオンシグナルの立ち上がりの大まかな目安を与えることがわかる (ただし F_{BSI} の定義には m 依存性は含まれていないことに注意)。また、大部分のイオンは F_{BSI} のはるか上の強度で生成されることは、 F_{BSI} が達成されて古典力学的にイオン化が可能になったとしても、その瞬間にイオン化が完了してしまうわけではないことを示している。

さらに空間積分を行うと、単位ターゲット密度辺りのイオン収量 $N_{q, \text{integrated}}$ (次元は [長さ]³) が得られる。

$$N_{q, \text{integrated}} = \int_0^{I_{\text{peak}}} N_q(I) dV$$

求められた単位ターゲット密度辺りのイオン収量 $N_{q, \text{integrated}}$ は、下図のようになる。十分強い光強度で収量は飽和することがわかる。しかしこれは一般に成り立つことではなく、現在考えているビームプロファイルのテール部分を Gaussian に仮定したために起こる特有な現象である。

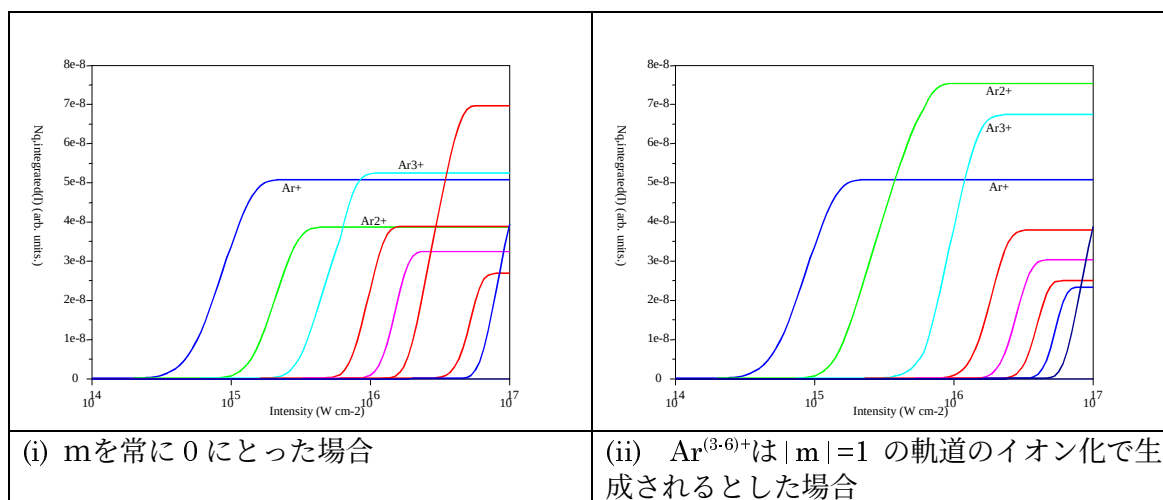


Fig. 5-4 : 実験条件に合わせて計算から求められた、単位ターゲット密度辺りの各価数イオン収量 $N_{q, \text{integrated}}$ のグラフ。単位は cm^3 。

今回の実験では、光強度のピーク値は $1.25 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ であると見積もられている。Fig. 5-4 から、 $\text{Ar}^{(1-3)+}$ の収量は飽和していると考えられる。Fig. 5-4 において注目すべきなのは、(i) の場合と (ii) の場合とで、荷電分布が大きく異なること。1 価イオン収量に規格化すると、2 価と 3 価の収量は左図では 0.76、1.03 であるのに対し右図では 1.49、1.32 となり、大小関係が大きくかわる。

MCP のゲイン補正前の実験結果収量比は、 $(\text{Ar}^+) : (\text{Ar}^{2+}) : (\text{Ar}^{3+}) = 1 : 1.4 : 1$ であった。これに、先に述べたゲイン補正を行うと、 $(\text{Ar}^+) : (\text{Ar}^{2+}) : (\text{Ar}^{3+}) = 1 : 1 : 0.56$ となる。また、ピークにおける光強度は $1.44 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ である。これらの値を fig. 5-4 と比較してみると、どちらのグラフとも全く合わないことがわかる。先にも述べたように、1 価生成に関わる光強度をもつ部分の体積は現在正しく見積もれていないことから、以下では 2 価と 3 価の収量に限って話をすすめる。Fig. 5-4 左側の、 m が常に 0 の場合を仮定した計算では、 Ar^{2+} より Ar^{3+} の方がより多く生成されることになる。一方、実験結果は、MCP の補正に関わらず Ar^{2+} の収量の方が多いことを示している。このため、左側の計算結果とは定性的にも一致しない。しかし、fig. 5-4 右側の計算結果と一致するかというと、この場合は 3 価の収量が小さすぎるために定量的には一致しない。

さきの仮定において、non-sequential ionization の寄与を無視した。ここで、その影響について考察する。現在までのところ、non-sequential ionization は I_{BSI} よりはるかに弱い光においてのみ重要であることがわかっている。現在の計算では I_{BSI} 以上の光強度で生成されたイオンが大部分を占めることから、収量の大小関係を逆転させるほどの寄与があるとは考えにくいのであるが、正確な評価は今後の課題である。

次の節では、断熱的に変化する電磁場中での Ar イオンの固有状態と電子配置について考察する。

5-2. 強光子場中のイオンの固有状態 (断熱的取り扱い)

先にも述べたように、トンネリングによるイオン化のレートは、着目している電子の磁気量子数 m に大きく依存する事が知られている (m の量子化軸は偏光方向にとる)。これは古典力学的には、バリアの高さの m 依存性として現れることが Shakeshaft らによって示されている[25]。また、Taieb らによる Kr の計算では、軌道関数として Hartree-Fock 法から得られたものを用いて時間依存 Schrodinger 方程式 (TDSE) を解き、イオン化レートを求め、それと ADK レートとの比較がなされている[22]。彼等の結果によると、ADK は TDSE に比べ大きな値を示すものの、定性的には似た振る舞いをする。そしていずれの場合も $|m|$ が 1 つ増すごとにレートは 2 桁ほど小さくなる。

ところで、前節の計算のところで触れたように、最も単純に考えると Ar^{2+} の $3p(m=0)$ 軌道には電子が残っていないとも考えられる。一方、束縛電子間相互作用や外部電磁場の影響を考えると、このような単純な描像が成り立つかどうかは自明ではない。

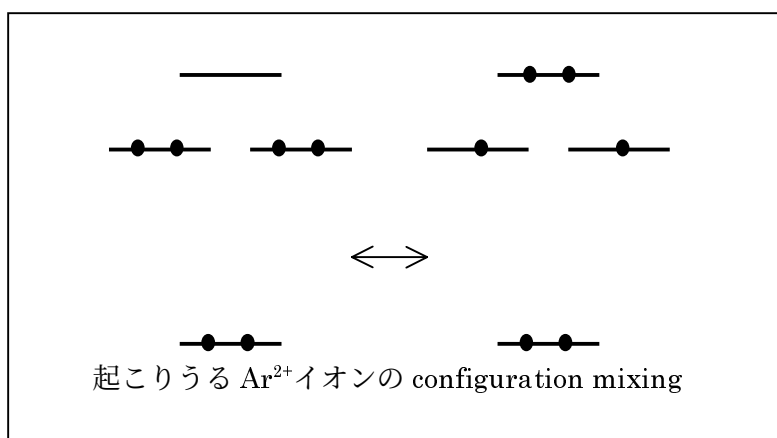


Fig. 5-5 : sub level configuration の例 (Ar^{2+})

そこで、イオン化が進行する際、sub level configuration がどのように発展するかを以下で考察する。Ar、Kr などの希ガス原子の多重イオン化では $(np)^6$ の configuration から次々と電子がイオン化されていくわけであるが、仮に sub level configuration が保たれるのであれば $(3-6)+$ のイオンは $|m| > 0$ の電子がイオン化されることによって起きる。一方、fig. 5-5 のように次のイオン化までに sub level configuration の混合が起これば、 $m=0$ からのイオン化が可能となる。前述のように、これはイオン化レートを大きく変化させる。以下では、起こりうる sub level configuration の混合の機構を調べるために、まず強光子場中の固有状態を議論し、次に定性的にはあるが Ar に関してより詳しく考察する。

まず次の仮定をおく。

外部電場振幅 F は断熱的に変化するものとして、パラメータとして扱えるものとする。

現在問題になっている光強度 ($\sim 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$) とターゲット原子 (Ar) で起こりうる主要なイオン化過程はトンネリングであることが知られており、これに要する時間は光周期よりも短い[2]ことから、この仮定はイオン化に関する限り一般に満たされていると考えられる。

モデル Hamiltonian の対角化

Hamiltonian を以下のようにとる。

$$\hat{H} = \sum \left(\frac{\hat{p}^2}{2m} + \hat{V} - \vec{F} \cdot \vec{r} \right) + \left(\sum \frac{1}{\hat{r}_{ij}} - \left\langle \sum \frac{1}{\hat{r}_{ij}} \right\rangle \right) + \mu_B \vec{B} \cdot (2\vec{\hat{S}} + \vec{\hat{L}}) + A \vec{\hat{L}} \cdot \vec{\hat{S}}$$

以下最外殻電子のみを考える。和も最外殻電子のみについてとる。内殻電子は凍結しており atomic potential V を形成する。第 1 項はポテンシャル V と外部電場 F 中の 1 電子運動を記述する。第 2 項は Hartree-Fock 近似での電子間の Coulomb 相互作用、第 3 項は外部磁場との相互作用、第 4 項はスピン軌道相互作用である。係数 A は本来原点からの距離の関数だが、以下の議論では軌道関数が定まった上での摂動計算を行うことになるので、位置について積分してしまったうえで定数であると思って差し支えない。電場 F は z 軸方向に、磁場 B は x 軸方向にとる。

このような静電場と静磁場中の Zeeman-Stark 効果は、水素原子や Rydberg 原子に対しては盛んに研究が行われている (例えば [26])。ただしこれらの系は、偶然縮退 (accidental degeneracy) の原因となっている $O(4)$ 対称性を有しているため、Runge-Lenz ベクトルが保存される。この事実に基づいた議論は、Zeeman-Stark 効果の概要を知る上で参考になる。ただし、Runge-Lenz ベクトルが保存されない多電子系にはそのまま適用できないことを注意しておく。

以下では H の固有状態の性質を考察する。第 1 項を無摂動 Hamiltonian にとり、それ以外の項の大きさの程度を見積もる。電子間の Coulomb 相互作用の大きさは、自由なイオンの多重項分裂の大きさ程度であると考えられる。これは Ar の場合は価数にもよるが 1 から数 eV である[24]。次に、外部磁場の大きさは、光強度 $10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ の場合 10^3 T 程度であり、この大きさの磁場中にある電子の、スピンの向きに応じて生じるエネルギー差は約 0.2 eV となる。また、最後にスピン軌道相互作用の大きさを自由なイオンの微細構造の分裂の大きさから見積もると、これも約 0.2 eV 程度であると考えられる[24]。つまり、

$$\sum \left(\frac{\hat{p}^2}{2m} + \hat{V} - \vec{F} \cdot \vec{r} \right) > \left(\sum \frac{1}{\hat{r}_{ij}} - \left\langle \sum \frac{1}{\hat{r}_{ij}} \right\rangle \right) > \mu_B \vec{B} \cdot (2\vec{\hat{S}} + \vec{\hat{L}}) \quad A \vec{\hat{L}} \cdot \vec{\hat{S}}$$

であると考えられる。

無摂動 Hamiltonian H_0 (第 1 項) の固有状態は、fig. 5-6 のように $|m|$ に応じて Stark split した 1 電子軌道に電子を詰めていったものである。ただし m は軌道角運動量の電場方向成

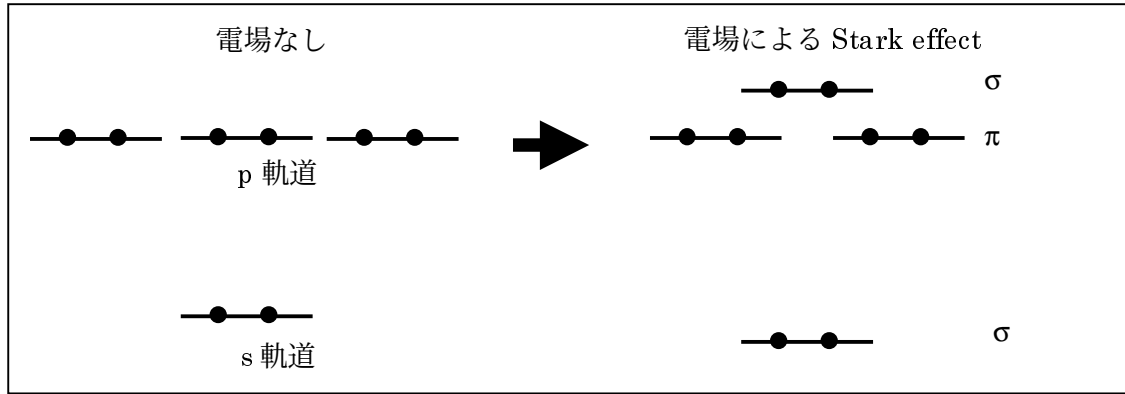


Fig. 5-6: 無摂動 Hamiltonian H_0 (第 1 項) の固有状態

分 $\hat{L}_z$ の固有値である (磁場方向でないことに注意)。

H_0 までを考えたとき系全体としては $\hat{L}_z$ 、 $\hat{S}^2$ 、 $\hat{S}_z$ が保存されることが分かる。ただし、 M の符号、 S^2 、 S_z に関して縮退している。ここで M 、 S^2 、 S_z はそれぞれ対応する演算子 $\hat{L}_z$ 、 $\hat{S}^2$ 、 $\hat{S}_z$ の固有値である。

第 2 項の効果を考える。自由なイオンにおける Hund の規則のように、第 2 項の電子間 Coulomb 相互作用によって全スピンの縮退が解けると考えられる。しかし、スピンの向きに関しては縮退は解けない。また、電子間相互作用までを取り込んでも Hamiltonian は軸対称なので、 $\pm M$ に関する縮退も電子間 Coulomb 相互作用によっては解けない。このように、Hamiltonian の第 2 項までを取り入れても、相変わらず $\hat{L}_z$ 、 $\hat{S}^2$ 、 $\hat{S}_z$ は保存されている。また、 S^2 に関する縮退は解けるが、 M の符号と S_z に関して縮退が残っている。

次に $|M, S^2, S_z\rangle$ を基底にとり、第 3,4 項に対し摂動論を適用して固有状態の性質を調べる。以下の計算では、 $|M|$ と S^2 とを固定する。 $|M|>0$ の場合は $\hat{L}_z = \pm M$ 、 $\hat{S}_z = S, S-1, \dots, -S$ なる $2 \times (2S+1)$ 次元の部分空間、 $M=0$ の場合は $\hat{L}_z = 0$ 、 $\hat{S}_z = S, S-1, \dots, -S$ なる $(2S+1)$ 次元の部分空間を考え、摂動の 0 次固有状態 (以下 0 次固有状態と略記) を求める。 $|M|>0$ の場合に注意すべきことは、 S_z だけでなく M の符号に関しても縮退していることである。一般に $|M|$ が保存されていても M が保存されているとは限らない。たとえば、次の形の摂動 $\hat{L}_x^2 - \hat{L}_y^2 = \frac{1}{2}(\hat{L}_+^2 + \hat{L}_-^2)$ が加わる場合は $|\hat{L}_z = +1\rangle$ と $|\hat{L}_z = -1\rangle$ とは 0 次

固有状態ではない。このように、 $|M|>0$ の場合は M の符号に関する縮退を考慮に入れた計算を行わなければならない。

今回考えている摂動は、 $\hat{L}$ に関し 1 次以下である。また、 $|M|>0$ の場合は $+M$ と $-M$ とは 2 以上離れている。このため、 L_+ と L_- は現在考えている部分空間内では恒等的に 0 となり、摂動項は次式の形となる。

$$2\mu_B \hat{S}_x + 0 + A \vec{\hat{S}} \cdot \vec{\hat{L}}$$

$$= 2\mu_B \hat{S}_x + A \hat{S}_z \hat{L}_z.$$

$$\left(\hat{S} \cdot \hat{L} = \frac{\hat{S}_+ \hat{L}_- + \hat{S}_- \hat{L}_+}{2} + \hat{S}_z \hat{L}_z \right)$$

このように、+M と -M とを結びつける行列要素は存在しない。このため、結果的に 0 次固有状態の計算に関しては $\pm M$ は別々に考えてよく、それぞれの $(2S+1)$ 次元部分空間内で摂動項は次の形にまとめられる。

$$2\mu_B \hat{S}_x + A M \hat{S}_z = (2\mu_B B, 0, A M) \cdot \vec{\hat{S}}$$

上式から、 $\hat{L}_z$ が (絶対値のみならず符号も含めて) 保存されていることがわかる。

以上の計算から、スピンのに関する次の結論も導かれる。 $M=0$ の状態ではスピンは磁場の方向 (x 軸) に量子化される。一方、 $|M|>0$ の状態では、磁場の大きさ B と、スピン軌道相互作用の係数 A と全軌道角運動量 M と積 AM の大小関係に応じてスピン量子化軸は傾く (fig. 5-7)。また、スピンの向きに関した縮退も 1 次の摂動エネルギー計算で解ける。摂動の 1 次までの計算で求められるエネルギー固有値のシフトは $\sqrt{(2\mu_B B)^2 + (AM)^2} \times s$, $s = S, S-1, \dots, -S$ である。 M の符号に関する縮退は解けていない。

まとめると、 H の 0 次固有状態は、摂動が定めるスピンの方向 (B と AM の関数) を $\Theta(A/B, M)$ とするとき $|M, S^2, S_z\rangle$ で指定された状態である。1 次の摂動エネルギー計算の範囲では、これらは $|M| > 0$ のときに限り $\pm M$ に関して縮退している。

なお、以上の議論は断熱近似に基づいているが、今回の実験は近赤外光を用いたために、ここで扱った第 3 項以降はこの断熱条件を満たしていない。また電場も、準静的電場でなく振動電場となるため、電場の強さは光の 2 倍の周期で 0 から振幅の大きさまで何度も往復することになる。この電場 0 の近くでは第 1 項と第 2 項の分離も不正確なものとなる。より正確な議論は今後の課題である。

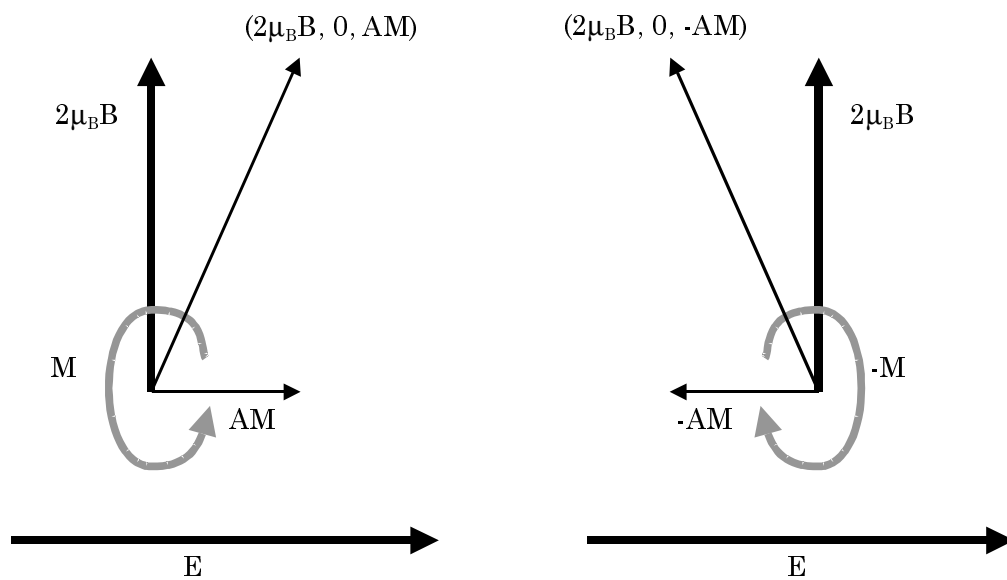


Fig. 5-7: スピン量子化軸の向き

5-3. Ar のイオン化過程と生成された状態

我々の興味の中心は、Ar が順次イオン化していく様子を記述することにある。以下では、前節の断熱的取り扱いから得られたいくつかの結論のうち、 M が保存されることとスピンの大きさが保存されることのみを仮定する。また、Ar 原子またはイオンの $3s$ と $3p$ 軌道から断熱的につながる 4 つの Stark state を、 1σ , 2σ , π^+ , π^- と呼ぶことにする。外場がないときの主量子数 $n = 1, 2$ に属する電子は atomic potential V を通してのみ考慮する。

I. 強光子場中の中性 Ar 原子

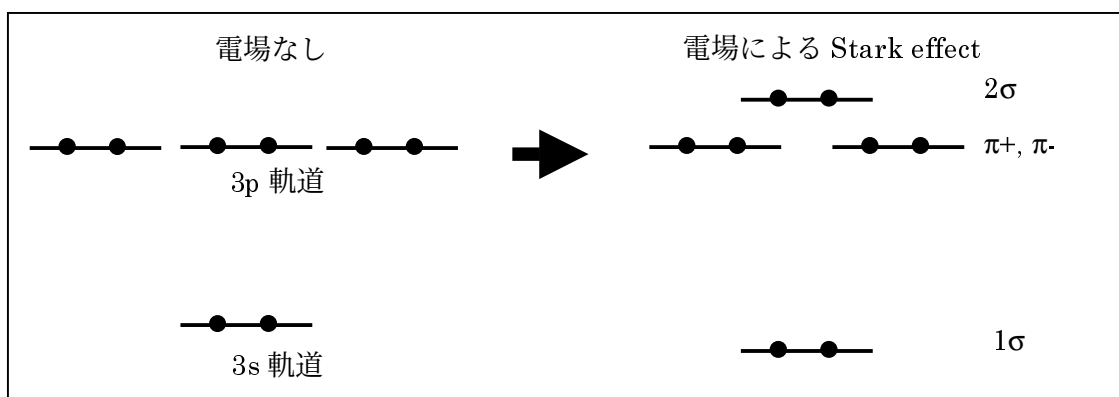


Fig. 5-8 : 中性 Ar 原子の固有状態

断熱的に変化する直交電磁場中(電場 F は z 軸方向、磁場 B は x 軸方向) にさらされた Ar 原子は、状態 $|M=0, S^2=0, S_x=0\rangle$ にある。

II. 強光子場中の Ar^+ 生成過程と、生成された Ar^+ の状態

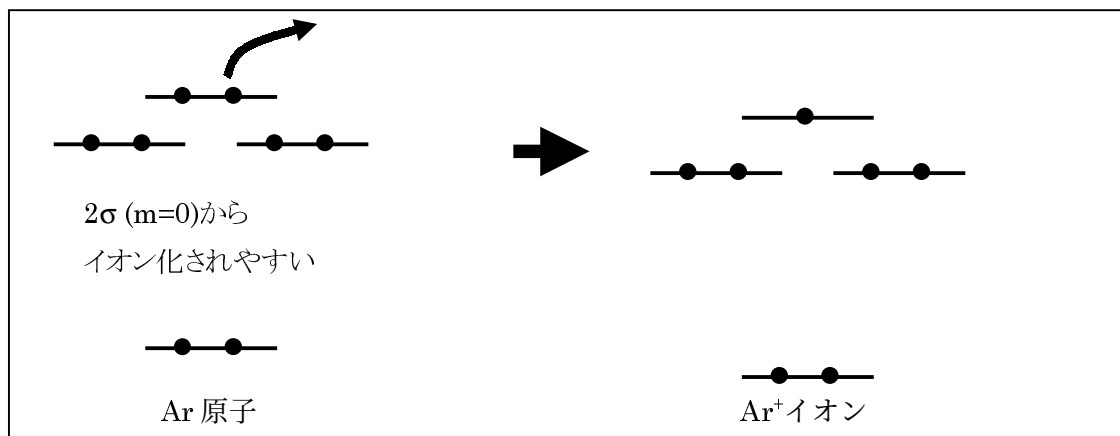


Fig. 5-9 : Ar^+ イオンの生成過程

Ar 原子の 1 電子軌道のうち、 $2\sigma (m=0)$ から最もイオン化されやすい。出来た Ar^+ は、状態 $|M=0, S^2=\frac{1}{2}(\frac{1}{2}+1), S_x=\pm\frac{1}{2}\rangle$ にあり、スピンは磁場方向に量子化されている。

Fig. 5-9 に示した Ar^+ の sub level configuration $(1\sigma)^2 (\pi^+)^2 (\pi^-)^2 (2\sigma)^1$ と混合しうる configuration は、 $M=0$ が保存されることから $(1\sigma)^1 (\pi^+)^2 (\pi^-)^2 (2\sigma)^2$ に限られる。Coulomb 相互作用よりも Stark effect のほうが大きい場合、この混合は小さい。

III. 強光子場中の Ar^{2+} 生成過程と、生成された Ar^{2+} の状態

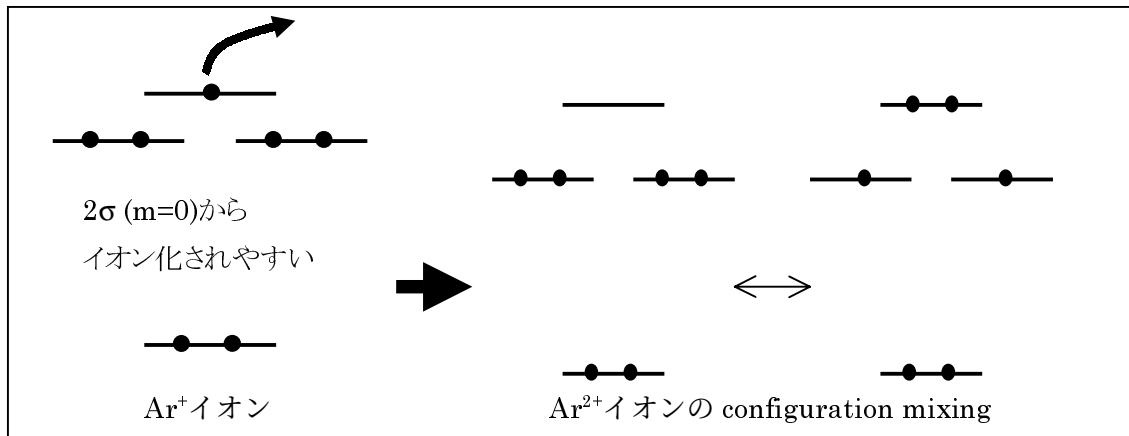


Fig. 5-10 : Ar^{2+} イオンの生成過程

Ar と同じように、 $2\sigma (m=0)$ から最もイオン化されやすい。出来た Ar^{2+} は、状態 $|M=0, S^2=0, S_x=0\rangle$ にある。

Fig. 5-10 に示した $\text{Ar}^{2+}(1\sigma)^2 (\pi^+)^2 (\pi^-)^2 (2\sigma)^0$ と混合しうる configuration のうち主要なものは、 M とスピンの大きさの保存から $(1\sigma)^2 (\pi^+)^1 (\pi^-)^1 (2\sigma)^0$ であると考えられる。 $\pi\pm$ と 2σ との間の Stark split の大きさに対し Coulomb 相互作用の差が無視できなくなると混合の割合が大きくなる。これは振動電場の強さが 0 に近づくときに重要になる。その場合、混合する状態はスピン一重項でなくてはならない。正確にこの mixing の程度を求めるためには、電場振幅が 1 a.u. 付近での AC Stark effect などの原子構造計算を行う必要がある。

IV. 強光子場中の Ar^{3+} 生成過程と、生成された Ar^{3+} の状態

Ar^{3+} の生成のルートは主なものとして 3 通り考えられる。それらのうちはじめの 2 つは Ar^{2+} のところで述べた mixing が起こっていない場合に対応する。

- ① $\pi^+, \pi^- (|m|=1)$ からイオン化される
- ② $1\sigma (m=0)$ からイオン化される (fig. 5-11)
- ③ 電子間 Coulomb 相互作用のために、 2σ と π^+, π^- との間で configuration mixing が起こり、 $2\sigma (m=0)$ に移った電子がイオン化される (fig. 5-12)

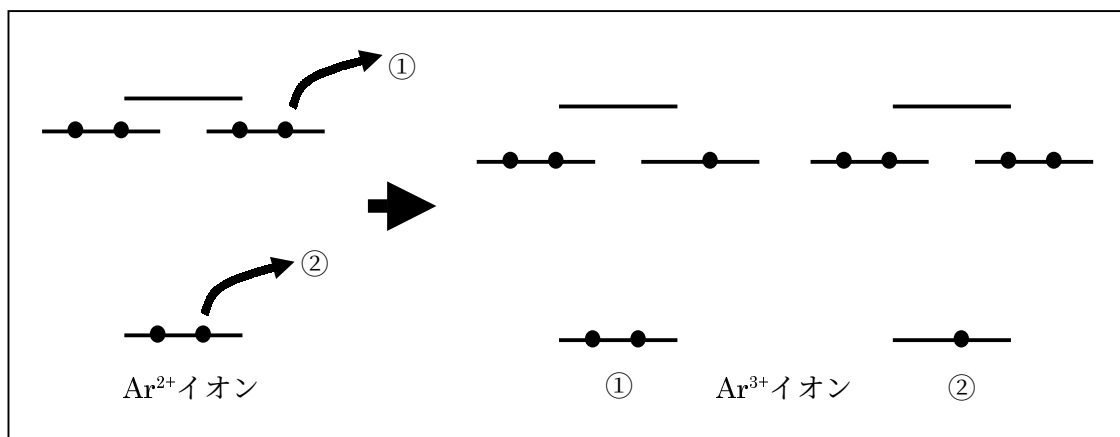


Fig. 5-11 : Ar^{3+} イオンの生成過程①②

まず②で表される過程である、より深い軌道である $1\sigma (m=0)$ からのイオン化のレートを ADK 理論から求める。このためには、 Ar^{2+} の電磁場中における $1\sigma \cdot 2\sigma$ のエネルギー差を求める必要がある。この値は、自由な Ar^{2+} の基底状態から励起状態 $(3s)^1 (3p)^4$ への励起エネルギー 14 eV を持って代用した[24]。このようにして求めた ADK イオン化レートを fig. 5-12 に示した。

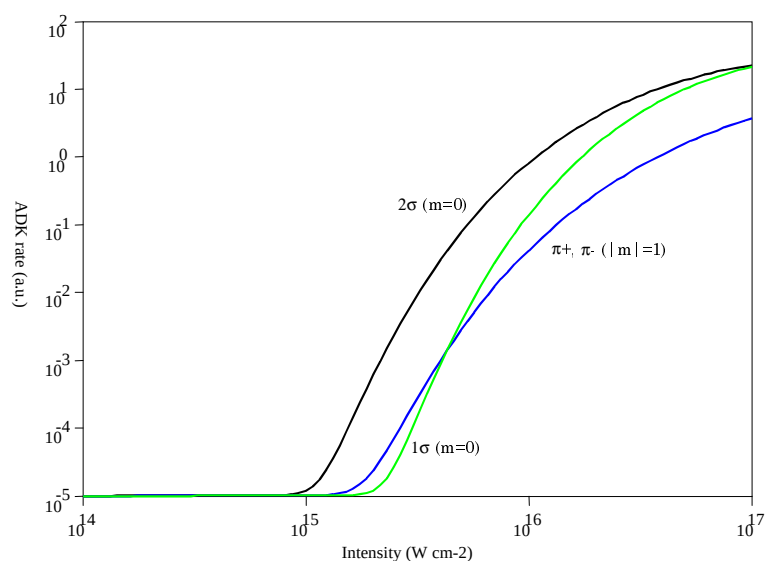


Fig. 5-12 : Ar^{2+} イオンの様々な 1 電子軌道からのイオン化レート

このグラフには、③ の過程に関連した、 2σ ($m=0$) からのイオン化レートも一緒に示してある。まず、① と ② とを比較して見よう。前項で行った計算によれば、 Ar^{3+} は $(3 \cdot 10) \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ の辺りで大部分が生成されるが、この辺りでは ② の過程は ① と同程度またはより大きい。

一方、③ は fig で表されるような過程である。前項の計算で (i) 常に $m=0$ の 1 電子軌道からのイオン化が起こる、とした場合に相当する。この過程がどの程度起こるかは、 Ar^{2+} の固有状態の configuration mixing の程度による。

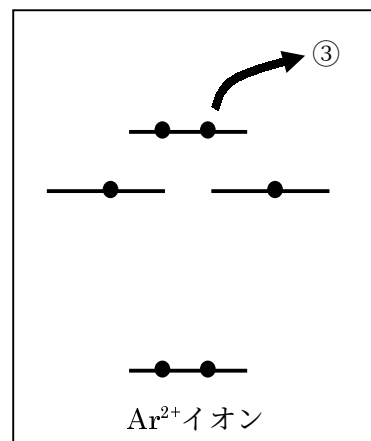
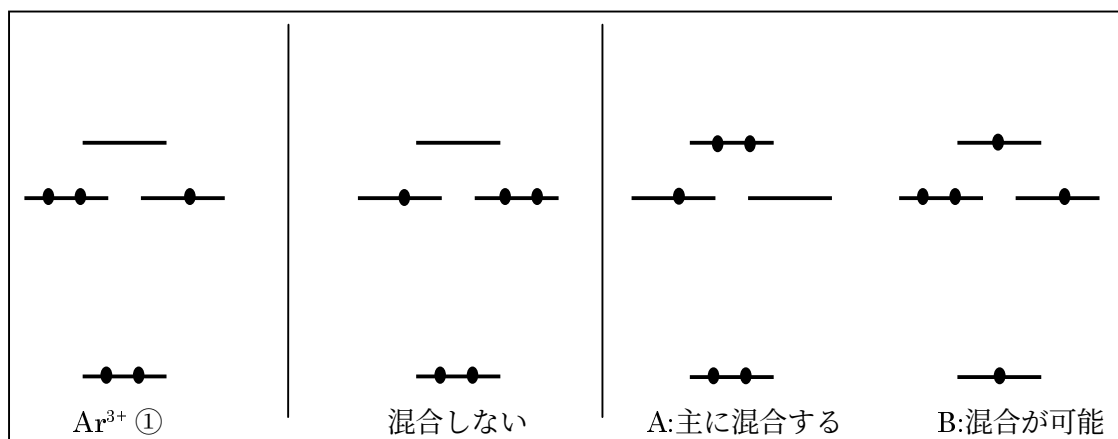


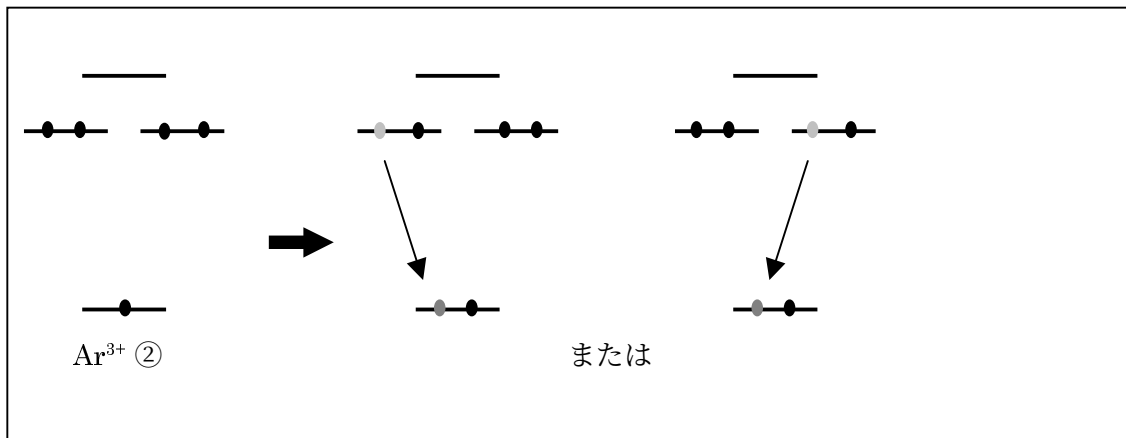
Fig. 5-12 : Ar^{3+} イオンの生成過程③

① の過程で生成された Ar^{3+} の状態は $|M=\pm 1, \mathbf{S}^2 = \frac{1}{2}(\frac{1}{2} + 1), S_0 = \pm \frac{1}{2}\rangle$ であると考えられる。前項の議論のように、 M は絶対値だけでなく符号も含めて保存される。このため、 $|M|$ が等しく、かつ縮退している 2 つの configuration $(1\sigma)^2 (\pi+)^2 (\pi-)^1 (2\sigma)^0$ と $(1\sigma)^2 (\pi+)^1 (\pi-)^2 (2\sigma)^0$ とは、現在考えている大きさの外部磁場やスピン軌道相互作用では混合しない。主に混合に関与するのは A : $(1\sigma)^2 (\pi+)^0 (\pi-)^1 (2\sigma)^2$ である。振動電場の強さが 0 になるあたりで、混合の割合が大きくなると考えられる。 M と S の保存からは B : $(1\sigma)^1 (\pi+)^2 (\pi-)^1 (2\sigma)^1$ も混合が可能であるが、エネルギー的には A の寄与が大きい。

また、 M が保存されるという仮定の下では、光パルス通過後、もとの振動電場方向に align された Ar^{3+} が得られることになる。

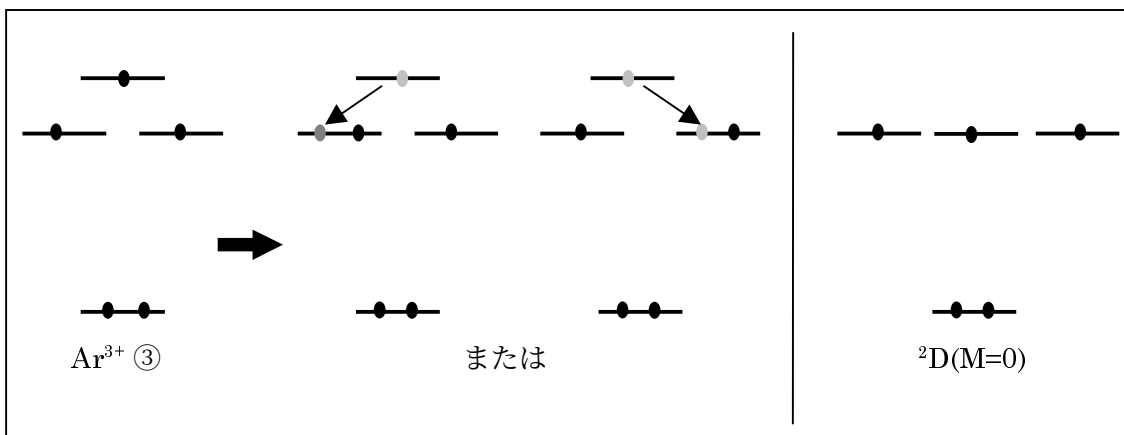


Ar^{3+} が②の過程で生成される場合、その状態は $|M=0, S^2=\frac{1}{2}(\frac{1}{2}+1), S_x=\pm\frac{1}{2}\rangle$ であると考えられる。これは1電子励起状態 $(1\sigma)^1(\pi+)^2(\pi-)^2(2\sigma)^0$ にある。対応する自由な Ar^{3+} の場合、励起エネルギーは 27 eV である[24]。このため auto-ionization には至らないと考えられる。 $|\Delta M|=1$ なる radiative decay により $(1\sigma)^2(\pi+)^2(\pi-)^1(2\sigma)^0$ や $(1\sigma)^2(\pi+)^1(\pi-)^2(2\sigma)^0$ に遷移することは可能である。



③の過程で生成された Ar^{3+} の場合も、②と同じく $|M=0, S^2=\frac{1}{2}(\frac{1}{2}+1), S_x=\pm\frac{1}{2}\rangle$ であると考えられる。 Ar^{2+} のスピンの大きさが 0 であれば、角運動量合成側から Ar^{3+} のスピンの大きさは $3/2$ にはならず $1/2$ に限られる。③からも、②の場合のような radiative decay が考えられる。

decay の前に振動電場の強さが 0 になると縮退を起こすが、対応する自由な Ar^{3+} は二重項 $^2D(M=0)$ である。一方 Ar^{3+} の基底状態は四重項 4S であり、これらは互いにスピンの大きさが異なる ($^2D \cdot ^4S = 2.6$ eV)。このため、スピンの大きさが保存されるのであれば、③の過程で生成された Ar^{3+} は、最も低い configuration 内のスピン多重度の異なる励起状態にあることになる。



5-4. 考察のまとめ

1. ADK レートを用いてイオンの収量計算を行った結果、途中で生成されるイオンの電子状態をどう仮定するかによって、収量が大きく変わる。さらに、得られる価数分布が定性的に変化する。
2. 強光子場を断熱的に取り扱って、イオンの固有状態を計算した。適当な仮定の下では、磁気量子数と、スピンの向き、大きさが保存されることが明らかとなった。
3. 前節の結果を踏まえ、磁気量子数とスピンの大きさが実際の強光子場中でも保存されると仮定し、Ar の多重イオン化過程を論じた。Ar³⁺を生成するに至るいくつかの起こり得るルートを決めた。それらのルートの違いによって、生成する Ar³⁺は整列した (aligned) イオン、1 電子励起状態、スピン多重度の異なる励起状態などに区別できる可能性がある。

6. まとめと展望

今回の実験では、強光子場中の Ar の多重イオン化を観測し、その機構についての洞察を得ることが目的であった。この目的のために、これまでのところ 10^{16}Wcm^{-2} 以上の光強度、 $3 \times 10^{-10} \text{Torr}$ の超高真空を達成することが出来た。また、得られた結果を計算値と比較して途中のイオンの電子状態に関する考察も行った。しかし、現在のところはっきりとした結論を出すには至っていない。これはいくつかの実験的不定要素が原因となっている。

まず、収量測定に関する誤差を引き起こす原因として、MCP ゲインの価数依存性の見積もりが難しいこと、波形が大きく乱れていることがある。これらはシングルカウンティングを行うことで解決される。そのためには真空装置の改良を行い、残留ガスとターゲットの密度を共に下げることが必要となる。

このとき、空間電荷による運動量広がりの問題も同時に解決できることが期待される。現状よりも更に TOF の分解能を上げることで、イオンの運動量測定が可能になる。多価イオンの運動量測定は、光電子スペクトル測定に似た意義を持つ大変重要な実験である。これは、収量測定とは比べ物にならない多くの情報を含んでいる。たとえばイオン化された後の電子と親イオンとの相互作用や、イオン化のレートに関する情報を引き出せる可能性がある。

レーザーのチューニングに関しては、1. 集光状態の改善、2. 光強度を可変にすること、が今後必要である。1. は具体的にはコンプレッサと集光ミラーの最適化を行う必要がある。また 2. については、分散に影響を与えないような素子を使用する必要があることと、高いダイナミックレンジが要求されることが課題となる。

Appendix

実験に使用した光パルスは約 190 fs (FWHM) であり、光ピーク強度は $5 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ 程度であるものと見積もられている。イオン化レートはパルス幅の逆数に比べ非常に大きく、このため始状態の減少 (initial state depletion) が無視できない。実験結果を計算と比較するためには、実際のパルス波形を用いてレート方程式を積分した上で、空間的分布に関しても積分する必要がある。

今回の実験では、検出するイオンを制限するためにスリットを設けたが、光の空間的分布の変化に対し十分に狭く、逆にビーム幅に比べ十分に長いスリットを設けることで、光強度分布は円筒対称性を有しているものと考えられる (fig. 3-15)。後に Gaussian ビームの場合の例を示すが、この円筒対称性は計算値と実験値との比較を著しく容易にする。

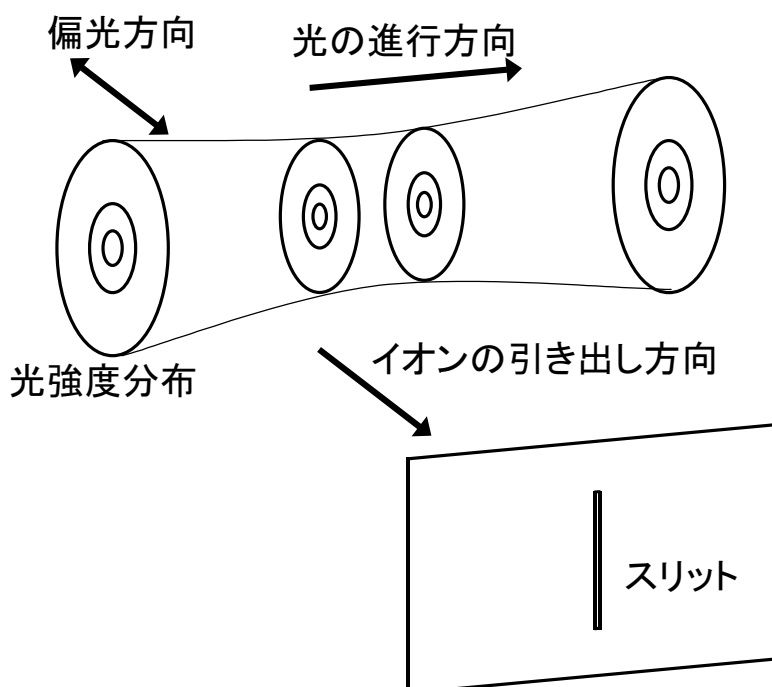


Fig. 3-15 (再掲)

上で触れた時間空間積分の手続きについてここで詳しく述べる。

まず、理想的な単色平面波中のイオン化レート $w_{p \rightarrow q}$ が計算で得られる (次元は $[\text{時間}]^{-1}$)。

$$w_{p \rightarrow q} : A^{p+} \rightarrow A^{q+}.$$

$w_{p \rightarrow q}$ は振動電場の振幅 F の関数であるため、パルス波形 $F(t)$ を通して $w_{p \rightarrow q}$ は時間の関数となる。

ここでは簡単のために、sequential ionization のみを考慮に入れる。つまり、イオンの価数は 1 ずつ増していくと考えられるような過程だけを問題にする。すると、 n_q を A^{q+} の規格化された population として、次のレート方程式が成り立つ。

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} n_0 \\ n_1 \\ n_2 \\ \vdots \\ n_{q-1} \\ n_q \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -W_{0 \rightarrow 1} & & & & & \\ W_{0 \rightarrow 1} & -W_{1 \rightarrow 2} & & & & \\ & W_{1 \rightarrow 2} & -W_{2 \rightarrow 3} & & & \\ & & & \ddots & & \\ & & & & W_{q-2 \rightarrow q-1} & -W_{q-1 \rightarrow q} \\ & & & & W_{q-1 \rightarrow q} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_0 \\ n_1 \\ n_2 \\ \vdots \\ n_{q-1} \\ n_q \end{pmatrix}$$

初期条件は

$$\begin{pmatrix} n_0 & n_1 & \cdots & n_q \end{pmatrix}' \Big|_{t=0} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & \cdots & 0 \end{pmatrix}'.$$

これを積分すると、時間 t の関数 (更にはパルス波形 $F(t)$ の汎関数) として $n_q(t; F(t))$ が得られるが、重要なのは時間 t が無限大になった極限である。これを $N_q(F)$ または電場 F の代わりに光強度 I を用いて $N_q(I)$ と書くことにすれば、実験で観測される各価数イオンの収量 $N_{q, \text{exp}}$ は $N_q(I)$ を空間積分したもの $N_{q, \text{integrated}}$ (次元は $[\text{長さ}]^3$) にターゲット密度を掛けたものとなる。

先にスリットに関して述べたように、空間分布は円筒対称性を有していると考えられるから、光強度 I に対応する体積素片 $dV(I)$ は次式のように表せる。

$$dV(I) = L \frac{dS(I)}{dI} dI,$$

ここで L はスリット幅、 $dS(I)$ は面積素片。これに N_q を掛けて I に関して積分すると、単位ターゲット密度辺りのイオン収量 $N_{q, \text{integrated}}$ が得られる。

$$N_{q, \text{integrated}} = L \int_0^{I_{\text{peak}}} N_q(I) \frac{dS(I)}{dI} dI.$$

例としてビームが Gaussian である場合を取り上げる。Gaussian ビームについては

$$I = I_0 \exp \left[- \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \right],$$

$$\ln \left(\frac{I}{I_0} \right) = - \left(\frac{r}{r_0} \right)^2,$$

$$\frac{dS}{d[\ln(I)]} = \frac{2\pi r dr}{d[\ln(I)]} = -\pi r_0^2 = \text{const.}$$

すなわち

$$N_{q,\text{integrated}} = \pi L r_0^2 \int_0^{I_{\text{peak}}} N_q(\ln(I)) d[\ln(I)].$$

Gaussian ビームの著しい性質として、十分高い光強度によって生成されたイオンの収量は光強度によらず一定になる。

参考文献

- [1] D. Strickland *et al.*, Opt. Commum. **62**, 419 (1985)
- [2] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965)
- [3] N B Delone *et al.*, Phys. Uspekhi **41** 469 (1998)
- [4] S. August *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 858 (1991)
- [5] Y. Nakai *et al.*, RIKEN Review **31**, 45 (2000)
- [6] H. Shimada *et al.*, *Abstract book of XXII-ICPEAC*, 126 (2001)
- [7] H. Shimada *et al.*, RIKEN Review **49**, 22 (2002)
- [8] Z. Wang *et al.*, IEEE J. Quant. Electron. **37**, 1 (2001)
- [9] D. N. Fittinghoff *et al.*, IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron. **4**, 430 (1998)
- [10] K. Osvay *et al.*, Opt. Comm. **105**, 271 (1994)
- [11] H. Shi *et al.*, Proc SPIE **4065**, 371 (2000)
- [12] I. Miyamoto *et al.*, ICALEO **341**, (1993)
- [13] D. Bauer *et al.*, Phys. Rev. A **59**, 569 (1999)
- [14] S. M. Hankin *et al.*, Phys. Rev. A **64**, 013405 (2001)
- [15] H. P. Eder *et al.*, Phys. Scr. **T73**, 322 (1997)
- [16] J. Oberheide *et al.*, Meas. Sci. Technol **8**, 351 (1997)
- [17] *Atomic and molecular beam methods* vol. 1,
edited by GScoles *et al.*, Oxford univ. press. (1988)
- [18] M. V. Amnosov, Laser Phys. **4**, 431 (1993)
- [19] N. B. Delone *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 1207 (1991)
- [20] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [21] M. V. Amnosov *et al.*, Sov. Phys. JETP **64**, 1191 (1986)
- [22] R. Taieb *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 053002 (2001)
- [23] <http://www-rocq.inria.fr/scilab/>
- [24] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/contents.html>
- [25] R. Shakeshaft *et al.*, Phys. Rev. A **42**, 1656 (1990)
- [26] A. baum, Rev. Mod. Phys. **65**, 115 (1993)

謝辞

山崎泰規教授には、私の仕事が遅いためいつもご面倒をおかけしましたが、結局は私の気がすむまで自由に研究を進めさせてくださいました。その忍耐力に感謝しています。理化学研究所原子物理研究室の中井陽一研究員とは、実験的にも理論的にも非常にお世話になりました。様々な、エキサイティングな議論を交わせたのはとてもよい経験となりました。大山等技師の、豊富な経験に裏づけられた緻密な作業からは、多くのことを学ぶことが出来ました。これからもいろいろな技術を身に付けていきたいと思います。神原正副主任研究員にはターゲットガス関連装置や検出器に関して、また勉強会でもいろいろと教えていただきました。安藤剛三共同研究員には真空槽や集光の議論でお世話になりました。

研究の困難さに絶望していた頃に、畠山温助手と Lyon 大学の Chen Li さんに参加していただいたことで、大きな希望が持てました。Lyon 大学と Frankfurt 大学の関連研究室の皆様は私の訪問を暖かく迎えてくださいました。とてもよい思い出として残っています。両大学の実験装置を見学することで、それまではっきりしていなかった自分の装置の改良の方向もかなり具体的なものとなりました。

新垣恵さんと近藤力君をはじめとする小牧山崎研究室の皆様からは、研究を進めていく上で多くの刺激を受けました。また、星野正光さんをはじめ、理化学研究所原子物理研究室の皆様には研究を進める上でのたくさんのヒントをいただきました。ここでお名前を挙げられなかった多くの方々にも感謝の気持ちを申し上げます。

最後に、私の研究をここまで支えてくださった家族に感謝します。