

# 卒業論文

## 2 光子イオン化過程の赤外強度による影響の研究

早稲田大学 先進理工学部 応用物理学科 新倉研究室

1Y17B029-3 河西 剛

指導教員：新倉 弘倫 教授

## 概要

本研究では、高次高調波と赤外光を用いて試料をイオン化する手法に着目し、赤外光の強度がイオン化によって生じる光電子の運動量分布に与える影響を調べた。アルゴンガスに高次高調波と赤外光を当て、生じた光電子の運動量分布を **Velocity Map Imaging** という方法を用いて計測した。計測データを分析した結果、赤外光の強度を  $0.240 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  大きくすると、光電子の信号強度の振動の振幅が小さくなるという結論に至った。また、赤外光の強度と信号強度の振動の位相との間には、一定の関係は見られなかった。

## 目次

### 第 1 章 序論

- 1.1 研究の背景
- 1.2 研究の目的

### 第 2 章 理論

- 2.1 高次高調波の発生原理
- 2.2 高次高調波と赤外光を用いて試料をイオン化する方法

### 第 3 章 実験方法

- 3.1 測定方法
- 3.2 データ処理の方法

### 第 4 章 高次高調波と赤外光の時間差の関数としての信号強度の測定結果

- 4.1 赤外光の強度が弱い場合（測定 1）の測定結果
- 4.2 赤外光の強度が強い場合（測定 2）の測定結果
- 4.3 両者の比較

### 第 5 章 考察

- 5.1 赤外光の強度と信号強度の振動の関係
- 5.2 赤外光の強度と信号強度の位相の関係
- 5.3 赤外光強度の変化量
- 5.4 結論

### 参考文献

### 謝辞

## 第 1 章 序論

### 1.1 研究の背景

科学技術の発展に伴い様々な物理現象の測定が行われるようになり，測定の時間分解能の改善が課題となっている[1]. 原子や分子など，ミクロの世界での時間変化を捉えるためには，極めて短い幅のパルスが発生させる必要がある．このような領域はアト秒科学と呼ばれる．アトは $10^{-18}$ を意味する．アト秒パルスが発生させる手法の 1 つに，高次高調波（**High Harmonic Generation, HHG**）を利用するものがある[2]. 高次高調波とは，希ガスに高強度のレーザーを当てると，入射波長の整数倍の波長を持つ光が生成される現象であり，高次高調波を利用してアト秒パルスが発生させることができる[3]. 高次高調波によって発生したアト秒パルスを，測定対象の物質に照射し，アト秒パルスと物質との相互作用を測定すれば，短い時間で起こる物理現象を捉えることができる．より短い間隔で起こる現象の測定を可能にするために，アト秒科学においては，どうやってより短い幅のパルスが発生させるか，そして発生したパルスを用いてどのように計測を行うかが研究されている[1].

### 1.2 研究の目的

高次高調波を利用した計測には様々な方法がある．今回の研究では，発生した高次高調波と赤外光をともに試料に入射させ，生じた光電子の運動量分布を測定する，という手法に着目した[4]. 光電子の運動量分布の測定には，**Velocity Map Imaging (VMI)** という方法を用いて，光電子の運動量ごとの収量を計測した．このとき，高次高調波と赤外光の時間差を変化させながら光電子の運動量分布を測定すると，光電子の収量の振動が観測でき，この振動の位相から，発生したパルスや試料のイオン化過程の情報を得ることができる[2]. 今回の実験では，高次高調波が発生させるために 800nm の赤外光と 400nm の紫外光の 2 種類の光を用いており，発生した高次高調波に，基本波である 800nm の光を加えてアルゴンガスをイオン化させる．本研究は，アルゴンガスのイオン化過程において「800nm の赤外光の強度を変化させると，光電子の収量の振動がどのように変化するか」を調べることを目的である．

## 第2章 理論

### 2.1 高次高調波の発生原理

高次高調波は、端的に言うと、「気体にレーザー光を当てると、当てたレーザー光のエネルギーの整数倍の光が出てくる」という現象である。高次高調波の発生は、「(1)トンネルイオン化」「(2)電子の再衝突」「(3)高次高調波の発生」という3段階に分けて、以下のように古典的に考えることができる[3]。(1)トンネルイオン化とは、気体原子内の電子がレーザー光の強い電場によってイオン化される現象である。通常、原子内の電子は原子核内にある陽子のプラス電荷によって束縛されているが、電場の大きいレーザー光を照射されると、電子を束縛していたクーロンポテンシャルが変形し、トンネル効果によって原子外部に飛び出していく。これがトンネルイオン化である。(2)トンネルイオン化によって飛び出した電子は、レーザー電場の振動方向に加速される。最初、原子核から見て原子外部の方向に加速されていた電子は、レーザー電場の向きが逆になると、原子内部に向かって折返し、再度原子と衝突する。これが再衝突である。(3)再衝突の後、電子は原子に再び束縛され、その際に運動エネルギーを失う。失った運動エネルギーは、光として外部に放出されるが、この光が高次高調波として観測される。

### 2.2 高次高調波と赤外光を用いた試料のイオン化[4]

今回の実験では、高次高調波の発生の際に、基本波である800nmの赤外光と、2倍波である400nmの紫外光を用いた。このとき、基本波による奇数次の高次高調波に加え、偶数次の高次高調波も生じる。さらに、発生させた高次高調波に、基本波にあたる800nmの赤外光を加え、アルゴンガスをイオン化した。

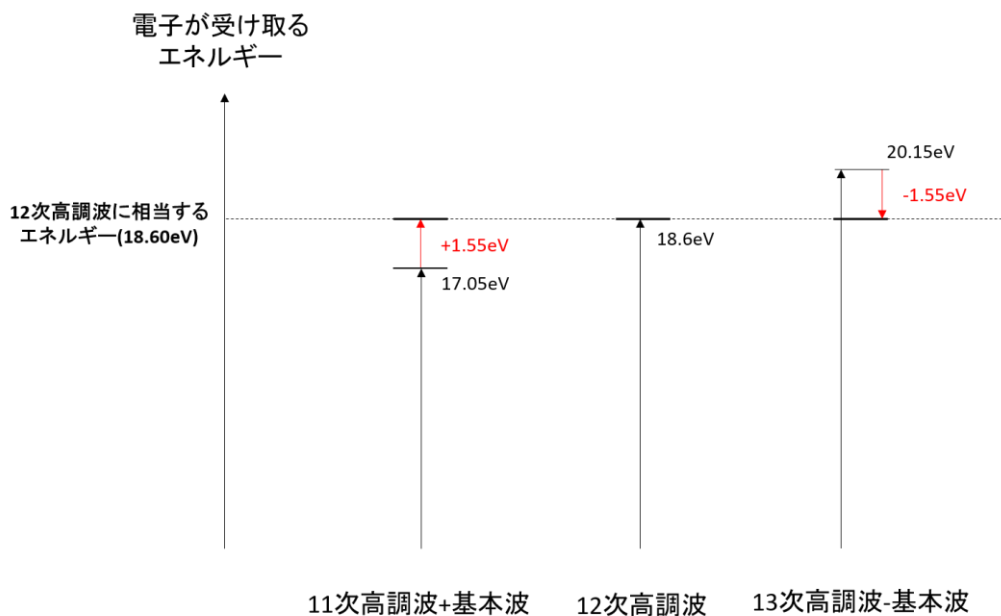


図 2.1 12 次高調波に等しいエネルギーによってアルゴンがイオン化される要因

ここで、「12 次高調波と等しいエネルギーによってイオン化されたアルゴン原子から生じた光電子」について考える。図 2.1 は、「12 次高調波に等しいエネルギーをアルゴンが受ける要因」を示しており、その要因には「12 次高調波」そのもの以外にも、「11 次高調波と赤外光の吸収」「13 次高調波と赤外光の放出」の 2 つがある[2]。これについて詳しく述べる。基本波である 1 次光は、波長が 800nm なので、エネルギーは 1.55eV である。よって、12 次高調波に相当するエネルギーは、基本波のエネルギーの 12 倍となるので、18.6eV である。同様に、11 次高調波のエネルギーは 17.05eV、13 次高調波のエネルギーは 20.15eV である。ここで、アルゴン原子が 11 次高調波と基本波を吸収すると、 $17.05\text{eV} + 1.55\text{eV} = 18.6\text{eV}$  のエネルギーでイオン化されることになり、飛び出す光電子は「12 次高調波によってイオン化されたアルゴン原子から生じた光電子」と等しいエネルギーを持つ。また、アルゴン原子が 13 次高調波を吸収し基本波を放出すると、 $20.15\text{eV} - 1.55\text{eV} = 18.6\text{eV}$  のエネルギーによってイオン化されることになり、この光電子もまた「12 次高調波によってイオン化されたアルゴン原子から生じた光電子」と等しいエネルギーを持つ。今回計測したのは光電子の収量であるが、式(2.2.2)で後述するように、電子の運動量とエネルギーには 1 対 1 の対応関係がある。よって、測定される「12 次高調波と等しいエネルギーによってイオン化されたアルゴン原子から生じた光電子の収量」は、上述の「11 次高調波+基本波」「12 次高調波」「13 次高調波-基本波」という 3 つの発生源を持ち、この 3 つから生じた光電子がそれぞれ干渉しあった結果が、運動量分布として計測される。ここで、アルゴンに照射する高次高調波と基本波の時間差（以降、XUV-IR ディレイまたはディレイと呼称する）を変更すると、3 つの発生源から生じた光電子の干渉が変化し、それによって光電子の運動量分布にも変化が生じる[4]。

## 第3章 実験方法

### 3.1 測定方法

測定に用いた光学系の模式図を，図 3.1 に示した. [4]

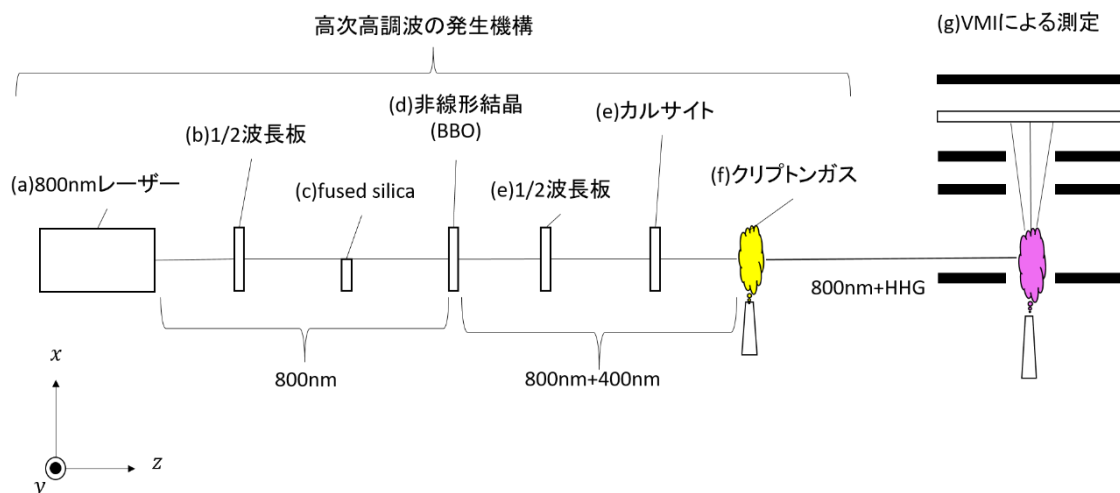


図 3.1 測定に用いた光学系

図 3.1 は大まかに，高次高調波を発生させるための部分と，Velocity Map Imaging(VMI)による測定を行う部分に分かれている．まず，高次高調波の発生機構について説明する．最初に(a)波長 800nm のレーザー光 (図のy方向の直線変更) を(b)1/2 波長板に入射させて，x方向の直線偏光に変えた．その後，(c)fused silica によってレーザー光にディレイを加えた．(c)fused silica は半月状であり，円形のレーザー光の上半分は(c)fused silica を通らず，下半分が内部を通過するようになっているので，レーザーの上半分と下半分との間でディレイが生じる．また，(c)fused silica の光軸に対する角度を変化すると，レーザーの下半分が(c)fused silica 内を通る際の光路長が変化するので，ディレイのかかり具合も変化する．ディレイの調整後，(d)非線形結晶(BBO)に入射させ，2 倍波である 400nm の紫外光を発生させた．(d)非線形結晶は，800nm の光を透過させつつ，400nm の 2 倍波を発生させる役割を持つ．その後，800nm の光と 400nm の光の偏光方向を同じにするために，(e)1/2 波長板に入射させ，双方ともy方向の直線偏光とした．また，双方の光の群遅延を調整するために，(f)カルサイトに入射させた．その後，2 種類の光を(f)クリプトンガスに集光し，2.1 節で記した原理に従い高次高調波を発生させた．アルゴンのイオン化に用いる高次高調波と赤外光は，ここまで同軸上を進み，(g)VMI による測定機構に入射する．この 2 つの光を用いてアルゴンガスをイオン化した．アルゴンガスから生じた光電子の運動量分布を得るために，以下に詳解する Velocity Map Imaging(VMI)法を用いて，光電子の運動量分布の測定を行った．

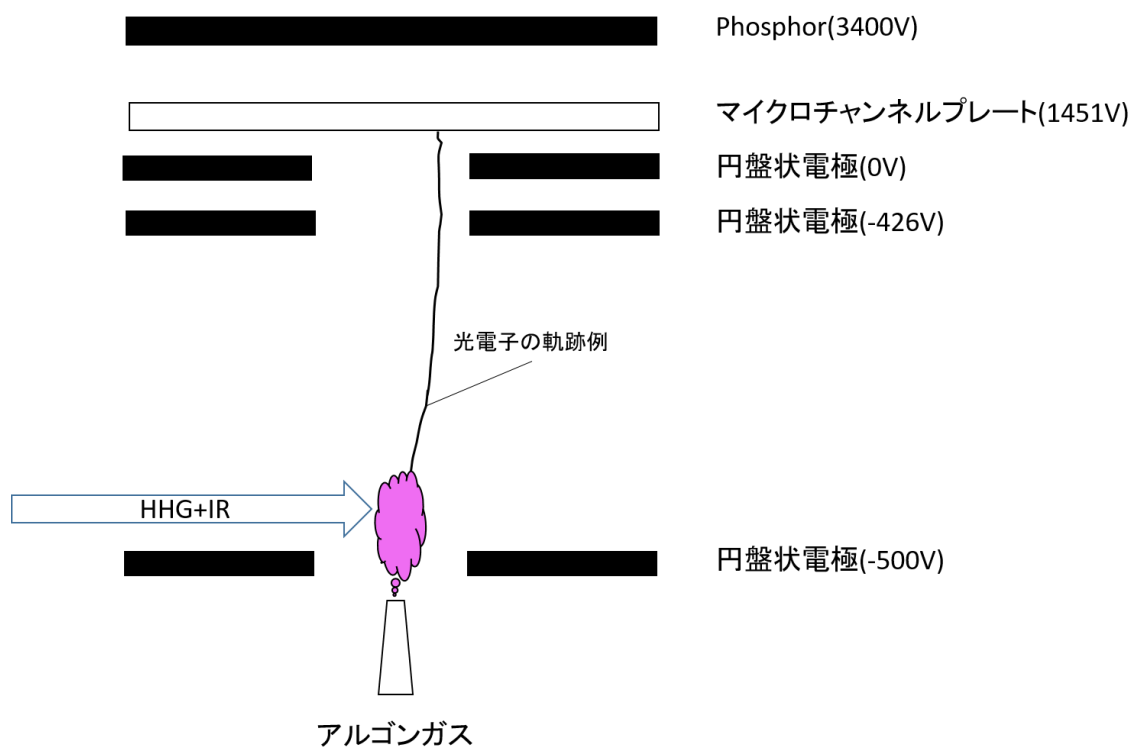


図 3.2 Velocity Map Imaging の模式図

図 3.2 は図 3.1 の(g)VMI による測定機構の拡大図であり、マイクロチャンネルプレートを用いた、Velocity Map Imaging(VMI)という測定方法の模式図である。端的に言うと、VMI は名前の通り「光電子の速度（または運動量）を、光電子が飛んでいった位置をマッピングしたイメージから得る」という手法である[2]。なお、今回は以下の表 3.1 に表した条件で VMI による測定を行った。

表 3.1 VMI の測定条件	
名称	設定値[V]
VMI-Phosphor	3400
VMI-MCP	1451

図 3.2 において、高次高調波と赤外光によってアルゴンガスがイオン化され、飛び出した光電子は電極が作る電場によって MCP がある方向に飛んでいく。このとき、MCP 上のどの位置に光電子が当たったかによって、光電子がアルゴンから飛び出した際の運動量を知ることができる。

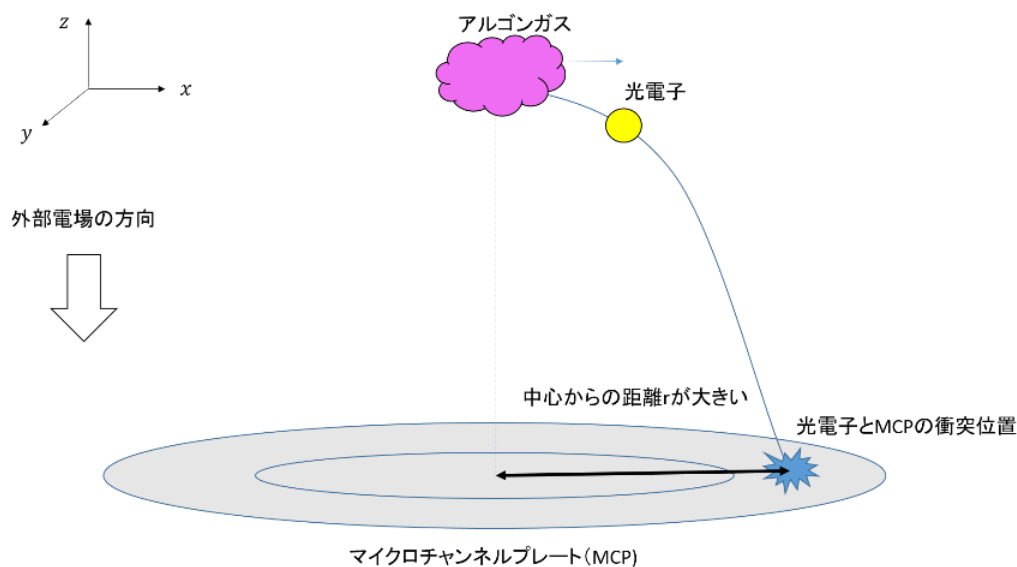


図 3.3 運動量が比較的大きい光電子と MCP との衝突

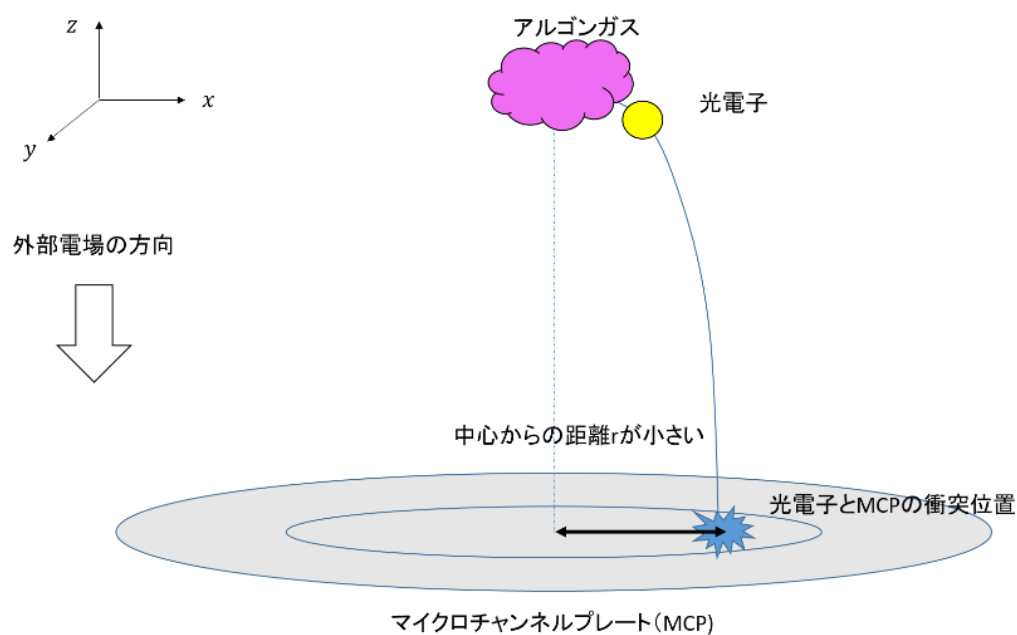


図 3.4 運動量が比較的小さい光電子と MCP との衝突

図 3.3 と図 3.4 は、アルゴンから飛び出した光電子が、MCP と衝突するまでの模式図を表している。図 3.3 は光電子の運動量が比較的大きい場合、図 3.4 は光電子の運動量が比較的小さい場合である。飛び出した光電子は、外部電場によって加速される。外部電場は $z$ 方向のみにかかっているため、MCP に向かって飛んでいく光電子の $x, y$ 方向の運動は電場による影響を受けず、飛び出したときの速さと方向を保ちながら運動する。したがって、飛び出したと



きの運動量が大きい（小さい）ほど、光電子は MCP の中心から遠い（近い）場所に衝突する。また MCP の中心から衝突地点に向けた方向が、光電子の運動量の角度成分を表している。アルゴンに入射する光の振動数を $\nu$ ，アルゴンから飛び出した光電子のエネルギーの大きさを $E$ ，アルゴンの第一イオン化エネルギーの大きさを $I$  ( $=15.8\text{ev}$ ) とすると、式(3.1.1)の関係が成り立つ。

$$E = h\nu - I \quad (3.1.1)$$

ここで、 $h$ はプランク定数である。式(2.2.1)より、アルゴンへ入射する光のエネルギーと、光電子のエネルギーは比例関係にあることがわかる。ここで、光電子の運動量を $\mathbf{p}$ とおくと、

$$\frac{1}{2m}|\mathbf{p}|^2 = E \quad (3.1.2)$$

となる。式(3.1.1)と式(3.1.2)より、入射する光の振動数が大きいほど、光電子の運動量も大きくなる。以上により、MCP から得られたデータから光電子の運動量分布がわかり、そこからさらにアルゴンに入射した光（=高次高調波と赤外光）の情報が得られる。一連の「高次高調波発生」と「VMI による測定」を、アルゴンガスに入射する高次高調波と赤外光のディレイを変化させながら、200 回分測定し(測定 1)，赤外光の強度を大きくした後さらに 200 回分の測定を行った(測定 2)。それぞれの測定の条件を、表 3.2 に示す。なお、表 3.2 中の digit は角度の単位であり、1 digit で  $21^\circ$  を表す。これは fused silica の回転角を表すが、光軸に対する回転角が大きくなればなるほど、光が fused silica を通る際の光路長が大きくなるので、高次高調波と赤外光のディレイが大きくなる。また、同データ加算回数とは、同じ条件のデータを複数回取り重ねた回数を意味し、これは明瞭なデータを得るために行っている。

表 3.2 測定条件

測定回数	fused silica の角度変化幅 [digit]	測定回数 [回]	同データ加算回数 [回]
測定 1	1.9~2.8691	200	10
測定 2	1.9~2.8678	200	10

### 3.2 データの処理方法

表 3.1, 表 3.2 に示した条件で 2 回、計 400 データ分の測定を行い、得られたデータを Visual Basic で自作したプログラムを用いて以下のように処理した。1 回の計測について 200 個のデータがあるが、それらは D1,D2,・・・D200 というファイルで保存してある。（以降、「測定 $i$ の $D_n$ 」といった場合、 $i$ 回目測定の  $n$  番目のデータを指し、 $D_n$ を「データ番号」と呼ぶ。）これらの VMI で測定したデータは、MCP 上の位置 $(x,y)$ における光電子の信号強度 $C(x,y)$ である、光電子の信号強度 $C(x,y)$ をグレースケールで表した Velocity Map Imaging 図

を，図 3.1 に示す．なお，実際には光電子はアルゴンから 3 次元的に放出され，それを電場によって MCP の方向に飛ばし，2 次元に射影した分布を測定している．よって，本来であれば測定データを 3 次元的な分布に変換する必要があるが，今回は近似的に 3 次元的な分布を 2 次元に射影したものを平面座標上の分布として扱っている．

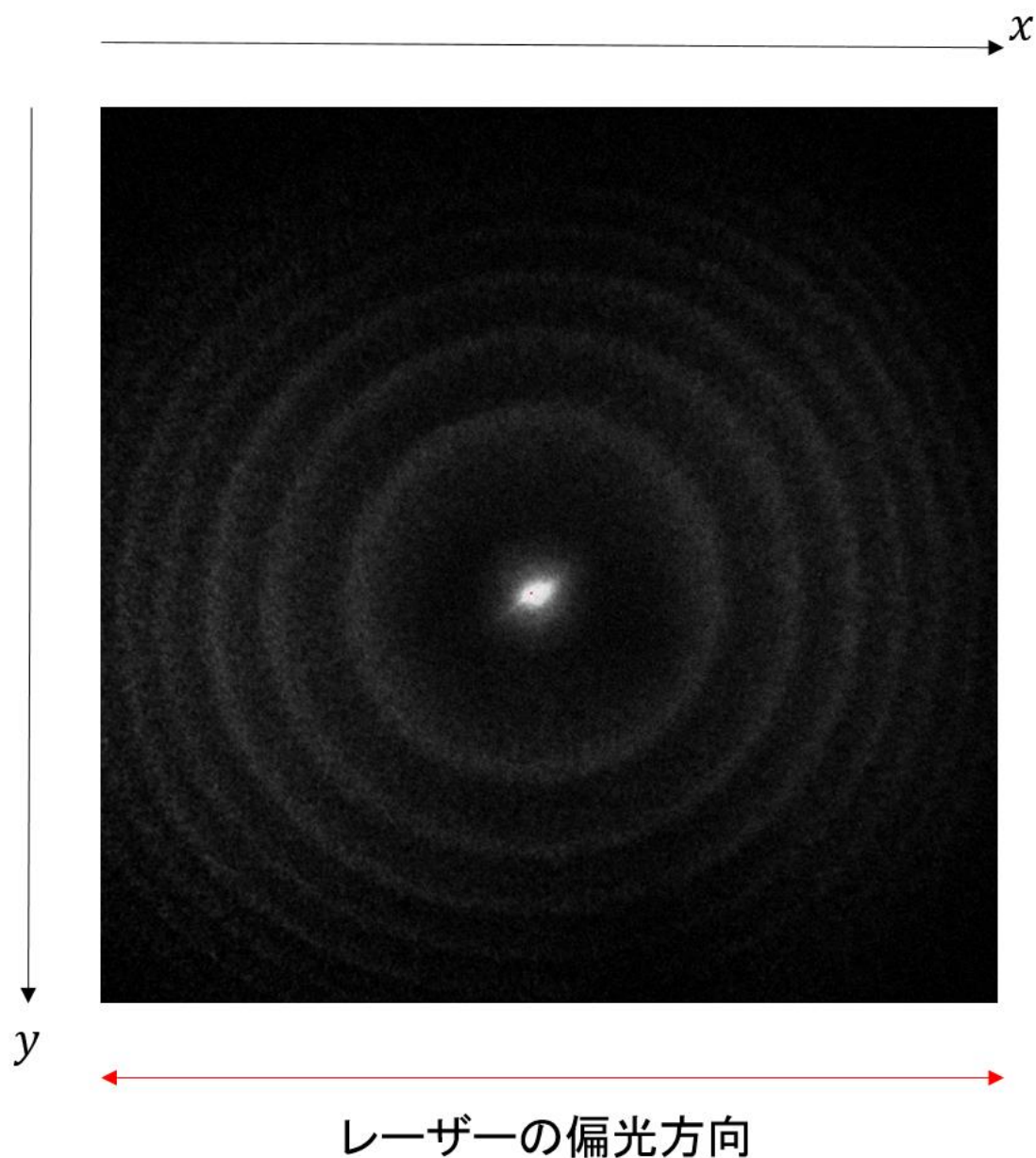


図 3.5 平面座標で表した Velocity Map Imaging 図（測定 1 の D1）

図 3.5 は，480x480 ピクセルの画像であり，1 つのピクセルが MCP のある一つの位置  $(x, y)$  に対応している．例えば，画像の一番左上のピクセルは MCP 上の  $(0,0)$  に，画像の一番右下

は MCP 上の(479,479)に対応している。ピクセルの色は、 $C(x,y)$ に対応している。色が白いほど値が大きく、黒いほど値が小さい。さらに、図 2.1 では同心円状に信号強度の強い部分が並んでいるのがわかる。3.1 節で述べたように、図の中心からの距離 $r$ は光電子が受け取ったエネルギーの大きさに対応しており、この輪は各次数の高次高調波と等しいエネルギーを受け取った光電子が計測されてできたものである。式(2.2.1)から、アルゴン原子をイオン化させるには 15.7596eV より大きいエネルギーが必要になることがわかる。ここで、波長 800nm の基本波のエネルギーは 1.55eV なので、10 次高調波に相当するエネルギーは 15.5eV、11 次高調波のエネルギーは 17.05eV となり、イオン化するのは 11 次以上の高次高調波に相当するエネルギーを受け取ったアルゴンだけということがわかる。よって、図 3.5 の輪は、最も内側が 11 次高調波に相当するエネルギー、内側から 2 つ目が 12 次高調波に相当するエネルギー、3 つ目が 13 次高調波に相当するエネルギー、という風に対応している。今、図 3.5 は平面座標であるが、この図を極座標として捉え、中心からの距離 $r$ とレーザーの偏光方向からの角度 $\theta$ で信号強度を表し、これを $C(r,\theta)$ とした。(  $r,\theta$ ともに整数値であり、 $r$ の最大値はデータごとに調整し、 $0^\circ \leq \theta \leq 359^\circ$  とした。 ) このとき、同心円状になっている部分の円の中心の座標を目視で取り、10 個分の平均の座標を曲座標平面の中心として採用した。図 3.1 と同様に、極座標上の光電子の信号強度 $C(r,\theta)$ をグレースケールで表したものを、図 3.2 に示す。(なお、図 3.2 の外枠は赤線で囲ってあるが、これは視認性のために後から付け足したもので、データとしての意味はない。)

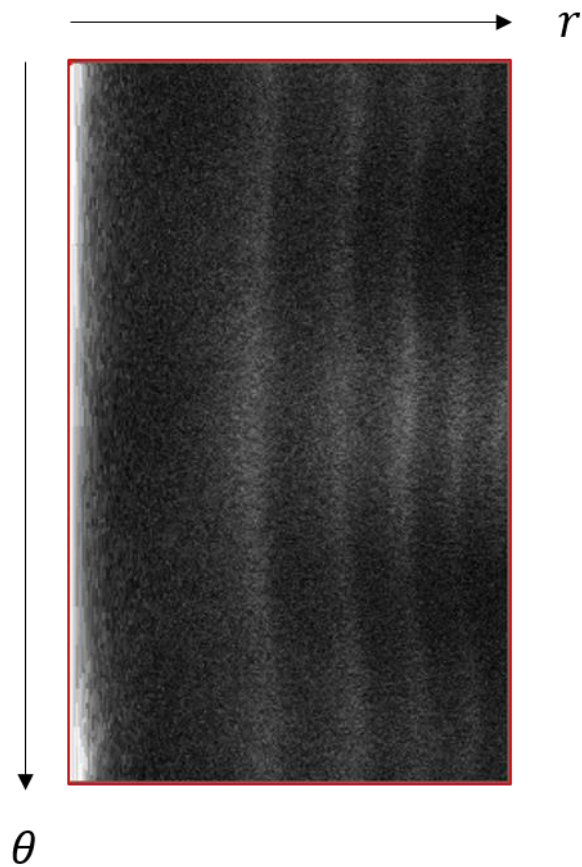


図 3.6 極座標で表した Velocity Map Imaging 図（測定 1 の D1）

図 3.6 を見ると，高次高調波によって生じた信号強度の縞模様が確認できる．また， $\theta$  方向にも信号強度に偏りがあり， $\theta = 0^\circ, 180^\circ$  付近の信号強度が強く， $\theta = 90^\circ, 270^\circ$  付近の信号強度が弱くなっている．次に，各 VMI 図について，各次の高次高調波の信号強度を比較しやすくするために，ある方向へのデータの積算を行った．図 3.7 を用いて， $x, y$  方向の積算について説明する．

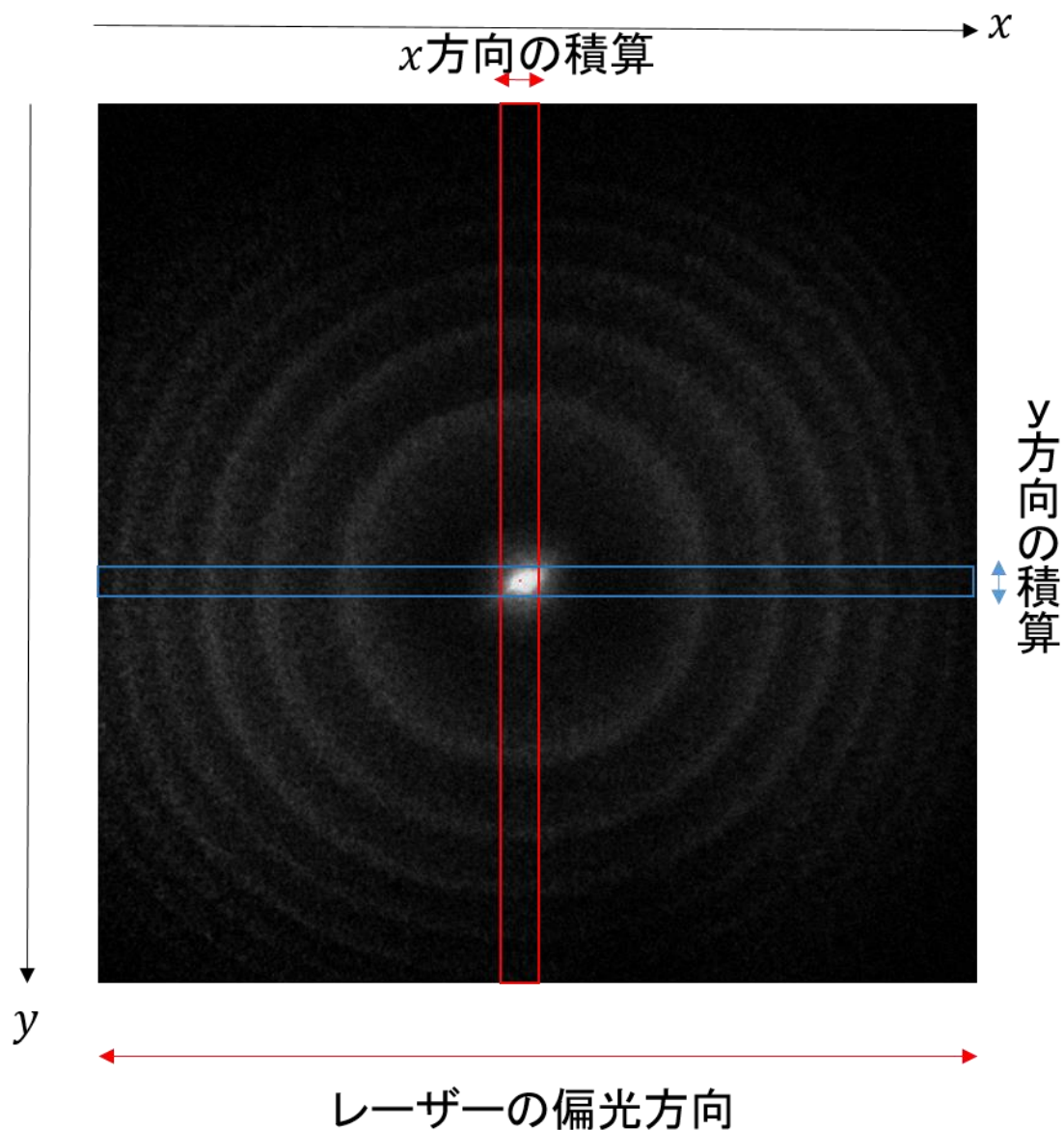


図 3.7  $x, y$  方向の積算

まず,  $x$  方向の積算について説明する.  $x$  方向の積算では, 中心付近のデータ (図 3.7 中の赤枠の範囲内) に着目し, 「 $y$  座標をある値  $Y$  に固定し, 中心の  $x$  座標  $x_c$  としたとき,  $(x_c \pm 5, Y)$  を満たすデータを合計する」という処理を行った. 具体的には, 例えば  $y=100$  と固定し,  $x_c = 239$  であるとき,  $(235, 100)$  から  $(244, 100)$  までの 10 個のデータを合計し, これを「 $y=100$  における信号強度」とした. 同じ操作をすべての  $y$  について行い, 中心付近における信号強度と  $y$  座標の関係  $C(y)$  を得た. さらにこの操作を 200 個のデータ D1 から D200 まで全てに対して行い, それぞれの  $C(y)$  をつなげ, グレースケールで表したものを図 3.8 に示す.

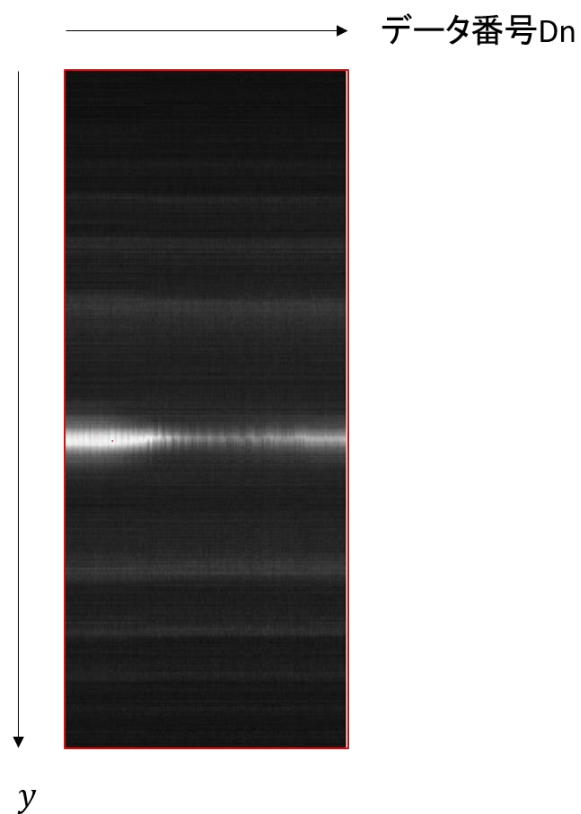


図 3.8 各データにおける $y$ と信号強度の関係

同様に、 $y$ 方向についても積算を行った。図 3.7 中の青枠の範囲内に着目し、「 $x$ をある値 $X$ に固定し、中心の $y$ 座標 $y_c$ としたとき、 $(X, y_c \pm 5)$ を満たすデータを合計する」という処理を行った。この処理を 200 個のデータ全てに適用し、すべてのデータの「 $x$ 座標と信号強度の関係 $C(x)$ 」をつなげ、グレースケールで表したものを図 3.9 に示す。

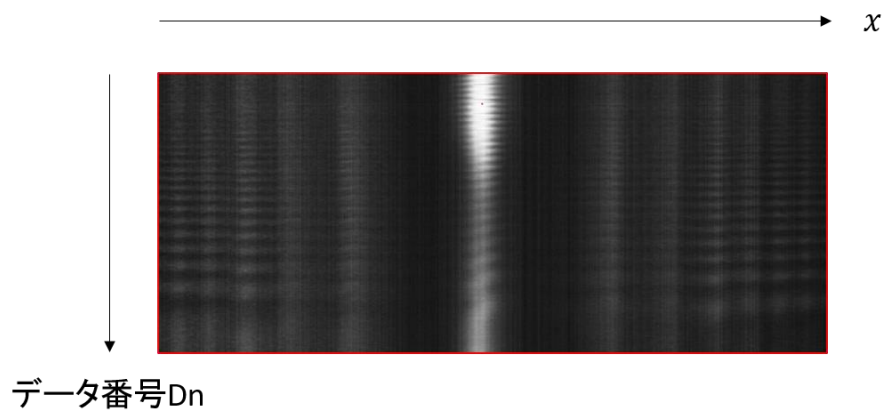


図 3.9 各データにおける $x$ と信号強度の関係 $C(x)$

同様に、 $r$ 方向についても積算を行い、すべてのデータの「半径 $r$ と信号強度の関係 $C(r)$ 」をつなげ、グレースケールで表したものを図 3.10 に示す.

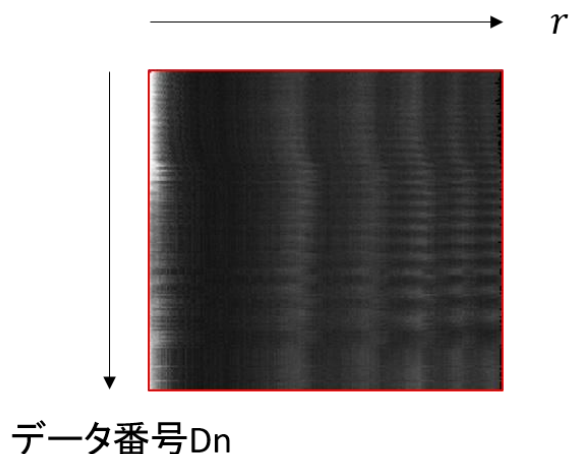


図 3.10 各データにおける $r$ と信号強度の関係 $C(r)$

これらのデータから、信号強度と高次高調波と赤外光の時間差（以降、XUV-IR ディレイと呼称する）の関係を求める. 今回、信号強度の振動がよく表れていた $C(x)$ （図 3.9）に着目した. 図 3.9 のままでは、各次の高調波の縞模様に幅があるので、一定の幅内の信号強度を積算し、各次の高次高調波と等しいエネルギーによってイオン化されたアルゴンから生じた光電子の信号強度と、データ番号 $D_n$ との関係を求めた. 積算の様子を図 3.11 に示す.

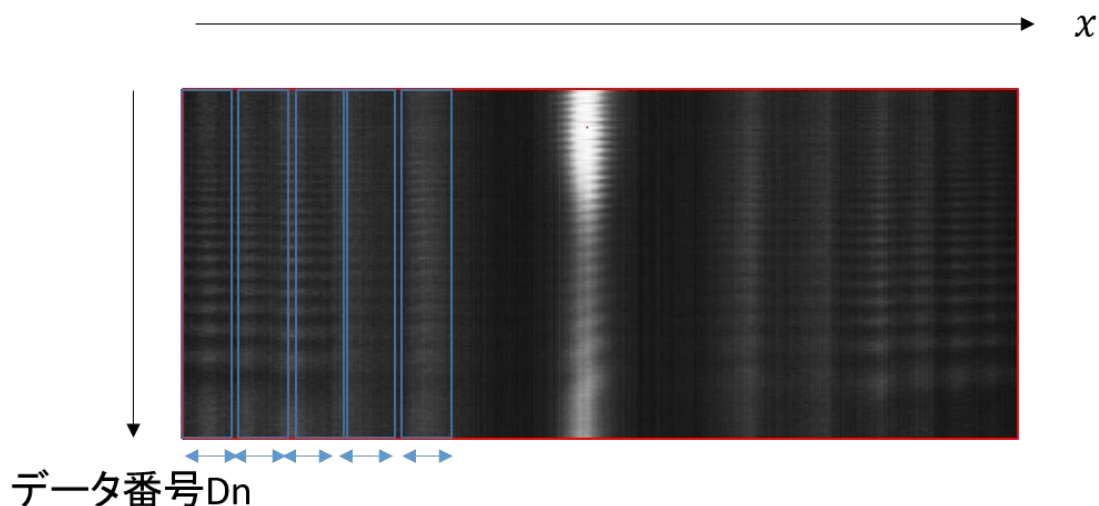


図 3.11  $C(x)$ における光電子の信号強度の算出

図 3.3 で示した積算方法と同様に、データ番号をある値に固定し、 $x$ 方向の幅 24 以内にあるデータを積算した. この処理を、 $310 \leq x \leq 323$ ,  $324 \leq x \leq 347$ ,  $348 \leq x \leq 371$ ,  $372 \leq$

$x \leq 395$ ,  $396 \leq x \leq 419$ という 5 区間について行い、それぞれ第 11 次高調波、第 12 次高調波、第 13 次高調波、第 14 次高調波、第 15 次高調波と等しいエネルギーによってイオン化されたアルゴンから生じた光電子に対応している。次に、データ番号を XUV-IR ディレイに変更するため、図 3.12 に示す処理を行った。

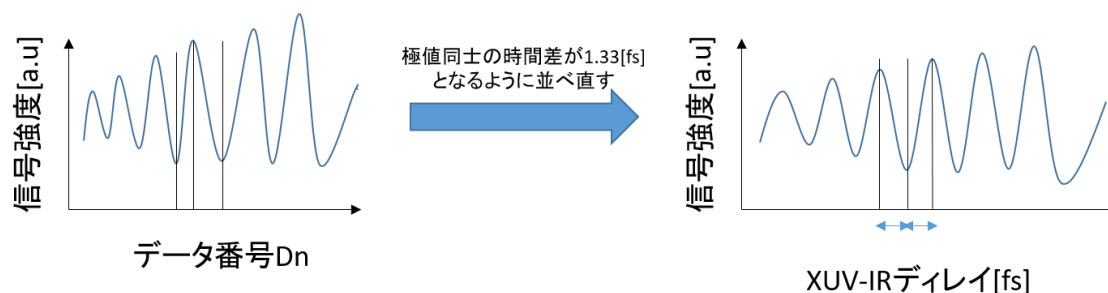


図 3.12 データ番号から XUV-IR ディレイへの変換処理

各データ番号は、表 3.2 に記したように fused silica の角度に対応しており、fused silica の角度は高次高調波と赤外光（波長 800nm の基本波）のディレイに対応している。また、光電子の信号強度の周期は基本波の周期と等しいことが知られている [2]。基本波の周期は 2.66fs であるので、図 3.8 の左側のような、極値同士の間隔が異なっているデータを、右側のような、極値同士の間隔が半周期分の 1.33fs になるように変換した。さらに、各データ間で信号強度の振動の様子を比較できるようにするため、測定 1 の 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度のデータを用いて、図 3.13 のようなデータ番号と XUV-IR ディレイの対応関係の標準を作成した。

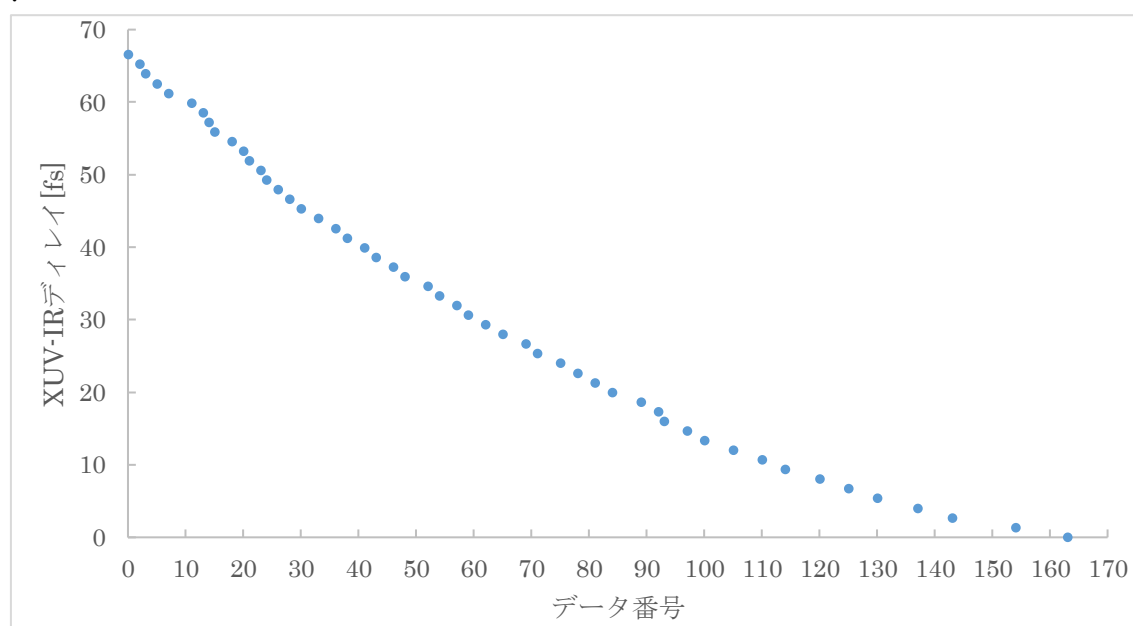


図 3.13 測定 1 の 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度のデ



ータから作成した，データ番号と XUV-IR ディレイの対応関係の標準

図 3.13 の標準の作成の際には，XUV-IR ディレイが 0 となる点を「最もデータ番号の大きい信号強度の極小値」とであると仮定し，それ以降のデータは切り捨てた．この対応関係を用いて，各データの信号強度と XUV-IR ディレイの関係を改めて求めた．以上の処理で得られた，各次の高次高調波の信号強度と，XUV-IR のディレイとの関係を次の第 4 章で示す．

#### 第 4 章 高次高調波と赤外光の時間差の関数としての信号強度の測定結果

##### 4.1 IR 強度が弱い場合（測定 1）の測定結果

今回の研究では，高次高調波(XUV)と IR 光のディレイを変化させる測定を，IR 光の強度が弱い場合（測定 1）と強い場合（測定 2）の 2 パターンで行った．はじめに，IR 光の強度が弱い場合（測定 1）における，各次数に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度を，11 次，12 次，13 次，14 次，15 次の順に，それぞれ図 4.1，図 4.2，図 4.3，図 4.4，図 4.5 に示した．

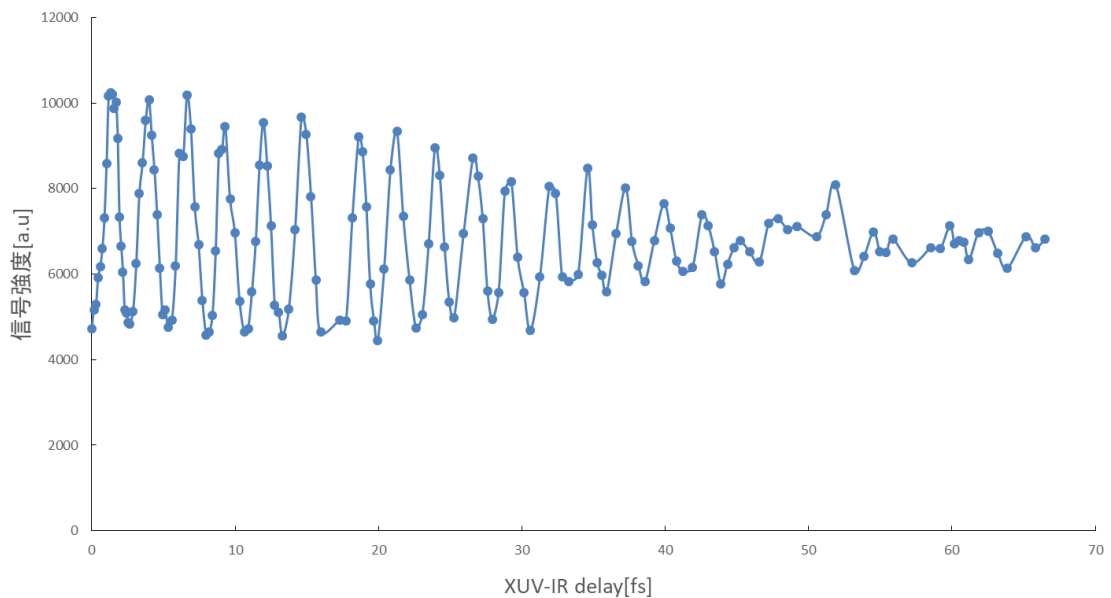


図 4.1 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 1）

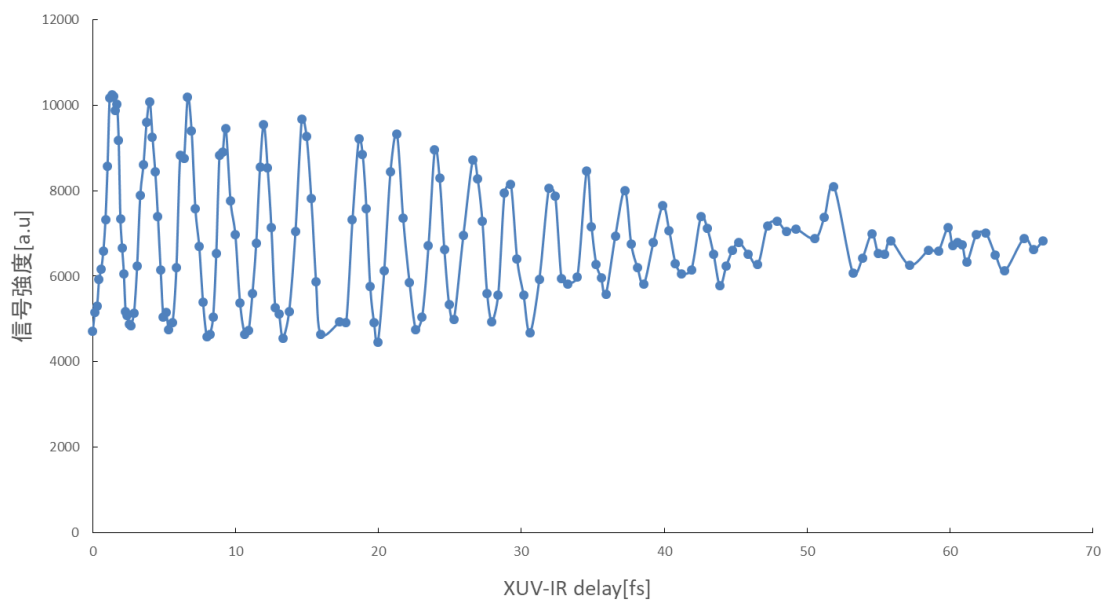


図 4.2 第 12 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 1）

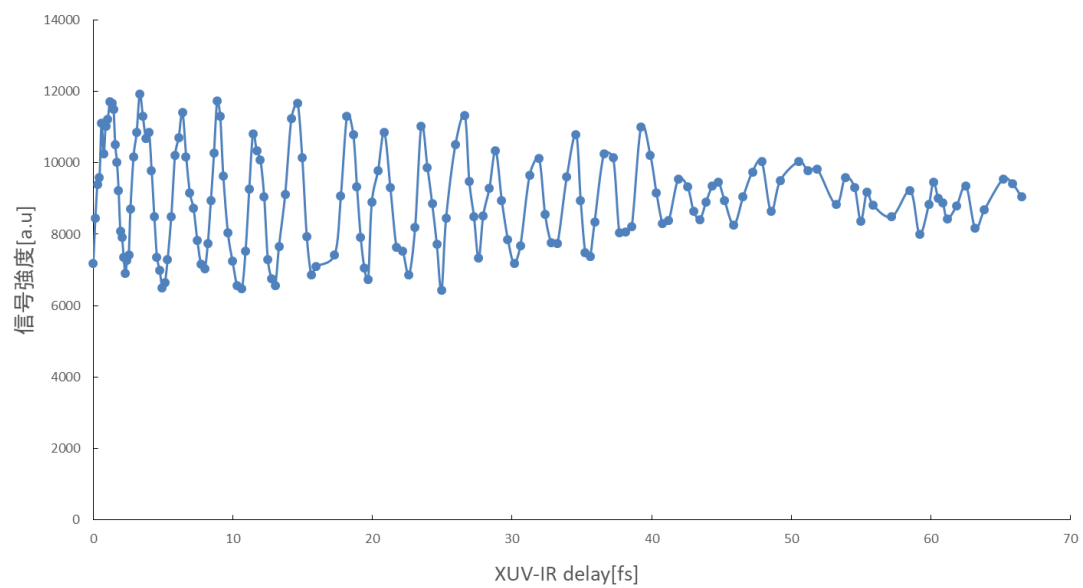


図 4.3 第 13 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 1）

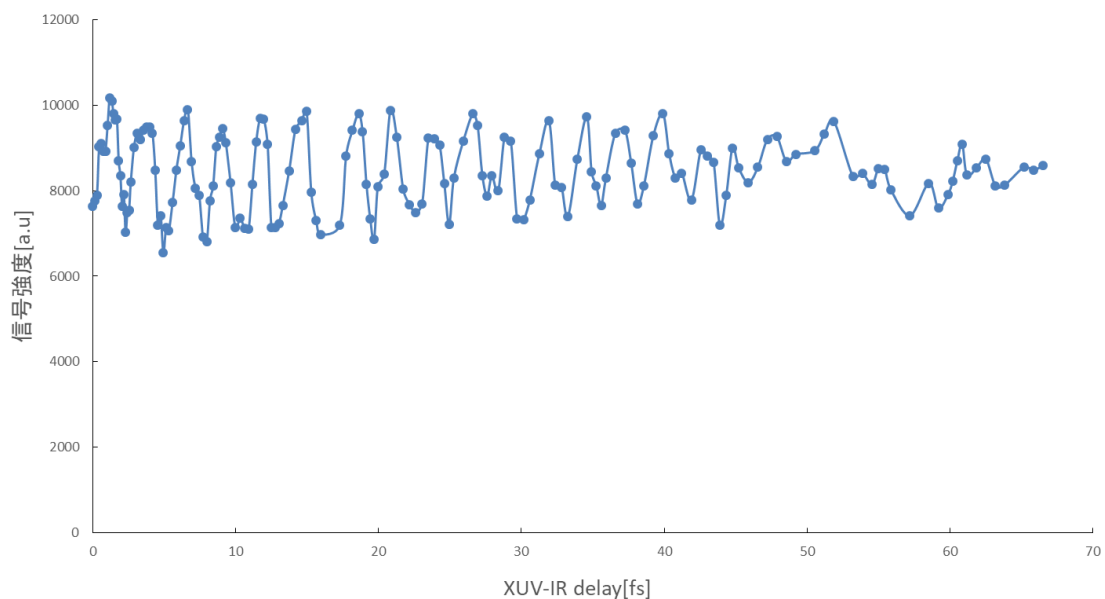


図 4.4 第 14 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 1）

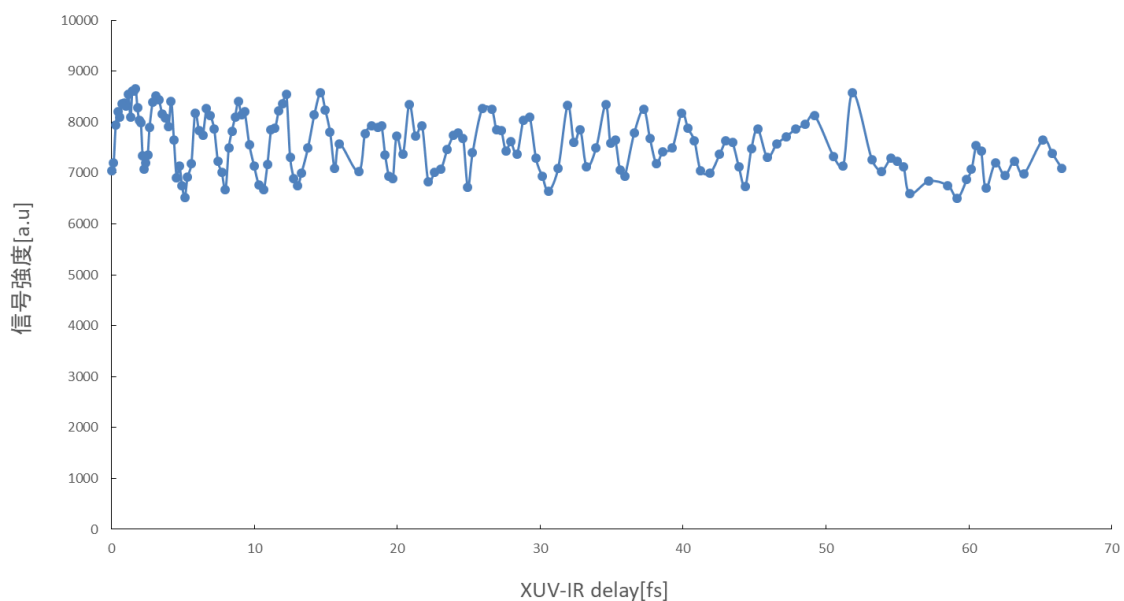


図 4.5 第 15 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 1）

#### 4.2 IR 光の強度が強い場合（測定 2）の測定結果

IR 高強度が強い場合（測定 2）の各次数に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度を、11 次，12 次，13 次，14 次，15 次の順に，それぞれ図 4.6，図 4.7，図 4.8，図 4.9，図 4.10 に示した．

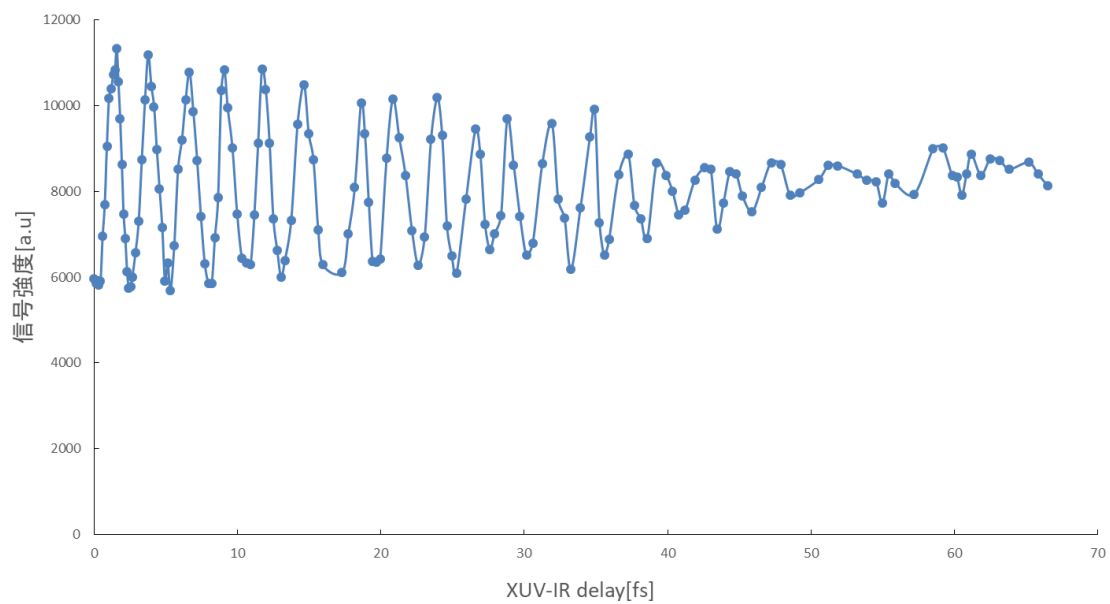


図 4.6 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 2）

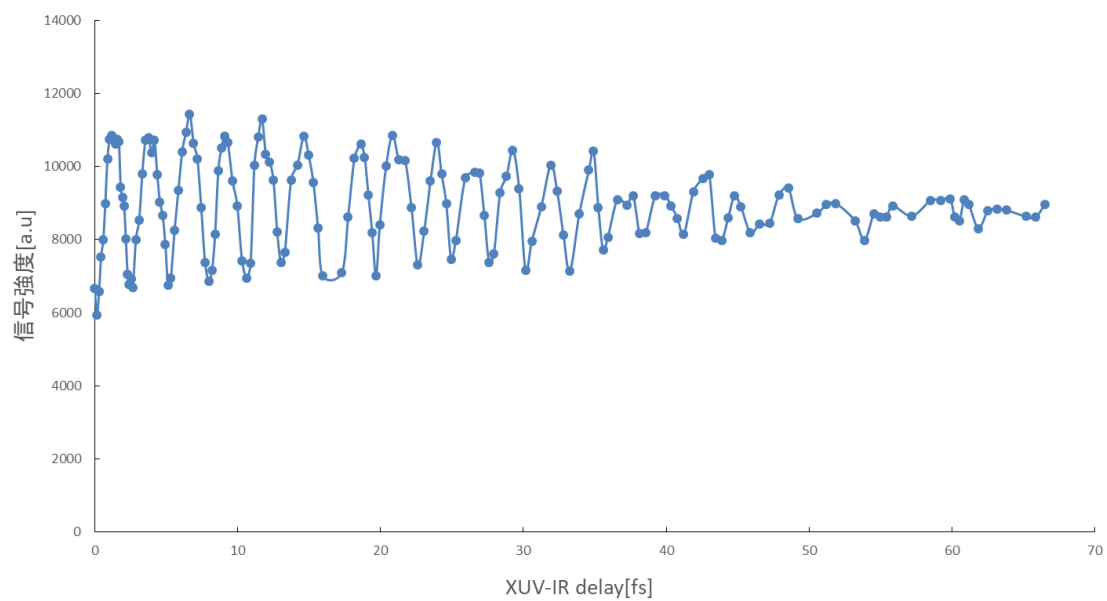


図 4.7 第 12 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 2）

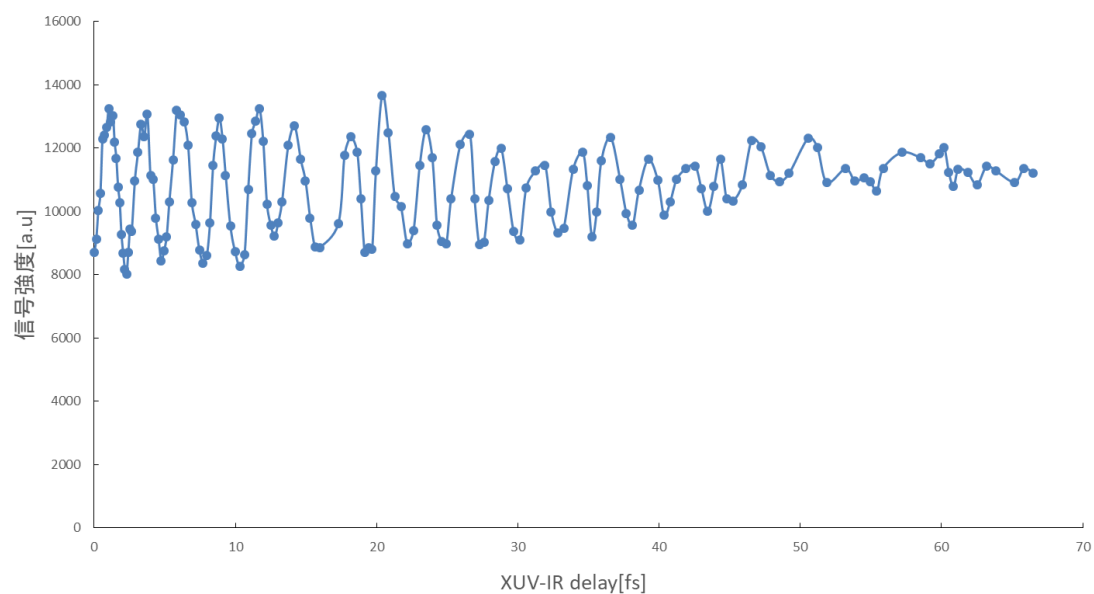


図 4.8 第 13 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 2）

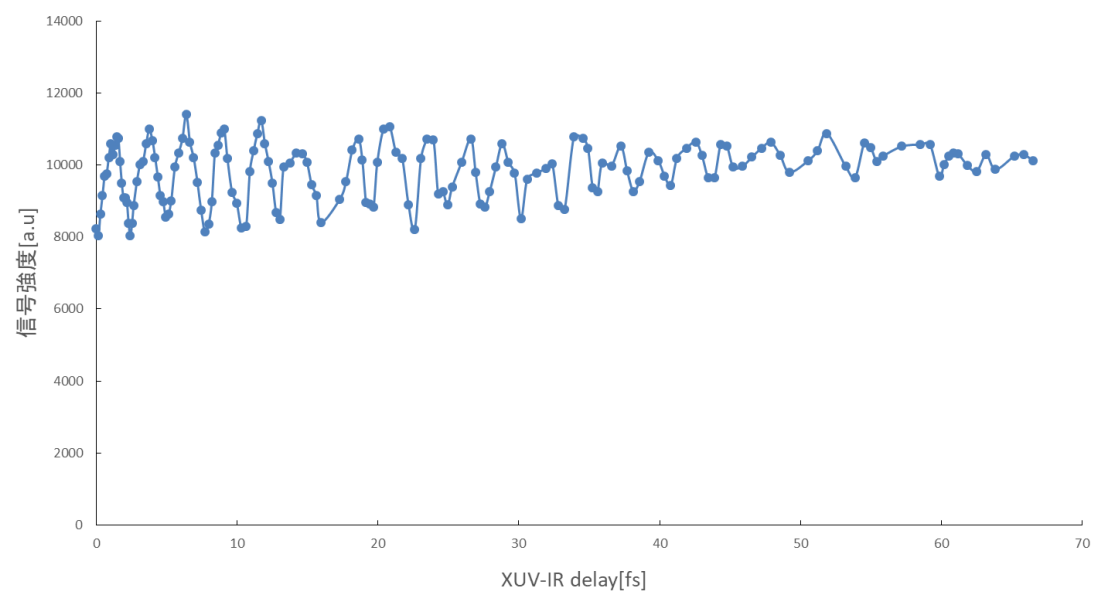


図 4.9 第 14 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 2）

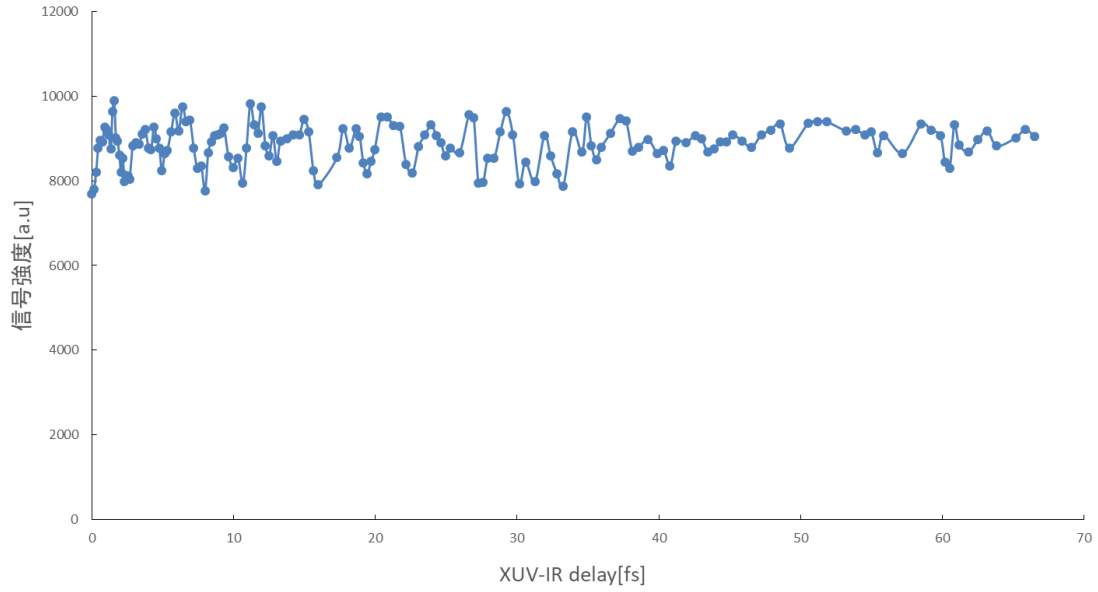


図 4.10 第 15 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度（測定 2）

#### 4.3 両者の比較

IR 光の強度が弱い場合（測定 1）と強い場合（測定 2）について、同じ次数の高次高調波を比較した。なお、得られたデータは光電子の収量をそのまま信号強度として扱っているが、このままでは計測 1 と計測 2 との比較ができないため、以下の式 4.3.1 を用いて、0 を中心とした振動になるように変換を行った。なお、 $I'_n$  は変換後の相対信号強度、 $I_n$  は変換前の光電子の収量、 $Avg$  はその信号強度の振動の平均値であり、 $n$  はデータ番号である。また、振動が観測できない 45fs 以降のデータはノイズであると判断し、この部分を除いて比較を行った。

$$I'_n = \frac{I_n - Avg}{Avg} \quad (4.3.1)$$

測定 1 と測定 2 の、各次数に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較を、11 次、12 次、13 次、14 次、15 次の順に、それぞれ図 4.11、図 4.12、図 4.13、図 4.14、図 4.15 に示した。

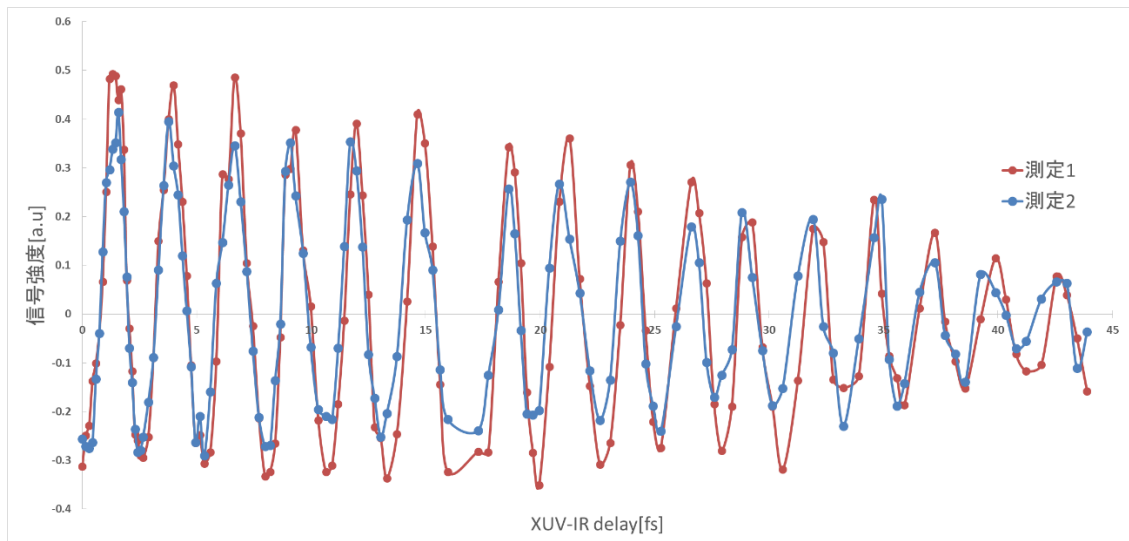


図 4.11 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較

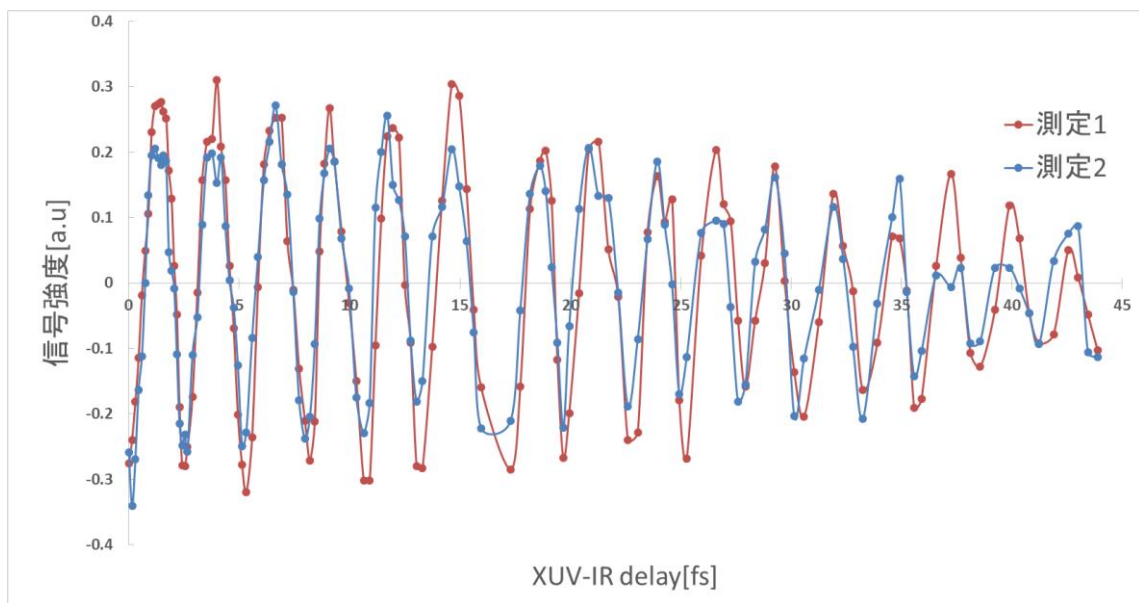


図 4.12 第 12 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較

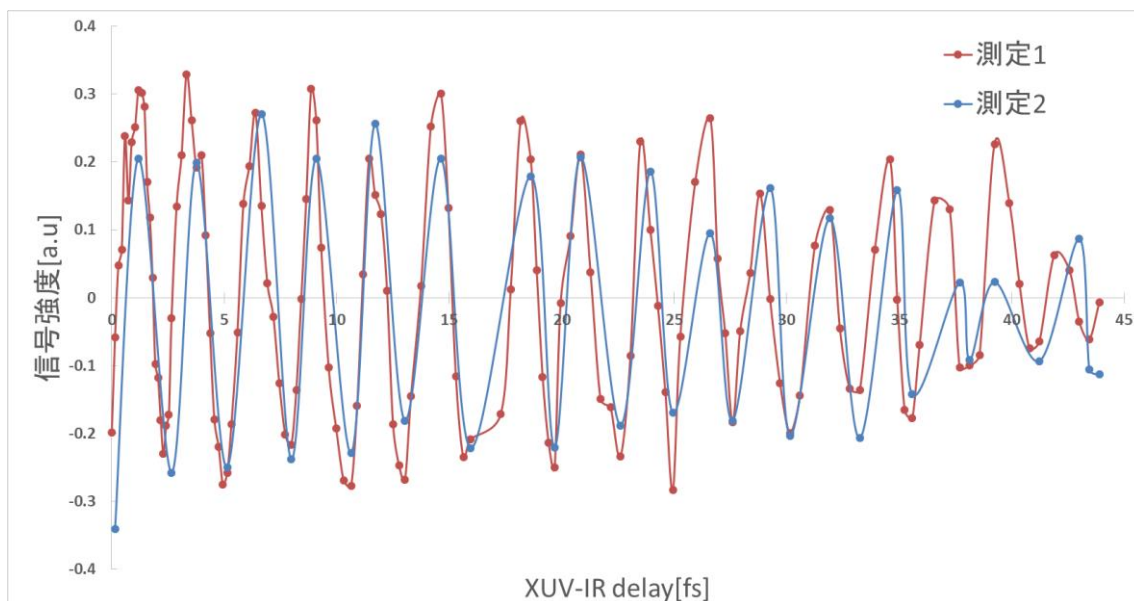


図 4.13 第 13 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較

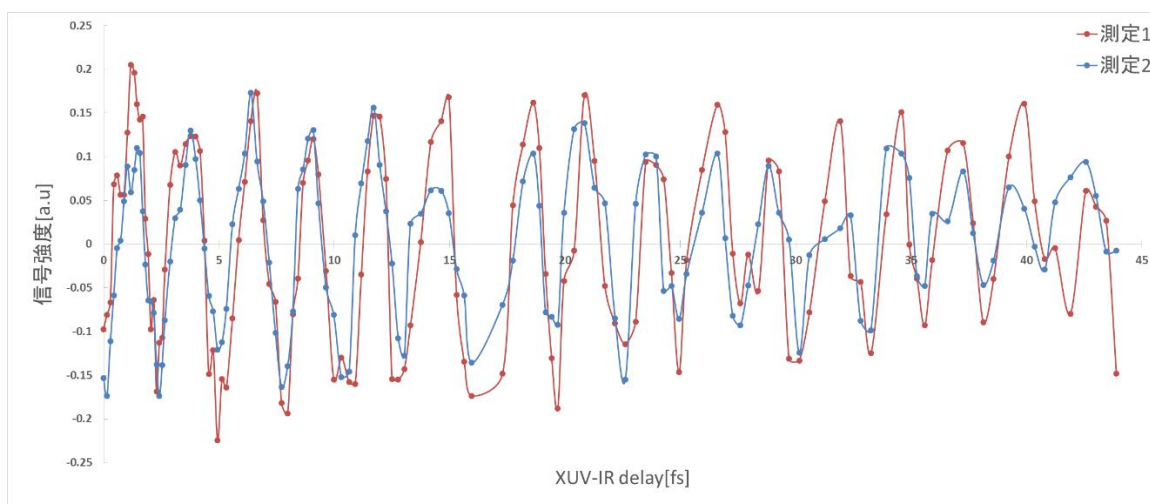


図 4.14 第 14 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較



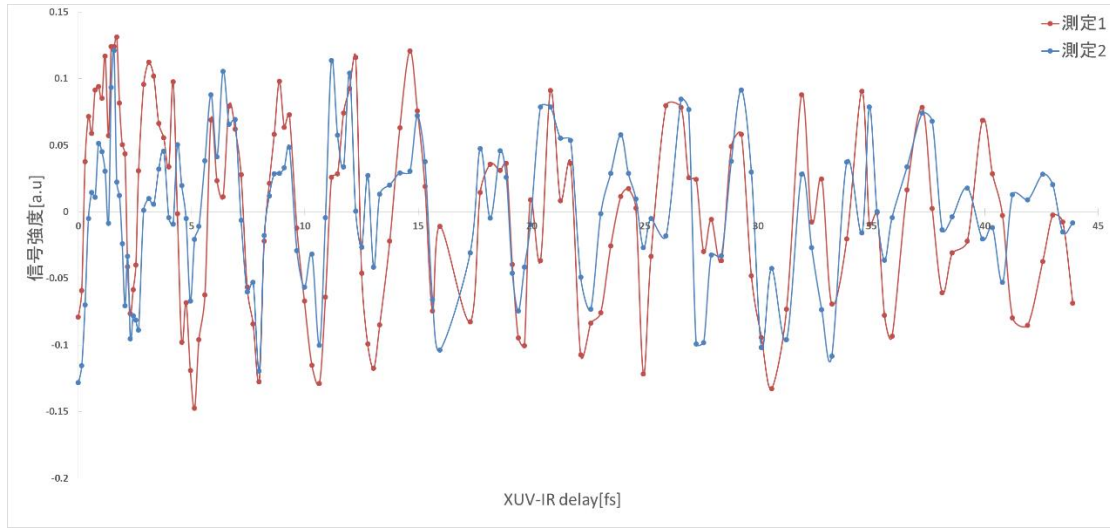


図 4.15 第 15 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較

図 4.11, 図 4.12, 図 4.13 を見ると, 赤外光の強度が弱い場合 (測定 1) のほうが, 赤外光の強度が強い場合 (測定 2) に比べて, 信号強度の振動の振幅が大きいように思われる. そこで, 測定 1 と測定 2 で振幅がどれくらい変化しているかを定量的に評価するため, 図 4.14 のように, 測定 1 と測定 2 双方に対し, 各信号強度のグラフの「原点から  $i$  番目の極値と  $i+1$  番目の極値の差の絶対値」を「 $i$  番目の振幅  $A_{1i}$ ,  $A_{2i}$ 」と定義して求め (有効数字 3 桁), 同次の高調波について「同じ振動」同士で振幅の比  $R_n = \frac{A_{1i}}{A_{2i}}$  を求めた.

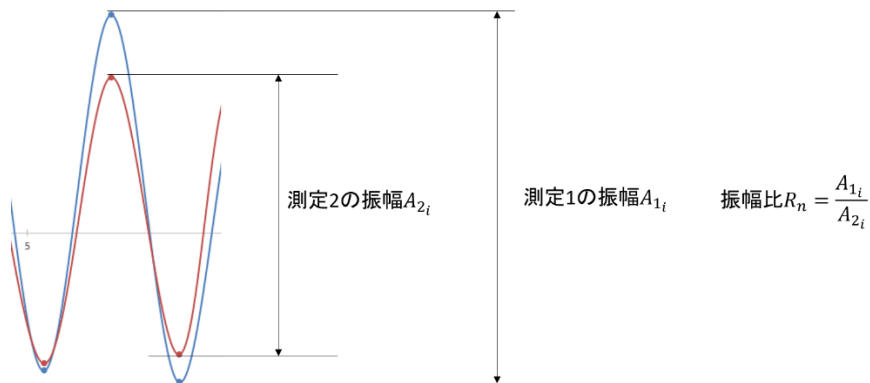


図 4.14 振幅の計測と振幅比の算出の模式図

一つの測定結果に対し, 信号強度の振幅 32 個の振幅が求まる. この処理を, 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度, 第 12 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度, 第 13 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度についてそれぞれ行った. その後, 各次数に対して振幅比  $R_i$  の平均値を求

めた結果，以下の表 4.1 のようになった．

表 4.1 各次数における振幅比 $R_i$ の平均値

信号強度が対応している次数	振幅比 $R_i$ の平均値
11	1.25
12	1.30
13	1.31

さらに，信号強度の位相の違いについて比較をするために，図 4.15 のように，測定 1 と測定 2 とで極値の XUV-IR ディレイが異なる点に着目し，「測定 1 の極値の XUV-IR ディレイから，測定 2 の極値の XUV-IR ディレイを引いた値」を「位相差」と定義して求めた．

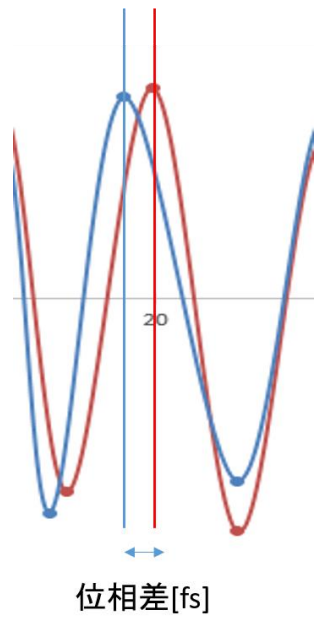


図 4.15 測定 1 と測定 2 における，信号強度の位相差

各次数の高次高調波対応する光電子の信号強度について，位相差を以下の表 4.2 に示した．なお，表 4.2 の「極値番号 $i$ 」とは，小さいほど原点に近い極値であることを示し，0 を含む偶数が極小値，奇数が極大値である．

表 4.2 各次数の高次高調波に対応する光電子の信号強度における位相差

極値番号	各次数の高次高調波に対応する光電子の信号強度の位相差[fs]				
[i]	第 11 次	第 12 次	第 13 次	第 14 次	第 15 次
1	-0.296	-0.148	-0.148	-0.148	-0.148
2	-0.242	0.121	0.148	0	0
3	0.242	-0.121	-0.363	0	0
4	0.222	-0.190	-0.443	-0.190	-0.190
5	0	0.190	-0.190	0.190	0.190
6	0	0.266	-0.266	0	0
7	0	0.222	0	0	0
8	0.222	0	-0.222	0	0
9	-0.266	0.266	0	0	0
10	0.266	0.266	-0.266	0.266	0.266
11	0.266	0.266	0	0.266	0.266
12	0	0	0	0	0
13	-0.333	0.333	-0.333	0.333	0.333
14	0	0.266	-0.443	0	0
15	0.266	0	0	0.266	0.266
16	0.443	0.443	0	0.443	0.443
17	0	0	0	0	0
18	0	0	-0.443	0	0
19	0	0.333	0	0.333	0.333
20	0	0	0	0	0
21	0.333	0.333	0	0.333	0.333
22	0.443	0	-0.443	0	0
23	0.443	0.443	0.443	0.443	0.443
24	0	0	0	0	0
25	0	0	0	0	0
26	-0.333	-0.333	-0.333	-0.333	-0.333
27	0.332	0	0	0	0
28	0	-0.443	-1.108	-0.443	-0.443
29	0	0	-0.443	0	0
30	0.665	0.665	0	0	0
31	0.443	0	0	0	0
32	0	-0.443	-1.108	-0.443	-0.443
33	0.443	0	0	0	0

## 第 5 章 考察

### 5.1 赤外光の強度と信号強度の振動の関係

「なぜ赤外光の強度が大きくなると、光電子の信号強度の振動の振幅が小さくなるのか」について考える。これについて考えるには、「信号強度の振動はどうやって生じているのか」を知る必要がある。信号強度が振動しているということはつまり、XUV-IR ディレイの変化によって、高次高調波と等しいエネルギーによってイオン化されたアルゴンから生成した光電子の収量が振動しているということである。2.1 節で述べたように、「 $n$  次の高次高調波と等しいエネルギーによって生成された光電子」には、「 $n-1$  次高調波と基本波の吸収」「 $n$  次高調波そのもの」「 $n+1$  次高調波と基本波の放出」という 3 つの機構によって発生する。この 3 つの機構によって発生した光電子がそれぞれ波として干渉し合い、弱め合ったり強め合ったりした結果が「 $n$  次の高次高調波と等しいエネルギーによって生成された光電子」の信号強度として測定されている[2]。XUV-IR ディレイを変更すると、この干渉の仕方が変化し、いままで強めあっていたものが弱め合うようになりたりするので、光電子の信号強度も変化する。信号強度の振動が小さいということはつまり、XUV-IR ディレイの変化による干渉の変化の度合いが小さいことを意味する。ここで、赤外光の強度は単位面積当たりのエネルギーであり、これはつまり単位面積当たりの光子の数に相当する。つまり、測定 1 と測定 2 では、アルゴンガスに照射される光子の単位面積当たりの数が異なる。今回の結果は、赤外光の単位面積当たりの光子の数が少ない場合（測定 1）では、3 つの機構から発生した光電子同士の干渉の変化の度合いが大きく、赤外光の単位面積当たりの光子の数が多い場合（測定 2）には、光電子同士の干渉の変化の度合いが小さい、ということを示している。この結果からさらに、以下の 3 つの可能性が考えられる。(1)測定 1 の赤外光の強度が、たまたま信号強度の振動の振幅に対する「極大値」となっており、測定 1 の強度から大きくしても小さくしても光電子同士の干渉の変化の度合いが小さくなる。(2)赤外光の強度を大きくすればするほど、信号強度の振動の振幅は小さくなり、光電子同士の干渉の変化の度合いが小さくなる。(3)赤外光の強度と信号強度の振動の振幅の間には何ら相関関係がなく、光電子同士の干渉の変化の度合いは別の要因で決まる。これらのうち、(3)については、今回測定 1 と測定 2 で変化させた条件が赤外光の強度のみであり、その他の条件は同じであったので、妥当ではない。また、(2)の場合は、赤外光の強度を小さくすればするほど光電子の干渉の変化の度合いが大きくなることになるが、赤外光の強度が 0、つまり高次高調波のみを用いてイオン化を行った際にはそもそも「 $n-1$  次高調波と基本波の吸収」「 $n+1$  次高調波と基本波の放出」による光電子が発生しないと考えられるので、信号強度の振幅は限りなく小さくなるはずである。よって、(2)が妥当だとは考えにくい。(1)の場合は、信号強度の振動の振幅を最大化するために「ちょうどよい」赤外光の強度が存在 することになる。今回の実験

では、赤外光が弱い場合（測定 1）と強い場合（測定 2）の 2 回の計測のみであったので、測定 1 の赤外光の強度が「ちょうどよい」強度であるかは不明である。「ちょうどよい」赤外光の強度を探すためには、計測回数を増やして赤外光の強度を  $0\text{W/m}^2$  から段階的に大きくしていき、信号強度の振動を計測する必要がある。

## 5.2 赤外光の強度と信号強度の位相の関係

表 4.2 を見ると、複数の次数で位相差が同程度になっている部分があることがわかる。例えば、 $i = 10, 11, 12, 15, 16, 21, 23, 26, 28$  のときなどである。しかし、全体として位相差が一定値になってはいないことから、「赤外光の強度を変えると、信号強度の振動の位相がずれる」とは言えない事がわかる。

## 5.3 赤外光の強度の変化量

「測定 1 と測定 2 で、赤外光の強度はどれくらい変化したのか」について考える。アルゴン原子に赤外光を当てたとき、シュタルク効果によってスペクトルが変化し、その変化が光電子の運動量分布に影響を与える[2]。図 5.1 は、図 3.7 における  $y$  方向の積算（青枠部分）をグラフで表したもので、赤外光の強度が弱いとき（測定 1）のシュタルク効果の影響による運動量分布の変化を表したものである。

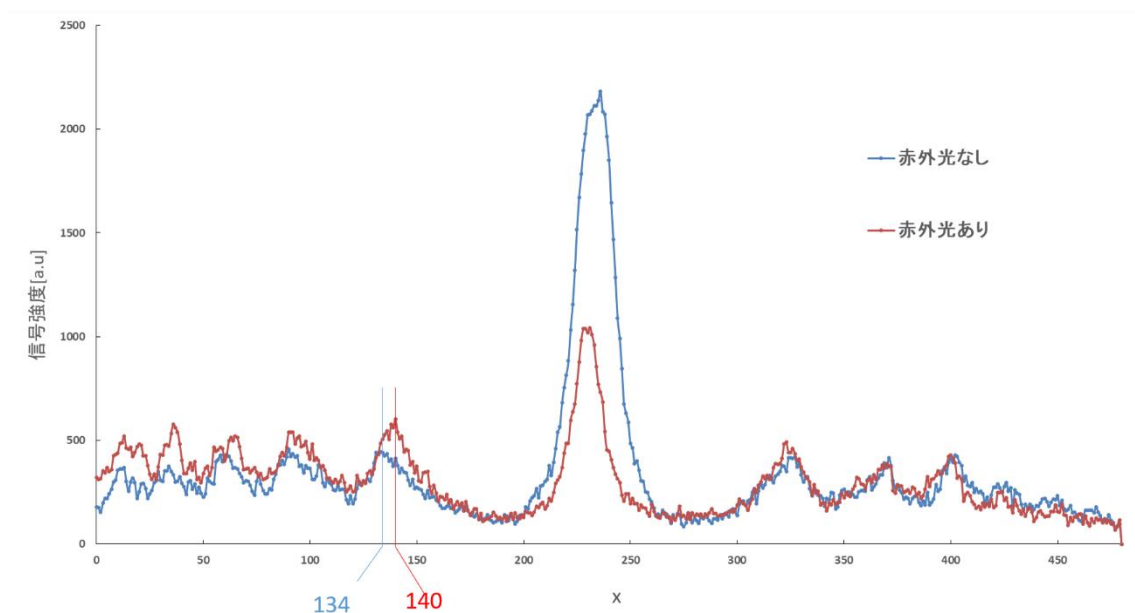


図 5.1 シュタルク効果による光電子の運動量分布の変化（測定 1，データ番号 4（赤外光なし）とデータ番号 151（赤外光あり）の比較）

図 5.1 の「赤外光なし（青い線）」は、XUV-IR ディレイが  $63.2\text{fs}$  のとき（データ番号 4）のデータで、信号強度の振動が観測されず、赤外光の寄与がない場合の  $y$  方向の積算を意

味する。「赤外光あり（赤い線）」は、XUV-IR ディレイが 1.69fs のとき（データ番号 151）のデータで、信号強度の振動が観測でき、赤外光の寄与がある場合の  $y$  方向の積算を表している。このグラフは、図 3.7 のような VMI 図の中心部を輪切りにして、いわば断面図を見ているようなものである。中心部の最も大きいピークが VMI 図の中心部の信号強度の強い部分を表し、そこから外側に向かって 11 次高調波に相当する信号強度のピーク、12 次高調波に相当する信号強度のピーク・・・という順に並んでいる。このとき、図の左側の 11 次高調波に相当する信号強度のピークを見ると、赤外光なしの場合はこのピークが  $x = 134$  にあるが、赤外光ありの場合は  $x = 140$  にあることがわかる。つまり、ピークの位置が  $x = 6$  だけ移動していることになり、このピークの移動が赤外光によるシュタルク効果の影響である。前述のように、VMI 図において、中心からの距離は光電子のエネルギーに対応しているので、図 5.1 の横軸の  $x$  を eV に換算すれば、赤外光によりピークが何 eV 移動しているかを割り出せる。このピークの移動の大きさは Ponderomotive Energy と呼ばれており、Ponderomotive Energy  $u_p$  [eV] とレーザー光の強度  $I[\frac{W}{cm^2}]$ 、レーザー光の波長  $\lambda[\mu m]$  の間には、以下の式 5.3.1 のような関係があることが知られている[6]。

$$I = \frac{u_p}{9.24 \times \lambda^2} \quad (5.3.1)$$

今回、測定 1 と測定 2 について  $u_p$  をそれぞれ求め、式 5.3.1 からレーザー光の強度をそれぞれ求めた。以降の計算では、赤外光の波長を 790nm と仮定した。また、 $u_p$  の算出には、赤外光の寄与がある信号強度 10 個分のピークの移動量の平均値を用いた。具体的には、XUV-IR ディレイが 1.63fs~2.88fs（データ番号 151~142）までの 10 個のデータを用いた。その結果、測定 1 でのピークの  $x$  座標上の移動量は 1.5、測定 2 では 1.9 となった。測定 1、測定 2 とともに 11 次高調波に相当するピークと 12 次高調波相当するピーク間の  $x$  座標上での距離は 43 であったので、測定 1、測定 2 の 11 次高調波に相当するピークの移動量（＝ Ponderomotive Energy  $u_p$  [eV]）は、それぞれ以下の式 5.3.2、5.3.3 のように求められた。

$$\frac{1240}{790} \times \frac{1}{43} \times 1.5 = 0.0534[eV] \quad (5.3.2)$$

$$\frac{1240}{790} \times \frac{1}{43} \times 1.9 = 0.0694[eV] \quad (5.3.3)$$

式 5.3.1 と式 5.3.2、5.3.3 を用いて赤外光の強度を求めると、測定 1 のときに  $0.950 \times 10^{12} \frac{W}{cm^2}$ 、

測定 2 のときに  $1.19 \times 10^{12} \frac{W}{cm^2}$  となり、赤外光の強度は  $0.24 \times 10^{12} \frac{W}{cm^2}$  増加し、約 1.27 倍になっていることがわかった。

#### 5.4 結論

今回の実験では、高次高調波と赤外光を用いてアルゴンガスをイオン化し、高次高調波と赤外光の時間差(XUV-IR ディレイ)を変化させながら、光電子の運動量分布を測定した。測定

した運動量分布から、各次数の高次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度を求め、光電子の信号強度と XUV-IR ディレイの関係を求めた。その結果、11 次、12 次、13 次の高次高調波については、赤外光の強度が弱い場合のほうが、信号強度の振動の振幅が大きくなるという結果が得られた。赤外光の強度と光電子の信号強度の位相の間には、一定の関係は見られなかったものの、ある XUV-IR ディレイのときに位相差があることがわかった。また、赤外光の強度は、測定 1 が  $0.950 \times 10^{12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ 、測定 2 が  $1.19 \times 10^{12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  であり、 $0.24 \times 10^{12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  増加していることがわかった。

#### 参考文献

- [1]新倉弘倫: ” 再衝突電子によるアト秒電子運動の計測” 分光研究, 60 (2011) 219-232.
- [2]新倉弘倫: “電子波動関数の直接イメージング法の開発” フォトニクスニュース, 4,2 (2018) 41-46.
- [3]P.Corkum: “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”, Phys. Rev. Lett., 71 (1993) 1994-1997.
- [4]Villeneuve D, et al.: “Coherent imaging of an attosecond electron wave packet”, Science, 356(2017) 1150-1153.
- [5]新倉弘倫:” 再衝突電子を用いたアト秒の電子・分子動力学” 原子衝突研究会協会誌, 1,1(2004) 8-27

#### 謝辞

ご指導・実験のご協力をして頂いた早稲田大学先進理工学部応用物理学科の新倉弘倫教授、及び応用物理学研究科の中嶋氏、篠田氏に謝意を表します。

# 卒業論文概要書

2021 年 1 月 29 日提出

所属学科	応用物理学科	氏 名	河西 剛	学 籍 番 号	1Y17B029-3
研 究 題 目	2 光子イオン化過程の赤外強度による影響の研究			指 導 員	新倉 弘倫 教授

## 1.序論

### 1.1 研究の背景[1]

ごく短い時間で起こる物理現象を計測するためには、時間分解能の良い計測方法が必要になってくる。このような領域はアト秒科学と呼ばれ、計測手法の一つに高次高調波を用いるものがある。

### 1.2 研究の目的

今回の研究は、高次高調波と赤外光の時間差を変化させながらアルゴンをイオン化させる場合に、赤外光の強度を変化させると、光電子の運動量分布と時間差の関係がどのように変化するかを調べることである。

## 2.理論

### 2.1 高次高調波の発生原理[3]

高次高調波の原理は、以下のような 3step-model で説明される。(1)気体原子にレーザー光を当てると、原子内の電子がイオン化する。(2)イオン化した電子はレーザー電場に沿って加速され、原子と再衝突する。(3)再衝突時に電子が持っていた運動エネルギーが高次高調波となって放出される。

### 2.2 高次高調波と赤外光を用いて試料をイオン化する方法[2]

試料に高次高調波と基本波となる赤外光を同時に当てると、高次高調波による光電子の発生他に、高次高調波と基本波の吸収、放出という合計 3 つの発生機構が生じる。高次高調波と赤外光のディレイ (XUV-IR ディレイ)を変化させると、3 つの発生機構から生じた光電子の干渉の仕方が変化するので、光電子の運動量分布にも変化が生じる。

## 3.実験方法

### 3.1 測定方法[4]

クリプトンガスによって発生させた高次高調波と、基本波である 800nm の赤外光をアルゴンガスに入射し、Velocity Map Imaging (VMI) という方法を用いて発生した光電子の運動量分布を測定した。この測定を、高次高調波と赤外光のディレイ (XUV-IR ディレイ)を変化させながら行い (測定 1)、赤外光の強度を変化させた後に同様の測定を行った (測定 2)。

### 3.2 データ処理の方法

VMI によって得られた運動量分布のデータから、各次数の高次高調波に相当するエネルギーによって生成された光電子の信号強度を求め、信号強度と XUV-IR ディレイの関係を、測定 1、測定 2 についてそれぞれ求めた。

## 4.高次高調波と赤外光の時間差の関数としての信号強度の測定結果

赤外光の強度が  $0.950 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  の場合 (測定 1) の、11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度と XUV-IR ディレイとの関係を図 1 に示す。また、赤外光強度が  $1.19 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  の場合 (測定 2) の測定結果を図 2 に示す。さらに、両者の比較を図 3 に示す。

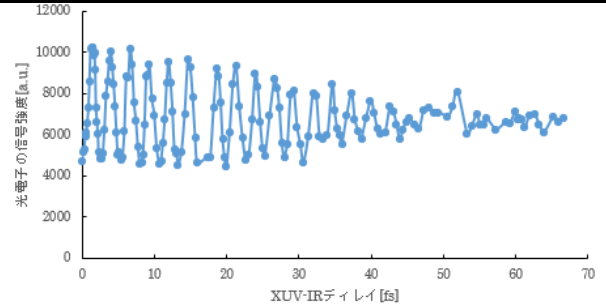


図 1 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度 (測定 1)

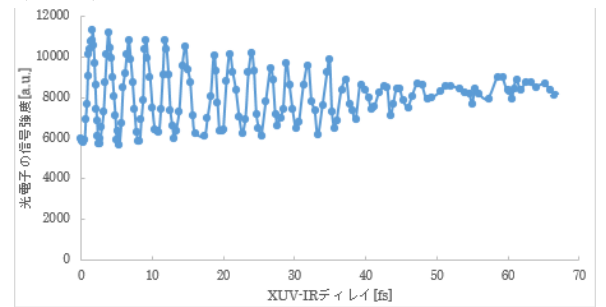


図 2 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度 (測定 2)

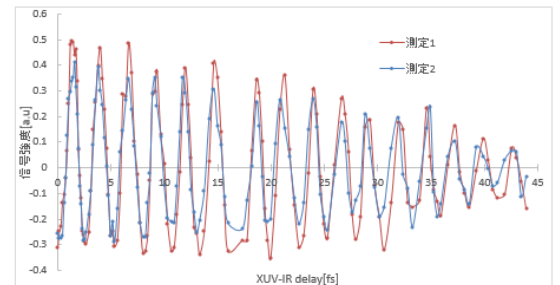


図 3 第 11 次高調波に相当するエネルギーによって生じた光電子の信号強度の比較

図 3 より、赤外光の強度が強くなると、信号強度の振動の振幅は大きくなることがわかった。一方、ある信号強度のピークでは位相差が確認されたものの、全体として一定の位相差は確認できなかった。

## 参考文献

- [1]新倉弘倫: “再衝突電子によるアト秒電子運動の計測” 分光研究, 60 (2011) 219-232.
- [2]新倉弘倫: “電子波動関数の直接イメージング法の開発” フォトニクスニュース, 4,2 (2018) 41-46.
- [3]P.Corkum: “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”, Phys. Rev. Lett., 71 (1993) 1994-1997.
- [4]Villeneuve D, et al.: “Coherent imaging of an attosecond electron wave packet”, Science, 356(2017) 1150-1153.