

FERMIのアト秒干渉計を利用した希ガス原子における光電子放出のコヒーレント制御

著者	You Daehyun
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	11301甲第19026号
URL	http://hdl.handle.net/10097/00128460

博士論文

FERMI のアト秒干渉計を利用した
希ガス原子における光電子放出のコヒーレント制御

YOU Daehyun (ユデヒョン)

令和元年

目次

第 1 章	はじめに	2
第 2 章	光電子放出遅延時間を測る新しい量子時計	3
2.1	緒言	3
2.2	表記と物理過程	5
2.3	実験方法	8
2.4	結果と考察	10
2.5	結論	14
第 3 章	Ne 原子における単一光子レーザー誘起オージェ緩和	15
3.1	緒言	15
3.2	表記と物理過程	16
3.3	実験方法	19
3.4	結果	21
3.5	考察	26
3.6	結論	29

第 1 章

はじめに

イタリアにある自由電子レーザー (free electron laser; FEL) 施設、FERMI [1] では空間的、かつ、時間的に完全可干渉な極端紫外 (extreme ultraviolet; EUV) 光を発生することに成功した。これは、光学レーザーを使って FEL の発生をシードすることにより出来たことである。この方式を HGHG (high-gain harmonic-generation) と呼ぶ [2]。HGHG 方式を利用すれば、多波長の FEL パルスを発生して、その位相を制御することも可能である [3], [4]。本研究では、取り上げた FERMI の特徴を利用して、光電子放出のコヒーレント制御を試みた。これにより以下の物理現象の測定に成功した。

- 光電子の放出に伴う時間遅延 (photoemission delay)
- 単一光子レーザー誘起オージェ緩和 (single-photon laser-enabled Auger decay; spLEAD)

それぞれ、本論文の第 2 章と第 3 章で報告する。

第 2 章

光電子放出遅延時間を測る新しい量子時計

公表のために *Physical Review X* に投稿

arXiv: 1907.13605

2.1 緒言

化学種が光子を吸収して電子を放出するような光電子放出過程を考えよう。光電子が形成されて核から離れる際に、光電子の位相に数アト (10 の -18 乗 ; atto) 秒の遅延時間が生じる。この現象を光電子放出遅延時間 (photoemission delay) と呼ぶ。このような超高速現象は光学技術の発展により観測可能になった。アト秒科学という新たな学問が確立した [5]。特に光電子放出遅延時間の研究は理論と実験の両分野で注目を集めている [6]–[14]。

光電子放出は、生成された光電子が核と衝突して散乱する過程と考えることができる。Eisenbud と Wigner、Smith [15] は、衝突する際に生じる遅延時間 τ を以下の式を用いて定義した。

$$\tau = \hbar \frac{\partial \eta(\epsilon)}{\partial \epsilon} \quad (2.1)$$

ここで、 η は衝突の際に生じた位相変位、 ϵ は光電子の運動エネルギーである。この遅延時間を **Eisenbud-Wigner-Smith (EWS) 遅延** と呼ぶ。現在に光電子放出遅延時間を測る方法には主に以下の二つがある。

- アト秒ストリーキング (attosecond streaking)
- RABBITT (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions)

どれも光電子の位相変位 η を測定して式 2.1 の EWS 遅延 τ を計算する。

アト秒ストリーキング法 [16]–[20] ではアト秒・短波長パルスが標的の化学種をイオン化する。放出された光電子は IR (赤外線 ; infrared) 電場により加速される。光電子が生成された瞬間に、IR 電場がどの位相にあったかによって、加速された光電子の最終運動量が変わる。IR 電場の位相における最終運動量との関係を調べることで光電子の初期運動量、かつ、位相変位が分かる。よって遅延時間が計算できる。IR 電場は数フェムト (10 の -15 乗 ; femto) 秒の長い幅を持つパルスで導入する。短波長パルスと IR パルスの入射タイミングを制御することで、光電子が生成された瞬間にあった IR 電場の位相が変えられる。

RABBITT 法 [9], [21]–[25] は光電子の干渉を利用する。アト秒・短波長パルスの列 (pulse train) を標的の化学種に照らす。パルス列には多数の共鳴波長が含まれている。標的のイオン化エネルギーを超える波長成分は光電子を生成する。光電子の運動エネルギーはイオン化エネルギーを超える共鳴波長成分の数ほど多様である。パルス列の基本波長を持つ、位相を制御した IR 電場を導入すると、自由電子の異なる連続状態がカップリングされる。IR 電場の位相における光電子の収率を調べることで光電子の位相変位が分かる。よって遅延時間が計算できる。IR 電場は数フェムト秒の長い幅を持つパルスで導入する。パルス列全体の時間幅も同程度である。IR 電場は上述した通りにパルス列の基本波を使用することが多いが、倍波を使用した例もある [22]。アト秒ストリーキング法と同様に、IR パルスの入射タイミングを制御することで、IR 電場の位相が変えられる。

Pazourek ら [15] は利用した物理現象の違いを考えて、アト秒ストリーキング法と RABBITT 法をそれぞれ古典時計と量子時計と命名した。いくつかの例外 [26] を除いて相対遅延時間が測られている。それぞれの方法はアト秒パルスとアト秒パルスの列をポンプ (pump) 光として用いる。かつ、IR パルスをドレッシング (dressing) 光として、ポンプ光と同時に照らす。ポンプ光とドレッシング光の入射タイミングを精度高く制御することがとても重要である。ポンプ光とドレッシング光を同じ光源から発生させるので出来ることである。IR 電場はクーロン-レーザー結合 (Coulomb-laser coupling) や連続状態-連続状態結合 (continuum-continuum coupling) などの効果で光電子を乱れさせる。そのため、実験時に IR 電場の強度を十分に下げないといけなかったり、解析時に補正を必要としたり、困難を発生する [15]。IR 電場により乱れた光電子の補正は理論計算により行われる。実験的な手法で補正することを試した例もあるが [27]、一般にはできない。

EWS 遅延は光電子の運動エネルギーと放出方向の両方に依存する。放出方向に対する非対称が生じる原因には以下の二つが考えられる。

- ポテンシャルが非対称な場合
- 光電子が複数の部分波を持つ場合：部分波によって遅延時間が変わる。かつ、放出方向によって部分波の成分比が変わるので、放出方向における遅延時間が非対称になる。

光電子の放出方向に分解した遅延時間を理論的に研究した論文は数多く報告されている [28]–[33]。しかし、実験結果の報告は数少ない [14], [29], [34]。全て RABBITT 法を利用した測定である。He 原子における一光子イオン化の遅延時間は等方性を持つはずだが、観測された角度分解遅延時間は非等方である [29]。これは IR 電場による乱れである。この乱れをさけるためには、IR 電場を使わない測定法を開発することが重要である。

本章では光電子の干渉を利用した新しい測定法を紹介する。位相を制御した二波長、基本波と倍波の EUV (extreme ultraviolet) 光を使用する。強度の強い基本波により誘起される二光子イオン化と弱い倍波により誘起される一光子イオン化の干渉を利用する。この干渉計は可視光領域で Shapiro らにより実証されている [35]。我々は Ne 原子の $2p$ 電子を標的として、二波長の EUV 光により放出された光電子の角度分布を測定する。光学位相と光電子角度分布の関係を調べることで、二つのイオン化経路による相対位相変位が分かる。よって相対遅延時間が計算できる。従来の方法で必要とした、数サイクルで超高速なパルスと IR 電場は必要ない。代わりに高精度で光学位相を制御する必要がある。これはイタリア FEL 施設、FERMI [3] で可能になった。

本章は次の節で構成される。節 2.2 では記号や言葉の表記を定義する。また、新しい測定法を理解するためにその物理過程を説明する。節 2.3 では実験方法を説明する。節 2.4 では実験で得られた結果を示して考察する。節 2.5 では要約と結論を述べる。

2.2 表記と物理過程

上述したように本研究では二波長の EUV 光を用いる。どれも同じ方向の直線偏光である。この方向のある単位ベクトルを北極と決める。北極から定義できる球面座標系 (r, θ, φ) を使用する。ここで、 r は動径座標、 θ は北極とのなす角度、 φ は北極から垂直の平面にある別の軸とこの平面への動径の射影がなす角度である。電場は以下の式で表せる。

$$E(t) = \sqrt{I_\omega(t)} \cos \omega t + \sqrt{I_{2\omega}(t)} \cos(2\omega t - \phi) \quad (2.2)$$

ここで、 ω と 2ω は光の角速度振動数、 $I_\omega(t)$ と $I_{2\omega}(t)$ は該当する光の強度、 ϕ は基本波 ω と倍波 2ω の相対位相である。

実験で導入する Ne 試料は無限小の原子単体がお互いに影響を与えずに集まっていると考える。理論では単一原子のみを考えてその原子を座標系の原点と置く。原点から十分に離れた光電子波束は以下の式で書ける。

$$\int_0^\infty d\epsilon c(\epsilon) \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\epsilon t + \frac{i}{\hbar}\sqrt{2m_e\epsilon}r + i\eta(\epsilon)\right) \quad (2.3)$$

ここで、 ϵ は光電子の運動エネルギー、 m_e は電子の質量、 $\eta(\epsilon)$ は位相変位、 $c(\epsilon)$ は実数の値を持つ係数である。 θ と φ との依存関係は明示しない。光パルスの群遅延の様に $\hbar \partial\eta(\epsilon)/\partial\epsilon$ は光電子波束の“群遅延”と言える。式 (2.1) の EWS 遅延と同値である。

図 2.1 に二波長光 ω - 2ω により起こるイオン化経路を示す。強度の強い基本波 ω は二光子イオン化を起こす。強度の弱い倍波 2ω は一光子イオン化を起こす。両イオン化経路はコヒーレンスに起こり、かつ、放出する光電子の運動エネルギーが一致するので、両光電子が干渉し合う [23]。倍波 2ω の位相を遅れれば、倍波により生成される光電子の位相も遅れる。放出された光電子波束は次の式で示せる。

$$\int_0^\infty d\epsilon \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\epsilon t + \frac{i}{\hbar}\sqrt{2m_e\epsilon}r\right) \{c_\omega(\epsilon) \exp i\eta_\omega(\epsilon) + c_{2\omega}(\epsilon) \exp(i\eta_{2\omega}(\epsilon) + i\phi)\} \quad (2.4)$$

添字 ω 、 2ω はそれぞれ基本波により二光子イオン化された光電子と倍波により一光子イオン化された光電子の成分であることを示す。 c_ω と $c_{2\omega}$ は該当する光電子の係数、 η_ω と $\eta_{2\omega}$ は該当する光電子の位相変位である。そして、光電子波束の群遅延はそれぞれ

$$\tau_\omega := \hbar \frac{\partial\eta_\omega(\epsilon)}{\partial\epsilon}, \quad \tau_{2\omega} := \hbar \frac{\partial\eta_{2\omega}(\epsilon)}{\partial\epsilon} \quad (2.5)$$

である。光電子収量 I は以下の式になる。

$$I(\phi) = \int_0^\infty d\epsilon c_\omega(\epsilon)^2 + c_{2\omega}(\epsilon)^2 + 2c_\omega(\epsilon) c_{2\omega}(\epsilon) \cos(\phi - \Delta\eta(\epsilon)) \quad (2.6)$$

$$\approx A_0 + A \cos(\phi - \Delta\eta(\bar{\epsilon}))$$

ここで、 $\bar{\epsilon}$ は光電子波束の運動エネルギーの代表値、 $\Delta\eta(\epsilon) := \eta_\omega(\epsilon) - \eta_{2\omega}(\epsilon)$ は基本波による二光子イオン化と倍波による一光子イオン化の相対位相変位である。

より一般的に、放出される光電子が異なる磁気量子数を持つ複数の波束でなっている場合は、光電子収量 I が以下の式になる。

$$I(\phi) = \sum_m \{A_{0,m} + A_m \cos(\phi - \Delta\eta_m(\bar{\epsilon}))\} = A_0 + A \cos(\phi - \Delta\tilde{\eta}(\bar{\epsilon})), \quad (2.7)$$

$$\because A_0 := \sum_m A_{0,m}, \quad A \cos(\phi - \Delta\tilde{\eta}) := \sum_m A_m \cos(\phi - \Delta\eta_m) \quad (2.8)$$

$\Delta\tilde{\eta}$ は $\{\Delta\eta_m\}$ のベクトル平均と考えられる。式 2.7 からある方向に放出した光電子の収量 I が光学位相 ϕ の変化により振動することが分かる。実験では光電子の収量 I を測定する。光学位相 ϕ との関係調べることから収量の振動から相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ が引き出せる。相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ を光電子運動エネルギー $\bar{\epsilon}$ において微分係数を求めることで、基本波 ω による二光子イオン化と倍波 2ω による一光子イオン化の相対遅延時間

$$\Delta\tilde{\tau} := \hbar \frac{\partial \Delta\tilde{\eta}(\bar{\epsilon})}{\partial \bar{\epsilon}} \quad (2.9)$$

が測れる。光電子がデコヒーレントな複数の波束から成っている場合に、その平均の取り方で EWS 遅延と区分される。EWS 遅延は位相を微分してから平均した値である。本測定法で観測できる量は、複数の位相をベクトル平均して、その平均位相を光電子運動エネルギーで微分した値である。本章では後者を議論する。EWS 遅延と区分して平均群遅延と呼ぶ。

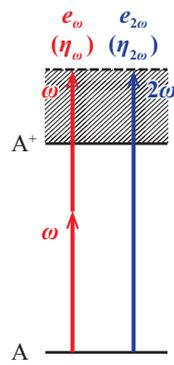


図2.1 標的化学種 A のエネルギー順位と二波長光 ω - 2ω により起こるイオン化の経路。赤線は基本波 ω の二光子イオン化、青線は倍波 2ω の一光子イオン化を示す。 e_ω と $e_{2\omega}$ はそれぞれ経路により放出された光電子を示す。 η_ω と $\eta_{2\omega}$ は該当する光電子の位相変位である。

2.3 実験方法

実験方法について、この節では概要のみを述べる。詳しくは文献 [3] に示す。実験は FERMI [1] のビームライン、LDM (Low Density Matter) [36], [37] にて実行した。実験のプロポーザル番号は 20144077 である。使用した光子エネルギーを表 2.1 に示す。基本波の光子エネルギーはすべて Ne $2p$ イオン化エネルギー、21.6 eV より低い。その二倍のエネルギーはイオン化エネルギーを超える。Ne 原子を共鳴励起させる光子エネルギーは避けている。

FERMI には六つのアンジュレータがある。五つのアンジュレータを基本波 ω の波長に、残り一つのアンジュレータを倍波 2ω の波長に合わせて基本波と倍波の強度をおおまかに調整した。He 原子における、基本波 ω による二光子イオン化レートと倍波 2ω による一光子イオン化レートの比を表 2.1 に示す。この値から二波長光 $\omega-2\omega$ の強度条件が推定できる。二波長光 $\omega-2\omega$ を KAOS [38] により集光した。波面センサーで倍波 2ω の焦点サイズを測ることで、二波長光 $\omega-2\omega$ が集光されたことを検証した。観測した焦点の半値全幅は $(4.5 \pm 1) \times (6.5 \pm 1) \mu\text{m}^2$ であった。基本波 ω の波長領域は波面センサーで測れない。光学と FERMI の特性に基づいて、基本波 ω の焦点サイズは倍波 2ω よりわずかに大きくなると推定できる。二波長光 $\omega-2\omega$ のパルス幅は 100 fs であった。本実験では二波長光 $\omega-2\omega$ を用いるために、二つパルス間に空間的な広がりやコヒーレンス、焦点などのズレが考えられ、これらを理想的な条件に保つことは不可能である。我々は他の文献 [39] で実験条件の不完全性により光電子の干渉が弱くなる現象を報告した。また、“デコヒーレンス性 (decoherence parameter, h)” という指数を導入して定量的に評価した。[0, 1] の値を持ち、1 に近いほど理想条件に近い。

標的の Ne 原子は、He 原子と Ne 原子を混合したガスをパルスにした原子ビームとして導入した。He 原子は光学位相 ϕ を補正するのに利用した。FEL はアンジュレータの設定を変えることで生成する光の波長を変える。この際に二波長光 $\omega-2\omega$ の光学位相がズレる。我々は他の文献 [39] でこの未知のズレを補正する方法を報告した。

光ビームと原子ビームが交差するところで一連の反応が起こる。放出された光電子は速度マップ画像 (velocity map imaging; VMI) 電子分光計を用いて測定した。ある面に射影した運動量の分布が画像で得られる。取得した画像を BASEX 法 [40] により Abel 逆変換して運動量分布に再構成した。運動量分布は光電子が放出する方向 θ において分解能を持つ。

表2.1 二波長光 ω - 2ω の光子エネルギーや強度、デコヒーレンス性。He 原子イオン化レートには、He 原子における、基本波 ω による二光子イオン化レートと倍波 2ω による一光子イオン化レートの比を示す。デコヒーレンス性 h については本文に記載した。

基本波 ω 光子エネルギー (eV)	倍波 2ω 光子エネルギー (eV)	光電子 運動エネルギー $\bar{\epsilon}$ (eV)	He 原子 イオン化レート (基本波 : 倍波)	デコヒーレンス性 h
14.3	28.6	7.0	0.82 : 1	0.262
15.9	31.8	10.2	1.44 : 1	0.360
15.9	31.8	10.2	3.58 : 1	0.226
19.1	38.2	16.6	1.55 : 1	0.318

2.4 結果と考察

表 2.1 に示した基本波 ω と倍波 2ω の組み合わせで、光電子角度分布を測定した。光学位相 ϕ を変えながら測定を繰り返した。ある放出方向 θ において光学位相 ϕ による光電子収量 I の変化を調べた。その関係を図 2.2 に示す。北極に対して上半球に放出した光電子と下半球に放出した光電子の収量の変化が逆位相で振動する。考えている系が、ある対称性を持つために生じる現象である。そこで、北極に垂直で、かつ、原点を含む平面に反転した新たな座標系を考えてみる。つまり、以下の置換をする。

$$(r, \theta, \phi) \rightarrow (r, \pi - \theta, \phi) \quad (2.10)$$

Ne 原子は球対称なので影響はない。電場の偏光方向は反転したことになる。光のパルス幅が十分長いのであれば、電場の位相を π ズラしたことと同値である。

$$E(t) \rightarrow -E(t) = -\sqrt{I_\omega(t)} \cos \omega t - \sqrt{I_{2\omega}(t)} \cos(2\omega t - \phi) \quad (2.11)$$

$$= \sqrt{I_\omega(t)} \cos \omega t' + \sqrt{I_{2\omega}(t)} \cos(2\omega t' - \phi - \pi)$$

$$\Leftrightarrow \phi \rightarrow \phi + \pi \quad (2.12)$$

より、新たな座標系で光電子の収量 I は以下の式となる。

$$I(\theta, \phi) \rightarrow I(\pi - \theta, \phi + \pi) = A_0 + A \cos(\phi + \pi - \Delta\tilde{\eta}(\pi - \theta)) \quad (2.13)$$

$$= A_0 - A \cos(\phi - \Delta\tilde{\eta}(\pi - \theta))$$

下半球は上半球の反転なので、この式は上半球と下半球に放出した光電子の収量が逆位相で振動することを意味する。

ある角度 θ に放出した光電子の収量 I が光学位相 ϕ の変化により振動する。これらの振動を式 (2.7) に示した \cos 関数でフィッティングした。その結果、相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ が得られた。図 2.3 にその値を示す。光電子運動エネルギー 10.2 eV での相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}(\theta)$ が他の運動エネルギー 7.0 eV と 16.6 eV での値と比べて大きい。偏光ベクトルに垂直な方向である $\theta = 90$ deg での値が特にその傾向を示している。運動エネルギー 7.0 eV と 10.2 eV では似た分布である。共同研究者が以下の異なる二つの論理に基づいて相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ を計算した [41]。

- 摂動論 [42]
- TDCASSCF (time-dependent complete active space self-consistent field) 論 [43]

その計算結果を同図に線で示した。どれも観測値とよく一致している。

光電子運動エネルギー 10.2 eV に該当する測定が二つある。使用した光子エネルギーの組み合わせは同じだが、二波長光 ω - 2ω の強度や強度比、空間的広がり、コヒーレンス、焦点などの条件が異なる。図 2.3 B に異なる波長でその二つの測定値を示す。二つの測定値が一致していることが分かる。これは本測定法が上記の条件に依存しないことを意味する。この特徴は実験を実行する上で都合が良い。つまり、光の強度や焦点サイズなどを正確・精密に調整する必要がない。また、光が空間に広がるためにできる容積効果や、二波長光が空間的によく重ならなくてできる効果などもない。

図 2.4 に摂動論で計算した相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ を示す。図 2.3 に示したものと同値だが、数点の光電子の放出方向 θ において運動エネルギーによる変化を視覚化したものである。運動エネルギー 12.0 eV に激しい変化が見える。これは一光子による共鳴遷移 $2p \rightarrow 3s$ [33], [34] の影響である。共鳴を起こす光子エネルギー ω は 16.7 eV である。この基本波 ω と倍波 2ω の組み合わせで放出された光電子の運動エネルギーは 12.0 eV である。共鳴領域での位相 $\Delta\tilde{\eta}$ の変化は複雑である。電場ベクトルに垂直な方向 $\theta = 90$ deg の近くで変化が最も激しい。12.0 eV に向かって徐々に位相が増加する。12.0 eV で 180 deg ジャンプして、また徐々に増加する。破線は同色の実線で表した値から 360 deg を引いた値である。12.0 eV を過ぎてからは低エネルギーの位相と同程度の値に戻る。これは 10.2 eV で観測した大きい相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}(\theta)$ (図 2.3 B) が共鳴の影響であったことを意味する。

共鳴エネルギーより下の領域では相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ の変化が滑らかである。光電子運動エネルギー 7.0 eV と 10.2 eV の二点で相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ の差分から微分係数を求めた。よって光電子の放出方向に分解した相対平均群遅延 $\Delta\tilde{\tau}(\theta)$ が得られる。図 2.5 に観測値と二つの計算値を示す。偏光ベクトルに水平な方向 $\theta = 0$ deg では観測した遅延時間の差がほとんど見られない。垂直方向 $\theta = 90$ deg では二光子イオン化が一光子イオン化より 230 アト秒遅く観測された。二つの異なる理論に基づいた計算値も観測値をよく再現している。特に、第一原理計算である TDCASSCF はよく一致している。

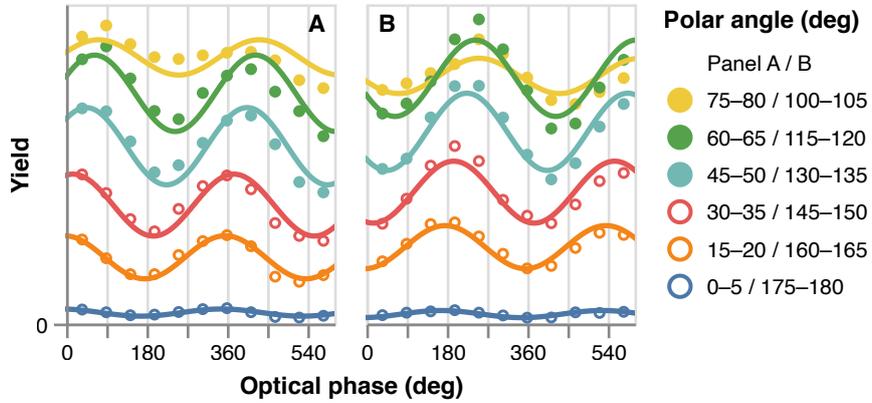


図2.2 ある放出方向 θ において光学位相 ϕ による光電子収量 i の変化。右に収量を積算した放出方向 θ の領域を示す。光電子運動エネルギーは 7.0 eV である。丸は測定値、線は式 (2.7) に示した \cos 関数のフィッティングである。パネル A と B はそれぞれ北極に対して上半球と下半球に放出した光電子である。

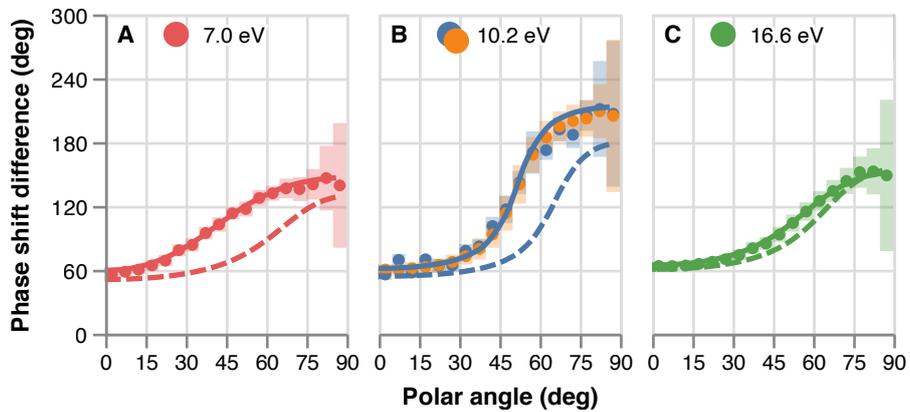


図2.3 光学位相 ϕ による光電子収量 I の変化から引き出した、放出方向 θ における相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}(\theta)$ 。該当する光電子運動エネルギーをパネルの上部に示した。丸と塗りつぶした領域はそれぞれ測定値とその不確実性（フィッティングの標準誤差）である。運動エネルギー 10.2 eV には該当する測定が二つある。同パネル B に異なる波長で測定値を示す。破線と実線はそれぞれ摂動論と TDCASSCF 論に基づいた計算値である。

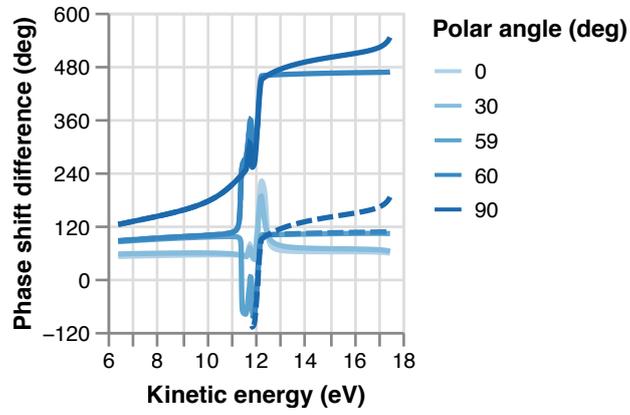


図2.4 数点の光電子の放出方向 θ において運動エネルギーによる相対位相変位 $\Delta\tilde{\eta}$ の変化。摂動論に基づいた計算値である。破線は同色の実線で表した値から 360 deg を引いた値である。

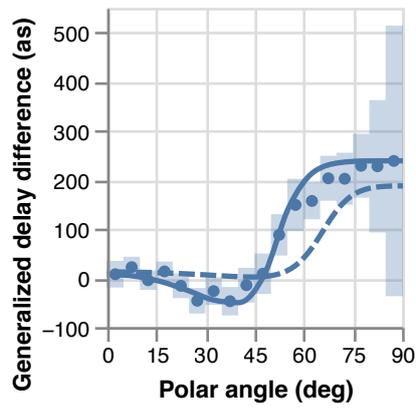


図2.5 遅延時間 $\Delta\tilde{\tau}(\theta)$ 。丸とぬりつぶした領域はそれぞれ測定値とその不確か性（標準誤差）を示す。破線と実線はそれぞれ摂動論と TDCASSCF 論に基づいた計算結果である。測定値も計算値も、7.0 eV と 10.2 eV の二点の差分から計算した値である。

2.5 結論

本章では光電子放出における遅延時間を測る新たな方法を紹介した。この方法を用いて、Ne 原子の $2p$ 電子を標的に、光電子の放出方向に分解した、基本波による二光子イオン化と倍波による一光子イオン化の相対遅延時間を測定することに成功した。測定値は摂動論と TDCASSC 論に基づいて計算した値とよく一致した。FEL を利用するので、内殻電子の光イオン化などのより短波長の光によって引き起こされる現象に拡張できると考えられる。光学レーザーを用いた方法では、光学レーザーで得られる光強度が弱く、内殻イオン化による光電子放出遅延時間の測定ができない。内殻電子、 $1s$ や $2s$ を標的にする平均群遅延は EWS 遅延と等しくなる。アト秒ストリーキング、および、RABBITT を用いた従来の測定法は IR 電場が必要であり、IR 電場による光電子の乱れが邪魔となる [44]。本測定法は IR 電場を使用しないので IR 電場による乱れもない。また、分子を標的にする RABBITT 法は“スペクトル混雑 (spectral crowding)”と呼ばれる問題 [45] がある。使用するパルス列に多様な波長が含まれているので、分子内にある標的としてない原子からもイオン化が起こる問題である。本測定法はこの問題に関しても影響を受けない。アト秒ストリーキング法は光電子の放出方向に分解能がないが、本測定法は分解できる。本手法は、二光子イオン化を研究する上で今後の活躍が期待できる。

第 3 章

Ne 原子における 単一光子レーザー誘起オージェ緩和

New Journal of Physics **21**, 113036 (2019) にて公表済み

3.1 緒言

紫外線や X 線のようなエネルギーの高い光を吸収した化学種は、内殻電子がイオン化されて不安定になる。このイオンは外側の電子を出して安定な状態へ緩和する。この過程をオージェ緩和 (Auger decay) 過程 [46], [47] と呼ぶ。イオンが持っていた余剰エネルギーは光電子の運動エネルギーとして放出される。

こういう脱励起過程は 20 世紀初から研究されてきた。近年に新しい脱励起過程が予測されたり、観測されたり、するのは驚くべきことである。最近発見された過程には 単一光子レーザー誘起オージェ緩和 (**single-photon laser-enabled Auger decay; spLEAD**) [48], [49] がある。オージェ緩和がエネルギー的に禁制である化学種においてもレーザー場からさらにエネルギーを得て起こるオージェ緩和過程である。その以前は、レーザー場からの多光子を吸収して緩和するレーザー誘起オージェ緩和 (laser-enabled Auger decay; LEAD) [50], [51] が観測されていた。LEAD は多光子により起こる過程なので電子殻との相関が少ない。ところが、spLEAD は内側の価電子 (inner valence electrons) との特微的な相関によって引き起こる。SpLEAD を経て放出された電子を調べることで、数アト (10 の -18 乗 ; atto) 秒で起こる内側の価電子ダイナミクスの詳しい情報が得られると期待される [48]。

SpLEAD は著者が属している研究グループで初めて観測した [49]。その先行実験では、位相を制御した基本波と倍波により構成される二波長の EUV (extreme ultraviolet) 光を Ne 原子に照らした。放出された光電子の角度分布が光学位相とともに変化した。この効果は spLEAD を含む二つのイオン化経路が干渉し合うために起きる。SpLEAD を実証したことになる。本研究では、より多様な光の強度で先行研究と同様な実験を行った。SpLEAD を経て放出された光電子の解明を試みた。本項でその実験結果を報告する。本章が次の節で構成される。節 3.2 では記号と言葉の表記を定義する。また、本実験に関わる電子遷移とイオン化の過程を説明する。節 3.3 では実験方法を説明する。節 3.4 では実験で得られた結果を示す。節 3.5 では計算で予想される結果と実験結果を比べて考察する。節 3.6 では予約と結論を述べる。

3.2 表記と物理過程

上述したように本研究では単波長、または、位相を制御した二波長の EUV 光を用いる。どれも同じ方向の直線偏光である。この方向のある単位ベクトルを北極と決める。北極から定義できる球面座標系 (r, θ, φ) を使用する。ここで、 r は動径座標、 θ は北極とのなす角度、 φ は北極から垂直の平面にある別の軸とこの平面への動径の射影がなす角度である。電場は、単波長光も二波長光も一般に以下の式で表せる。

$$E(t) = \sqrt{I_\omega(t)} \cos \omega t + \sqrt{I_{2\omega}(t)} \cos(2\omega t - \phi) \quad (3.1)$$

ここで、 ω と 2ω は光の角振動数、 $I_\omega(t)$ と $I_{2\omega}(t)$ は該当する光の強度、 ϕ は基本波 ω と倍波 2ω の相対位相である。基本波 ω の光子エネルギーは、明記しない限り、Ne+ イオンを $2s$ - $2p$ 共鳴遷移させるエネルギー、26.85 eV である。

一連の過程を経て放出された光電子の分光と収量、角度分布について議論する。角度分布は次に示す非対称性 A を用いて定量化した。

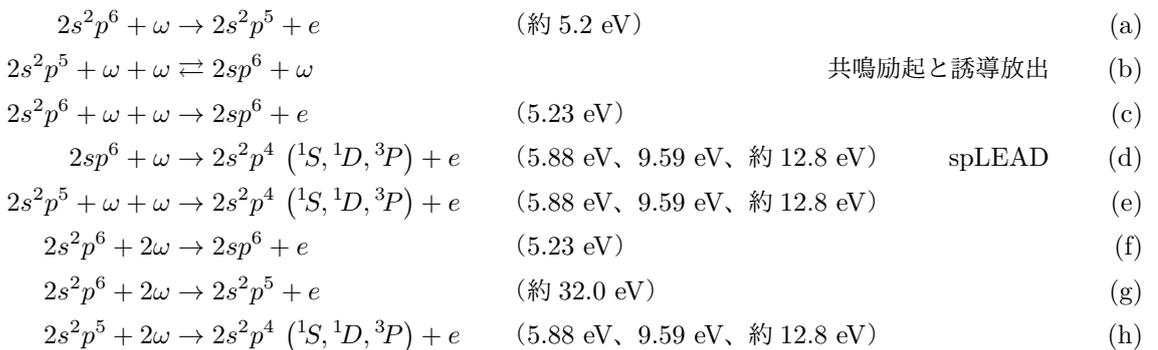
$$A := (S_1 - S_2) / (S_1 + S_2) \quad (3.2)$$

ここで、 S_1 と S_2 はそれぞれ北極に対して上半球と下半球に放出した光電子の収量である。つまり、非対称性 A は上半球と下半球に放出した光電子収量の和と差の比である。非対称性 A は光学位相 ϕ とともに変化する。この変化は以下のモデル関数で表せる。

$$A(\phi) = k \sin(\phi + \eta) + A_0 \quad (3.3)$$

ここで、 k は振動の振幅、 η は振動の位相変位である。考えている系のある対称性により、非対称性 A は必ず原点を中心に振動するはずである。しかし、光電子の放出方向において分光計の感度の違いなどで、原点から少しズレた値を中心に振動する。 A_0 はこのズレの補正する係数である。

本実験に関わる電子遷移とイオン化の過程を以下の式と概略図 3.1 に示す。



遷移 (b) を除くおおよその過程が一光子イオン化、または、二光子イオン化であり、光電子を放出する。 $2s^2p^4 ns$ のような衛星電子を生成する過程は、わずかな数の過程のみエネルギー的に許される。これらの過程は寄与が小さいために本稿では議論しない。式の二行目に示したエネルギーの値は、光子エネルギーが $\omega = 26.85$ eV である場合に放出される光電子の運動エネルギーである。式 (d)、(e)、(h) に三つの値が並んでいる。これら

は Ne^{2+} イオンの異なる終状態 1S 、 1D 、 3P それぞれに対して異なる光電子の運動エネルギーを現した値である。スピン-軌道結合により複数の微細状態を持つ場合は、代表値のみを示した。

過程 (a)、(f)、(g) は、基底状態の中性 Ne 原子が一光子を吸収してイオン化する過程である。

過程 (b) は、共鳴励起、かつ、誘導放出する過程を示す。これらの過程は可逆的に起こるために状態 $2s^2p^5$ と $2sp^6$ をカップリングさせる。

過程 (c) は、基底状態の中性 Ne 原子が二光子イオン化されて、Ne 原子に $2s$ 正孔ができる過程である。ほぼ同じ運動エネルギーの光電子を生成する過程 (a) と、 Ne^+ イオンの終状態が等しい逐次過程 (a)-(b) に比べて寄与が小さいので、無視できる過程である。

過程 (d) は、spLEAD である。 $2s$ 正孔を持つ Ne^+ イオンが一光子を吸収して Ne^{2+} イオンへオーグメント緩和する。

過程 (e) は、 $2p$ 正孔を持つ Ne^+ イオンが二光子イオン化される過程である。終状態が等しい Ne^{2+} イオンを生成する逐次過程 (b)-(d) に比べて寄与が小さいので、無視できる過程である。

逐次過程 (a)-(b)、過程 (f) は、 $2s$ 正孔を持つ Ne^+ イオンを生成する。このイオンはさらに基本波 ω の光子を吸収して spLEAD を起こす。

簡潔のために記号 1S 、 1D 、 3P を用いて過程 (d) や (e) により生成された該当の Ne^{2+} イオン、または、そのイオンと一緒に生成された光電子、過程 (d) や (e) の詳細過程を示す。

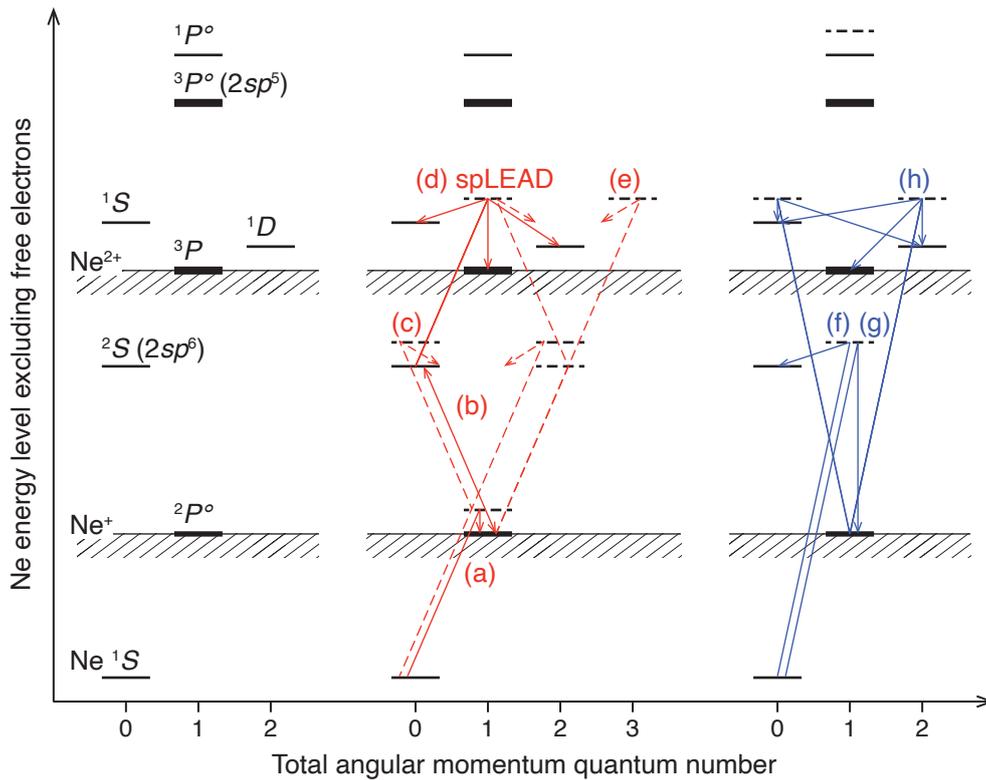


図3.1 本実験に関わる電子遷移とイオン化の過程を概略に示した図。左：中性、および、イオン状態にある Ne 原子のエネルギー順位と該当する項の記号。水平の実線：中性、および、イオン状態にある Ne 原子のエネルギー順位。水平線が置かれた縦の位置は該当する状態のエネルギーを示す。自由電子の運動エネルギーは除く。横の位置は角運動量子数、実線の太さはスピン多重度を示す。自由電子の成分は除く。水平の破線：続いて放出する光電子の運動エネルギーを含めたエネルギーの順位。中央の赤い矢印：基本波 ω により誘起される過程。右の青い矢印：倍波 2ω により誘起される過程。実線の矢印：一光子により起こる電子遷移、または、イオン化過程。破線の矢印：二光子イオン化過程。最終状態は表示してない。

3.3 実験方法

実験方法について、この節では概要のみを述べる。詳しくは文献 [3] に示す。測定は FERMI [1] のビームライン、Low Density Matter (LDM) [36], [37] にて実行した。実験のプロポーザル番号は 20144091 である。基本波 ω と倍波 2ω の二波長光を利用した。使用した基本波 ω の光子エネルギーは 26.85 eV、あるいは、その近傍の 26.53–26.90 eV であった。FERMI には六つのアンジュレータがある。使用するアンジュレータの個数で光の強度をおおまかに調整した。例えば、強い基本波 ω と弱い倍波 2ω を生成する時は、五つのアンジュレータを基本波 ω の波長に、残り一つのアンジュレータを倍波 2ω の波長に合わせる。この設定を “5U(ω)+1U(2ω)” の記号を用いて表す。本実験では四つの異なる設定で光の強度を調整した。表 3.1 に使用した光子エネルギーとアンジュレータの設定を示す。

二波長光 ω - 2ω を KAOS [38] により集光した。波面センサーで倍波 2ω の焦点サイズを測ることで、二波長光 ω - 2ω が集光されたことを検証した。観測した焦点の半値全幅は $20 \mu\text{m}^2$ であった。基本波 ω の波長領域は波面センサーで測れない。光学と FERMI の特性に基づいて、基本波 ω の焦点サイズは倍波 2ω よりわずかに大きくなると推定できる。パルス幅は基本波 ω と倍波 2ω それぞれ 40 ± 12 fs と 30 ± 8 fs であった。PRESTO 分光計 [52] で測った相対バンド幅は 1.5×10^{-3} であった。

FEL はアンジュレータの設定を変えることで生成する光の波長を変える。この際に二波長光 ω - 2ω の光学位相がズレる [39]。本実験ではこの光学位相のズレ ϕ_0 が補正できていないので、観測結果とともに示す光学位相は未知のズレを含めた値、 $\phi + \phi_0$ である。

標的の Ne 原子は、Ne ガスをパルスにした原子ビームとして導入した。光ビームと原子ビームが交差するところで一連の反応が起こる。放出された光電子は速度マップ画像 (velocity map imaging; VMI) 電子分光計を用いて測定した。ある面に射影した運動量の分布が画像で得られる。取得した画像を BASEX 法 [40] により Abel 逆変換して運動量分布に再構成した。運動量分布は光電子が放出する方向 θ において分解能を持つ。

表3.1 実験で使用した、基本波 ω と倍波 2ω の組み合わせとその光子エネルギー、アンジュレータの設定、光の平均強度。アンジュレータの設定を表す記号の読み方は本文に記載した。光の強度はアンジュレータの設定でおおまかに調整した。測定した光電子分光から光の強度を見積もった。FEL パルスのパワーの不安定性から、強度分布の相対半値全幅は 50% であると推定する。

条件	光子エネルギー (eV)		アンジュレータ	光の平均強度 (W/cm ²)	
	基本波 ω	倍波 2ω		基本波 ω	倍波 2ω
基本波のみ	26.53-26.90	–	5U(ω)		
倍波のみ	–	53.70	5U(2ω)		
弱い基本波と強い倍波	26.85	53.70	5U(2ω)+1U(ω)	6.3×10^{11}	3×10^{13}
強い基本波と弱い倍波	26.85	53.70	5U(ω)+1U(2ω)	2×10^{13}	4.6×10^{11}

3.4 結果

本実験は表 3.1 に示した四つの基本波と倍波の組み合わせで行った。それぞれの結果を該当の小節で示す。測定された光電子は、その運動エネルギーからどのイオン化過程により生成されたかを帰属した。ある運動エネルギーに該当する過程が二つ以上ある場合は予想される収量比で成分を推測した。

3.4.1 基本波のみ

基本波 ω のみを使用した実験では、過程 (a)–(e) が関わる。最も光電子収量の寄与が大きい過程は (a)、基底状態にある中性 Ne 原子が一光子イオン化して 2p 正孔ができる過程である。Ne²⁺ イオンを生成する逐次過程は以下の考えられる。

- (a)–(b)–(d)、spLEAD
- (c)–(d)
- (a)–(e)
- (c)–(b)–(e)

その中、最も寄与が大きい逐次過程は spLEAD を含む (a)–(b)–(d) である。他は二光子過程が一回以上逐次に起こるので寄与が小さい。

図 3.2 の曲線 I は基本波 ω のみにより誘起された光電子分光である。設定した光子エネルギーは $\omega = 26.85$ eV である。VMI 電子分光計の運動エネルギー分解能を上げるために、測定可能な運動エネルギー領域を狭くした。よって、他の曲線より表示領域が狭い。5 eV にみえる最も高いピークが過程 (a) により生成された光電子である。10 eV と 13 eV にみえる弱いピークは過程 (d) と過程 (e) により生成された光電子であり、Ne²⁺ イオンが生成されたことを暗示する。6 eV の運動エネルギーを持つ ¹S 光電子も一緒に生成されたはず [49] だが、過程 (a) による光電子の強いピークと分解できてない。ピークの面積から求めた ³P と ¹D の収量比は 0.32 : 1 であった。

共鳴励起・誘導放出 (b) を起こす光子エネルギーをより正確に特定するために、光子エネルギーによる光電子収量の変化を調べた。図 3.3 に ¹D と ³P の光電子収量を示す。どれも非対称なピークの形をしている。Ne⁺ 2s²p⁵ イオン状態はスピン-軌道結合による二つの微細構造 ²P_{1/2} と ²P_{3/2} を持つ。電子分光計で分解できなかった二つの微細構造が非対称なピークを作ったと思われる。実線は二つのガウス関数の和をフィッティングして得られた曲線である。フィッティングの際に二つのガウス関数成分は以下の条件を満たすように変数の自由度を制限した。

- 同じ半値全幅を持つ。
- 面積比が 1:2 である。
- 中心エネルギーの差は 97 meV である。

フィッティングから引き出した ²P_{3/2} 成分の共鳴エネルギーは 26.85 eV であった。予想値、26.9104 eV [53] と 60 meV 以内で一致する。²P_{1/2} と ²P_{3/2} 成分の半値全幅は 120 meV であった。光のバンド幅である約

40 meV より広い。光子エネルギーのジッタ、または、他のノイズの影響でバンド幅より広がったと思われる。

3.4.2 倍波のみ

倍波 2ω のみを使用した実験では、過程 (f)–(h) が関わる。最も光電子収量の寄与が大きい過程は (g)、基底状態にある中性 Ne 原子が一光子イオン化して 2p 正孔ができる過程である。Ne²⁺ イオンを生成する逐次過程は (g)–(h) のみが考えられる。

図 3.2 の曲線 IV は倍波 2ω のみにより誘起された光電子分光である。設定した光子エネルギーは $2\omega = 53.70$ eV である。32 eV にみえる最も高いピークが過程 (g) により生成された光電子である。5 eV にみえる弱いピークは主に過程 (f) により生成された光電子である。10 eV と 13 eV にみえる弱いピークは過程 (h) により生成された光電子であり、Ne²⁺ イオンが生成されたことを暗示する。6 eV の運動エネルギーを持つ ¹S 光電子も一緒に生成されたはずだ [49] が、過程 (f) により生成された光電子と分解できてない。過程 (g) と (f) の反応断面積の比は 21 : 1 (= 1 : 0.048) [54] と予想される。一方で、測定された 32 eV と 5 eV の光電子の収量比は 17 : 1 (= 1 : 0.059) であった。5 eV の光電子収量が過程 (f) で予想される収量より多い。これは過程 (h) による ¹S 光電子の寄与が含まれていると考えられる。ピークの面積から求めた ³P と ¹D の収量比は 1.07 : 1 であった。

3.4.3 弱い基本波と強い倍波

弱い基本波 ω と強い倍波 2ω の実験は先行研究 [49] と似た強度条件である。二波長光の光学位相 ϕ を制御して、光学位相 ϕ とともに変化する光電子角度分布を測定した。

図 3.2 の曲線 III は二波長光 ω - 2ω により誘起された光電子分光である。光学位相 ϕ は区分してない。光学位相 ϕ による光電子角度分布の変化を図 3.4 に示す。角度分布は式 3.2 に示した非対称性 A を用いて定量化した。式 (3.3) に示したモデル関数を非対称性 A の変化にフィッティングした。フィッティングから得られた物理量を表 3.2 に示す。

3.4.4 強い基本波と弱い倍波

先行研究 [49] と異なる強度の組み合わせ、強い基本波 ω と弱い倍波 2ω で実験を行った。

図 3.2 の曲線 II は二波長光 ω - 2ω により誘起された光電子分光である。光学位相 ϕ は区分してない。光学位相 ϕ による光電子角度分布の変化を図 3.5 に示す。角度分布は式 3.2 に示した非対称性 A を用いて定量化した。式 (3.3) に示したモデル関数を非対称性 A の変化にフィッティングした。フィッティングから得られた物理量を表 3.2 に示す。

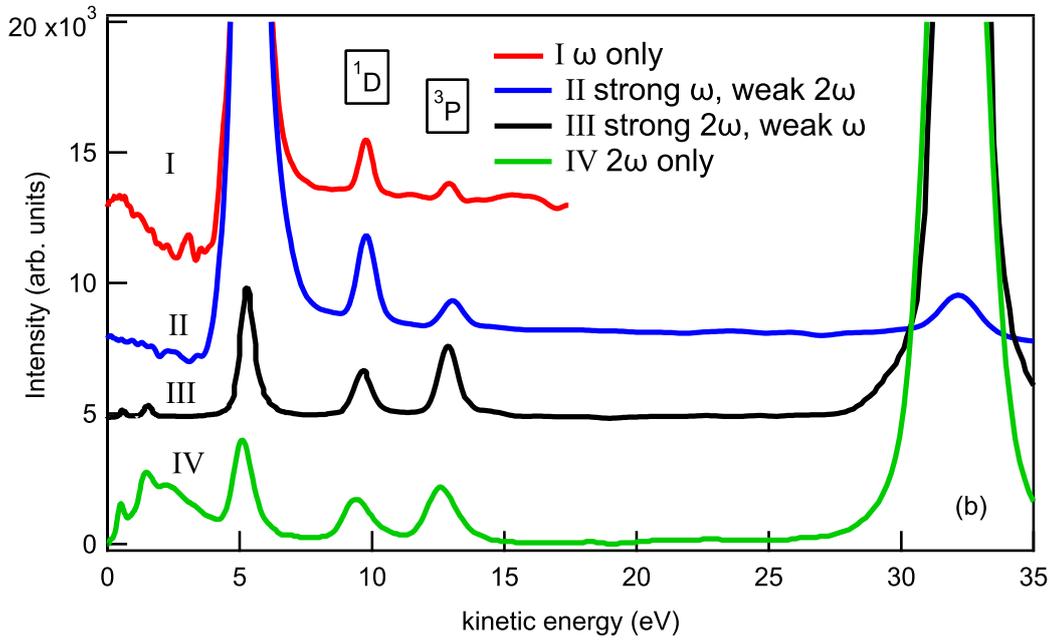
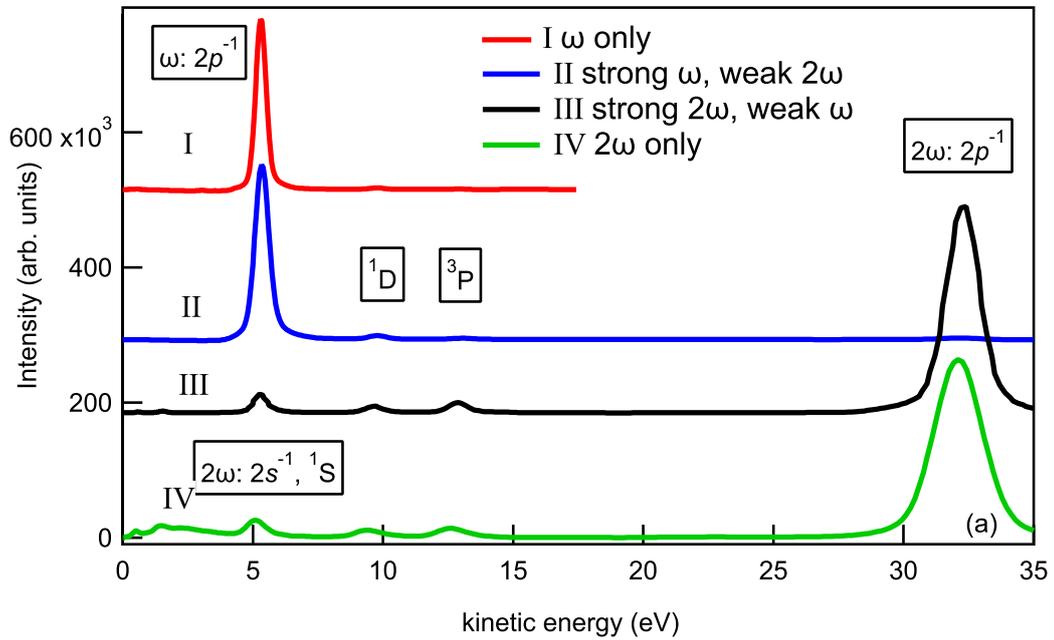


図3.2 該当の実験で得られた光電子分光。I：基本波のみ。II：強い基本波と弱い倍波。III：弱い基本波と強い倍波。IV：倍波のみ。比べやすくするために、それぞれの曲線を適当に垂直に並行移動した。また、任意に高さのスケールを変えている。下のパネルは縦軸のスケールを上のパネルのより33倍拡大したものである。

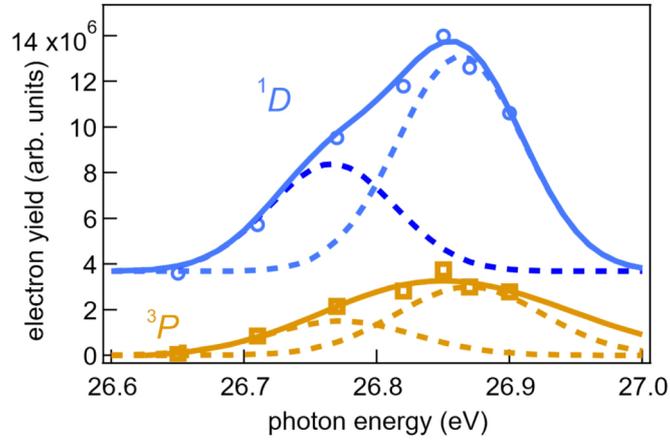


図3.3 光子エネルギーによる光電子収量の変化。青い丸： 1D 光電子の収量。黄色い丸： 3P 光電子の収量。実線：該当の収量変化を二つのガウス関数の和でフィッティングした曲線。破線：フィッティングで得られた曲線を構成する二つのガウス関数の成分。本文にフィッティングの条件について記載した。比べやすくするために 1D と 3P の光電子の収量を垂直に並行移動させている。スケールは変えていない。

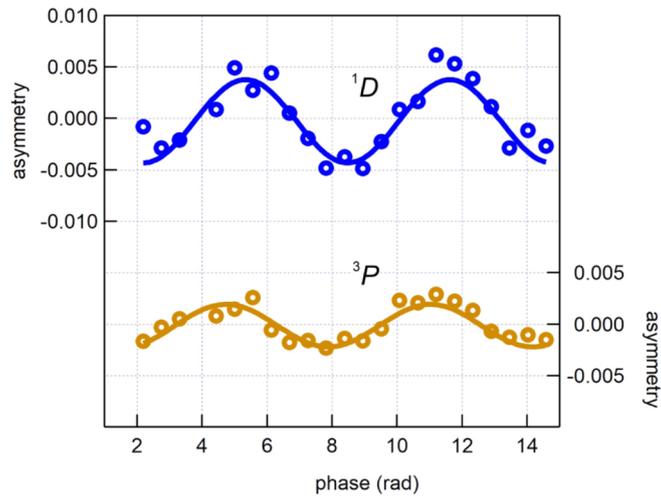


図3.4 光学位相 ϕ による光電子角度分布の非対称性 A の変化。弱い基本波 ω と強い倍波 2ω で測定した値である。 1D と 3P 光電子を異なる色で区分した。式(3.3)に示したモデル関数を非対称性 A の変化にフィッティングした。得られた関数を実線で示す。

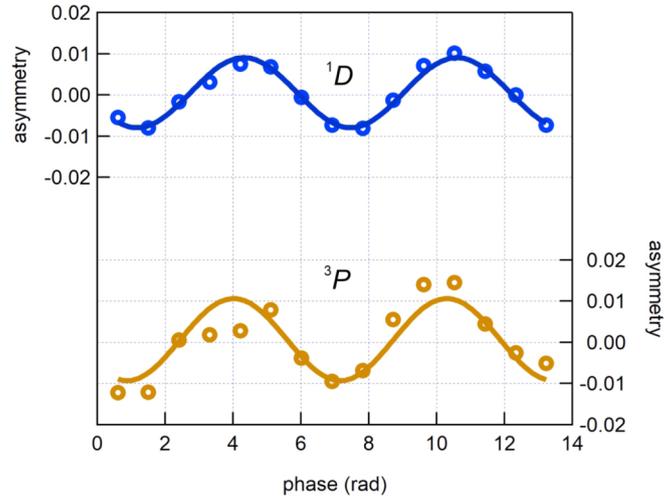


図3.5 光学位相 ϕ による光電子角度分布の非対称性 A の変化。強い基本波 ω と弱い倍波 2ω で測定した値である。 1D と 3P 光電子を異なる色で区分した。式 (3.3) に示したモデル関数を非対称性 A の変化にフィッティングした。得られた関数を実線で示す。

表3.2 四つの実験条件で測定した実験結果から引き出した様々な物理量と、その計算値。実験結果からの物理量の引き出し方は本文に記載した。 $\Delta\phi$ は 1D に対する 3P の相対位相変位である。

条件	物理量	測定値	計算値
基本波のみ	収量比 ${}^3P : {}^1D$	0.32 : 1	0.81
倍波のみ	収量比 ${}^3P : {}^1D$	1.07 : 1	1.37
弱い基本波と強い倍波	収量比 ${}^3P : {}^1D$	2.0 : 1	1.4
	振幅 k 1D	0.0044(4)	0.004
	振幅 k 3P	0.0021(1)	0.003 57
	振幅比 ${}^3P : {}^1D$	0.5(2) : 1	0.89
	位相変位差 $\Delta\eta$ (rad)	-0.6(2)	-0.38
強い基本波と弱い倍波	収量比 ${}^3P : {}^1D$	0.31 : 1	0.81
	振幅 k 1D	0.0085(4)	0.010 35
	振幅 k 3P	0.010(2)	0.032
	振幅比 ${}^3P : {}^1D$	1.2(1) : 1	3.1
	位相変位差 $\Delta\eta$ (rad)	-0.3(2)	-1.04

3.5 考察

3.5.1 理論計算

共同研究者が TD (time-dependent) B-spline ADC (algebraic-diagrammatic construction) 法に基づいて中性 Ne 原子と Ne^+ イオンのイオン化をそれぞれ計算した [55]。2s 正孔を持つ Ne^+ イオンの固有状態を基底関数系に展開して得られた係数を図 3.6 に示す。2h1p (二つの正孔と一つの励起電子; two-hole-one-particle) を表現する基底関数の係数のみ示す。図には示していないが、主な成分は $2s2p^6\ ^2S$ を表現している基底関数である。その寄与 (係数の絶対値の二乗和) は 0.8 であった。残りの寄与の多くは 2h1p を表現する成分である。これら成分は電場との相合作用で Ne^{2+} イオンを生成する。

$2p^2$ 正孔を持つイオンになる成分は次の三つである。

- $2s^2p^4\ (^1S)\ ns$
- $2s^2p^4\ (^1D)\ nd$
- $2sp^5\ (^3P)\ np$

それぞれ 1S 、 1D 、 3P イオンを生成する。 $2s^2p^4nl$ 成分の場合、 nl 電子が放出される描像で spLEAD が起こることが理解できる。 $2sp^5\ (^3P)\ nl$ 成分の場合、 $2p$ 電子が $2s$ 電子に遷移することで spLEAD が起こり、 $2s^2p^4\ ^3P$ を生成する。

先行研究 [49] では $2s^2p^4\ (^3P)\ nl$ 成分のみが 3P イオンを生成すると考えていた。図 3.6 に示したとおり、 $2s^2p^4\ (^3P)\ nl$ 成分の寄与はほぼない。したがって無視できると結論つけていた。ところが、今回の実験結果では 3P イオン化経路の干渉がみえていた。この干渉は、 $2s^2p^4\ (^3P)\ nl$ 成分ではなく、 $2sp^5\ (^3P)\ nl$ 成分により誘起されたと思われる。

3.5.2 基本波のみと倍波のみ

表 3.2 に示したように、基本波のみの実験で $^3P : ^1D$ の収量比は 0.32 と測定された。ADC 法により予想される計算値は 0.81 であり、観測値より大きい。倍波のみの実験では同じ傾向である。測定値は 1.1 であったが、計算値は 1.4 であり、観測値より大きい。これは ADC 法が 3P の収量を過大評価した可能性を示す。用いた計算では Ne^+ イオン状態を限られた基底関数系で表した。時間とともに変化する一時的状態も全てこの基底関数系で表される。そこから生じる系統的誤差で、ある特定の遷移経路 (例えば、 3P) が過大評価される可能性が考えられる。

3.5.3 弱い基本波と強い倍波

二波長光を利用した実験結果を考察の前に、実験の限界について言及しておきたい。議論している物理現象は光の強度に依存する。理論計算に用いた光の強度は、測定した光電子分光から見積もった値である。強度分布はその相対半値全幅が 50% であると推定され、統計的精密度が低い。二波長間のコヒーレンス性も完全ではない。また、焦点が実験中にズレた可能性もある。こういう限界で干渉による効果が弱くなる可能性がある。

表 3.2 に測定値と計算値をまとめた。収量比 ${}^3P : {}^1D$ が計算値と 30% 以内で一致する。

1D 光電子角度分布の非対称性の振幅 k はよく一致する。しかし、 3P は二倍程度でズレている。このズレは前小節 3.5.2 で議論した理由で、 3P が過大評価されて生じた可能性がある。振幅の比 ${}^3P : {}^1D$ もその程度に過大評価される。考えられる干渉は spLEAD を含む逐次過程 (b)-(d) と過程 (h) 間のである。どの過程も $\text{Ne}^+ 2s^2p^5$ を初期状態とする。逐次過程 (b)-(d) は弱い基本波 ω から二光子を吸収して起こる過程である。過程 (h) は強い倍波 2ω から一光子を吸収して起こる過程である。弱い光から二光子も吸収して起こる逐次過程 (b)-(d) の寄与と、強い光から一光子だけ吸収して起こる過程 (h) の寄与のアンバランスで干渉の効果が弱くなったと考えられる。

1D に対する 3P の相対位相変位 $\Delta\eta$ が誤差内で測定値と計算値が一致した。

先行研究 [49] では、光学位相による 3P の非対称性 A の変化が誤差の程度だったので振動してないと結論をつけた。その振幅は ${}^3P : {}^1D = 0.15 \pm 0.1 : 1$ であった。先行研究と似た強度条件で同じ実験を行って得られた振幅比は ${}^3P : {}^1D = 0.47 \pm 0.2 : 1$ であった。

3.5.4 強い基本波と弱い倍波

前小節 3.5.3 での議論に基づいて考えると、強い基本波と弱い倍波を用いた実験の場合、光電子角度分布の非対称性の振幅 k が比較的大きくなると期待される。SpLEAD を含む逐次過程 (b)-(d) は強い基本波から二光子を吸収して起こり、過程 (h) は弱い倍波から一光子を吸収して起こるので、その寄与のバランスが良い。予想される振幅 k は 1D と 3P どれも 0.2 以上である。しかし、測定された振幅 k は 1D と 3P それぞれ 0.0085 と 0.01 であった。干渉効果が予想より弱い理由は、考慮してなかった干渉が起こり、相殺し合っただけである。考慮してなかった干渉は、spLEAD 過程 (d) と逐次過程 (b)-(h) 間の干渉である。 $\text{Ne}^+ 2s^2p^5$ を初期状態とする。弱い基本波と強い倍波の場合は、 $2s^2p^5$ を初期状態とする干渉効果が無視できていた。しかし、強い基本波と弱い倍波の場合は、無視できなくなる。この干渉効果による振幅は 1D と 3P それぞれ 0.04 と 0.06 と予想された。かつ、 $2s^2p^5$ を初期状態とする干渉効果による振動とほぼ逆位相で振動する。

ADC 法に基づいた中性 Ne 原子のイオン化の計算によると、強い基本波と弱い倍波の二波長光により $2s^2p^5$ と $2sp^6$ 状態の Ne^+ イオンがほぼ同収量で生成される。また、二つの状態はデコヒーレンスである。したがって、それぞれの Ne^+ 初期状態から生成される光電子の収量をデコヒーレントに足し合わすモデルを考えた。このモデルを理論計算結果に適用すると光電子角度分布の非対称性 A は以下の式で表せる。

$$A = \left(S_1^{2p} - S_2^{2p} + S_1^{2s} - S_2^{2s} \right) / \left(S_1^{2p} + S_2^{2p} + S_1^{2s} + S_2^{2s} \right) \quad (3.4)$$

ここで、添字 $2p$ と $2s$ はそれぞれ該当の正孔を持つ初期状態から計算した物理量であることを示す。計算値は表 3.2 に示す。 1D と 3P それぞれ振幅が 0.010 と 0.032 であった。前小節 3.5.3 での議論と同様に、 1D の振幅 k は ADC 法がよく再現している。しかし、 3P の振幅 k が三倍程度に過大評価されている。振幅の比 ${}^3P : {}^1D$ も同じ程度に過大評価される。このズレは小節 3.5.2 と 3.5.3 で議論した同様な理由で生じた可能性がある。

1D に対する 3P の相対位相変位 $\Delta\eta$ も同様のモデルを用いて計算した。0.7 rad 程度で測定値とズレている。

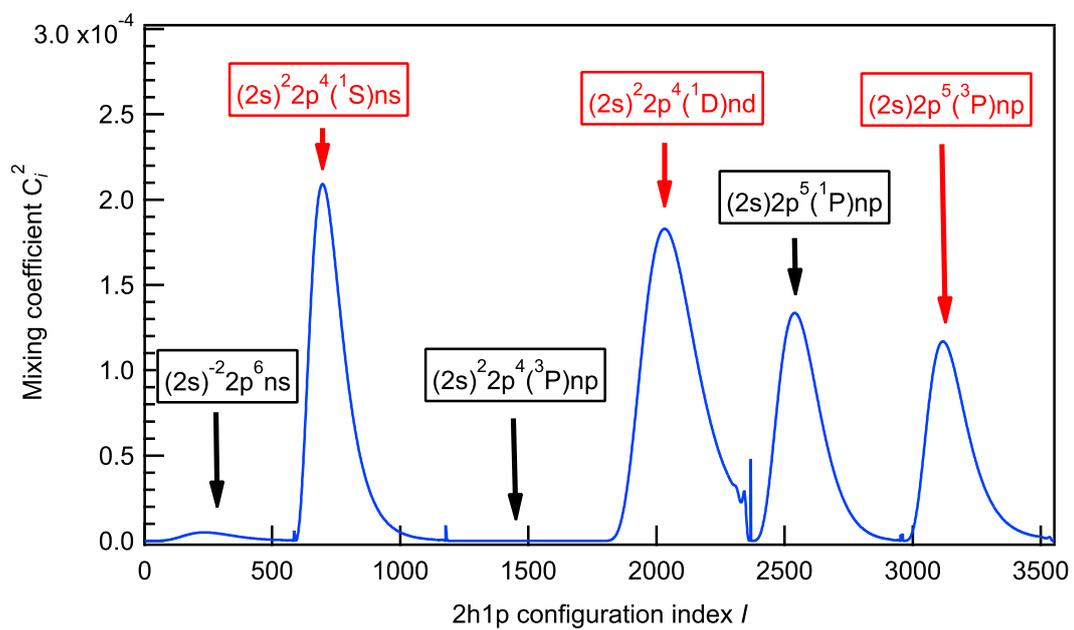


図3.6 $2s$ 正孔を持つ Ne^+ イオンの固有状態を B-spline 基底関数系に展開して得られた係数。2h1p を表現する基底関数の係数のみ示す。横軸は基底関数を特定する任意の添字である。その基底関数が表現する電子配置を箱に囲まれた記号で示した。赤の箱で示した成分は spLEAD を経て $2p^2$ 正孔を持つイオンを生成する。

3.6 結論

本章では次に示す基本波と倍波の四つ組み合わせで Ne 原子における単一光子レーザー誘起オージェ緩和 (spLEAD) 過程を解明した。

- 基本波のみ
- 倍波のみ
- 弱い基本波と強い倍波
- 強い基本波と弱い倍波

後者の二波長光を利用した実験では、光電子の角度分布が光学位相により振動することを観測した。この現象は spLEAD が活性であったことを示唆する。我々はあるモデルを構築して、ADC 法に基づいた計算結果に適用した。そこから得られた以下の物理量を測定値と比べた。

- Ne^{2+} 3P と 1D 終状態の収量比
- 光電子角度分布を定量化した非対称性の振幅
- その振動の相対位相変位 $\Delta\eta$

測定値と計算値はよく一致していた。ところが、定量的議論でいくつかの物理量が不一致し、その理由について議論した。SpLEAD は内側の価電子との電子相関により起こるために、アト秒スケールで起こる内側の価電子ダイナミクスを理解する上で重要な現象である。本手法は分子にも適用可能である。

参考文献

- [1] E. Allaria, L. Badano, S. Bassanese, F. Capotondi, D. Castronovo, P. Cinquegrana, M. B. Danailov, G. D’Auria, A. Demidovich, R. De Monte, G. De Ninno, S. Di Mitri, B. Diviacco, W. M. Fawley, M. Ferianis, E. Ferrari, G. Gaio, D. Gauthier, L. Giannessi, F. Iazzourene, G. Kurdi, N. Mahne, I. Nikolov, F. Parmigiani, G. Penco, L. Raimondi, P. Rebernik, F. Rossi, E. Roussel, C. Scafuri, C. Serpico, P. Sigalotti, C. Spezzani, M. Svandrlik, C. Svetina, M. Trovó, M. Veronese, D. Zangrando, and M. Zangrando, “The FERMI free-electron lasers,” *Journal of Synchrotron Radiation*, vol. 22, no. 3, pp. 485–491, May 2015, ISSN: 16005775. DOI: 10.1107/S1600577515005366.
- [2] Z. T. Zhao, D. Wang, J. H. Chen, Z. H. Chen, H. X. Deng, J. G. Ding, C. Feng, Q. Gu, M. M. Huang, T. H. Lan, Y. B. Leng, D. G. Li, G. Q. Lin, B. Liu, E. Prat, X. T. Wang, Z. S. Wang, K. R. Ye, L. Y. Yu, H. O. Zhang, J. Q. Zhang, M. Zhang, M. Zhang, T. Zhang, S. P. Zhong, and Q. G. Zhou, “First lasing of an echo-enabled harmonic generation free-electron laser,” *Nature Photonics*, vol. 6, no. 6, pp. 360–363, 2012, ISSN: 17494885. DOI: 10.1038/nphoton.2012.105.
- [3] K. C. Prince, E. Allaria, C. Callegari, R. Cucini, G. De Ninno, S. Di Mitri, B. Diviacco, E. Ferrari, P. Finetti, D. Gauthier, L. Giannessi, N. Mahne, G. Penco, O. Plekan, L. Raimondi, P. Rebernik, E. Roussel, C. Svetina, M. Trovò, M. Zangrando, M. Negro, P. Carpeggiani, M. Reduzzi, G. Sansone, A. N. Grum-Grzhimailo, E. V. Gryzlova, S. I. Strakhova, K. Bartschat, N. Douguet, J. Venzke, D. Iablonskyi, Y. Kumagai, T. Takanashi, K. Ueda, A. Fischer, M. Coreno, F. Stienkemeier, Y. Ovcharenko, T. Mazza, and M. Meyer, “Coherent control with a short-wavelength free-electron laser,” *Nature Photonics*, vol. 10, no. 3, pp. 176–179, Mar. 2016, ISSN: 1749-4885. DOI: 10.1038/nphoton.2016.13.
- [4] L. Giannessi, E. Allaria, K. C. Prince, C. Callegari, G. Sansone, K. Ueda, T. Morishita, C. N. Liu, A. N. Grum-Grzhimailo, E. V. Gryzlova, N. Douguet, and K. Bartschat, “Coherent control schemes for the photoionization of neon and helium in the Extreme Ultraviolet spectral region,” *Scientific Reports*, vol. 8, no. 1, p. 7774, Dec. 2018, ISSN: 2045-2322. DOI: 10.1038/s41598-018-25833-7.
- [5] F. Krausz and M. Ivanov, “Attosecond physics,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 81, no. 1, pp. 163–234, Feb. 2009, ISSN: 0034-6861. DOI: 10.1103/RevModPhys.81.163.
- [6] S. Pabst and J. M. Dahlström, “Eliminating the dipole phase in attosecond pulse characterization using Rydberg wave packets,” *Physical Review A*, vol. 94, no. 1, p. 013411, Jul. 2016, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.94.013411.
- [7] K. Klünder, J. M. Dahlström, M. Gisselbrecht, T. Fordell, M. Swoboda, D. Guénot, P. Johnsson, J. Caillat, J. Mauritsson, A. Maquet, R. Taïeb, and A. L’Huillier, “Probing Single-Photon Ionization

- on the Attosecond Time Scale,” *Physical Review Letters*, vol. 106, no. 14, p. 143002, Apr. 2011, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.143002.
- [8] D. Guénot, D. Kroon, E. Balogh, E. W. Larsen, M. Kotur, M. Miranda, T. Fordell, P. Johnsson, J. Mauritsson, M. Gisselbrecht, K. Varjù, C. L. Arnold, T. Carette, A. S. Kheifets, E. Lindroth, A. L Huillier, and J. M. Dahlström, “Measurements of relative photoemission time delays in noble gas atoms,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 47, no. 24, p. 245602, Dec. 2014, ISSN: 0953-4075. DOI: 10.1088/0953-4075/47/24/245602.
- [9] D. Guénot, K. Klünder, C. L. Arnold, D. Kroon, J. M. Dahlström, M. Miranda, T. Fordell, M. Gisselbrecht, P. Johnsson, J. Mauritsson, E. Lindroth, A. Maquet, R. Taïeb, A. L’ Huillier, and A. S. Kheifets, “Photoemission-time-delay measurements and calculations close to the 3s-ionization-cross-section minimum in Ar,” *Physical Review A*, vol. 85, no. 5, p. 053424, May 2012, ISSN: 1050-2947. DOI: 10.1103/PhysRevA.85.053424.
- [10] C. Palatchi, J. M. Dahlström, A. S. Kheifets, I. A. Ivanov, D. M. Canaday, P. Agostini, and L. F. DiMauro, “Atomic delay in helium, neon, argon and krypton,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 47, no. 24, p. 245003, Dec. 2014, ISSN: 0953-4075. DOI: 10.1088/0953-4075/47/24/245003.
- [11] A. S. Kheifets, “Time delay in valence-shell photoionization of noble-gas atoms,” *Physical Review A*, vol. 87, no. 6, p. 063404, Jun. 2013, ISSN: 1050-2947. DOI: 10.1103/PhysRevA.87.063404.
- [12] S. Saha, A. Mandal, J. Jose, H. R. Varma, P. C. Deshmukh, A. S. Kheifets, V. K. Dolmatov, and S. T. Manson, “Relativistic effects in photoionization time delay near the Cooper minimum of noble-gas atoms,” *Physical Review A*, vol. 90, no. 5, p. 053406, Nov. 2014, ISSN: 1050-2947. DOI: 10.1103/PhysRevA.90.053406.
- [13] D. Busto, J. Vinbladh, S. Zhong, M. Isinger, S. Nandi, S. Maclot, P. Johnsson, M. Gisselbrecht, A. L’ Huillier, E. Lindroth, and J. M. Dahlström, “Fano’ s Propensity Rule in Angle-Resolved Attosecond Pump-Probe Photoionization,” *Physical Review Letters*, vol. 123, no. 13, p. 133201, Sep. 2019, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.123.133201.
- [14] J. Vos, L. Cattaneo, S. Patchkovskii, T. Zimmermann, C. Cirelli, M. Lucchini, A. Kheifets, A. S. Landsman, U. Keller, S. L. Patchkovskii, T. Zimmermann, C. Cirelli, M. Lucchini, A. Kheifets, A. S. Landsman, and U. Keller, “Orientation-dependent stereo Wigner time delay and electron localization in a small molecule,” *Science*, vol. 360, no. 6395, pp. 1326–1330, 2018, ISSN: 0036-8075. DOI: 10.1126/science.aao4731.
- [15] R. Pazourek, S. Nagele, and J. Burgdörfer, “Attosecond chronoscopy of photoemission,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 87, no. 3, pp. 765–802, Aug. 2015, ISSN: 15390756. DOI: 10.1103/RevModPhys.87.765.
- [16] M. Schultze, M. Fieß, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, S. Neppl, A. L. Cavalieri, Y. Komminos, T. Mercouris, C. A. Nicolaides, R. Pazourek, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdörfer, A. M. Azzeer, R. Ernstorfer, R. Kienberger, U. Kleineberg, E. Goulielmakis, F. Krausz, V. S. Yakovlev, M. Fiess, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, S. Neppl, A. L. Cavalieri, Y. Komminos, T. Mercouris, C. A. Nicolaides, R. Pazourek, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdorfer, A. M. Azzeer, R. Ernstorfer, R. Kienberger, U. Kleineberg, E. Goulielmakis, F. Krausz, and V. S.

- Yakovlev, “Delay in Photoemission,” *Science*, vol. 328, no. 5986, pp. 1658–1662, Jun. 2010, ISSN: 0036-8075. DOI: 10.1126/science.1189401.
- [17] P. Eckle, A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, A. Staudte, R. Dörner, H. G. Muller, M. Büttiker, U. Keller, R. Dörner, H. G. Muller, M. Büttiker, U. Keller, R. Dörner, H. G. Muller, M. Büttiker, and U. Keller, “Attosecond Ionization and Tunneling Delay Time Measurements in Helium,” *Science*, vol. 322, no. 5907, pp. 1525–1529, Dec. 2008, ISSN: 0036-8075. DOI: 10.1126/science.1163439.
- [18] P. Eckle, M. Smolarski, P. Schlup, J. Biegert, A. Staudte, M. Schöffler, H. G. Muller, R. Dörner, and U. Keller, “Attosecond angular streaking,” *Nature Physics*, vol. 4, no. 7, pp. 565–570, Jul. 2008, ISSN: 1745-2473. DOI: 10.1038/nphys982.
- [19] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, R. Dörner, and U. Keller, “Timing the release in sequential double ionization,” *Nature Physics*, vol. 7, no. 5, pp. 428–433, May 2011, ISSN: 1745-2473. DOI: 10.1038/nphys1946.
- [20] A. N. Pfeiffer, C. Cirelli, M. Smolarski, D. Dimitrovski, M. Abu-samha, L. B. Madsen, and U. Keller, “Attoclock reveals natural coordinates of the laser-induced tunnelling current flow in atoms,” *Nature Physics*, vol. 8, no. 1, pp. 76–80, Jan. 2012, ISSN: 1745-2473. DOI: 10.1038/nphys2125.
- [21] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, P. Agostini, and F. Audebert, “Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation,” *Science*, vol. 292, no. 5522, pp. 1689–1692, Jun. 2001, ISSN: 00368075. DOI: 10.1126/science.1059413.
- [22] V. Loriot, A. Marciniak, G. Karras, B. Schindler, G. Renois-Predelus, I. Compagnon, B. Concina, R. Brédy, G. Celep, C. Bordas, E. Constant, and F. Lépine, “Angularly resolved RABBITT using a second harmonic pulse,” *Journal of Optics*, vol. 19, no. 11, p. 114 003, Nov. 2017, ISSN: 2040-8978. DOI: 10.1088/2040-8986/aa8e10.
- [23] D. M. Villeneuve, P. Hockett, M. J. J. Vrakking, and H. Niikura, “Coherent imaging of an attosecond electron wave packet,” *Science*, vol. 356, no. 6343, pp. 1150–1153, Jun. 2017, ISSN: 0036-8075. DOI: 10.1126/science.aam8393.
- [24] S. Donsa, N. Douguet, J. Burgdörfer, I. Březinová, and L. Argenti, “Circular Holographic Ionization-Phase Meter,” *Physical Review Letters*, vol. 123, no. 13, p. 133 203, Sep. 2019, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.123.133203.
- [25] D. Azoury, O. Kneller, M. Krüger, B. D. Bruner, O. Cohen, Y. Mairesse, and N. Dudovich, “Interferometric attosecond lock-in measurement of extreme-ultraviolet circular dichroism,” *Nature Photonics*, vol. 13, no. 3, pp. 198–204, Mar. 2019, ISSN: 1749-4885. DOI: 10.1038/s41566-019-0350-5.
- [26] M. Ossiander, J. Riemensberger, S. Neppl, M. Mittermair, A. D. M. Schäffer, M. S. Wagner, R. Heider, M. Wurzer, M. Gerl, M. Schnitzenbaumer, J. V. Barth, F. Libisch, C. Lemell, J. Burgdörfer, P. Feulner, R. Kienberger, M. Schäffer, A. Duensing, M. S. Wagner, R. Heider, M. Wurzer, M. Gerl, M. Schnitzenbaumer, J. V. Barth, F. Libisch, C. Lemell, J. Burgdörfer, P. Feulner, R. Kienberger, A. D. M. Schäffer, M. S. Wagner, R. Heider, M. Wurzer, M. Gerl, M. Schnitzenbaumer, J. V. Barth, F. Libisch, C. Lemell, J. Burgdörfer, P. Feulner, and R. Kienberger, “Absolute timing of the photoelectric effect,” *Nature*, vol. 561, no. 7723, pp. 374–377, 2018, ISSN: 14764687. DOI: 10.1038/s41586-018-0503-6.

- [27] A. Harth, N. Douguet, K. Bartschat, R. Moshhammer, and T. Pfeifer, “Extracting phase information on continuum-continuum couplings,” *Physical Review A*, vol. 99, no. 2, pp. 1–5, 2019, ISSN: 24699934. DOI: 10.1103/PhysRevA.99.023410.
- [28] J. Wätzel, A. S. Moskalenko, Y. Pavlyukh, and J. Berakdar, “Angular resolved time delay in photoemission,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 48, no. 2, p. 025602, Jan. 2015, ISSN: 0953-4075. DOI: 10.1088/0953-4075/48/2/025602.
- [29] S. Heuser, Á. Jiménez Galán, C. Cirelli, C. Marante, M. Sabbar, R. Boge, M. Lucchini, L. Gallmann, I. Ivanov, A. S. Kheifets, J. M. Dahlström, E. Lindroth, L. Argenti, F. Martín, and U. Keller, “Angular dependence of photoemission time delay in helium,” *Physical Review A*, vol. 94, no. 6, p. 063409, Dec. 2016, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.94.063409.
- [30] A. Mandal, P. C. Deshmukh, A. S. Kheifets, V. K. Dolmatov, and S. T. Manson, “Angle-resolved Wigner time delay in atomic photoionization: The 4d subshell of free and confined Xe,” *Physical Review A*, vol. 96, no. 5, p. 053407, Nov. 2017, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.96.053407.
- [31] I. A. Ivanov and A. S. Kheifets, “Angle-dependent time delay in two-color XUV+IR photoemission of He and Ne,” *Physical Review A*, vol. 96, no. 1, p. 013408, Jul. 2017, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.96.013408.
- [32] A. W. Bray, F. Naseem, and A. S. Kheifets, “Photoionization of Xe and Xe@C60 from the 4d shell in RABBITT fields,” *Physical Review A*, vol. 98, no. 4, p. 043427, Oct. 2018, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.98.043427.
- [33] S. Banerjee, P. C. Deshmukh, V. K. Dolmatov, S. T. Manson, and A. S. Kheifets, “Strong dependence of photoionization time delay on energy and angle in the neighborhood of Fano resonances,” *Physical Review A*, vol. 99, no. 1, p. 013416, Jan. 2019, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.99.013416.
- [34] C. Cirelli, C. Marante, S. Heuser, C. L. M. Petersson, Á. J. J. Galán, L. Argenti, S. Zhong, D. Busto, M. Isinger, S. Nandi, S. Maclot, L. Rading, P. Johnsson, M. Gisselbrecht, M. Lucchini, L. Gallmann, J. M. Dahlström, E. Lindroth, A. L’Huillier, F. Martín, and U. Keller, “Anisotropic photoemission time delays close to a Fano resonance,” *Nature Communications*, vol. 9, no. 1, p. 955, 2018, ISSN: 20411723. DOI: 10.1038/s41467-018-03009-1.
- [35] M. Shapiro and P. Brumer, *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes*. Wiley Interscience, 2003, ISBN: 9780471241843.
- [36] V. Lyamayev, Y. Ovcharenko, R. Katzy, M. Devetta, L. Bruder, A. LaForge, M. Mudrich, U. Person, F. Stienkemeier, M. Krikunova, T. Möller, P. Piseri, L. Avaldi, M. Coreno, P. O’Keeffe, P. Bolognesi, M. Alagia, A. Kivimäki, M. D. Fraia, N. B. Brauer, M. Drabbels, T. Mazza, S. Stranges, P. Finetti, C. Grazioli, O. Plekan, R. Richter, K. C. Prince, and C. Callegari, “A modular end-station for atomic, molecular, and cluster science at the low density matter beamline of FERMI@Elettra,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 46, no. 16, p. 164007, Aug. 2013, ISSN: 0953-4075. DOI: 10.1088/0953-4075/46/16/164007.
- [37] C. Svetina, C. Grazioli, N. Mahne, L. Raimondi, C. Fava, M. Zangrando, S. Gerusina, M. Alagia, L. Avaldi, G. Cautero, M. de Simone, M. Devetta, M. Di Fraia, M. Drabbels, V. Feyer, P. Finetti, R.

- Katzy, A. Kivimäki, V. Lyamayev, T. Mazza, A. Moise, T. Möller, P. O’Keeffe, Y. Ovcharenko, P. Piseri, O. Plekan, K. C. Prince, R. Sergo, F. Stienkemeier, S. Stranges, M. Coreno, and C. Callegari, “The Low Density Matter (LDM) beamline at FERMI: optical layout and first commissioning,” *Journal of Synchrotron Radiation*, vol. 22, no. 3, pp. 538–543, May 2015, ISSN: 1600-5775. DOI: 10.1107/S1600577515005743.
- [38] M. Zangrando, D. Cocco, C. Fava, S. Gerusina, R. Gobessi, N. Mahne, E. Mazzucco, L. Raimondi, L. Rumiz, and C. Svetina, “Recent results of PADReS, the Photon Analysis Delivery and REduction System, from the FERMI FEL commissioning and user operations,” *Journal of Synchrotron Radiation*, vol. 22, no. 3, pp. 565–570, May 2015, ISSN: 1600-5775. DOI: 10.1107/S1600577515004580.
- [39] M. Di Fraia, O. Plekan, C. Callegari, K. C. Prince, L. Giannessi, E. Allaria, L. Badano, G. De Ninno, M. Trovò, B. Diviacco, D. Gauthier, N. Mirian, G. Penco, P. R. Ribič, S. Spampinati, C. Spezzani, G. Gaio, Y. Orimo, O. Tugs, T. Sato, K. L. Ishikawa, P. A. Carpeggiani, T. Csizmadia, M. Füle, G. Sansone, P. Kumar Maroju, A. D’Elia, T. Mazza, M. Meyer, E. V. Gryzlova, A. N. Grum-Grzhimailo, D. You, and K. Ueda, “Complete Characterization of Phase and Amplitude of Bichromatic Extreme Ultraviolet Light,” *Physical Review Letters*, vol. 123, no. 21, p. 213904, Nov. 2019, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.123.213904.
- [40] V. Dribinski, A. Ossadtchi, V. A. Mandelshtam, and H. Reisler, “Reconstruction of Abel-transformable images: The Gaussian basis-set expansion Abel transform method,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 73, no. 7, pp. 2634–2642, Jul. 2002, ISSN: 0034-6748. DOI: 10.1063/1.1482156.
- [41] D. You, K. Ueda, E. V. Gryzlova, A. N. Grum-Grzhimailo, M. M. Popova, E. I. Staroselskaya, O. Tugs, Y. Orimo, T. Sato, K. L. Ishikawa, P. A. Carpeggiani, T. Csizmadia, M. Füle, G. Sansone, P. K. Maroju, A. D’Elia, T. Mazza, M. Meyer, C. Callegari, M. Di Fraia, O. Plekan, R. Richter, L. Giannessi, E. Allaria, G. De Ninno, M. Trovò, L. Badano, B. Diviacco, D. Gauthier, N. Mirian, G. Penco, P. R. Ribič, S. Spampinati, C. Spezzani, G. Gaio, and K. C. Prince, “A new quantum clock for measuring photoemission delay times,” Jul. 2019, submitted for publication. arXiv: 1907.13605.
- [42] E. V. Gryzlova, A. N. Grum-Grzhimailo, E. I. Staroselskaya, N. Douguet, and K. Bartschat, “Quantum coherent control of the photoelectron angular distribution in bichromatic-field ionization of atomic neon,” *Physical Review A*, vol. 97, no. 1, p. 013420, Jan. 2018, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.97.013420.
- [43] Y. Orimo, T. Sato, and K. L. Ishikawa, “Application of the time-dependent surface flux method to the time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method,” *Physical Review A*, vol. 100, no. 1, p. 013419, Jul. 2019, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.100.013419.
- [44] H. Wei, T. Morishita, and C. D. Lin, “Critical evaluation of attosecond time delays retrieved from photoelectron streaking measurements,” *Physical Review A*, vol. 93, no. 5, p. 053412, May 2016, ISSN: 2469-9926. DOI: 10.1103/PhysRevA.93.053412.
- [45] M. Huppert, I. Jordan, D. Baykusheva, A. von Conta, and H. J. Wörner, “Attosecond Delays in Molecular Photoionization,” *Physical Review Letters*, vol. 117, no. 9, p. 093001, Aug. 2016, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.093001.

- [46] L. Meitner, “Über die Entstehung der β -Strahl-Spektren radioaktiver Substanzen,” *Zeitschrift für Physik*, vol. 9, no. 1, pp. 131–144, Dec. 1922, ISSN: 14346001. DOI: 10.1007/BF01326962.
- [47] P. Auger, “Sur les rayons β secondaires produits dans gaz par des rayons X,” *C.R.a.S.*, vol. 177, pp. 169–171, 1923.
- [48] B. Cooper and V. Averbukh, “Single-Photon Laser-Enabled Auger Spectroscopy for Measuring Attosecond Electron-Hole Dynamics,” *Physical Review Letters*, vol. 111, no. 8, p. 083004, Aug. 2013, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.111.083004.
- [49] D. Iablonskyi, K. Ueda, K. L. Ishikawa, A. S. Kheifets, P. Carpeggiani, M. Reduzzi, H. Ahmadi, A. Comby, G. Sansone, T. Csizmadia, S. Kuehn, E. Ovcharenko, T. Mazza, M. Meyer, A. Fischer, C. Callegari, O. Plekan, P. Finetti, E. Allaria, E. Ferrari, E. Roussel, D. Gauthier, L. Giannessi, and K. C. Prince, “Observation and Control of Laser-Enabled Auger Decay,” *Physical Review Letters*, vol. 119, no. 7, p. 073203, Aug. 2017, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.119.073203.
- [50] P. Ranitovic, X. M. Tong, C. W. Hogle, X. Zhou, Y. Liu, N. Toshima, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Laser-Enabled Auger Decay in Rare-Gas Atoms,” *Physical Review Letters*, vol. 106, no. 5, p. 053002, Jan. 2011, ISSN: 0031-9007. DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.053002.
- [51] X. M. Tong, P. Ranitovic, C. W. Hogle, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and N. Toshima, “Theory and experiment on laser-enabled inner-valence Auger decay of rare-gas atoms,” *Physical Review A*, vol. 84, no. 1, p. 013405, Jul. 2011, ISSN: 1050-2947. DOI: 10.1103/PhysRevA.84.013405.
- [52] C. Svetina, D. Cocco, N. Mahne, L. Raimondi, E. Ferrari, and M. Zangrando, “PRESTO, the on-line photon energy spectrometer at FERMI: design, features and commissioning results,” *Journal of Synchrotron Radiation*, vol. 23, no. 1, pp. 35–42, Jan. 2016, ISSN: 1600-5775. DOI: 10.1107/S1600577515021116.
- [53] A. Kramida, Y. Ralchenko, J. Reader, and The NIST ASD Team. (2019). NIST Atomic Spectra Database, [Online]. Available: <https://physics.nist.gov/asd>.
- [54] J. Bizau and F. Wuilleumier, “Redetermination of absolute partial photoionization cross sections of He and Ne atoms between 20 and 300 eV photon energy,” *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, vol. 71, no. 3, pp. 205–224, Apr. 1995, ISSN: 03682048. DOI: 10.1016/0368-2048(94)02268-2.
- [55] D. You, K. Ueda, M. Ruberti, K. L. Ishikawa, P. A. Carpeggiani, T. Csizmadia, L. G. Oldal, H. N G, G. Sansone, P. K. Maroju, K. Kooser, C. Callegari, M. D. Fraia, O. Plekan, L. Giannessi, E. Allaria, G. D. Ninno, M. Trovò, L. Badano, B. Diviacco, D. Gauthier, N. Mirian, G. Penco, P. R. Ribič, S. Spampinati, C. Spezzani, S. D. Mitri, G. Gaio, and K. C. Prince, “A detailed investigation of single-photon laser enabled Auger decay in neon,” *New Journal of Physics*, vol. 21, no. 11, p. 113036, Nov. 2019, ISSN: 1367-2630. DOI: 10.1088/1367-2630/ab520d.

謝辞

- 東京大学
 - Oyunbileg Tugs
 - 織茂悠貴
 - 佐藤健
 - 石川顕一
- Moscow State University
 - Elena V. Gryzlova
 - Alexei N. Grum-Grzhimailo
 - Maria M. Popova
 - Ekaterina I. Staroselskaya
- Imperial College London
 - Marco Ruberti
 - Vitali Averbukh
- TU Wien
 - Paolo Antonio Carpeggiani
- ELI-ALPS
 - Tamás Csizmadia
 - Lénárd Gulyás Oldal
 - Harshitha Nandiga Gopalakrishna
 - Miklós Füle
- University of Freiburg
 - Praveen Kumar Maroju
 - Giuseppe Sansone
- University of Turku
 - Kuno Kooser
- University of Trieste
 - Alessandro D’Elia
- European XFEL
 - Tommaso Mazza
 - Michael Meyer
- ELETTRA
 - Carlo Callegari
 - Michele Di Fraia
 - Oksana Plekan
 - Robert Richter
 - Luca Giannessi
 - Enrico Allaria
 - Giovanni De Ninno
 - Mauro Trovò
 - Laura Badano
 - Bruno Diviacco
 - Giulio Gaio
 - David Gauthier
 - Najmeh Mirian
 - Giuseppe Penco
 - Primož Rebernik Ribič
 - Simone Spampinati
 - Carlo Spezzani
 - Simone Di Mitri
 - Kevin Charles Prince

上記の共同研究者に感謝を申し上げます。本研究は東北大学位プログラム推進機構学際高等研究教育院の支援と、JSPS 科研費 JP19J12870 の助成を受けたものです。