

## 二重光電離過程にあらわれる円二色性

副島 浩一

新潟大学大学院自然科学研究科\*

## Circular Dichroism on Double Photoionization

Kouichi SOEJIMA

Graduate School of Science and Technology, Niigata University

Angular correlation patterns of  $N_5-O_{23}O_{23} \ ^1S_0$  Auger electrons in coincidence with  $4d_{5/2}$  photoelectrons in two-step double photoionization of xenon at 110 eV photon energy and those of two emitted photoelectrons in coincidence with each other in direct double photoionization of helium at 88 eV photon energy have been studied with elliptically polarized photons. Circular dichroism in the angular distribution patterns has been reported in both cases.

## 1. はじめに

近年、高輝度・高円偏光度の光が放射光実験施設で利用することが可能になり、気相実験においても円二色性の研究が注目されるようになってきている。今回は、円偏光を使った He および Xe 原子の二重光電離過程に話題をしばり、これらの過程で生じる 2 つの放出電子間の角度相関、つまり角度・エネルギー分解三重微分断面積 (Triply Differential Cross Section; TDCS) に現れる円二色性について報告する。

この研究の目的は二重光電離過程の反応ダイナミックスを解き明かすことである。特に我々は電子相関に注目している。電子相関に関する研究は、物理学の基本的な問題の一つであるため古くから盛んにおこなわれているが、今だ明確な理論の確立には至っていない。光と原子との相互作用で光電子を同時に二個放出させるためには電子相関の関与が不可欠である。また、連続状態の電子相関は二つの放出光電子の角度相関に直接現われるため、TDCS 測定は大変に重要な手段となる。ただし、二重光電離過程の断面積は非常に小さいため、その研究には強力な光源の出現を待つ必要があった。1993年頃から放射光と電子・電子同時計測法によって、ドイツ、フランスのグループを中心に二重光電離過程における放出光電子間の角度相関の測定が盛んにおこなわれるようになってきた<sup>1,2)</sup>。ただし、ここで用いられた光は直線偏光に限られており、円偏光を利用

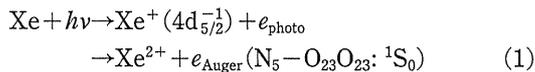
した最初の実験は我々の研究グループが1996年に行った<sup>3)</sup>。

カイラリティーのない球対称な希ガス原子でも、放出光電子のどちらか一方を検出することで、実験的に基準軸 (検出方向) を加えることができるため、放出光電子間の TDCS に円二色性を観測することができる。我々の実験では放出光電子のスピン測定はおこなわないので、この円二色性は、TDCS の右手系での観測と左手系での観測の違いを測定していることになる。そのため測定される右・左回り円偏光による TDCS は、お互いに基準軸に対して鏡面对称になる。また、このことは右回りと左回り円偏光による測定結果の差、つまり円二色性は TDCS の基準軸に対称な成分を含まないことを意味している。これは測定結果の解析を容易にし、解析精度を上げることになる。これは二重光電離過程における円偏光利用の一つの利点である。ここで誤解のないように注意しておくと、直線偏光で実験をおこなおうが、円偏光で実験をおこなおうが、その反応のダイナミックスには違いがない。直線偏光をつかった実験でも、円偏光をつかった場合でも、同じ双極子遷移行列要素に関する情報を得ることができる。ただその見え方、観測される TDCS に違いが現れるのである。例えるなら、同じものを違う角度から見て、その見え方に違いがあるようなものである。直線偏光、円偏光で得られた実験結果はお互いに相補的な関係にあり、二重光電離過程のダイナミックスを探る上でどちらの実験もかかすことので

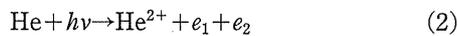
\* 新潟大学大学院自然科学研究科 〒950-2181 新潟市五十嵐二の町8050  
TEL 025-262-6147 FAX 025-263-3961 e-mail soejima@sc.niigata-u.ac.jp

きないものである。

二重光電離過程とは、1つの光子で2つの電子を標的粒子から放出させる反応過程で、①内殻の光電離過程のあとにオーシェ崩壊をおこし最終的に2つの電子を放出させる二段階過程と、②1光子で2つの電子を標的から同時に放出させる直接過程の2つに大別することができる。これらとともに、イオンと二つの電子という終状態が作られるが、まったく別物の反応過程である。本稿では二段階過程の例として Xe 原子に対する以下の反応過程を



また、直接過程の例として He 原子に対する以下の反応過程を



取り上げる。特に、電子相関の効果を探るのに最適な②の過程について詳細に報告する。いずれの場合も我々のグループによって、放出電子の角度相関に円二色性が初めて観測された<sup>4)</sup>。

## 2. 実験方法

実験は高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所放射光研究施設 PF の BL-28A においておこなった。このビームラインについての詳しい説明は他の解説記事<sup>5,6)</sup>を見ていただくとして、ここでは簡単にその特徴だけを述べておく。この BL-28A はヘリカルアンジュレーターに定偏角分光器を備えたビームラインで、円偏光度の高い強力な軟 X 線領域の光を得ることができる。放出電子の角度相関の測定では、TDCS が光のストークス・パラメータに大きく影響されるため、偏光に関する情報を得ることは重要である。TDCS の測定毎に偏光に関する情報も同時に測定するのが最良であるが、我々が TDCS を測定した時には、まだビームラインに偏光解析の準備が整っていなかった。そのため偏光度の測定は本実験ではおこなっていない（現在は、反射型ポリメーターがビームラインに常設されていて、いつでも偏光解析が可能になっている）。そこで、以前木村ら<sup>7)</sup>が多層膜ポリメーターを使って  $h\nu=97$  eV でおこなった偏光解析の結果を採用することにした。光の偏光状態はストークスパラメータで表わされる。ストークスパラメータのうち直線偏光成分を表す  $S_1$  および円偏光成分をあらわす  $S_3$  について彼らの測定結果は以下のとおりである。すなわち、標準モードでは  $S_1=-0.20$ ,  $S_3=+0.95$  となり、楕円偏光の主軸の方向はリング面に対して  $+135^\circ$  である。また左手系モードでは  $S_1=+0.20$ ,  $S_3=-0.95$  となり、楕円偏光の主軸の方向はリング面に対して  $+45^\circ$  である。ここで、電気ベクトルの

回転方向は、光源に相対する観測者から見て時計回りに回転する場合を右回り（標準モード）、反時計回りに回転する場合を左回りと定義している。TDCS の測定をおこなった光のエネルギーは、偏光解析をおこなったエネルギーとは異なるが、これは一次光のピークを使っている限り偏光度はアンジュレーターのギャップ値とは無関係<sup>8)</sup>であることからあまり問題にならないと考えている。

実験装置に関する詳しい記述はすでに他の場所<sup>9)</sup>でおこなっているのので、そちらを見ていただくことにして、ここでは簡単な説明にとどめておく。Figure 1 に示したとおり、実験装置は光の進行方向に垂直な面内で回転できる平行平板型エネルギーアナライザー一台と、その面内に固定された平行平板型エネルギーアナライザー一台からなる。アナライザーの回転角  $\phi$  は、固定アナライザーの検出方向を基準にして、光源に相対する観測者が観測して反時計回りを正にとり、 $80^\circ \leq \phi \leq 270^\circ$  である。電子の検出にはマイクロチャンネルプレート (MCP) をつかい、かつ出口スリットの非分散方向の幅を大きく取る工夫をしている。このことでエネルギー分解能は多少悪くなるが、非分散方向に広がる電子をより多く集めることができ、断面積が小さいために少ない光電子の計数率に対応することができる。また入口、出口スリットの分散方向の幅も計数率をかせぐためにあまりしぼっておらず、ともに 4 mm としている。この設定条件におけるアナライザーの角度およびエネルギー分解能はそれぞれ  $\Delta\phi = \pm 5.3^\circ$ ,  $\Delta E = 0.7$  eV である。

MCP で検出された光電子の信号は Figure 2 に示した回

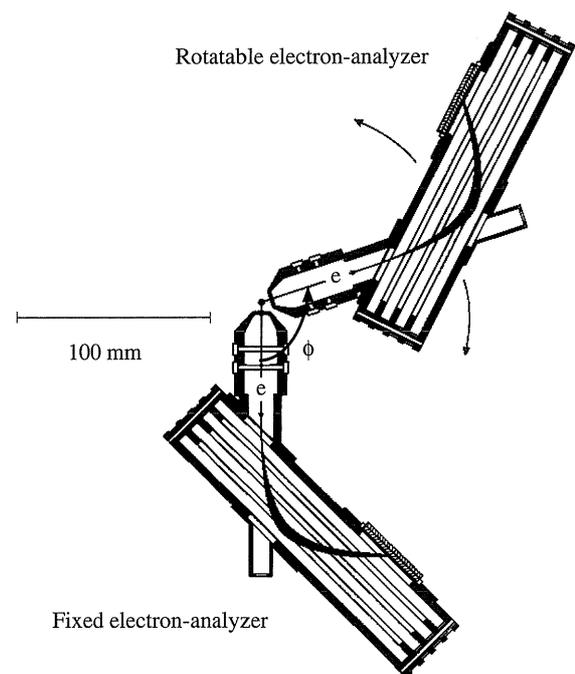


Figure 1. The schematic diagram of experimental apparatus.

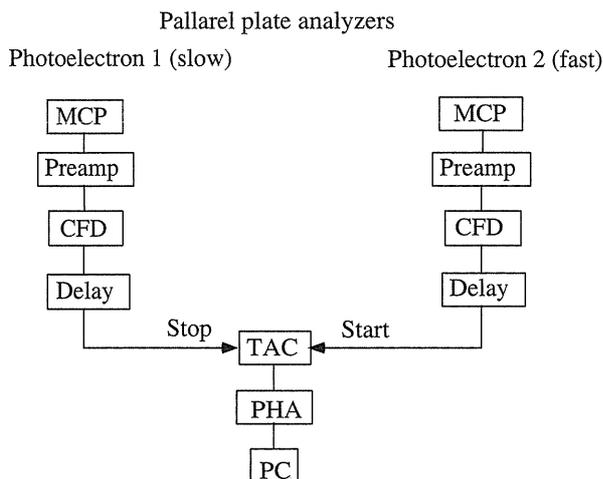


Figure 2. Block diagram of the detection system.

路系によって処理される。プリアンプのタイミング信号を Constant Fraction Discriminator (CFD) に入れノイズ成分を除去したのち Delay generator をとおし、Time to Amplitude Converter (TAC) のスタートおよびストップ入力に入れる。そして、TAC の出力は Pulse Height Analyzer (PHA) で波高分析される。波高分析されたデジタル情報はパソコンにため込まれる。Figure 3 にパソコンにため込まれた時間相関スペクトルの典型的な例を示す。このスペクトルは He の二重光電離過程の TDCS 測定実験をはじめておこなった時に得られたものである。この図を見てわかるように、この時のコインシデンス・レートはあまり良くない。4000秒のため込み時間でコインシデンス信号の最大値が127カウントである。それで、統計誤差を小さくするために長いため込み時間が必要であった(現在はコインシデンス・レートも上がり、30分ほどのため込み時間で十分な統計を得ることができる)。

### 3. 実験結果

#### ① 二段階過程

Xe の  $4d_{5/2}$  電子が光イオン化されたのち  $N_5-O_{23}O_{23} : ^1S_0$  オージェ過程が続いて生じる(1)式で表される Xe の二段階二重光電離過程は、放出電子間の角度相関測定が Kämmering ら<sup>1)</sup>によって初めておこなわれた反応過程である。直線偏光を使った TDCS 測定の結果と他の実験結果を使って、Schmidt らは双極子遷移行列要素の振幅と位相差を決めている。我々はこの反応の TDCS に円二色性があらわれるかどうかを確かめることを目的に、円偏光を使って実験をおこなった<sup>3)</sup>。光のエネルギーは、オージェ電子と光電子の衝突後相互作用 (PCI) が消えるように 110 eV とした。Figure 4(a), (b) にその測定結果を示す。(a) が右回り、(b) が左回り楕円偏光による測定で、コインシデンス信号の強度を極座標にプロットしたものであ

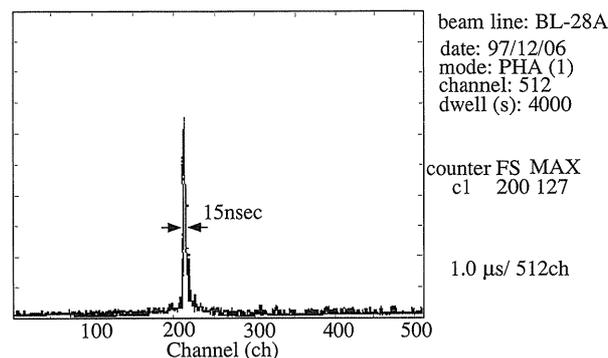
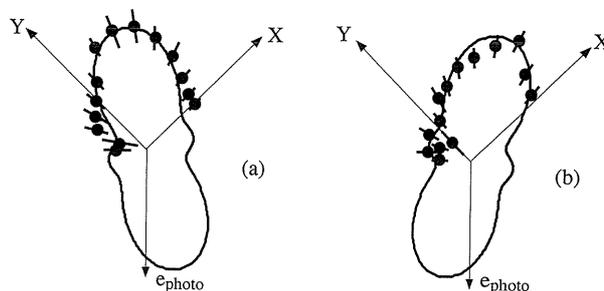


Figure 3. A typical time correlation spectrum of emitted photoelectrons of helium.

Figure 4. The experimental TDCS for two-step double photoionization of xenon with  $S_1 = -0.20$ ,  $S_3 = +0.95$  (a) and  $S_1 = +0.20$ ,  $S_3 = -0.95$  (b).

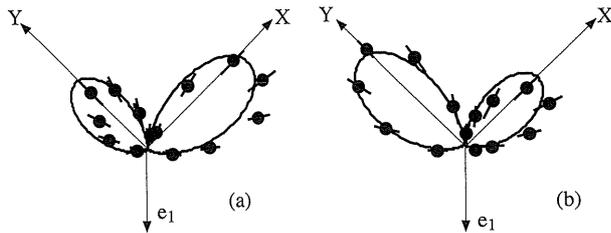
る。つまり、光電子が図中の  $e_{\text{photo}}$  の方向に放出した場合のオージェ電子の角度分布を表している。図中 X, Y 軸は楕円偏光の主軸の方向である。つまり (a) では主軸は Y 軸方向を、(b) では X 軸方向を向いている。図中の実線は解析のところで述べる理論の結果を表している。Figure 4(a), (b) を比較すると、二つの TDCS は光電子の検出方向に関してお互いに鏡面対称になっているのがわかる。また、測定された TDCS は理論計算との一致も良い。これが二段階二重光電離過程の TDCS に現われる円二色性の一例である。

#### ② 直接過程

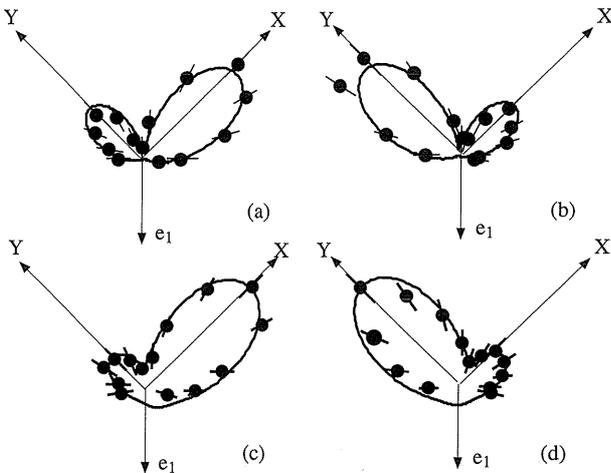
(2)式で表される He の二重電離過程は二段階過程とは根本的に異なる反応過程である。それは、一光子で二つの電子が同時に放出される反応で、電子相関によって引き起こされる過程である。特に He 標的の場合、反応後は裸の核  $He^{2+}$  が作るクーロン場中を運動する二つの自由電子という、連続状態の電子相関を調べる対象としては最も単純な状態がつくられる。そのため、実験的<sup>10,11)</sup>にも理論的<sup>12,13)</sup>にもこの反応過程の研究は精力的におこなわれている。我々は円偏光をつかい、直線偏光の実験とは異なる切り口でこの反応過程の研究を進めている。ここでは、光のエネルギーを 88 eV とした場合の実験結果について解説す

る。この場合、二つの放出光電子が余剰エネルギー  $E_{\text{excess}} = 88 \text{ eV} - 79 \text{ eV} = 9 \text{ eV}$  を分け合うことになる。ここでは等分配 ( $E_1 = 4.5 \text{ eV}, E_2 = 4.5 \text{ eV}$ ) する場合、1 : 2 ( $E_1 = 3 \text{ eV}, E_2 = 6 \text{ eV}$ ) に分配する場合、1 : 8 ( $E_1 = 1 \text{ eV}, E_2 = 8 \text{ eV}$ ) に分配する場合について報告する。

**Figure 5** (a), (b) に余剰エネルギーを等分配した場合の TDCS を示す。**Figure 4** と同様に、(a) が右回り、(b) が左回り楕円偏光による結果である。図中  $e_1$  方向で光電子  $e_1$  を検出したときのもう一つの放出光電子  $e_2$  の角度分布を表している。図中の実線は最小二乗法によるデータフィッティングの結果をあらわす。この図を見て気が付くことは、まず TDCS が大きさの違う二つのループから成っていることである。また、二つの TDCS は  $e_1$  方向に関してお互いに対称になっていることもわかる。クーロン反発によってお互い反対の方向に放出するであろうという直感的予測に反して、 $e_1$  方向と反対方向には  $e_2$  が放出していない。**Figure 6** (a), (b) は余剰エネルギーを 1 : 2 に分配した場合の TDCS を、(c), (d) は 1 : 8 に分配した場合の TDCS をあらわす。図中の実線は **Fig. 5** 同様、最小二乗



**Figure 5.** The experimental TDCS of helium double photoionization under the equal energy sharing of  $E_1 = E_2 = 4.5 \text{ eV}$ ; (a)  $S_1 = -0.20, S_3 = +0.95$ , (b)  $S_1 = +0.20, S_3 = -0.95$ . The full curves present the best-fitted curves.



**Figure 6.** The experimental TDCS of helium double photoionization under the equal energy sharing of  $E_1 = 3 \text{ eV}$  and  $E_2 = 6 \text{ eV}$ ; (a)  $S_1 = -0.20, S_3 = +0.95$ , (b)  $S_1 = -0.20, S_3 = +0.95$ , and of  $E_1 = 1 \text{ eV}$  and  $E_2 = 8 \text{ eV}$ ; (c)  $S_1 = -0.20, S_3 = +0.95$ , (d)  $S_1 = -0.20, S_3 = +0.95$ . The full curves present the best-fitted curves.

法によるデータフィッティングの結果をしめす。余剰エネルギーをアンバランスに分配する場合も、TDCS は大小二つのループから成っている。ただし、分配のアンバランスが大きくなるにしたがって二つのループの大きさの違いも大きくなってくる。また、1 : 8 に余剰エネルギーを分配する場合では、 $e_1$  と反対方向にでる  $e_2$  の信号強度が等分配や 1 : 2 分配の場合に比べてはるかに大きくなってくる。

#### 4. 実験結果の解釈

三章で見たように TDCS は、反応のダイナミクスによってその形を大きく変え、また、偏光状態や一つの電子の検出方向などの幾何学的な実験条件によってもその形を大きく変える。ここで報告する円二色性は、右・左回り円偏光という入射光の偏光状態の違いによるものなので、その TDCS の変化はもちろん幾何学的な条件に由来している。任意の偏光状態の光に対して TDCS は、偏光に無関係な成分 ( $\Sigma$ ) と直線偏光に関する成分 (LD) および円偏光に関する成分 (CD) の和として次のように書くことができる。

$$\begin{aligned} \text{TDCS} = & \frac{1}{2} (\text{TDCS}_x + \text{TDCS}_y) + \frac{S_1}{2} (\text{TDCS}_x - \text{TDCS}_y) \\ & + \frac{S_3}{2} (\text{TDCS}_R - \text{TDCS}_L) \end{aligned} \quad (3)$$

(3)式は二段階過程、直接過程ともに成り立つ。以下にそれぞれの場合について、実験結果の具体的な解析の手続きを述べる。

##### ① 二段階過程

二段階過程の近似では、内殻の光電離過程で生じる中間状態 (一段階目) が双極子遷移行列要素で書け、オージェ崩壊過程 (二段階目) で生じる終状態がオージェ崩壊行列要素で書け、反応過程全体はこれらの積で表すことができる。つまり、二段階過程の TDCS では、光電子をある角度で観測することでアライメントしたイオンからオージェ電子がどのように放出するかを見ていることになる。直線偏光、円偏光の場合の TDCS は光電子の放出角  $\phi_{\text{photo}}$  とオージェ電子の放出角  $\phi_{\text{Auger}}$  を使って以下のように表すことができる<sup>14)</sup>。

(直線偏光)

$$\begin{aligned} \text{TDCS}_x = & A_0 + A_2(\phi_{\text{photo}}) \cos 2\phi_{\text{Auger}} + A_4(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \cos 4\phi_{\text{Auger}} + B_2(\phi_{\text{photo}}) \sin 2\phi_{\text{Auger}} \\ & + B_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}} \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \text{TDCS}_y = & A_0 - A_2(\phi_{\text{photo}}) (-\cos 2\phi_{\text{Auger}}) + A_4(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \cos 4\phi_{\text{Auger}} + B_2(\phi_{\text{photo}}) (-\sin 2\phi_{\text{Auger}}) \\ & - B_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}} \end{aligned} \quad (5)$$

(円偏光)

$$\begin{aligned} \text{TDCS}_R = & a_0 + a_2(\phi_{\text{photo}}) \cos 2\phi_{\text{Auger}} + a_4(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \cos 4\phi_{\text{Auger}} - (b_2(\phi_{\text{photo}}) \sin 2\phi_{\text{Auger}} \\ & + b_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}}) \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \text{TDCS}_L = & a_0 + a_2(\phi_{\text{photo}}) \cos 2\phi_{\text{Auger}} + a_4(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \cos 4\phi_{\text{Auger}} + (b_2(\phi_{\text{photo}}) \sin 2\phi_{\text{Auger}} \\ & + b_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}}) \end{aligned} \quad (7)$$

三角関数の前の係数は、光電子の放出角  $\phi_{\text{photo}}$ ,  $4d_{5/2}$  光電離過程の双極子遷移行列要素および  $N_5\text{-O}_{23}\text{O}_{23}$  オージェ崩壊過程の非対称係数で決定される。

問題を単純化させるために、まず入射光が完全円偏光 ( $S_3 = \pm 1$ ) である場合について考える。この場合、(3) と (6), (7) 式から TDCS は次の様になる<sup>14)</sup>。

$$\begin{aligned} \text{TDCS} = & A_0 + A_2(\phi_{\text{photo}}) \cos 2\phi_{\text{Auger}} + A_4(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \cos 4\phi_{\text{Auger}} + S_3(b_2(\phi_{\text{photo}}) \sin 2\phi_{\text{Auger}} \\ & + b_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}}) \end{aligned} \quad (8)$$

$\sin$  関数の前の符号は、右回り円偏光の場合  $S_3 = +1$  なので (+), 左回り円偏光では  $S_3 = -1$  なので (-) となる。つまり、円二色性は (8) 式の最後の 2 つの  $\sin$  関数だけで表されることになる。これは、前述したように右・左回り円偏光による TDCS の差つまり円二色性を作ることによって、基準軸に対称な成分 (偶関数である  $\cos$  関数に対応) が消され、反対称な成分 (奇関数である  $\sin$  関数に対応) のみが残ることを表している。また、 $\phi_{\text{Auger}}$  は光電子の検出方向 (**Fig. 4**  $e_{\text{photo}}$  方向) が基準であることを思い出すと、(4) 式から **Fig. 4** (a), (b) がお互いにこの基準軸に対して鏡対称になることはすぐに理解できる。

次に実際の偏光状態、 $S_1 = \pm 0.2$ ,  $S_3 = \mp 0.95$ , の場合を考える。この場合は (3) 式に (4)–(7) 式を代入し、以下の様に TDCS を表すことができる<sup>15)</sup>。

$$\begin{aligned} \text{TDCS} = & A_0 + A_2(\phi_{\text{photo}}) \cos 2\phi_{\text{Auger}} + A_4(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \cos 4\phi_{\text{Auger}} + S_1(B_2(\phi_{\text{photo}}) \sin 2\phi_{\text{Auger}} \\ & + B_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}}) + S_3(b_2(\phi_{\text{photo}}) \\ & \times \sin 2\phi_{\text{Auger}} + b_4(\phi_{\text{photo}}) \sin 4\phi_{\text{Auger}}) \end{aligned} \quad (9)$$

$4d_{5/2}$  光電離過程の双極子遷移行列要素、 $N_5\text{-O}_{23}\text{O}_{23}$  オージェ崩壊過程の非対称係数およびストークスパラメーターがわかれば (9) 式から TDCS を計算することができる。 $4d_{5/2}$  光電離過程は、 $4d_{5/2} \rightarrow \epsilon f_{7/2}$ ,  $4d_{5/2} \rightarrow \epsilon f_{5/2}$ ,  $4d_{5/2} \rightarrow \epsilon p_{3/2}$  各チャンネルに対応して双極子遷移行列要素  $D_+$ ,  $D_0$ ,  $D_-$  で記述できる。これら三つの双極子遷移行列要素は理論的に計算されており<sup>16)</sup>、またオージェ崩壊非対称係数は幾何学的に求めることができる。これらの結果を使って、三角関数の前の係数を求め、(9) 式を使って得られた TDCS が **Fig. 4** に実線で表されている。理論計算と実験結果の

一致は良い、これは理論的に計算された双極子遷移行列要素が良い値であること、つまり理論計算の正しさを証明していることになる。

## ② 直接過程

直接過程では、TDCS をダイナミックスに関する部分と幾何学に関する部分とに分離ができる。また、ダイナミックス部分が放出電子間の相対角 ( $\phi_1 - \phi_2$ ) の関数になっていることが特徴である。この反応過程を調べる目的は、測定した TDCS から電子相関 (角度相関) に関する情報を得ることであった。光の偏光や装置のセットアップで決まる幾何学に関する部分の関数は既知であるので、実験的に求めた TDCS から未知のダイナミックス部分を相対角 ( $\phi_1 - \phi_2$ ) の関数として導くことが可能となる。そこでまず、ダイナミカルな成分と幾何学成分の分離をおこなっていく。これは、直線偏光、円偏光の場合で以下のようになる<sup>17)</sup>。

(直線偏光)

$$\text{TDCS}_x = |M_g(\cos \phi_1 + \cos \phi_2) + M_u(\cos \phi_1 - \cos \phi_2)|^2 \quad (10)$$

$$\text{TDCS}_y = |M_g(\sin \phi_1 + \sin \phi_2) + M_u(\sin \phi_1 - \sin \phi_2)|^2 \quad (11)$$

(円偏光)

$$\text{TDCS}_R = |M_g(e^{i\phi_1} + e^{i\phi_2}) + M_u(e^{i\phi_1} - e^{i\phi_2})|^2 \quad (12)$$

$$\text{TDCS}_L = |M_g(e^{i\phi_1} + e^{i\phi_2}) - M_u(e^{i\phi_1} - e^{i\phi_2})|^2 \quad (13)$$

$\phi_1$  および  $\phi_2$  は X 軸からの光電子の放出角を表す。 $\text{TDCS}_{x,y}$  は X 軸、Y 軸に向いている直線偏光の TDCS であり、また、 $\text{TDCS}_{R,L}$  は右・左回り円偏光による TDCS を表している。式中  $M_{g,u}$  は反応のダイナミックスを表し、放出電子の運動エネルギー  $E_1, E_2$  および相対角 ( $\phi_1 - \phi_2 = \phi_{12}$ ) の関数である。この部分がまさしく電子相関の効果を示すものである。 $g, u$  はそれぞれ、放出光電子の運動エネルギー  $E_1, E_2$  の交換に対して対称、反対称を表す。つまり

$$M_g(E_1, E_2, \phi_{12}) = M_g(E_2, E_1, \phi_{12}) \quad (14)$$

$$M_u(E_1, E_2, \phi_{12}) = -M_u(E_2, E_1, \phi_{12}) \quad (15)$$

となる。直接過程は二段階過程とは異なり、放出電子はまったく同等である。エネルギー的に区別できてもその電子を 1, 2 と番号付けすることはできない。そのため終状態を表す波動関数には、二つの束縛電子の状態をそれぞれの電子の波動関数で作る時におこなう反対称化に似た作業が必要となり、 $M_u$  という成分が生じる。よって放出電子の運動エネルギーが等しく (余剰エネルギー等分配の場合) 完全に区別できない場合には、この  $M_u$  成分は消える。

観測される TDCS は (3) 式に (10)–(13) 式を代入し、かつ円偏光の場合に一般的にもちいられる **Fig. 4, 5, 6** に示してある座標の定義、つまり光の進行方向 (図では紙面

から手前の方向)をZ軸にとり、直線偏光の向きをX軸にとる( $S_1$ の符号は、主軸がX軸方向なら正となりY軸方向なら負となる)を使うと次の式で表される。

$$\begin{aligned} \text{TDCS} = & \{(1 + \cos \phi) |M_g|^2 + (1 - \cos \phi) |M_u|^2\} \\ & + S_1 \sin \phi \{(1 - \cos \phi) |M_u|^2 - (1 + \cos \phi) |M_g|^2 \\ & - 2 \cos \phi \operatorname{Re}(M_g M_u^*)\} - S_3 \sin \phi \{2 \operatorname{Im}(M_g^* M_u)\} \end{aligned} \quad (16)$$

ただし、 $\phi$ は放出電子間の相対角度 $|\phi_1 - \phi_2|$ である。この(16)式をつかって測定結果の考察をおこなっていく。

(余剰エネルギー等分配の場合)

この場合は、前述したように $M_u = 0$ となるためTDCSの表式は次のように簡単な形になる。

$$\text{TDCS} = (1 + \cos \phi) (1 - S_1 \sin \phi) |M_g|^2 \quad (17)$$

(17)式をみてすぐ気が付くのは、円偏光成分を表す $S_3$ が入っていないことである。つまりFig. 4(a), (b)の違いは右・左回り円偏光の違いによるものではないということである。この違いは $S_1$ の符号の違い、つまり主軸の傾きが右回りでは(水平から測って) $+45^\circ$ 、左回りでは $+135^\circ$ になることが原因である。このような直交する直線偏光成分によるTDCSの違い(TDCS<sub>x</sub>-TDCS<sub>y</sub>)は、円二色性(TDCS<sub>R</sub>-TDCS<sub>L</sub>)に対して“線二色性”と呼ばれている。

(余剰エネルギー1:2, 1:8分配の場合)

ここでは、直接過程における電子相関の効果について調べる。 $M_g$ と $M_u$ は理論的研究からそれぞれ次のような関数形となる<sup>12,18)</sup>。

$$|M_g|^2 = A_0 + A_1 \exp[-4 \ln 2 (180^\circ - \phi)^2 / \Gamma^2] \quad (18)$$

$$\begin{aligned} |M_u|^2 = & B_0 + B_1 \cos \phi + B_2 \cos^2 \phi + B_3 \cos^3 \phi \\ & + B_4 \cos^4 \phi \end{aligned} \quad (19)$$

(18), (19)式を(16)式に代入して、測定したTDCSへ未定係数 $A_i, B_i$ をフリーパラメータにしたデータフィッティングをおこなえば、 $|M_g|^2, |M_u|^2$ を決定することができる。しかし(16)式が複雑であるため、実際にはこのデータフィッティングはおこなえない(精度が非常に悪い)。そこで実験的に得られた右回り楕円偏光によるTDCS( $S_1 = -0.2, S_3 = +0.95$ )と左回り楕円偏光によるTDCS( $S_1 = +0.2, S_3 = -0.95$ )の和TDCS(sum)をつくる。

$$\text{TDCS}(\text{sum}) = 2\{(1 + \cos \phi) |M_g|^2 + (1 - \cos \phi) |M_u|^2\} \quad (20)$$

TDCS(sum)は簡単な式で表すことができるため、(18), (19)式を(20)式に代入し、実験的に得られたTDCS

(sum)に対して未定係数 $A_i, B_i$ をフリーパラメータにしたデータフィッティングをおこなえば $|M_g|^2, |M_u|^2$ を精度よく決定することができる。このような工夫ができるのは、右・左回り楕円偏光による測定という二つの独立した実験ができるため、二重光電離過程のTDCS測定に(楕)円偏光をつかう大きな利点である。求めた $|M_g|^2, |M_u|^2$ をFig. 7(a), (b)に示す。(a)が1:2, (b)が1:8の場合である。 $|M_g|^2, |M_u|^2$ とも $\phi = 180^\circ$ で最大値をとっている。これは電子相関の効果により放出電子がお互いに反対方向に進みやすいことを示している。これはクーロン反発によって電子がお互い避け合うという直感的な予測と一致している。また、 $|M_u|^2$ は $|M_g|^2$ に比べて非常に小さい。しかし、 $|M_u|^2$ なしでは円二色性が生じない。つまり、 $|M_u|^2$ は、その値自体は小さいがこの反応過程において、とても重要な役割を演じていることになる。円二色性は(16)式の第三項目から分かるように、次のように表される。

$$\text{CD} = 4S_3 \sin \phi \{|M_g| |M_u| \sin(\delta_u - \delta_g)\} \quad (21)$$

つまり、CDの大きさを決めているのは $M_g, M_u$ の大きさとそれらの位相差である。余剰エネルギー分配のアンバランスさを増すと、 $|M_u|^2$ は大きくなる。では、位相差はどうだろうか？ それを確かめるために位相差 $(\delta_u - \delta_g)$ をフリーパラメータとして、1:2, 1:8余剰エネルギー分配のTDCSに対してデータフィッティングをおこない、位相差 $(\delta_u - \delta_g)$ を決定する。位相差 $(\delta_u - \delta_g)$ は、1:2で $(\delta_u - \delta_g) = 200^\circ \pm 12^\circ$ 、1:8で $(\delta_u - \delta_g) = 199^\circ \pm 13^\circ$ となった。つまり、我々の解析においては、位相差 $(\delta_u - \delta_g)$ は余剰エネルギー分配比にほとんど依存しない。このことから、1:2より1:8のTDCSに円二色性が強くあらわれる原因は、 $|M_u|$ が大きくなったためであると結論づけられる。

最後に純粋な(直線偏光の寄与が入っていない)円二色性を求めて終わりにする。これまでの解析により $|M_g|, |M_u|$ およびその位相差 $(\delta_u - \delta_g)$ を導き出すことができ

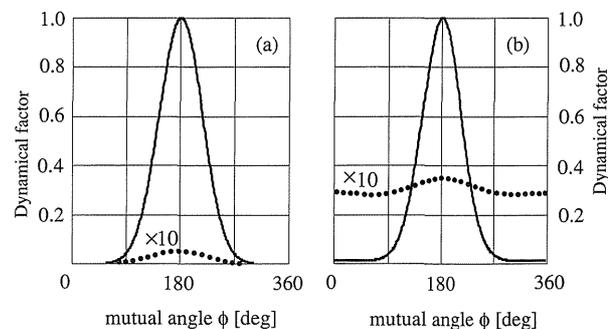


Figure 7. Full and dotted curves present the dipole amplitudes  $|M_g|^2$  and  $10|M_u|^2$ , respectively. (a): 1:2 energy sharing, (b) 1:8 energy sharing.

た。これらが判明すると、(16)式の第一項(偏光に無関係な成分  $\Sigma$ )、第二項(直線偏光成分 LD) および第三項(円偏光成分 CD) をそれぞれ計算することができ、測定した TDCS に対するそれぞれ ( $\Sigma$ , LD, CD) の寄与を見ることができる。Fig. 8(a), (b) にその結果を示す。(a) が 1:2, (b) が 1:8 余剰エネルギー分配の場合である。これを見てまず驚くのが、ストークスパラメーター  $|S_1| = 0.2$  が  $|S_3| = 0.95$  より 1/5 ちかく小さいにもかかわらず、LD の寄与は 1:2 の場合は CD より大きく、また 1:8 の場合でも CD とほぼ同程度であることである。これは、我々に偏光解析の大切さを教え、かつ右・左回り楕円偏光による TDCS の違いをそのまま円二色性に結びつける事がとても危険であるという教訓を与える。円二色性であると思った現象がじつは線二色性であったという可能性がおおいにあるわけである。Figure 9(a), (b) に測定した TDCS から直線偏光成分を差し引いて得られる“純粋な”円二色性を示す。図中の実線はデータフィッティングの結果を表している。この図から、1:2 より 1:8 の場合の方が円二色性が強くあらわれることがはっきりとわかる。最後にもう一度、これが(16)式のなかの  $M_g$  と  $M_u$  の干渉項  $\text{Im}(M_u M_g^*)$  によって生じること、つまり余剰エネルギーをアンバランスに分配する場合の二重光電離過程では、 $M_u$  が重要な役割を演じていることを注意しておく。

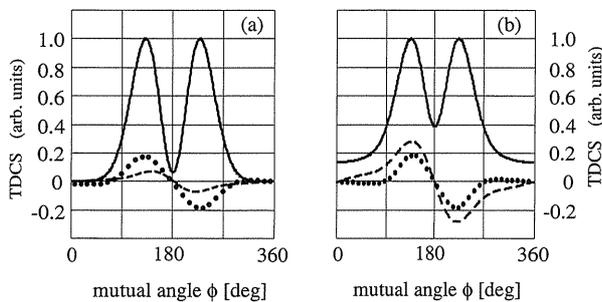


Figure 8. The contributions from the first term (full curves), the second term (dotted curves) and the third term (dashed curves) of Eq. (16) for  $S_1 = -0.20$ ,  $S_3 = +0.95$ . (a): 1:2 energy sharing, (b): 1:8 energy sharing. For the case of  $S_1 = +0.20$ ,  $S_3 = -0.95$ , the sign of the contributions from the second and third terms are inverted.

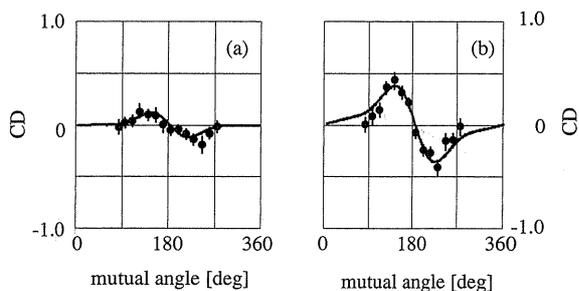


Figure 9. “Pure” circular dichroism of TDCS. (a): 1:2 energy sharing, (b): 1:8 energy sharing.

## 5. まとめ

Xe の二段階二重光電離過程および He の直接二重光電離過程を例にとって、二重光電離過程研究に対する円偏光利用実験の有用性を述べてきた。直線偏光とは異なる切り口で反応過程のダイナミクスが見られることがおわかりいただけたでしょうか？ それをはっきり表しているのが He の二重光電離過程の実験で得られる(16)式である。完全直線偏光なら  $\Sigma + \text{LD}$  が観測され、完全円偏光なら  $\Sigma + \text{CD}$  が観測されることになる。さらに直線偏光実験にはない次のような利点がある。まず、(16)式の CD の項が LD の項に比べて  $M_g$  と  $M_u$  の干渉項  $\text{Im}(M_u M_g^*)$  しかない簡単な形をしていることである。このため、完全円偏光を使った実験の解析は完全直線偏光の場合に比べてはるかに容易である。また、 $M_g$  と  $M_u$  の位相差 ( $\delta_u - \delta_g$ ) の TDCS に対する寄与が、直線偏光の場合は  $\cos$  関数 ( $-|M_g||M_u| \cos(\delta_u - \delta_g)$ ) であるのに対して円偏光では  $\sin$  関数 ( $|M_g||M_u| \sin(\delta_u - \delta_g)$ ) となり、異なることにも注意が必要だ。位相差 ( $\delta_u - \delta_g$ ) は上述したように  $180^\circ$  近傍の値をとるので、 $\sin$  関数の方が  $\cos$  関数よりも位相差 ( $\delta_u - \delta_g$ ) に敏感であることがわかる。つまり円偏光で得られた TDCS の方が位相差 ( $\delta_u - \delta_g$ ) に大きく影響を受け、位相差に関するより詳細な情報を得ることができる。また、右・左回り円偏光による TDCS という独立した二つの測定結果を得られることも大きな利点である。これは、実験結果の解析の幅を広げることにつながり、とても重要である。

以上、円偏光利用の利点をまとめてみた。このように二重光電離過程研究に対して円偏光は非常に強力な武器となる。ここで述べた二重光電離過程に対する研究方法は、電子相関問題を理解するための新しい扉を開けたと言っても過言ではない。今後標的原子を変え、この実験解析手法を使い、積極的に二重光電離過程の研究をおこなっていく予定である。

最後に、この研究は新潟大・檀上先生、都立大・奥野先生、物構研・柳下先生との共同研究としておこなわれたものであることを付記して、諸先生の協力に感謝したい。特に柳下先生には有益な助言と議論をしていただき深く感謝している。

## 参考文献

- 1) B. Kämmerling and V. Schmidt: Phys. Rev. Lett. **67**, 1848 (1991).
- 2) P. Lablanquie, J. Mazeau, L. Andric, P. Selles and A. Huetz: Phys. Rev. Lett. **74**, 2192 (1995).
- 3) K. Soejima, M. Shimbo, A. Danjo, K. Okuno, E. Shigemasa and A. Yagishita: J. Phys. B, **29**, L367 (1996).
- 4) K. Soejima, A. Danjo, K. Okuno and A. Yagishita: Phys. Rev. Lett. **83**, 1546 (1999).
- 5) H. Kitamura: Insertion Device Handbook 1990 Photon Factory (KEK Report, 1990) 24.
- 6) S. Yamamoto, T. Shioya, S. Sasaki and H. Kitamura: Rev. Sci. Instrum. **60**, 1834 (1989).

- 7) H. Kimura, T. Miyahara, Y. Goto, K. Mayama, M. Yanagihara and M. Yamamoto: *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 1920 (1995).
- 8) Y. Kagoshima, S. Muto, H. Miyahara, T. Koide, S. Yamamoto and H. Kitamura: *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 1289 (1992).
- 9) K. Soejima, M. Shimbo, A. Danjo, K. Okuno, E. Shigemasa and A. Yagishita: *J. Korean Phys. Soc.* **32**, 368 (1998).
- 10) A. Huetz, P. Lablanquie, L. Andric, P. Selles and J. Mazeau: *J. Phys. B*, **27**, L13 (1994).
- 11) J. P. Wightman, S. Cvejanovic and T. Reddish: *J. Phys. B*, **31**, 1753 (1998).
- 12) L. Malegat, P. Selles and A. Huetz: *J. Phys. B*, **30**, 251 (1997).
- 13) A. Kheifets, I. Bray, K. Soejima, A. Danjo, K. Okuno and A. Yagishita: *J. Phys. B*, **32**, L501 (1999).
- 14) N. M. Kabachnik: *J. Phys. B*, **25**, L389 (1992).
- 15) B. Kämmerling, B. Krässig and V. Schmidt: *J. Phys. B*, **26**, 261 (1993).
- 16) W. R. Johnson and K. T. Cheng: *Phys. Rev. A*, **46**, 2952 (1992).
- 17) A. Huetz, P. Selles, D. Waymel and J. Mazeau: *J. Phys. B*, **24**, 1917 (1991).
- 18) F. Maulbetsch and J. S. Briggs: *J. Phys. B*, **27**, 4095 (1994).