

1P143

レーザー高次高調波によるコインシデンス反応イメージング

(分子研¹・総研大²・JST さきがけ³) ○伏谷 瑞穂^{1,2}, 松田 晃孝¹, 高橋 栄治^{1,2,*},
菱川 明栄^{1,2,3}

[序] 希ガスなどの非線形媒質に ~ 100 TW/cm² のレーザー光を照射することによって、軟 X 線領域にまで達する高次高調波を発生させることができる[1]。高次高調波はフェムト秒からアト秒領域の極めて短いパルス幅を持ち、また高い時間・空間コヒーレンス、高フラックスで他のレーザー光源との同期が容易であるなど、他の軟 X 線領域の光源には見られない特徴を備えている。このレーザー高次高調波を分子クーロン爆発過程および光電子放出過程のプロブ光源として用いることで、分子内水素移動[2]や分子内電子のダイナミクス[3]などの超高速現象の実時間追跡が可能となる。本研究では新たに構築したレーザー高次高調波光源の評価とそれを用いた NO²⁺のクーロン爆発過程, NO²⁺→ N⁺ + O⁺, のコインシデンス計測を行なった。

[実験] 再生増幅チタンサファイアレーザーの基本波(35 fs, 800 nm, 2 mJ/pulse, 1 kHz)を $f = 500$ mm のレンズを用いて高真空チャンバー内に置かれた高調波セル(媒質長 4 mm)中の希ガス媒体 (Ar または Ne) に集光し、高次高調波パルスが発生させた。発生させた高次高調波パルスは収差補正凹面回折格子でスペクトル分散させた後、蛍光スクリーン付 MCP で観測した。セル内のガス圧を変化させることで、各次数のパルス強度および発散角の媒質密度依存性を調べた。

高真空チャンバー内に($P < 10^{-6}$ Pa)に導入された NO 分子線に高次高調波パルスを照射し、NO の 2 価イオンのクーロン爆発過程, NO²⁺→ N⁺ + O⁺を調べた。生成したイオンは 4 枚の引き出し電極によって相互作用領域より位置敏感型粒子検出器 (PSD)へと導かれる。これによって、単一親分子から生成したすべてのイオンをコインシデンス運動量画像法[4]を用いて測定し、PSD 上の位置(x,y)および飛行時間 t から、それぞれの持つ運動量をベクトルとして決定した。

[結果と考察] 図 1(a)に Ne を媒質として用いた場合のレーザー高次高調波の 2 次元スペクトルを示す。23 次から 59 次までのほぼ一定の強度を持つプラトー領域が観測された。59 次高調波(91 eV)における強度および発散角のガス圧依存性を観測した結果 (図 1(b)), ガス圧が 140~160 Torr の時に、強度が最大となり同時に発散角が最

*現所属：理化学研究所

小となった。図 1(c)に示したように、140 Torr 時の 59 次高調波の空間分布から、発散角として 1.5 mrad を得た。これは位相整合条件から予想される値 1.7 mrad と良い一致を示した。

非線形媒質としてNeに集光して発生させたレーザー高次高調波 (30~100 eV) を用いたNO²⁺のクーロン爆発過程, NO²⁺→ N⁺ + O⁺のコインシデンス運動量画像を図2に示す。得られたフラグメントイオンの運動量分布がレーザー偏光方向に対して等方的な分布 (非対称パラメーター $\beta = 0.10(3)$) であることから, NO²⁺は半回転周期以上の寿命を持つ準安定状態を経て解離していることを示唆している。一方, Ar媒質を用いて発生させた, より低い次数の高調波(~45 eV)をNOに照射した場合には, N⁺, O⁺の運動量分布はレーザー偏光方向に強い異方性を持つ ($\beta = 1.3(2)$) ことが明らかとなった。このことはNOの解離が励起後すみやかに起っていることを意味しており, フラグメントイオンの生成がNO⁺, NO^{**}高励起状態からの自動イオン化 (e.g. NO⁺ → N⁺ + O^{*} → N⁺ + O⁺ + e⁻) に由来する[5]ことを支持する。

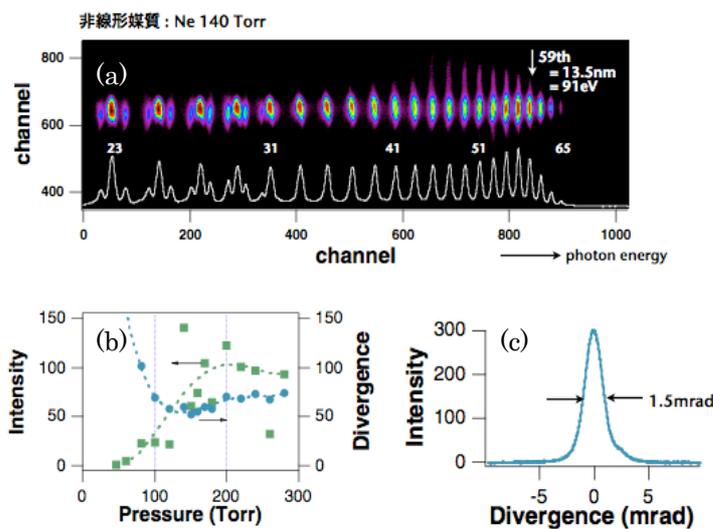


図1 (a) Ne を媒質として用いた場合のレーザー高次高調波 2次元スペクトル (b) 59 次高調波の強度と発散角の媒質圧力依存性(c) Ne 140 Torr での空間強度分布

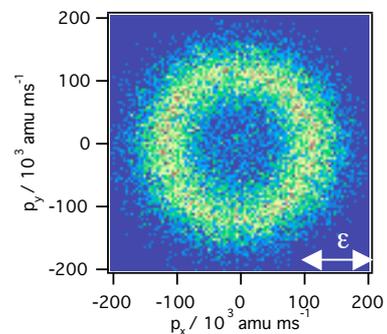


図2 NO²⁺のクーロン爆発過程, NO²⁺→ N⁺ + O⁺におけるコインシデンス運動量画像およびレーザー偏光方向 ϵ

[参考文献]

- [1] J. L. Krause, K. J. Schafer and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3535 (1992).
- [2] A. Hishikawa, H. Hasegawa and K. Yamanouchi, *JERSP* **141**, 195 (2004).
- [3] M. Drescher, *et al.*, *Nature* **419**, 803 (1992).
- [4] H. Hasegawa, A. Hishikawa and K. Yamanouchi, *Chem. Phys. Lett.* **349**, 57 (2001).
- [5] T. Masuoka, *J Chem. Phys.* **100**, 6422 (1994).