

高次高調波パルスのフーリエ分光を用いた 重水素分子の解離過程

(理研^{*}、東大院理^{**}) ○古川裕介^{*}、鍋川康夫^{*}、沖野友哉^{**}、山内薫^{**}、緑川克美^{*}

【序】空間的に分割した2つの高次高調波パルスを用いた2光子吸収過程による窒素分子、二酸化炭素分子からのイオン生成量を測定して得られるアト秒パルス列の自己相関関数からアト秒パルスのパルス幅計測が可能である[1-4]。本研究では重水素分子(D_2)を試料分子として同様の実験を試みたが、高次高調波パルスの照射によって生成した D^+ の生成量は、窒素分子を試料とした場合に得られたアト秒パルスの自己相関信号に対応する周期とは異なる強度変調を示した。 D^+ の強度変調は、 D^+ の生成過程と集光した高次高調波パルスの空間プロファイル[5]から説明できる。

【実験】チタンサファイアレーザー光(15 mJ, 40 fs, 10Hz)を非線形媒質としてXeガスを流入した10 cmのガスセルに5 mの長焦点で集光して、3次~17次までの高調波からなる高次高調波パルスを発生させた。高次高調波と同軸上に伝播する駆動レーザー光(基本波)は空間分割器のSi平板によって減衰させて高次高調波とともに集光した[6]。2つのSi平板に等分に高次高調波パルスを当て、片方のSi平板の位置をピエゾ素子によって駆動することによって遅延距離を与えた2つの高次高調波パルスを生成した。この2つの高次高調波パルスをSiC凹面ミラーで集光して D_2 に照射し、2次元イオン検出器を用いて D_2 から解離生成した D^+ の運動量分布を撮像した。2つの高次高調波パルス間の遅延距離を30

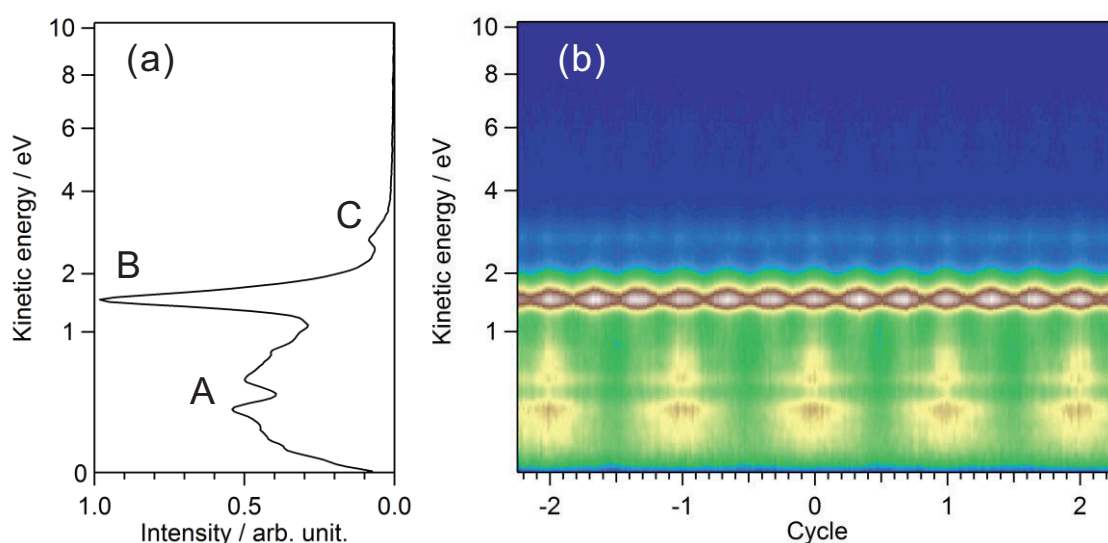


図1. (a) 高次高調波パルスの照射によって生成した D^+ の運動エネルギー分布と(b)空間分割された高次高調波パルス間の遅延に対する運動エネルギー分布の変化。横軸(Cycle)は遅延距離を数値変換した基本波の電場サイクル。

nm ずつ変えながら D^+ の画像データを取得することによって、2 つの高次高調波の遅延距離に対する D^+ の生成量の変化を測定した。

【結果と考察】2 つの高次高調波パルスの遅延距離が 0 の場合の D^+ の運動エネルギー分布には 0.4 eV 付近(A)と 1.5 eV (B)、2.6 eV (C)の 2 つのピークを持つ構造が見られた(図 1(a))。

これら 3 つのエネルギー領域について 2 つの高次高調波パルスの時間遅延に対する運動エネルギー

分布の変化をみると、アト秒パルス列の自己相関信号に対応する周期の強度変調は見られず、その代わりに各エネルギー領域において異なる周期の強度変調が見られた(図 1(b))。そこで、エネルギー領域 A、B、C の範囲の強度変調のフーリエ変換を行い、図 2(a),(b),(c)のような周波数スペクトルを得た。遅延距離は対応する周波数に変換した後、高次高調波の次数で規格化した。エネルギー領域 C では主に 5 次高調波、エネルギー領域 B では 3 次高調波の寄与が見られる。

これらの D^+ の生成経路は、基本波、3 次高調波あるいは 5 次高調波の吸収によって D_2^+ の電子基底状態 $X^2\Sigma_g$ から解離性ポテンシャルである電子励起状態 $A^2\Sigma_u$ への遷移が起きたのちに D^+ と D に解離したと考えられる。また、図 2(b)には 11 次高調波と 5 次高調波の差周波成分として 6 次高調波に相当する周波数ピークが観測されており、エネルギー領域 C の D^+ の生成は、11 次高調波と 5 次高調波の 2 光子吸収によるものであることを示している。なお、11 次高調波の光子エネルギーは D_2 と D^+ のエネルギー差に相当する光子エネルギーである。したがって、今回測定した高次高調波パルス照射による D_2 の光解離過程は、11 次高調波によって D_2^+ が生成したのち、 $X^2\Sigma_g$ から $A^2\Sigma_u$ へ遷移する 2 段階の吸収過程であることがわかった。

【参考文献】

1. Y. Nabekawa *et al.* Phys. Rev. Lett. **97**, 153904 (2006).
2. T. Okino *et al.*, Chem. Phys. Lett. **432**, 68 (2006).
3. T. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. A. **75**, 033817 (2006).
4. T. Okino *et al.*, J. Chem. Phys. **129**, 161103 (2008).
5. Y. Nabekawa and K. Midorikawa, New J. Phys. **10**, 025934 (2008).
6. H. Hasegawa *et al.*, Laser Phys. **15**, 812 (2005).

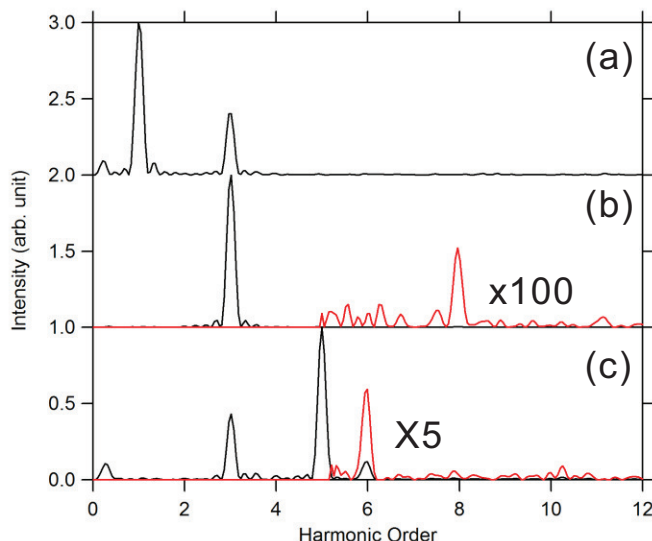


図 2. (A),(B),(C)の 3 つの運動エネルギー領域のフリッジ模様 のフーリエ変換。