

3A08

レーザー高次高調波を用いた実時間反応イメージング： Br₂ 解離過程の追跡

(¹分子研,²総研大,³JST さきがけ) ○伏谷瑞穂^{1,2}, 松田晃孝¹, 曾建銘¹, 彦坂泰正^{1,2},
繁政英治^{1,2}, 菱川明栄^{1,2,3}

【序】レーザー高次高調波は(i)軟 X 線領域に達する高い光子エネルギー, (ii)フェムト秒からアト秒領域の極めて短いパルス幅, (iii)高い時間・空間コヒーレンスを備え, (iv)他のレーザー光源との同期が容易である, などの他の光源にはない際立った特徴をもつ[1]。我々のグループでは, レーザー高次高調波を用いた超高速分子ダイナミクスの実時間追跡にむけて, 高調波ビームラインおよびコインシデンス計測系の構築を進めている。本研究では軟 X 線用多層膜ミラー(SiC/Mg)を用いて得られた 27 次高調波(30 nm)をプローブ光源として, Br₂ C¹Π_u 状態における解離過程[2], Br₂ (C¹Π_u) → Br (²P_{3/2}) + Br (²P_{3/2}), の実時間観測を行った。

【実験】高強度フェムト秒レーザー(35 fs, 800 nm, 2 mJ/pulse, 1 kHz)の出力の一部(1.4mJ)を平凸レンズ($f = 600$ mm)を用いて高真空チャンバー内の高調波セル(媒質:Ar, 長さ:4 mm)中に集光し, プローブ用光源として高次高調波を発生させた。軟 X 線用分光器を用い 30nm 領域の高次高調波の 2 次元スペクトルを観測し, Ar ガス圧を調整することで高次高調波の出力および発散角の最適化を行なった。高調波ビームラインにおいて, 厚さ 1500 Å の Al フィルターで基本波および低次の高調波成分を除去した後, 2 枚の狭帯域 SiC/Mg 多層膜ミラー(半値幅 2.5 eV)を用いて光子エネルギー42eV の 27 次高調波パルスを選択的に反射させ, 計測用チャンバーへと導入した。オリフィス径 500 μm のノズルから吹き出された Br₂(99%)分子線にポンプパルス(80 fs, 400 nm, 44 μJ/pulse)およびプローブパルスを 2 mrad の相対角度でそれぞれ集光した。ポンプパルスは光学チョッパーを用いて一パルスおきに導入し, 相互作用領域における Br₂ 分子および Br 原子から生成した電子を磁気ボトル型光電子分光器を用いて観測した。

【結果と考察】ポンプ光(400nm)およびプローブ光(30nm)の時間遅延 Δt が 1ps の場合の Br₂ 分子の光電子スペクトルを図 1(a)に示す。プローブ光照射のみで観測された光電子スペ

クトルを引いた差スペクトルには(図 1(b)および図 1(c)), 400 nm のポンプ光照射によって, Br_2 分子のスペクトル強度の減少, および生成した Br 原子のスペクトル強度の増加が観測された。図 2 にポンプ・プローブ時間遅延 Δt に対する Br 原子の信号強度変化を示す。 Br 原子の生成量はポンプ・プローブ時間遅延 Δt に対して, 約 40 fs の急峻な立ち上がりを示し, 異なる次数を持つ高調波を分離するために回折格子を用いた計測系[2](立ち上がり 500fs)に比べ, 一桁程度高い時間分解能を持つことが明らかとなった。

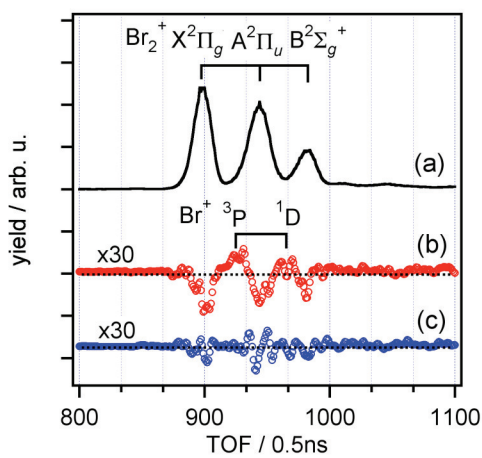


図 1 (a)波長 30nm のプローブ光照射による Br_2 の光電子スペクトル (b) ポンプ・プローブ時間遅延 $\Delta t = +1$ ps のときの差スペクトル (c) 時間遅延 $\Delta t = -1$ ps のときの差スペクトル

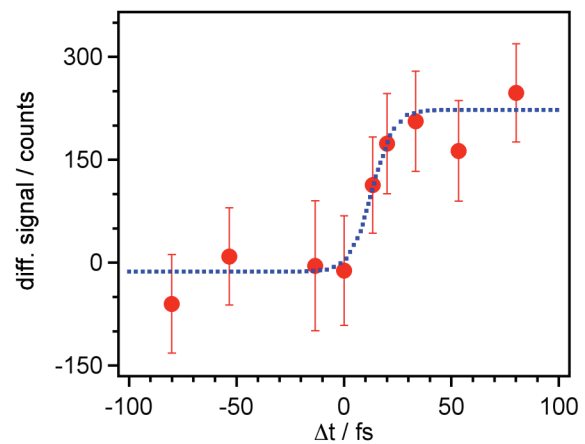


図 2 波長 400nm のポンプ光照射による Br 原子生成量の時間変化

【参考文献】

- [1] T. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.*, **72**, 545 (2000).
- [2] L. Nugent-Glandorf et al., *Phys. Rev. Lett.*, **87**, 193002 (2001).