

2P012

超短パルス EUV 光を用いた I_2 分子の励起状態ダイナミクスの実時間追跡
(分子研¹, 総研大², 名大院理³) 松田晃孝¹, 伏谷瑞穂^{1,2}, ○菱川明栄^{1,3}

【序】 レーザー高次高調波は軟X線領域に達する高い光子エネルギー、フェムト秒からアト秒領域の極めて短いパルス幅、高い時間・空間コヒーレンスを備え、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だった特徴を持つ。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向けて、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 In フィルタを用いて 400 nm レーザー光の 5 次高調波(80 nm)のみを取り出し、これをプローブ光源として用いることによって I_2 分子の電子励起状態における核運動ダイナミクスの実時間観測を行った。

【実験】 再生増幅チタンサファイアレーザーシステム(800 nm, 35 fs, 1 kHz)からの出力の一部(1 mJ)を光パラメトリック増幅器(TOPAS-C, Light Conversion Ltd.)に導入し、 I_2 分子の励起に用いるポンプパルスが発生させた。残りの出力は 2 次高調波(400 nm, 180 μ J/pulse)に変換し、平凸レンズ($f=500$ mm)を用いて高真空チャンバー内の高調波セル(媒質: Kr, 長さ: 10 mm)中に集光し高次高調波の発生を行った。発生した高調波は、2 枚の金ミラーを用いて磁気ボトル型光電子分光器へと集光しプローブパルスとした。オリフィス径 750 μ m のノズルから He をバッファガスとして導入した I_2 分子にポンプパルス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 1 パルスおきに導入し、相互作用領域における I_2 分子および I 原子から生成した光電子を観測した。

【結果と考察】 高次高調波による I_2 分子のイオン化における光電子スペクトルを図 1 に示す。スペクトルには 5 次高調波(80 nm)により生成した光電子に加えて 3 次高調波(133 nm)+ 基本波(400 nm)による I_2 分子の高励起状態からのイオン化に由来する光電子が観測された。一方、高調波ビームラインに In フィルタ(厚さ 150 nm)を挿入して得られたスペクトルには前者による成分だけが観測され、5 次高調波のみを選択的に透過させることが出来ることが明らかになった。図 2(a)にポンプパルス(490 nm)およびプローブパルス(80 nm)の時間遅延を $\Delta t=880$ fs とした場合の I_2 分子の光電子スペクトルを示す。プローブパルスのみで観測された光電子スペクトルとの差スペクトルにはポンプパルス照射による I_2 分子のピーク強度の減少、および生成した I 原子のピーク強度の増加が観測された。ポンプ-プローブ時間遅延に対する I 原子の生成量は I_2 分子の B 状態における直接解離過程を反映して約 400 fs の立ち上がりを示すことが明らかとなった(図 2(b))。また、 $\Delta t=0$ 近傍では $I_2^+(X)$ ピークの高エネルギー側にプローブおよびポンプパルスの時間的な重なりによるサイドバンドが現れ、その強度変化(図

2(b))から EUV パルスのパルス幅は 57 ± 20 fs であることが分かった。一方、ポンプパルスの波長を 550 nm としたところ、A 状態における直接解離による成分に加えて B 状態の振動周期(約 400 fs)に対応する光電子スペクトルが観測され、超短パルス EUV 光によって I_2 の異なる電子励起状態におけるダイナミクスを同時に観測できることが示された。

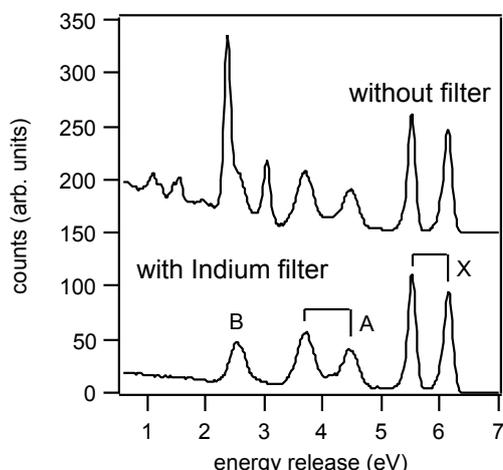


図 1：(上) 基本波および発生した全高次高調波による I_2 分子の光イオン化における光電子スペクトル。(下) In フィルタにより取り出された 5 次高調波による I_2 分子の光イオン化における光電子スペクトル。

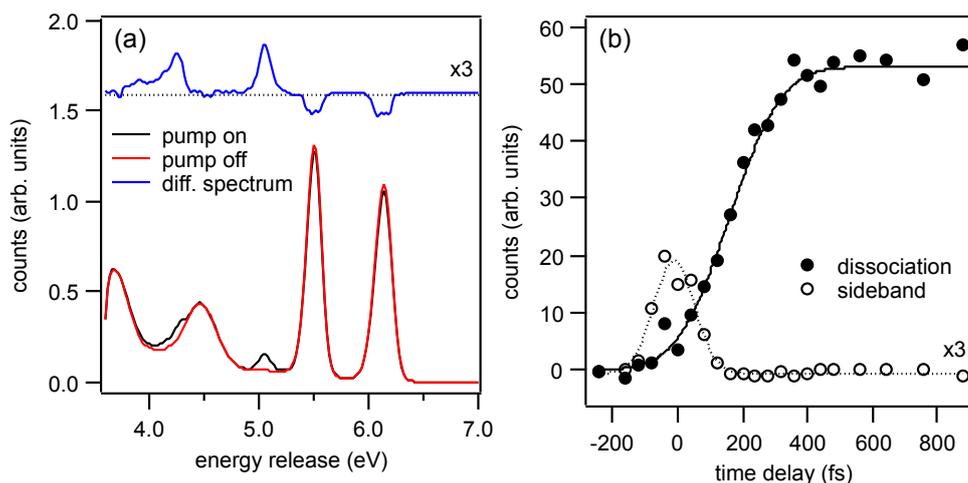


図 2：(a) ポンプ-プローブ時間遅延 880 fs の時の光電子スペクトル。(b) 波長 490 nm のポンプパルス照射による I 原子およびサイドバンドのピーク強度の時間変化。