

高次高調波による分子科学

(理研¹、東大理²) 古川祐介¹、鍋川康夫¹、沖野友哉^{1,2}、山内薫^{1,2}、緑川克美¹

【序】通常の可視光のレーザー光ではその光学周期以下である数フェムト秒以下のパルス幅を実現する事は難しいが、高次高調波では真空紫外から軟X線領域の高いキャリア周波数の光が超広帯域に渡ってほぼ同じ強度で発生しているため、その合成電場の包絡線幅は優に1フェムト秒を切ることができる。我々は、これまでに高次高調波によって生成した高強度のアト秒パルス列を用いて原子・分子に誘起される2光子電離過程などの非線形効果を利用した自己相関法によるアト秒パルスの計測[1, 2]やXUV領域の非線形フーリエ分光(Nonlinear Fourier Transform Spectroscopy:NFTS) [3]を実現してきた。今回、このNFTS法を用いて周期22fsというD₂⁺分子の超高速振動波束運動を幾つかの振動エネルギー毎にエネルギー分解して捉えることに成功した[4]。これは我々の知る限りD₂⁺分子の振動波束をサブ10fsのXUV光で励起し、VUV(真空紫外)、DUV(深紫外)、NIR(近赤外)のプローブパルスで時間・エネルギーの両方向に対して分解測定した最初の例である。

【実験】実験配置は図1に示す通りである。波長800nmのチタンサファイアレーザーパルス(15 fs, 100 Hz)を凹面ミラー($f = 5$ m)でXeガスセル中に集光することによって発生した高次高調波は自己相関計(我々はこれを「アト相関計」と呼んでいる)の入った真空チェンバーに導かれる。アト相関計により高次高調波を2つに分割し、一方に時間遅延を与える。入射角75度(基本波に対するBrewster角)でのビームセパレータ

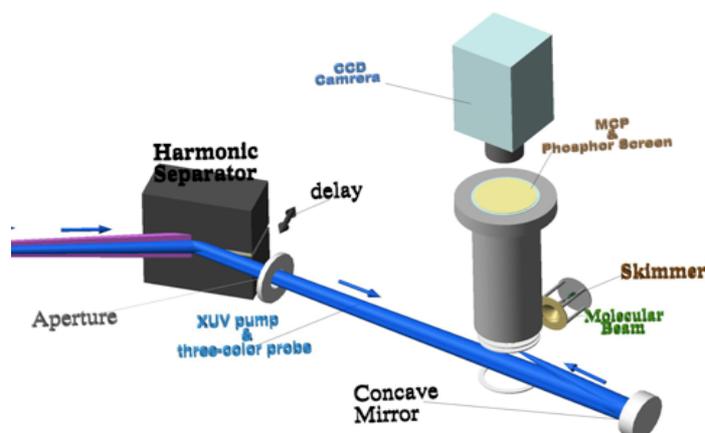


図1: D₂ 分子のポンプ・プローブ実験の配置

ミラーのXUV高次高調波に対する反射率は約50%で、基本波、3倍波、5倍波、に対する反射率はそれぞれ、約0.01%、~40%、~60%である。反射された高次高調波は励起光として作用し、弱められた基本波と3倍波、5倍波の重ね合わせ光がプローブパルスとして働く。基本波以外のパルス幅は10fs以下である。アト相関計で反射された光は、3mm径のアーチャーを通った後VMIチェンバーに入る。VMIチェンバー内にはSiC製の凹面鏡(曲率半径200mm)が設置され、これにより集光を行う。D₂分子ビームはスキマーを通して導入され、発生したイオンはVMI分光器で検出された後、解析された。

【結果】測定された開放運動エネルギー(KER)スペクトルは図2(a)に示す3つのピーク(A, B, C)を持ち、それらは各々D₂⁺分子の基底束縛状態1sσ_gから励起解離状態2pσ_uへのVUV,

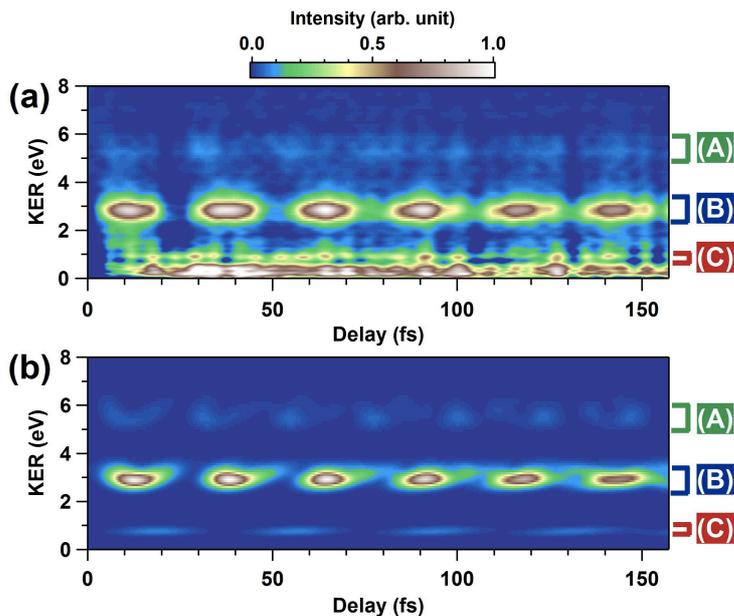


図2: (a) D^+ イオンの遅延時間-開放運動エネルギー2次元データ。(b) 計算による D^+ イオンの遅延時間-開放運動エネルギー2次元データ。

クが45THzにあり、これは図3(a)最上部の図のトレースの振動周期が22fsである事を示す。プローブ光の光子エネルギーが下がるにつれて振動周期が長くなるのは、プローブされる振動波束成分が異なっている事実を反映しており、時間方向だけではなくエネルギー方向にも波束が分解されている証拠である。この様な時間-エネルギーに分解された2次元の信号は光パルスの測定に用いられる周波数分解光学ゲート法(FROG)で得られる信号と非常に良く似ており、FROGと同様のアルゴリズムによって、量子力学的な振動波束の再構築が行える可能性を示唆している。

【参考文献】

- [1] Y. Nabekawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. 96, 083901 (2006).
- [2] Y. Nabekawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. 97, 153904 (2006).
- [3] Y. Furukawa *et al.*, Phys. Rev. A 82, 013412 (2010).
- [4] Y. Furukawa *et al.*, Opt. Lett. 37, 2922 (2012).

DUV, NIR光子の1光子遷移に起因するものである。図2(a)はこのスペクトルを遅延掃引しながら記録したものを、振動成分が見やすくなる様に処理した結果である。さらにA, B, Cの領域の平均トレースを図3(a)に示した。図2(a)で既にB領域でのKER強度に振動が見られるが、図3(a)ではさらにA, Cに於いても振動がある事が分かる。ただし、振動の周期は各領域で異なっており、この事実は各トレースをフーリエ変換することで顕著に見える(図3(b))。図3(b)最上部の図では周波数のピー

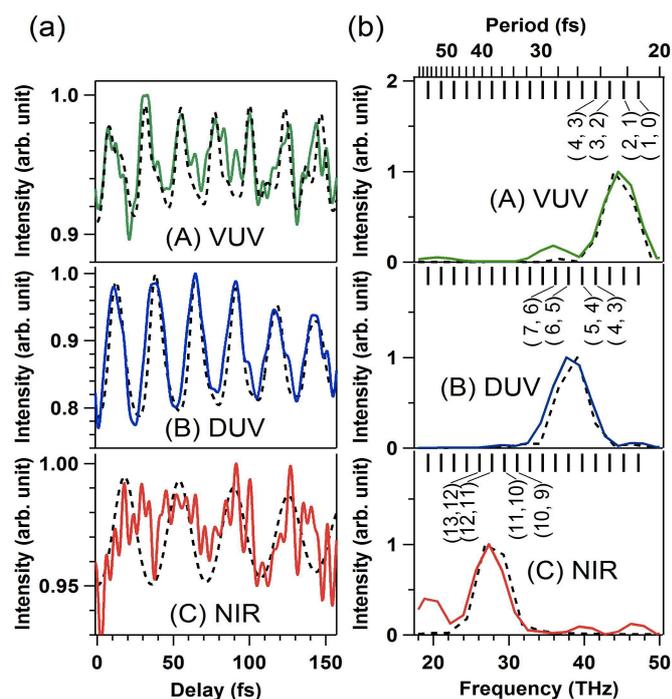


図3: 図2(a)に於ける各KER領域のエリアプロファイル。(b) (a)のフーリエ変換強度。