

4P006

EUUV 領域レーザー高調波を用いた N₂ リュードベリ波束の超高速光電子分光

(名大院・理¹, INRS-EMT²)

伏谷瑞穂¹, 樋田裕斗¹, François Légaré², 菱川明栄¹

Ultrafast photoelectron spectroscopy of N₂ Rydberg wavepackets using laser harmonics in EUV

(Nagoya Univ.¹, INRS-EMT²)

Mizuho Fushitani¹, Yuto Toida¹, François Légaré², Akiyoshi Hishikawa¹

【序】 高強度フェムト秒レーザーを希ガスなどの非線形媒質に集光すると、極紫外 (EUV) から軟 X 線領域に達する高い光子エネルギーを持った高次高調波が発生する。このレーザー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、高い時間・空間コヒーレンスを持ち、他のレーザー光源との同期が容易であるなどの際立った特徴を持つため、電子ダイナミクスなどの超高速過程を実時間で追跡するための新しい光源として期待されている[1]。EUUV 域における超短パルスの発生によって、今までアルカリ金属原子など[2]に限られていたリュードベリ状態電子波束ダイナミクスの実時間追跡を様々な原子・分子に対しても適用できるようになった[3,4]。本研究では、最近我々のグループで開発した波長 80 nm の単一次数高調波[5] を用いて高励起 N₂ 分子の時間分解光電子分光を行い、異なるイオン化電子状態に収斂するリュードベリ波束の電子ダイナミクスを明らかにすることを目的とした。

【実験】 Ti:Sapphire レーザー再生増幅器からの出力 (800 nm, 40 fs, 1.8 mJ/pulse, 1 kHz) の一部 (0.9 mJ) を BBO 結晶に入射し、波長 400 nm のパルス光を発生させた。この波長 400 nm のパルスを基本波とし、焦点距離 500 mm の平凸レンズで超高真空チャンバー内に設置した高調波セル (媒質: Kr, 15 Torr) に集光し、高次高調波を発生させた。In 薄膜 (厚さ 100 nm) を用いて高次高調波から第 5 次高調波のみを選択的に透過させ、波長 80 nm の単一次数 EUV パルスを得た。光電子サイドバンドを利用した基本波との相互相関計測により、高調波のパルス幅は 75 fs と見積もられた。この単一次数 EUV パルスをポンプ光として N₂ 分子に集光し、リュードベリ状態に電子波束を生成した。Ti:Sapphire レーザーの残りの出力をプローブ光として用い、リュードベリ N₂ 分子のイオン化により生成した光電子を磁気ボトル型光電子分析器を用いて計測した。

【結果と考察】 ポンプ・プローブ時間遅延が $\Delta t = -120$ fs および 120 fs のときの光電子スペクトルを図 1 (a) に示す。ポンプパルス (EUV) がプローブパルス (800 nm) より遅れて導入された場合 ($\Delta t > 0$) には 5 本の光電子ピークが観測された。ピークエネルギーから、これらのピークは N₂⁺イオンの電子基底状態 ($X^2\Sigma_g^+$) における振動準位 ($v = 0-4$) に対応していることが明らかとなった。N₂ 分子の He I 光電子スペクトル[6]では $v = 0, 1$ の 2 本のピ

ークしか観測されないのに対して、図 1 (a)ではさらに $v=2-4$ の振動準位を終状態とする光電子が見出された。これは $X^2\Sigma_g^+$ および $A^2\Pi_u$ に収斂するリュードベリ状態が EUV パルスによって励起されていることを示している。ポンプ・プローブ時間遅延 Δt を変化させてこれらの光電子ピーク強度の時間変化を調べたところ (図 1 (b)), 信号の立ち上がりは 84(18) fs であり、相互相関計測の結果とよい一致を示した。また $\Delta t \geq 0.1$ ps では、どの光電子ピークも時定数が 0.3 ps および 3 ps をもつ二重指数関数で特徴付けられる減衰曲線を示すことが見出された。より詳細な計測を行ったところ、この減衰曲線には明瞭な量子ビートが観測され、 $X^2\Sigma_g^+$ および $A^2\Pi_u$ に収斂するリュードベリ波束のダイナミクスが光電子スペクトルに反映されることが明らかとなった。

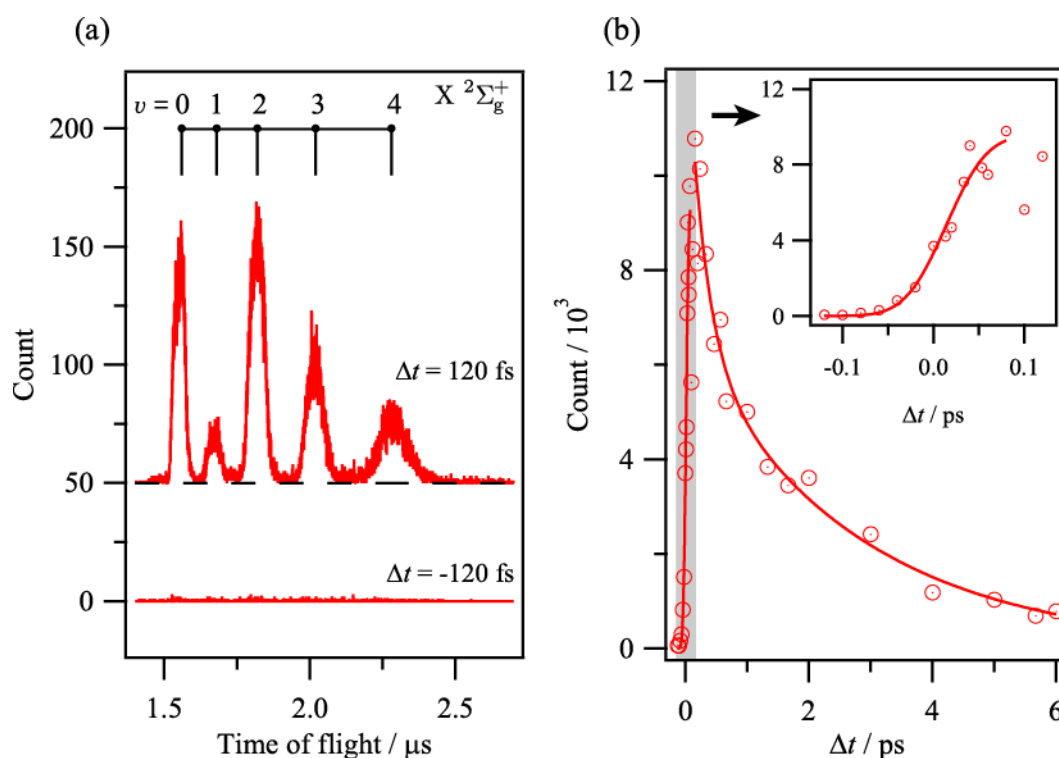


図 1. (a) $\Delta t = -120$ (下)および 120 fs (上) における N_2 分子の 2 色 2 光子イオン化光電子スペクトル (b) 光電子ピーク強度 ($v=0$) の時間変化

【参考文献】

- [1] P. B. Corkum and F. Krausz, Nat. Phys. **3** 381 (2007).
- [2] 例えば T. C. Weinacht, J. Ahn and P. H. Bucksbaum, Nature **397** 233 (1999).
- [3] E. Gagnon, *et al.*, Science **317** 1374 (2007).
- [4] I. Liontos, *et al.*, Opt. Lett. **35** 832 (2010).
- [5] M. Fushitani, A. Matsuda and A. Hishikawa, Opt. Express **19** 9600 (2011).
- [6] J.L. Gardner and J.A.R. Samson, J. Chem. Phys. **62** 1447 (1975).