

高調波パルス対を用いた時間分解ポンプ・プローブ法による 水素分子イオンの振動波束ダイナミクスの観測

(理研光量子工学*, 東大院理**) ○古川裕介*, 沖野友哉*, 鍋川康夫*,
アマニ・イランル*, 高橋栄治*, 山内薫**,*, 緑川克美*

Vibrational Wavepacket Dynamics in Molecular Hydrogen Ions Studied with Time-Resolved Pump-Probe Spectroscopy using High-Harmonic Pair

(RIKEN RAP*, Univ. Tokyo**) ○Yusuke Furukawa*, Tomoya Okino*, Yasuo Nabekawa*,
A. Amani Eilanlou*, Eiji J. Takahashi*, Kaoru Yamanouchi**,*, Katsumi Midorikawa*

【序】パルスレーザーの超短パルス化によって原子・分子の様々の超高速ダイナミクスを時間分解して測定することが可能となった。水素分子イオン(H_2^+)の核波束ダイナミクスを一例として、チタンサファイア赤外レーザーが超短パルス光源に広く用いられている[1]。一方、短波長領域の短パルスレーザーでは高次高調波発生あるいは自由電子レーザーが開発され、時間分解測定に利用されつつある。我々は、13 フェムト秒のチタンサファイアレーザーパルスの基本波とする高次高調波パルスをポンプ光およびプローブ光として用いることによって、重水素分子イオン(D_2^+)の核振動波束の時間発展を時間分解できることを報告した。[2]。高次高調波発生によって得た真空紫外光パルスのパルス時間幅が、 D_2^+ の 20 フェムト秒程度の振動周期を時間分解できるほど十分短いことを示している。

本研究では、核振動波束の時間発展から得られる周波数スペクトルについて、振動量子準位単位のスペクトル分解を試みた。ポンプ光とプローブ光の遅延の掃引範囲を 150 fs から 700 fs まで延長することによって周波数領域の分解能を向上させた。また、相対遅延 20 fs 以下の範囲で測定したフーリエ分光によって、フラグメント水素原子イオン(H^+)の運動エネルギーのポンプ光周波数依存性が観測された。

【実験】パルス時間幅 13 フェムト秒のチタンサファイアレーザーパルス($E_{\nu 1} = 1.54$ eV, $f_{\text{rep}} = 100$ Hz)を凹面ミラー($f = 5$ m)でキセノン(Xe)ガスセル中に集光し、3 次から 19 次にわたる高次高調波を発生させた [3]。この高調波パルスを 2 枚の Si 平面ミラーで構成された高調波ビームスプリッターを用いて相対遅延を制御した高調波パルス対とし、ポンプ光とプローブ光として用いた。SiC 凹面ミラー($f = 10$ cm)を用いて高調波パルス対を H_2 分子ビームに集光し、ポンプ光によって H_2 をイオン化し H_2^+ の核波束を生成させた。時間遅延を置いてプローブ光を照射して H_2^+ を解離ポテンシャルに励起し解離させた(図 1)。解離生成した H^+ の運動量をイオン運動量画像(Velocity map imaging)計測装置によって検出した。ポンプ光とプローブ光の相対遅延を 1 フェムト秒ステップで掃引して H^+ の運動量分布の遅延時間依存性を測定した。検出した H^+ の運動量から求めた H_2^+ の解離エネルギーの値はプローブ光によって励起された時点における水素分子イオンの核間距離と相関がある。つまり、遅延時間に依存した H^+ の運動エネルギースペクトルは H_2^+ の振動核波束の時間発展に対応している。

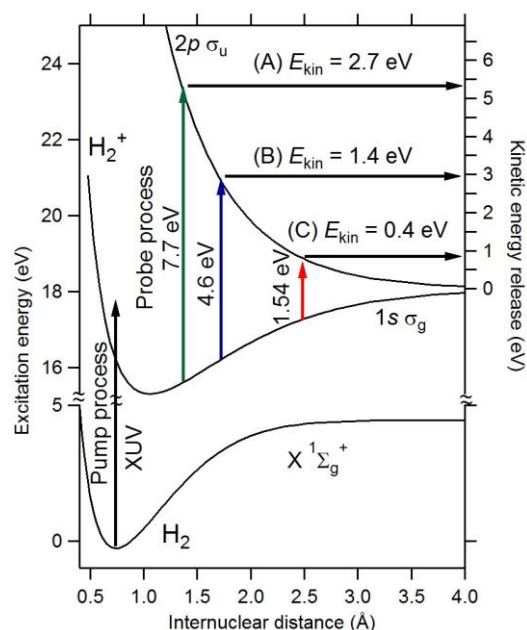


図 1. H_2^+ の振動核波束のポンプ・プローブ時間分解測定の励起スキーム。

【結果と考察】 高次高調波パルス対のプローブ光のうち 5 次高調波($E_{v,5} = 7.7$ eV)、3 次高調波($E_{v,3} = 4.6$ eV)、基本波($E_{v,1} = 1.54$ eV)によって解離ポテンシャルに励起されて解離したフラグメントイオンは、それぞれ 2.7 eV、1.4 eV、0.4 eV の運動エネルギーピークとして観測された。ポンプ光とプローブ光の遅延時間を掃引すると運動エネルギースペクトルのこれら 3 つのピークに周期的な変動が見られた。実験データから構築した時間分解運動エネルギースペクトルを図 2 に示す。1.4 eV のフラグメントイオン運動エネルギー成分は 19 フェムト秒間隔の周期構造を持ち、さらにその構造が 280 フェムト秒毎に明瞭に現れることが観測された。19 フェムト秒は H_2^+ の振動周期に対応する時間である。

これらの周期構造を詳細に解析するためにフーリエ変換によって運動エネルギー分解された周波数スペクトルを得た。図 2 と同じ運動エネルギー範囲の周波数スペクトルを図 3 に示す。3 つの運動エネルギーピークのうち 3 次高調波($E_{v,3} = 4.6$ eV)の励起によって解離したプローブ過程で生成した H^+ の運動エネルギー 1.4 eV 近傍に注目すると、図 3 横軸の周波数 55 THz と 52 THz に強い信号ピーク、そして 48 THz と 44 THz に弱い信号ピークが見られる。これらの周波数は、 H_2^+ の振動準位間のエネルギー差に対応するビート周波数である。振動準位の組み合わせ (3,4), (4, 5), (5, 6), (6, 7) のビート周波数がそれぞれ 55 THz, 52 THz,

48 THz, 44 THz であり、遅延時間の掃引範囲の拡大によって目標とした振動準位分解した周波数スペクトルの取得を達成できた。分解能の向上によって各周波数ピークとフラグメントイオンの運動エネルギーの関連性が得られた。図 3 縦軸の運動エネルギー軸について見ると、周波数ピークの出現する運動エネルギーは、55 THz ピークは 1.4 eV であるのに対し 44 THz ピークは 1.6 eV であり、+0.2 eV のピークシフトが見られた。このピークシフトは、プローブ光スペクトルの吸収による振電遷移の核間距離依存性によって説明できる。プローブ光に含まれる 5 次高調波($E_{v,5} = 7.7$ eV)、基本波($E_{v,1} = 1.54$ eV)によって解離したフラグメントイオンについても同様の解析を行い 3 次高調波の場合とは異なる振動準位の組み合わせのビート周波数が得られた。複数の次数から構成される広帯域な高次高調波スペクトルを用いたポンプ・プローブ時間分解測定によって、励起波長の掃引なく振動エネルギー 2 eV にわたる H_2^+ の $v=1$ から $v=10$ の振動準位から成る 8 組の組み合わせのビート周波数の観測に成功した。

【参考文献】

- [1] C.R. Calvert, W.A. Bryan, W.R. Newell, and I.D. Williams, *Phys. Rep.* **491** (2010) 1.
- [2] Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino *et al.*, *Opt. Lett.* **37** (2012) 2922.
- [3] Y. Nabekawa, A.Amani Eilanlou, Y. Furukawa *et al.*, *Appl. Phys. B* **101** (2010) 523.

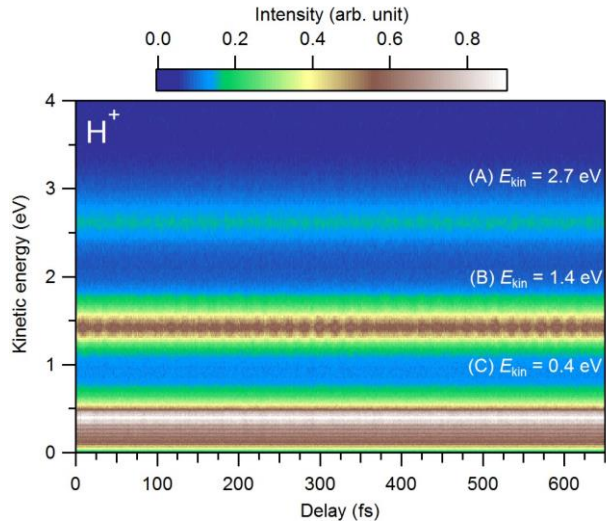


図 2. H_2^+ から解離生成した H^+ のポンプ・プローブ時間分解運動エネルギースペクトル。

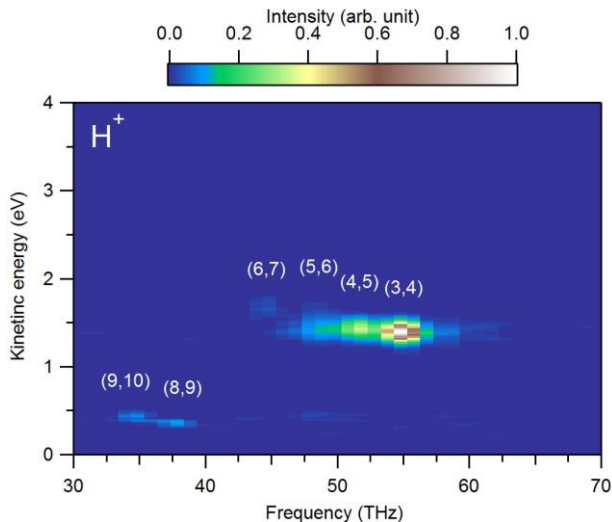


図 3. 運動エネルギー分解周波数スペクトル。振動準位 (v, v') 間のビート周波数として帰属される。