

2A15

アト秒非線形フーリエ分光による窒素分子の解離性イオン化ダイナミクス
(理研光量子工学*, 東大院理**) ◦沖野 友哉*, 古川 裕介*, アamani イランル*, 鍋川 康夫*,
高橋 栄治*, 山内 薫**, 緑川 克美*

Dissociative ionization dynamics of nitrogen molecule with attosecond nonlinear Fourier spectroscopy
(RIKEN RAP*, Univ. Tokyo**) ◦Tomoya Okino*, Yusuke Furukawa*, A. Amani Eilanlou*,
Yasuo Nabekawa*, Eiji J Takahashi*, Kaoru Yamanouchi**, Katsumi Midorikawa*

【序】高強度アト秒パルスは、原子分子内の電子ダイナミクスのポンプ・プローブ計測を可能にする。多原子分子系における核・電子相関および多電子ダイナミクスの解明には、アト秒パルスの高度化（高強度化、高繰り返し化、短パルス化）および新規アト秒非線形分光法の開発が不可欠である。これまで報告されているアト秒パルスを用いた分光研究は、微弱アト秒パルスと高強度近赤外パルスを用いる方法が主流であるが、アト秒パルスと比べパルス幅の長い高強度近赤外パルスによる電子分布の擾乱を避けることができない問題がある [1, 2]。本研究では、包絡線のパルス幅が分子振動周期よりも短い近赤外光の数サイクル（4 fs 以下）となる擬似単一アト秒パルスと呼べる高強度アト秒パルス列（APT）をサブ 15 フェムト秒近赤外光より発生した。そして、単一アト秒パルスを用いたポンプ・プローブへの適用を視野に入れたフラグメントイオンの角度分布を用いた新規アト秒非線形分光法の開発を行った。

【原理】フラグメントイオンの角度分布は、分子の波動関数および構造を反映する。始状態および終状態の電子状態によって、角度分布は異なることが期待される。角度分布計測により、従来のイオン信号強度プリング分解自己相関波形（I-IAC）（式(1)） [3] に加えて、フラグメントイオンの角度異方性を用いたプリング分解自己相関波形（A-IAC）（式(2)）の取得が可能である。

$$I_{I-IAC}(E, \Delta t) = \sum_i [c_i(E, \Delta t) - \langle c_i(E, \Delta t) \rangle] \quad (1)$$

$$I_{A-IAC}(E, \Delta t) = \sum_i [c_i(E, \Delta t) - \langle c_i(E, \Delta t) \rangle] \langle \cos^2 \theta \rangle (E)_i \quad (2)$$

上式においては、遅延時間 Δt に依存する相関信号のみを抽出するため、遅延時間平均信号からの変調量を算出している。角度異方性 IAC は、2 光子吸収過程ごとの角度異方性がイオン強度 IAC 波形に重みとして畳みこまれている。本研究では、2 光子吸収過程の角度分布の定量的評価は二次のモーメント $\langle \cos^2 \theta \rangle = \int I(\theta) \cos^2 \theta \sin \theta d\theta / \int I(\theta) \sin \theta d\theta$ で代表した。

【実験】フェムト秒レーザーシステムの出力（800 nm, 12 fs, 15 mJ/pulse, 100 Hz） [4] をキセノンガスセルに凹面鏡（ $f=5$ m）を用いて集光照射することによって高強度 APT の発生を行った。発生した APT は、2 枚の高面精度シリコン平面鏡によって空間分割し、シングルショット速度投影型イオン運動量画像計測装置に導入した。2 分割された APT を、SiC 凹面鏡（ $f=100$ mm）を用いて窒素分子線（ N_2 ）に集光照射し、生成した窒素原子イオン N^+ をマイクロチャンネルプレートおよびフォスファースクリーンから構成される 2 次元位置検出器を用いて、2 次元運動量画像として計測した。高速読み出しが可能な sCMOS カメラを用いて蛍光画像をレーザーパルスごとにデジタルデータとして取り込み、輝点の重心解析を行うことによって、信号雑音比を大幅に向上することに成功した。IAC 計測は、2 枚のシリコン平面鏡のうちの片側を 20 nm ステップで動かすことによって、2 つの APT の遅延時間 Δt を 36 as ステップで -7 fs から +7 fs まで走査した。

【結果と考察】窒素原子イオン N^+ の運動量画像を図 1 に示す。左半分は全ての遅延時間における運動量画像の総和画像、右半分は、左半分の運動量画像の Abel 変換後の運動量画像に対応する。ここで例えば、運動エネルギー $E = 0.5$ eV と 1.0 eV は、それぞれ一価イオン N_2^+ からの解離性イオン化過程 $N_2^+ \rightarrow N^+(^3P) + N(^2D)$ と $N_2^+ \rightarrow N^+(^1D) + N(^4S)$ および $N^+(^1D) + N(^2D)$ と帰属できる。

図 2 に IAC 波形のフーリエ変換周波数スペクトルを示す。ここでは、4 つの運動エネルギー範

囲の周波数スペクトルを示した。奇数次のピークは、電場干渉フリンジに由来する。一方、偶数次のピークは、APTの包絡線に由来する。運動エネルギーによって異なる周波数スペクトルが得られており、これは、窒素分子 (N_2) の2光子吸収スペクトルを計測したことに対応する。

イオン強度 IAC、角度異方性 IAC とともに、運動エネルギーが大きくなるにつれ、11次由来の電場干渉フリンジの割合が大きくなる傾向がある。このことは、高い運動エネルギーを与える2光子解離性イオン化過程は、高い2光子モードを必要とすることを反映している。イオン強度 IAC の周波数スペクトルと角度異方性 IAC の周波数スペクトルは全てのエネルギー範囲で、大きく異なる。例えば、3次と5次の寄与については、イオン強度 IAC に比べて角度異方性 IAC で大きく現れる。同じ運動エネルギーを与える2光子過程が1種類に限られる場合には、式(1), (2)より明瞭であるように、イオン強度 IAC と角度異方性 IAC の周波数スペクトルは完全に一致する。しかし、実測で異なる周波数スペクトルが得られたことは、2個以上の同じ運動エネルギーのフラグメントイオンを与える2光子過程が共存していることを反映している。これは、3次および5次を含む2光子過程の角度異方性が大きいこと、すなわち、レーザー偏光方向に優位にフラグメントイオンが放出されることを示唆している。イオン強度 IAC より得られる周波数スペクトルには、分子の非線形周波数応答と実験条件 (APT の時間波形および干渉計の空間合わせの精度等) が畳み込まれている。イオン強度 IAC より、関与する2光子吸収の割合が決定できれば、角度異方性 IAC より得られる周波数スペクトルより、2光子吸収過程ごとの角度分布を抽出することが原理的には可能である。

一方、運動エネルギーが0.5 eVのときの角度異方性 IAC 波形に時間周波数解析を施すと図3が得られる。このアト秒時間周波数分光では、どの次数の高調波がどの時間領域で2光子吸収に寄与したかを可視化することができる。高次の高調波 (4 fs 程度) と比べてパルス幅の長い基本波 (12 fs) は、遅延時間が大きいところで寄与が大きい。遅延時間が小さいときは、協奏的2光子過程、遅延時間が大きいときは、段階的2光子吸収過程が誘起されていることを示唆しているものと思われる。

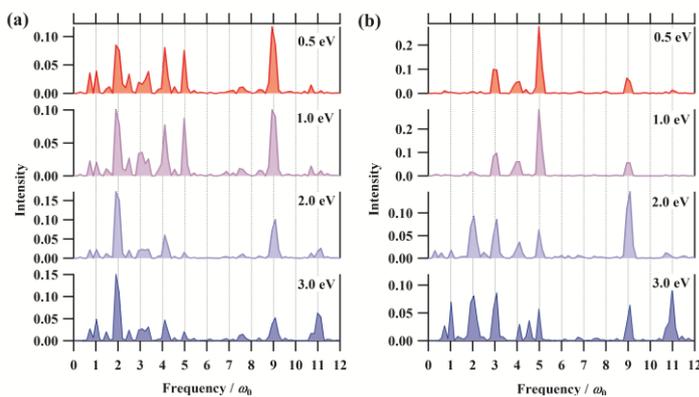


図2: 周波数スペクトル。(a) イオン強度、(b)角度異方性。

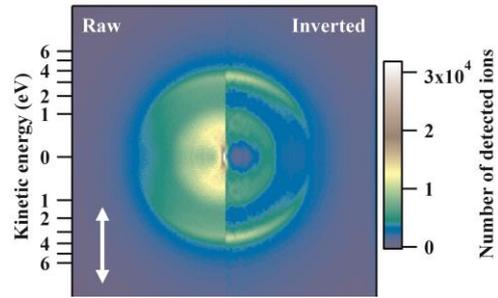


図1: 窒素原子イオンの運動量画像。
(左) 生データ。(右) Abel 変換後のデータ。
矢印は高次高調波の偏光方向を表す。

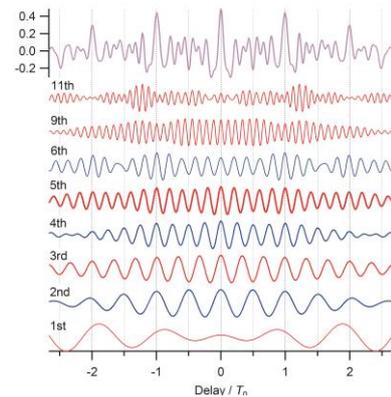


図3: 周波数分解自己相関波形

- [1] W. Siu *et al.*, *Phys. Rev. A* **84**, 063412 (2011).
- [2] Ch. Neidel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 033001 (2013).
- [3] T. Okino *et al.*, *J. Chem. Phys.* **129**, 161103 (2008).
- [4] Y. Nabekawa *et al.*, *Appl. Phys. B*, **101**, 523 (2010).