

2P019

N₂ リュードベリ状態における電子-核波束の超高速光電子分光

(名大院・理¹, INRS-EMT²)

○樋田裕斗¹, 伏谷瑞穂¹, François Légaré², 菱川明栄¹

Ultrafast photoelectron spectroscopy of electro-nuclear wave packet in N₂ Rydberg

(Nagoya Univ.¹, INRS-EMT²)

○Yuto Toida¹, Mizuho Fushitani¹, François Légaré², Akiyoshi Hishikawa¹

【序】原子や分子のイオン化閾値近傍を広帯域超短レーザーパルスで励起するとリュードベリ電子の波束が生成される。リュードベリ電子は核への束縛が弱く、その波束は核から大きく離れた位置まで広がる大きな軌道を描く[1]。有効主量子数 n が 5 ~ 20 程度のリュードベリ電子波束の周回周期はフェムト秒のオーダーとなるため、リュードベリ分子における量子波束は電子と核の双方の運動が競合したダイナミクスを示すことが予想される。本研究では、レーザー高次高調波を次数選択して得られる単一次数極紫外 (EUV) パルスを励起光源[2]として N₂ 分子の電子-核波束を生成し、その波束の時間発展の様子を明らかにすることを目的として研究を行った。

【実験】実験のスキームを図 1 (a)に示す。チタンサファイアレーザー再生増幅器からの出力 (800 nm, 40 fs, 1.8 mJ/pulse, 1 kHz) をビームスプリッターで2つに分割し、一方 (0.9 mJ) を BBO 結晶に入射して波長 400 nm のパルスを得た。この 400 nm パルスを基本波とし、焦点距離 500 mm の平凸レンズで真空チャンバー内に設置した高調波セル (媒質: Kr, 15 Torr) に集光して高次高調波を発生させた。得られた高調波パルスをインジウム薄膜 (厚さ 100 nm) に透過させることにより、波長 ~ 80 nm の第 5 次高調波を得た[2]。この単一次数パルスをポンプ光として N₂ 分子に集光することでリュードベリ波束を生成した。チタンサファイアレーザーからの残りの出力をプローブ光として用い、このリュードベリ状態からのイオン化によって生じた光電子を磁気ボトル型光電子分光器を用いて計測した。

【結果と考察】EUV パルスの中心波長を 80.5 nm, ポンプ・プローブ時間遅延を $\Delta t = 0.19$ ps としたときに得られた光電子スペクトルを図 1(a)に示す。観測された 5 本の光電子ピーク 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[3]。ポンプ・プローブ時間遅延を変えながらこれらの光電子ピーク強度の時間変化を計測したところ、 $v'' = 0$ の光電子ピークは Δt が 0 ~ 1 ps の領域において周期 284(5) fs の明瞭なビート構造を示した (図 1(b))。ポンプ光 (~ 80 nm) により励起される主なりゅうドベリ状態は N₂⁺ の X 状態に収斂する 9π ($v = 0$) 及び 6π ($v = 1$) に帰属される[4, 5]。 9π と 6π 準位間の電子波束ダイナミクスの周期は、そのエネルギー差 $\Delta E_{el} = 2.31 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ [5] から $T_{el} = hc / \Delta E_{el} = 14.5$ fs と見積もられ

る。また、イオンコア ($X^2\Sigma_g^+$) の振動準位の間隔 ($\Delta E_{\text{vib}} = 2.17 \times 10^3 \text{ cm}^{-1}$ [6]) から見積もった核波束の振動周期は $T_{\text{vib}} = 15.3 \text{ fs}$ であり、電子波束と核波束はいずれも観測された周期より速いダイナミクスを示す。一方、これら二つの運動のうなりの周期は $(T_{\text{el}}^{-1} - T_{\text{vib}}^{-1})^{-1} = 253 \text{ fs}$ であり、実験結果の周期とよく一致する。このことは、このリユードベリ波束が電子波束と核波束の両方のダイナミクスを反映していることを示している。ビート信号は $\Delta t = 0 \text{ fs}$ にピークを有するコサイン型をもち、リユードベリ電子波束のイオンコアへの接近と、核波束の $X^2\Sigma_g^+$ 平衡核間距離近傍への回帰が同位相で起きていることが分かる。

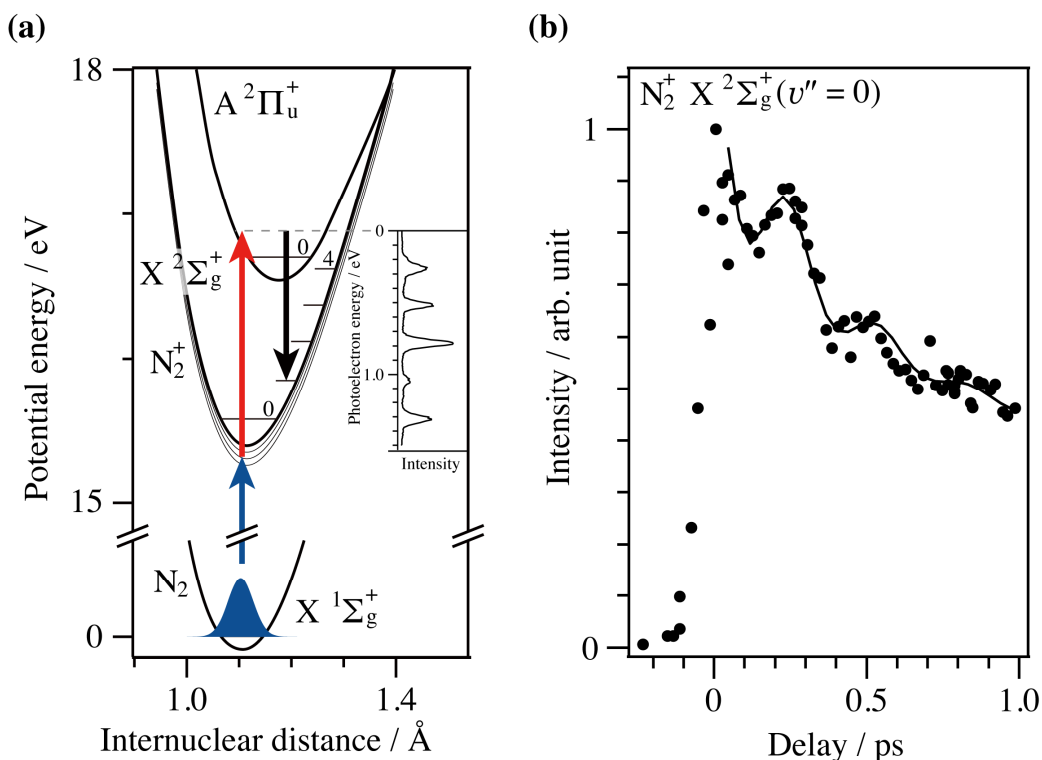


図 1. (a) N_2 分子のポテンシャルエネルギー図[6]と実験スキーム。青矢印はポンプ光、赤矢印はプローブ光を表す。また $\Delta t = 0.19 \text{ ps}$ における 2 色 2 光子光電子スペクトルを示した (挿入図)。(b) $X^+(v''=0)$ に対応する光電子ピークのポンプ・プローブ時間遅延依存性 (●: 実験値, —: フィッティング曲線)。 $\Delta t = 0 \sim 1 \text{ ps}$ の領域で明瞭な振動構造が見られる。

【参考文献】

- [1] H. H. Fielding, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **56**, 91–117 (2005).
- [2] M. Fushitani, A. Matsuda and A. Hishikawa, *Opt. Express*, **19**, 9600 (2011).
- [3] 伏谷ら, 2012 年 第 6 回分子科学討論会 (東京), 4P006.
- [4] K. P. Huber and C. Jung, *J. Chem. Phys.*, **92**, 850 (1990).
- [5] K. P. Huber *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **131**, 084301 (2009).
- [6] F. R. Gilmore, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **5**, 369–390 (1965).