

3A09

## 90nm 真空紫外極短パルスレーザーの開発と時間分解光電子イメージングへの応用

(<sup>1</sup>京大院理、<sup>2</sup>理研) ○足立 俊輔<sup>1</sup>、佐藤 元樹<sup>1</sup>、鈴木 俊法<sup>1,2</sup>

### Development of a 90-nm vacuum-ultraviolet ultrashort pulse laser and its application to time-resolved photoelectron imaging

(<sup>1</sup>Kyoto Univ., <sup>2</sup>RIKEN) ○Shunsuke Adachi<sup>1</sup>, Motoki Sato<sup>1</sup>, and Toshinori Suzuki<sup>1,2</sup>

[序] 真空紫外から X 線領域の極短パルス光源は、レーザー高次高調波発生や自由電子レーザーなどの新光源の出現により急速に発展しているが、強い非線形相互作用を対象としない分光実験においては、テーブルトップの高繰り返し周波数レーザー光源が有用である。当研究室では、比較的簡易なフィラメンテーション四光波混合法により、160 nm の真空紫外光を sub-20 fs のパルス幅で発生することに成功しているが、分子がカスケード的に電子緩和して電子基底状態に戻る過程を全て観測するためには、分子のイオン化エネルギーを超える光子エネルギーが必要である。そこで本研究では高調波発生を利用して、更に短波長域(90 nm)の真空紫外 1kHz 繰り返しレーザー光源を開発した。

レーザー光の高調波発生では多数の高調波成分が混合して発生されるため、何らかの手段(例えば回折格子を利用した波長分散)で特定次数の成分のみを分離して、分光研究に利用する必要がある。この単色化の過程で、元々非常に弱い高調波パルスの強度は更に大きく低下する。そこで本研究では、十分なパルスエネルギーと有効な単色化を行うため、次のような方法論を採った。まず、チタンサファイアレーザーの基本波を非線形光学結晶を用いて高効率に 3 次光に波長変換し、次に希ガス中での高調波発生を利用した波長変換により、3 次光を 9 次光に変換する。これにより高い波長変換効率を得た。また、3 次光を基本波とした波長変換では、隣接する高調波(奇数次)が 15 次光であることを利用して、高効率に 9 次光を分離した[1]。

[実験] 真空紫外高調波パルス発生系を図 1 に示す。チタンサファイア(Ti:Sa)レーザー(波長 810nm)の出力パルスを 3 次光発生系に通すことで、波長 270nm の高強度深紫外パルスが発生させ、このパルスを基本波として高調波発生を行った。高調波発生ターゲットガスには、非線形感受率の大きさや位相整合条件等を考慮してクリプトン(Kr)を用いた。発生させた高調波は、基本波に対してブリュスター角入射になるように配置した SiC 基板により分離した。Ti:Sa レーザーの 9 次光に対応する 90nm のスペクトル成分のみが得られていることを、分光器を用いて確認した。パルスエネルギーはターゲットガスの圧力に依存し、最適条件下で 0.2μJ(平均出力に直すと 0.2mW)であった。

90nm パルスと基本波 270nm パルスとを真空チャンバー中の Kr 原子(超音速原子線として真空チャンバー内に導入される)に同時に

集光し、両者の遅延時間を掃引しながら Kr イオンもしくは光電子を観測した。発生するイオン(もしくは光電子)は、レーザー集光点の周囲に配置された複数の電極が作る静電場によって加速され、

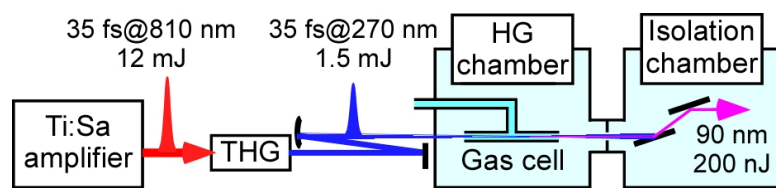


図 1. 真空紫外高調波パルス発生系. THG:3 次光発生系. HG: 高調波発生.

二次元検出器(マイクロチャンネルプレート、MCP)上に投影される。イオン測定においては、MCP から発生する電気信号をマルチチャンネルスケーラーを用いて検出する、飛行時間型検出を行った。一方光電子測定においては、速度収束型の加速電極を用いて光電子をMCPに射影し、その背面に配置された蛍光板の像を CCD カメラにより撮影する、イメージング測定を行った。得られた射影像から元の断層像を pBASEX アルゴリズムにより再構築し、光電子の三次元散乱分布(光電子運動エネルギー分布および放出角度分布)を得た。

[結果] 図2(a)に Kr イオン収量の遅延時間依存性を示す。遅延時間が正(=90nm パルスが 270nm パルスに先行する)の領域において、90nm パルスにより Kr の複数の Rydberg 状態がコヒーレントに励起されたことによる量子ビートが明瞭に表れている。また、遅延時間原点における信号強度の立ち上がりより、90nm、270nm 両パルスの相互相関時間、言い換えると本測定の時間分解能は約 60fs と見積もられる。図2(b)には、遅延時間-3ps および+200fs における、光電子散乱分布から得られた運動エネルギー分布を示した。遅延時間+200fs において光電子の運動エネルギー3.7eV、4.4eV に現れたピークはそれぞれイオン化準位  $^2P_{1/2}$ 、 $^2P_{3/2}$  に対応し、イオン収量の測定の場合と同じく、90nm パルスにより作られた Kr の Rydberg 電子の励起状態を、270nm パルスによるイオン化により観測している。そのため、光電子収量やその異方性パラメータ(放出角度分布から計算される)についても、時間的に振動することを確認した [2]。

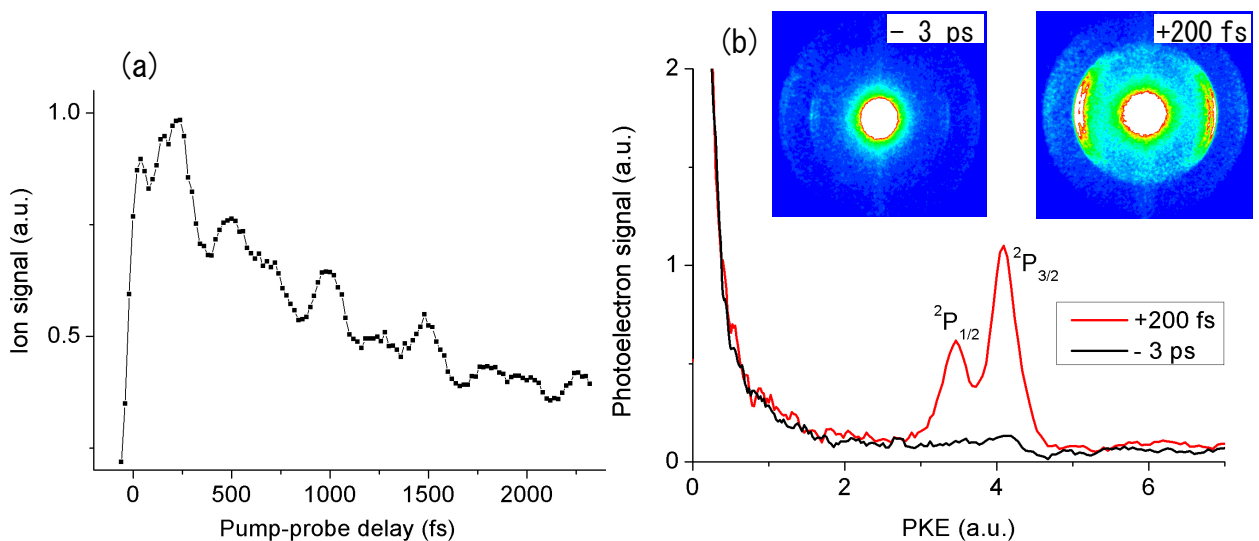


図 2. (a) Kr イオン収量の遅延時間依存性. (b) 遅延時間 -3ps および +200fs における光電子運動エネルギー分布. 挿入図はそれぞれの遅延時間における光電子射影像 (pBASEX による変換前)。

#### 参考文献

- [1] Adachi *et al.*, *Opt. Lett.* **37**, 2118 (2012)
- [2] Sato *et al.*, 本討論会 4P001