

4P001

90 nm 真空紫外極短パルスを用いた Kr 原子の pump-probe 光電子分光

(¹京大院, ²理研) 足立俊輔¹, ○佐藤元樹¹, 鈴木俊法^{1,2}

Pump-probe photoelectron spectroscopy of Kr atom by a 90-nm vacuum-ultraviolet ultrashort pulse

(¹Kyoto Univ., ²RIKEN) Shunsuke Adachi¹, ○Motoki Sato¹, Toshinori Suzuki^{1,2}

【序論】フェムト秒レーザーの広帯域スペクトルを利用した物質のコヒーレントな光励起は、複数の励起準位からなる波束を生成し、共通する終状態に対する干渉効果が各種物理量の量子ビートとして観測される。イオン化準位へ収束する一連の電子準位群である Rydberg 準位では、適切な励起エネルギーを選択することでフェムト秒レーザー程度のバンド幅で電子波束の生成が可能である。希ガス原子の Rydberg 準位は、その単純な電子構造ゆえ物質のイオン化ダイナミクスを理解する上で重要な研究対象である。一方で、希ガス原子はその電子的安定性から高いイオン化エネルギーをもち、Rydberg 準位の励起には極端紫外域の高い光子エネルギーを持つ光源が求められる。このため Glib らは、深紫外光の多光子励起を用いてクリプトンの電子波束を発生させた[1]。ところが、多光子励起の場合、光学遷移の許容となる準位が増加し解析が煩雑になることに加え、多光子過程を誘起するための強電場による AC-Stark 効果の影響が避けられない。したがって、このような影響を除いた上で電子波束の性質を議論するには一光子励起が望ましい。我々のグループでは既に高強度深紫外パルスを基本波とする高調波発生により、波長 90 nm の真空紫外フェムト秒光源の開発に成功している[2]。同光源はレーザーベースの光源であり、高い繰り返し周波数による光電子角度分布の雑音比のよい実験観測を実現する。

発生させた電子波束は電子状態を周期的に変化させ、その様子は時間分解光電子分光法により検出することができる。特に偏光した光源による光励起は、Rydberg 電子の空間的な整列を実現し、クリプトンを例に電子波束の生成による軌道角運動量の周期的な変調を光電子角度分布の時間変化として観測した研究を Glib ら[1]は報告している。光電子イメージング法は、 4π ステラジアンの高い捕集効率を得られると同時に、イオン化における光電子角度分布を高精度に観測できる光電子分光法である。光電子角度分布は、放出される光電子の軌道および光イオン化ダイナミクスに関する情報を提供する重要な物理量である。光励起後の高速な電子状態変化を高感度に反映し、超高速ダイナミクス研究に極めて有用な情報を提供することがこれまでも実験的に示されてきた[1, 3]。

本研究では、時間分解光電子イメージング法と真空紫外光源を組み合わせ、直線偏光の一光子励起にて気相クリプトン原子に発生させた Rydberg 電子波束の光電子収量および光電子角度分布の時間変化を観測、評価したので報告する。

【実験手法】本実験は、波長90 nm 励起光、波長270 nm イオン化光による(1+1')共鳴多光子イオン化過程である。90 nm 真空紫外パルス (13.8 eV, 50 fs) は、チタンサファイアレーザー (810 nm, 35 fs, 1 kHz) の三倍波励起光 (270 nm, 35 fs) を基本波として、真空中に導入したクリプトンガスをを用いた高調波発生により発生させた。イオン化光である270 nm 深紫外パルス (4.6 eV, 35 fs) は、チタンサファイアレーザー出力の三倍波光として得た。球面鏡を使って両者を気体試料に絞り込んだ。試料は CW 原子ビームとして真空中に導入した。イオン化により三次元的に放出さ

れた光電子を静電場により加速し二次元検出器面へ投影した。検出器はマイクロチャンネルプレートと蛍光スクリーン、および CCD カメラから構成される。両パルスは直線偏光しており、その偏光ベクトルは共に検出器面に平行になるよう設置した。検出した二次元画像から pBASEX アルゴリズム [4] により元の断層像を再構築し、光電子の三次元散乱分布を得た。励起光-イオン化光の遅延時間を遅延ステージを用いて掃引し、光電子収量および光電子異方性因子の遅延時間依存性を観測した。時遅延時間の原点はアルゴンガスの (1+1') 多光子イオン化信号強度の遅延時間依存性を測定し正確に決定した。

二つの直線偏光ベクトルが互いに平行に配置され系の円筒対称性が保たれる場合、二光子イオン化過程における光電子角度分布は、Legendre 多項式 $P_n(x)$ を使って以下のように表現できる。

$$I(t, E, \theta) = \frac{\sigma_0(t, E)}{4\pi} [1 + \beta_2(t, E)P_2(\cos\theta) + \beta_4(t, E)P_4(\cos\theta)]$$

ここで、 $\sigma_0(t, E)$ は光イオン化積分断面積、 $\beta_2(t, E)$ 及び $\beta_4(t, E)$ は光電子異方性因子を表す。また、 t, E は、それぞれ励起光-イオン化光の遅延時間、光電子エネルギーである。時間分解光電子分光では、電子波束の時間推移がイオン化断面積と光電子異方性因子の時間変化として得られる。

【結果】 図1に、光イオン化積分断面積 $\sigma_0(t, E)$ の時間-エネルギーマップを示す。クリプトン原子は、スピン軌道相互作用により縮退の解けた二つの第一イオン化準位 $^2P_{3/2}$ と $^2P_{1/2}$ を持ち、イオン化エネルギーはそれぞれ 14.0 eV、14.7 eV である。光電子エネルギー 4.4 eV ならびに 3.7 eV に見られる信号は、それぞれ $^2P_{3/2}$ 、 $^2P_{1/2}$ のイオン化準位の信号に帰属できる。両信号で光電子収量の量子ビートが観測された。また、光電子異方性因子にも同様の量子ビートが確認された。このことは、生成した波束の電子状態が周期的に変化することを直接的に示している。発表では、観測された量子ビートに関与する Rydberg 準位の帰属ならびに電子状態の時間変化に関する詳細な議論を行う。

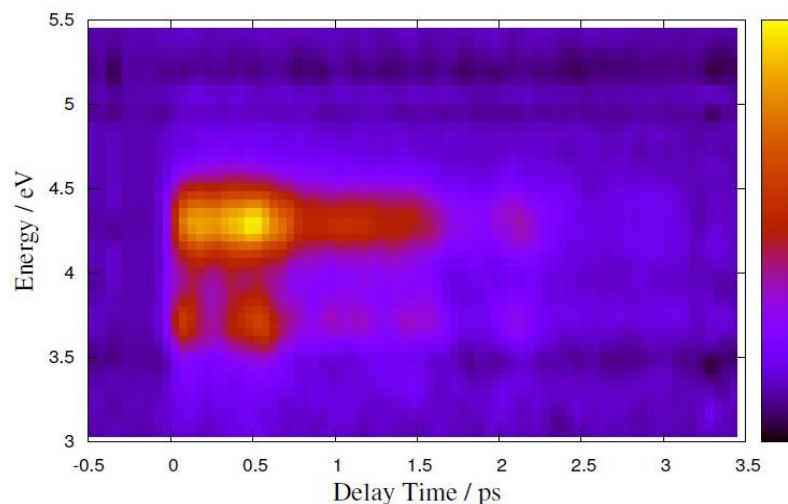


図1 光イオン化積分断面積の時間-エネルギーマップ

【参考文献】 [1]Stefan Glib, Elva A Torres and Stefan Leone 2006 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys 39 4231 [2]Shunsuke Adachi, Takuya Horio and Toshinori Suzuki 2012 Optics Letters 37 2118 [3]Takuya Horio, Takao Fuji, Yoshi-ichi Suzuki and Toshinori Suzuki 2009 J. Am. Chem. Soc. 131 10392 [4]Gustavo A. Garcia, Laurent Nahon and Ivan Powis 2004 Rev. Sci. Instrum 75 4989