

1A12

高次高調波を用いた窒素分子の振動波束の生成および観測

(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*

Generation and observation of vibrational wavepacket in nitrogen molecule by high harmonic pulses

(RIKEN RAP*, Univ. Tokyo**) ◦Tomoya Okino*, Yusuke Furukawa*, A. Amani Eilanlou*,

Yasuo Nabekawa*, Eiji J Takahashi*, Kaoru Yamanouchi**, Katsumi Midorikawa*

【序】分子内の核・電子ダイナミクスを調べるためには、アト秒パルスを用いたポンプ・プローブ計測が有効である[1]。アト秒パルスは、広帯域の真空紫外から軟 X 線領域の光であるため、振動波束・電子波束の生成および観測に適した光源である。振動波束および電子波束の同時観測は、実時間領域での分子内の電子状態間電荷移動および多原子分子における核と電子の運動相関を理解する上で不可欠である[2]。これまで振動波束は、振動周期よりも短いパルス幅を持つ短波長光で生成後、その時間発展を高強度近赤外数サイクルパルスによるイオン化で生じたフラグメントイオンおよび光電子の運動エネルギー分布の時間変化を観測することで行われてきた。しかしながら、高強度近赤外数サイクルパルスを用いた振動波束の観測については、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分子ポテンシャルの擾乱を避けることができない問題がある。そこで本研究では、ポンプ光およびプローブ光ともに、包絡線のパルス幅が 5 フェムト秒以下の高強度アト秒パルス列 (APT) を用いて窒素分子の振動波束生成および観測を行った。

【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) [3]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。APT は 19 次までの高調波で構成されており、包絡線のパルス幅は、5 フェムト秒以下である。また APT を構成する各々のアト秒パルスのパルス幅は、400 as 程度である。発生した APT は、2 枚のシリコン平面鏡によって空間分割し、速度投影型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) を用いてピエゾバルブを用いて導入された窒素分子線 (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蛍光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。2 枚の Si 平面鏡のうちの片側を 1120 nm 刻み動かすことによって、2 つの APT の遅延時間 Δt を 2 fs 刻みで -10 fs から +400 fs まで走査した。

【結果と考察】窒素原子イオン N^+ の運動エネルギー分布の遅延時間依存性 $I(E, \Delta t)$ を図 1(a) に示す。窒素原子イオン N^+ は、1 光子吸収および 2 光子吸収過程のいずれでも生成する。2 光子吸収過程で生成した窒素原子イオンのみが、遅延時間 Δt に依存する。運動エネルギーによって異なる信号量の変調が確認された。この信号量変調を定量的に評価するためにフーリエ変換を行い、図 1(b) に示す運動エネルギー分解周波数スペクトルを得た。

振動周期が 15-20 fs に確認されたピークについては、窒素分子イオン (N_2^+) の電子状態 ($X^2\Sigma_g^+$, $A^2\Pi_u$, $B^2\Sigma_u^+$) に生成した振動波束として帰属される。すなわち、11 次以上の高調波によって、 $X^2\Sigma_g^+$ 状態および $A^2\Pi_u$ 状態の場合に振動波束が生成される。一方、13 次以上の高調波によって、 $B^2\Sigma_u^+$ 状態の場合に、振動波束の生成が可能である。

振動周期が 55 fs 付近に確認されたピークについては、中性窒素分子の電子励起状態 ($b^1\Pi_u$) に生成した振動波束の量子ビート ($\Delta v=1$) として帰属される。この中性電子状態における振動波束の生成には、主に 9 次の高調波が関与する。なお、振動周期が 28 fs 付近に確認されたピークについては、中性窒素分子の電子励起状態 ($b^1\Pi_u$) に生成した振動波束の量子ビート ($\Delta v=2$) に帰属される。プローブ光の波長および窒素分子イオンの解離性ポテンシャルによって、生成する窒素フラグメントイオンの運動エネルギーが決定される。振動波束の生成および観測に関連するポテンシャルは図 2 にまとめられる[4]。

次に、フラグメントイオンの角度分布の遅延時間依存性 $J(E, \Delta t)$ について議論を行う。角度分布は電子遷移の対称性に関する情報を与える。2光子吸収過程で生成するフラグメントイオンの角度分布は一般的に、 $P(\theta) = 1 + \beta_2 P_2(\cos\theta) + \beta_4 P_4(\cos\theta)$ で表記される。ここでは、 $\langle \cos^2\theta \rangle = \int P(\theta) \cos^2\theta \sin\theta d\theta / \int P(\theta) \sin\theta d\theta$ で角度分布を定量的に評価した結果を図 1(c) に示す。さらに、この信号量変調を定量的に評価するためにフーリエ変換を行い、図 1(d) に示す運動エネルギー分解周波数スペクトルを得た。

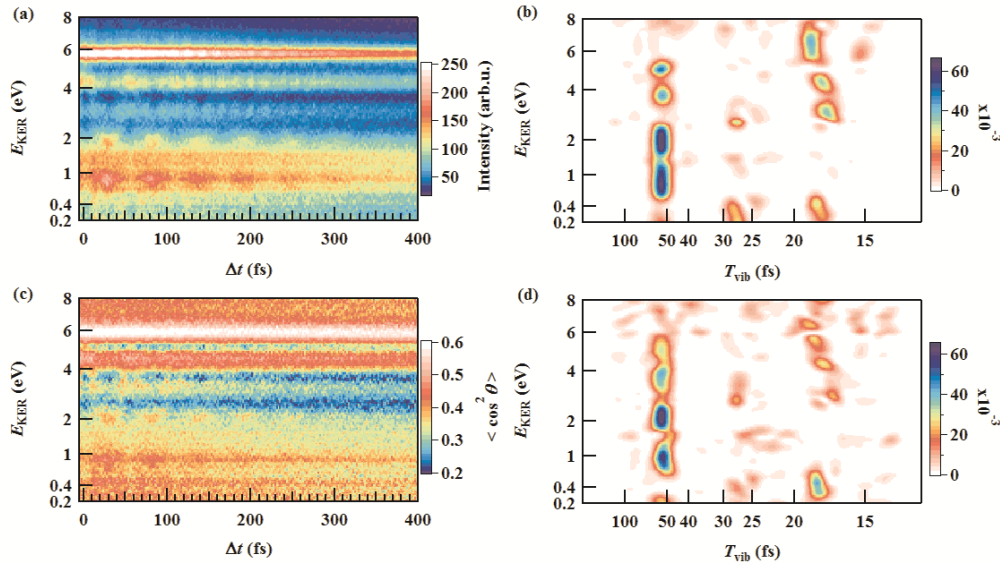


図 1: (a) 窒素原子イオンの運動エネルギー分布の遅延時間依存性: $I(E, \Delta t)$, (b) (a) のフーリエ変換運動エネルギー分解周波数スペクトル, (c) 窒素原子イオンの異方性パラメータ $\langle \cos^2\theta \rangle$ の運動エネルギー・遅延時間依存性 $J(E, \Delta t)$, (d) (c) のフーリエ変換運動エネルギー分解周波数スペクトル。周波数スペクトルは、各運動エネルギーについて規格化。

フラグメントイオン角度分布の遅延時間依存性 $J(E, \Delta t)$ の解析より、振動波束のプロープ過程の帰属が可能となる。例えば、 $E_{\text{KER}} = 0.5$ eV の場合、 $A^2\Pi_u$ 状態から解離性の $D^2\Pi_g$ 状態へ 5 次高調波で励起され (π - π 遷移)、 L_1 解離限界で解離が進行し生成した窒素原子イオンと帰属される。

一方、 $E_{\text{KER}} = 1.4$ eV の場合、 $A^2\Pi_u$ 状態から解離性の $F^2\Sigma_g^+$ 状態へ 7 次高調波で励起され (π - σ 遷移)、 L_3 解離限界で解離が進行し生成した窒素原子イオンと帰属される。

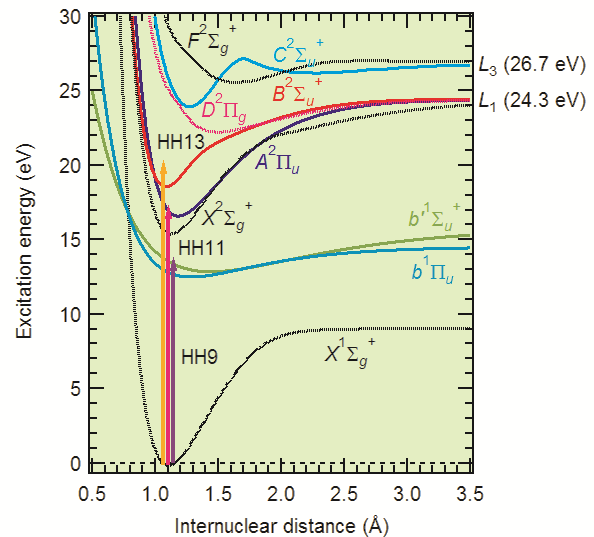


図 2: 振動波束生成に関与する窒素分子および窒素分子イオンのポテンシャル図

[1] F. Lépine, M.Y. Ivanov, M.J.J. Vrakking, *Nat. Photon.* **8**, 195 (2014).
 [2] F. Remacle, R.D. Levine, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **103**, 3793 (2006).
 [3] Y. Nabekawa *et al.*, *Appl. Phys. B*, **101**, 523 (2010).
 [4] T. Aoto *et al.*, *J. Chem. Phys.* **124**, 234306 (2006).