

高次高調波時間分解分光による水素分子イオンの振動波束運動の観測

(理研光量子工学*, 東大院理**) ○古川裕介*, 沖野友哉*, アamani・イランル*,
鍋川康夫*, 高橋栄治*, 山内薫**,*, 緑川克美*

High-harmonics Time-Resolved Spectroscopy to Observe Vibrational Wavepacket Motion of H_2^+

(RIKEN RAP*, Univ. Tokyo**) ○Yusuke Furukawa*, Tomoya Okino*, A. Amani Eilanlou*,
Yasuo Nabekawa*, Eiji J. Takahashi*, Kaoru Yamanouchi**,*, Katsumi Midorikawa*

【序】短パルスレーザーの高次高調波発生によって極端紫外領域におよぶ短波長超短パルスを生じることができる。しかしながら極端紫外領域における分子のフェムト秒ダイナミクスの観測には、近赤外超短パルスの強レーザー電場による非線形過程がしばしば用いられる。水素分子イオンの振動波束・回転波束の時間発展の観測では、量子波束の生成に強レーザー電場を用いた実験の他にアト秒パルスを用いた実験が報告されている[1,2]。我々は、高次高調波パルス対を用いたポンプ・プローブ測定によって水素分子イオンの振動波束の時間発展の時間分解測定について報告している[3]。図1に水素分子イオンの振動波束の時間分解測定の励起スキームを示す。水素分子イオンの振動波束の生成には、11次以上の高次高調波が作用しているが、プローブ過程では励起状態が反発型ポテンシャルであるため、高調波の次数が高いほど短い核間距離での水素分子イオンの観測が可能である。これまでは5次高調波 ($E_{hv} = 7.7$ eV) までのプローブ過程としてポテンシャルの外側転回点の水素分子イオンを観測していた。本研究では、高次高調波パルス対を用いたポンプ・プローブ時間分解分光において核間距離の短い水素分子イオンを選択的に励起できると予測される高次の高調波によるプローブ過程に注目した。特に中性水素分子の Franck-Condon 領域にある水素分子イオンの検出を試みた。本予稿では、重水素分子(D_2)を試料としたときの結果について述べる。

【実験】15 フェムト秒以下のパルス幅を持つチタンサファイアレーザーパルス ($E_{hv} = 1.55$ eV) を凹面ミラー ($f = 5$ m) で Xe ガスセル中に集光し、高次高調波発生をおこなった。発生した高次高調波パルス対を2枚のSi平面ミラーからなる高調波ビームスプリッターで反射して空間的に二分された高次高調波パルス対を生成した。ピエゾ駆動ステージに載せた片方のSi平面ミラーの位置を制御してパルス対に相対遅延を与えそれぞれポンプ光とプローブ光とした。高次高調波パルス対はSiC凹面ミラー ($f = 10$ cm) を用いてピエゾ駆動パルスバルブによって導入した D_2 分子線に集光した。ポンプ光の吸収によって D_2 はイオン化して D_2^+ の $1s\sigma_g$ に振動波束が生成する。ある時間遅延の後に照射されるプローブ光によって D_2^+ は解離性ポテンシャル $2p\sigma_u$ に励起されて解離する。イオン運動量画像計測装置を用いて生成した D^+ の角度分解運動エネルギー分布を測定した。ポンプ光とプローブ光の相

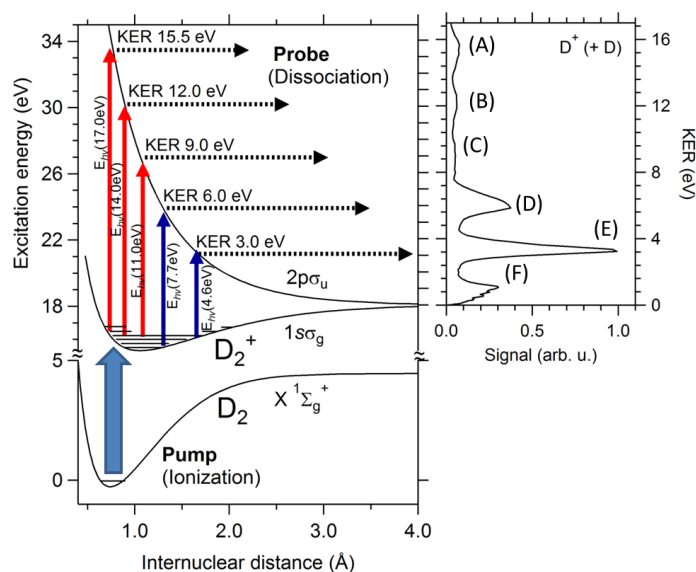


図1. 水素分子イオン(D_2^+)の振動波束の時間分解測定の励起スキーム。これまでに観測されているプローブ過程(青矢印)と本研究で報告するプローブ過程(赤矢印)。右図は、解離生成物イオン(D^+)の運動エネルギー分布。

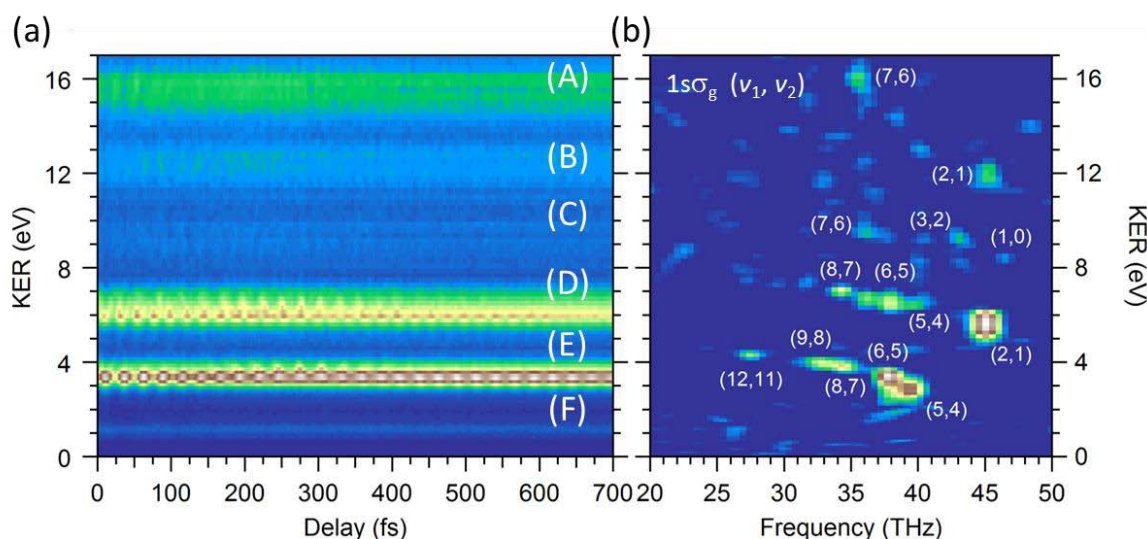


図 2. (a) D_2^+ 解離の運動エネルギー分布 (KER) の高次高調波パルス対の遅延時間依存性と (b) その遅延時間依存性のフーリエ変換周波数スペクトル。図 1 右図の KER 分布の帰属 (A)-(F) に対応するピークは遅延時間に対して周期的な信号変化が観測される。これらの信号変化をフーリエ変換して得た周波数ピークに対応する量子ビートを生じる D_2^+ の $1s\sigma_g$ の振動準位の組み合わせ (v_1, v_2)。

対遅延を掃引することによって、 D^+ の時間分解運動エネルギー分布を得た。

【結果と考察】図 1 右図に解離した D_2^+ の運動エネルギー (KER) 分布を示す。KER は解離生成物 D^+ の持つ運動エネルギーの 2 倍の値である。KER 分布には、6 つのピーク (A)-(F) が観測された。低エネルギーの 3 つのピーク (D)-(F) は、5 次高調波 ($E_{h\nu} = 7.7$ eV)、3 次高調波 ($E_{h\nu} = 4.6$ eV)、基本波 ($E_{h\nu} = 1.55$ eV) による $2p\sigma_u-1s\sigma_g$ 遷移による解離過程と帰属されている [3]。KER の最大値は 16 eV に達し、高調波次数にして 10 次を超える高い光子エネルギーによって励起された解離過程の観測ができたことが分かる。それぞれの解離過程に関与している高調波次数を知るためにポンプ光とプローブ光が時間的に重なる遅延時間の小さな範囲 (-7 fs ~ +7 fs) について非線形フーリエ変換分光をおこなった [4]。KER ピーク (A)-(F) のすべてに高調波の各次数に対応する周波数ピークが観測され、KER ピーク (A)-(F) の解離過程は KER の高いピークから順に 11 次から 1 次 (基本波) までの高調波による一光子吸収過程であることが確認された。

高次高調波パルス対の遅延時間をパルス幅よりも大きくしていくと、ポンプ・プローブ時間分解測定となる。図 1 に示したプローブ光での $2p\sigma_u-1s\sigma_g$ 遷移による解離過程により振動波束の時間発展が運動エネルギーの時間依存性として観測される。図 2(a) に示した KER 分布の遅延時間依存性に見られる KER ピーク (A)-(E) には、それぞれ振動量子ビート周波数に対応する周期的な信号変化が観測された。これらの周期構造を詳細に解析するためにフーリエ変換によって図 2(b) のような KER 分解周波数スペクトルを得た。周波数スペクトルに観測されたピークは、 D_2^+ の振動準位間のエネルギー差に相当する量子ビート周波数であり、その帰属を (v_1, v_2) として図 2(b) に示した。高い KER ピーク (A)-(C) の周波数ピークは、元の信号量が弱く振動準位の組がわずかしこ現れていないが、数値シミュレーション結果との比較も行い図 1 左図のように核間距離の短い D_2^+ の振動波束を励起した解離過程であると結論できる。高次高調波フーリエ分光によって、極端紫外短パルスのポンプ・プローブ過程の検出に成功するとともに、水素分子イオンの振動波束の時間発展を 3 次高調波から 11 次高調波までの広範囲にわたる波長のプローブ光によって核間距離選別して同時計測した。

【参考文献】

- [1] C.R. Calvert, W.A. Bryan, W.R. Newell, and I.D. Williams, Phys. Rep. **491**, 1 (2010).
- [2] F. Kelkensberg, C. Lefebvre, W. Siu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 123005 (2009).
- [3] Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino *et al.*, Opt. Lett. **37**, 2922 (2012).
- [4] T. Okino, K. Yamanouchi, T. Shimizu *et al.*, J. Chem. Phys. **129**, 161103(2008).