極紫外レーザー高次高調波による N₂リュードベリ波束ダイナミクスの 実時間追跡

(名大院理¹, INRS-EMT²) 〇伏谷瑞穂¹, 樋田裕斗¹, François Légaré², 菱川明栄¹

Real-time probing of N₂ Rydberg wavepacket dynamics by EUV laser high harmonics (Nagoya Univ.¹, INRS-EMT²) OMizuho Fushitani¹, Yuto Toida¹, François Légaré², and Akiyoshi Hishikawa¹

【序】近年のレーザー高次高調波発生の技術進歩により,極紫外(EUV)域における超短パル スの発生が可能となり,今までアルカリ金属原子などに限られていたリュードベリ状態電子 波束ダイナミクスの実時間追跡を様々な原子・分子に対しても適用できるようになった[1,2]。 有効主量子数 nが5~20 程度のリュードベリ状態における周回周期はフェムト秒のオーダー であるため,リュードベリ分子における量子波束は電子波束だけではなく,核波束の運動が 競合した複雑な振舞を示すことがわかってきた[3]。本研究では,異なるイオン化電子状態に 収斂するリュードベリ状態における電子-核波束の実時間追跡を目指し,高励起 N₂分子の時 間分解光電子分光を行なった。

【実験】高強度近赤外フェムト秒レーザー(800 nm, 40 fs, 2 mJ/pulse, 1 kHz)の出力の 一部(1.8 mJ)を β -BBO 結晶に入射し,波長 400 nm のレーザーパルスを発生させた。こ の 400 nm のレーザーパルスを平凸レンズ(f = 500 mm)を用いて高真空チャンバー内の高 調波セル(媒質: Kr, ~15 Torr)中に集光し,高次高調波を発生させた。その際,光学窓やレン ズなどによる 400nm 光のパルス幅広がりを避けるため,紫外チャープミラー(-18 fs² /反 射)による分散補償を行った。発生した高調波パルスから厚さ 0.1um のインジウム薄膜フィ ルター用いて第 5 次高調波のみを選択的に透過させ,波長~80 nm の EUV パルスを得た[4]。 この単一次数 EUV パルスを凹面鏡(f = 650 mm)を用いて N₂分子に集光し,X² Σ_g⁺状態お よび A² Π_u状態に収斂するリュードベリ状態に電子-核波束を生成した(図 1(a))。このリュ ードベリ波束のダイナミクスをプローブするため,近赤外フェムト秒レーザーの残りの出力 をイオン化光源として用い,これによって生成した光電子を磁気ボトル型光電子分析器を用 いて測定した。

【結果と考察】ポンプ・プローブ時間遅延が $\Delta t = 190$ fs のときの光電子スペクトルを図 1 (b) に示す。光電子スペクトルには、約 0.27 eV のエネルギー間隔をもつ光電子ピークが5本観 測された。これらのピークは N_2^+ 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]。EUV ポンプ光 (~80 nm) により励起される主なリュードベリ状態は N_2^+ の X 状態に収斂する 9p π (v' = 0), 6p π (1), 5p π (2), 4p π (4), 8f(0)および A 状態に収斂 する 3d *ð* (1)準位であり[5], これらリュードベリ状態から各イオン終状態へのフランク・コンドン因子を計算した結果(図 1(b)下段)は観測された光電子ピークの強度比と良い一致を示した。

ポンプ・プローブ時間遅延 Δt を変えながら、観測された光電子ピーク強度の時間変化を計 測したところ、各光電子ピークは周期約 300 fs の明瞭なビート構造を示した。このうち、v" = 0-3の光電子ピークは Δt = 0 fs において最大値となるビート信号を示したが、v" = 4 の光 電子ピークは Δt = 0 fs において最小値となる、逆位相の振舞いを示すことが明らかとなった (図 1 (c))。ポンプ光で励起された X 状態に収斂するリュードベリ状態のうち、4p π (4)準位は A 状態に収斂する 3d δ (1) 準位と相互作用していることが示されており[6]、v" = 4 のビート 信号の位相反転は 3d δ (1) 準位との状態混合の結果を反映していることが示唆された。



図 1 (a)極紫外(80 nm)ポンプ・近赤外(800 nm)プローブによる窒素分子の2色2光子イオン化の実験スキーム。 青矢印はポンプ光,赤矢印はプローブ光を表す。

(b)ポンプ・プローブ遅延時間 $\Delta t = 190$ fs における 2 色 2 光子光電子スペクトル(上図), ポンプ光により励起されたリュードベリ状態と各イオン終状態間のフランク・コンドン因子の計算結果(下図)

(c) v" = 0(黒)および v" = 4(赤)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)

【参考文献】

- [1] E. Gagnon, et al., Science **317** 1374 (2007).
- [2] I. Liontos, et al., Opt. Lett. 35 832 (2010).
- [3] 樋田ら, 2013 年 第7回分子科学討論会 2P019.
- [4] M. Fushitani, A. Matsuda and A. Hishikawa, Opt. Express 19 9600 (2011).
- [5] K. P. Huber et al., J. Chem. Phys. 131, 084301 (2009).
- [6] Ch. Jungen et al., J. Chem. Phys. 118, 4517 (2003).