

3A08

高強度アト秒パルス列を用いた窒素分子におけるアト秒電子波束の観測

(理研光量子工学*, 東大院理**) ◦沖野 友哉*, 古川 裕介*, 鍋川 康夫, 宮部 俊吾,
アマニ イランル*, 高橋 栄治*, 山内 薫**, 緑川 克美*

Observation of attosecond electron wavepacket in a nitrogen molecule with an intense attosecond pulse train

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

【序】広帯域の極短パルス光であるアト秒パルスもしくは高強度の近赤外フェムト秒パルスを分子に照射すると分子の複数の電子状態を同時に励起し、電子波束を生成することができる。例えば、高強度フェムト秒パルスを分子に照射すると、複数の電子軌道 (HOMO, HOMO-1, ...) から同時にトンネルイオン化を誘起することが可能であり、アト秒領域の電子波束を生成することが可能である[1]。アミノ酸分子にアト秒パルスを照射すると複数の一価イオンの電子状態を生成することが可能であり、数フェムト秒の電子波束が生成されることが報告されている[2]。電子波束を生成することによって、核の運動を伴わない電子相関によって駆動される電荷移動を誘起することが可能である[3]。

これまで、アト秒領域の分子における電子波束の時間発展の観測については、時間分解光電子スペクトルを観測する方法[4]と高次高調波スペクトルを観測する方法[5]が提案されてきたが、実験で直接的に観測された例は報告されていない。本研究では、ポンプ光およびプローブ光ともに、数サイクルアト秒パルス列 (APT) を用いることで、窒素分子におけるアト秒電子波束の観測を行った。

【電子波束の生成・観測スキーム】分子内の電子波束の時間発展を観測するにあたり、今回は窒素分子を用いた。窒素分子は、分子の中で最も大きいイオン化エネルギーを有する分子の一つであるため、本実験で用いる APT の波長分布では、1 光子吸収で 2 価イオンが生成することは無視できる。まず、アト秒パルスを照射することによって、窒素分子の中性および一価の束縛性電子状態に振動波束を生成する。このとき、全体で見ると、複数の電子状態を同時に励起したことに相当するため、電子波束を生成したことに相当する。ポンプ光と遅延時間を置いてプローブ光を照射することによって、一価イオンの解離性電子状態に励起する。このとき、ポンプ光で励起された電子状態は 1 光子遷移の遷移選択則に従って、それぞれの解離性電子状態に励起され、解離性イオン化すなわちは、窒素原子イオンと中性窒素原子フラグメントを生成する解離過程が誘起される。同一の運動エネルギーを与える量子経路が複数存在する場合、ポンプ光とプローブ光の遅延時間を走査した場合に、電子応答を反映した信号量の変調が観測される。これが、本研究における電子波束の観測スキームである。

【実験】フェムト秒レーザーシステムの出力 (800 nm, 12 fs, 最大 40 mJ/pulse, 100 Hz) [6] 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、高強度の APT (包

絡線：~4 fs, パルス幅：~400 as) を発生させた。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 (MCP) 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、運動量画像として計測した。MCP にゲート電圧を印加することによって、 N^+ の運動量画像のみを抽出した。運動量画像は、科学計測用 CMOS カメラを用いて記録を行い、各フレームについてカウンティング解析を行った。

遅延時間の長時間安定性を保証するために、ピエゾステージの温度を、ペルチェユニットを用いて 0.001°C 精度で制御を行い、10 as/hour 以下の遅延時間ドリフト安定性を実現した。また、電子波束の生成にかかわる電子状態の特定のため、振動波束の時間発展の計測を行った。なお、本計測で励起およびプローブ過程に関与する中性および一価の窒素分子の電子状態については、量子化学計算ソフトウェア Molpro [7] を用いて SA-CASSCF/MRCI 法 (cc-pVTZ 基底) で計算を行った [7]。

【結果と考察】遅延時間 Δt を 2 fs 毎走査することによって得られた窒素原子イオン 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。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。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 ($b^1\Sigma_u^+$) 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。これより、中性電子励起状態 $b^1\Sigma_u^+$ と一価イオンの 4 つの電子状態 $X^2\Sigma_g^+, A^2\Pi_u, B^2\Sigma_u^+, C^2\Sigma_u^+$ で振動波束が生成されていることが明らかとなった。

一方、遅延時間 Δt を 36 as 毎走査することによって得られた運動エネルギーが 0.2 eV の N^+ の信号量変化から、4 種類の電子応答 (500 as, 770 as, 1.4 fs, 3.5 fs) に帰属される信号量の変調が確認された。講演では、これらの電子応答の帰属を中心に報告する。

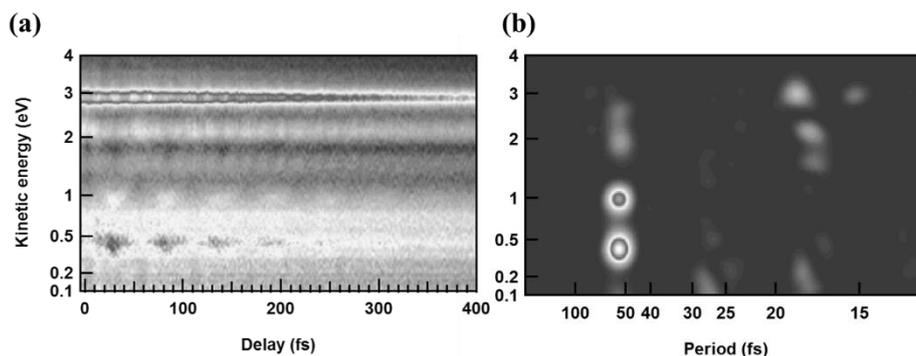


図 1: (a) 窒素原子イオン N^+ の運動エネルギー分布の遅延時間依存性 $I(E, \Delta t)$,
(b) (a) のフーリエ変換で得られる運動エネルギー分解周波数スペクトル

[1] S. Haessler *et al.*, *Nat. Phys.* **6**, 200 (2010)., [2] F. Calegari *et al.*, *Science* **346**, 336 (2014)., [3] L.S. Cederbaum *et al.*, *Chem. Phys. Lett.* **307**, 205 (1999)., [4] A. Perveaux *et al.*, *J. Phys. Chem. A*, **118**, 8773 (2014)., [5] S. Chelkowski *et al.*, *Phys. Rev. A* **85**, 033404 (2012)., [6] Y. Nabekawa *et al.*, *Appl. Phys. B*, **101**, 523 (2010)., [7] H.-J. Werner, P.J. Knowles, G. Knizia, F.R. Manby, M. Schütz, M. & others MOLPRO, version 2012.1, a package of ab initio programs 2012.