

高強度アト秒パルス列を用いた重水素分子における 自動イオン化過程の観測

¹理化学研究所, ²JST さきがけ
○沖野友哉^{1,2}, 鍋川康夫¹, 緑川克美¹

Observation of Autoionization Processes in D₂ Molecule Investigated with Intense Attosecond Pulse Train

○Tomoya Okino^{1,2}, Yasuo Nabekawa², Katsumi Midorikawa¹
¹RIKEN Center for Advanced Photonics, Japan
²JST PRESTO, Japan

【Abstract】 We investigated the dissociative ionization processes in D₂ molecule with the pump-probe measurement using a-few-pulse attosecond pulse train by recording the delay-dependent momentum image of D⁺ fragment ions. The delay-dependent kinetic energy release distributions of D⁺ for the parallel and the perpendicular components exhibit the periodic intensity modulations. These modulations are quantitatively analyzed in the frequency spectrograms of parallel and perpendicular components. In addition to the main frequency components ascribed to the excitation to the $2p\sigma_u$ state for the parallel and $2p\pi_u$ state for the perpendicular components from the $1s\sigma_g$ state in D₂⁺ in the probe processes, the low frequency peaks are identified in the broad kinetic energy release range both for the parallel and perpendicular components. These frequency peaks are ascribed to the excitation of doubly excited states (Q₁, Q₂) with the gerade symmetry leading to the autoionization processes by the two-photon absorption processes.

【序】 高強度アト秒パルスを用いればポンプ・プローブ計測により、二原子分子における振動波束[1,2]および電子波束の実時間追跡[3]が可能である。速度投影型運動量画像計測装置を用いて、フラグメントイオンの運動量画像を計測することで、プローブ過程における電子状態の対称性を特定することが可能となる。アト秒パルスは、高い時間分解能とともに広いスペクトル帯域を有する光源であるため、分子の二電子励起状態の励起が可能となる。自動イオン化過程は二電子励起状態への励起を伴う過程で電子相関を伴うため、アト秒パルスを用いた実時間追跡を必要とする。特に分子の場合には核の自由度が存在するために、電子が放出される前に核の移動を伴い、自動イオン化を経由して生成するフラグメントイオンは運動エネルギー分布が広がることが知られている[4]。本研究では、数パルスアト秒パルス列を用いて重水素分子 (D₂) における解離性イオン化過程の観測を行い、従来は励起が困難であった2光子吸収で励起可能な *gerade* 対称性を有する二電子励起状態への遷移の観測を行った。

【実験】 フェムト秒レーザーの出力 (800 nm, 12 fs, 40 mJ/pulse, 100 Hz) を Xe ガス中に凹面鏡 ($f = 5$ m) を用いて集光照射することによって高次高調波発生過程により数パルスアト秒パルス列を発生した。時間波形は窒素分子を非線形媒質として用いたフリンジ分解自己相関法によって計測を行い、図 1 に示す基本波の半周期ごとにパルス幅 400 as のアト秒パルスが連なる包絡線の時間幅が 4 fs の数パルスアト秒パルス列であることが明らかとなった。2枚の Si 平面鏡から構成される空間分割型ビームスプリッターでポンプ光とプローブ光に分割後、速度投影型運動量画像計測装置のリペラー電極に統合されたピエゾバルブから導入された重水素分子に SiC 凹面鏡 ($f = 100$

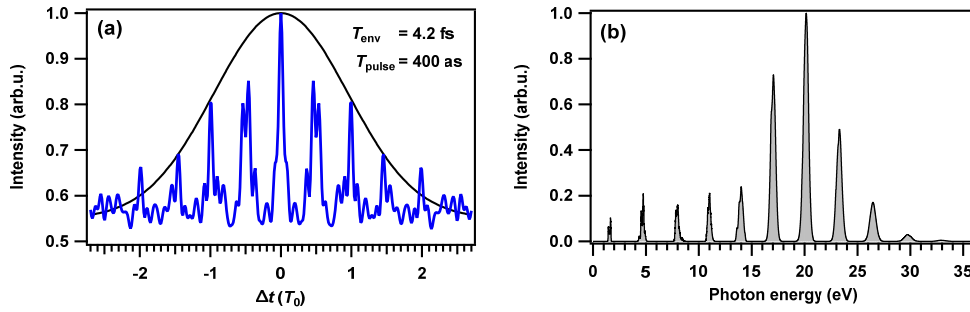


Fig. 1. (a) Interferometric autocorrelation trace of a-few-pulse attosecond pulse train (blue) and the envelope of a-few-pulse attosecond pulse train (black). (b) Harmonic intensity distribution at the focal region.

mm) を用いて集光照射した。集光領域における数パルスアト秒パルス列を構成する波長分布は図 1(b)に示すとおりであり、1 光子吸収では重水素分子の 2 電子イオン化の寄与が無視できる。ポンプ・プローブ遅延時間を -7 から 7 fs まで 36 as ごとに走査し重水素イオン (D^+) の運動量画像の計測を行った。

【結果・考察】 本計測に関連する D_2 , D_2^+ のポテンシャルを図 2(a)に示す。図 2(b)および 2(c)に、レーザー偏光方向と平行および垂直方向に放出された D^+ の運動エネルギー分布の遅延時間依存性を示す。図 2(b)と 2(c)をそれぞれフーリエ変換することで得られる 2(d)と (e)に示す運動エネルギーに依存する周波数スペクトルからは、(i) D_2^+ の $1s\sigma_g$ 状態の核分布の一価イオンの解離性電子状態 $2p\sigma_u$ (平行方向), $2p\pi_u$ (垂直方向) への部分投影に帰属される周波数ピークと(ii)2 光子吸収で励起される *gerade* 対称性を有する二電子励起状態 Q_1 , Q_2 への励起に帰属される周波数ピークが確認された。高強度アト秒パルスを用いることで、2 光子吸収を必要とする自動イオン化につながる二電子励起状態準位への励起が可能であることを示した。

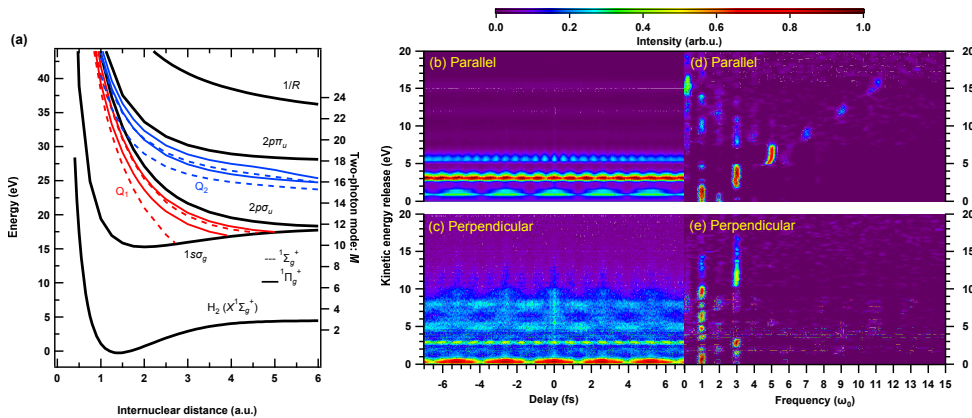


Fig. 2. (a) Potential energy curves of D_2 and D_2^+ . (b), (c): Delay-dependent kinetic energy release (KER) of D^+ ions for (b) parallel and (c) perpendicular directions. (d), (e): KER-frequency spectrogram for (d) parallel and (e) perpendicular directions.

This work was supported by JST PRESTO Grant Number JPMKPR15P6, Japan.

【参考文献】

- [1] Y. Nabekawa *et al.*, *Nat. Commun.* **6**, 8197 (2015)
- [2] Y. Nabekawa *et al.*, *Nat. Commun.* **7**, 12835 (2016)
- [3] T. Okino *et al.*, *Sci. Adv.* **1**, e1500356 (2015).
- [4] J. Fernandez *et al.*, *New. J. Phys.* **11**, 043020 (2009).