15 fsレーザー高調波パルスを用いた

窒素分子の解離性イオン化ダイナミクスの追跡

沖野友哉^{1,2}、古川裕介¹、鍋川康夫¹、アマニ・イランル¹、山内薫^{1,2}、緑川克美¹

1. 高強度軟 X 線アト秒パルス研究チーム、2. 東京大学大学院理学系研究科

高強度の高次高調波(集光強度:>10¹³ W/cm²)を用いれば、軟X線から真空紫外領域におい て、原子・分子の2光子吸収過程を誘起することが可能である。これまで、我々は、分子の2光 子吸収過程を用い、フリンジ分解自己相関計測を行えば、アト秒パルスの電場波形をキャラクタ リゼーションすることが可能であることを示す[1]とともに、分子の非線形応答が畳み込まれてい るため、軟X線から真空紫外領域における2光子吸収スペクトルを計測することに応用できるこ とを明らかにしてきた[2]。この計測法を我々は、アト秒非線形フーリエ分光法(Attosecond Nonlinear Fourier Transform Spectroscopy; A-NFTS)と呼んでいる[3]。これまでは、飛行時間型質 量分析装置を用いてイオンの収量を2つの高調波パルスの遅延時間の関数*I(E, n)*として計測を行 ってきたが、速度投影型運動量画像計測装置(VMI)を用いれば、イオン収量の情報に加えて、 角度分布に関する情報を得ることができる。一般的に、フラグメントイオンの親イオンの寿命が、 回転寿命と比べて十分に短い場合、すなわち、axial recoil approximation が成り立つ場合、フラグ メントイオンの角度分布は、電子状態の対称性に関する情報を含んでいる。すなわち、角度分布 の変化は分子の電子状態を鋭敏に反映することが期待される[4]。

平成 24 年度前期は、シングルショット運動量画像計測装置(ss-VMI)を開発するとともに、 15 fs レーザーを用いて高次高調波を発生し、窒素分子の解離性イオン化ダイナミクスをアト秒非 線形フーリエ分光法で調べた。

(1) シングルショット運動量画像計測装置の開発

VMI で用いられる検出器(蛍光面つきマイクロチャンネルプレート)上に得られる運動量画像は、蛍光面上の輝点サイズが畳み込まれたものとなり、運動量の分解能低下の原因となる。また、運動エネルギーの高い成分の信号は、信号の強い運動エネルギーの低い成分由来の明るさで埋もれるという問題点があった。そこで、高ダイナミックレンジ(16 bit)と高速読み出し(最大 100 fps @ 1396*1040)を兼ね備えた科学計測用 CMOS カメラを新たに導入し、パルスごとにイメージデータを取得し、カウンティング処理を行った。これにより、検出器の感度ムラの影響を抑えるとともに、ダイナミックレンジの大きい計測が可能となった。ss-VMI では、運動量保存の条件を満たすイベントのみの抽出も可能であり、窒素原子イオンN⁺が、N₂⁺からの解離性イオン化(N₂⁺ \rightarrow N⁺ + N)で生成したか、それとも、N₂²⁺からのクーロン爆発過程(N₂²⁺ \rightarrow N⁺ + N⁺)で生成したものであるかの判別が可能であるという特徴を有する。

(2) 窒素分子の解離性イオン化ダイナミクスの観測

チタンサファイアレーザー出力(中心波長 800 nm, 15 fs, 15 mJ/pulse, 100 Hz)を、焦点距離 5 m の凹 面鏡でキセノンガスセル中に集光し、チタンサファイアレーザーを基本波として3 次~21 次の高次高調 波を発生させた。高次高調波パルスは 2 枚のシリコン板によって空間的に 2 分割するとともに基本波を 減衰させた後、ss-VMI 計測装置に導入した。サンプルである窒素分子は、パルスバルブを用いて集光 点の近傍に設置したガラスキャピラリーを通して導入を行った。高次高調波は、SiC 凹面鏡(焦点距離: 100 mm)によって、高次高調波対を窒素分子線に集光し、生成したフラグメントイオンの 2 次元運動量画 像の計測を行った。マイクロチャンネルプレートにゲート幅 250 ns のゲート電圧を印加することによって、 窒素原子イオン(N⁺)由来の信号のみを抽出した。A-NFTS を行うために、ピエゾステージに取り付けた

図1に得られた運動エネルギー依存フリ ンジ分解自己相関波形 I(E, t)を示す。遅 延時間での変化とともに、信号の変調が見 られる。この変調パターンを解釈するため、 2次元フーリエ変換を施し、運動エネルギ 一依存周波数スペクトルI(E, w)に変換した ものを図1(b)に示す。ここでは、5つの運 動エネルギーの場合(A: 0.5 eV, B: 1.0 eV, C: 1.5 eV, D: 2.0 eV, E: 2.5 eV) についての 周波数スペクトルを示す。奇数次のピーク は、電場干渉フリンジに由来する。一方、 偶数次のピークは、アト秒パルス列の包絡 線に由来する。運動エネルギー増加ととも に、5次由来の電場フリンジが減少し、11 次由来の電場フリンジが強く現れている。 窒素原子イオン N⁺の運動エネルギーによ って異なる周波数スペクトルが得られてお り、これらは、窒素分子の解離性イオン化 過程について、フラグメントイオンの運動エ ネルギーごとの、異なる分子応答を計測し たことに対応する。

参考文献

[1] Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K.
Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, K.
Midorikawa, *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 153904 (2006).

[2] T. Okino, K. Yamanouchi, T. Shimizu, R. Ma, Y. Nabekawa, K. Midorikawa, J. Chem. Phys. 129, 161103 (2008).



図1: (a) アト秒パルス列のフリンジ分解自己相関 波形。縦軸は、フラグメントイオンN⁺の運動エ ネルギー。

(b) フリンジ分解自己相関波形のフーリエ変換周 波数スペクトル。 *w*0 は基本波の周波数を表す。

[3] Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino, A.A. Eilanlou, E.J. Takahashi, P. Lan, K.L. Ishikawa, T. Sato, K. Yamanouchi, K. Midorikawa, *Opt. Lett.*, **37**, 2922 (2012).

[4] G. Wu, P. Hockett, A. Stolow, Phys. Chem. Chem. Phys., 13, 18447 (2011).