

# アト秒パルス列によって生成された振動波束の非自明な位相変調 Nontrivial phase modulation of a vibrational wavepacket generated with an attosecond pulse train

○鍋川康夫<sup>1</sup>、古川裕介<sup>1</sup>、沖野友哉<sup>1</sup>、アマニ・イランル<sup>1</sup>、高橋栄治<sup>1</sup>、  
 山内薫<sup>2</sup>、緑川克美<sup>1</sup>(1. 理研光量子、2. 東大理)

○Yasuo Nabekawa<sup>1</sup>, Yusuke Furukawa<sup>1</sup>, Tomoya Okino<sup>1</sup>, A. Amani Eilanlou<sup>1</sup>, Eiji J. Takahashi<sup>1</sup>,  
 Kaoru Yamanouchi<sup>2</sup>, Katsumi Midorikawa<sup>1</sup>, (1. RIKEN, 2. U. Tokyo)

E-mail: nabekawa@riken.jp

我々はチタンサファイアレーザー（パルス幅約 14fs, パルスエネルギー約 20mJ）の基本波から 19 次高調波で構成される “a-few-pulse” アト秒パルス列 (APT) を用いた pump-probe 型の測定方法によって、水素/重水素イオン ( $H_2^+/D_2^+$ ) の振動波束の実時間測定に成功している<sup>1,2</sup>。この実験系では、pump APT に含まれる 11 次以上の高次高調波成分によって  $H_2/D_2$  をイオン化し、 $1s\sigma_g$  状態の核波束振動をスタートさせる。遅延  $\tau$  後に probe APT を照射する事でこれを  $2p\sigma_u$  状態に励起し (APT に含まれる 3 次、及び 5 次高調波成分による)、乖離させる。 $\tau$  を掃引しながら乖離した  $H^+/D^+$  イオンの運動エネルギースペクトル (=開放運動エネルギー (KER)/2) を測定する事により、乖離イオン生成量の遅延-KER の 2 次元スペクトルグラムを得ることができた<sup>1,2</sup>。時刻  $t$ 、核間距離  $R$  での振動波束の振幅を  $\varphi((R, t) = \sum_{\nu} a_{\nu} \chi_{\nu}(R) e^{-i\omega_{\nu} t}$  で表した時、 $\nu$  次の振動状態の初期振幅  $a_{\nu}$  を、周波数分解光学ゲート法 (FROG) を用いることによって、測定した遅延-KER スペクトルグラムから再生できる事を我々は示した<sup>3</sup>。ここで  $\chi_{\nu}(R)$  と  $\hbar\omega_{\nu}$  はそれぞれ  $\nu$  次の振動波動関数とその固有エネルギーである。

本講演では、この測定で得られた初期振幅  $a_{\nu}$  の非自明な位相変調の起源について考察する。実

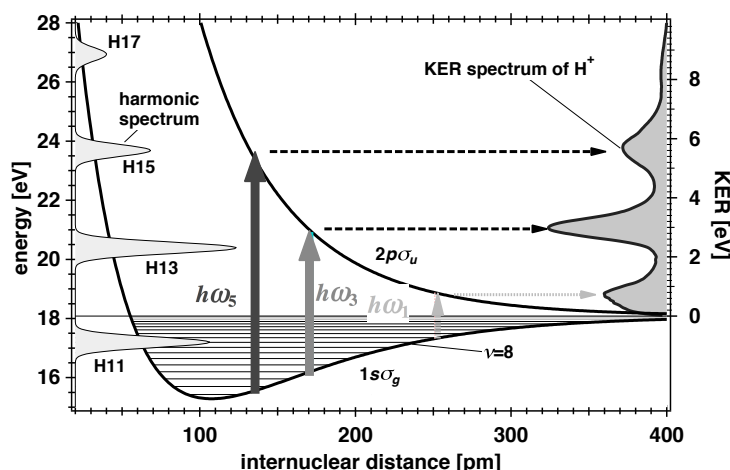


Fig. 1. Energy diagram of the relevant electronic states and APT spectrum. The peak photon energy of the 11th order harmonic field contained in the APT approximately coincides with the vibrational energy at  $\nu \approx 8$ , while those of the other harmonic components are all much higher than the dissociation limit. The phase shifts of the continuum electrons generated in the photo-ionization processes with these two kinds of harmonic component play the key role for the phase modulation in  $a_{\nu}$ . We schematically show the probe process by the arrows expressing the photon energy of the 3rd and 5th order harmonic field exciting the  $1s\sigma_g$  state to the  $2p\sigma_u$  state, resulting in the KER spectrum of fragment ions depicted at the lefthand side of the figure.

験系のエネルギーダイアグラムを Fig.1 に示す。ここで注目すべきは、中性  $H_2/D_2$  分子は 11 次高調波によってイオン化されるが、11 次高調波のピーク光子エネルギーは  $\nu = 8$  程度であり、乖離限界よりも低い位置にあるという点である。その他の高次高調波の光子エネルギーはすべて乖離限界よりも十分大きい、イオン化エネルギーよりも小さい。イオン化に際して放出される電子の位相シフトは運動エネルギーが十分小さい領域では急激に変化する事が予想されるので、11 次高調波で発生した光電子の位相シフトとそれ以外の高次高調波で発生した光電子の位相シフトの様子は大幅に異なると考えられる。APT のコヒーレンスが光電子に転写され、その終状態が連続エネルギー状態のコヒーレントな重ね合わせで記述できると仮定すると、異なる次数の高調波で生じた光電子波束の干渉により  $a_{\nu}$  の位相変調が生じる、という解釈が可能になる。

## references

1. Y. Furukawa, et al. *Ultrafast Phenomena 2014, Tech. Digest*, 09. Wed. P3.07
2. Y. Furukawa, et al. *JSAP-OSA Joint Sympo. 2014, Tech. Digest*, 17a-C4-7
3. Y. Nabekawa, et al. *JSAP-OSA Joint Sympo. 2014, Tech. Digest*, 17a-C4-9