

数パルスアト秒パルス列照射による 水素分子イオンのサブ 10fs 解離経路制御

Sub-10 fs dissociation pathway control of H_2^+ molecule using a-few-pulse attosecond pulse train with Tannor-Kosloff-Rice scheme

古川裕介^{1,2}、沖野友哉¹、○鍋川康夫¹、アマニ・イランル¹、高橋栄治¹

山内薫³、緑川克美¹ (1. 理研光量子、2. 電通大、3. 東大院理)

Yusuke Furukawa^{1,2}, Tomoya Okino¹, ○Yasuo Nabekawa¹, A. Amani Eilanlou¹,

Eiji J. Takahashi¹, Kaoru Yamanouchi³, Katsumi Midorikawa¹, (1. RIKEN, 2. UEC, 3. 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 ($\text{H}_2^+/\text{D}_2^+$) の振動波束の実時間測定¹、及び N_2/N_2^+ の振動・電子ハイブリッド波束の実時間測定に成功している²。水素イオンの実験系では、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 をイオン化し、 $1s\sigma_g$ 状態の核波束振動を最初に生成した。遅延 τ の後に probe APT を照射する事でこれを解離させ、解離した H^+ 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、解離イオン生成量の遅延-KER2 次元スペクトルグラムを得ることができた¹。これまでの実験では、第 1 励起状態である $2p\sigma_u$ に於いて解離した H^+ イオンしか観測できなかったが、APT 強度の増大を図った結果、第 2 励起状態である $2p\pi_u$ に於いて解離した H^+ イオンを観測出来る様になった。

本講演では、 $2p\sigma_u$ と $2p\pi_u$ の 2 つの解離状態に於ける H^+ イオンの生成比を、照射する APT 遅延のタイミングによって制御 (Tannor-Kosloff-Rice scheme) した結果を報告する。実験系のエネルギー

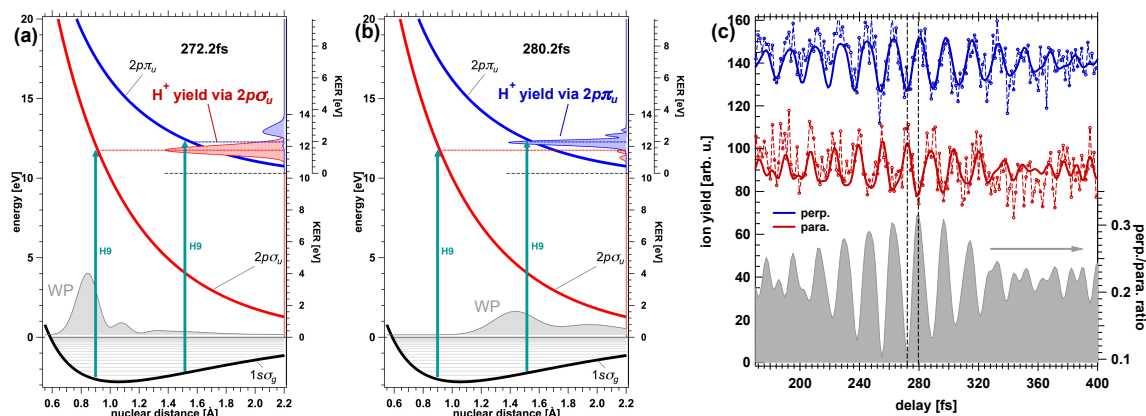


Fig. 1. (a) Dissociation pathway via $2p\sigma_u$ state with the resonant excitation of vibrational wavepacket (VWP) at the left turning point by absorbing a photon of the 9th harmonic field. (b) Dissociation pathway via $2p\pi_u$ state with the resonant excitation of VWP at the right turning point by absorbing a photon of the 9th harmonic field. (c) Experimental traces of H^+ yield for parallel (red curve) and perpendicular (blue curve) components (against the APT polarization direction) with scanning delay. We have applied a low pass filter to raw data to obtain these two traces. Branching ratio is depicted as a shaded area.

ギーダイアグラムと制御の原理を Figs.1(a),(b) に示す。 H_2^+ 振動波束の再生時刻 (約 280fs) の近くに於いて振動波束が最も原点に近づいた時に APT を照射すると APT に含まれる 9 次高調波成分の光子エネルギーが $1s\sigma_g-2p\sigma_u$ のエネルギー差に近いため、 $2p\sigma_u$ による解離 H^+ イオンがより多く生成される (Fig.1(a))。一方、振動波束が最も原点から離れた時に APT を照射すると $1s\sigma_g-2p\pi_u$ のエネルギー差が 9 次高調波成分の光子エネルギーに近くなるので、 $2p\pi_u$ による解離 H^+ イオンがより多く生成される (Fig.1(b))。実験に於いては H^+ イオンの測定に速度マップ画像 (VMI) 型のイオン分光装置を用いている。これにより、 $2p\sigma_u$ 起源の H^+ イオンは APT の偏光方向に偏って観測され (para. 成分, 生成量 $I_{\parallel}$)、 $2p\pi_u$ 起源の H^+ イオンは偏光方向に対して垂直方向に偏って観測される (perp. 成分, 生成量 $I_{\perp}$) ので、これらを区別することができる。Fig.1(c) に遅延時間 280fs 近辺で遅延を掃引した時の、 $I_{\parallel}$ (赤線)、 $I_{\perp}$ (青線)、及び分岐比 $(I_{\perp} - I_{\parallel}) / (I_{\perp} + I_{\parallel})$ (灰色ハッチ部分) を示す。分岐比は遅延時刻 272fs から 280fs の間で約 20% の変調を受けており、これは 8fs の遅延時間差によって解離経路分岐比を切り替えた事に相当している。

references

1. Y. Furukawa, et al. *Opt. Lett.* **37**, 2922 (2012); Y. Nabekawa, et. al. *Sci. Rep.* **5**, 11366 (2015); Y. Nabekawa, et al. *Nat. Commun.* **6**, 8197 (2015).
2. T. Okino, et al. *Sci. Adv.* **1**, e1500356 (2015).