

# 原子・分子のアト秒量子ダイナミクスの計測

## Observation of attosecond quantum dynamics in atoms and molecules

理化学研究所光量子工学研究領域 沖野 友哉、鍋川 康夫、<sup>○</sup>緑川 克美

RIKEN Center for Advanced Photonics, T. Okino, Y. Nabekawa, <sup>○</sup>K. Midorikawa

E-mail: kmidori@riken.jp

従来、原子核と電子の運動は、その時間スケールの違いからそれぞれ分離されて扱われてきたが、化学反応の素過程を本質的に理解する上では、それらを一貫して取り扱うことが必要であり、アト秒からフェムト秒領域の高次高調波の出現により、それがようやく可能になりつつある。本講演では、高次高調波を光源とした原子・分子のアト秒領域の量子ダイナミクスの計測について我々の最近の成果を中心に紹介する。

### 1. 高強度アト秒ビームライン

高強度サブ 15 フェムト秒レーザーシステム（中心波長 800 nm，最大パルス出力 40 mJ，繰り返し 100 Hz）の出力を焦点距離 5m の反射鏡で長さ 10cm のキセノンガスセルに集光照射することによって高次高調波を発生させる。高次高調波は、基本波の半サイクルごとに発生するため、時間波形はアト秒パルスが複数回連なったアト秒パルス列となる。基本波のパルス幅が 15 フェムト秒以下であることから、発生する高次高調波の包絡線の時間幅は約 4 fs となり、分子内で生成する振動波束（振動周期：10 fs 以上）を観測するにも十分な時間分解能を有する。このビームを同軸で二分割し、一方の遅延時間をアト秒精度で走査することにより、アト秒パルス列の電場波形の直接観測に対応するプリング分解自己相関計測が可能である。

### 2. アト秒ダイナミクスの観測

#### (1) 水素分子のイオン化に伴う振動波束形成時間

フェムト秒領域の短パルスレーザー光を分子に照射すると、複数の振動準位を同時に励起することができる。すなわち、複数の振動固有状態がコヒーレントに励起され、重ね合わせ状態である振動波束が生成される。この振動波束の時間発展を観測することは、化学反応メカニズムを理解するのみならず、反応制御を行うという点で極めて重要である。図 1 に水素分子の 1 光子イオン化に伴って形成される振動波束の各振動準位の位相と群遅延の観測結果を示す。この結果から、群遅延は  $v=3\sim 4$  付近でピークを持ち、他の準位より、1~2 fs 程度大きいことがわかる。これは  $v=3\sim 4$  付近の振動波動関数が他の準位よりも 1~2 fs 程度遅れて波束形成に参加しているという解釈が成り立つ。

#### (2) 窒素分子における電子波束の時間発展

分子における電子波束の時間発展の観測は、原子における電子波束の時間発展の観測よりも難しい。これは、分子の場合には、電子状態間のエネルギー間隔が核間距離に依存し時々刻々と変化することに起因する。我々は、XUV 光によって窒素分子に形成された電子波束の時間発展をポンプ光とプローブ光の遅延時間を 36 as ごとに走査することによって観測した。図 2 に観測されたイオン信号量とそのフーリエ変換により得られた周波数スペクトルを示す。信号の変調周期が 500 as から 3500 as にわたる 4 種類の周波数ピークが確認された。これらのピークはいずれも、窒素分子の振動周期（10 fs 以上）と比較すると周期が十分に短いことから、電子の運動由来の信号として帰属された。

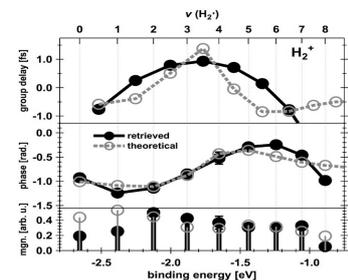


図 1. 再構築された振動振幅と位相および位相から得られた群遅延。

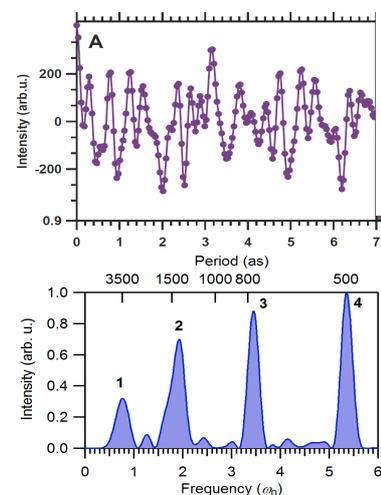


図 2.  $N^+$ イオン信号の遅延時間依存性（上）とフーリエ変換後の周波数スペクトル（下）。