

再衝突電子を用いたアト秒分子内電子波束の測定

新倉 弘倫

科学技術振興機構/カナダ国立研究機構

1. 研究のねらい

時間分解能が向上すれば、従来は観測できなかった物質の構造変化やその要因などを探ることが可能になる。フェムト秒(1 フェムト秒=10⁻¹⁵秒)領域では分子の振動運動等をリアルタイムで観測することが研究されたが、アト秒領域(1 アト秒=10⁻¹⁸秒)では、電子の運動が測定の対象となりうる。本研究では、原子や分子内を動く電子波束(束縛電子波束)の運動をアト秒の時間分解能で測定する実験手法を開発することを目的とする。そのために以下のような新規の測定法を提案する。(1) 原子分子中の電子が感じるクーロン場に匹敵する高強度を持つレーザー電場(～10¹⁴W/cm²)を測定試料となる原子分子に照射し、そこからプローブとなるアト秒の幅を持つ電子波束を生成する。(2) その電子波束を、レーザー電場の一周以内の時間で元の原子または分子に再衝突させる。(3) 再衝突の結果として生成したアト秒の幅を持つ軟X線高次高調波のスペクトルに、元の原子分子の電子運動(および振動運動)が記述される。この方法では、一回の再衝突しか起こらない電場の条件を生成する必要がある。本手法の達成のための具体的な研究項目は以下の通りである。

- (a) 高強度でのレーザーパルスのキャリアエンベロープ位相(Carrier-envelope phase, CEP)の安定化。一回だけ再衝突が起こる条件を生成するために必要。
- (b) 数サイクルしか振動しない(few-cycle laser pulse)レーザーによる単一のアト秒軟X線高次高調波パルス発生。このとき、高次高調波のスペクトルは連続になる。
- (c) そのパルスを用いたアト秒電子波束運動の測定。

2. 研究成果

(1) 量子力学的計算によるアト秒電子波束運動測定法の提案

再衝突する電子波束を用いて分子内の電子運動をアト秒の時間分解能で測定できることを、高強度レーザー電場中における時間依存のシュレーディンガー方程式を解くことにより理論的に示した。もし分子内に電子の運動(電子波束)が生成していれば、再衝突電子波束と分子内の電子波束運動との干渉により、アト秒軟X線高次高調波のスペクトルに分子内の電子運動を反映した干渉縞が生じることを見いだした。このことから、再衝突する電子波束(再衝突電子波束)は、アト秒光パルスを用いる方法と同様に、電子運動を測定できるプローブとなることがわかった。また同様の方法により、分子の最高占有軌道(HOMO)の符号を区別した三次元イメージングも可能である。

(2) 高強度でのキャリアエンベロープ位相安定化

レーザーのパルス幅が短くなると、レーザー電場の包絡線に対する電場の位相(キャリアエンベロープ位相)を安定化することが重要になる。アト秒軟X線を発生しそれを様々な応用に使用するためには、パルスあたり数mJ以上でCEPを安定化することが必要である。本研究では、クライオポンプによる結晶冷却装置を備えたレーザーシステムとCEP安定化装置を組み合わせ、2.0mJ/pulseで位相ノイズ0.35 rad(10パルス平均)の安定度を達成した。この位相ノイズ幅で、装置系を手動で調整することなく五時間以上のCEPが安定することを確認した。

(3) 単一のアト秒軟X線光パルスの発生

前項で発生させたレーザーパルス(基本波, 800nm)を、光ファイバーを用いた自己位相変調法により数サイクルまで圧縮し、気相原子または分子のイオン化—再衝突過程により高次高調波を発生させた。基本波の分散を注意深く補償し、また偏光ゲート法を適用することで、アルゴン・窒素や二酸化炭素など比較的イオン化ポテンシャルの低い原子・分子などから、数十eVにわたる連続した高調波を得ることに成功した。図1(a)に、シングルショットで測定された二酸化炭素から生成した連続した高次高調波のスペクトルを表す。これは基本波1パルスに付き、一回だけ電子の再衝突が起こっていることを示している。また(b)に、偏光ゲートをかけないときのスペクトル

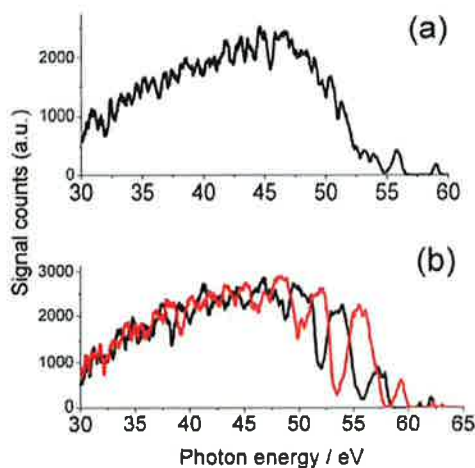


図1 (a) 二酸化炭素から生成した連続した高次高調波(単一のアト秒軟X線パルス)。(b) 二回(以上)再衝突を含む(二つ以上のアト秒軟X線高調波)を含むときのスペクトル。赤線と黒線の違いは、基本波のキャリアエンベロープ位相の違いによる。

を示す。このときには、高エネルギー領域にとびとびのスペクトルが見られ、基本波1パルスにつき二回(以上)再衝突が起こっていることがわかる。また図中の赤線と黒線は、異なるショットで測定したものだが、その違いは基本波のCEPの違いを反映している。電子運動をスペクトル上にマッピングするための基礎となる連続したスペクトルと基本波のCEPの変化を測定するための手法を得た。

(4) トランジエントレンズ法による連続した高調波の増幅
アト秒軟X線高次高調波を測定に用いる上での一つの課題は、

その変換効率(強度)を増大させることである。高次高調波発生の際相整合条件を、基本波の波面をトランジエントに歪めることで調整し、特定の波長(高エネルギー側)の強度を増大させかつ連続した軟X線高次高調波を発生する新規な方法を開発した。

(5) 電子波束の生成とその測定

基本波から第二高調波を発生させ、電子波束の生成と(3)で生成した単一のアト秒光パルスを生成するパルスを用いた測定を現在行っている。

3. 主な発表

論文

- J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pepin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum and D. M. Villeneuve, "Tomographic Imaging of Molecular Orbitals", *Nature* **432**, 867-871 (2004).
- H. Niikura, D. M. Villeneuve and P. B. Corkum, "Mapping attosecond electron wave packet motion", *Phys. Rev. Lett.* **94**, 083003 (2005).
- H. Niikura, D. M. Villeneuve and P. B. Corkum, "Controlling vibrational wave packets with intense, few-cycle laser pulses" *Phys. Rev. A* **73**, 021402(R) (2006).
- H. Niikura and P. B. Corkum, "Attosecond and Angstrom Science", *Advances in atomic, molecular and optical physics* **54**, 511-548 (2006)

招待講演

- H. Niikura, "Controlling high harmonic generation using transient lens, Attosecond physics, Dresden, Germany, Aug. 01 (2007).
- H. Niikura, "Carrier-envelope phase stabilization of an amplified laser system for attosecond measurements", Canada-Japan bilateral meeting on ultrafast intense laser science, Quebec-city, Canada, Mar. 5 (2007).
- H. Niikura, "Electron and Vibrational Wavepacket dynamics of D_2^+ with attosecond time resolution", International Symposium on Surface Science 2006 (SSP06), Sizuokushi, Jan. 12 (2006).

4. 受賞

- National Research Council, Annual Award for "A Scientific Breakthrough"受賞、「分子軌道のイメージング」(2004年12月)