

アト秒パルス列を用いた D_2 分子の非線形フーリエ分光

Nonlinear Fourier spectroscopy of D_2 molecule using APT

Objectives

我々はフェムト秒レーザー光によって発生するアト秒パルス列(APT)と分子(窒素、二酸化炭素、等)との非線形相互作用の研究を行ってきた。これら一連の研究では直線型の飛行時間測定(TOF)のイオン分光器を用いてきたが、この装置は、イオン捕集効率は高いが、イオンの初期速度の方向を一度に分解して計測できない。そこで、本研究では速度マップ画像技術を用いたイオン/電子分光器を開発し、 D_2 分子とAPTの非線形相互作用を調べた。このイオン分光器では荷電粒子の速度分布が像面に転写されるので、分子の初期速度分布を知る事が出来る。

We investigated the nonlinear response of molecules, such as nitrogen and carbon dioxide, to an attosecond pulse train (APT). A linear time-of-flight (TOF) ion spectrometer used to determine the number of ions. However it could not be used to resolve the direction for the initial velocity of the molecular ions. We have therefore developed an ion/electron spectrometer using the velocity map imaging technique. In this spectrometer, the velocities of the charged particles are mapped onto positions in the image plane. We have used this spectrometer to study the ionization/dissociation of D_2 molecules produced as a result of the nonlinear interaction with the APT

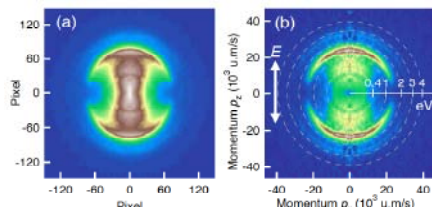


Fig. 1: (a) Image of D^+ recorded on a CCD camera. (b) Momentum distribution of D^+ reconstructed from image (a).

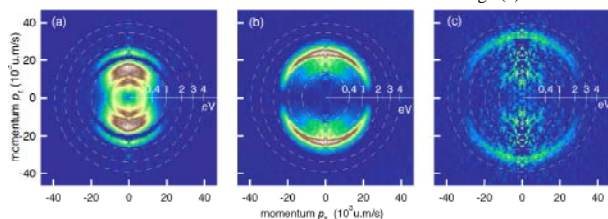


Fig. 2: Decomposed momentum distributions of D^+ , which are associated with the frequencies of (a) $1v_f$, (b) $3v_f$, and (c) $5v_f$

Achievements

- D^+ 分子イオンの速度マップ画像を検出出来た。
- 2つのAPT間の遅延掃引によって、イオンの積分強度による自己相関波形が得られたが、ここに光電場の干渉縞が現れた。周波数は運動エネルギーに依存。
- D^+ 分子の初期速度の角度分布は終状態(解離電子励起状態)が1光子吸収の遷移で生じた事を示している。その一方自己相関の干渉縞は、非線形相互作用が無ければ現れない事が分かっている。
- 以上の結果から、 D^+ 分子の生じた、イオン化/解離パスを同定し(図3参照)、パスに応じて運動量分布を3つに分解する事に成功した。自己相関の干渉縞を元にイオンの起源を同定する方法を我々は「非線形フーリエ分光と名付けた。

- We have obtained the velocity map image of the D^+ ion.
- Interference fringes on the autocorrelation signal of the integrated ion yield can be observed by scanning the delay between two APT fields.
- The frequency of the interference fringes depends on the kinetic energy region of the D^+ ion.
- The angular distributions of the D^+ ion are consistent with state transitions for one-photon absorption, whereas the interference fringes do not appear without considering nonlinear interactions.
- Using these results we have successfully determined the ionization and dissociation pathways (refer to Fig. 3), and have resolved the momentum distribution in terms of these pathways. We call this method of distinguishing ionization pathways 'nonlinear Fourier transform spectroscopy' using APT.

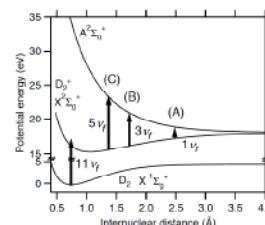


Fig. 3: Potential energy curves of D_2 . The one-photon absorption of $11v_f$ generates D_2^+ ($X_2\Sigma_g^+$), and then the $5v_f$, $3v_f$, and $1v_f$ excite D_2^+ in the $X_2\Sigma_g^+$ state to the first excited state ($A_2\Sigma_u^+$).

References

- 1) Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Interferometric autocorrelation of an attosecond pulse train in the single cycle regime," *Phys. Rev. Lett.* 97, 153904 (2006).
- 2) Y. Okino, K. Yamanouchi, T. Shimizu, R. Ma, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa, "Attosecond nonlinear Fourier transformation spectroscopy of CO_2 in extreme ultraviolet region," *J. Chem. Phys.* 129, 161103 (2008)
- 3) Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino, S. Saugout, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, submitted.