

NO A²Σ⁺状態からの光イオン化ダイナミクス

(理研) ○堀尾琢哉, 小城吉寛, 高口博志, 鈴木喜一, 鈴木俊法

【序】我々は、超短パルスレーザーにより生成される回転波束と光電子角度分布測定によって、イオン化動力学因子(Photoionization Dynamical Parameters: PDP)を決定することを試みている。具体的には一酸化窒素(NO)の Rydberg 状態 3sσ A²Σ⁺からの光イオン化過程について実験および理論の両面から検討している。

超短光パルスによる一光子遷移で励起状態に生成される分子軸分布は、励起光(直線偏光)の偏光軸からの角度を θ 、時間を t とすると次式で表される。

$$P(\theta, t) = A_0 + A_2(t)P_2(\cos\theta) \quad (1)$$

ここで $P_2(\cos\theta)$ は二次のルジャンドル関数を表し、 A_0 は定数である。 $A_2(t)$ は分子の回転定数と回転温度に対して解析的に計算される。時間 t において、偏光方向が励起光と平行なイオン化光(プローブ光)により一光子イオン化される場合、実験室系で観測される光電子角度分布(Laboratory Frame Photoelectron Angular Distribution: LF-PAD)は以下のようなになる。

$$\frac{d\sigma(E_k, t)}{d\Omega} = \frac{\sigma_0(E_k)}{4\pi} [1 + \beta_2(E_k, t)P_2(\cos\theta) + \beta_4(E_k, t)P_4(\cos\theta)] \quad (2)$$

ここで、 E_k は光電子の運動エネルギー、 $\sigma_0(E_k)$ は積分イオン化断面積(励起関数)である。本研究では、PDPを E_k の関数として決定するために、 $\sigma_0(E_k)$ および異方性因子 $\beta_L(E_k, t)$ を高精度に測定する。特に $\beta_L(E_k, t)$ に関しては、小数点以下第二位まで決定する、かつてない実験精度が要求される。

(I) [フェムト秒時間分解光電子画像観測]

超音速分子線中のNOを励起光 ω_1 (中心波長: 226 nm)によりA状態 $v=0$ に励起し、回転波束を生成させた。続いて遅延時間 t においてイオン化光 ω_2 (中心波長: 240 - 330 nm)を照射し、励起状態にある分子をイオン化させた。発生した光電子を二次元検出器(MCP)に射影し、数値解析により光電子角度分布を得た。

LF-PADは原理的にレーザーの偏光ベクトル ϵ に対して、反転および円筒対称性を有する。すなわち、光電子射影は上下左右の対称性を持たねばならない。しかし実際には四象限(90°)毎に解析した場合、検出効率の非対称性の為に、 β_L に系統的誤差が生じる。我々は、その実験的な原因を突き止めて、解決することを試みた。

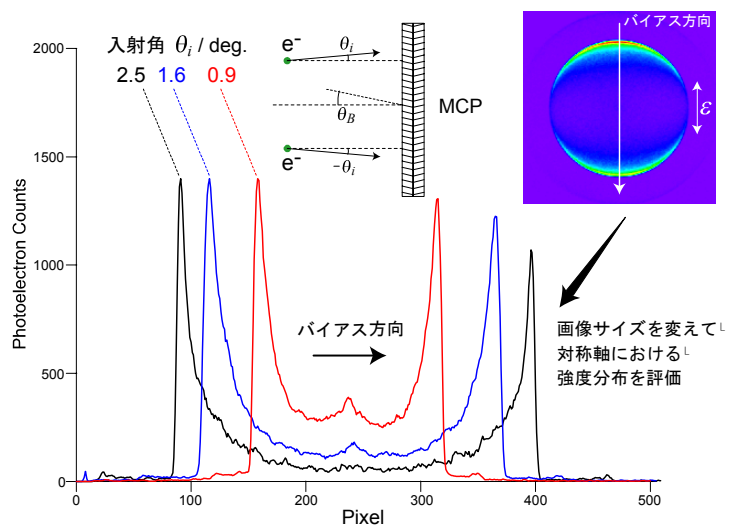


図 1: 光電子画像の非対称性と MCP への光電子入射角度 θ_i との相関。バイアス角 θ_B は MCP の法線に対するチャンネル軸の方向($\theta_B = 8^\circ$ に設定)。右上図は $\theta_i = 2.5^\circ$ における二次元射影像を示す。

図 1 に光電子の加速電圧を変え、MCP のチャンネルに対して電子の入射する角度 θ_i を変化させた場合の、感度の変化を示す。MCP の光電子検出感度は θ_i に対して依存性を持つが、その理由は、光電子の侵入角度が浅い場合、チャンネルの奥深くに光電子が到達する為、後続の増幅効果が著しく低下するためである。我々は、ポア径を $25 \mu\text{m}$ から $10 \mu\text{m}$ に変更し、さらに電子計数法を用いることで、対称な光電子画像を取得することに成功した。(図 2) さらに、 $\varepsilon \perp \text{MCP}$ 面の条件で光電子画像を撮像した場合、その射影像は円対称になるはずで、その射影像を利用した画像補正法を検討中である。

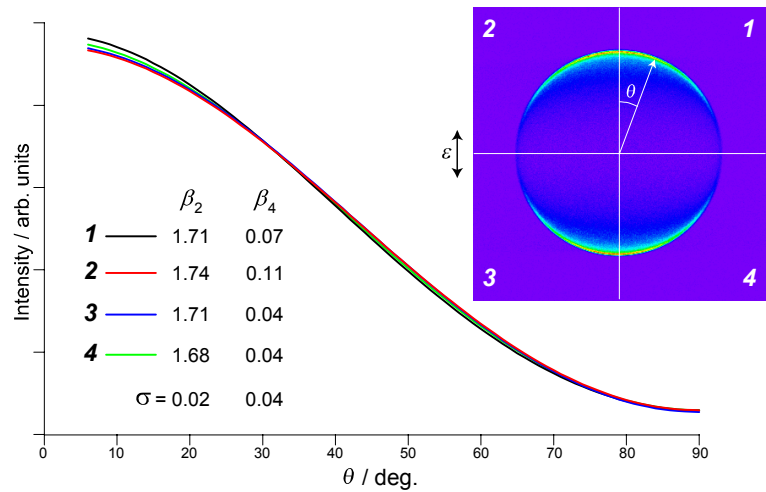


図 2: ポア径 $10 \mu\text{m}$ の MCP および光電子計数法を用いて撮像した二次元射影像(右上図 / $E_k = 0.80 \text{ eV}$, $t = 8.4 \text{ ps}$)と四象限(90°)毎に解析を行い得られた光電子角度分布(式(2)によりフィッティングされた結果)。図中には各々の象限における β_L の値と標準偏差(1σ)を示す。

(II) [積分イオン化断面積の測定]

二台のナノ秒パルス色素レーザーからの第二高調波を用い、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi(0,0)$ の回転線 $R_{11}(6.5)$ に共鳴する ω_1 、およびイオン化光 ω_2 を NO 分子線に照射し、生成した NO^+ イオンを検出した。広い ω_2 の波長範囲($230 - 330 \text{ nm}$)において同条件で測定するために、(a) ω_1 と ω_2 の光パルス強度を正確に測定し、(b) ω_2 のビーム形状、および (c) NO 分子線と ω_1 , ω_2 の空間的重なりを一定に保つ工夫を行った。

図 3 に、 ω_2 の波長を掃引して第一イオン化ポテンシャル($\text{NO}^+(X^1\Sigma^+) v^+ = 0, N^+ = 0, 9.26 \text{ eV}$)から、余剰エネルギーを変化させた時の、 $\sigma_0(E_k)$ の相対値を示す。測定値はイオン信号強度を $\omega_1 \cdot \omega_2$ のパルス強度で規格化したものである。Rydberg 状態からのイオン化では、振動遷移 $\Delta v = 0$ であり、余剰エネルギーの変化は E_k の変化に相当する。観測された $\sigma_0(E_k)$ は余剰エネルギーの増加に伴い、閾値で立ち上がり、その後単調減少しており、イオン化ダイナミクスの変化が緩やかであることを示唆している。現在、誤差の評価および局所的な構造の有無に関して精査を行っている。

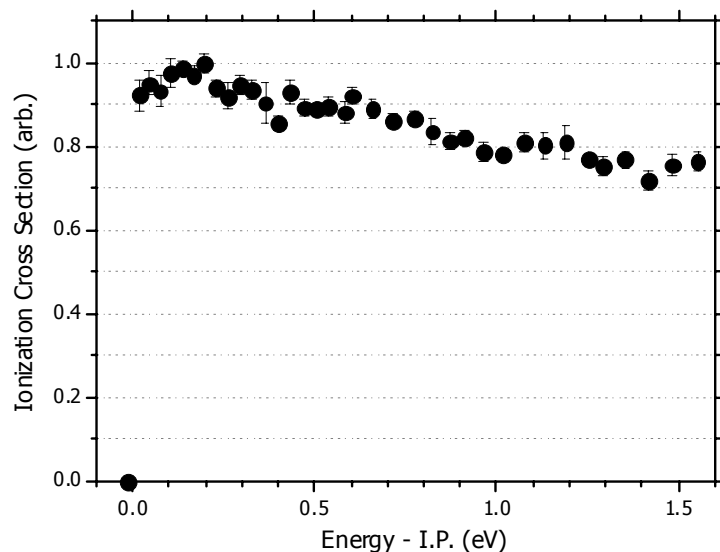


図 3: NO $A^2\Sigma^+(v=0, N=7)$ からの $\sigma_0(E_k)$ 。最大値を 1 として規格化してある。