

## 4P061

# 強レーザー場中 NO における回転励起とイオン化の 相関ダイナミクス

(原子力機構<sup>1</sup>、分子研<sup>2</sup>) ○板倉隆二<sup>1</sup>、長谷川宗良<sup>2</sup>、黒崎譲<sup>1</sup>、横山淳<sup>1</sup>、大島康裕<sup>2</sup>

**【序】**近年、高強度レーザーによる非摂動的な光と分子の相互作用を用いた分子操作、つまり、分子の向きを空間的に揃えたり、特定の化学結合を優先的に切断したりするといった制御が可能になりつつある。しかし、レーザー強度を高くしていくとイオン化が避けられなくなる。イオン化確率については、最近、2原子分子の核間距離依存性や配向依存性などの詳細が調べられてきた。これまで、回転、振動等の核の運動とイオン化は別々に考えられ、振動や回転ダイナミクスは同じイオン価数内で閉じて考えられてきた。実際は、同一イオン価数内で起きる回転・振動および電子励起とイオン化は、お互いに相関を持ちながら、同時に進行するダイナミクスである。これまでの研究では、プローブに強レーザーパルスを用いることが多く、プローブ自体で起こる非線形な効果を、実際に観測したい現象と分離することに問題が残る。また、理論的にも、レーザー電場中の連続（光電子）状態や異なるイオン価数の状態を同時に扱うことが困難であるため、大規模計算を行うよりも、如何に適切な物理モデルを導入するかという点が重要である。

本研究は、強レーザー場中でおこる分子のイオン化と分子回転および分子配向の相関に着目する。実験では、弱い場として摂動的に取り扱うことができる分光学的な手法を用いて、イオン化の影響下の回転励起状態分布を明らかにするとともに、理論的にも、イオン化の寄与を考慮にいたれた回転励起に関する時間依存シュレーディンガー方程式を解き、回転励起とイオン化の相関したダイナミクスを議論する。

**【実験】**パルス分子線によって冷却され、ほぼすべての分布が  $J=0.5$  に集中した NO 分子に、チタンサファイア・多経路増幅器から出力されたフェムト秒パルスを照射し、非断熱回転励起と同時にイオン化を起こさせた。200-300 ns 程度の遅延時間を置いた後、ナノ秒色素レーザーパルスの倍波 ( $\sim 226$  nm) を照射し、フェムト秒パルスによってイオン化せずに中性に残った NO 分子を共鳴(1+1)光子イオン化によって検出した。色素レーザーの波長を挿引し、中性 NO 分子の  $A^2\Sigma^+-X^2\Pi_{1/2}(0,0)$  バンドの励起スペクトルを測定した。フェムト秒パルスのパルス幅 (60~400 fs) および強度 ( $1 \times 10^{12} \sim 50 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) をパラメータとして変えながら、回転状態 ( $J$ ) 分布の変化を観測した。

**【数値計算】**これまで、イオン化が起きないレーザー強度に関しては、電場強度  $\mathcal{E}(t)$  に対して2次の相互作用 (誘起分極) を考慮した時間依存ハミルトニアン  $H_{align}$ 、

$$H_{align} = H_0 + V = H_0 - \frac{1}{2} \mathcal{E}(t)^2 (\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_{\parallel}) \quad (1)$$

を用いて、時間発展計算が行われてきた。 $\theta$  は分子軸とレーザー電場との角度、 $\alpha_{\parallel}$ 、 $\alpha_{\perp}$  は分子軸に対して平行および垂直方向の分極率、 $\Delta\alpha$  は  $\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}$  を示す。時間依存波動関数を、電場のない状態のハミルトニアン  $H_0$  の固有関数によって展開し、その係数に対して時間発展計算を行った結果、実測と理論はよい一致を示している[1]。本研究では、まず、実験で用いたレーザー強度、パルス幅を用いて、イオン化を考慮しない回転励起の時間発展計算を行い、実験結果と比較する。次に、 $H_{align}$  にイオン化の寄与として、複素項  $i\Gamma(\theta; I(t))/2$  を導入し、全ハミルトニアンを

$$H_{total} = H_{align} - i \frac{\Gamma}{2} (\theta; I(t)) \quad (2)$$

として、時間発展計算を行った。 $\Gamma(\theta; I(t))$  は配向角度およびレーザー強度に依存したイオン

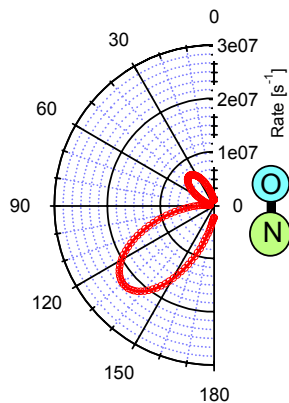


図1. MO-ADK 理論によって求められた NO の角度依存イオン化速度。レーザー強度は  $10 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 。角度は、分子軸 ( $0 - 180^\circ$ ) に対するレーザー偏光の向き。イオン化速度はサイクル平均されたもの。

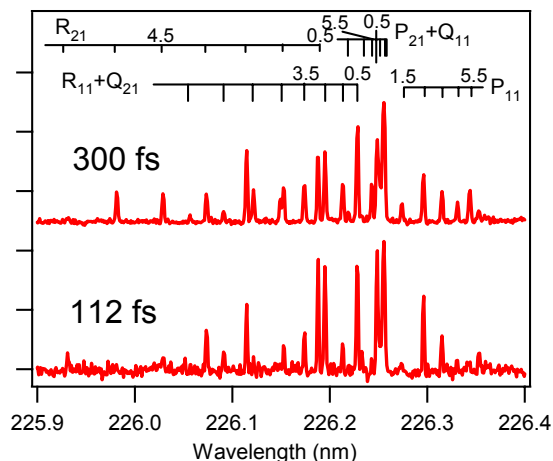


図2. NO の A-X REMPI スペクトル. fs レーザーパルス (励起・イオン化光) は、上下ともに  $1.0 \text{ mJ/pulse}$  (上) パルス幅 300 fs (FWHM), ピーク強度  $10.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ , (下) 112 fs,  $31 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ .

化速度である。本研究では、まずは、 $\cos^2\theta$  や  $\sin^2 2\theta$  などの簡単な関数で表されるイオン化速度関数を用いて計算を行った。さらに、分子の HOMO の形状を考慮にいれた半古典トンネルイオン化理論 (MO-ADK 理論) [2] によって得られた配向角度依存トンネル速度  $\Gamma(\theta : I(t))$  (図1) を用いる。

【結果と考察】観測されたスペクトルの一部を図2に示す。パルスエネルギーを  $1 \text{ mJ}$  に固定し、パルス幅を 112 fs と 300 fs とした2例が示されている。イオン化が起きない場合、励起パルスのエネルギーが同じであれば、パルス幅が長くなるとより上位の J 準位へ励起される割合が小さくなる傾向があるものの、ほぼ同じような J 分布を示す。観測結果は、むしろパルス幅が長い 300 fs のパルスを用いた場合の方が、高い J へ励起される割合が多い。レーザーのパルス幅が短くなるとピーク強度が大きくなるため、イオン化確率は大きくなる。したがって、112 fs と 300 fs のパルスによって測定した J 分布の違いは、イオン化の寄与によるものであると言える。

$\Gamma(\theta, I(t))$  に簡単な関数を用いて計算した J 分布を図3に示す。角度依存性がない等方的なイオン化の場合、J 分布は、イオン化を考慮しない場合の分布を定数倍したものになるが、角度依存性があると回転状態分布に変化が現れる。

イオン化速度関数  $\Gamma(\theta, I(t))$  は、単に各 J 準位の分布を減少させるだけでなく、異なる J 準位間の分布移動を誘起する。つまり、イオン化によって中性分子の配向角度分布が変化し、その変化に伴って時間依存波動関数の展開係数、つまり、回転状態分布もそれに追随するため、瞬時変化することになる。

定量的な詳細を、ポスターにて議論する。

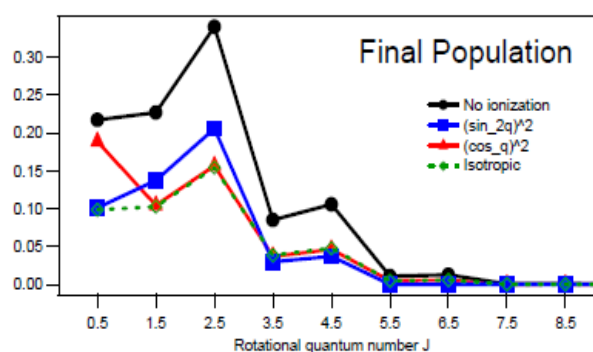


図3. イオン化を考慮した回転波束計算によって得られた回転状態分布. レーザーパルス幅 50 fs, 強度  $50 \text{ TW/cm}^2$ .  $\Gamma(\theta, I(t))$  は、強度に対しては 5 乗に比例、角度分布は、実線●イオン化なし、青■ $\sin^2 2\theta$ 、赤▲ $\cos^2 \theta$ 、緑点線●等方分布。

【参考文献】 [1] H. Hasegawa and Y. Ohshima, Phys. Rev. A **74** (2006) 061401(R).

[2] T.M. Tong, Z.X. Zhao, C.D. Lin, Phys. Rev. A **66** (2002) 033402.