

2P017

## 数サイクル強レーザー場における NO 分子のイオン化異方性： $\pi$ - $\sigma$ 軌道遷移の効果

(名大院理<sup>1</sup>, 放送大<sup>2</sup>, 電通大<sup>3</sup>)

○遠藤友随<sup>1</sup>, 伏谷瑞穂<sup>1</sup>, 松田晃孝<sup>1</sup>, 安池智一<sup>2</sup>, 森下亨<sup>3</sup>, 菱川明栄<sup>1</sup>

### Anisotropic ionization of NO in few-cycle intense laser fields: Effects of $\pi$ - $\sigma$ electronic transition

(Nagoya Univ.<sup>1</sup>, The Open Univ. of Japan<sup>2</sup>, The Univ. of Electro-Communications<sup>3</sup>)

○Tomoyuki Endo<sup>1</sup>, Mizuho Fushitani<sup>1</sup>, Akitaka Matsuda<sup>1</sup>, Tomokazu Yasuike<sup>2</sup>,  
Toru Morishita<sup>3</sup>, Akiyoshi Hishikawa<sup>1</sup>

【序】刻一刻と変化する分子の様子を実時間で追跡し、その全貌を明らかにすることは反応過程を理解する上で重要である。近年、反応過程における電子ダイナミクスを分子内の電子空間分布の変化として捉える試みがなされ、強レーザーパルスを用いて分子軌道の情報を読み出すアプローチ[1, 2]が注目を集めている。これは、強レーザー場中のトンネルイオン化レートが分子軌道の形状によって決定付けられることを利用したものである。特にクーロン爆発などの解離過程を利用した手法は、フラグメントの空間異方性が軌道形状を直接反映するため視覚的に捉えやすいという利点がある。一方、これまでの研究は電子基底状態の分子を対象に進められているに過ぎず、この手法を電子ダイナミクスの実時間追跡に適用するためには電子状態の変化がどのように読み出せるかを明らかにする必要がある。本研究では、NO 分子を対象とし、 $A^2\Sigma^+-X^2\Pi$ 遷移に伴う $\pi$ - $\sigma$  軌道の変化が数サイクル強レーザー場(8 fs,  $1.1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>)中の解離性イオン化過程の空間異方性にどのように反映されるかを 3 次元運動量画像計測によって調べた[3]。この手法による最外殻分子軌道の読み出し精度を定量的に議論するため、トンネルイオン化レートの理論計算を行い実験結果と比較した。

【実験】チタン-サファイアレーザーシステムからの出力を用いて、(i) フェムト秒 UV パルス(226 nm, 120 fs, 0.6  $\mu$ J/pulse), (ii) 数サイクル強レーザーパルス(800 nm, 8 fs, 5.6  $\mu$ J/pulse)を発生させ、これらをそれぞれ NO  $A^2\Sigma^+-X^2\Pi$  (0, 0)遷移を励起するためのポンプ光、解離性イオン化のためのプローブ光とし、超高真空チャンバーに導入した NO 分子線に集光した。ポンプ-プローブ時間遅延は 150 ps とした。プローブ光による解離性イオン化過程、 $\text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + e^- \rightarrow \text{N}^+ + \text{O} + e^-$ 、で生成した  $\text{N}^+$  フラグメントイオンの 3 次元運動量  $\mathbf{p} = (p_x, p_y, p_z)$  を位置敏感型粒子検出器で測定した。ポンプ光によって生成する  $A^2\Sigma^+$  状態は全体の 0.5% に過ぎないため、光学チョッパーを用いてポンプ光を 1 ショットごとにブロックし、差分を積算することで励起状態のみに由来する運動量画像を得た。

【理論計算】強レーザー場におけるトンネルイオン化レートの計算に広く用いられている MO-ADK モデル[4]は、双極子モーメントに由来する線形シュタルクシフトなどが考慮されず、極性分子には従来の形式では適用できない[5]。そこで、双極子モーメントの効果を取り入れたモデルとして、Rydberg 関数を電荷中心に導入して  $2\pi, 3s\sigma$  分子軌道を求め、これを用いて MO-ADK 計算を行った。一方、原子に対して構築されたトンネルイオン化モデルを分子に応用した MO-ADK モデルではレーザー場と結合したイオン化状態が考慮されておらず、イオン化レートを正しく評価できない場合があることが知られている。本研究では、双極子モーメントを考慮に入れた弱電場漸近(WFA)理論[5]を用いたイオン化レートの計算を行い、併せ

て実験との比較を行った。

【結果および考察】強レーザー場中の解離性イオン化過程で生成した  $N^+$  イオンの運動量画像を図 1(a) に示す。基底状態 ( $X^2\Pi$ ,  $1\sigma^2 2\sigma^2 3\sigma^2 4\sigma^2 5\sigma^2 1\pi^4 2\pi^1 3s\sigma^0$ ) から解離性イオン化によって生成した  $N^+$  イオンは、プローブ光の偏光方向に対し  $45^\circ$  方向に強い異方性を持つことがわかる。これに対し励起状態 ( $A^2\Sigma^+$ ,  $1\sigma^2 \dots 2\pi^0 3s\sigma^1$ ) から解離性イオン化では、平衡核間距離の違い ( $R_e(X) = 1.15 \text{ \AA}$ ,  $R_e(A) = 1.06 \text{ \AA}$ ) による解離運動エネルギーの増加に加えて、 $0^\circ$  方向への異方性の変化が観測された (図 1(c))。この異方性の変化は  $X^2\Pi$  状態から  $A^2\Sigma^+$  状態への遷移に伴う最外殻分子軌道 ( $2\pi \rightarrow 3s\sigma$ ) の形状変化を反映していると考えられる。理論計算で得られたトンネルイオン化レートの極座標表示を図 1(b), (d) に示す。いずれの計算手法も、 $X^2\Pi$  状態についてはレーザー偏光方向に対して  $45^\circ$  方向、 $A^2\Sigma^+$  状態は  $0^\circ$  方向にピークを示し、実験とよく一致が得られた。これらの結果は、電子遷移に伴う最外殻電子軌道形状の変化が数サイクル強レーザー場における解離性イオン化で生成したフラグメントイオンの空間異方性に反映されることを意味している。本研究で対象とした光吸収過程による電子遷移は化学反応における電子状態変化をシミュレートしたものと捉えることができる。今後、本アプローチの実時間追跡への適用によって反応過程における電子ダイナミクスの可視化に取り組む予定である。

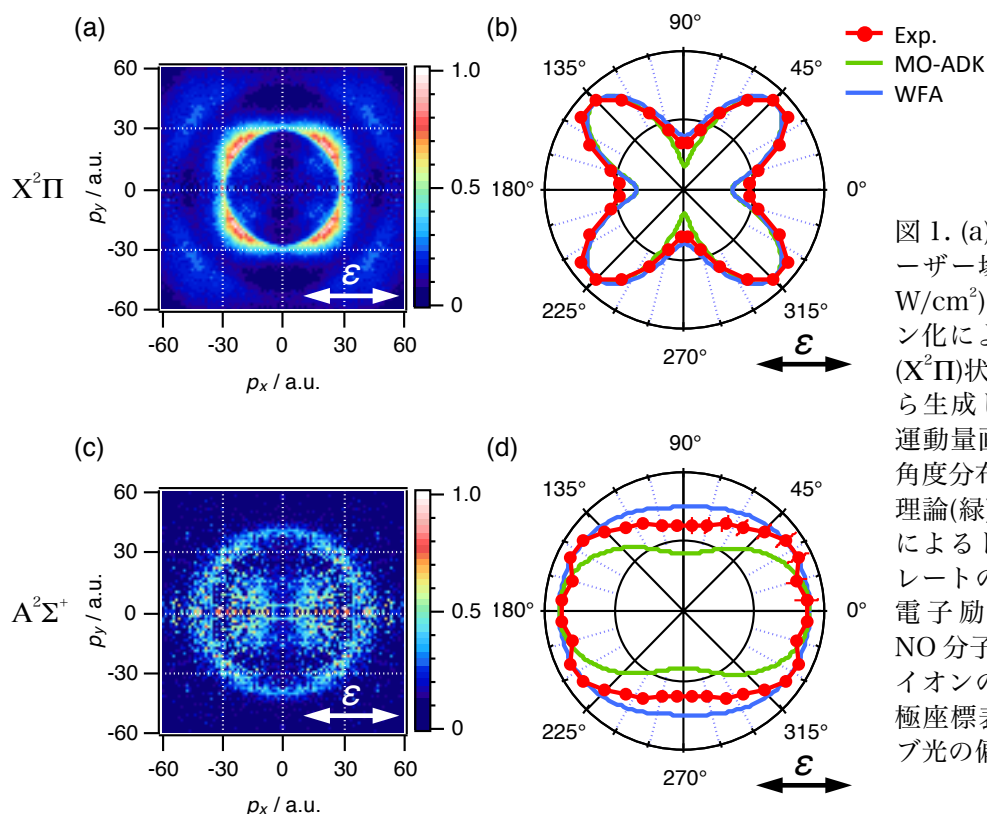


図 1. (a) 数サイクル強レーザー場 ( $8 \text{ fs}$ ,  $1.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ) 中の解離性イオン化によって、電子基底 ( $X^2\Pi$ ) 状態の NO 分子から生成した  $N^+$  イオンの運動量画像。(b) 運動量角度分布 (赤), MO-ADK 理論 (緑), WFA 理論 (青) によるトンネルイオン化レートの極座標表示。(c) 電子励起 ( $A^2\Sigma^+$ ) 状態の NO 分子から生成した  $N^+$  イオンの運動量画像。(d) 極座標表示。 $\epsilon$  はプローブ光の偏光方向。

#### 【参考文献】

- [1] J. Itatani *et al.*, *Nature* **432**, 867 (2004).
- [2] A.S. Alnaser *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 113003 (2004).
- [3] 遠藤, 伏谷, 松田, 菱川, *4P10*, 第 6 回分子科学討論会 (2012).
- [4] X.M. Tong *et al.*, *Phys. Rev. A* **66**, 033402 (2002).
- [5] L.B. Madsen *et al.*, *Phys. Rev. A* **85**, 053404 (2012).