

4P005

配列 O₂ 分子の高強度短パルス光によるイオン化過程

(東京大学大学院総合文化研究科¹, 東京大学大学院理学系研究科²)

○園田浩太郎¹, 長谷川宗良¹, 岩崎純史², 佐藤堯洋², 山内薫²

Ionization of aligned O₂ by intense laser pulse

(¹Graduate School of Arts and Sciences, the University of Tokyo,

²School of Science, the University of Tokyo)

○Kotaro Sonoda¹, Hirokazu Hasegawa¹, Atsushi Iwasaki²,
Takahiro Sato², and Kaoru Yamanouchi²

【序】高輝度超短パルスレーザー技術の発展とともに、強レーザー場における分子のイオン化過程の機構に関する様々な研究が行われるようになった。近年、非断熱分子配列法 [1] を用いて、分子の分子軸の向きをそろえることによって、分子の励起過程やイオン化過程が、分子軸に対するレーザーの偏光方向の角度 θ に如何に依存するかが調べられるようになった [2, 3]。例えば、O₂, N₂, CO₂ の場合、高強度レーザー光によって1価イオンが生成する際のイオン化確率の θ 依存性が明らかとなった [3]。しかし、高強度レーザー光と分子の相互作用においては、多重イオン化が起こるため、そのイオン化確率の θ 依存性についても興味を持たれている。そこで本研究では、配列されたO₂分子に高強度レーザー光を照射し、生成した1価イオンO₂⁺だけでなく安定な2価の親イオンO₂²⁺を観測することによって、1価イオンのイオン化確率の θ 依存性に加えて、2重イオン化確率の θ 依存性を明らかにすることを試みた。

【実験】直線偏光のフェムト秒レーザーパルス光 (800 nm, 110 fs, 2.0 mJ/pulse, 10 Hz) を Michelson 型干渉計によってポンプ光とプローブ光に分割した。ポンプ光によって回転波束を生成し、遅延時間 τ_{delay} の後にプローブ光によってイオン化した。ポンプ光とプローブ光の遅延時間は、干渉計内の光路長を変化させることにより制御した。二つのレーザーパルスを、Wiley-McLaren 型飛行時間型質量分析装置 (TOF-MS) を備えた真空チャンバー内へレンズ ($f=200$) を用いて集光した。ポンプ光の集光強度は 3×10^{13} W/cm², プローブ光の集光強度は 1×10^{14} W/cm² と見積もられた。なお、これらのレーザーパルスの偏光方向は、TOF 軸に平行とした。背圧 3.2 気圧で O₂ ガスをパルスバルブから噴出し超音速分子線とした。レーザーパルスと分子線との交差領域で生成するイオン種を TOF-MS によって検出し、得られた質量スペクトルのピーク面積からイオン収量を求めた。また、そのイオン収量の遅延時間依存性を測定した。

【結果と考察】図 1(a)にポンプ-プローブ遅延時間に対する O₂⁺の収量を示す。横軸は O₂ の回転周期 ($\tau_{\text{rot}} = 11.6$ ps) を単位として表した。観測されたピーク位置は、 $\tau_{\text{delay}} = n \tau_{\text{rot}} / 8$ ($n = 1-8$) であり、回転波束が生成されたことを示している。この回転波束の時間発展を調べるために、時間依存 Schrödinger 方程式を数値的に解いた。そして、得られた回転波束から分子配列を定量的に評価するために、 $\cos^2\theta$ の期待値 $\langle \cos^2\theta \rangle$ を計算した。ここで、 θ はポンプ光の偏光方向と分子軸のなす角である。 $\langle \cos^2\theta \rangle$ の値は、分子軸分布が完全に偏光方向に局在している場合は 1、垂直方向に局在している場合は 0、等方的に分布している場合には 1/3 となる。

計算で得られた $\langle \cos^2\theta \rangle$ を図 1(b)に示す。偏光に平行な配列状態と、垂直な反配列状態に起因するピークが $\tau_{\text{rot}}/4$ の整数倍の遅延時間において現れた。図 1(a)の実験結果と比較すると、

振幅の大きなピークが現れる時刻と配列・反配列が起こる時刻は一致しており、イオン化確率が分子軸分布に対して敏感であることを示している。しかし、計算では、実験で観測されている $\tau_{\text{rot}}/8$ の奇数倍の遅延時間における振幅の小さなピークを再現できなかった。

この相違は、観測された O_2^+ の収量が、分子軸の空間配列の分布だけでなく、イオン化確率の θ 依存性によるものと考えられる。そこで、角度 θ に対するイオン化確率の角度依存性 $W(\theta)$ を、分子のトンネルイオン化の角度依存性を記述する Molecular Ammosov-Delone-Krainov (MO-ADK) 理論を用いて求めた [4]。ただし、イオン化に参与する分子軌道として、最高被占有軌道 (HOMO) のみを考慮した。観測されたイオン収量は、イオン化確率の期待値-

$$\langle W(\theta) \rangle = \int_0^\pi W(\theta) |\Psi(\theta, t)|^2 \sin \theta d\theta \quad (1)$$

に比例する。ここで、 $\Psi(\theta, t)$ は、時刻 t における回転波動関数である。計算で得られた $\langle W(\theta) \rangle$ を図 1(c) に示した。この計算結果では $\tau_{\text{rot}}/4$ の整数倍の遅延時間にあらわれるピークに加え、 $\tau_{\text{rot}}/8$ の奇数倍の遅延時間にあらわれる振幅の小さいピークも再現されている。これは、高強度短パルス光によるイオン化過程 $\text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + e^-$ において、 O_2 の HOMO からのイオン化が重要な役割を果たすことを示している。このことは、既に報告されている O_2 から O_2^+ へのイオン化確率の θ 依存性の結果からも示されている [3]。

ポンプ-プローブ遅延時間に対する O_2^{2+} の収量を図 1 (d) に示した。この図に示すように、 O_2^{2+} の収量の遅延時間依存性は $\langle \cos^2 \theta \rangle$ の遅延時間依存性と位相が π ずれており、 $\langle \sin^2 \theta \rangle$ によって良く再現される。これは、レーザー光の偏光方向が分子軸と平行のときに比べて、垂直のときの方が O_2^{2+} が生成し易いことを示している。しかし、この O_2^{2+} の収量の遅延時間依存性は HOMO のみを考慮した MO-ADK 理論では再現できないため、この二重イオン化過程においては、HOMO-1 や HOMO-2 などの分子軌道がイオン化過程に参与していることを示している。

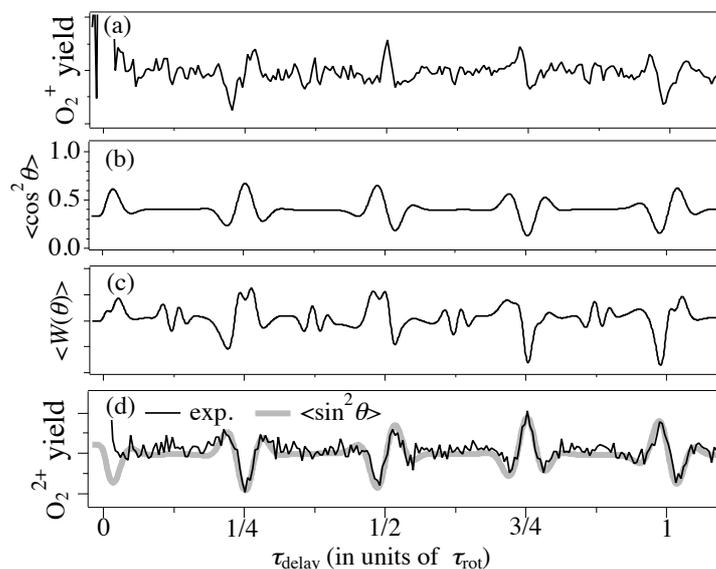


図 1. (a) 遅延時間に対する O_2^+ の収量, (b) $\langle \cos^2 \theta \rangle$ の計算値, (c) $\langle W(\theta) \rangle$ の計算値,

(d) 遅延時間に対する O_2^{2+} の収量(黒色)と $\langle \sin^2 \theta \rangle$ の計算値(灰色)

[1] H. Stapelfeldt and T. Seideman, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 543 (2003).

[2] J. Itatani, D. Zeidler, J. Levesque, M. Spanner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 123902 (2005).

[3] D. Pavičić, K. F. Lee, D. M. Rayner, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 243001 (2007).

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