3A10

2色位相制御強レーザー場における NO 分子の解離性イオン化過程

(名大院・理) ○遠藤友随, 石原采佳, 菱川明栄

Dissociative ionization of NO in phase-controlled two-color intense laser fields (Nagoya Univ.) OTomoyuki Endo, Ayaka Ishihara, Akiyoshi Hishikawa

【序】近年の超高速分光法の発展に伴って、反応過程における電子ダイナミクスを分子座標 系における電子分布の変化として捉える試みがなされ、分子座標系光電子角度分布 [1]、高次 高調波発生を利用した分子トモグラフィー [2] をはじめとした手法が提案されている。なか でも強レーザー場中のトンネルイオン化過程を用いたアプローチ [3] は、イオン化レートが レーザー偏光方向に対する分子軌道形状に強く依存することを利用したものであり、解離フ ラグメントの空間異方性から分子軌道形状を複雑な解析を経ずに読み出すことができる。 我々のグループではこの手法を用いて、NO 分子の光吸収による電子遷移 ($2\pi \rightarrow 3s\sigma$) に伴 う最外殻軌道形状変化の観測に成功している [4]。一方、通常のレーザー場は空間対称な電場 振幅を有するため、分子の配向が区別されない。そのため、異核二原子分子である NO 分子 の最外殻分子軌道の形状から予測される N 側 と O 側のイオン化レートの違いを検出する ことができず、軌道情報の精密な読み出しが不可能であった。そこで本研究では、非対称な 電場振幅を有する2色レーザー場、 $E = E_{\omega} \cos(\omega t) + E_{2\omega} \cos(2\omega t + \varphi)$ 、を用いて分子軌道の 非対称性に関する情報をフラグメント分布から読み出すことを目的とした。2色位相制御強 レーザー場中における NO の解離性イオン化過程、NO \rightarrow NO⁺ + e⁻ \rightarrow N⁺ + O + e⁻、で生成 するフラグメントイオンの空間異方性を3次元運動量画像計測法によって調べた。

【実験】チタンサファイアレーザー再生増幅器からの出力 (800 nm, 50 fs) を β -BBO 結晶 に導入し、第二次高調波 (400 nm, 100 fs) を得た。複屈折結晶である α -BBO 結晶を用いて 基本波パルスと第二次高調波パルス間の時間遅延を補償した。ゼロオーダー波長板 ($\lambda/2$ @ 800 nm, λ @ 400 nm) により基本波のみ偏光方向を回転させ、第二次高調波と偏光方向を一 致させた。パルス間の相対位相 (φ) は一対のウェッジ板を用いて精密にフィードバック制御 し、相対位相は Xe 原子の後方散乱電子のエネルギー分布 [5] を用いて校正した。得られた 2色強レーザーパルスを超高真空チャンバー内に設置した凹面鏡 (f = 300 nm) で集光し、分 子線として導入した NO 分子とヘリウムの混合ガス (NO 5 %) に照射した。生成したフラグ メントイオンは速度写像型配置の4枚の電極で加速し、位置敏感型粒子検出器 (PSD) を用い て検出した。PSD 上における位置 (x, y) と飛行時間 (t) からフラグメントイオンの3次元運 動量 (p_x , p_y , p_z) を得た。

【結果・考察】強レーザー場中の NO 分子の解離性イオン化で生成した N⁺ フラグメントイ オンの運動量画像を図1に示す。単色レーザー場 (800 nm, I_{ω} = 4.3×10¹³ W/cm²) 中で生成し たフラグメントイオンはレーザー偏光方向に対して 35°方向に強い異方性を示した (図1 (a))。これは NO 分子の SOMO である 2π 軌道の形状を反映したものである。しかし, NO 分子は非対称な分子軌道を持つにも関わらず運動量分布が左右対称に観測されている。これ は単色強レーザー場が左右対称な電場振幅を有するため、分子の配向が区別されずフラグメ ントが左右対称に生じるからである。それに対し、2色位相制御強レーザー場 (I_{ω} = 4.3×10¹³ W/cm², $I_{2\omega}$ = 5.3×10¹² W/cm², $E_{2\omega}/E_{\omega}$ = 0.35) 中で生成したフラグメントイオンは 35°方向 に対して強い異方性を示しただけでなく、パルス間の相対位相に強く依存する明確な空間非 対称性を示した (図1(b))。この結果はフラグメント分布の非対称性が NO 分子の N 側と O 側で異なる分子軌道形状反映していることを示しており、非対称な電場振幅を持つ2色強 レーザー場中で生成したフラグメントの空間異方性から分子軌道の非対称性が読み出せるこ とを示している。



図1. (a) 単色強レーザー場 (800 nm, $I_{\omega} = 4.3 \times 10^{13}$ W/cm²) および (b) 2 色位相制御強レー ザー場 ($I_{\omega} = 4.3 \times 10^{13}$ W/cm², $I_{2\omega} = 5.3 \times 10^{12}$ W/cm², $E_{2\omega}/E_{\omega} = 0.35$) 中で NO の解離性イオン 化によって生成した N⁺ フラグメントイオンの運動量画像。 ε はレーザー偏光方向。

【参考文献】

- [1] C.Z. Bisgaard et al., Science 323, 1464 (2009)
- [2] J. Itatani et al., Nature 432, 867 (2004)
- [3] A.S. Alnaser et al., Phys. Rev. Lett. 93, 113003 (2004)
- [4] T. Endo et al., J. Phys.: Conf. Ser. 488, 032025 (2014)
- [5] D. Ray et al., Phys. Rev. A 83, 013410 (2011)