

2P010

## 回転状態選別された NO 分子の高強度短パルス光によるイオン化

(東京大学大学院総合文化研究科\*, 東京大学大学院理学系研究科\*\*)

○園田浩太郎\*, 岩崎純史\*\*, 山内薫\*\*, 長谷川宗良\*

### Ultrafast strong-field ionization of rotational state-selected NO molecules

(Graduate School of Arts and Sciences, the University of Tokyo\*,  
School of Science, the University of Tokyo\*\*)

○Kotaro Sonoda\*, Atsushi Iwasaki\*\*, Kaoru Yamanouchi\*\*,  
and Hirokazu Hasegawa\*

[序] 高強度短パルス光による分子のイオン化確率は、イオン化光の偏光と分子軸のなす角度  $\theta$  に依存する。特にトンネルイオン化では、最もイオン化エネルギーの小さな最高被占有軌道 (HOMO) から多くの電子が抜けるため、イオン化確率の角度依存性は HOMO の形状を反映することが知られている。このため、分子内電子の空間分布イメージングなどの応用の立場からも、この角度依存性は注目されている [1 - 3]。一方、HOMO からのイオン化に加えて、HOMO-1 からのイオン化も観測されており [4]、イオン化確率の角度依存性から、高強度短パルス光によるイオン化の機構を調べることが可能となる。本研究では、高分解能レーザー光により NO 分子を電子励起状態の特定の回転状態に共鳴励起することによって分子軸を空間的に配列させ、高強度短パルス光によりイオン化することによって、そのイオン収量からイオン化確率の分子軸方向に対する角度依存性を求めた。

[実験] 実験スキームを図 1(a)に示す。直線偏光の高分解能ナノ秒色素レーザー (分解能  $0.5 \text{ cm}^{-1}$ ) の出力を、BBO 結晶を用いて、NO 分子の  $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_{1/2}$  (0-0) 遷移に対応する紫外光 ( $\lambda \sim 226 \text{ nm}$ ) へ変換した。10%に希釈した NO/Ar ガス (背圧 10 atm) を、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パルスバルブから噴出し、スキマーを通すことによって超音速分子線とした。分子線に対して垂直方向からレーザー光を集光し、 $A^2\Sigma^+$  状態の特定の回転準位を生成した。紫外光照射の 20 ns 後、直線偏光の高強度短パルス光 (中心波長 780 nm、パルス時間幅 110 fs、強度  $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ) を照射し、 $A^2\Sigma^+$  状態の分子を選択的にイオン化した。生成した  $\text{NO}^+$  を TOF-MS で検出し、得られたイオン信号のピーク面積から、 $\text{NO}^+$  のイオン収量を得た。色素レーザーの波長を掃引し、 $\text{NO}^+$  の収量を測定することによって、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{1/2}$  励起スペクトルを得た。

[結果・考察] 測定された  $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{1/2}$  励起スペクトルを図 1(b)に示す。得られた励起スペクトルには、 $\Delta J = 0, \pm 1$  の遷移にともなう複数の回転線が観測された。各回転線の信号強度は、 $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{1/2}$  の遷移確率および高強度短パルス光による  $A^2\Sigma^+$  状態のイオン化確率に比例す

る。このとき、 $A^2\Sigma^+(N', J') \leftarrow X^2\Pi_{1/2}(J'')$  遷移の回転線強度は、直線偏光を用いたときには  $M$  が保存することを考慮し、次のように与えられる。

$$I_{J', N'; J''} = C_0 \sum_M P_{J'', M} S_{N', J', M; J'', M} T_{N', J', M} \quad (1)$$

ここで、 $C_0$  は装置により決まる比例定数、 $P_{J'', M}$  は  $X^2\Pi_{1/2}$  状態における回転準位 ( $J'', M$ ) の占有数、 $S_{N', J', M; J'', M}$  は  $A^2\Sigma^+(N', J', M) \leftarrow X^2\Pi_{1/2}(J'', M)$  の遷移確率、 $T_{N', J', M}$  は高強度短パルス光による  $A^2\Sigma^+$  状態における回転準位 ( $N', J', M$ ) のイオン化確率である。 $P_{J'', M}$  は回転温度と Boltzmann 分布より求めることができる。また、 $S_{N', J', M; J'', M}$  は遷移モーメントの回転状態に依存する部分から計算できるため、(1)式を用いて、観測された回転線の信号強度  $I_{J', N'; J''}$  から、イオン化確率  $T_{N', J', M}$  を決定することができる。

$T_{N', J', M}$  は、イオン化確率の角度依存性  $W(\theta)$  を用いて次のように表される。

$$T_{N', J', M} = \langle N'JM | W(\theta) | N'JM \rangle = \sum_k a_k \langle N'JM | P_{2k}(\cos\theta) | N'JM \rangle \quad (2)$$

ここで、 $P_{2k}(\cos\theta)$  は Legendre 多項式、 $a_k$  は  $W(\theta) = \sum_k a_k P_{2k}(\cos\theta)$  としたときの展開係数、 $|NJM\rangle \equiv |A^2\Sigma; N, J, M\rangle$  は  $A^2\Sigma^+$  状態の回転波動関数である。そこで、実測の励起スペクトルの信号強度を再現するように係数  $a_k$  を定めることによって、 $A^2\Sigma^+$  状態のイオン化確率の角度依存性を決定できる。 $A^2\Sigma^+$  状態のイオン化ポテンシャルは 3.8 eV と小さいため、トンネルイオン化が支配的になり、 $W(\theta)$  は分子軌道の形状を反映すると考えられる。 $A^2\Sigma^+$  状態の電子配置は  $1\sigma^2 2\sigma^2 3\sigma^2 4\sigma^2 5\sigma^2 1\pi^4 2\pi^0 3s\sigma^1$  と表されるので、最高半占軌道の  $3s\sigma$  性を反映して、レーザーの偏光と分子軸が垂直となるよりも、平行となる場合にイオン化確率が大きくなると期待される。そこで、 $A^2\Sigma^+$  状態のイオン化確率の角度依存性を分子軌道の形状に基づいて議論する。

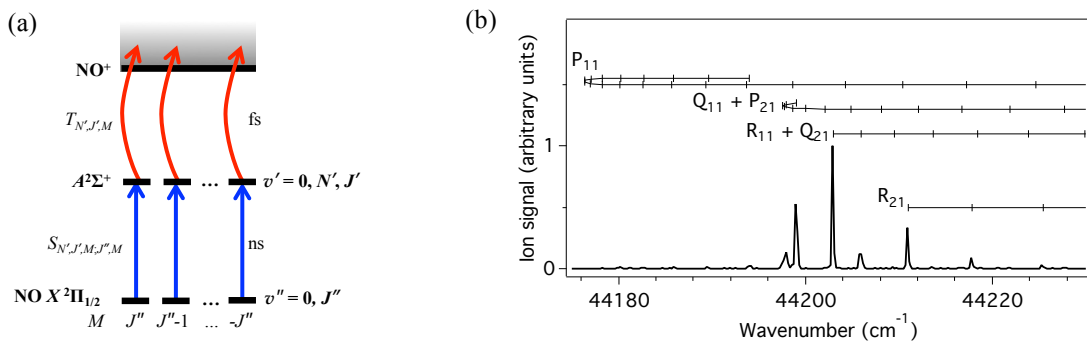


図 1. (a) 励起過程とイオン化過程 (b)  $A^2\Sigma^+ \leftarrow X^2\Pi_{1/2}$  励起スペクトル

#### [参考文献]

- [1] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Nature*, **432**, 867 (2004)
- [2] D. Pavičić, K. F. Lee, D. M. Rayner, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 243001 (2007)
- [3] T. Endo, A. Matsuda, M. Fushitani, T. Yasuike, O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and A. Hishikawa, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 163002 (2016)
- [4] H. Akagi, T. Otobe, A. Staudte, A. Shiner, F. Turner, R. Dörner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Science*, **325**, 1364 (2009)