

## 電子励起一酸化窒素分子における回転固有状態イメージング

<sup>1</sup>東工大・理, <sup>2</sup>分子研

○池田大<sup>1</sup>, 水瀬賢太<sup>1</sup>, 大島康裕<sup>1,2</sup>

### Imaging of rotational eigenstates of nitric oxide in the electronic excited state

○Dai Ikeda<sup>1</sup>, Kenta Mizuse<sup>1</sup>, Yasuhiro Ohshima<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> School of Science, Tokyo Institute of Technology, Japan

<sup>2</sup> Institute for Molecular Science, Japan

#### 【Abstract】

Nuclear motions of electronically excited molecules are of great importance in photochemistry. However, it is not a simple task to visualize rotational and vibrational motions (wavefunctions) of excited molecules. In the present study, we visualized orientational probability distribution of excited molecules by employing ion-imaging technique. We performed dissociative ion-imaging using a circularly polarized femtosecond intense laser pulse in order to observe the molecular axis distribution of electronically excited nitric oxide (NO). NO molecules were excited to a rotational steady state in  $A^2\Sigma^+ v = 0$  by a linearly polarized nanosecond laser pulse (226 nm). We succeeded in observing angular distribution corresponding to excited individual rotational states of NO, as enhanced signals of  $N^+$  fragments due to higher efficiency in the excited state for dissociative ionization.

#### 【序】

近年発展著しい高強度超短パルス光を用いた、クーロン爆発イメージング、高次高調波発生、X線回折などの手法は、分子運動を観測するための強力なアプローチである。また、電子励起状態における分子運動は化学者の興味の対象であり、分光学的手法を中心に多くの研究がなされている。しかしながら、一般に光励起で生成される電子励起分子の数は電子基底分子の数に比べ圧倒的に少ないことから、電子励起分子の運動(波動関数)を直接的に可視化することは困難である。この問題に対し、我々は励起分子のイオン化エネルギーが基底分子のそれよりも小さいことに着目し、イオン状態を経由することによって励起分子選択的な分子運動観測が実現できると考えた。本研究では高強度フェムト秒レーザー光によるクーロン爆発イメージングを用いて二原子分子の電子基底状態における回転波束を観測している[1]。そこで本研究ではイオンイメージングを電子励起分子に適用することで、回転波動関数の観測を試みた。紫外域に吸収のある一酸化窒素(NO)分子を対象に、ナノ秒レーザー光を用い回転準位を選択して電子励起することにより、回転固有状態に分布する電子励起分子を生成させた。これにフェムト秒レーザー光を照射することで、解離性イオンを生成させた。フラグメントイオンをイオンイメージング法により検出することで、電子励起分子の分子軸の角度分布(回転波動関数の絶対値の二乗)を観測した。

#### 【方法 (実験・理論)】

実験スキームを Fig.1 に示す。超音速ジェットにより振動回転温度が冷却された NO ( $X^2\Pi_{1/2}$ ,  $v = 0$ ,  $J = 1/2$ ,  $M = \pm 1/2$ ) 分子を真空チャンバーに導入した。そこにナノ

秒 UV 色素レーザー光（直線偏光, 226.12 nm）を照射することによって, NO の電子励起状態 ( $A^2\Sigma^+$ ,  $v=0$ ,  $J=3/2$ ,  $M=\pm 1/2$ ) を生成させた. その後, フェムト秒 Ti:Sapphire レーザー（円偏光, 820 nm,  $< 100$  fs）の基本波を照射した. フェムト秒レーザー光により生じた解離性の  $\text{NO}^{2+}$  イオンは直ちに開裂して, フラグメントを生成する. 飛行時間差によってフラグメントイオンの質量選別を行った後, 二次元断層イオン検出[1]によって  $\text{N}^+$  フラグメントの空間分布を測定した.

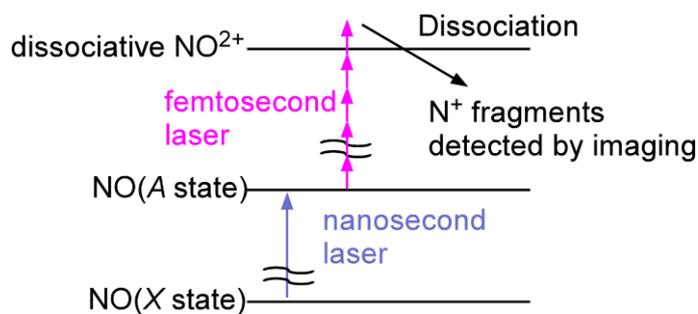


Fig. 1. Experimental scheme

### 【結果・考察】

測定した  $\text{N}^+$  フラグメントの空間分布を Fig. 2. (a) に示す.  $\text{N}^+$  フラグメントの分布は励起光の偏光方向に多いことが分かる. Fig. 2. (a) は, 電子励起 NO 分子から生成した  $\text{N}^+$  フラグメントだけでなく, 基底状態 NO 分子から生成した  $\text{N}^+$  フラグメントも含む. そこで, ナノ秒励起光を照射せずにフェムト秒レーザー光のみを照射したときの画像を Fig. 2. (a) から差し引くことにより, 励起状態由来の情報を抽出した. 結果を Fig. 2. (b) に示す. Fig. 2. (a) と比べ分布の異方性が高いことが見て取れる.

Fig. 2. (b) の  $\text{N}^+$  フラグメントの角度分布を Fig. 3. (a) に示す. これは, 励起光偏光方向に極大を持つダンベル状の形状を示している. この形状は  $J=3/2$  および  $M=\pm 1/2$  で計算した確率分布関数  $P(\theta) = \sum_{M=\pm 1/2} |\Psi_{J=3/2, M}(\theta)|^2$  (Fig. 3. (b)) と一致した. これにより, 電子励起 NO 分子の回転固有状態の実空間における観測に成功したと結論づけた. 講演では, イメージの励起光偏光依存性および回転量子数による関数形状の違いについても併せて報告する.

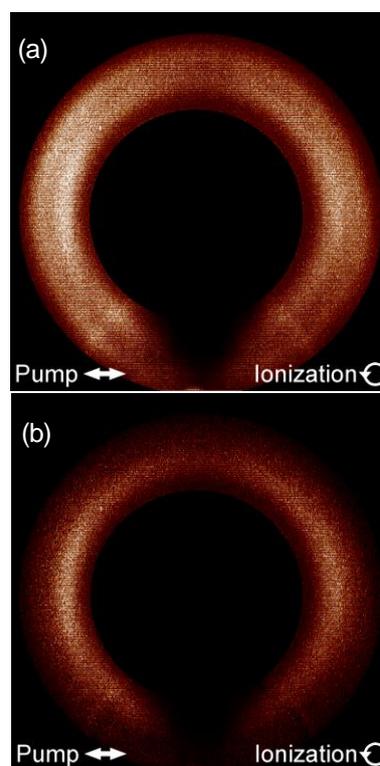


Fig. 2. (a): Image of  $\text{N}^+$  fragment ions with excitation laser pulse, (b): Image after subtraction of data without excitation

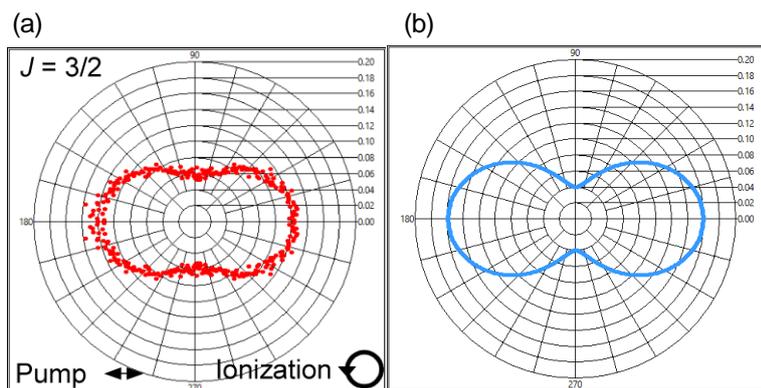


Fig. 3. (a) Angular distribution of  $\text{N}^+$  fragments  
(b) Calculated  $|\Psi(\theta)|^2$  with  $J=3/2$  and  $M_J=\pm 1/2$

### 【参考文献】

[1] Mizuse et al., Sci. Adv. 1, e1400185 (2015).