

## 9 フェムト秒強光子場中 NO の解離性トンネルイオン化過程

(分子研<sup>1</sup>, 総研大<sup>2</sup>, JST さきがけ<sup>3</sup>) ○松田晃孝<sup>1</sup>, 高橋栄治<sup>1,2</sup>, 菱川明栄<sup>1,2,3</sup>

【序】10 フェムト秒以下の極めて短いパルス幅を持つ強光子場においてはより長いパルス ( $\geq 100$  fs)において顕著であるイオン化促進過程[1]および分子配向過程[2]を抑制することができるため、生成フラグメントイオンの運動量ベクトルから分子と光子場がいかにか結合するかをより直接的にとらえることが可能となる。本研究では9フェムト秒強光子場におけるNOの解離性イオン化過程  $\text{NO}^+ \rightarrow \text{N}^+ + \text{O}$  に着目し、 $\text{N}^+$ 解離イオンの3次元運動量計測に基づいて、強光子場 ( $1 \times 10^{14} \sim 1 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>)における電子ダイナミクスを明らかにすることを目的とした。

【実験】フェムト秒チタンサファイアレーザーシステムから出力されたレーザーパルス(800 nm, 40 fs, 1 kHz)を Ar ガス( $\sim 0.07$  MPa)を充填した中空ファイバーとチャープミラーを用いることによってパルス圧縮し[3], 時間幅 9 fs のレーザーパルスを得た。得られたレーザーパルスを真空チャンバー内に設置した凹面ミラーにより集光し、相互作用領域で NO から生成した  $\text{N}^+$ イオンを位置敏感型粒子検出器(PSD)を用いて観測した。解離イオンの PSD における位置( $x, y$ )とその飛行時間( $t$ )を元にフラグメントイオンの運動量を3次元ベクトル  $\mathbf{p}$  として解離事象ごとに決定し、得られた  $\text{N}^+$ イオンの運動量から全解離運動エネルギー  $E_{\text{kin}} = \frac{m(\text{N}^+) + m(\text{O})}{2m(\text{N}^+)m(\text{O})} |\mathbf{p}|^2$  を算出した。ここで  $m(\text{N}^+)$  および  $m(\text{O})$  は  $\text{N}^+$  および O の質量である。また、解離事象のうち偏光方向に垂直な軸の運動量成分  $p_{\perp}$  が  $|p_{\perp}| < 0.8$  a.u. を満たすものを抽出して  $\text{N}^+$ イオンの運動量画像を得た。

【結果と考察】光子場強度  $1.1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> における  $\text{NO}^+ \rightarrow \text{N}^+ + \text{O}$  の解離性イオン化過程によって生成したフラグメントの全解離運動エネルギースペクトル (図1(a)) には、3つの成分が  $E_{\text{kin}} = (\text{A}) 0.26$  eV, (B) 0.69 eV, (C) 2.13 eV に観測された。このうち成分(B), (C)は1光子吸収における実験結果[4]と良い一致を示すことからそれぞれ  $\text{NO}^+ \text{c}^3\Pi$ ,  $\text{B}^1\Pi$  状態からの解離,  $\text{NO}^+(\text{c}^3\Pi) \rightarrow \text{N}^+(\text{c}^3\Pi) + \text{O}(\text{c}^3\Pi)$  および  $\text{NO}^+(\text{B}^1\Pi) \rightarrow \text{N}^+(\text{c}^3\Pi) + \text{O}(\text{c}^3\Pi)$ , に帰属した。一方、今回新たに観測された成分(A)は  $\text{NO}^+$ の核間ポテンシャル[5]に基づいて平衡核間距離( $R \sim 1.15$  Å)より大きな N-O 結合距離 ( $R \sim 1.4$  Å)における  $\text{NO}^+ \text{c}^3\Pi$  状態からの解離に帰属した。解離生成  $\text{N}^+$ イオンの運動量画像 (図2(a)) はいずれの成分に対してもレーザー偏光方向に対して 45 度方向に強いピークを示すことが見出され、NO 分子軸がレーザー偏光方向に対して 45 度に向いた場合に解離性イオン化が起こりやすいことが明らかとなった。NO の反結合性  $2\pi$  半占有分子軌道(SOMO)は分子軸に対し  $\sim 45$  度方向に大きな分布を持つことから、(i)ADK 理論[6]から予想される NO 基底状態  $X^2\Pi$  の SOMO からのトンネルイオン化による  $\text{NO}^+$ 基底状態  $X^1\Sigma^+$ の生成と(ii)電離電子の再衝突により解離性状態 ( $\text{c}^3\Pi$ ,  $\text{B}^1\Pi$ ) が生成することが示された。一方、光子場強度の増加に伴っ

て (図 1(b)) 成分(A)の強度が増大し  $c^3\Pi$  状態の大きい核間距離( $R \sim 1.4 \text{ \AA}$ )からの解離が顕著になると同時に、いずれの運動エネルギー成分についても 0 度方向に強いピークが新たに現れることが明らかとなった (図 2(b)). このことは比較的強い光子場強度においては、そのイオン化機構が中性 NO の励起状態を経由した非 ADK トンネルイオン化過程に移行することを意味している.

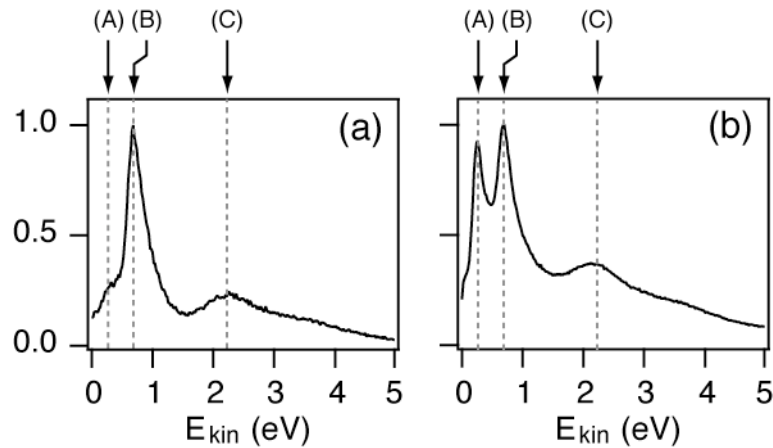


図 1：全解離運動エネルギースペクトル. 光子場強度  $1.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (a),  $4.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (b).

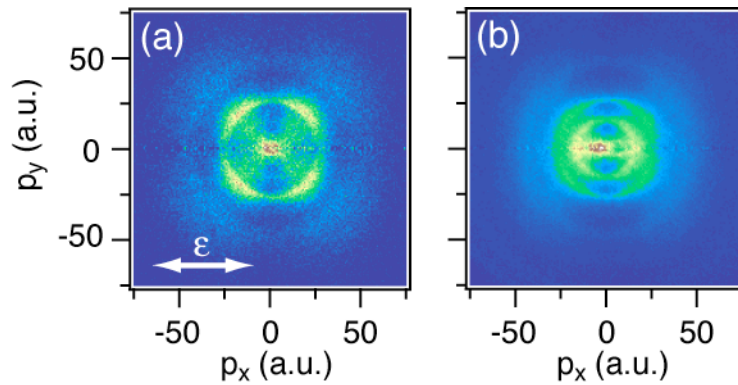


図 2： $N^+$ イオンの運動量画像. 光子場強度  $1.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (a),  $4.1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (b). 図中矢印  $\epsilon$  はレーザー偏光方向を示す.

- [1] T. Zuo and A.D. Bandrauk, Phys. Rev. A **52**, R2511 (1995).
- [2] X.M. Tong *et al.*, J. Phys. B **38**, 333 (2005).
- [3] M. Nisoli *et al.*, Opt. Lett. **22**, 522 (1997).
- [4] A. Lafosse *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5987 (2000).
- [5] H. Partridge *et al.*, J. Chem. Phys. **93**, 7179 (1990).
- [6] X.M. Tong *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 033402 (2002).