

数サイクル高強度中赤外光により誘起される分子の電子状態間結合の解明

Studies on the electronic coupling of molecules induced by a few-cycle intense mid-infrared pulse

深堀 信一¹⁾, 遠藤 友随²⁾, 石井 順久²⁾, 板倉 隆二²⁾, 長谷川 宗良¹⁾

Shinichi FUKAHORI, Tomoyuki ENDO, Nobuhisa ISHII, Ryuji ITAKURA, Hirokazu HASEGAWA

¹⁾ 東京大学大学院総合文化研究科 ²⁾ QST 関西光量子科学研究所

(概要)

高強度光による分子のイオン化過程は、複雑な電子状態間結合や再散乱電子による電子励起など未解明な部分が多い。特に光の波長に着目すると、波長に応じて結合する電子状態は異なり、また光の中で電子が獲得するエネルギーは波長の二乗に比例するため、高強度光によるイオン化過程は波長に敏感である。本研究では、従来用いられている Ti:S レーザーによる 800 nm の高強度光とは異なり、Yb レーザーを用いて波長 1 μm の光強度光を分子へ照射し、生成した光電子とイオンのコインシデンス計測を行うことで、高強度光によるイオン化過程の波長依存性を明らかにすることを目指す。

キーワード：高強度光、イオン化、コインシデンス計測

1. 目的

従来の研究では、主に波長 800 nm の高強度光を用いてイオン化過程が調べられている。しかし、イオン化の際には多数の電子状態が混合するが、異なる波長を用いることによって共鳴の有無が生じ、また共鳴する場合においても共鳴する電子状態が変化する。また、波長を変えることによって光電場中の電子が持つ再散乱のエネルギーが変化し、波長に応じて異なる電子状態のイオンが生成する。これらのことから、イオン化過程は波長に大きく依存すると期待される。本研究では、量研において開発された高出力な Yb:YAG 薄ディスクレーザー (QUADRA-T レーザーシステム, 1 μm , 10 kHz) を用いて、OCS 分子の高強度光によるイオン化過程を明らかにすることを目的とする。

2. 方法

高強度光によるイオン化で生成した光電子およびイオンそれぞれの運動量ベクトルを計測することによって、イオンの電子状態やイオン化に関与した電子状態を知ることができる。さらにイオン化の際に解離が起こる解離性イオン化過程を観測するためには、生成した光電子とフラグメントイオンの両者の同時計測 (PEPICO) が必要となる[1]。本研究では、QUADRA-T レーザーシステムからの 10 kHz, 1 μm のフェムト秒レーザー光をサンプルへ集光し生成した光電子・イオンの同時計測を行い、レーザーショット毎に電子・イオンの運動量計測を行った。サンプルは、He で希釈した OCS の漏れ出し分子線を用いた。

3. 結果及び考察

本実験では 10 kHz の高繰り返しレーザーを用いたため、PEPICO データ取得効率が飛躍的に上昇した。具体的には 2 日間の実験期間中に 4200 万回のイオン化イベントを記録し、高強度光による特徴的なレーザー偏光方向に異方性を持つ光電子の信号がはっきりと観測できた。一昨年度測定をした波長 800 nm による実験結果と比較すると、800 nm のイオン化に比べ above threshold ionization に由来する光電子のピークが不明瞭となり、またよりレーザー偏光方向に異方性が大きくなった。これは、波長が長くなったことによりイオン化過程が多光子イオン化ではなくトンネルイオン化として起きていることを示唆するものである。

当初の予定ではイオン・電子の同時計測を行う予定であったが、イオン側の検出器にトラブルが発生し今回の実験では光電子の二次元計測に終始した。このため、観測した光電子画像は、解離性イオン化を含む様々なイオン化過程に由来する光電子が重層されている。しかし、観測された信号は、イオン化エネルギーの最も小さな $\text{OCS} \rightarrow \text{OCS}^+ + e^-$ に由来する電子と考えられる。光電子画像では、レーザー偏光方向から外れた方向に 800 nm で測定した時と異なる異方性を持った光電子が観測された。具体的には、800 nm の場合、レーザー偏光方向と光電子の放出方向のなす角度に対して 4 つの節があり、放出光電子の持つ軌道角運動量が $l=4$ であるが、1 μm の場合 $l=5$ の放出光電子が観測された。これは $\text{OCS} \rightarrow \text{OCS}^+ + e^-$ のイオン化過程において、Freeman 共鳴といった中性の電子励起状態の関与を示唆している。

4. 引用(参照)文献等

[1] S. Fukahori, T. Otobe, H. Akagi, K. Yamanouchi, and R. Itakura, Phys. Rev. A, 107, 053118 (2023).