高強度光による振動励起分子のイオン化過程

Ionization Processes of Vibrationally Excited Molecules in an Intense Laser Fields

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)

波長 1 µm の QUADRA-T レーザーを用いて OCS 分子の高強度光によるイオン化過程を調べた。イオ ン化により生成したイオンおよび電子の 3 次元運動量ベクトルを同時計測した。解離性イオン化によって 生成した S⁺は、トンネルイオン化によって生じ、また放出運動エネルギーの大きな S⁺は、偏光方向に対し て平行よりも垂直の方に多く放出された。この異方性は速い解離により S⁺が生成することを示しており、 この S⁺の運動量ベクトルを用いることで分子固定座標系における光電子の角度分布を調べることができた。 その結果、分子軸と偏光の相対配向によらず、偏光方向に電子は放出され、さらに上下の偏光方向に対して S⁺側に電子が多く放出されていることが分かった。

<u>キーワード:</u>高強度光、トンネルイオン化、光電子光イオンコインシデンス計測

1.目的

これまでの高強度光による分子のイオン化過程の研究は、イオン化に用いる高強度光の波長に着目す ると、多くの研究において Ti:Sa レーザーによる波長 800 nm [1]、もしくはその2倍波である 400 nm [2,3]の光を用いて実験が行われている。高強度光によるイオン化過程は顕著な波長依存性を持つが、 多くの波長での実験が行われていない。長波長側に着目すると、例えば波長 1 µm の光を用いると、 800nm の光と比べ、波長の二乗に比例するポンデロモーティブポテンシャルは約 1.5 倍となり、イオ ン化において多光子過程からトンネルイオン化過程がより支配的になる。さらに、光子のエネルギー は 0.8 倍となるため振動状態への共鳴が起こりやすくなり、分子構造の変化に伴うイオン化確率の変 化も起こりうる。そこで本研究では、800 nm よりも長波長の高強度光によるイオン化過程を調べるこ とを目的とした。このために、波長 1 µm の QUADRA-T レーザーを用いて、分子の高強度光によって 生成した光電子・光イオンを同時計測し、波長 1 µm におけるイオン化過程を明らかにすることを目指 した。

<u>2. 方法</u>

波長 1 µm 付近に(1,0,5)←(0,0,0)の振動遷移の共鳴を持つ直線分子の OCS 分子を対象として選んだ。 OCS 分子を He で希釈したサンプルガスを真空チャンバー内に漏れ出し分子線として導入した。 QUADRA-T レーザーからの出力を、貴ガスの封入された中空ファイバーとチャープミラーを用い てパルス圧縮し直線偏光, 10 kHz, 1 µm, 8 fs)、放物面鏡を用いて分子線上へ集光した。生成した電 子およびイオンは正対する二つの位置敏感型検出器によってそれぞれ検出され、その際の飛行時間 (TOF) および検出位置を計測することによって、それぞれの荷電粒子の3次元運動量ベクトルを レーザーショット毎に同時計測 (PEPICO 計測) した[2,3]。 <u>3. 結果及び考察</u>

QUADRA-T レーザーシステムの高繰り返しの利点を生かし、本実験では約 1.8 x 10⁹回のイベント を計測した。イオンの計測では OCS⁺, OCS²⁺, S⁺が観測され、各イオン種について電子との同時計 測されたイベント数は、それぞれ 2.4 x 10⁸回、5.6 x 10⁵回、7.3 x 10⁶回であった。このイベント数 の相対比率は高強度光によるイオン化の際の分岐比に対応しており、各イオン種の出現エネルギー がそれぞれ 11.19 eV (OCS⁺), 30.0 eV(OCS²⁺), 14.1 eV(S⁺)であることと整合している。

観測されたイオン種 OCS⁺が生成するチャンネルと同時計測された光電子スペクトルには,いくつ かのピークが観測されいくつかのピークの間隔は光子エネルギー(1.15 eV)に対応していた。一方, OCS²⁺および S⁺が生成するチャンネルにおける光電子スペクトルには明瞭なピークが観測されなか った。これは OCS⁺, OCS²⁺, S⁺の生成が異なる強度で起きていることを示唆しており,OCS⁺の生成 には比較的低い光強度でイオン化し,OCS²⁺および S⁺の生成には高い光強度を要するため,集光位 置における光の強度分布のうち強度が小さな周辺領域から OCS⁺が,強度が大きな中心部分から OCS²⁺および S⁺が生成しているものと考えられる。

観測された S⁺の放出運動エネルギーは 0 eV ~ 1.5 eV に渡っており, 解離性イオン化チャンネル, OCS \rightarrow OCS⁺+e⁻ \rightarrow S⁺+CO によるものと帰属された。偏光に対する S⁺イオンの放出方向は, S⁺ の放出運動エネルギーに依存しており, 低エネルギー領域 (0.005 eV ~ 0.51 eV) においては, 等方 的に放出され, 高エネルギー領域 (0.58 eV ~ 1.50 eV) においては偏光に垂直方向により多く放出さ れることが分かった。放出イオンが異方性を持つことは, 高エネルギーの S⁺は OCS⁺の回転周期と 比べて速い解離によって生成したものであることを示している。

速い解離に由来する S+の運動量ベクトルをもとにして, 分子に固定した座標系における光電子の放 出角度分布(MF-PAD)の解析を行なったところ、光電子のエネルギーの増加とともに(0.14 eV → 8.0 eV) OCS 分子軸に対して放出される電子の方向の異方性がより強く現れ, OCS の S 側に電子が 多く放出されていた。この解析においては、O-C-S 軸と偏光の相対配向は全て積算し、平均化され ており, 光電子の放出方向についてさらに詳細に調べるため, O-C-S 軸と偏光のなす角αごとの放 出角度分布の解析を行なった。光電子はレーザー偏光方向へ放出され、さらに角度αに対する依存 性は小さく,いずれも S 側へ放出される光電子の割合が大きかった。光電子の放出方向は,S⁺チャ ネルにおいてトンネルイオン化が起きているとする、光電場によりゼロ運動エネルギーの光電子が 生成し、その後、レーザー電場から光電子が力を受けるというトンネルイオン化のモデルに従えば、 光電子の放出方向は電子が生成した時点におけるベクトルポテンシャルの方向となる。今回用いた 搬送波包絡線位相をロックしていない数サイクルレーザーパルス光であれば上下に振動するレー ザー偏光方向に対して上下方向に対称に光電子が放出されると予想される。しかし、実験結果は上 下の偏光方向のうち, OCS の S 原子に近い方へ多くの電子が放出される非対称性を示している。こ のことは、イオン化の際に放出された光電子は、光電場から力を受けるだけでなく、イオンコアか らのクーロンカの影響を受けていることを示唆している。実験結果は、OCS⁺中のS側に光電子が引 き込まれていることを示している。また、今回の実験結果だけでは OCS の振動励起による影響に ついて議論できないため、以前実施した 800 nm の光を用いた結果と比較することで今後検討する 予定である。詳細な比較は今後行う予定であるが、実験室固定系における光電子角度分布、特に角 度分布の節の形状が 800 nm と 1 μm では異なっており, 振動励起の影響の有無について検討を行 う。

4. <u>引用(参照)文献等</u>

[1] K. Hosaka, A. Yokoyama, K. Yamanouchi, and R. Itakura, J. Chem. Phys., 138, 204301 (2013).

[2] S. Fukahori, M. Nakano, K. Yamanouchi, and R. Itakura, Chem. Phys. Lett., 672, 7-12 (2017).

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