

高強度光により生成されたイオンの回転ダイナミクス  
Rotational Dynamics of Ions Created by An Intense Laser Light

深堀 信一<sup>1)</sup>、遠藤 友随<sup>2)</sup>、石井 順久<sup>2)</sup>、板倉 隆二<sup>2)</sup>、長谷川 宗良<sup>1)</sup>  
Shinichi FUKAHORI、Tomoyuki ENDO、Nobuhisa ISHII、Ryuji ITAKURA、Hirokazu HASEGAWA

<sup>1)</sup> 東京大学大学院総合文化研究科      <sup>2)</sup> QST 関西光量子科学研究所

(概要)

高繰り返し (10 kHz) の QUADRA-T レーザーを用いて、 $O_2$  分子の高強度光によるイオン化過程をポンプ・プローブ法により調べた。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、それらのポンプおよびプローブ間の遅延時間依存性を測定した。ポンプ光として基本波、プローブ光として2倍波を用いた場合、 $O_2^+$  収量の遅延時間依存性には、約 1 ps の寿命で減衰する成分が観測された。さらに  $O_2^+$  と関連する光電子の測定においても、収量および角度分布に遅延時間依存性が確認された。これらの結果は、基本波によって誘起されたダイナミクスを反映していると考えられる。また、フラグメントイオン  $O^+$  は、プローブ光の偏光方向に沿って放出されることが観測された。この結果から、 $O^+$  は生成した  $O_2^+$  の電子状態から平行遷移によって解離性の励起状態へ遷移し、その後の解離によって生成することが示唆された。

キーワード : 高強度光、光電子光イオンコインシデンス計測、ポンプ・プローブ計測

1. 目的

高強度短パルス光による分子のイオン化では、生成される電子・イオン・高調波の観測から、光電場によって駆動された電子運動が本質的な役割を果たしていることが明らかになっている。さらに、イオン化によって生成した分子イオンでは、電子・振動・回転状態などの内部自由度がコヒーレントに励起され、その後も光パルスと相互作用することで光励起や解離などのダイナミクスを示す。このような光パルス内で生じる現象を調べる手法として、単一分子から生成した電子とイオンを同時に計測する光電子・光イオン同時 (PhotoElectron PhotoIon COincidence: PEPICO) 計測法は強力な測定方法となっている[1]。しかし、PEPICO 計測法では多数のイオン化イベントを蓄積する必要があるため、ダイナミクス観測に有効なポンプ・プローブ法との組み合わせは容易ではない。本研究では、量研が有する高繰り返し (10 kHz) の QUADRA-T レーザーを用いることでこの問題を克服し、高強度光によって生成した光電子・光イオンの同時計測を行うとともに、ポンプ・プローブ遅延時間を変化させることで、高強度光による分子イオン化過程の解明を目指した。

2. 方法

イオンの振動・回転ダイナミクスや、スピン・軌道相互作用分裂による電子ダイナミクスが期待される  $O_2$  分子をサンプルとして選んだ。 $O_2$  分子は真空チャンバー内に漏れ出し分子線として導入された。光源には QUADRA-T レーザーシステム (10 kHz、1030 nm、30 fs) を用い、その出力光を BBO 結晶に通すことで二倍波 ( $2\omega$ ) を生成した。遅延時間をつけた基本波 ( $\omega$ ) と二倍波 ( $2\omega$ ) を集光

ミラーによって分子線上に集光した。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 (PSD) によってそれぞれ検出された。各粒子の飛行時間 (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]。さらに、この計測を $\omega$ と $2\omega$ の遅延時間を変化させて行なった。光の偏光については、 $\omega$ の偏光は PSD 平面に平行に、 $2\omega$ の偏光は PSD 平面に垂直に配置した。

### 3. 結果及び考察

イオンの測定から  $O_2^+$  および  $O^+$  の生成が確認された。 $O_2^+$  のイオン収量は、 $\omega$  および  $2\omega$  をそれぞれ単独で照射した際のイオン収量に比べて、 $\omega$  と  $2\omega$  を両方照射した場合にイオン収量が増加しており、ポンプ光によるイオン収量の変化が観測された。ここで、 $\omega$  を  $2\omega$  よりも時間的に先に照射する場合を正の遅延時間と定義すると、 $O_2^+$  のイオン収量は正負両方の遅延時間領域において増加した。さらに、正の遅延時間領域においては、1 ps 程度の寿命で遅延時間の増加とともに収量が減少することが分かった。この結果は、ポンプ光 ( $\omega$ ) によって生じた何らかのダイナミクスを反映しているものと考えられる。一方、 $O^+$  については、 $\omega$  および  $2\omega$  をそれぞれ単独で照射した場合と比べて、負の遅延時間領域ではイオン収量が減少し、正の遅延時間では増加することが分かった。しかし、負および正の遅延時間領域のいずれにおいても、遅延時間に対する明瞭な変化は観測されなかった。そのため、 $O^+$  に関しては明確なダイナミクスを捉えることができなかった。

PEPICO 測定によって得られた光電子スペクトル (PES) では、 $O_2^+$  と相関する PES において、0 ~ 10 eV にわたり幅広いいくつかのピークが観測された。特に低エネルギー領域 (0~2 eV) における光電子の収量は、負の遅延時間領域では遅延時間依存性を示さなかったが、正の遅延時間領域においては遅延時間の増加とともに減少した。この結果は、 $O_2^+$  のイオン収量の結果と対応しており、ポンプ光 ( $\omega$ ) によって誘起されたダイナミクスを反映している。一方、 $O^+$  と相関する PES では、0~10 eV にわたり連続的な分布が観測された。負および正の遅延時間領域で収量の違いは見られなかったものの、明瞭な遅延時間依存性は見られなかった。この結果は、 $O^+$  のイオン収量の結果と整合している光電子の角度分布については、正の遅延時間領域において、 $O_2^+$  と相関する電子では遅延時間依存性が観測されたのに対し、 $O^+$  と相関する電子については明瞭な遅延時間依存性は見られなかった。

また、正の遅延時間領域における  $O^+$  の放出方向を解析したところ、 $O^+$  はプローブ光の偏光方向に沿って放出されていることが分かった。この結果は、ポンプ光によって  $O_2^+$  が生成され、その後プローブ光によって解離性の電子励起状態へ遷移し、最終的に  $O^+$  が生成していることを示唆している。さらに、この解離性の電子励起状態は、生成した  $O_2^+$  の初期電子状態からの平行遷移によって励起されていることが明らかとなった。

### 4. 引用(参照)文献等

- [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).