

論文内容の要旨

論文題目

Alignment, structural deformation, and dissociation processes of O_2^+ and CS_2 in intense laser fields

(強光子場中の O_2^+ および CS_2 の配向・構造変形・解離過程)

氏名 岩崎純史

1. 背景

高輝度、短パルスレーザー光を集光することによって発生するレーザー光子場は、分子内の電場強度に相当する程の強度を持つ。このレーザー光子場中において、分子は多重イオン化の後、クーロン反発によって原子イオンに解離する。このクーロン爆発の結果として生成する原子フラグメントイオンは、レーザー偏光軸の方向に高い指向性をもって放出されることが知られている。このフラグメントイオンの異方分布は、当初、レーザー偏光方向に分子が配向するために起きると考えられた。しかしその後、レーザー偏光方向に分子軸をそろえた分子ほどイオン化しやすいという近軸増強イオン化が、フラグメントの異方性に大きく寄与していることが明らかになった。一方、多重イオン化の過程で、分子の核間距離や結合角が大きく変化する分子構造緩和がレーザー場によって起きることが知られるようになった。したがって、強光子場中では分子配向、近軸増強イオン化、分子構造変化という現象がほぼ同時に進行する可能性がある。そのため、分子がクーロン爆発した結果として得られる、フラグメントイオンの運動量ベクトル分布に、これらの現象がどの程度、そして、どのようにして反映されているかについては、今なお明らかになっていない。そこで本研究では、強光子場中の分子からクーロン爆発によって生成したフラグメントの運動量ベクトル分布を、飛行時間型質量分析計を用いた運動エネルギーの精密測定、分散蛍光 (dispersed fluorescence; DF) 分光法を用いたドップラープロファイルの観測、質量選別運動量画像 (mass-resolved momentum imaging; MRMI) 法を用いた角度異方性分布の観測に基づいて求め、強光子場中における分子の配向とイオン化にともなう構造変形機構を明らかにすることを試みた。

2. 質量選別運動量画像法と共分散相関法による強光子場中 O_2^+ の光解離ダイナミクス

高強度光子場 ($\sim 10^{15} \text{ W/cm}^2$) 中の分子ダイナミクスの研究は、これまで簡単な電子準位構造を持つ H_2^+ を中心に行われ、その強光子場中の運動は、分子と光子場が強く結合して形成された“ドレスト状態”のポテンシャルに基づいて説明できることが示されてきた。 H_2^+ においては、主に2つの電子状態 ($1s\sigma_g, 2p\sigma_u$) がドレスト状態の生成に寄与しているが、一般に、複数の電子を持つ分子においては、多数の電子状態が近接して存在し、それらが光子場との強い相互作用により結合していると予想される。ここでは、強光子場中の O_2^+ イオンに着目し、多電子系においてドレスト状態がいかに形成され、その分子ダイナミクスを決定づけているかを明らかにすることを旨とした。

高輝度フェムト秒光パルス (800 nm, 100fs, 10 Hz)、およびその第2次高調波 (400 nm) を、高真空チャンバー ($\sim 10^{-8}$ Torr) に集光することによって $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ 程度の光子場を発生させた。光子場との相互作用によって O_2 から生成した O^+ イオンの運動量ベクトル分布を質量選別運動量画像 (MRMI) 法により測定した。

波長 800、400 nm における O^+ イオンの MRMI 図を、図 1 (a)、(b) に示す。図 1 (a) の MRMI 図には、クーロン爆発過程 $O_2^{2+} \rightarrow O^+ + O^+$; (1, 1) の他に、解離過程 $O_2^+ \rightarrow O^+ + O$; (1, 0) に由来するピークが観測された。このピークはレーザー偏光方向 (ϵ) に強い空間異方性を示し、同じ電子対称性を持った電子状態間の結合が、強光子場における解離過程を支配していることを示唆している。ドレスト状態の考え方に基づいて、観測されたピークが主として4重項状態 $a^4\Pi_u$ を始状態とした $a^4\Pi_u \rightarrow b^4\Pi_g \rightarrow 2^4\Pi_u \rightarrow 2^4\Pi_g$ 状態間結合による 1+1+1+1 越閥解離 (ATD) に由来することが示された。また、波長を 400 nm とした場合、図 1 (b) のように MRMI 図には3本のピークが観測された。これらのピーク に対して、同様の帰属が

できることがわかり、ドレスト状態が主として同じ電子対称性を持つ少数の電子状態間の結合によって生成することが明らかとなった。

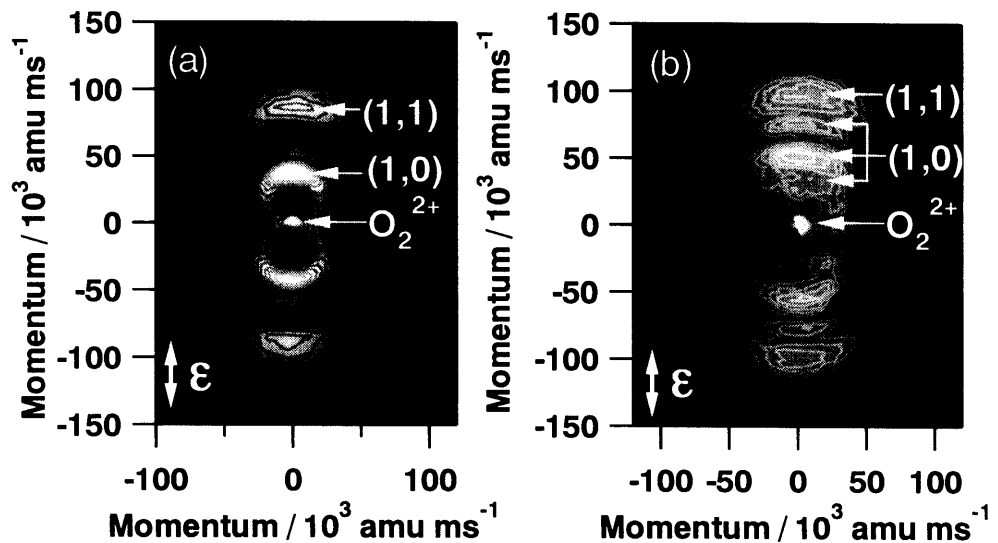


図 1: (a)800 nm と(b)400 nm のフェムト秒レーザーパルスによって発生した強光子場から生成した O^+ の MRMI 図

3. ナノ秒強光子場中における CS₂ の分子配向と構造変形

超短パルス (~100 fs) 強光子場中において、分子は配向、構造変形、多重イオン化を経てクーロン爆発を起こすことが知られている。しかしながら、これらの現象は、時間的に重なり合いながら進行するため、それぞれの過程を分離して観測することは困難である。これに対し、ナノ秒パルスレーザー場の場合には、レーザー場の強度変化が緩やかであるため、超短パルスレーザー場を用いて、それらの過程が進行する様子をプローブできると期待される。そこで、ナノ秒パルスレーザー場 (~10¹³ W/cm²) 中の CS₂ の配向および構造変形過程を、超短パルスレーザー (~100 fs) によるクーロン爆発を利用して追跡した。

ナノ秒レーザー (Nd:YAG, 1064 nm, 420 mJ) を集光することによって、1x10¹³ W/cm² の光子場を発生させ、分子線中の CS₂ に照射した。この強光子場下の CS₂ を、円偏光とした超短パルスレーザー光 (1x10¹⁴ W/cm²) によって多重イオン化し、クーロン爆発によって生成した解離生成フラグメントイオンを、飛行時間 (TOF) 型質量分析器によって検出した。イオン化用の超短パルスレーザー光を円偏光としているため、観測された運動量ベクトル分布の異方性は、ナノ秒レーザーによって生成した CS₂ 分子の異方性を示す。ナノ秒レーザーの偏光方向を TOF 軸方向に対して回転させることによって、原子フラグメントイオンの運動量ベクトル分布を測定し、2次元質量選別運動量画像 (MRMI) 図として表示した。

ナノ秒レーザーの偏光方向を回転させて測定した S²⁺ と C²⁺ の MRMI 図を、それぞれ図 2(a), (b) に示す。図 2(a) の MRMI 図から、S²⁺ が レーザー偏光方向 (ε) を中心とした、急峻な角度異方性を持つこと、図 2(b) から、C²⁺ がレーザー偏光方向とは直行する方向を中心とした角度分布を持つことが示された。ナノ秒レーザーパルスに対して、プローブ光である超短パルスレーザー光の入射時間を変化させて、フラグメントイオンの角度異方性分布の追跡を行った結果、異方性分布はナノ秒レーザーのパルス波形と同様の時間変化を示すことがわかった。すなわち、この

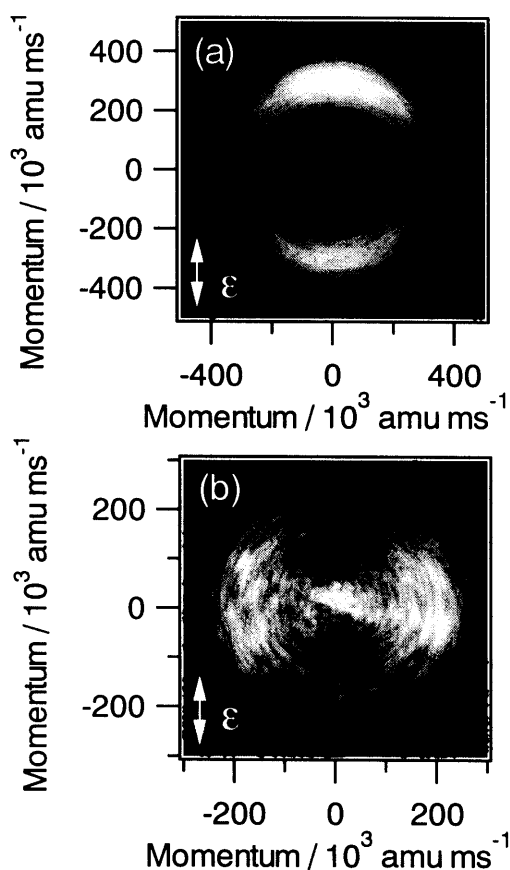


図 2 : ナノ秒レーザー光子場 (~10¹² W/cm²) 中の CS₂ を超短パルスレーザーでイオン化した場合の (a) S²⁺, (b) C²⁺ の MRMI 図

S^{2+} の異方性分布は、ナノ秒レーザーの偏光方向に CS_2 が分子配向していることを示している。一方、 C^{2+} の異方性分布については、分子配向のみを考慮して運動量ベクトル分布シミュレーションを行った結果、ナノ秒レーザー偏光軸が TOF 検出器方向と垂直方向を向いている場合に、実測の分布強度はシミュレーションから得られた分布強度よりも強く現われることが示された。このことは、ナノ秒レーザー場中において、 CS_2 の電子基底状態と変角型の電子励起状態が、レーザー光子場との相互作用によって結合し、変角座標方向に構造変形が起きることを示している。

4. 蛍光ドップラー法による強光子場中での多重イオン化機構の解明

強光子場中分子の多重イオン化過程には、生成した親イオンの電子状態が大きく寄与している。しかし、クーロン爆発に伴って生成したフラグメントイオンの運動エネルギーを測定しただけでは、親分子イオンのクーロン爆発直前の電子状態に関する知見を得ることは不可能である。そこで、分散蛍光 (DF) 法を用いて、フラグメントイオンからの発光を観測した。

強レーザー光子場 ($2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$) に NO 分子をさらし、生成した原子フラグメントイオンからの発光を分光した。得られた DF スペクトルの一部を図 3 に示す。スペクトル中には、主に N 原子と O 原子の 1 価および 2 価イオンのリュードベリ状態から、主量子数 $n=3$ ($l=0, 1, 2$) の準位への発光が観測された。図 3 に示すように、 $N^{2+}(3p \rightarrow 3s)$ の発光ピークでは、偏光方向を検出器方向と平行とした場合にはドップラー広がりが見られるが、垂直とした場合には見出されないことがわかった。ドップラー広がりには、フラグメントイオンの運動量ベクトルの分布を反映しており、このピークのドップラー広がりに対する異方性は、フラグメントイオンが主に偏光方向に放出されていることを示している。

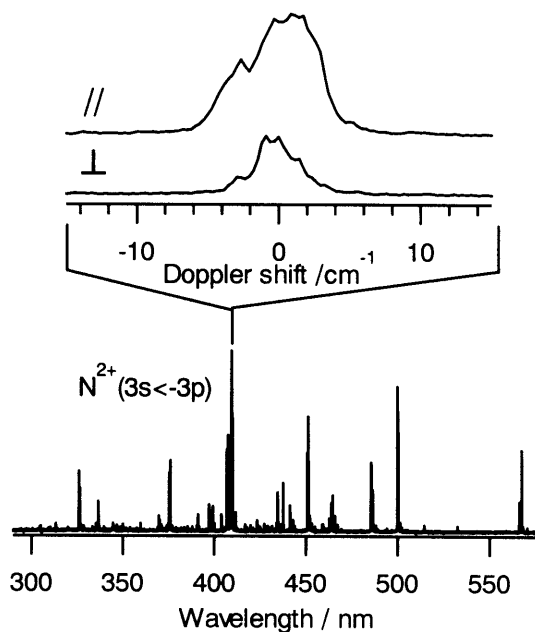


図 3 : NO の DF スペクトル (下) と検出器方向に対して、レーザー偏光方向を平行 (//)、垂直 (⊥) とした場合の蛍光ドップラースペクトル (上)