

## 4C20

### 超短パルス強光子場における $\text{H}_2\text{O}$ の解離性イオン化ダイナミクス

(東大院理<sup>1</sup>、東北大院理<sup>2</sup>、NTT物性研<sup>3</sup>) 古川裕介<sup>1</sup>、○山内 薫<sup>1</sup>、石澤 淳<sup>2</sup>、中野秀俊<sup>2</sup>、  
廣瀬剛史<sup>3</sup>、佐藤幸男<sup>3</sup>、河野裕彦<sup>3</sup>

【序】強光子場による分子の解離性多重イオン化過程では、クーロン爆発に至るまでの励起過程において、分子の構造が大きく変形することが知られている。強光子場と分子の相互作用において見られるこの分子の構造変形は、強いレーザー電場によって変形を受けるポテンシャル曲面を用いて説明することができる。近年、チタンサファイアフェムト秒レーザーシステムからの出力パルスのスペクトルを広帯域化することによってパルス幅 10 fs を切る超短レーザーパルスを発生させることが可能となった。このような、数サイクルの時間幅しかないレーザーパルスを用いれば、超短時間内に起こる段階的イオン化過程のポテンシャル変形に追従する分子の動的応答を観測できる。

本研究では、 $\text{H}_2\text{O}$  分子の超短パルス強光子場による解離性二重イオン化過程に着目した。 $\text{H}_2\text{O}$ に超短パルスを集光して生成した $\text{H}^+$ フラグメントイオンの運動エネルギー分布を飛行時間型(TOF)質量分析器を用いて測定した。その運動エネルギー分布のパルス幅依存性から、超短時間(6~22 fs)内に起こる $\text{H}_2\text{O}$ の解離性イオン化過程における構造変形を明らかにすることを試みた。さらに、強レーザー場によって歪められた断熱ポテンシャル上で水分子の核波束計算を時間依存断熱状態法に基づいて行った。実験結果と理論結果の比較から、実験で得られたフラグメントの帰属が可能となった。そして、その結果、電場振幅が数サイクル程度の極短パルス中においても、水分子の構造が大きく変形することが示された。

【実験】チタンサファイアフェムト秒レーザーシステムのレーザー出力 (1 kHz, 25 fs, 0.8 mJ) を、非線形媒質 (Ne) を封入した中空ファイバーに導入することによって、そのスペクトル成分を広帯域化した。チャープミラー対を用いて中空ファイバーからの出力パルスを再圧縮することによって、パルス幅 ~8 fs、パルスエネルギー 0.2 mJ の超短パルス光を発生させた。中空ファイバー内のNeの圧力を変えることによってスペクトル帯域を調整し、再圧縮後のパルス幅を6~22 fsの間で可変とした。この超短パルスを凹面鏡 ( $f = 200$  mm) を用いてTOFチャンバー内に集光し、強光子場 (~1 PW/cm<sup>2</sup>) によって生成した  $\text{H}^+$  フラグメントイオンをTOFスペクトルとして観測し、それぞれのイオンの運動エネルギー分布を得た。超短パルスレーザーのパルス幅を変えて TOF スペクトルを測定することによって、フラグメントイオンの運動エネルギー分布のレーザーパルス幅に対する依存性を調べた。

【結果・考察】 TOFスペクトルとして測定された $H^+$ の運動エネルギースペクトルには、 $H_2O^{2+}$  の解離チャンネルに帰属できる3つのピーク (i) 5.6 eV および (ii) 2.7 - 4.0 eV および (iii) 0.8 eV が観測された。ピーク (i)~(iii) の $H^+$ の放出角度は、レーザー偏光方向に対して異なる依存性を示した。ピーク (i) は主にレーザー偏光方向に垂直方向に強く観測されるのに対して、ピーク (ii), (iii) は主にレーザー偏光方向に強い分布を持つ。ピーク (i) は、主にレーザー電場ベクトルが $H_2O$ の分子面に垂直な方向に向いているときに起こるイオン化過程であると考えられる。一方、ピーク (ii), (iii) は主にレーザー電場ベクトルが $H_2O$ の分子面に平行であるときに高い効率で起こるイオン化過程であると考えられる。

次に、パルス時間幅を変えながら $H^+$ の運動エネルギースペクトルを測定したところ、ピーク (i) の運動量はパルス時間幅によらず、ほぼ一定の値を示した。量子化学計算法 [MCSCF(6,7) / 6-311+G(d,p)]により求めた $H_2O^{2+}$ の断熱ポテンシャル曲面には、O-H核間距離に依存しない平坦なポテンシャル領域が存在する。このポテンシャル領域にイオン化した $H_2O^{2+}$ が  $H_2O^{2+} \rightarrow H^+ + OH^+$  に解離する場合、生成する $H^+$ の運動エネルギーは6 eV程度になると推定され、ピーク (i) の運動エネルギーと良い一致を示した。一方、ピーク (ii) の運動エネルギーは、パルス時間幅を 8 fs から 22 fs まで長くするにつれて、ピーク運動エネルギーが 4.0 eV から 2.7 eV まで減少した。このことは、レーザー場との相互作用時間が長くなる程、 $H_2O^{2+}$ にイオン化された時の $H^+ \cdots OH^+$ 間距離の伸長が大きくなるためであると考えられる。外部電場を印加したときの $H_2O^+$ のポテンシャル曲面の形状は、電場を分子面に垂直に印加したときとO-H結合方向に印加したときではその形状は大きく異なる。O-H結合方向に印加した時には、O-H結合が伸長するようなポテンシャル曲面が形成される。その結果として、 $H^+ \cdots OH^+$ 間距離の伸長し、その上で $H_2O^{2+}$ にイオン化されるため、4.0 eV付近の低運動エネルギー領域にピーク(ii)が現れていると考えられる。

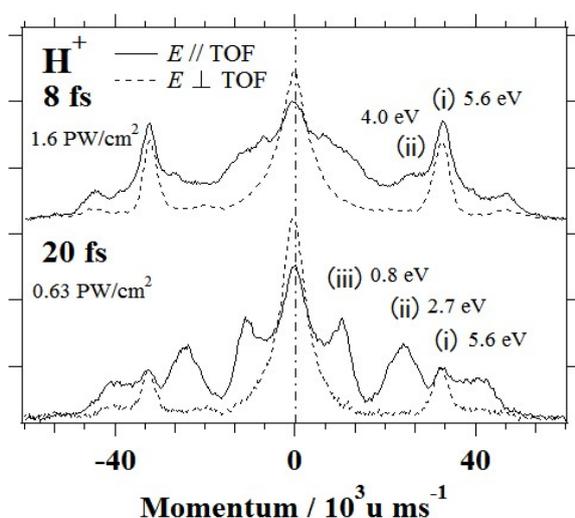


図1. 超短パルス (8 fs および 20 fs) 強光子場中で  $H_2O$  から生成した $H^+$ の運動量分布

その際、O-Hは、3.5 Åにまで伸びていることに対応する。ピーク (iii) は、パルス時間幅を長くするにつれ明瞭に現われ、解離過程 ( $H_2O^{2+} \rightarrow H^+ + O + H^+$ ) による $H^+$ イオンであると帰属される。 $H_2O^+$ ポテンシャル上において、 $H_2O^+$ の構造は、2つのOH結合がレーザー電場方向に対称的に伸張した後に、 $H_2O^{2+}$ にイオン化したと考えられる。このように、8 fs 程度の極めて短いパルスにおいても $H_2O$ の幾何学的構造が大きく変わることが示された。