

分子配向に依存した強光子場中分子ダイナミクス：
 コインシデンス運動量画像法による H₂S のクーロン爆発過程
 (分子研) 高橋 栄治, 菱川 明栄

【序】

強光子場 ($\sim 10^{15}$ W/cm²) にさらされた多原子分子は一般に、多重イオン化を経てクーロン爆発を起こす。生成したフラグメントイオンの持つ運動量ベクトルは、強光子場における分子ダイナミクスを鋭敏に反映する事が知られており、この運動量の相関に基づいて CO₂[1] や CS₂[2] などの 3 原子分子が屈曲しながら伸長するといった特異な構造変形過程を示すことが明らかにされてきた。一方、レーザーパルス時間幅が長い (~ 100 fs) 場合は、イオン化促進機構によって分子軸がレーザー偏光にある成分が優先的にイオン化される為、イオン化及び構造変形ダイナミクスがレーザー偏光方向に対する分子の向きに対してどのように依存するかを明らかにする事は困難であった。そこで本研究では、14 fs 程度の極めて短いパルス幅を持つレーザー光を用い、極短パルス強光子場中 ($\sim 10^{14}$ W/cm²) における H₂S のクーロン爆発過程をコインシデンス運動量画像法 (CMI)[3] を用いて調べ、その分子ダイナミクスの配向依存性を明らかにすることを目指した。

【実験】

Ti:sapphire レーザーシステムからの出力パルス ($\lambda \sim 800$ nm, < 40 fs, 1 kHz) を、Ar ガスを充填したセル内に設置された中空ファイバーに導入し、自己位相変調によりスペクトルの広帯域化 ($\Delta\lambda \sim 170$ nm) を行った。ファイバーからの出力パルスをチャープミラーによる分散補償により圧縮し、パルス幅 14 fs の極短パルスを得た [4]。これを超高真空チャンバー内 ($< 3 \times 10^{-8}$ Pa) に集光し H₂S と相互作用させた。強光子場中におけるクーロン爆発過程によって単一の親分子イオンから生成した全てのフラグメントイオンを、2 次元位置敏感型検出器 (PSD) によってコインシデンス計測した。それぞれのイオンの持つ運動量ベクトルは TOF より得られる飛行時間 (t) と、PSD により得られる位置情報 (x, y) から決定した。

【結果と考察】

光子場強度 3×10^{14} W/cm² における三体クーロン爆発過程、



によって生成した H⁺ の運動量相関図を図 1 (a) に示す。ここで p_1, p_2 はクーロン爆発過程により生成した H⁺ イオンの運動量の絶対値である。運動量相関図には、 $p_1 (= p_2) = 37 \times 10^3$ amu m/s 及び 40×10^3 amu m/s に二つのピークが観測され、異なる二つの過程が三体クーロン爆発過程に寄与している事が示された。

分子平面の方向は、その法線ベクトル (\mathbf{n}) を三体クーロン爆発によって観測された H⁺ の運動

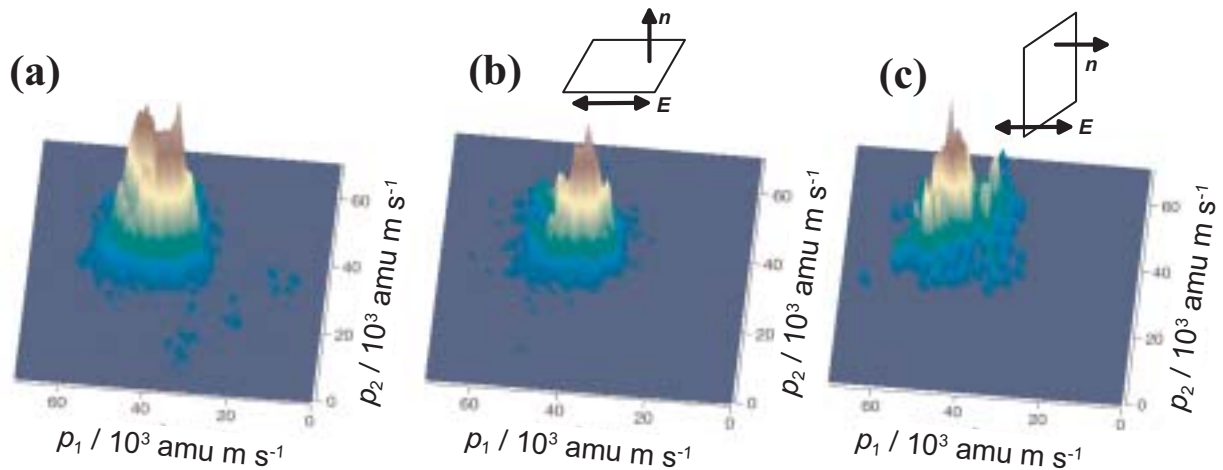


図 1: 光子場強度 $3 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ 中の三体クーロン爆発過程 (経路 3) によって生成した H^+ (p_1, p_2) の運動量相関図. (a) $0^\circ < \eta < 180^\circ$, (b) $\eta = 90^\circ$ [$75^\circ, 105^\circ$], (c) $\eta = 0^\circ$ [$-20^\circ, 20^\circ$]. η は法線ベクトルとレーザー偏光ベクトルのなす角度

量ベクトル $\mathbf{p}_1, \mathbf{p}_2$ の外積から以下のように定義し (図 2) , クーロン爆発事象毎に決定した .

$$\mathbf{n} = \frac{\mathbf{p}_1 \times \mathbf{p}_2}{|\mathbf{p}_1 \times \mathbf{p}_2|} \quad (2)$$

図 1 (b) にレーザー偏光ベクトルと分子平面が平行な場合 ($\mathbf{E} \perp \mathbf{n}$) , (c) に垂直な場合 ($\mathbf{E} // \mathbf{n}$) の運動量相関図を示す . $\mathbf{E} \perp \mathbf{n}$ の場合は $37 \times 10^3 \text{ amu m/s}$, $\mathbf{E} // \mathbf{n}$ においては $40 \times 10^3 \text{ amu m/s}$ にピークが観測され , 図 1 (a) で観測された 2 つのピークは異なる分子配向による分子ダイナミクスの違いを反映している事が明らかになった . 得られた運動量からクーロン爆発直前の H-S 結合距離は , 結合角を基底状態の 92° とした場合 , $\mathbf{E} \perp \mathbf{n}$ は 2.6 \AA , $\mathbf{E} // \mathbf{n}$ においては 1.9 \AA となった . このことは , レーザー偏光ベクトルと分子平面が平行な場合 , 平面が偏光ベクトルに対して垂直である場合に比べて H_2S がより伸張した構造を持つことを示している .

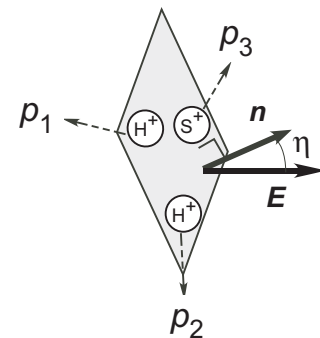


図 2: 分子平面とレーザー偏光ベクトルの関係

参考文献

- [1] A. Hishikawa, A. Iwane, and K. Yamanouchi, Phys. Phys. Lett. **83**, 1127 (1999)
- [2] A. Hishikawa, H. Hasegawa, and K. Yamanouchi, Chem, Phys. Lett. **388**, 1 (2004)
- [3] H. Hasegawa, A. Hishikawa, and K. Yamanouchi, Chem, Phys. Lett. **349**, 57 (2001)
- [4] M. Nisoli et al., Opt. Lett. **22**, 522 (1997)