

## 1C15

### サブ 10 fs 強光子場下の水分子の超高速ダイナミクス

(東大院理<sup>1</sup>、NTT物性研<sup>2</sup>、東北大院理<sup>3</sup>)

古川裕介<sup>1</sup>、山内 薫<sup>1</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>、藤村勇一<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。この様な、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と、電荷分布の変化を含めた分子の動的応答を明らかにできると期待される。

本研究では、超短パルス強光子場による H<sub>2</sub>O 分子の解離性多重イオン化過程に着目した。飛行時間型(TOF)質量分析器を用いてH<sub>2</sub>Oに超短パルスを集光して生成したフラグメントイオンの運動エネルギー分布を測定した。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 H<sub>2</sub>O の解離性イオン化過程における構造変形と電荷分離過程を解明することを試みた。

#### [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 H<sub>2</sub>O<sup>+</sup> イオンおよび H<sup>+</sup>、OH<sup>+</sup>、および、O<sup>+</sup> 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  $\text{H}^+$  の運動エネルギースペクトルには、 $\text{H}_2\text{O}^+$  の解離過程、 $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  の解離過程、そして  $\text{H}_2\text{O}^{3+}$  のクーロン爆発過程に帰属されるピークが、運動エネルギー 0 ~ 1.2 eV、1.2 ~ 9.0 eV、そして 11 eV 付近にそれぞれ観測された。特に  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  の解離チャンネルに着目すると、8 fs パルスの場合には、運動エネルギー分布の 2 つのピーク (i) 5.6 eV および (ii) 4.0 eV が観測された。レーザー偏光方向に対する  $\text{H}^+$  の放出角度依存性を測定したところ、ピーク (i) とピーク (ii) は、異なる傾向を示した。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) は主にレーザー偏光方向に強い分布を持つ異方的な角度分布を示した。ピーク (i) は、主にレーザー電場ベクトルが  $\text{H}_2\text{O}$  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) は主にレーザー電場ベクトルが  $\text{H}_2\text{O}$  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  $\text{H}^+$  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。分子軌道計算によって得られた  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  の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見られた。この領域にイオン化した  $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  が  $\text{H}_2\text{O}^{2+} \rightarrow \text{H}^+ + \text{OH}^+$  に解離する場合、生成する  $\text{H}^+$  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、 $\text{H}_2\text{O}^{2+}$  にイオン化された時の  $\text{H}^+\cdots\text{OH}^+$  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  $\text{H}_2\text{O}^+$  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大きな違いが見られた。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、ピーク (ii) に見られる  $\text{H}^+\cdots\text{OH}^+$  間距離の伸長の要因になっていると考えられる。