

非対称強レーザー場における T_d 対称分子の結合解離ダイナミクス

長谷川景郁 (電気通信大学大学院情報理工学研究所 hhasegawa@uec.ac.jp)

松田晃孝 (名古屋大学大学院理学研究科 amatsuda@chem.nagoya-u.ac.jp)

森下 亨 (電気通信大学量子科学研究センター toru@pc.uec.ac.jp)

菱川明栄 (名古屋大学物質科学国際研究センター hishi@chem.nagoya-u.ac.jp)

1960年のレーザー誕生後、様々な技術革新によってナノ秒からフェムト秒領域の短い時間幅をもつパルスレーザーが利用できるようになった。超短パルス化によって、レーザー光のピーク強度は飛躍的に増大し、特に1985年のMourouとStricklandによるチャープパルス増幅(CPA)法(2018年ノーベル物理学賞)の開発は、大学の実験室におさまる小型のレーザー装置で 10^{15} W/cm²に達するピーク強度をもつレーザー場の発生を可能とした。これはレーザー電場にして約 10^9 V/cmに相当し、水素原子の1s軌道におけるクーロン場の大きさに匹敵する。

強レーザー場はその強い電場を介して、物質内の電子の運動を駆動する手段を与え、アト秒光パルス発生(2023年ノーベル物理学賞)や炭素材料などの加工や医療などへの応用も進められている。強レーザー場によって誘起される電子のダイナミクスは電場が時間的にどのように変化するか、つまりレーザー電場の波形に敏感であることから、制御された電場波形をもつ**波形整形**強レーザー場を用いて物質の応答を理解する試みが進められている。

波形整形法の一つである $\omega-2\omega$ 波形合成法はレーザーの基本波と第2次高調波を重ね合わせるもので、2つのレーザー光の強度や偏光方向、相対位相に応じてレーザー電場波形が変化する。例えば2色の直線偏光レーザーパルスを平行に重ね合わせてできる $\omega-2\omega$ レーザー場は右図に示すように相対位相に応じて変化する電場振幅をもつ。2つのレーザー場のうち、 ω あるいは 2ω いずれかのみの場合では偏光方向に対して対称な電場振幅となるのに対し、 $\omega-2\omega$ レーザー場は電子に対して空間非対称な相互作用を与える。これまでに $\omega-2\omega$ 強レー

ザー場におけるイオン化や分子内電荷の局在、レーザー高次高調波の制御など、強レーザー場における原子分子過程の理解と制御について研究が進められている。

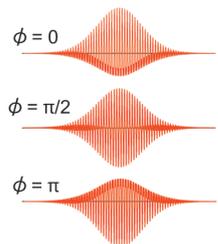
4つの等価な結合をもち正四面体(T_d 対称)構造をとるメタン(CH₄)分子を対象として $\omega-2\omega$ レーザー場における反応ダイナミクスを調べた。強レーザー場との相互作用によりイオン化し、生成した2価分子イオンからの解離(**クーロン爆発**)に注目すると、H⁺とCH₃⁺が生成する経路と、H-H結合形成を伴いH₂⁺とCH₂⁺が生成する経路が観測された。どちらの経路も2色の相対位相によってその放出方向が変化することが見出され、非対称電場中でレーザー偏光方向に沿って特定のC-H結合切断が選択的に起こることが明らかになった。またH⁺生成過程では解離に選択性をもつ経路が2つ存在することも分かった。

これらの選択性を理解するために、強レーザー場過程の一つであるトンネルイオン化に注目した。トンネルイオン化理論に基づく計算から、非対称なレーザー場に対するメタン分子の配向によってイオン化レートが大きく変化することが示され、この配向選択イオン化によってH⁺生成の一つの経路が説明できた。一方、他方のH⁺生成経路とH₂⁺生成経路は、トンネルイオン化による予想とは逆の位相依存性を示した。これは核間ポテンシャルの変形を伴う光と分子の強い結合が非対称解離を支配しているため、と考えられる。 $\omega-2\omega$ 強レーザー場による分子の非対称解離ダイナミクスを通じて、強レーザー場における分子の複雑な応答についてより深い洞察を得られることが示された。

用語解説

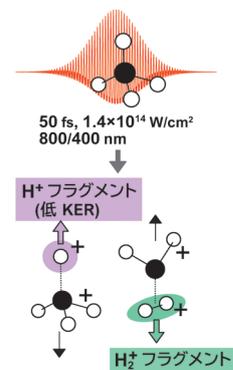
波形整形:

強レーザーパルスのスペクトル帯域の波長ごとの強度や位相に変調を加えたり、その高調波を重ねることでパルス波形を制御すること。その一つに本研究で用いた $\omega-2\omega$ 波形合成がある。これは基本波(周波数: ω)と第二次高調波(周波数: 2ω)を重ね合わせる手法で、直線偏光の場合、下図のように2色の相対位相 ϕ によって非対称な電場振幅をもつ。



クーロン爆発:

2価以上の分子イオンで正電荷間のクーロン反発により起こる分子解離。下図のように、クーロン爆発によって生じたフラグメントイオンのエネルギーや放出方向から分子構造や配向、解離経路の情報が得られる。



$\omega-2\omega$ 強レーザー場により誘起されるCH₄のクーロン爆発。