

論文の内容の要旨

論文題目：Carrier-envelope-phase dependence of asymmetric C-D bond breaking in

C_2D_2 by few-cycle laser pulses

(数サイクルレーザーパルスによる C_2D_2 の非対称 C-D 結合切断における
搬送波位相依存性)

氏名：三浦 瞬

1. 序論

強レーザー場において誘起される、構造変形、多重イオン化、クーロン爆発などのさまざまな動的な分子過程は、レーザー場の強度、波長、パルス幅等のパラメーターによって鋭敏に影響を受けることが知られており、これらのレーザー場のパラメーターを変化させることによって分子過程を制御することも試みられている。また、極限まで狭いパルス幅を持つ数サイクルレーザーパルスにおいては、レーザーパルスの包絡線ピークに対する電場振動の位相である搬送波位相 (Carrier envelope phase; CEP) によって、その電場の時間波形の時間変化が大きく変化する。近年の研究から、直線偏光を持つ数サイクルパルスによって引き起こされる原子からの光電子放出の方向や、分子イオンからのフラグメントイオン放出の方向が、偏光方向に関して非対称となり、その非対称性が CEP によって変化することが知られるようになった。そして、このような CEP に依存性から、10 fs 程度以下の時間スケールで起こる原子内、または分子内での電子の応答が調べられている。

多原子分子の場合、このような電子の応答は化学結合の切断過程に影響を及ぼすと考えられるため、数サイクル強レーザーパルスによって誘起される多原子分子の解離過程は、CEP 依存性を示すと期待される。本研究では、数サイクル強レーザーパルスを重水素化アセチレン C_2D_2 に照射し、生成する 1 価イオン $C_2D_2^+$ が レーザー電場から 得る運動量、および、2 価イオン $C_2D_2^{2+}$ のクーロン爆発過程 $C_2D_2^{2+} \rightarrow C_2D^+ + D^+$ によって生じる D^+ 放出分布の非対称性を調べた。その結果、数サイクル光電場内のトンネル

イオン化で生成した電子が、光電場内のどのタイミングで再衝突を起こすか~~ど~~うみによって2つの C-D 結合のどちらが解離しやすくなるかが支配されることが示された。

2. 実験装置

実験装置の全体図を図1に示す。チタンサファイアレーザーシステムの出力（繰り返し周波数 5 kHz, 0.7 mJ, 800 nm）をアルゴンガスが充填された中空ファイバー（内径 330 μm , 長さ 1.5 m）に集光ミラーを用いて集光し、自己位相変調を誘起することによって広帯域パルスを得た。得られたパルスの位相分散をチャープミラーによって補償することによって、数サイクルパルスを発生させ、ビームスプリッターにより2つに分割した。分割した数サイクルパルス的一方を搬送波位相計測装置に導入し、集光ミラーによって Xe ガスに集光ミラーによって集光した。~~（そして、Xe 原子内の再衝突電子によって誘起される高次越関イオン化によって）~~そして、レーザーの偏光方向（水平方向）に放出される光電子を、左右2つのマイクロチャンネルプレート（MCP）により検出し、それぞれの光電子スペクトルを得た。そして、これらの光電子スペクトルにおける高エネルギーの領域の信号強度の左右の非対称性を、低エネルギー領域における信号強度の非対称性に対してプロットし、図2のような円形の非対称性パラメータプロットを得た。このプロットの各データ点の偏角から、その点に対応するレーザーパルスの CEP を、また、このプロットの半径の大きさ r から、レーザーパルスのパルス幅を見積もることができる。搬送波位相計測装置の前に設置したウェッジ板の厚みを変化させることによってプロットの半径が最大となるように位相分散を補償した結果、半径の大きさは $r \sim 0.8$ となり、パルス幅が ~ 4.5 fs の数サイクルパルスが生成されたことが示された。

数サイクルパルスのうちもう一方を運動量画像計測装置に導入し、真空チェンバー内の C_2D_2 試料の分子線に集光した。集光領域内のレーザー電場 ($\sim 3.4 \times 10^{14}$ W/cm²) によって生成したイオン種をは静電場によって引き出しされ、2次元位置敏感型検出器によって検出したされた。検出位置と飛行時間から、各イオン種の3次元運動量 $\mathbf{p} = (p_x, p_y, p_z)$ を得た。各レーザーショットについて、搬送波位相計測装置から得られる CEP のデータと運動量画像計測装置から得られる生成イオン種のデータを、本研究で開発した実験系を用いて同時に取得することによって、数サイクル強レーザーパルス内での $\text{C}_2\text{D}_2^{2+}$ のクーロン爆発過程における CEP 依存性を調べた。

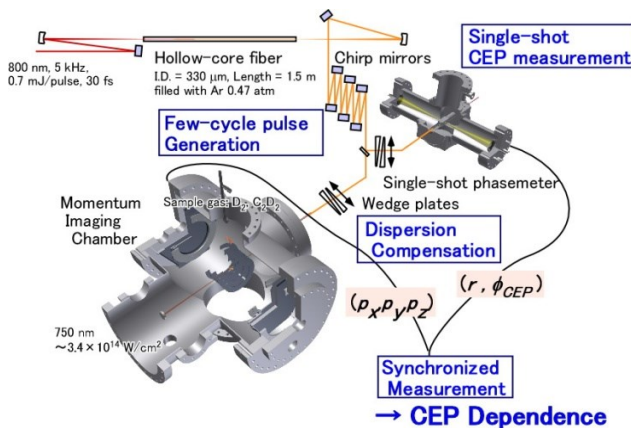


図1. 実験セットアップの概略図。

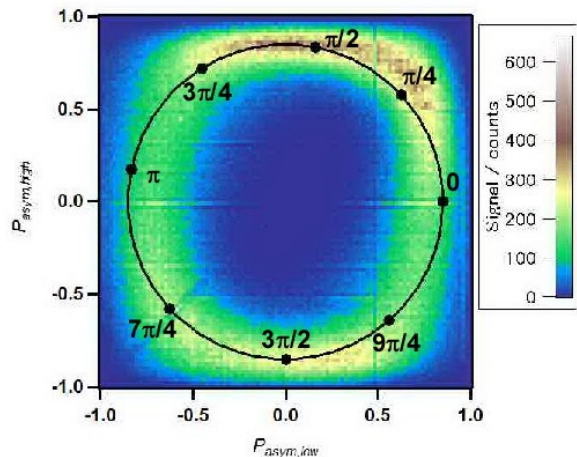


図2. 数サイクル強レーザー場内で Xe から放出された光電子の非対称性パラメータプロット。

3. $C_2D_2^+$ の反跳運動量の CEP 依存性に基づく絶対 CEP の見積もり

図3に、1 価の親イオン $C_2D_2^+$ がレーザー偏光方向に持つ運動量分布の平均値について、その CEP 依存性をプロットした。CEP に依存して、 60 u m/s 程度のシフトが観測された。本実験において、搬送波位相計測装置により測定される CEP ϕ_{CEP}' は、運動量画像計測装置内での絶対 CEP ϕ_{CEP} に対して一定のオフセット $\Delta\phi$ を持つ。ここで、(i) $C_2D_2^+$ がトンネルイオン化によって生成し、生成直後の運動量はゼロであり、(ii) トンネルイオン化後の運動において、電子と親イオンの間のクーロン引力は無視できる程小さいと仮定すると、 $\phi_{CEP} = 0, \pi$ の時に $C_2D_2^+$ の運動量放出の平均値は 0 になり、 $\phi_{CEP} = \pi/2$ のときには負の値、そして、 $\phi_{CEP} = 3\pi/2$ のときには正の値を取る。この仮定の下で、 $C_2D_2^+$ の平均運動量の CEP 依存性の観測値から CEP オフセット $\Delta\phi$ を見積もり、 ϕ_{CEP} を決定した。

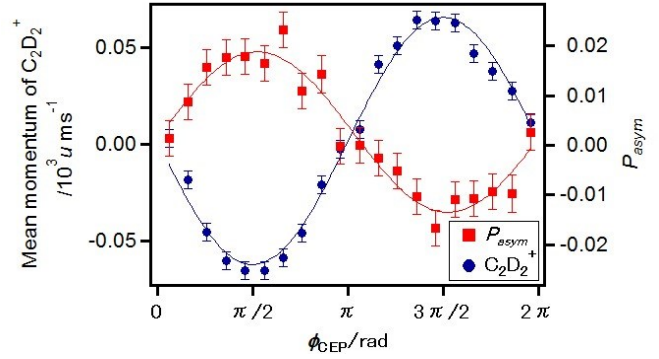


図3. 非対称性パラメーター P_{asym} と $C_2D_2^+$ 放出運動量の平均値の絶対 CEP 位相 ϕ_{CEP} 依存性。

4. D^+ 放出の非対称性の CEP 依存性

図4に、 D^+ イオン ($m/z=2$) の運動量画像を示す。内側の $|p| < 30 \times 10^3 \text{ u m/s}$ の領域に現われている分布は、1 価の親イオン $C_2D_2^+$ から放出された D^+ に帰属される。外側の、 $30 \times 10^3 \text{ u m/s} < |p| < 50 \times 10^3 \text{ u m/s}$ の領域の分布は、2 価の親イオン $C_2D_2^{2+}$ から放出された D^+ に帰属される。この外側の成分について、 D^+ の放出方向に対する非対称性を評価するため、非対称性パラメーター

$$P_{asym}(\phi_{CEP}) = \frac{I_{upper}(\phi_{CEP}) - I_{lower}(\phi_{CEP})}{I_{upper}(\phi_{CEP}) + I_{lower}(\phi_{CEP})} \quad (1)$$

を定義する。このとき、 I_{upper} および I_{lower} は図4において実線で囲まれたそれぞれの領域の積分信号強度である。非対称性パラメーター P_{asym} の CEP による変化を図3に示す。図3に示されているように、1.6% 程度の非対称性が確認された。また、図3の比較に示されているように、その CEP 依存性は、親イオンが得た運動量の平均値の CEP 依存性と逆位相となった。

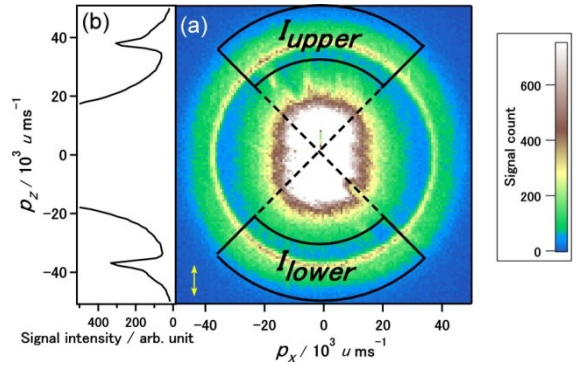


図4. (a) D^+ の運動量画像 ($|p_y| < 5 \times 10^3 \text{ u m/s}$)。左下の両矢印は偏光方向を表わす。(b) $|p_x| < 5 \times 10^3 \text{ u m/s}$ を満たす成分の z 方向への射影。

5. 再散乱過程による2価イオン生成の電場の向きによる非対称性のシミュレーション

レーザー電場内でトンネルイオン化によって生成した電子の再散乱過程によって2 価の親イオン $C_2D_2^{2+}$ が生成する場合、レーザー電場内の時間 t_0 において電子がトンネルイオン化し、時間 t_r において電子が再衝突する際に生成する解離性2 価親イオンの収量 $Y(t_r)$ は、ADK 理論による HOMO からのトンネルイオン化確率 $w(t_0)$ と、再衝突による解離性2 価親イオンの生成断面積 $\sigma(E_{recol}(t_r))$ の積

$$Y(t_r) = w(t_0)\sigma(E_{\text{recol}}(t_r)) \quad (2)$$

で表わされる。ここで、 $E_{\text{recol}}(t_r)$ は、 t_r において再散乱する電子の運動エネルギーであり、古典力学の運動方程式を解くことによって得た。また、 $\sigma(E_{\text{recol}}(t_r))$ は、再衝突エネルギーから解離性状態を生成するために必要となるイオン化エネルギーを差し引いた余剰エネルギーに比例すると仮定した。図5(a-1)、(b-1)に、CEPが $\pi/2$ および0の時の電場波形と電子の代表的な軌跡を、図5(a-2)、(b-2)に式(2)で得られた $Y(t_r)$ を示す。CEPが $\pi/2$ の場合、解離性の2価イオンは主に軌跡1に由来して生成する。CEPが0の時、軌跡2と軌跡3が同程度に寄与する。図3において、CEPが $\pi/2$ の時に P_{asym} が正になることから、軌跡1による解離性2価イオンの生成が、 D^+ を正の方向に放出するために寄与していると考えられる。また、CEPが0のとき P_{asym} がほぼ0となることは、軌跡2と軌跡3の寄与が互いに打ち消しあったために D^+ 放出に非対称性が見られなくなったと考えられる。

6. D^+ 放出における非対称性の由来

図5に示されているとおり、再衝突イオン化による2価イオン生成は、主に、レーザー電場が正から負、あるいは、負から正に横切るタイミングで起こる。そのため、再衝突イオン化による $C_2D_2^{2+}$ の生成直後、分子内の電子密度の分布には、引き続き存在するレーザー電場の方向によって偏りが生じると考えられる。その際、電子密度が減少した側にあるC-D結合はもう一方の電子密度が増加した側のC-D結合に比べて、 D^+ と C_2D^+ の間に、より強いクーロン反発力が生じるため、相対的に結合が切断されやすくなると考えられる。すなわち、本研究によって観測された D^+ 放出の非対称性は、 C_2D_2 分子内の電子密度の分布がCEPに依存して変化するために、2つの等価なC-D結合の一方が他方よりも選択的に弱くなり切断されたことを示している。

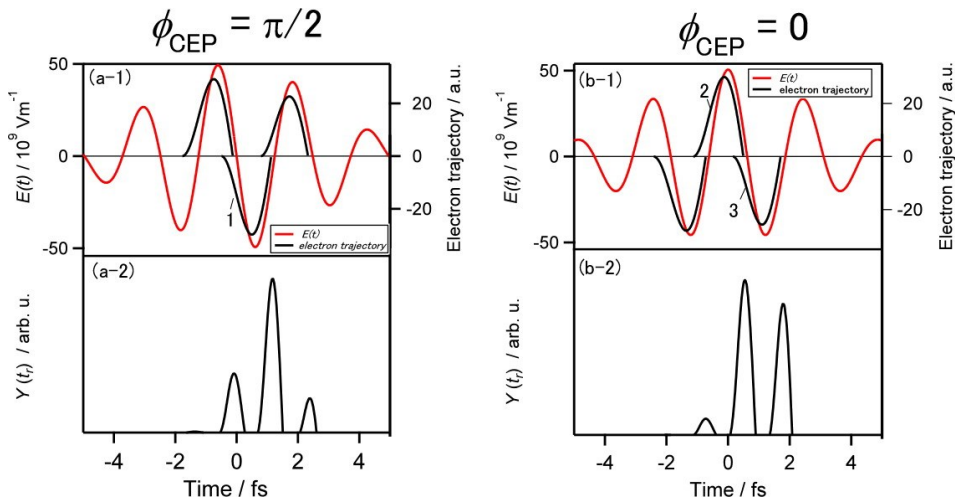


図5. (a) $\phi_{\text{CEP}} = \pi/2$ の場合、および、(b) $\phi_{\text{CEP}} = 0$ の場合の、レーザー電場波形と再散乱電子の軌跡（上図）および、解離性 $C_2D_2^{2+}$ の生成量 $Y(t_r)$ （下図）。図の上方に(a) $\phi_{\text{CEP}} = \pi/2$ (b) $\phi_{\text{CEP}} = 0$ と書け。