

博士論文の要約

Tunnel electron spectroscopy of atoms and molecules in circularly polarized laser fields by electron-ion coincidence momentum imaging

(電子-イオンコインシデンス運動量画像法による円偏光レーザー場原子および分子のトンネル電子分光)

池谷大夢

近年のレーザーパルスの短パルス化、高強度化により、原子・分子内のクーロン電場に匹敵するほどの強いレーザー電場を生み出すことが可能となった。強レーザー場中で誘起される現象は、弱い光の場では見られない特徴的なふるまいを示し、これを利用した新しい超高速分光法の開拓が行われている。特に、強レーザー場によって歪められた束縛ポテンシャルを、電子がトンネル透過してイオン化するトンネルイオン化は、イオン化軌道の特徴を反映することが指摘されており、化学反応過程における電子ダイナミクスを探る手段として期待されている。

トンネルイオン化の主な観測量には、(1)トンネル電子の垂直運動量分布、および(2)トンネルイオン化レートが挙げられる。特に、円偏光レーザー場においては、トンネル電子とレーザー場との相互作用によってイオンコアへの再衝突過程が抑制されるため、光電子運動量分布にその特徴が現れることが期待される。これを踏まえ本論文では、円偏光強レーザー場中で生じたトンネル電子の3次元運動量イメージング計測を行うことで、光電子運動量分布から軌道情報を観測することを目指した。

トンネル電子の運動量分布には軌道の特徴に加えて、レーザー電場強度や波長など種々のパラメータに依存することが報告されている。本論文では、イオン化軌道の違いがトンネル電子運動量分布に与える効果について明らかにするため、同程度のイオン化ポテンシャルをもつ Ar ($3p$) および H_2 ($1s\sigma_g$) を対象とした実験を行った。また、検出器の校正を行うことで、精密な運動量計測を実現した。理論計算との比較から、実験で観測された Ar と H_2 の光電子分布の違いはイオン化軌道の性質の違いに由来していることを示した。

分子においては、分子座標系でのトンネル電子運動量分布を計測することで、空間分子配向による平均化を除いた形で、トンネルイオン化レートを含めたイオン化過程についてのより詳細な情報を得ることができる。分子座標系光電子角度分布 (MFPAD) 計測はこの目的に対して有用な手法である一方で、分子座標系を解離生成イオンの運動量から決定するため、計測対象が円偏光レーザー場において解離性イオン化が起りやすい分子種に限定されている。これを踏

まえて、本論文では補助解離パルスを用いた新しい手法を開拓し、MFPAD 計測の適用範囲を拡大した。

本論文は序論・理論・実験および本論 2 章により構成される。

第 1 章では、強レーザー場中で誘起されるトンネルイオン化および、これを用いた軌道情報を読み出すための手法について解説されている。現状の課題とその解決策が示され、これを踏まえた本研究の目的と内容について要約が与えられている。

第 2 章では、トンネルイオン化の非断熱性およびイオン化軌道の特徴を考慮した電子運動量分布の理解に向けて、高強度場近似 (SFA) に基づいたトンネルイオン化理論について述べられている。

第 3 章では、本実験で使用した高強度パルスレーザーおよび、その評価方法について記述している。さらに、運動量計測を実現するための電子-イオンコインシデンス計測装置と検出器の校正について述べられている。

第 4 章では、円偏光強レーザー場中における Ar および H₂ のトンネルイオン化電子 3 次元運動量分布計測について報告している。本研究では、イオン化軌道が光電子運動量分布に与える効果について理解を深めることを目指し、同程度のイオン化ポテンシャル (Ar: 15.8 eV, H₂: 15.4 eV) をもつ Ar (3*p*) および H₂ (1*s*σ_g) の混合気体を対象とした実験を行った。これにより、電場強度やイオン化ポテンシャルが光電子運動量分布に与える影響を抑えることができる。また、位置敏感型検出器の校正を行うことで、精密な運動量計測を実現した。電子-イオンコインシデンス計測法を用いて得られた Ar⁺ および H₂⁺ と同時に検出された光電子は、どちらもトーラス状 (ドーナツ状) の運動量分布を示した。一方で、観測されたトーラス主半径およびトーラス断面に現れる垂直運動量分布の幅には明瞭な差が見出された。SFA 計算を用いて、円偏光レーザー場中における *p* 軌道および *s* 軌道からイオン化した光電子の運動量分布を計算したところ、実験結果と同様の差異を再現できることがわかった。これらの結果から、実験で見られた差異は Ar と H₂ の価電子軌道がもつ特徴の違い、特に軌道角運動量に起因していることが明らかとなった。一方、実験結果と理論結果の絶対値には Ar および H₂ とともにわずかな違いが見出された。これは本研究の SFA 計算で仮定した近似の影響や、イオン化後のクーロン相互作用などの効果に起因していると考えられる。このため、実験結果はトンネルイオン化理論の発展に向けたベンチマークデータとなりうることを示した。

第 5 章では、補助パルスを用いた電子-イオンコインシデンス計測法による O₂ 分子の MFPAD 計測について報告している。トンネルイオン化のための円偏光レーザーパルス照射から時間遅延を置いて、紫外光パルスを補助解離パルスとして導入することで、分子の解離反応を促進し、MFPAD 計測の適用範囲を拡

大することを目指した。対象分子は円偏光レーザー場中で解離性イオン化が起こりにくい O_2 とした。補助解離パルスを導入することで、 O^+ イオンの収量が増加したことから、本手法により O_2 の解離反応を促進できることが示された。総解離運動エネルギー (KER) スペクトルは、円偏光レーザーパルスのみを照射した場合から変化し、主に 1 つのピークを示した。 O_2^+ の光解離に関する先行研究との比較から、解離経路は HOMO-1 (π_u) からのトンネルイオン化を経由して進行したことが示唆された。これはイオン電子状態を指定して MFPAD 計測が可能であることを示している。対応する MFPAD は分子軸に対して垂直方向に強い分布を示した。この結果は、弱電場漸近理論に基づく HOMO-1 のトンネルイオン化レート計算の予想とよく一致しており、補助解離パルスの導入は MFPAD 計測の適用範囲を拡大するのに有効な手法であることが明らかとなった。

以上、著者は、電子-イオンコインシデンス計測法に基づく、円偏光強レーザー場中におけるトンネルイオン化を利用した軌道情報の読み出しに関する研究を行った。得られた成果は、トンネルイオン化過程において軌道が及ぼす効果への理解につながると同時に、化学反応を支配する電子ダイナミクスの実時間直接観測法の開拓に貢献するものである。