

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 号
------	---------

氏 名 遠藤 友随

論 文 題 目

Ion-momentum imaging study of visualization and manipulation of unimolecular reactions by ultrashort intense laser pulses

(超短強レーザーパルスによる単分子反応の可視化と制御に関するイオン運動量画像計測)

論文審査担当者

主 査	名古屋大学物質科学国際研究センター	教 授	
			博士 (工学) 菱川 明 栄
委 員	名古屋大学大学院理学研究科	教 授	理学博士 篠原 久 典
委 員	名古屋大学大学院理学研究科	教 授	理学博士 阿波賀 邦 夫

論文審査の結果の要旨

別紙 1-2

近年レーザーの短パルス化および高出力化が飛躍的に進み、分子内のクーロン電場に匹敵する強度の強レーザー場 ($\sim 10^{15}$ W/cm²) の発生が可能となった。強レーザー場における分子は弱い光の場ではみ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や反応制御法が開拓されつつある。

本申請者は、まず強レーザー場における非線形光学過程の一つであるトンネルイオン化に着目し、分子内電子ダイナミクス可視化法の研究を行った。トンネルイオン化は、レーザー電場によって生じた束縛ポテンシャルの障壁を電子がトンネル透過することで進行し、分子内の電子分布（分子軌道）形状を鋭敏に反映する。一方、これまでレーザートンネルイオン化の研究は電子基底状態を対象として進められており、超高速反応追跡において重要となる励起状態についての研究は限定的である。申請者は、分子解離によって生成したフラグメントイオンの3次元運動量画像から遠方での分子軌道の形状を可視化することに着目し、励起分子における最外殻分子軌道について研究を行った。数サイクル強レーザーパルスによる NO 分子の解離性イオン化過程 ($\text{NO} \rightarrow \text{NO}^+ + e^- \rightarrow \text{N}^+ + \text{O} + e^-$) のイオン運動量画像計測を行ったところ、深紫外光吸収による電子遷移に伴う最外殻分子軌道形状の変化 ($2\pi \rightarrow 3s\sigma$) がフラグメントの異方性に反映されることが明らかとなった。また、楕円偏光した強レーザーパルスを用いてフラグメントの生成過程について詳細な検討を行い、トンネルイオン化で生成した電子の再衝突過程によって分子解離が誘起されていることを明らかにした。実験結果は弱電場漸近理論に基づくトンネルイオン化レートの分子配向依存性、およびレーザー場断熱理論による再衝突電子確率に基づいた計算結果とよく一致し、 $3s\sigma$ 状態からの強レーザー場解離性イオン化ではトンネル過程が支配的であることが示された。この研究は光学遷移に伴う最外殻分子軌道の変化が、複雑な解析を経ることなく分子座標系におけるイオン化速度の計測によって読み出せることを示している。光による電子遷移は化学反応における電子ダイナミクスのモデルの一つとして捉えることができ、本研究によってレーザートンネルイオン化による軌道可視化が反応過程で変化する軌道形状の実時間追跡に適用可能であることが示された。

続いて申請者は、波形整形した強レーザーパルスを用いてより精密な分子軌道可視化法の研究を行った。フェムト秒レーザーパルスの基本波と第2次高調波をコヒーレントに重ね合わせた $\omega - 2\omega$ パルスが相対位相に応じて非対称な電場振幅をもつことに着目し、NO の最外殻分子軌道の非対称性が N^+ イオン運動量画像から読み出せることを示した。

さらに申請者は強レーザー場における単分子反応のコヒーレント制御について研究を行い、その物理機構について検討を行った。特に $\omega - 2\omega$ 強レーザー場における二酸化炭素のクーロン爆発過程 $\text{CO}_2^{2+} \rightarrow \text{CO}^+ + \text{O}^+$ に着目し、コインシデンス運動量画像計測によって解離経路を選別し、生成したフラグメントイオンの運動量分布を調べた。その結果、(i) 二酸化炭素の等価な2つの C-O 結合の空間選択的な切断がレーザーパルスの形状によって制御できること、(ii) その選択性はレーザー電場の非対称性が最大となったときに最も顕著となることを見出された。この結果は時間依存断熱ポテンシャルを用いた理論予測とよい一致を示し、レーザー電場による CO_2^{2+} のポテンシャル曲面の変形が非対称解離過程の主な物理機構であることが明らかとなった。

以上、申請者は強レーザー場における分子過程のイオン運動量画像計測を行った。得られた成果は、強レーザー場中における単分子反応の観測と制御に新たなアプローチを提供し、化学反応を理解し新しい反応経路を開拓する上で重要となる超高速電子ダイナミクスの観測および制御へ貢献するものであることから、申請者は博士（理学）の学位を授与される十分な資格があるものと認められる。