

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月4日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2010～2011

課題番号：22685001

研究課題名（和文） 搬送波位相制御パルスを用いた超高速反応イメージング

研究課題名（英文） Ultrafast reaction imaging using carrier envelope phase stabilized pulses

研究代表者

沖野 友哉（OKINO TOMOYA）

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：40431895

研究成果の概要（和文）：超高速反応イメージングのための、搬送波包絡線位相制御高安定高出力数サイクルパルスの発生を行った。また、超高真空対応のアト秒パルスと高強度数サイクルパルスを用いたポンプ・プローブ計測が可能な、光イオン光電子コインシデンス運動量画像計測装置の開発を行った。さらに、運動量分解能を向上させることが可能な運動量投影型イオン画像計測装置および集光領域の信号のみを選択的に取得することが可能な空間投影型の運動量画像計測装置の開発を行った。

研究成果の概要（英文）：Stable carrier envelope phase stabilized high intensity few-cycle pulse is generated for ultrafast chemical reaction imaging. Ultra high vacuum compatible photo-electron photo-ion coincidence momentum spectrometer which is applicable for a pump and probe measurement using an isolated attosecond pulse as a probe pulse and an intense few-cycle pulse as a pump pulse is developed. Momentum map imaging method for improving momentum resolution of heavy fragment ions and spatial map imaging method for selecting signals only from focal region for disentangling intensity averaging are developed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	16,900,000	5,070,000	21,970,000
2011年度	3,000,000	900,000	3,900,000
年度			
年度			
年度			
総計	19,900,000	5,970,000	25,870,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学、物理化学

キーワード：搬送波包絡線位相, 超高速, 反応イメージング, 偏光ゲート

## 1. 研究開始当初の背景

化学反応のスナップショットを核位置の変化および電子分布の変化として観測する

ことは、レーザー電場中において化学反応がどのようにして誘起されているかを理解するために不可欠である。また、超高速の核お

よび電子の運動を実時間で追跡するためには、アト秒の時間分解能が必要であるとともに一つ一つの分子の反応を追跡する単一イベント計測が必須である。光と物質の相互作用の結果として誘起される超高速現象を観測する方法としては、クーロン爆発イメージング法がある。この方法ではクーロン爆発を引き起こすレーザーパルスが原子核の運動と比べて短い場合には、クーロン爆発直前の分子構造を与え、単一イベントごとの反応追跡も可能である。しかし、アト秒の時間分解能でクーロン爆発イメージングを行うために十分な強度をもつアト秒パルスを発生させることは最先端のレーザー技術を用いても困難である。また、既存のアト秒パルス発生方法では中心波長が極端紫外域となるため、多くの分子には吸収断面積が小さい波長となり、効率的に反応を誘起できないという問題がある。これまで反応イメージングで報告されている、最短の時間分解能は、搬送波包絡線位相が制御されたサブ5 fs超短パルスを用いた結果にとどまっている。また、パルス幅をさらにモノサイクルまで短くすることも波長ごとに異なる群速度分散を補償することが難しいことから現実的ではない。

## 2. 研究の目的

「搬送波位相制御偏光ゲート超短パルス」と「超高速反応イメージング」を組み合わせることによって、世界最高の100アト秒以下の時間分解能で反応追跡を行うことを目的とする。超高速反応の観測にはアト秒の時間分解能が不可欠であるが、アト秒パルスの発生は、極端紫外光の発生が必要となるため、現在のレーザー技術では反応イメージングに十分な強度を得ることはできない。

本研究では、時間とともに偏光が変化する高強度超短レーザーパルスを発生させることによって、イオン化を100アト秒以下に局在させ、アト秒の時間分解能を達成する。これにより、光電場における核と電子の相関を明らかとし、化学反応における電子状態変化の役割を理解する。時間とともに偏光が変化する搬送波制御超短パルスを用い、偏光素子で直線偏光成分を取り出すことによって、電場波形を整形し、疑似アト秒パルスを発生させることを初めて提案する。

そして、イオン化を100アト秒以下に局在させることによって、アト秒の時間分解能で反応追跡が達成する。この「搬送波位相制御偏光ゲート超短パルス」と (i) 光イオン光電子コインシデンス運動量画像法、(ii) 光イオン光電子運動量画像法、(iii) 搬送波位相単一パルス計測装置から構成される新しい「超高速反応イメージング装置」を用いることによって、多原子分子の超高速反応イメージングを行うことを提案する。世界最高の時間分解

能(100アト秒)で、レーザー電場中における反応イメージングを実現することを到達目標とする。

## 3. 研究の方法

- (1) 3重ループを用いた搬送波包絡線位相制御の高度化
- (2) 高強度数サイクルパルスの発生
- (3) 超高真空対応光イオン光電子コインシデンス運動量画像計測装置の開発
- (4) 運動量投影型イオン画像計測装置の考案
- (5) 空間投影型イオン画像計測装置の考案

## 4. 研究成果

- (1) 3重ループを用いた搬送波包絡線位相制御の高度化

搬送波包絡線位相(CEP)依存性を調べることおよび高品質の単一アト秒パルスを発生することには、CEP制御が不可欠である。強レーザー場中における多原子分子の解離反応のCEP依存性については、レーザーパルス毎のCEPを記録することによって、観測が可能であるが、アト秒の時間分解能での反応追跡には、常に単一アト秒パルスを発生することが不可欠であるため、CEPの長時間制御が不可欠である。

そこで、レーザー発振器のCEP制御について、通常の音響光学素子(AOM)による励起レーザーの強度制御に加え、結晶温度の精密調整( $\pm 0.1^\circ\text{C}$ )およびレーザーキャビティ内のウェッジ厚みの制御を行うことによって、CEP制御の高度化を行った。その結果、図1に示すように、40時間以上に渡るレーザー発

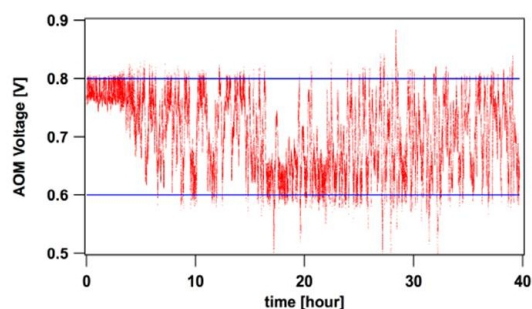


図1:AOMを用いたレーザー発振器のCEPの長時間制御。青線はAOMの適正電圧範囲(0.6-0.8 V)を表す。AOMによる周波数調整範囲が $\pm 3$  MHz程度であるため、キャビティ内のウェッジ位置を調整することによって、AOM電圧が0.6-0.8 V内に入るように制御を行った。

振器の搬送波包絡線位相の制御が可能となった。

## (2) 高強度数サイクルパルスの発生

高強度数サイクルパルス発生 of 安定な発生のため、①中空ファイバーに光を入射させるときに用いる集光用凹面鏡を真空チェンバー内に配置するとともに、②分散補償用のチャープミラーを真空チェンバー内に配置した。①により、入射窓における自己位相変調およびダメージを回避することが可能となった。また、②により、ミラーのダメージを避けるとともに、および大気によるパルス幅の変化を取り除くことが可能となった。さらに、③ビームポインティング安定化装置を導入することによって、中空ファイバーへの光入射位置を制御し、安定な高強度 (1 mJ/pulse 以上) 数サイクルパルスの発生が可能となった。

数サイクルパルスを用いて実際に、アト秒パルスを発生するために必要である、高次高調波の発生を行った。ネオンガスに数サイクルパルスを集光照射することによって、図 2 に示す高次高調波が得られた。図 2 に青線で示した、Zr フィルターで選別された高次高調波については、位相の変化が平坦である高反射率 Mo/Si 多層膜ミラーの帯域に整合しており、単一アト秒パルスの発生の可能性を示唆している。

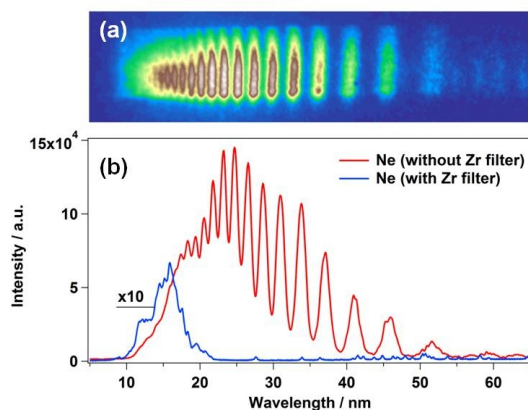


図 2: (a) 軟 X 線～極端紫外分光器によって検出した高次高調波スペクトル。横軸が波長、縦軸がビームの広がりを表す。(b) 高次高調波スペクトルの積分強度。赤線は、Zr フィルター無しの場合の高次高調波スペクトル、青線は、Zr フィルター有りの場合の高次高調波スペクトルを表す。Zr フィルターで選別後の高次高調波は、Mo/Si 多層膜ミラー ( $f = 100$  mm) の反射帯域 (10~20 nm) に適合している。

## (3) 超高真空対応光イオン光電子コインシデンス運動量画像計測装置の開発

CEP 制御数サイクルパルスおよび単一ア

ト秒パルスを用いたポンプ・プローブ計測を行うことが可能な、超高真空対応の光イオン光電子コインシデンス運動量画像計測装置の開発を行った。

多段の差動排気によって高次高調波発生部から 3 m 下流で真空度  $10^{-6}$  Pa を達成した。さらに、空間分割フィルター (外側はアト秒パルス発生に用いる基本波光を透過し、内側は Zr フィルターが存在し、アト秒パルスのみが透過可能) を導入することによって、高次高調波発生部の圧力が、 $10^{-2}$  Pa になるにもかかわらず、反応イメージング装置のメインチェンバーの圧力を、 $10^{-8}$  Pa 台を保つことが可能となった。ビーム位置を切り替えることによって、真空を破ることなく、軟 X 線分光器によって高次高調波のスペクトル計測が可能である。

また、同軸で伝搬する基本波とアト秒パルスを用いたポンプ・プローブ計測を行うために、同じ曲率半径の凹面鏡を同軸に配置し、片方をピエゾステージに接続することによって、100 アト秒以下の精度で基本波とアト秒パルスの遅延時間が制御できるようになった。

## (4) 運動量投影型イオン画像計測装置の考案

従来の速度投影型イオン画像計測装置の場合、同じ運動量を有するフラグメントイオンの場合、検出器上の位置は、 $\Delta x \propto \sqrt{m}$  となる。従って、運動量保存を満たすフラグメントイオンの質量差が大きい場合には、重い側のフラグメントイオンの運動量に分解能が得られない。口径の大きい検出器を用いれば、分解能の改善は可能であるが、限度がある。

一方、運動量投影型イメージング装置では、運動量を投影することになるため、検出器上の位置は、 $\Delta x \propto p$  となる。従って、運動量保存を満たすフラグメントイオンについて、軽いフラグメントと重いフラグメントが同じ運動量分解能を有する。検出器の上で、運動量保存を直接可視化することができる。

運動量の投影を可能にするためには、2 枚の円筒型電極を用意し、100 ns 以下のパルス上電場を印加すれば良い。すなわち、同じ時間の間のみ加速することによって、フラグメントイオンは、質量に反比例する速度を有する。その後、等電位の飛行管を伝搬させることによって、検出器上への到達時間は、質量に比例することとなる。

すなわち、検出器上の位置は、初期速度と飛行時間の積となるため、運動量に比例することとなる。例えば、質量数 1 と質量数 100 のものを同時に検出する場合には、従来の方法より、10 倍の運動量分解能を達成することが可能である。

(5) 空間投影型イオン画像計測装置の考案  
従来の速度投影型の電極配置では、レーザー電場の低いところから高いところまで同時に計測されるため、強度平均された現象を見ることになるという問題があった。そこで、図3に示す空間投影型のイメージング装置の考案を行った。この装置は、空間投影型イメージング装置は、3枚の円筒電極、ピンホールおよびアインツェルレンズから構成される。

このイメージング装置を導入することによって、レーザーの集光系程度の微小空間からの信号を選択的に計測することが可能となるとともに、搬送波包絡線位相についてもGouy位相平均を避けることが可能となる。

また、光電子を計測する場合には、アト秒パルス構成する極端紫外光が集光ミラーに到達する前に分子線および真空チャンバー内の残留ガスに吸収され、光電子が生じるという問題があったが、本装置の導入によって、集光領域以外からの信号を排除することが可能である。その上で、アインツェルレンズの導入により、光イオン光電子とも、約10 eVの運動量計測が可能である。

この方法は、集光領域だけの原子・分子のイオン化ダイナミクスを調べるために、有効な方法である。特に、短波長パルスの非線形過程を調べる時には、集光前の光で生じるバックグラウンド信号および残留ガス由来のバックグラウンド信号が、本来調べたい信号のSNを劣化させていたため、空間投影型イオン画像計測装置の利用が極めて有効であることが示せるものと考えられる。

本研究課題では、アト秒パルスと CEP 制御数サイクルパルスを用いたポンプ・プローブ計測による強レーザー場中における化学反応

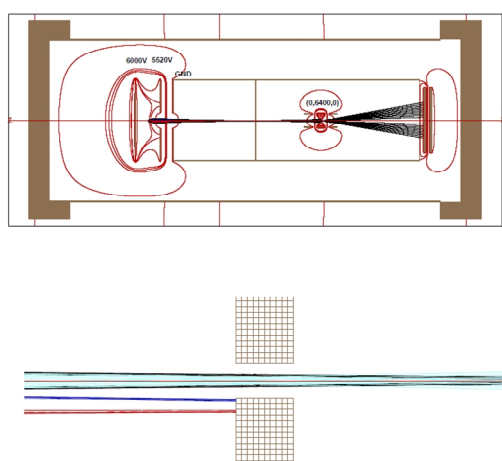


図3：(上) 空間投影型イオン画像計測装置の電場シミュレーション結果。(下) 電場シミュレーションのピンホール部分の拡大図。

計測および、多電子分子における多電子相関計測が観測可能な装置を構築することができた。今後は、光源の高繰り返しおよび高輝度化を行うとともに、気相以外の反応系への適用が可能である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計12件)

① 沖野 友哉, 寺本 高啓, 大神 征爾, 深堀 信一, 山内 薫, 高次高調波13 nm単一パルス軟 X線顕微鏡の開発, 分子科学討論会2011, 2011年9月22日, 札幌コンベンションセンター.

② 沖野 友哉, 渡部 愛理, Xu Huailiang, 山内 薫, 強光子場中におけるメチルアセチレン分子中水素原子の超高速協同運動, 分子科学討論会2011, 2011年9月22日, 札幌コンベンションセンター.

③ Tomoya Okino, Anri Watanabe, Huailiang Xu, Kaoru Yamanouchi, Double proton migration and proton/deuteron exchange in methylacetylene in intense laser fields, The 12th International Conference on Multiphoton Processes (ICOMP12), 2011年7月5日, 北海道大学.

④ Tomoya Okino, Generation of carrier-envelope-phase locked few-cycle pulses and their application to proving ultrafast hydrogen migration in intense laser fields, Pacificchem 2010, 2010年12月15日, Honolulu, Hawaii, USA.

⑤ Tomoya Okino, Kaoru Yamanouchi, Attosecond pump-probe measurement apparatus for ultrafast hydrogen migration in intense laser fields, International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 9, 2010年12月9-13日, Maui, Hawaii, USA.

⑥ Tomoya Okino, Generation of carrier envelope phase stabilized few-cycle pulses for investigating hydrogen migration in intense laser fields, G-COE International Symposium on Physical Chemistry- Structures, Reactions, and Other Chemical Properties of Molecular Systems, 2010年9月3日, 東北大学.

[その他]

ホームページ等

<http://www.yamanouchi-lab.org/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

沖野 友哉 (OKINO TOMOYA)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：40431895