

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23350013

研究課題名(和文) 強レーザー場励起・イオン化分子における多チャンネルコヒーレント相関の解明

研究課題名(英文) Multichannel coherent correlation of molecules excited and ionized in intense laser fields

研究代表者

板倉 隆二 (ITAKURA, Ryuji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究副主幹

研究者番号：80334241

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,800,000円、(間接経費) 4,740,000円

研究成果の概要(和文)：強レーザー場化学反応は、複数の電子・振動・回転状態が終状態となる複雑な多チャンネル問題である。本研究は、「強レーザー場中の分子が中性励起を経て、イオン化するダイナミクス」および「光電子放出と複数の解離チャンネルの相関」の解明を目的とした。

得られた成果は以下の5点である。(1) 窒素分子の回転波束の実時間観測および計算、(2) 光電子-イオン運動量同時計測によるエタノールのイオン化・励起過程の同定、(3) Krの多チャンネルイオン化における光電子角度分布のレーザー強度依存性、(4) ダブルパルスを用いた光電子干渉測定法の開発、(5) 超高速多チャンネルイオン化理論の構築。

研究成果の概要(英文)：Photochemical reaction induced by intense laser fields opens a number of channels producing a variety of electronic, vibrational, and rotational states. In this study we aimed to reveal "the ionization dynamics via excitation of neutral molecules" and "the correlation between photoemission and dissociation channels". The following five achievements have been obtained. (1) Time-resolved observation and simulation of rotational wave packet of nitrogen molecules, (2) Identification of ionization and excitation pathways of ethanol in intense laser fields using photoelectron-photoion coincidence imaging, (3) Intensity dependence of photoelectron angular distribution for multichannel ionization of Kr, (4) Development of an experimental method for measuring photoelectron interference, (5) Formulation of ultrafast multichannel photoionization theory and numerical simulation of ionization of Ar.

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：強レーザー場 イオン化 励起 多チャンネル コヒーレンス

### 1. 研究開始当初の背景

強レーザー場によって、クーロン爆発や水素移動など興味深い反応が誘起され、さらに、レーザーパルスの波形を整形し、特定の反応経路への分岐比が最大になるように制御する試みが数多くなされてきた。全反応確率を100%近くにする利点がある半面、多様な反応チャンネルが開き、複数の反応素過程が密接に相関しながら進行し、制御が困難となるのが強レーザー場反応の特徴である。比較的、レーザー強度の弱い領域 ( $\sim 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) では、現象を分子配向のみに限定でき、精密な制御が実現されてきたが、反応を起こすために、レーザー強度を上げると、イオン化、さらには、その後の回転・振動・電子励起ダイナミクスが複雑に絡みあい解離(反応)へ進む。これまで、動的分子配向とイオン化の角度依存性を分離して測定する実験が盛んに行われてきた。また、イオン化とその後の解離などのダイナミクスも別々に考えられてきた。我々は、本研究を開始するまで、「中性分子の回転励起とイオン化の相関」、および「イオン化とその後の電子励起・解離過程の相関」の2点について独立したものとして研究を行ってきた。数サイクルパルスやアト秒パルス技術の進展とともに、特にイオン化した原子・分子のコヒーレンスを考慮する必要性が認識されつつあったが、研究開始当初は、世界的にも、理論的に十分な記述がなされておらず、実験研究も初期段階にあった。我々は、理論的な検討を進めていたが、実験研究も望まれていた。

### 2. 研究の目的

強レーザー場化学反応は、複数の電子・振動・回転状態が終状態となる複雑な多チャンネル問題である。また、イオン化する前の中性状態でも励起過程が起こり、イオン化に影響を及ぼす。本研究の目的は、以下の2項目を明らかにすることであった。

(1) 強レーザー場中の分子が中性励起を経て、イオン化するダイナミクス

(2) 光電子放出と複数のイオン化チャンネルの相関

上の(1),(2)を量子論に基づいて理解し、将来的には、それらを統合することを念頭に置き、研究を進めた。

### 3. 研究の方法

本研究は、以下の5つの方法を用いて進められた。

(1) 回転波束のポンプ・プローブ測定：強レーザー場によって中性窒素分子の回転波束を生成し、その後、さらに高強度のレーザーパルスを、遅延時間を変えながら回転励起した窒素分子に照射し、イオン化収量の時間変

化を観測した。

(2) 光電子・光イオン運動量同時計測：強レーザー場中の解離性イオン化の結果として生成する光電子と光イオンを同時計数計測した。2つの高速位置敏感型検出器を用いて、それぞれ、光電子と光イオンの飛行到達時間と到達位置を測定した。同時計測条件を満たす為、レーザー1ショット毎に観測される事象数は1事象以下になるよう、導入した試料ガスの圧力を調整した。レーザー場としては、チタンサファイアレーザーの基本波の近赤外パルス ( $\lambda \sim 783$  nm) とその倍波である紫外パルス ( $\lambda \sim 400$  nm) を用いた。これらレーザーパルスの波長、強度、パルス幅を変え、イオン化および電子励起経路の変化を観測した。また、近赤外と紫外の2色のパルスを用いた実験も行い、遅延時間依存性を観測した。

(3) 多チャンネルイオン化における光電子角度分布のレーザー強度依存性の観測：希ガスのイオン化が、<sup>2</sup>P の J = 1/2 および 3/2 の2つのチャンネルを持つことに着目し、その分岐比と光電子角度分布について、レーザー強度の関数として観測した。

(4) ダブルパルスを用いた光電子干渉測定：ダブルパルスによって生成した光電子の干渉計測を通じて、複数の状態に分布するイオンコアのコヒーレンスを観測する手法を開発した。

(5) 超高速多チャンネルイオン化における光電子・光イオン相関の理論構築：広帯域の光電子スペクトルを示す多チャンネルイオン化について、イオンコアと光電子の相関に基づいた理論を定式化し、Arのイオン化について数値シミュレーションを行った。

### 4. 研究成果

上で述べた5つの方法に対して、以下のような成果が得られた。

(1) 回転波束のポンプ・プローブ測定：ポンプ・プローブ遅延時間の関数として観測されたイオン化収量の変化は、回転波束の時間発展を示している。中性からイオン化への分布減少は、時間依存シュレーディンガー方程式にレーザー強度と配向角度に依存したイオン化確率を虚数ポテンシャルとして導入することによって、実験結果を再現できることを明らかとした。この方法論を基にした応用例として、窒素分子の同位体選択的なイオン化が可能であることを示した。

(2) 光電子・イオン運動量同時計測：エタノールから生成した光電子とフラグメントイオンの運動エネルギー相関を測定し、図1のようにイオン化・電子励起経路によって分子がレーザー場より獲得できる内部エネルギーが変わることを明らかにした。

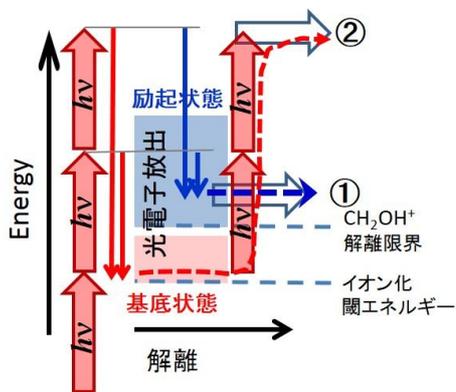


図1 . エタノールのイオン化およびイオン化後の電子励起概略図 . 電子励起状態へイオン化後解離する経路 と電子基底状態へイオン化後、再度電子励起し解離する経路 の存在が明らかになった .

この測定を基に、近赤外・紫外 2 色パルスを用い、2 色のパルス間隔を変えることによって、イオン化・励起経路が制御できることを明らかにした。

(3) 多チャンネルイオン化における光電子角度分布のレーザー強度依存性： 強レーザー場イオン化において複数のイオン状態が生成されるとき、その分岐比が強度に大きく依存する強度領域が存在する。多チャンネルイオン化の分岐比は単純に多光子イオン化もしくはトンネルイオン化の機構だけでは説明できない。我々は、波長 400 nm, パルス幅 50 fs のレーザーパルスを用い、ピーク強度が 8 – 40 TW/cm<sup>2</sup> の領域における Kr のイオン化について調べ、Kr<sup>+</sup>イオンのスピン軌道 2 準位の分岐について、生成比だけでなく光電子角度分布が大きく変化することも明らかとなった。図 2 に示すように強度を上げていくと、 $J = 1/2$  へのイオン化に関しては、偏光方向に対して垂直方向への分布が大きく張り出してくることが明らかとなった。この垂直方向の相対論を組み込んだ TDDFT による実時間実空間計算プログラムを作成

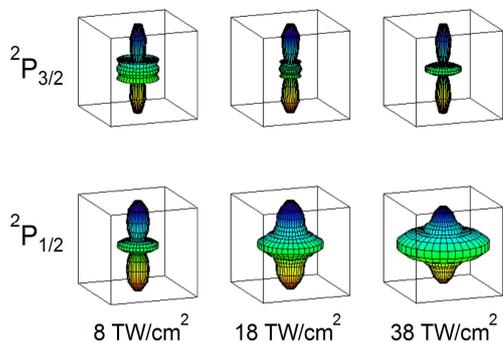


図2 . Kr の 5 光子イオン化における  $^2P_{3/2}$  (上) および  $^2P_{1/2}$  (下) 生成に相関した光電子角度分布 . レーザーピーク強度は、左から 8, 18, 38 TW/cm<sup>2</sup>. レーザー偏光は上下方向に平行 .

し、数値的にスピン・軌道 2 準位への分岐機構について調べた。

(4) ダブルパルスを用いた光電子干渉測定： 光電子干渉を測定するために干渉ノイズを利用したコヒーレント計測法を光電子計測に適用した。光電子信号をモニターしながら自己相関計測を行い、アト秒スケールの時間分解能がなくても時間の関数として振動する干渉信号の包絡線を観測することができ、本手法の有用性が示された。

(5) 超高速多チャンネルイオン化理論： 超高速光イオン化は、光電子連続状態とイオンの束縛固有状態が結合した状態の重ね合わせとして記述できる。我々は、光電子とイオンコアを相関させた波束描像を定式化し、Ar<sup>+</sup>のスピン軌道分裂 2 準位へのイオン化をモデルケースとして、光電子とイオンコアの相関波束の時間発展を示した。チャープした極端紫外パルスでイオン化した場合、ホール密度の角度分布に着目し、その時間発展を求めた。図 3 に示すように、相関するすべての光電子に対して積分したホール密度は、時間発展しても角度分布に変化はない。一方、光電子のエネルギー  $\epsilon$  を指定すると、スピン軌道周期で角度分布は変化し、位相は  $\epsilon$  に依存して変化することが明らかとなった。

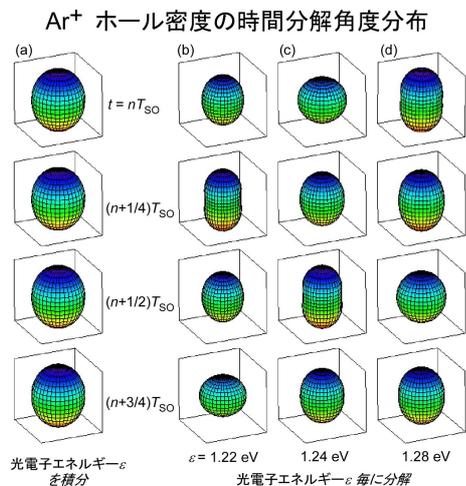


図3 . チャープした超高速端紫外パルスでイオン化した Ar<sup>+</sup> 内のホール密度の時間分解角度分布 .

## 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 )

[ 雑誌論文 ] ( 計 4 件 )

R. Itakura, K. Hosaka, A. Yokoyama, T. Ikuta, F. Kannari, and K. Yamanouchi, “Electron and ion coincidence momentum imaging of multichannel dissociative ionization of ethanol in intense laser fields”, Progress in Ultrafast Intense Laser Science XI, Springer Series in Chemical Physics,

Accepted. 査読有, DOI: 10.1007/978-3-319-06731-5\_2

K. Hosaka, A. Yokoyama, K. Yamanouchi, R. Itakura, "Correlation between a photoelectron and a fragment ion in dissociative ionization of ethanol in intense near-infrared laser fields", *J. Chem. Phys.* **138**, 204301-1-9 (2013) 査読有. DOI:10.1063/1.4805085.

H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, "Isotope-selective ionization utilizing molecular alignment and non-resonant multiphoton ionization", *Appl. Phys. B* **109**, 75-80 (2012) 査読有. DOI: 10.1007/s00340-012-5222-3

T. Ikuta, K. Hosaka, H. Akagi, A. Yokoyama, K. Yamanouchi, F. Kannari, R. Itakura, "Separation of ionization and subsequent electronic excitation for formation of electronically excited ethanol cation in intense laser fields", *J. Phys. B* **44**, 191002-1-5 (2011) 査読有. DOI:10.1088/0953-4075/44/19/191002

〔学会発表〕(計 18 件)

中野元善、乙部智仁、板倉隆二、「Kr の高強度紫外レーザー場イオン化におけるスピン軌道 2 準位への分岐」日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 27 日、東海大学湘南キャンパス.

板倉隆二、伏谷瑞穂、菱川明栄、佐甲徳栄、「光電子 - イオンコア相関波束による超高速多チャンネルイオン化の記述」レーザー学会第 34 回年次大会, 2014 年 1 月 21 日、北九州国際会議場.

R. Itakura, "Multichannel photoionization dynamics of molecules in intense laser fields", (Invited) The 6th Asian Summer School and Symposium on Laser Plasma Acceleration and Radiation, Kansai Photon Science Institute of JAEA, September 6, 2013, Kizugawa Kyoto.

R. Itakura, "Intense laser induced molecular dynamics accompanied by ionization", (Invited) The 15th Asian Chemical Congress, August 22, 2013, Singapore.

R. Itakura, "Energy correlation between a photoelectron and a fragment ion in dissociative ionization of ethanol in intense laser fields", (Invited) International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 11, October 25, 2012, Jeju, (Korea).

R. Itakura, "Photoelectron-photoion

coincidence spectroscopy of ethanol in intense UV and NIR laser fields", (Invited) The 5th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation (5th AWCXR), June 29, 2012, Kashiwa, (Japan).

R. Itakura, "Ionization of ethanol and subsequent electronic excitation in ethanol cation in intense laser fields", (Invited) The Shanghai Tokyo Advanced Research (STAR) Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 3, Odawara, (Japan), May 17, 2012.

板倉隆二、「超高速・高強度レーザーによる電子ダイナミクス」(招待講演)分子研研究会 次世代分子科学に向けた複合研究討論会、2012 年 3 月 15 日、分子研、東岡崎.

他 10 件

〔図書〕(計 1 件)

板倉隆二、「強レーザー場中分子の光電子放出と分子内励起過程」、分担執筆、CSJ カレントレビュー 第 18 号 強光場化学の展開 第 II 部、第 4 章 化学同人 印刷中.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

アウトリーチ活動

出張授業 (木津川市立相楽台小学校 1 年生 2013 年 6 月 22 日、木津川市立相楽台小学校児童クラブ 2013 年 12 月 24 日)

サイエンスキャンプ (高校生対象、実験指導、日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 2013 年 7 月 31 日-8 月 2

日)  
ホームページ等  
<http://www.wapr.kansai.jaea.go.jp/aprc/app-िल्ms.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

板倉 隆二 (ITAKURA, Ryuji)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究副主幹  
研究者番号：80334241

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

乙部 智仁 (OTOBE, Tomohito)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究職  
研究者番号：60421442