

平成 29 年 5 月 26 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287140

研究課題名(和文) 星間物質の分子進化の解明を目指した超高速分光システムの構築

研究課題名(英文) Construction of ultrafast spectroscopy system for evolution of interstellar molecules

研究代表者

伏谷 瑞穂 (Fushitani, Mizuho)

名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・講師

研究者番号：50446259

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：星間空間において最も重要な元素の一つである水素(プロトン)が関与した化学反応を高い時間分解能で実時間追跡を行うために、極紫外および中赤外域のフェムト秒レーザーパルスを利用した先進的分光計測システムの構築を行った。本研究では基本波400nmの第3次および第5次高調波である波長133および80nmの極紫外超短レーザーパルスの開発に成功し、超高速分子ダイナミクスを高い精度で観測できることを実証した。

研究成果の概要(英文)：We have constructed an advanced spectroscopic measurement system using extreme ultraviolet and mid infrared femtosecond laser pulses to track in real time chemical reaction processes of molecules containing hydrogen (proton) which is one of the key elements in the evolution of molecular clouds in interstellar space. In the present study, we have succeeded in developing ultrashort laser pulses at 133 and 80 nm which correspond to the 3rd and 5th order harmonics of the fundamental laser at 400 nm, and applied to time-resolved spectroscopy of ultrafast molecular dynamics with high temporal resolutions.

研究分野：分子科学

キーワード：超高速分光 反応ダイナミクス

1. 研究開始当初の背景

電波・赤外望遠鏡などによる精力的な観測により、星間空間には多様な原子・分子種が存在していることが知られている。特に、全宇宙で90%以上の組成を占める元素は水素であるため、水素(プロトン)の関与する化学反応過程が星間分子の分子進化に主要な役割を担っていると考えられている。

これまで星間空間における分子種の同定には周波数領域の振動・回転分光計法で決定された分子の分光情報が用いられてきたが、これらの分光計測法では、短寿命である中間体の情報を得ることが容易ではなかった。星間分子の反応素過程や反応途中における分子種の情報を得ることは星間分子の存在形態やその変遷を理解する上で重要となるため、分子構造を詳細に決定できる周波数領域の分光法に加え、反応中間体などの不安定分子のスペクトルを実時間で追跡できる時間領域の分光計測法の構築が必要であった。こうした直接観測による反応経路の知見はこれまで分子種の存在比率や理論計算による反応速度定数に基づいて議論されてきた星間空間における分子進化過程の理解をさらに深めるものと期待された。

2. 研究の目的

本研究では星間分子の化学反応過程の定性的かつ定量的な分析を行うために、極紫外および中赤外域のフェムト秒レーザーパルスを利用した先進的分光計測システムの構築を目的としている。本手法を水素を含む中性分子および分子イオンの光誘起化学反応に適用することで、星間分子の反応機構を反応ダイナミクスの観点から考察し、星間分子の存在形態や生成・消滅過程を反応素過程のレベルで理解することを目指す。

3. 研究の方法

チタンサファイアレーザーシステムから得られる高強度超短パルスから、気体または固体などの非線形光学媒質を利用して、極紫外・中赤外域のフェムト秒レーザーパルスを発生させる。発生させた極紫外・中赤外域の超短レーザー光のパルス品質を評価するため、希ガス原子などを対象としてそのイオン信号や光電子信号に基づいた自己相関または相互相関計測を行う。これらの超短レーザーパルスをポンプ光またはプローブ光として標的試料分子に照射することで、レーザー光によって誘起される反応ダイナミクスの実時間計測を行う。

4. 研究成果

既設のチタンサファイアレーザーシステムの出力(800 nm, ~40 fs, ~2mJ/pulse, 1 kHz)の一

部をβ-BBO結晶を用いて波長変換を行い、400 nmの超短パルスを得た。この第二高調波を平凸レンズを用いて、超高真空チャンバー内に設置したガスセル(クリプトンまたはキセノンガスを封入)に集光し、レーザー高次高調波を発生させた。発生したレーザー高次高調波から第3次(133 nm)または第5次(80 nm)高調波のみを取り出すため、誘電体多層膜およびインジウム薄膜をそれぞれ用いた次数選択を行った。

この極紫外超短レーザーパルスの時間幅を最適化するため、基本波である400 nmレーザーパルスが超高真空チャンバー内で最短の時間幅となるように、光学窓や空気中の伝搬により付加される群速度分散を補償する紫外域のチャープミラーシステム(図1)の導入を行った。

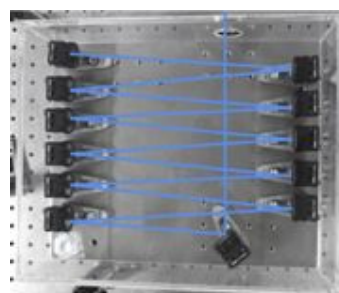


図1 紫外チャープミラーシステム

この紫外チャープミラーシステムの導入により、第5次高調波として発生する波長80 nmの極紫外レーザーパルスの時間幅を120 fsから34 fsへと3倍以上改善することを確認した。

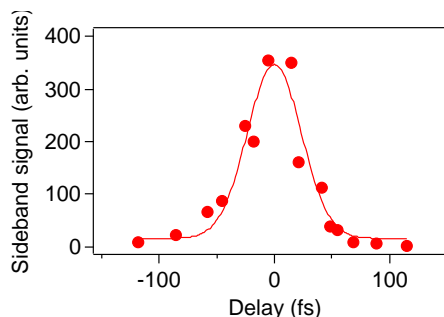


図2 極紫外(80 nm)および近赤外(800 nm, 44 fs)フェムト秒レーザーパルスによるキセノンガス光電子のサイドバンド信号の時間依存性

この極紫外光(~80 nm)の超短パルスを実際実時間分光計測に応用するため、基本的な分子の一つである窒素分子を標的としてその超高速光電子分光を行った。この極紫外光をポンプ光、赤外光(800 nm)をプローブ光として窒素分子の光電子スペクトルの時間変化を調べたところ、観測された光電子ピークは約300 fsの振動周期を示すことが明らかとなった。この振動周期は極紫外光によって生成

されたリユードベリ波束の分子ダイナミクスを反映していることが明らかとなった。

一方、中赤外域の超短レーザーパルスについては、この発生に必要となる波長 1300nm の超短パルスレーザーの品質改善に取り組み、出力及び時間幅などの最適化を行った。この長波長レーザーをヨウ化メチルの光誘起反応過程に応用し、ヨウ化メチルの解離性イオン化機構について明らかにした。

また、星間空間において観測されている、水素を有する基本的な分子の一つであるホルムアルデヒド(H₂CO)のレーザー光誘起反応を調べ、イオン状態における光解離チャンネルの分岐比などを解明することに成功した。今後、本手法を用いて他の分子種についても実験を行い、系統的な解析を実施する予定である。

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)

[雑誌論文](計 3 件)

[1] Mizuho Fushitani and Akiyoshi Hishikawa, “Single-order laser high harmonics in XUV for ultrafast photoelectron spectroscopy of molecular wavepacket dynamics”, *Structural Dynamics* **3**, 062602 (2016). 11 pages (査読有り), DOI: 10.1063/1.4964775

[2] 伏谷瑞穂, 菱川明栄, 「レーザー高次高調波による分子ダイナミクスの超高速光電子分光」, *レーザー研究* **43**, 818-822 (2015). (査読有り), http://www.lsj.or.jp/laser/l1_2.html

[3] Mizuho Fushitani, Chieng-Ming Tseng, Akitaka Matsuda, and Akiyoshi Hishikawa, “Ion-coincidence momentum imaging of three-body coulomb explosion of formaldehyde in ultrashort intense laser fields”, *AIP Conference Proceedings* **1702**, 090013 (2015). 3 pages (査読有り), DOI: 10.1063/1.4938821

[学会発表](計 11 件)

[1] Mizuho Fushitani, “Ultrafast EUV photoelectron spectroscopy of molecular Rydberg wavepacket dynamics by single-order laser high harmonics” The 77th Okazaki Conference Series: International Symposium on Ultrafast Dynamics in Molecular and Material Sciences, Okazaki Conference Center, Okazaki, March 6-8, 2017 **【Invited】**

[2] 伏谷瑞穂, 「極紫外レーザー高次高調波による分子ダイナミクスの超高速光電子分光」, 日本分光学会遠紫外分光部会 第2回講演会「拓かれる紫外・遠紫外分光法の研究領域」, 関西学院大学東京丸の内キャンパス, 丸の内, 2017年1月7日 **【招待講演】**

[3] Mizuho Fushitani, “Femtosecond two-photon rabi oscillations in He”, The Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics (AISAMP)12, Changchun, China, September 6-10, 2016 **【Invited】**

[4] Mizuho Fushitani, Yuto Toida, François Légaré, and Akiyoshi Hishikawa, “Real-time probing of N₂ Rydberg wavepacket dynamics by EUV laser high harmonics”, 第32回化学反応討論会, 大宮ソニックシティ, 大宮, 2016年6月1-3日

[5] 伏谷瑞穂, 樋田裕斗, François Légaré, 菱川明栄, 「極紫外レーザー高次高調波によるN₂ リユードベリ波束ダイナミクスの超高速光電子分光」, 日本物理学会第71回年次大会東北学院大学, 仙台, 2016年3月19日-22日

[6] 伏谷瑞穂, Liu Chien-Nan, 森下亨, 菱川明栄, 「極紫外および近赤外強レーザー場におけるHe原子の非線形イオン化過程」, レーザー学会学術講演会第36回年次大会, 名城大学, 名古屋, 2016年1月9日-11日 **【招待講演】**

[7] Mizuho Fushitani, Chieng-Ming Tseng, Akitaka Matsuda, and Akiyoshi Hishikawa, “Pulse duration dependence of Coulomb explosion of formaldehyde in intense laser fields studied by triple ion-coincidence momentum imaging” The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (PACIFICHEM2015), Honolulu, USA, December 15-20, 2015

[8] Mizuho Fushitani, “Ultrafast electron dynamics of He in intense EUV/NIR laser fields”, The 19th East Asian Workshop on Chemical Dynamics (19EAWCD), Gold Coast, Australia, October 5-7, 2015 **【Invited】**

[9] Mizuho Fushitani, “Ion-Coincidence Momentum Imaging of Three-Body Coulomb Explosion of Formaldehyde in Ultrashort Intense Laser Fields”, The 11th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2015), Athens, Greece, March 20-23, 2015 **【Invited】**

[10] Mizuho Fushitani, Yuto Toida, François Légaré, and Akiyoshi Hishikawa, “Ultrafast photoelectron spectroscopy of electron-ion wave packets in Rydberg N₂” 19th International Conference on Ultrafast Phenomena (UP2014), Okinawa, Japan, July 7-11, 2014

[11] 伏谷瑞穂, 「超高速化学ダイナミクスの反応イメージングと制御」, 統合物質創製化学推進事業第5回若手研究会, 休暇村支笏湖,

千歳, 2014年6月20日-21日

〔図書〕(計 0件)

〔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〕

ホームページ等

<http://photon.chem.nagoya-u.ac.jp/Home.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伏谷 瑞穂 (FUSHITANI Mizuho)

名古屋大学大学院理学研究科

物質理学専攻(化学)・講師

研究者番号：50446259