

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K15515

研究課題名(和文) 2次元2色波形制御パルスを用いた強レーザー場反応制御の機構解明と反応経路の開拓

研究課題名(英文) Studies on reaction control in intense laser fields by two-dimensional phase controlled two-color laser pulses

研究代表者

遠藤 友随 (Endo, Tomoyuki)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・主任研究員

研究者番号：60823929

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：強レーザー場中の単分子解離反応において、解離経路を理解する上で重要な電子励起状態を決定する新たなアプローチを実証した。本研究で用いた光電子-光イオン運動量画像同時計測法は長時間のデータ積算が必要で、特に位相制御2色レーザーパルスを用いた実験では位相揺らぎに起因するデータの低品質化が課題であった。本研究では、位相制御2色レーザーパルスの電場波形をシングルショットで計測し、運動量画像の計測データとタグ付けする新たなデバイスの開発と評価を行った。作製したデバイスを用いることで高品質なデータの取得が可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではこれまで直接観測されていなかった強レーザー場中の電子再衝突過程による分子励起過程およびその後の解離過程を捉えることに成功した。特に、電子再衝突によって生成した電子励起状態を決定する新しいアプローチを実証した上で、その精度を向上させるためのデバイスを新たに構築し、その評価を行なった。本研究で実証した手法は、強レーザー場中で誘起される様々な分子の解離反応にも適用可能である。解離反応は最も単純な化学反応の1つであり、その理解は強レーザー場を用いた分子反応制御だけでなく、多様な化学反応の理解およびその制御に重要な指針を与えると期待される。

研究成果の概要(英文)：A new approach to determine the electronic excitation state, which is important for understanding the dissociation pathway in the dissociation reaction of a single molecule in an intense laser field, was demonstrated. The photoelectron-photoion momentum image coincidence method used in this study requires a long data acquisition time, and especially in experiments using phase-controlled two-color laser pulses, poor data quality due to phase fluctuations has been an issue. In this study, I developed and evaluated a new device to measure the electric field waveform of phase-controlled two-color laser pulses in a single shot and tag it with the measured data of momentum images. The fabricated device enabled the acquisition of high-quality data.

研究分野：強レーザー場化学

キーワード：強レーザー場 超高速分子ダイナミクス 極短パルス 反応制御 2色レーザーパルス

## 1. 研究開始当初の背景

超高速で進行する原子核および電子ダイナミクスの制御は、高効率な反応の開拓や新たな物質の合成へと繋がる、化学における重要な課題の1つである。光パルスの超短化は、原子核や電子の超高速ダイナミクスの実時間追跡を可能とただけでなく、レーザー場強度の増大にも寄与し、極短強レーザー場 ( $\sim 100$  fs,  $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>) を利用した実時間領域での化学反応制御技術の開拓が進められてきた。レーザー電場波形の最適化により結合の選択的切断や異性化反応の制御が達成されるなど、強レーザー場による単分子反応制御は一定の成果を挙げてきた。

レーザー反応制御法の確立を目指し、搬送波-包絡線位相制御パルスや位相制御 2 色レーザーパルス等のシンプルな電場波形を用いて反応制御メカニズムを解明する試みが進められてきた。水素分子イオンの解離過程における電子局在化サイトの制御等、様々な制御機構が提案されてきた。一方で、単純な多原子分子であるアセチレンの選択的結合切断過程においてさえ、複数のメカニズムが提案されるなど、統一的な理解には至っておらず、制御メカニズムの理解は極めて限定されてきた。

## 2. 研究の目的

上記を踏まえ、本研究では強レーザー場中での複雑な分子ダイナミクスを紐解く新たなアプローチの開拓を目指した。これによって強レーザー場中で進行する分子の構造変形やトンネルイオン化、電子再衝突による分子励起や多価イオン化、結合解離など複数の過程を分離し、その理解を進める手法を確立する。特に、強レーザー場中でのトンネルイオン化過程がレーザー偏光方向に対する分子配向に強く依存すること、トンネルイオン化の後続過程として起きる電子再衝突によって様々な価数・電子状態の分子が生成することが制御メカニズムの解明に向けた大きな課題である。本研究ではシンプルな波形整形技術である位相制御 2 色レーザーパルスと光電子-光イオン三次元運動量画像計測 (PEPICO) 法を組み合わせ、三原子分子を対象に強レーザー場による化学反応制御の機構解明を進めた。

## 3. 研究の方法

Mach-Zehnder 型の 2 色波形制御パルス発生装置に波長板および偏光子を組み込み、位相だけでなく強度と偏光を操作可能な 2 色波形制御パルス発生装置を新たに構築した。複雑なパルス波形に対しても位相差の安定化が可能なフィードバック制御システムを構築した。

PEPICO 法では、同一の分子から出た電子とイオンを同時に検出するため、1 レーザーパルス当たりの生成電子数を小さく抑える必要があり、長時間のデータ積算が必要となる。位相制御 2 色レーザーパルスは重ね合わせる基本波と二倍波間の位相差によって電場波形が大きく変化する。位相差を変化させながら、電場波形に対する分子・電子の応答を精密に調べるため、フィードバック制御により位相差を安定化させる手法に加え、位相差をショット毎に測定し、PEPICO の計測データにタグ付けする手法を新たに開発した。

三原子分子である OCS 分子を対象に PEPICO 計測を行い、同時に観測されたイオン種 (OCS<sup>+</sup> もしくは S<sup>+</sup>) によって光電子の放出方向やエネルギー分布がどのように変化するかを調べた。また、位相制御 2 色レーザーパルス中の光電子放出過程に関してトラジェクトリー計算を行い、光電子放出過程について詳細な検討を行なった。得られた結果を国内学会において発表した。

## 4. 研究成果

### (1) 2 色波形制御パルス発生装置の高度化

位相だけでなく強度や偏光を操作可能な 2 色波形制御パルス発生装置を新たに構築した。特に、基本波と二倍波が異なる外乱を受けるため、長時間の測定において位相差の安定性が低下するという Mach-Zehnder 型の欠点を改善するため、フィードバック制御システムの高度化を行なった。2 色波形制御パルス発生装置内には新たに波長板および偏光子を組み込むことで、基本波と二倍波の強度および偏光を独立に操作可能な構成とした。また、フィードバック制御システムには偏光子や複屈折結晶を組み込むことで、複雑な波形を持つ 2 色波形制御パルスが入射された場合にも、適切な干渉信号の検出が可能な構成とした。位相差の安定化については長時間 (> 24 h) に渡って高い安定性 (< 200 mrad) を達成した。

### (2) 位相差タグ付け装置の構築

ショット毎に 2 色波形制御パルスの位相差を測定し、PEPICO 計測のデータにタグ付けするため、新たな装置を構築した。図 1 に本装置の評価のために構築した光学系の概略図を示した。一枚目の  $\beta$ -BBO 結晶で二倍波を発生させた。得られた 2 色波形制御パルスを別の  $\beta$ -BBO 結晶に入射し、位相差計測用の干渉信号を発生させた。従来は干渉信号を分光器で計測し、スペクトル全体の干渉信号から位相差を復元していた。新たに開発した装置では、回折格子を用いてスペクトルを周波数分解し、その一部分から位相情報を読み出す。スペクトル全体を測定する場合に比べて極めて高速な読み出しが可能で、レーザーの繰り返し周

波数 (1 kHz) に追従した動作を達成した。また、測定精度に関しては従来の手法と比較を行い、遜色のない結果が得られた (図 1 下段)。フォトダイオードの強度を PEPICO の計測データと同時に PC へと取り込むためのデバイスについても新たに構築した。コロナ禍における半導体の供給不足の影響を受け、当初設計した電子部品の入手が困難となったため、代替品として入手が容易なオープンソースハードウェアである Arduino Due を用いた。結果として、当初の設計よりも安価かつ入手も容易なため保守性の高い装置を構築することが出来た。

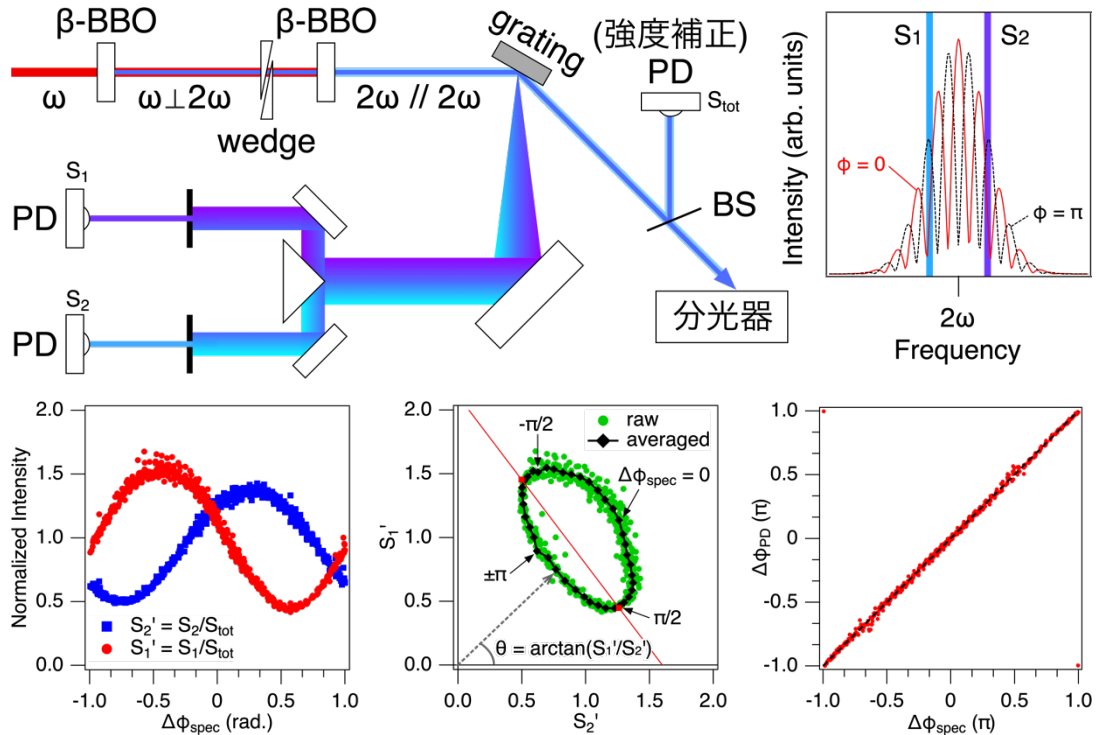


図 1 : (上段左) 位相差タグ付け装置の評価に用いた光学系の概略図。分光器で測定したスペクトル (上段右) から得られた位相情報と 3 つのフォトダイオード (PD) の信号から復元した位相情報を比較した。(下段左) PD の規格化信号強度 ( $S_1'$  および  $S_2'$ ) の位相差依存性。(下段中) PD 信号から位相情報を復元する際、 $\theta = \arctan(S_1'/S_2')$  をパラメータとして用いた。(下段右) PD の信号から復元した位相情報とスペクトル全体から復元した位相情報の比較。

(3) 位相制御 2 色レーザーパルスによる OCS 分子のイオン化過程

位相制御 2 色レーザーパルス ( $800 \text{ nm} + 400 \text{ nm}$ ,  $\sim 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ,  $\varphi = \pi$ ) による OCS のイオン化過程  $\text{OCS} \rightarrow \text{OCS}^+ + e^- \rightarrow \text{OC} + \text{S}^+ + e^-$  について PEPICO 計測を行なった。位相差  $\varphi = \pi$  における電場波形および観測された光電子の運動量画像を図 2 に示した。OCS<sup>+</sup> と同時に観測された光電子 ( $e^- (\text{OCS}^+)$ ) はレーザー電場強度の高い下側に多く放出され非対称な分布を示したのに対し、S<sup>+</sup> と同時に観測された光電子 ( $e^- (\text{S}^+)$ ) は  $\varphi = \pi$  では顕著な非対称性を

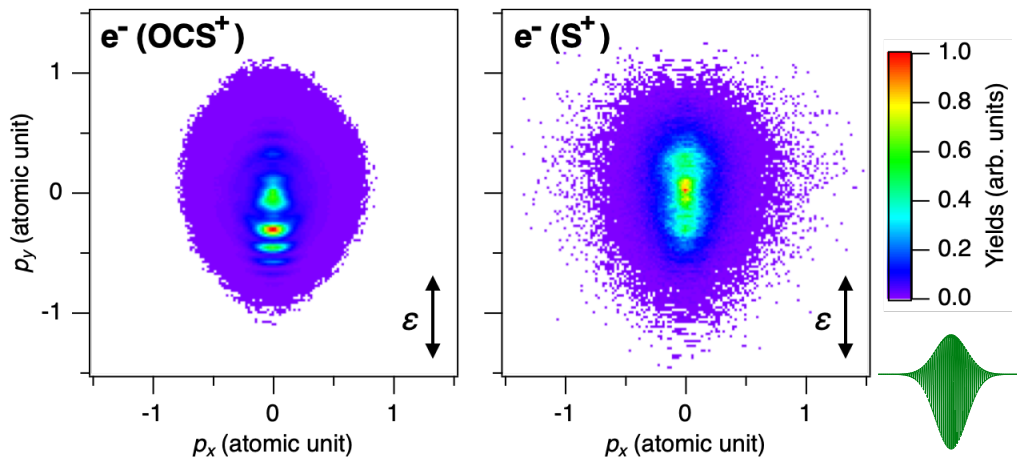


図 2: 位相制御 2 色レーザーパルス中で (左) OCS<sup>+</sup> と同時に放出された光電子の運動量画像 (右) S<sup>+</sup> と同時に放出された光電子の運動量画像。ε はレーザー偏光方向。測定時のレーザー電場波形を右下に示した。

示さなかった。位相差  $\varphi$  に対する光電子放出方向の非対称性を詳細に計測した結果、 $e^-$  ( $OCS^+$ ) と  $e^-$  ( $S^+$ ) では非対称性が最も顕著になる位相差  $\varphi$  が異なっていることが明らかとなった。

強レーザー場によって歪んだ束縛ポテンシャルを電子がトンネル透過することで進行するトンネルイオン化モデルを用いて、放出された光電子の古典トラジェクトリーシミュレーションを行なった。シミュレーションの結果は、実験で得られた光電子放出の非対称性の位相差依存性をよく再現し、トンネルイオン化後の電子再衝突過程における分子励起過程の有無によって、 $e^-$  ( $OCS^+$ ) と  $e^-$  ( $S^+$ ) に顕著な違いが観測されたと考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Endo Tomoyuki, Fujise Hikaru, Hasegawa Hiroka, Matsuda Akitaka, Fushitani Mizuho, Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru, Hishikawa Akiyoshi	4. 巻 100
2. 論文標題 Angle dependence of dissociative tunneling ionization of NO in asymmetric two-color intense laser fields	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 53422
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.100.053422	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 遠藤 友随、乙部 智仁、板倉 隆二
2. 発表標題 位相制御 2 色強レーザー場中OCSの光電子光イオン同時運動量画像計測
3. 学会等名 光・量子ビーム科学合同シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤 友随、乙部 智仁、板倉 隆二
2. 発表標題 位相制御2色強レーザー場中OCSの光電子-光イオン同時運動量計測
3. 学会等名 原子衝突学会第45回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤 友随、乙部 智仁、板倉 隆二
2. 発表標題 位相制御 2 色レーザー場中OCSのチャンネル分解光電子運動量画像計測
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会 第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤 友随、乙部 智仁、板倉 隆二
2. 発表標題 位相制御 2 色強レーザー場中OCSのチャンネル分解光電子運動量イメージング
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 遠藤 友随、板倉 隆二
2. 発表標題 2色レーザーパルスにおける位相差シフトのシングルショット計測
3. 学会等名 原子衝突学会第47回年会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------