

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25年 6月 4日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22685004

 研究課題名（和文） 高強度・円偏光レーザー場による原子・分子内環電流・誘起磁場の
実証と解明

 研究課題名（英文） Demonstration of electric ring currents and magnetic fields in an
atom/molecule induced by intense circularly polarized laser fields

研究代表者

赤木 浩（AKAGI HIROSHI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：70354818

研究成果の概要（和文）：高強度レーザー場による新規な原子・分子制御法の開発を目指し、エタノール分子の短パルス・近赤外レーザー（790nm）照射によるイオン化を対象として、以下のことを明らかにした。(1)生成する電子-イオンの同時計測を行い、イオン種ごとの光電子スペクトルが偏光楕円率に依存して変化する。(2)より長波長（1.3 μ m）の赤外レーザーを合わせて照射した条件下では、2つのレーザー照射タイミングおよび相対的偏光方向に依存して、各イオン種の生成比が変化する。

研究成果の概要（英文）：To realize a new controlling method for atoms/molecules with intense laser fields, we have made the following two findings for photo-ionization of ethanol molecules in short-pulse near infrared laser fields at 790 nm. (1) The channel specific photoelectron spectra correlated with the produced ion species, which have been obtained by measuring the electron and ion in coincidence, depend on the ellipticity of the laser polarization. (2) In additional laser fields at the longer wavelength of 1.3 μ m, the ion yield ratio depends on time delay between the two laser pulses and an angle between the 790 nm and 1.3 μ m polarization directions.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	11,700,000	3,510,000	15,210,000
2011年度	4,700,000	1,410,000	6,110,000
2012年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
総計	18,900,000	5,670,000	24,570,000

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：高強度レーザー場、電子ダイナミクス、円偏光

1. 研究開始当初の背景

(1)高強度レーザー場における電子波束ダイナミクス

高強度・短パルスレーザーを集光すれば、原子あるいは分子に対し、そのクーロン場に匹敵する光電場を与えることが出来る。その強い光電場中では、原子・分子内の電子が光

電場によって揺さ振られることで、複数の電子状態へのコヒーレント励起が起り、電子波束として動き回る。そのため、特異な結合解離や異性化、高次高調波発生、高エネルギーの電子・イオン生成など、通常のレーザー光では起り得ない過程が進行する。分子制御や、短波長光発生、高エネルギー粒子生成

などにおける技術革新に繋がるため、ここ 20 年ほどの間、多くのグループによって研究が行われ、成果が挙げられてきた。一方で、これらの特異な過程は発生確率が概して小さく、利用研究に向けての大きな障害になると考えられる。これらの過程を効率的に起こすための方法を検討する上で、その根源となっている電子波束ダイナミクスの解明は避けて通れない。

一方で、ごく最近まで、原子・分子内電子波束ダイナミクスについては、あまり注目されてこなかった。しかし、2009 年に入ってから、高強度レーザー場による電子波束生成の証拠が相次いで示された。K 原子からの光電子放出角度・速度分布測定により、高強度レーザー場中で電子基底状態と第 1 電子励起状態の間のコヒーレント状態が生成していたことが示された。また、生成したイオンにおいても電子波束が生成していることが、配列した CO₂ 分子からの高次高調波スペクトルや、本申請者らによる、HCl 分子からの放出電子角度分布測定で示唆された。このように、高強度レーザー場による電子波束生成、並びにその観測に対する関心が急速に高まっている。しかし現時点では、電子波束生成の間接的な証拠が得られただけであり、電子波束ダイナミクスそのものの解明には未だ至っていない。

(2) 円偏光レーザー場による原子・分子内環電流・磁場

本研究では、円偏光レーザー場を研究対象とする。円偏光レーザー場の場合、回転する光電場によって原子・分子内に電子の円運動を誘起することが理論的に予測されている。この円運動は、いわゆる環電流に相当する。さらにこの環電流により、原子・分子内に局所的な誘起磁場が発生する。環電流量、誘起磁場強度ともに非常に大きな値となることが予想されており、新規な原子・分子制御手法に繋がると期待される。

この状態を、波束という観点から捉えようと、電子波束が光電場に対応して回転している状態となる。このダイナミクスを実時間で観測すれば、各時刻での電子の位置情報を導くことが出来る。一方、電子状態分布という観点から捉えれば、電子波束を形成する電子状態の磁気モーメントの方向に偏りがある状態、と考えられる。原子系を例に取れば、構成する電子状態の磁気量子数 m が + あるいは - に偏った状態である。この状態の物性値は、各電子状態の物性値に存在確率の重みを付けて平均したものと一致する。従って、発生する環電流量は $I_c = \sum_n P(n) \cdot I_c(n)$ 、磁場強度は $I_m = \sum_n P(n) \cdot I_m(n)$ と表せる。ここで $P(n)$ は電子状態 n の存在確率、 $I_c(n)$ と $I_m(n)$ は環電流値と磁場強度である。従って、磁気モーメントまで考慮して電子状態分布を測定す

ることが出来れば、環電流および磁場について理解できることになる。このとき、光電場中で状態分布は時々刻々と変化するため、経時変化を測定する必要がある。

電子波束ダイナミクスおよび電子状態分布の経時変化を明らかにすることで、円偏光レーザー場による環電流および誘起磁場を理解し、さらに原子・分子内電流制御および磁場制御の可能性を探ることは重要である。

2. 研究の目的

高強度レーザーによる新規な原子・分子制御の開発を目指し、高強度レーザー場誘起の電子波束および磁場ダイナミクスの解明を行う。具体的には、理論予測されている高強度・円偏光レーザー照射による原子・分子内環電流および磁場発生の実証を目指す。さらに、これらの現象を時間分解観測することで、電子波束および誘起磁場ダイナミクスの全容を解明し、高強度レーザー場を利用した原子・分子内電流制御、および磁場制御の技術開発を目指す。

3. 研究の方法

エタノール分子の短パルス・近赤外レーザー(波長 790 nm)によるイオン化を対象に、以下の 2 つの実験を行った。(1)イオン化・電子励起ダイナミクスの偏光楕円率依存性測定、(2)より長波長(1.3 μ m)の赤外レーザー場中でのイオン生成のレーザー照射タイミング・相対的偏光方向依存性測定。

(1)イオン化・電子励起ダイナミクスの偏光楕円率依存性測定では、生成する光電子-光イオンの同時計測を行い、イオン種ごとの光電子スペクトルを取得した。790 nm のレーザー光の偏光楕円率を変えながら測定を行い、楕円率依存性の情報を得た。

(2)赤外レーザー場(1.3 μ m)中でのイオン生成のレーザー照射タイミング・相対的偏光方向依存性測定では、790 nm レーザー光によって生成するイオン種の生成量について、同時に照射する 1.3 μ m の赤外レーザーの照射タイミングおよび相対的な偏光方向を変えながら測定を行い、それぞれに対する依存性の情報を得た。

4. 研究成果

(1)イオン化・電子励起ダイナミクスの偏光楕円率依存性

エタノール分子の直線偏光・近赤外レーザー(790 nm)照射による解離性イオン化では、これまでの研究により、親イオン(C₂H₅OH⁺)の電子励起状態へ直接イオン化する過程と、親イオンの電子基底状態へイオン化した後に電子励起する段階的な過程の、2 つの過程が競合していることがわかってい

る。本研究では、そのイオン化・電子励起ダイナミクスが、照射レーザーの偏光楕円率に大きく依存することを示した。

電子およびイオン用の位置敏感・時間分析型検出器を備えた真空チャンバー内に、エタノール蒸気をマイクロシリンジを通じて導入した。チタン-サファイア再生増幅器の出力 ($\lambda \sim 790 \text{ nm}$, $\Delta t \sim 50 \text{ fs}$) を、 $\lambda/4$ 波長板を通して偏光状態を制御した上で、レンズを用いて真空チャンバー内のエタノール分子に集光して照射した。生成する光電子とイオンを、それぞれ 3 次元運動量を分解した上で同時計測した。集光点でのレーザーピーク強度は、越閾イオン化 (Above-Threshold Ionization, ATI) ピークのポンドロモーティブシフトを基にして見積もった。

図 1 は、ピーク強度 $1.2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ における、主要な生成イオンである親イオン ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$)、 $\text{C}_2\text{H}_4\text{OH}^+$ 、および CH_2OH^+ と同時に計測された光電子のエネルギースペクトルの、偏光楕円率依存性を示している。円偏光 [図 1(a)]、および楕円偏光 [図 1(b)] 条件において、親イオン ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$) 生成と相関する光電子スペクトルは、 $\sim 1.6 \text{ eV}$ 間隔で連続した ATI ピーク構造を示す。一方、C-H 結合解離イオン ($\text{C}_2\text{H}_4\text{OH}^+$) 生成と相関する光電子は、同様の ATI 構造を示すが、そのピーク位置は、親イオンのスペクトルに比べて 0.3 eV 程度低エネルギー側にシフトしている。これらの挙動は、直線偏光で観測されるスペクトル [図 1(c)] と同様である。直線偏光の実験結果に対しては、イオン化時に電子基底状態の親イオンが生成し、その親イオンの振動エネルギーが $\sim 0.3 \text{ eV}$ を上回った場合に限り、C-H 結合解離が進行して C-H 結合解離イオンが生成する、と解釈されており、楕円率が変わった条件下でも、同様の過程を経て、親イオンおよび C-H 結合解離イオンが生成していると考えられる。

一方、C-C 結合解離イオン (CH_2OH^+) 生成と相関する光電子スペクトルでは、円偏光条件では、親イオン ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$) 生成と相関する光電子スペクトルと同様の ATI ピーク構造を示す [図 1(a)]。このことは、電子基底状態の親イオンが生成してから電子励起する、段階的過程が起きていることを意味する。一方、直線偏光 [図 1(c)] では、この ATI 構造は不明瞭で、親イオンの電子励起状態への直接励起に由来する、構造の無い成分が支配的である。楕円偏光 [図 1(b)] では、丁度、これら 2 つの極限の中間の結果を与えている。すなわち、直線偏光から円偏光へ、偏光楕円率が変化するのに伴い、段階的過程の方が有利になることを示している。以上の結果から、偏光状態を変えたことによって、イオン化によって生じる親イオンの電子状態分布を変化させることが出来ることを明

らかにした。

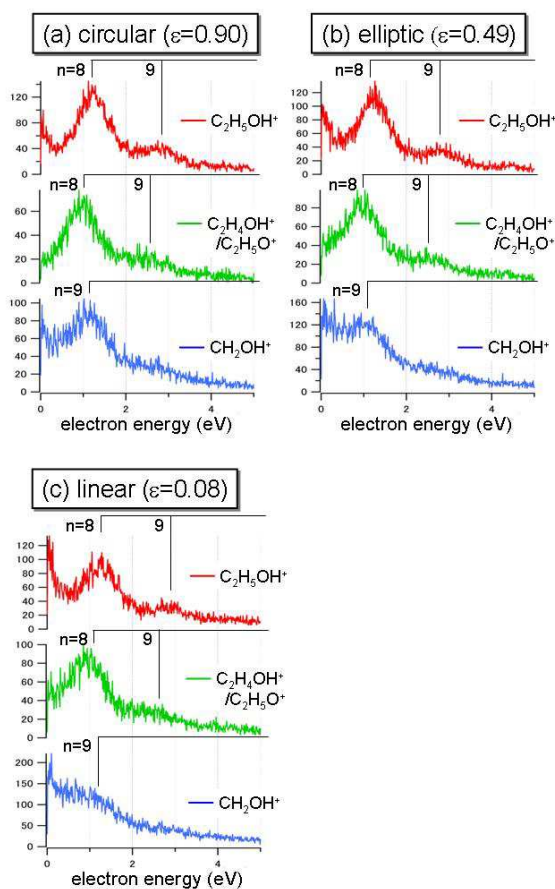


図 1 ピーク強度 $1.2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ における、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$ 、 $\text{C}_2\text{H}_4\text{OH}^+$ および CH_2OH^+ イオン生成と相関する光電子スペクトル。(a)円偏光、(b)楕円偏光、および(c)直線偏光での結果

(2) 赤外レーザー場 ($1.3 \mu\text{m}$) 中でのイオン生成のレーザー照射タイミング・相対的偏光方向依存性

長波長 ($1.3 \mu\text{m}$) の高強度レーザー場中で誘起される光電場によって、エタノール分子の電子波動関数、ならびに電子状態分布に変動が起きる。その情報を抜き出すため、 790 nm と $1.3 \mu\text{m}$ の直線偏光・赤外レーザーパルスの同時照射によって生成するイオン種の生成比測定を、2 つのパルス照射タイミングおよび相対的偏光方向を変えながら行い、それぞれに対する依存性を測定した。

(1) で使用した真空チャンバーにエタノール蒸気を導入した条件で行った。 $1.3 \mu\text{m}$ 赤外レーザー光 ($\Delta t \sim 60 \text{ fs}$) は、光パラメトリック増幅器のシグナル光を利用した。 790 nm レーザーパルスとの遅延時間を、光路長を変えることで調整し、放物面鏡を利用して真空チャンバー内のエタノールのジェットに集光して照射した。一方、 790 nm 光の偏光方向

は $\lambda/2$ 波長板を用いて調整した上で、同じ放物面鏡を用いて集光、照射した。

相対偏光方向が平行および垂直のときの、 $C_2H_5OH^+$ 、 $C_2H_4OH^+$ および CH_2OH^+ イオン生成量の、遅延時間依存性を図2(a)および図2(b)に示す。いずれの相対偏光方向条件においても、2つのレーザー光が時間的、空間的に重なったときだけ、各イオンの生成量が増えていることがわかった。また、イオン種ごとの増加量は、相対偏光方向に強く依存している。すなわち、平行条件[図2(a)]では、親イオン($C_2H_5OH^+$)と解離性イオン種の増加量はほぼ同じであるが、垂直条件[図2(b)]では、解離イオンの増加量が極端に減っていることが判る。

解離イオンは、電子励起状態の親イオン生成によってのみ、生成することが可能である。従って、今回得られた実験結果は、790nmレーザー場による電子励起した親イオンの生成確率を、 $1.3\mu m$ の相対偏光方向によって変化させることが出来たことを示している。

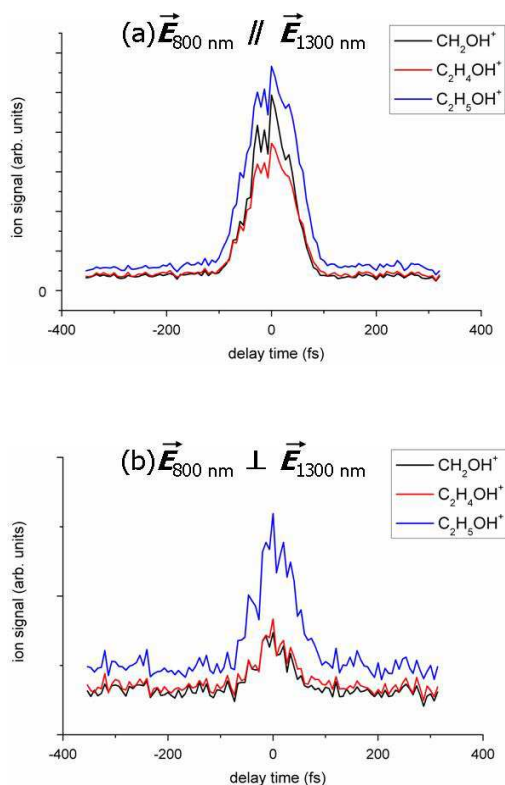


図2 $1.3\mu m$ 光と790nm光の同時照射における、 $C_2H_5OH^+$ 、 $C_2H_4OH^+$ および CH_2OH^+ イオン生成量の遅延時間依存性。相対的偏光方向が(a)平行、(b)垂直条件での結果

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4件)

- ① H. Akagi, R. Itakura, K. Hosaka, T. Otake, K. Yamanouchi, and A. Yokoyama, "Dissociative ionization of ethanol in circularly-polarized intense laser fields", 2010年12月17日、The 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), Hawaii Convention Center, Hawaii, USA
- ② 赤木 浩、乙部智仁、板倉隆二、穂坂綱一、山内 薫、横山 淳、「高強度・短パルスレーザー照射によるエタノール分子の解離性イオン化における円偏光と直線偏光の違い」、分子科学討論会 2010、2010年9月15日、大阪大学
- ③ H. Akagi, T. Otake, R. Itakura, K. Hosaka, K. Yamanouchi, and A. Yokoyama, "Polarization dependence of ionization dynamics of ethanol in intense laser fields", 2010年9月5日、International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (MPS2010), Tohoku University, Sendai, Japan
- ④ 赤木 浩、板倉隆二、穂坂綱一、山内 薫、横山 淳、「Dissociative ionization of Ethanol by circularly-polarized ultrashort intense laser fields」、第26回化学反応討論会、2010年6月2日、広島大学

[その他]

ホームページ等

<http://www.apr.kansai.jaea.go.jp/aprc/app-ils.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤木 浩 (AKAGI HIROSHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：70354818

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし