

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 15 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26288013

研究課題名(和文) 光電子とイオン内部状態の相関計測に基づく超高速光イオン化コヒーレント制御

研究課題名(英文) Coherent control of ultrafast photoionization based on measurement of photoelectron-photoion correlation

研究代表者

板倉 隆二 (Itakura, Ryuji)

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・グループリーダー(定常)

研究者番号：80334241

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,800,000円

研究成果の概要(和文)：高強度レーザー電場中のイオン化について、光電子のエネルギースペクトルだけでは分離、識別できないイオン化経路について、主に光電子角度分布から明らかにすることができた。主な成果は、以下の4項目である。

(1) 超高速多チャンネルイオン化における光電子とのコヒーレントな相関の理論的、数値的検証。(2) クリプトン原子のイオン化における共鳴中間状態の重要性を示唆。(3) レーザープラズマを用いた真空紫外極短パルス波形計測法の提案と実証。(4) 光電子・光イオン3次元運動量同時計測によるメタノールの光電子角度分布測定に基づいた解離性イオン化経路の決定。

研究成果の概要(英文)：We experimentally and theoretically investigate ionization dynamics of atoms and molecules in intense laser fields. Our attention is focused on photoelectron angular distributions which enable us to identify reaction pathways in dissociative ionization. The achievements of this study are summarized as follows.

(1) Correlation of photoion and photoelectron in ultrafast ionization is revealed in a theoretical and numerical manner. (2) Influence of resonant intermediate states in ionization of Kr is suggested by photoelectron angular distribution and numerical simulation based on time-dependent density functional theory. (3) a new method for characterizing VUV waveform using laser-plasma is proposed and demonstrated. (4) Pathways in dissociative ionization of methanol in intense UV laser fields are determined on the basis of photoelectron angular distribution with photoelectron-photoion coincidence momentum imaging.

研究分野：高強度レーザーにより誘起される超高速光物性

キーワード：超高速イオン化 コヒーレント制御 光電子光イオン相関計測

1. 研究開始当初の背景

これまで、中性分子の励起状態を利用したコヒーレント制御に関しては、極めて高精度な制御が実現されてきた。線形応答のレーザー強度領域における電子遷移を利用した場合、2原子分子であれば完全な振動波束制御が実現されている。しかし、反応収率の観点から言うと電子基底状態から電子励起状態への遷移確率は小さく、励起できる分子の数は極めて限られる。収率を上げるには、レーザー強度を上げればよいが、ある程度の強度から分子とレーザーの相互作用は非線形応答となり、光イオン化も含め、他の電子状態の影響も無視できなくなる。非共鳴高強度レーザーによる回転ラマン遷移を用いた回転波束の精密な制御も実現されているが、これも強度を上げていくと、イオン化確率が大きくなる。イオン化を避ける戦略もあり得るが、100%のイオン化確率が容易に実現可能であることを考えると、その高効率性は積極的に利用すべきである。イオン化も含めた高強度レーザーを用いた反応制御は、パルス波形整形技術と遺伝的アルゴリズムなどの最適化制御理論を組み合わせ、対象となる反応分岐比の最大(最小)化が行われ、ある程度の分岐制御が実現された。制御機構の解明も試みられたが、現象論的な理解に留まっており、制御レベルもそれほど高くない。イオン化後の分子は、様々な電子・振動・回転状態を取り、実際に解離反応経路も多岐に渡る。この多様性を精密に制御するのが理想的であるが、研究開始当初は、反応経路の多様性を生じさせているイオン化・電子励起機構がようやく解明され始めたという状況であった。

我々は、強レーザー場イオン化によって生成した光電子とイオンを同時計数計測する装置を開発し、光電子と最終イオン生成物の相関を明らかにしていた。開発した装置は投影型の画像検出器と異なり、3次元電子運動量を直接観測でき、生成解離イオンの3次元運動量との相関を抽出することが可能である。その結果、エタノール分子について、レーザー場より獲得するイオンの内部エネルギーがイオン化・電子励起の経路に依存することを明らかにした。この測定で、最終生成イオン種が異なる反応チャンネル間の光電子スペクトルの比較だけでなく、解離イオンの並進運動エネルギーの情報を得たことは大きな前進ではあったが、それ以外の情報を抽出出来ていない点が課題として残っていた。

2. 研究の目的

従来、イオン化直後の親イオンにおける内部状態分布は光電子スペクトルから抽出可能だが、超高速イオン化の場合、不確定性によって光電子スペクトルのピーク幅が広がり、状態選別が不可能になる。このような条件下では、光電子状態を特定すると、イオンの固有状態の重ね合わせが実現する。つまり、イ

オンにコヒーレンスが生じることになる。本研究の目的は、「イオン化によって生じるコヒーレントなダイナミクスを観測、理解し、高効率な分子制御へ繋げること」にある。特にエネルギースペクトルを見ているだけでは分離、もしくは識別できないイオンの状態を、光電子の角度分布に注目して明らかにする。

3. 研究の方法

本研究は、以下の4つの項目について進められた。

(1) 超高速多チャンネルイオン化理論：研究代表者が導出した超高速多チャンネルイオン化におけるイオンのコヒーレンスに関する理論を基に、希ガスのイオン化によって生成するスピン軌道分裂2準位から成るホール密度の角度分布の時間発展計算を行った。

(2) クリプトン原子のチャンネル分解イオン化：強レーザー中クリプトン原子からの光電子角度分布の解析のため、スピン軌道相互作用を含んだ時間依存汎関数法による数値計算を行い、実験結果と比較・考察した。

(3) 真空紫外極短パルス発生とパルス波形計測：プローブ光源として真空紫外領域の高次高調波発生を行い、そのビームラインを構築した。熔融石英上に生成したレーザープラズマを超高速スイッチとして動作するミラーとして利用し、真空紫外パルスの時間分解反射分光を行い、相互相関型の周波数分解光ゲート(FROG)法の解析手法を導入し、位相を含めたパルス波形の計測を行った。

(4) 光電子・光イオン3次元運動量同時計測：強レーザー場中のメタノールに対して、解離生成物のメチルイオン CH_3^+ の反跳ベクトルと光電子放出ベクトルとの角度相関を観測した。また、これまで開発・運転してきた装置の中に組み込まれているイオン検出器においてマイクロチャンネルプレート表面から電子が飛び出し検出効率が低くなる問題を改善させるため、検出器の直前にメッシュ電極を設置した。

4. 研究成果

上の研究の方法にて述べた4つの研究項目について、以下のような成果を得た。

(1) 超高速多チャンネルイオン化理論：イオン化によって分離する光電子と生成イオンの相関を観測することがコヒーレンスを考慮するうえで重要であることを示し、原著論文として公表した。

(2) クリプトン原子のチャンネル分解イオン化：強レーザー場中Krの光電子角度分布測定で観測されていたレーザー偏光方向に対して垂直方向に特異的増強される光電子放出について考察を行った。理論計算との比較の結果、レーザー強度に依存してレーザーパルスの自動イオン化準位の寄与が大きくなることを示唆した。エネルギースペクトルで

は異なるイオン化チャンネルが重なってしまい、分離できない場合でも、光電子角度分布によりイオン化チャンネルを分離できることを示し、原著論文として公表した。

(3) 真空紫外極短パルス発生とパルス波形計測：チタンサファイアレーザー基本波によるレーザープラズマの時間分解真空紫外反射スペクトルを図1(a)に示す。この測定結果を相互相関型のFROGアルゴリズムにより解析し、図1(b)のように時間分解反射スペクトルを再構築した結果はエラーも少なく、真空紫外パルス波形とプラズマミラーの時間依存反射率が得られた。プラズマミラー周波数分解ゲート法と名付けた独自のパルス波形計測法は、波長を選ばず、これまで計測が困難であった真空紫外領域のパルス波形計測法として機能することが示され、Opt. Express 誌にて公表した。さらに、解析アルゴリズムを改良し、プラズマミラーの時間依存反射率についてプラズマ化する前の反射率も含めて正確、かつ少ない計算コストで求めることができるようになった。このアルゴリズムの改良についても High Power Laser Sci. and Tech. 誌に公表済みである。

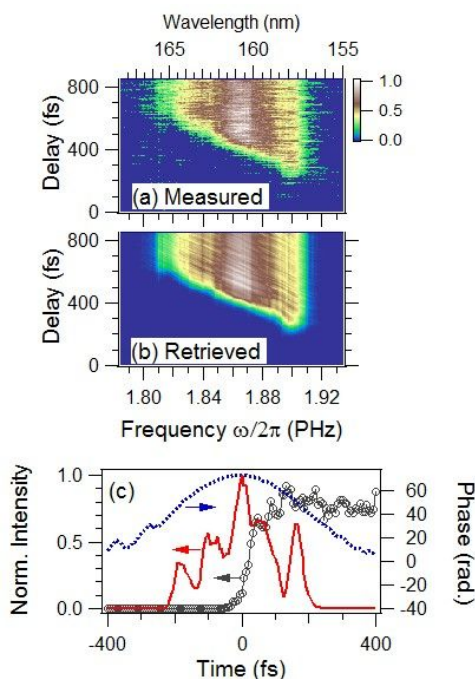


図1. 石英上に生成したレーザープラズマの時間分解真空紫外反射スペクトル((a)実測、(b)FROG解析による再構築結果)。(c)FROG解析によって得られた真空紫外パルス波形(赤実線)と位相(青点線)。はレーザープラズマの時間依存反射率。

(4) 光電子・光イオン3次元運動量同時計測：光電子と CH_3^+ フラグメントイオンの角度相関計測から分子座標系の光電子角度分布(図2)を計測することができ、光電子エネルギー

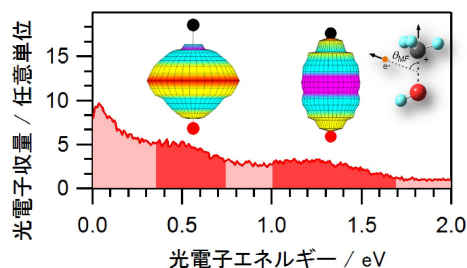


図2. 高強度紫外レーザー場中メタノールの光電子スペクトルと濃色部のエネルギー領域の分子座標系光電子角度分布。

一領域ごとに異なるイオン化経路を經過していることが明らかとなった。この結果は Chem. Phys. Lett. 誌に公表した。

メッシュ電極の導入によりイオン検出器の検出効率が約30%から50%程度まで向上することができた。その結果、強レーザー場中メタノールの解離性イオン化に関して、測定した大量の実験データの解析を進めた。 CH_3OH^+ の第2電子励起状態への5光子イオン化において、偏光方向とCO軸が平行の場合、CO軸に平行、かつO原子側への光電子放出が優勢になることが明らかとなった。偏光方向とCO軸が垂直の場合には、偏光方向への放出に加え、偏光と垂直な平面に沿った特徴的な光電子放出となることがわかった。

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5件)

M. Nakano, T. Otobe, and R. Itakura, “Anomalous photoelectron angular distribution in ionization of Kr in intense ultraviolet laser fields”, Phys. Rev. A, **95**, 063404-1-8 (2017). 査読有. DOI: 10.1103/PhysRevA.95.063404

S. Fukahori, M. Nakano, K. Yamanouchi, and R. Itakura, “Channel-specific photoelectron angular distribution in laboratory and molecular frames for dissociative ionization of methanol in intense ultraviolet laser fields”, Chem. Phys. Lett. **672**, 2-7 (2017). 査読有. DOI: 10.1016/j.cplett.2017.01.043

R. Itakura, T. Kumada, M. Nakano, and H. Akagi, “Plasma-mirror frequency-resolved optical gating for simultaneous retrieval of a chirped vacuum-ultraviolet waveform and time-dependent reflectivity”, High Power Laser Science and Engineering **4**, e18-1-5 (2016). 査読有. DOI: 10.1017/hp.2016.18

R. Itakura, T. Kumada, M. Nakano,

and H. Akagi, "Frequency-resolved optical gating for characterization of VUV pulses using ultrafast plasma mirror switching", *Opt. Express* **23**, 10914-10924 (2015). 査読有. DOI: 10.1364/OE.23.010914

R. Itakura, M. Fushitani, A. Hishikawa, and T. Sako, "Photoelectron-photoion correlation in ultrafast multichannel photoionization of Ar", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 195602-1-9 (2014). 査読有. DOI: 10.1088/0953-4075/47/19/195602

〔学会発表〕(計 27 件)

板倉 隆二、「強レーザー場中電子励起ダイナミクス:原子・分子から凝縮相へ」(招待講演)応用物理学会・量子エレクトロニクス研究会、上智大学軽井沢セミナーハウス、長野県軽井沢町、2016年12月8日

R. Itakura, "Channel-resolved photoelectron angular distribution in ionization of atoms and molecules in intense laser fields", (Invited) The Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 7, 湘南国際村センター、神奈川県・葉山町、2016年5月20日.
R. Itakura, "Time-resolved reflection spectroscopy for simultaneous monitoring VUV waveform and plasma formation", (Invited) The 6th International Symposium of Advanced Energy Science -Towards the Realization of Zero-Emission Energy-, 京大宇治キャンパス、京都府・宇治市、2015年9月1日.

R. Itakura, "Plasma mirror frequency-resolved optical gating for simultaneous measurement of VUV waveform and plasma formation", (Invited) The Shanghai Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 6, Hangzhou (China), May 22, 2015.

R. Itakura, "Correlation between Photoelectron and Photoion in Ultrafast Multichannel Photoionization of Ar", (Invited) 11th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering, Athens, (Greece), March 21, 2015.

R. Itakura, "Correlation between photoelectron emission and fragment recoil of methanol and ethanol in intense laser fields", (Invited) The 8th Asian Symposium on Intense Laser

Science, Taipei, (Taiwan), November 26, 2014.

R. Itakura, "Photoelectron-photoion correlation in ultrafast ionization", (Invited) International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 13, Jodhpur, (India), October 8, 2014.

他 20 件

〔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://www.kansai.qst.go.jp/organization-1-3.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

板倉 隆二 (ITAKURA, Ryuji)

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 量子科学研究部・グループリーダー

研究者番号：80334241

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()