

強レーザー場中エタノールの解離イオン運動量選別光電子イメージング

(1 原子力機構、2 東大院理)

○1 穂坂綱一・1 板倉隆二・1 横山啓一・1,2 山内薫・1 横山淳

【序】本研究は、強レーザー場中におけるエタノール分子の解離性イオン化について、イオン化機構および解離に至る電子励起機構、さらには、分子内エネルギー再分配過程を明らかにすることを目的とする。これまでに、光電子光イオン運動量画像同時計測法により、最終生成イオンを分離した光電子運動量画像を観測し、イオン化直後の電子状態がレーザーパルス波形に依存して変化することを明らかにしてきた[1]。パルス幅 35 fs、ピーク強度 $9.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のレーザーパルス ($\lambda \sim 783 \text{ nm}$) をエタノール ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$) に照射した場合、解離イオン CH_2OH^+ 生成の経路は、1 価イオンの電子励起状態へ直接イオン化する経路が主であった。一方、ピーク強度を $2.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ まで上げた場合、もしくはピーク強度を一定に保ち (17 TW/cm^2) パルス幅を 800 fs まで伸ばした場合には、1 価イオンの電子基底状態へイオン化した後、電子励起が起きる段階的な過程が支配的になる。本研究では、さらに、解離イオン CH_2OH^+ の並進運動量と光電子運動量の 3 次元相関を観測し、イオン化とその後の解離ダイナミクスについて議論する。

【実験】超高真空チャンバー内に設置された 2 組の遅延時間アノード位置敏感検出器 (PSD: Roentdek Hex80) を用いて、単一のエタノール分子から生成する光電子とイオンの運動量を同時計測した。強レーザーパルス (最短 35 fs, 783 nm, $9 \sim 29 \text{ TW/cm}^2$) をエタノールに照射し、生成した光電子とイオンは静電レンズにより PSD 検出器へと加速され、各粒子の到着時刻と位置情報に基づいて、光電子とイオンの 3 次元運動量、さらにイオンの質量を同時に決定した。単一分子計測の条件を確保するため、レーザー 1 ショットあたり観測イベント数が 0.3 以下になるように、極微量のエタノールをチャンバーに導入した。

【結果と考察】

[CH_2OH^+ の並進エネルギー分布] 光電子との相関を考慮しない場合、 CH_2OH^+ の並進エネルギー

(E) 分布はエネルギーに対して単調減少し、指数関数 $\exp(-E/E_0)$ を用いて再現できることが明らかとなった。パルス幅 35 fs、ピーク強度 $9.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のレーザーパルスを照射した時の観測結果に対して、 $\exp(-E/E_0)$ にフィッティングした結果、並進エネルギーパラメータ $E_0 = 38 \text{ meV}$ を得た。指数関数分布や非常に小さな並進エネルギーは、レーザー電場から与えられた分子内の余剰エネルギーが、多くの分子内モードへ統計分配されたことを示唆している。並進エネルギー分布は、パルス強度を上げた時も、ピーク強

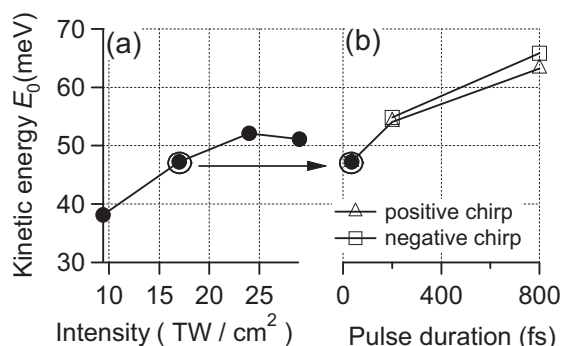


図1. 並進エネルギーパラメータ E_0 の (a) パルス強度依存性 (パルス幅: 35 fs)、(b) パルス幅依存性 (強度: $1.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)

度を一定にしてパルス幅を伸ばした時も、指数関数で再現され、 E_0 の値は図 1 に示すようなパルス強度、パルス幅依存性を示すことがわかった。分子の励起に用いられる総エネルギーが増加することで、並進運動に分配されるエネルギーも増加したものと考えられる。

[光電子運動量画像のイオン放出角度依存性] 図 2 に 35 fs、 $9.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のレーザーパルスによるイオン化での CH_2OH^+ の実験室座標系における放出角で選別した光電子運動量画像を示す。並進エネルギー E が $E > 20 \text{ meV}$ 以上のイベントのみを選別した。

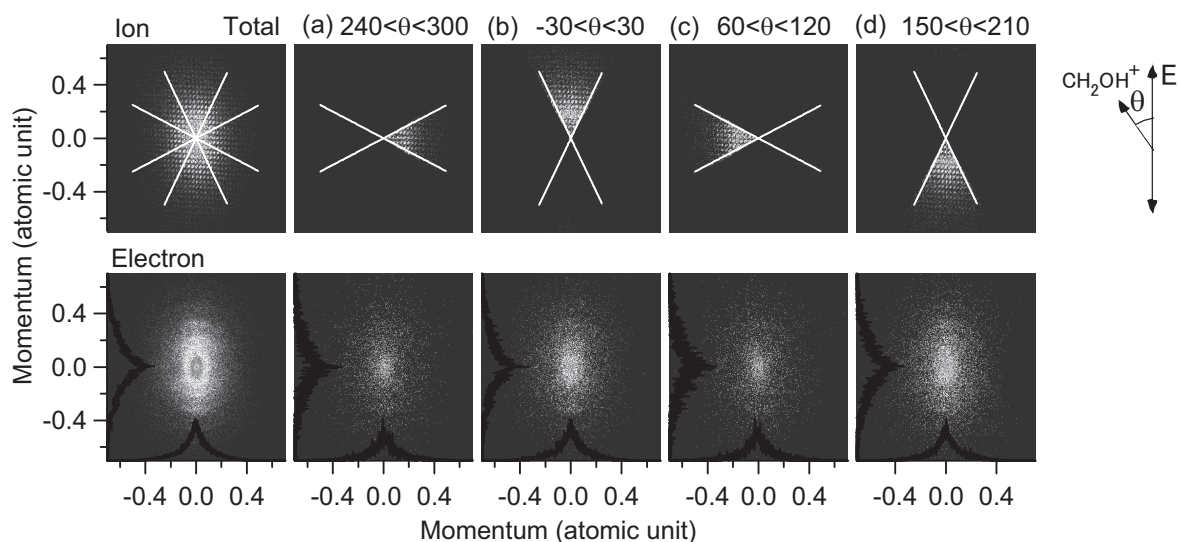


図 2 CH_2OH^+ の放出角度分布で選別した光電子運動量射影像。上段：選別したイオン並進運動量ベクトルの範囲。下段：上段のイオンと相関した光電子運動量射影像

偏光方向に対して直角方向に放出されたイオンを選別した光電子像 (図 2 (a),(c)) と平行方向に放出されたイオンを選別した光電子画像 (図 2 (b),(d)) を比べたところ、光電子とイオンの角度相関は見られなかった。この観測結果は、i) イオン化確率の分子配向依存性が元々小さいこと、ii) 解離までに回転、変角運動の寄与が大きく分子配向依存性がぼやけてしまうことという 2 点のどちらか、もしくは両方の効果によるものと考えられる。放出角度と同様に、並進エネルギー E でイベントを選別した場合にも、 $E > 20 \text{ meV}$ の場合には光電子運動量画像の E 依存性は見られなかった。イオン化直後にはイオンコア内部の余剰エネルギーと光電子エネルギーは 1 対 1 対応している。今回の測定結果は、解離前の初期内部エネルギーが解離後の並進エネルギー分布にほとんど影響を与えない統計的な解離過程が起きていることを示唆している。

[共鳴イオン化] パルス幅 35 fs、ピーク強度 $9.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ の時、 CH_2OH^+ の並進エネルギー E を 20 meV 以下に限定すると、光電子スペクトル中の 0.8 eV 付近にピークが現れた。このピークは、中性の Rydberg 状態に共鳴したイオン化に帰属される。生成するイオン状態に類似した Rydberg 状態を経由することで、Franck-Condon 重なりが限定的になり、光電子、解離イオンともに幅の狭いエネルギー分布を持つようになったと考えられる。このような共鳴効果は $9.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のみで観測された。

[1] K. Hosaka, R. Itakura, K. Yokoyama, K. Yamanouchi, and A. Yokoyama, *Chem. Phys. Lett.* **475**,19 (2009).