

2A01

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

(¹原子力機構・関西, ²東大院・理)

○赤木 浩¹、乙部 智仁¹、板倉 隆二¹、穂坂 綱一¹、山内 薫^{1,2}、横山 淳¹

【序】 これまで、我々のグループでは、高強度・直線偏光レーザーをエタノール分子に照射して生成するイオンと光電子を同時計測する実験を行ってきた[1]。解離性イオン化に関しては、その結果に基づいて、親イオン ($C_2H_5OH^+$) 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を明らかにした。

一方、円偏光の高強度・短パルスレーザーを分子に照射した場合、イオン化やその後の解離過程が、直線偏光の場合とは大きく異なる可能性がある。本研究では、円偏光レーザー照射におけるエタノール分子のイオン化および解離過程について、直線偏光との違いを明らかにすることを目標とした。幾つかのレーザー強度条件において、主要な生成イオンである親イオン ($C_2H_5OH^+$)、 $C_2H_4OH^+$ 、 CH_2OH^+ および $C_2H_5^+$ イオンと同時に観測される光電子のエネルギースペクトルを計測し、直線偏光照射におけるスペクトルと比較した。その結果、イオン化過程が偏光状態で異なることが明らかになったので報告する。

【実験方法】 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 ($\lambda \sim 790$ nm, $\Delta t \sim 50$ 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) ピークのポンデロモータィブシフトを基にして見積もった。円偏光における2つのレーザーピーク強度 $I_0 = 11$ および 19 TW/cm² 条件での結果を、直線偏光での $I_0 = 8.5$ TW/cm² での結果と比較した。この直線偏光条件のレーザーピーク強度は、円偏光の低レーザーピーク強度条件 ($I_0 = 11$ TW/cm²) とほぼ同じであり、一方、電場ピーク強度 ($E = 8.0 \times 10^9$ V/m) は、円偏光の高レーザーピーク強度条件 ($I_0 = 19$ TW/cm², $E = 8.5 \times 10^9$ V/m) と同程度になっている。

【結果と考察】 Fig. 1(a)および(b)は、円偏光における低レーザーピーク強度 ($I_0 = 11$ TW/cm²) および高レーザーピーク強度 ($I_0 = 19$ TW/cm²) での光電子スペクトルである。いずれの円偏光条件でも、親イオン ($C_2H_5OH^+$) 生成と相関する光電子スペクトルは、 ~ 1.6 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 ($C_2H_4OH^+$) 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 ($I_0 = 8.5$ TW/cm²) で観測されるスペクトル [Fig. 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 ~ 0.3 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、と解釈した[1]。円偏光条件でも、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。

C-C結合解離イオン (CH_2OH^+) およびC-O結合解離イオン (C_2H_5^+) の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 [Figs. 1(a) and (b)]。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 [Fig. 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った。従って、直線偏光から円偏光への変化に伴い、段階的過程の方が有利になることを示している。

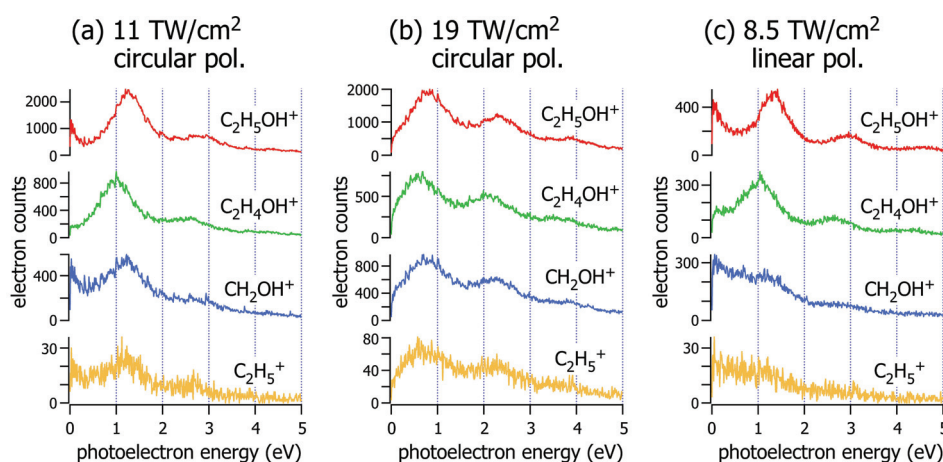


Fig. 1 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$, $\text{C}_2\text{H}_4\text{OH}^+$, CH_2OH^+ および C_2H_5^+ イオン生成と相関する光電子スペクトル。(a)円偏光、レーザーピーク強度 $I_0 = 11$ TW/cm^2 、(b)円偏光、 $I_0 = 19$ TW/cm^2 、および(c)直線偏光、 $I_0 = 8.5$ TW/cm^2 条件での結果。

以上の結果は、円偏光では主に電子基底状態の親イオンが生成する [Fig. 2(a)] が、直線偏光では電子励起状態の親イオンが同時に生成する [Fig. 2(b)] ことを示している。このように、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が変化することが明らかとなった。

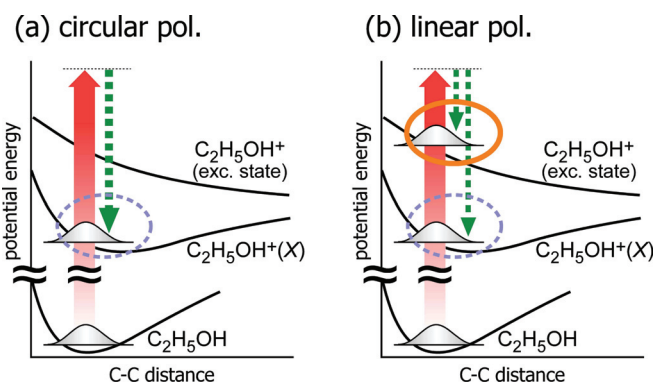


Fig. 2 (a)円偏光および(b)直線偏光におけるイオン化過程の概念図。

【参考文献】

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