

## C<sub>60</sub> における近赤外誘起コヒーレント振動の 時間分解クーロン爆発イメージング

(<sup>1</sup> 東北大院理, <sup>2</sup> 産総研, <sup>3</sup> De La Salle 大, <sup>4</sup> 東北大多元研)

○山崎 馨<sup>1</sup>, 新津 直幸<sup>2</sup>, Wilfredo Chung<sup>1,3</sup>, 菅野 学<sup>1</sup>, 上田 潔<sup>4</sup>, 河野 裕彦<sup>1</sup>

### Time-resolved Coulomb explosion ion imaging of the NIR-induced coherent vibration of C<sub>60</sub>

(<sup>1</sup>Dept. Chemistry, Tohoku Univ.; <sup>2</sup>AIST; <sup>3</sup>De La Salle Univ.; <sup>4</sup>IMRAM, Tohoku Univ.)

○Kaoru Yamazaki<sup>1</sup>, Naoyuki Niitsu<sup>2</sup>, Wilfredo Chung<sup>1,3</sup>, Manabu Kanno<sup>1</sup>, Kiyoshi Ueda<sup>4</sup>, Hirohiko Kono<sup>1</sup>

#### 1. 序論

近年、適切な形状に整形された  $10^{15}$  W/cm<sup>-2</sup> オーダーのピーク強度を持つ近赤外フェムト秒(fs)パルス列を用いることで、次世代の分子デバイスの素材として期待されているフラーレン C<sub>60</sub> などのナノカーボンにおけるコヒーレント振動やそれに引き続いて起きる炭素フラグメントの脱離などの構造変換反応を制御できることが明らかになってきた[1,2]。このため、C<sub>60</sub>の近赤外誘起コヒーレント振動の動力学を直接画像として観測することができれば、ナノカーボンの光誘起構造変換反応の制御機構の解明やナノカーボンの光・電子デバイスへの新たな精密加工法開拓に繋がると期待される。それでは、どのような実験を行えばC<sub>60</sub>のコヒーレント振動を画像として直接観測できるのでしょうか？

我々が提案する手法は、近赤外ポンプ・X線自由電子レーザー(XFEL)プローブを使った時間分解クーロン爆発イメージング法である。この手法では、波形を整形した近赤外パルスをポンプ光としてコヒーレント振動を誘起し[1,2]、XFELをプローブ光としてイオン化・クーロン爆発させ[3,4]、生成したフラグメントの空間分布を2次元イオンイメージとして追跡する[5,6]。本発表ではC<sub>60</sub>のコヒーレント振動を時間分解クーロン爆発イメージングで観測できるかどうかを原理検証するために、C<sub>60</sub>の  $h_g(1)$  偏長・扁平振動の時間分解2次元イオンイメージを *on-the-fly* 古典動力学計算に基づいてシミュレーションした結果を報告する。

#### 2. 計算手法

まず、波長 1800 nm の  $z$  軸偏光ガウス関数型パルス 2 つからなる照射パルス列のパルス幅と単パルスの間隔を適切に調節して[2]、 $h_g(1)$ モードを選択的に impulsive Raman 励起した(図 1 参照)。次に、近赤外パルス列の 2 つめのパルスの強度が最大になってから  $t$  fs に C<sub>60</sub> を C<sub>60</sub><sup>60+</sup> に垂直イオン化させ、その後のクーロン爆発過程を追跡した[4]。そして、イオン化から 10 ps 経過した時点のフラグメントの空間座標を  $x$ - $z$  平面に射影することで2次元イオンイメージを得た。トラジェクトリ計算には、C<sub>60</sub> 超多価イオンにおけるクーロン爆発の動力学と生成したフラグメントの運動エネルギー  $K_T$  を高速かつ正確に計算できる[4] self-consistent charge density functional based tight binding 法 [7]を用いた。また、レーザー電場とC<sub>60</sub>の相互作用は、時間依存断熱状態法 [8]によって考慮した。

### 3. 結果と考察

励起した  $h_g(1)$  モードのコヒーレント振動のスナップショットと対応する2次元イオンイメージを図1に示す。  $C_{60}$  が偏長・扁平構造を取る  $t = 107$  fs および  $239$  fs に  $C_{60}^{60+}$  へ垂直イオンさせた場合には、高速な  $C^{2+}$  と低速な  $C^+$  が分子の長軸方向と短軸方向へそれぞれ非等方的に放出されることが分かった。その一方で、  $C_{60}$  が球形に近い構造を取る  $t = 174$  fs にイオンさせた場合には  $C^{2+}$  は観測されず、  $C^+$  の空間分布はほぼ球対称であった。また生成する原子フラグメント ( $C^{2+}$ ,  $C^+$ ) の平均運動エネルギー  $\langle K_T \rangle$  は  $C_{60}$  が偏長・扁平構造を取っている場合には  $120$  eV 以上、球対称に近い構造の場合は  $90$  eV 程度というように、分子振動周期の半分でその値が振動することが分かった。以上の結果より、近赤外パルスによって誘起された  $C_{60}$  の  $h_g(1)$  モードのコヒーレント振動を、XFEL パルスをプローブ光とするクーロン爆発イオンイメージングで直接観測できることが原理的に示された。

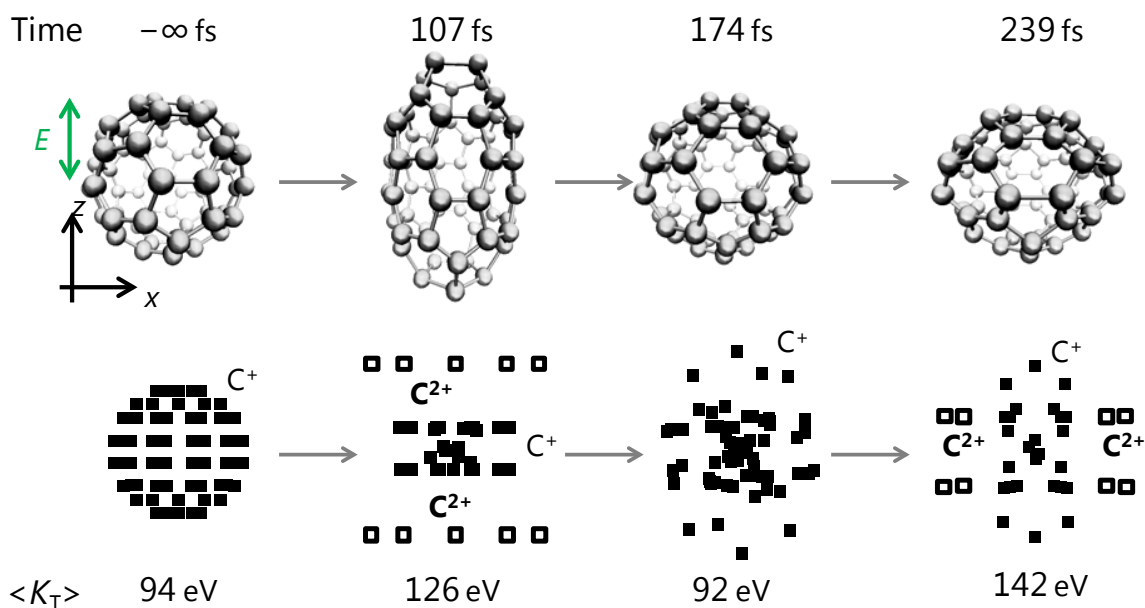


図1  $C_{60}$  の近赤外誘起  $h_g(1)$  コヒーレント振動のスナップショットと対応する2次元イオンイメージ。■と□はそれぞれ  $C^+$  と  $C^{2+}$  を表す。また、近赤外パルス列の2つめのパルスの強度が最大になった時刻を  $t = 0$  fs とした。(単パルスの幅  $70$  fs, パルス間隔  $134$  fs, ピーク強度  $7 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.)

#### 参考文献

- [1] T. Laarmann *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 058302 (2007)
- [2] N. Niitsu, K. Yamazaki *et al.*, *J. Chem. Phys.* **136**, 164304 (2012)
- [3] B. F. Murphy, K. Ueda *et al.*, *Nat. Commun.* **5**, 4281 (2014)
- [4] K. Yamazaki *et al.*, *J. Chem. Phys.* submitted (2014)
- [5] A. Hishikawa *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 258302 (2007)
- [6] J. Kou *et al.*, *J. Chem. Phys.* **112**, 5012 (2000)
- [7] M. Elstner, *et al.*, *Phys. Rev. B.* **58**, 7260 (1998).
- [8] Y. Sato, H. Kono *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **125**, 8019 (2003)