

### 3P084 エタノールの強光子場誘起解離性イオン化反応： レーザーパルス波形依存性

(東大院理<sup>1</sup>・慶大理工<sup>2</sup>) ○板倉隆二<sup>1</sup>, 山内 薫<sup>1</sup>, 矢澤洋紀<sup>2</sup>, 岡本達佳<sup>2</sup>, 田辺孝純<sup>2</sup>, 山中美緒<sup>2</sup>, 神成文彦<sup>2</sup>

**【序】** 強光子場中の分子は、光の強度、波長、およびパルス波形に応じて分子の構造を変えながら、イオン化、解離を起こす [1]。これまで、学習アルゴリズムに基づいたレーザー波形最適化制御により、反応制御の可能性が示されてきた [2]。このような制御は分子の情報を必要としないため工学的には有用であるが、一方で、制御パラメーターが持つ物理的内容やその役割の理解を深めることには必ずしも結びつかない。我々は、強レーザー場中におけるエタノールの解離性イオン化の反応機構の理解を目指し、レーザーパルスのチャープ率を変えて、その反応の分岐を測定し、強光子場中におけるエタノールの反応機構について調べてきた [3]。その結果、チャープの正負によらず、チャープ率の大きさが重要なパラメーターであることが示された。本研究では、まず、パルス列を作り、そのパラメーター（パルス数、間隔、チャープ）を系統的に変え、二つの競合する反応チャンネル (i)  $\text{CH}_2\text{OH}^+ + \text{CH}_3$  と (ii)  $\text{C}_2\text{H}_5^+ + \text{OH}$  の生成比  $[\text{C}_2\text{H}_5^+] / [\text{CH}_2\text{OH}^+]$  の変化を測定した。次に、最適化制御によって、これまで得られた結果以上の生成比を得ることが可能かどうかを試みた。

**【実験】** モードロック・チタンサファイアレーザー再生増幅器の出力は、変換限界 (TL) パルスにおいて 35 fs のパルス幅をもち、それをレンズ（焦点距離：145 mm）で集光するとピーク強度  $4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  となる。波形整形器は再生増幅器の前段に置かれ、パルス列生成には音響-光プログラマブル分散フィルター (AOPDF) を、また、最適化制御実験には 4f 型液晶空間波形整形器 (LC-SLM) を波形整形器として用いた。エタノールはマイクロシリンジ ( $70 \mu\text{m} \phi$ ) を通して、連続的に真空チャンバーへ導入され、生成物イオンは Wiley-McLaren 型の飛行時間質量分析器 (TOF-MS) によって観測された。

#### 【結果・考察】

##### 1. ダブルパルスにおけるパルス間隔依存性

TLパルスを2つ連ねたダブルパルスの間隔を広げていくと、生成比  $[\text{C}_2\text{H}_5^+] / [\text{CH}_2\text{OH}^+]$  は、図1のように単調に減少する。チャープ率のみをパラメーターとした実験において、パルス幅の増加とともに生成比が増えたことを考えると、これは反対の傾向を示している。つまり、 $\text{C}_2\text{H}_5^+$  が効率よく生成するためには、ある一定の時間の間レーザー光が持続する重要であることを示している。

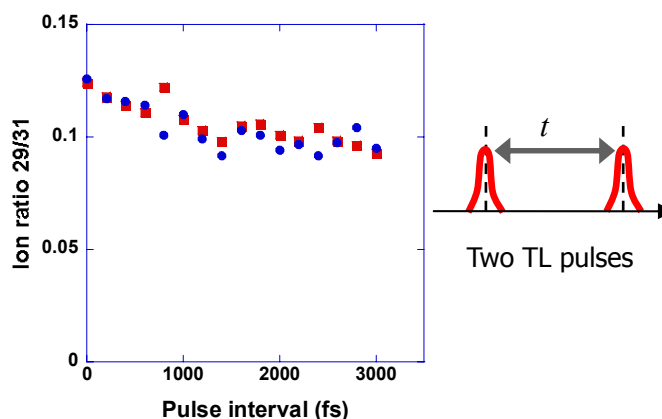


図1. 生成比  $[\text{C}_2\text{H}_5^+] / [\text{CH}_2\text{OH}^+]$  のダブルパルスのパルス間隔依存性

## 2. パルス列におけるチャープ率依存性

400 fs 間隔で3パルスを配置し、各パルスのチャープ率を変化させた。その結果、シングルパルスの結果と同様に、チャープ率の増加とともに  $C_2H_5^+$  の生成比が増えることがわかる (図2)。ただし、その増加の仕方は、シングルパルスの場合よりも急である。これは、パルスが3つ連なっていることから、全体としてのパルス幅が長くなるためと考えられる。実際、最大値を取るチャープ率では3つのパルスの幅が  $\sim 400$  fs であり、レーザー電場がスムーズに持続するようになる。

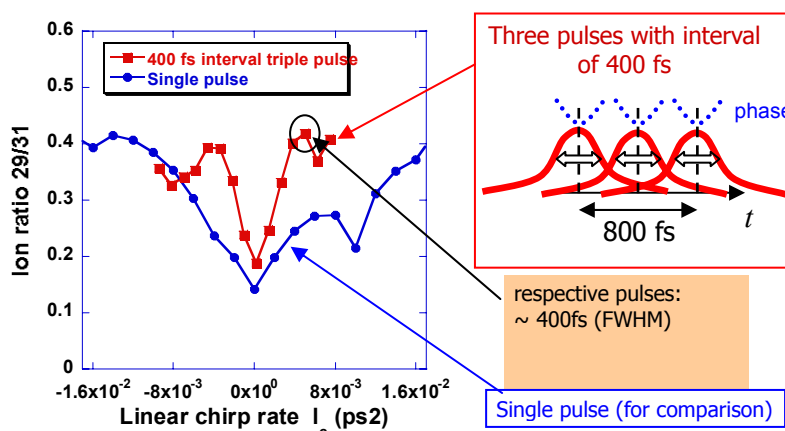


図2. 3パルス列にを用いた時の生成比  $[C_2H_5^+]/[CH_2OH^+]$  のチャープ率依存性. 比較のため、1パルスの結果もプロットした.

## 3. 最適化制御

焼きなまし法を用いて、生成比  $[C_2H_5^+]/[CH_2OH^+]$  が最大になるように最適波形制御を行った結果、チャープ実験で得られた最大値よりも大きな生成比は得られなかった。最適化制御によって得られるレーザーパルスの時間波形は、多くのスパイク状のピークを持ち、その微細構造に再現性はないものの、全体としての時間幅は常に  $1\sim 2$  ps 程度となった。これらは、チャープ実験の結果と一致しており、800 nm 付近の波長域の強光子場中におけるエタノールの解離性イオン化反応を支配するのは、レーザー電場の持続時間であることが示唆される。最近の理論計算 [4] によると、この持続時間は、振動波束が強レーザー電場中にて形成された光誘起ポテンシャル曲面を動き、非断熱遷移を起こす交差領域に到達するまでの時間に対応すると考えられる [3]。

### 【参考文献】

- [1] K. Yamanouchi, *Science* **295** (2002) 1659.
- [2] R. J. Levis, G. M. Menkir, H. Rabitz, *Science* **292** (2001) 709.
- [3] R. Itakura, K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, F. Kannari, *J. Chem. Phys.* **119** (2003) 4179.
- [4] H. Kono, Y. Sato, N. Tanaka, T. Kato, K. Nakai, S. Koseki, Y. Fujimura, *Chem. Phys.* (2004) in press.