

4C09 FEL赤外多光子励起による液相有機分子のプラズマ発光の時間分解測定

(東大院理¹、東理大総合²) ○佐藤 伸¹, 岩田耕一¹, 濱口宏夫¹, 今井貴之²,
門脇徹人², 岩田 章², 中井浩二², 黒田晴雄²

【序】東京理科大学総合研究所で開発された赤外自由電子レーザー(FEL-SUT)は、5～16 μmの中赤外領域のレーザー光を波長可変出力可能で、さらに高出力(1マクロパルスあたり～20 mJ)、短パルス(～2 ps)という卓上市販レーザーにはない特徴を持つ。結果としてこれまで実現困難であった振動選択した赤外多光子励起が可能となった。昨年の本討論会では溶液中のメロシアニン色素分子(NK-1247)のFEL多光子励起発光について発表した[1]。本年は基本的な分子であり、常温で液体であるベンゼンを研究対象とすることで、多光子励起発光のメカニズムに関する更に興味深い結果を得たので報告する。

【実験】FEL-SUTのパルスの時間構造を図1に示す。マイクロパルス、マクロパルスの時間幅はそれぞれ2 ps, 2 μs、マクロパルスの繰り返し周波数は5 Hzである。本実験ではマイクロパルスの束であるマクロパルスを1つのレーザーパルスとして用いた。実験装置の模式図を図2に示す。FEL光は凹面鏡対を用いてビーム径約1 cmに縮小し、レーザー光と同軸に発生した高次高調波を短波長カットフィルターで除去した。レーザー光の強度を偏光子対によって調整した後、ZnSeレンズで集光し、厚さ約200 μmの液膜状の試料溶液に照射した。試料からの発光を分散型分光器へと導入して、ICCD検出器を用いてスペクトルを観測した。デジタル遅延回路によりレーザーとICCDゲートパルス間の時間遅延を変化させ、時間分解測定を行った。

【結果と考察】図3にベンゼン液体の赤外吸収スペクトル(下段)および、励起に用いたFELのスペクトルの一例(上段)を示す。まずFELの波長をベンゼンのC-C-C変角振動(ν_9)バンド(1480 cm^{-1})に一致させ、ベンゼン液膜上に強く集光した。結果として、明確な構造やピークを持たない、長波長側に単調増加する幅広な発光スペクトルが観測された(図4)。次に、このFEL波長における発光強度の入射レーザー光強度(1マクロパルスの強度)依存性を調べたところ(図5)、多光子過程が起きていることを明確に示す約11次の依存性が得られた。時間分解スペクトルの測定により、図6に示す発光の時間変化を観測し、FEL励起発光はFELマクロパルスに対して数マイクロ秒遅れて立ち上がり、レーザーが途切れた後もマイクロ秒のオーダーで発光していることが判った。

励起波長を1034, および1815 cm^{-1} の振動バンドに合わせ、発光の励起波長依存性を測定した。入射レーザー強度を1480 cm^{-1} 励起と同様に～6 mJに揃えた場合、上記の二つの波長で発光は

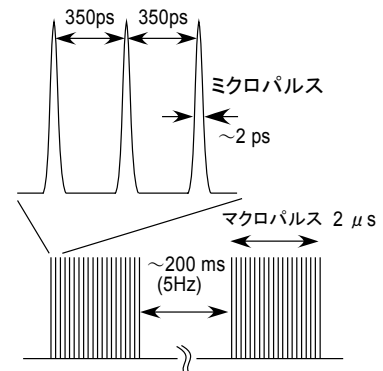


図1 FEL-SUT パルスの時間構造

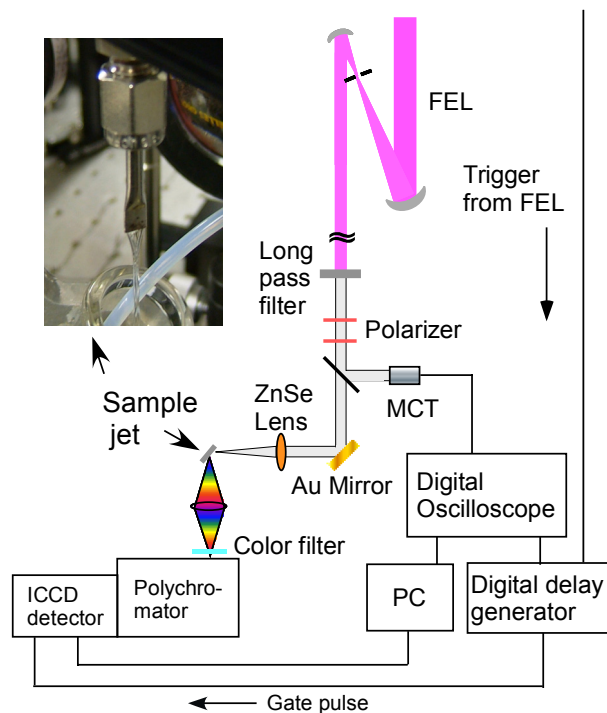


図2 実験装置模式図

観測されず、入射レーザー光強度を上げると 1815 cm^{-1} 励起の場合でのみ発光が見られた。励起振動バンドによる多光子遷移過程の違いが観測された。現在より詳細な波長依存性の実験を行っている。

今回観測された発光の3つの特徴 1) 発光がブロードで構造を持たない 2) 多光子吸収による高励起状態からの発光 3) 励起レーザーパルスに対する遅延発光 は、レーザー誘起プラズマ発光の示す特徴と良く合致し、特に1)のブロードな発光は、プラズマ中の電子の制動放射によると帰属されている[2]。レーザー誘起プラズマは、多光子イオン化で生成した電子が、同じレーザーパルス内の光子によって加速され、他の分子と衝突を繰り返して成長するといわれおり、その発光強度は、多光子イオン化過程では入射レーザー光強度の n 次に比例するが、プラズマ成長過程ではその一次に比例する。液体ベンゼンの多光子イオン化には、入射赤外光40-50光子が必要であるのに対し[3]、我々の測定結果が11次の依存を示したことも、上記の過程で発光が起きていることを裏付けている。ナノ秒可視レーザーによるプラズマ発光の報告[2]では、ブロードな成分は可視領域に極大を持ち、かつプラズマ中の原子カチオン特有の輝線スペクトルも観測されている。本研究の結果との相違点は、プラズマ発生機構の差異を反映しているものと考えられる。

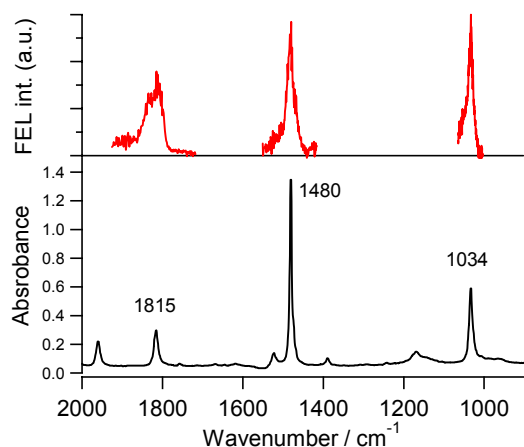


図3 液体ベンゼンの赤外吸収および励起に用いたFELのスペクトル

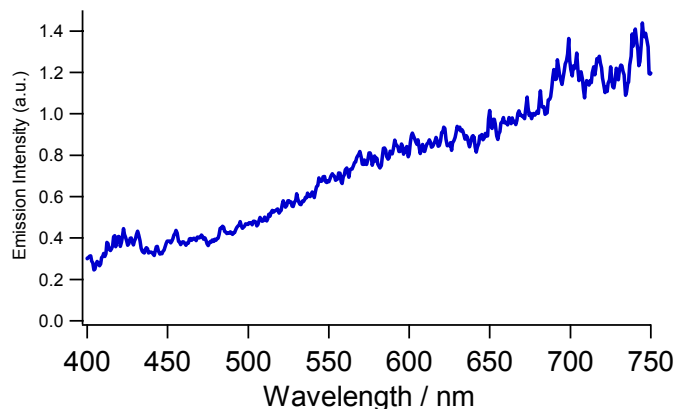


図4 液体ベンゼンのFEL多光子励起発光スペクトル

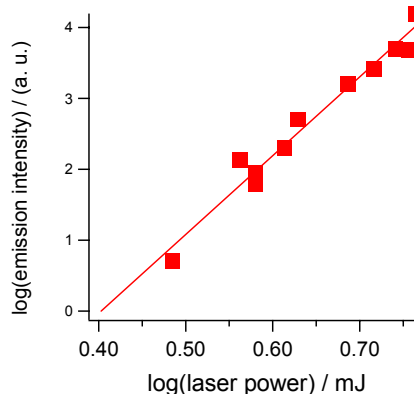


図5 赤外多光子励起発光の励起光強度依存性

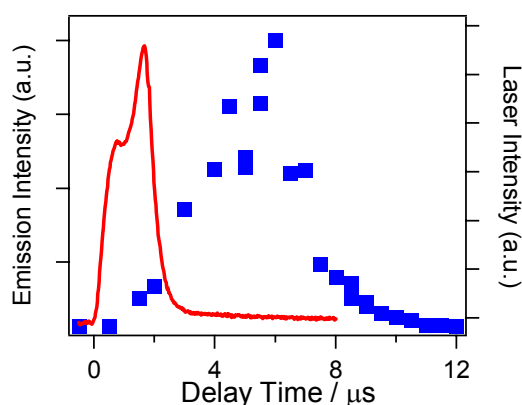


図6 発光の時間変化(赤線FEL, 青点600nmにおける発光強度)

【参考文献】

- [1] 佐藤 他、分子構造総合討論会 2003、1Pp078
- [2] Y. Tasaka, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, 34, 1673,(1995)
- [3] T. W.Scott, A. J. Twarowski and A. C. Albrecht, *Chem. Phys. Lett.*, 66, 1, (1979)