

位相制御レーザーパルスを用いた 配向分子選択イオン化

(産総研 計測フロンティア研究部門¹、さきがけ²) ○大村英樹^{1,2}、齋藤 直昭¹

【はじめに】

レーザーのコヒーレントな性質を利用することによって、物性制御や光化学反応制御の可能性を探索するコヒーレント制御または量子制御と呼ばれる研究が近年勢力的に行われている。我々はこれまでに基本波 (800nm) と第二高調波 (400nm) を重ね合わせ、その相対位相差を精密に制御したフェムト秒パルス (130fs , $1 \times 10^{12}\text{W}/\text{cm}^2$) によって気体分子を励起した場合、イオン化された分子の光解離生成物は非常に強い位相依存性を示し、その振る舞いは (頭と尻尾を区別した) 配向分子からの光解離生成物が検出されていると考えれば理解できることを報告してきた [1, 2]。気体分子の配向制御は、分光計測においてランダム配向による情報の平均化を除去できるため応用上非常に重要である。

これまでに、分子の配向方向と永久双極子との相関 [1, 2]、分子の配向方向と最外殻軌道形状 (HOMO 軌道) との相関 [3]、非対称な無極性分子 (1-ブロモ-2-クロロエタン) [4] を対象とした分子配向のコヒーレント制御の実験を行ってきた。その結果、位相制御光の非対称電場と分子の非対称な HOMO 軌道との相互作用によるトンネルイオン化によって引き起こされる配向分子選択効果として説明できることを報告してきた。

一方、基本波と第二高調波から構成される強いレーザーパルス ($10^{12-13}\text{W}/\text{cm}^2$ 程度) によって分子にトルクが発生し、分子の頭と尻尾を区別して分子配向することが理論的に指摘されている。一般に、分子を強いレーザー電場のパルス幅以内で配向させるためには数ピコ秒以上のパルス幅が必要であることが指摘されている。そこで今回は、位相制御パルス幅のパルス幅をフェムト秒からナノ秒に変えて実験を行った結果を報告する [5]。

【実験方法】

励起光には、ナノ秒レーザー (Nd:YAG laser, peak power : $10^{12} \sim 10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ 時間幅 : 10ns、繰り返し : 10Hz) の基本波 (1064nm) とその第二高調波 (532nm) を用いた。第二高調波を非線形光学結晶によって発生させた後、Mach-Zehnder 干渉計にて励起光を基本波と第二高調波に分離する。第二高調波の光路に石英板 (厚さ : 10mm) を挿入することにより位相差を加え、

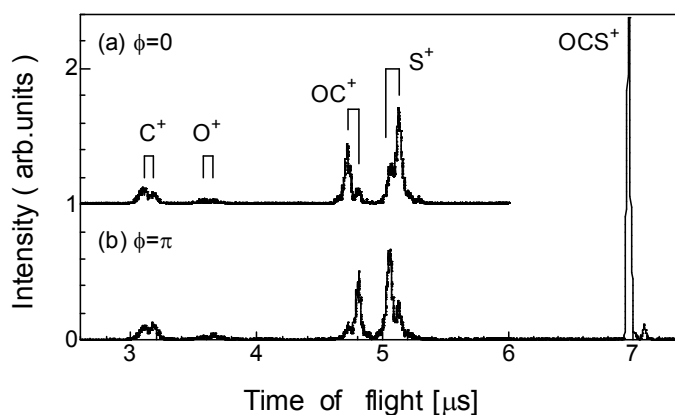


図1

基本波と第二高調波を再び重ね合わせる。石英板を回転させることによって基本波と第二高調波の位相差を 40 アト秒の精度で変化させた。これらのナノ秒位相制御光を、He で希釈した試料分子の超音速分子線に照射して光イオン化を起こし、その光解離生成物を運動量分解飛行時間型質量分析装置にて観測した。

【結果および考察】

ナノ秒位相制御光を照射した時に観測される硫化カルボニル (OCS) の TOF スペクトルを図 1 に示す。強いナノ秒光パルスによって引き起こされる解離性イオン化反応によって、親分子と様々な光解離生成物が観測された。光解離生成物である OC^+ と S^+ は、光解離時における運動量分布を反映したピークの対 (forward peak, backward peak) として観測された。位相差が 0 のときは、 OC^+ の forward peak が大きく観測され、 S^+ は backward peak が大きく観測された。位相差を π にすると、それぞれのイオンの forward peak と backward peak の大きさの関係が反転した。

ナノ秒位相制御光の基本波と第二高調波の相対位相を変化させると、硫化カルボニルの光解離生成物は位相に強く依存する振る舞いを示した。図 2 は光解離生成物である OC^+ と S^+ の forward peak と backward peak の比 (I_f / I_b) を基本波と第二高調波との相対位相差の関数としてプロットしたものである。 OC^+ と S^+ には明瞭な 2π の周期の振動が観

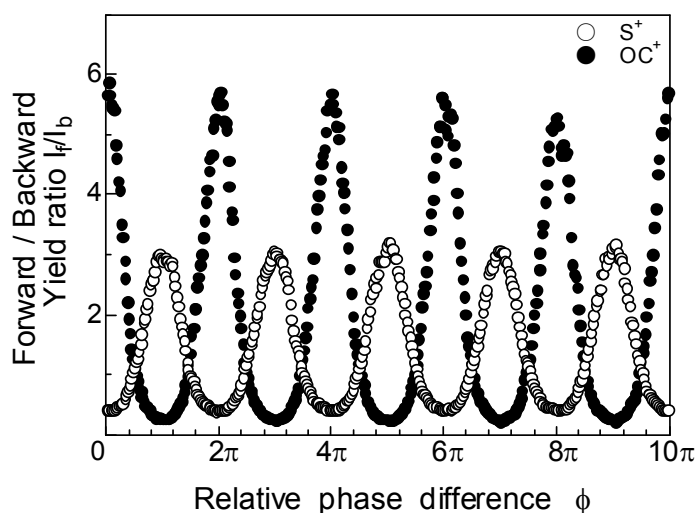


図2

測された。また図 2 に示されるように OC^+ と S^+ がお互いに逆位相であることから、配向した硫化カルボニル分子が選択的にイオン化されて検出されたといえる。

講演では、これらのデータに基づいて配向分子検出のメカニズムを同定し、ナノ位相制御光によって引き起こされた位相に敏感な分子イオン化過程について議論する予定である。

[1] H. Ohmura, T. Nakanaga, and M. Tachiya, Phys. Rev. Lett. **92**, 113002(2004).

[2] H. Ohmura and T. Nakanaga, J. Chem. Phys. **120**, 5176(2004).

[3] H. Ohmura, F. Ito, and M. Tachiya, Phys. Rev. A **74**, 043410(2006).

[4] H. Ohmura, N. Saito, and M. Tachiya, Phys. Rev. Lett. **96**, 173001(2006).

[5] H. Ohmura and M. Tachiya, Phys. Rev. A **77**, 023408(2008).