

位相制御レーザーパルスによる 光トンネルイオン化の量子制御

(産総研 計測フロンティア研究部門) ○大村 英樹、齋藤 直昭

【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 , $10^{12}\text{--}10^{13}\text{W/cm}^2$) 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]、パルス幅を変えた実験 [5] 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。

これまでの実験では、解離性イオン化反応によって生じた光解離生成物の放出方向を測定し、位相に強く依存する非対称な放出方向分布から、イオン化された分子の配向方向について議論してきた。さらにトンネルイオン化によって分子から引き抜かれた光電子は、位相制御レーザーパルスの非対称電場によって HOMO の広がった場所から引き抜かれるため、位相に強く依存する異方的な放出が観測されることが期待される。そこで今回は光電子の放出方向角度分布を 2 次元画像として測定し、位相制御レーザーパルスと非対称 HOMO との相互作用によって引き起こされるトンネルイオン化について議論する。

【実験方法】

励起光には、フェムト秒レーザー (Ti:Sapphire laser, peak power : $10^{13}\text{--}10^{14}\text{ W/cm}^2$ 時間幅 : 10ns、繰り返し : 10Hz) の基本波(800nm)とその第二高調波(400nm)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 : 1mm) を挿入することにより位相差を加え、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。フェムト秒位相制御光を、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、向かい合う 2 個の蛍光板付 MCP を装備した飛行時間型質量分析装置にて光電子と光分解成物生物の放出角度分布の 2 次元画像データを同時に計測した。

【結果および考察】

一酸化炭素 (CO) を対象として実験を行った。強いフェムト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 C^+ と O^+ は、位相制御レーザーパルスの偏向方向に偏ったリング状の放出角度分布が観測された。相対位相差が 0 のときは、 C^+ の右方向放出成分が大きく観測され、 O^+ は左方向放出成分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右方向放出成分と左方向放出成分の大きさの関係が反転した。位相制御フェムト秒パルスの基本波と第二高調波の相対位相差を変化させると、 C^+ と O^+ のそれぞれ (左方向/右方向) 比は明瞭な 2π の周期の振動が観測され、 C^+ と O^+ がお互いに逆位相で変化した。この結果より配向した CO 分子が選択的にイオン化されて検出されていることがわかった。

一酸化炭素 (CO) にフェムト秒位相制御光を照射した時に発生する光電子の放出角度分布の 2 次元画像データを図 1 に示す。光電子の放出角度分布は、光解離生成物と同様に、位相制御レーザーパルスの偏光方向に偏り、トンネルイオン化に特有の広い運動量分布を伴って観測された (多光子イオン化に特有の離散的な運動量分布もわずかに観測された)。図 1 に示されるよ

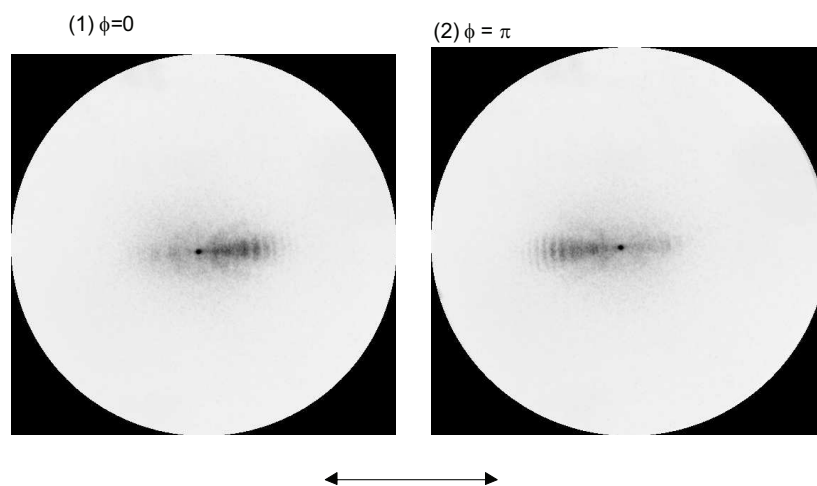


図 光電子の放出角度分布を示す 2 次元画像。矢印は励起光の偏向方向を表す。
(1) $\phi=0$, (2) $\phi=\pi$

うに光電子の放出方向に位相に強く依存する異方性が観測された。相対位相差が 0 のときは、右方向放出成分が大きく観測され、位相差が π のときは、左方向放出成分が大きく観測された。これらは位相制御レーザーパルスの非対称電場によって HOMO の広がった場所から引き抜かれるため、位相に強く依存する異方的な放出が観測されていることを示唆している。講演では、光電子の光解離生成物の同時測定による放出方向角度分布の 2 次元画像データから、トンネルイオン化によって引き抜かれた光電子の量子ダイナミクス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).