

2A01

高強度・短パルスレーザー照射によるエタノール分子の解離性イオン化における円偏光と直線偏光の違い

(¹原子力機構・関西, ²東大院・理)

○赤木 浩¹、乙部 智仁¹、板倉 隆二¹、穂坂 綱一¹、山内 薫^{1,2}、横山 淳¹

【序】 これまで、我々のグループでは、高強度・直線偏光レーザーをエタノール分子に照射して生成するイオンと光電子を同時計測する実験を行ってきた[1]。解離性イオン化に関しては、その結果に基づいて、親イオン ($C_2H_5OH^+$) の電子励起状態へ直接イオン化する過程と、親イオンの電子基底状態へイオン化した後に電子励起する段階的な過程の、2つの過程が競合していることを明らかにした。

一方、円偏光の高強度・短パルスレーザーを分子に照射した場合、イオン化やその後の解離過程が、直線偏光の場合とは大きく異なる可能性がある。本研究では、円偏光レーザー照射におけるエタノール分子のイオン化および解離過程について、直線偏光との違いを明らかにすることを目標とした。幾つかのレーザー強度条件において、主要な生成イオンである親イオン ($C_2H_5OH^+$)、 $C_2H_4OH^+$ 、 CH_2OH^+ および $C_2H_5^+$ イオンと同時に観測される光電子のエネルギースペクトルを計測し、直線偏光照射におけるスペクトルと比較した。その結果、イオン化過程が偏光状態で異なることが明らかになったので報告する。

【実験方法】 電子およびイオン用の位置敏感・時間分析型検出器を備えた真空チャンバー内に、エタノール蒸気をマイクロシリンジを通じて導入した。チタン-サファイア再生増幅器の出力 ($\lambda \sim 790$ nm, $\Delta t \sim 50$ fs) を、 $\lambda/4$ 波長板を通して偏光状態を制御した上で、レンズを用いて真空チャンバー内のエタノール分子に集光して照射した。生成する光電子とイオンを、それぞれ3次元運動量を分解した上で同時計測した。

集光点でのレーザーピーク強度は、越閾イオン化 (Above-Threshold Ionization, ATI) ピークのポンデロモータィブシフトを基にして見積もった。円偏光における2つのレーザーピーク強度 $I_0 = 11$ および 19 TW/cm² 条件での結果を、直線偏光での $I_0 = 8.5$ TW/cm² での結果と比較した。この直線偏光条件のレーザーピーク強度は、円偏光の低レーザーピーク強度条件 ($I_0 = 11$ TW/cm²) とほぼ同じであり、一方、電場ピーク強度 ($E = 8.0 \times 10^9$ V/m) は、円偏光の高レーザーピーク強度条件 ($I_0 = 19$ TW/cm², $E = 8.5 \times 10^9$ V/m) と同程度になっている。

【結果と考察】 Fig. 1(a)および(b)は、円偏光における低レーザーピーク強度 ($I_0 = 11$ TW/cm²) および高レーザーピーク強度 ($I_0 = 19$ TW/cm²) での光電子スペクトルである。いずれの円偏光条件でも、親イオン ($C_2H_5OH^+$) 生成と相関する光電子スペクトルは、 ~ 1.6 eV間隔で連続したATIピーク構造を示す。一方、C-H結合解離イオン ($C_2H_4OH^+$) 生成と相関する光電子は、同様のATI構造を示すが、そのピーク位置は、親イオンのスペクトルに比べて 0.3 eV程度低エネルギー側にシフトしている。これらの挙動は、直線偏光 ($I_0 = 8.5$ TW/cm²) で観測されるスペクトル [Fig. 1(c)] と同様である。直線偏光の実験結果に対しては、イオン化時に電子基底

状態の親イオンが生成し、その親イオンの振動エネルギーが ~ 0.3 eVを上回った場合に限り、C-H結合解離が進行してC-H結合解離イオンが生成する、と解釈した[1]。円偏光条件でも、同様の過程を経て、親イオンおよびC-H結合解離イオンが生成していると考えられる。

C-C結合解離イオン (CH_2OH^+) およびC-O結合解離イオン (C_2H_5^+) の生成と相関する光電子スペクトルでは、円偏光条件では、親イオン ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$) 生成と相関する光電子スペクトルと同様のATIピーク構造を示す [Figs. 1(a) and (b)]。このことは、電子基底状態の親イオンが生成してから電子励起する、段階的過程が起きていることを意味する。一方、直線偏光 [Fig. 1(c)] では、このATI構造は不明瞭で、親イオンの電子励起状態への直接励起に由来する、構造の無い成分が支配的であった。従って、直線偏光から円偏光への変化に伴い、段階的過程の方が有利になることを示している。

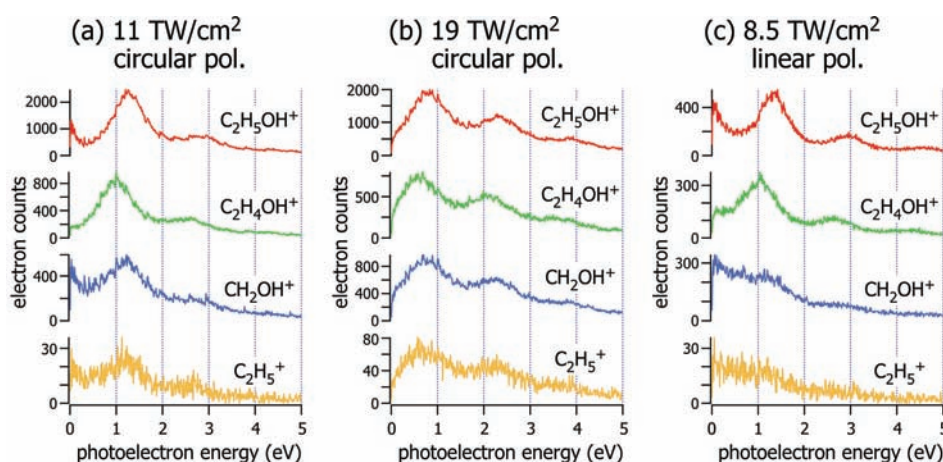


Fig. 1 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$, $\text{C}_2\text{H}_4\text{OH}^+$, CH_2OH^+ および C_2H_5^+ イオン生成と相関する光電子スペクトル。(a)円偏光、レーザーピーク強度 $I_0 = 11$ TW/cm^2 、(b)円偏光、 $I_0 = 19$ TW/cm^2 、および(c)直線偏光、 $I_0 = 8.5$ TW/cm^2 条件での結果。

以上の結果は、円偏光では主に電子基底状態の親イオンが生成する [Fig. 2(a)] が、直線偏光では電子励起状態の親イオンが同時に生成する [Fig. 2(b)] ことを示している。このように、偏光状態を変えたことによって、イオン化によって生じる親イオンの電子状態分布が変化することが明らかとなった。

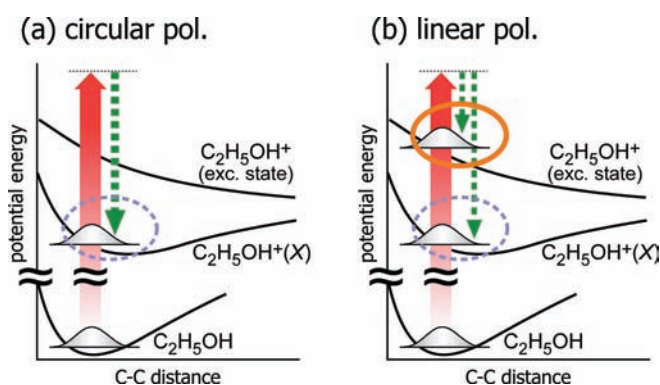


Fig. 2 (a)円偏光および(b)直線偏光におけるイオン化過程の概念図。

【参考文献】

- [1] K. Hosaka, R. Itakura, K. Yokoyama, K. Yamanouchi, and A. Yokoyama, *Chem. Phys. Lett.* **475**, 19 (2009)

2A02

CO₂分子の内殻光電離における解離反跳軸座標系での光電子角度分布

(高エネ機構 物構研 放射光¹・千葉大院 融合²・東北大 多元研³)

○足立純一¹, 風間美里², 宮内直弥¹, 山崎優一³, 藤川高志², 柳下明¹

[序] 気相分子について、標準的な手法により光電子分光実験を行うと、分子の熱的な回転運動のため、回転平均化された情報しか得られない。分子の光電離ダイナミクスをより直接的に理解するためには、空間配向分子からの光電子角度分布測定が望まれる。そのため、空間に配向した分子のアンサンブルを用意するか、あるいは、ある配向の分子からの光電離過程を選択的に測定しなくてはならない。私たちの実験グループは、内殻励起の特徴とコインシデンス計測技術を活かして、空間配向分子を選択的に測定することにより、分子座標系光電子角度分布 (Molecular-Frame Photoelectron Angular Distribution: MF PAD) の測定^[1]を行い、回転運動による平均化を乗り越えて分子・クラスターの光電離ダイナミクスについての研究を行ってきている^[1,2]。それらの知見はまだ充分とは言えず、多様な分子の光電離ダイナミクス^[3]を理解するため、さらに実験・理論的な研究を進める必要がある。

多原子分子では、分子形状は完全な剛体ではないため、分子座標系という考え方は近似的なものである。また、複数の結合軸があるときには、複数の種類の断片化チャンネルが現れる。そのため、コインシデンス計測により分子配向を選択的に測定する手法では、光電離ダイナミクスとその後の解離イオン放出過程を同時に考察することが必要になる^[2,4]。実際のコインシデンス計測で決めているのは、解離イオン放出により張られる軸である。これを、解離反跳軸と呼んでいる。2原子分子の場合には、解離反跳軸を分子軸に対応させることができる。一方、3原子以上の分子では、解離反跳軸に対する光電子角度分布 (Recoil-Frame Photoelectron Angular Distribution: RF-PAD) が測定される。直線多原子分子の場合にも、RF-PAD を仮想的 MF PAD と見なしてよいのか、あるいは、異なるのであればどのような機構を考慮する必要があるのか、検討しなくてはならない^[4]。

ここでは、これまで系統的な測定が行われていなかった光電子の運動エネルギー (KE) が比較的高い $KE > 30$ eV の領域について、CO₂ 分子の内殻 1s 光電離による RF-PAD を測定することにより、光電離ダイナミクスとその後の解離過程について考察したことを発表する。

[実験方法] 軟 X 線領域での高輝度の直線偏光が得られる Photon Factory のアンジュレータビームライン BL2C にて実験を行った。測定には、運動量画像同時計測装置^[5]を用いた。この装置は、2つの位置敏感型検出器を備え、運動量画像条件を作る静電レンズ系を持つ。内殻電離により放出される光電子が電子側検出器により、光イオンはイオン側検出器により記録される。それらの光電子と光イオンとの時間相関と検出器上での位置から、分子解離軸に対する光電子の角度分布を得た。

[結果および考察] 図には、CO₂ 分子の酸素 1s および炭素 1s 光電離過程について得られた、 $e^-O^+-CO^+$ コインシデンス計測による RF-PAD を示している。励起光の電気ベクトル (ϵ) と分子軸とが平行である配置についての結果である。

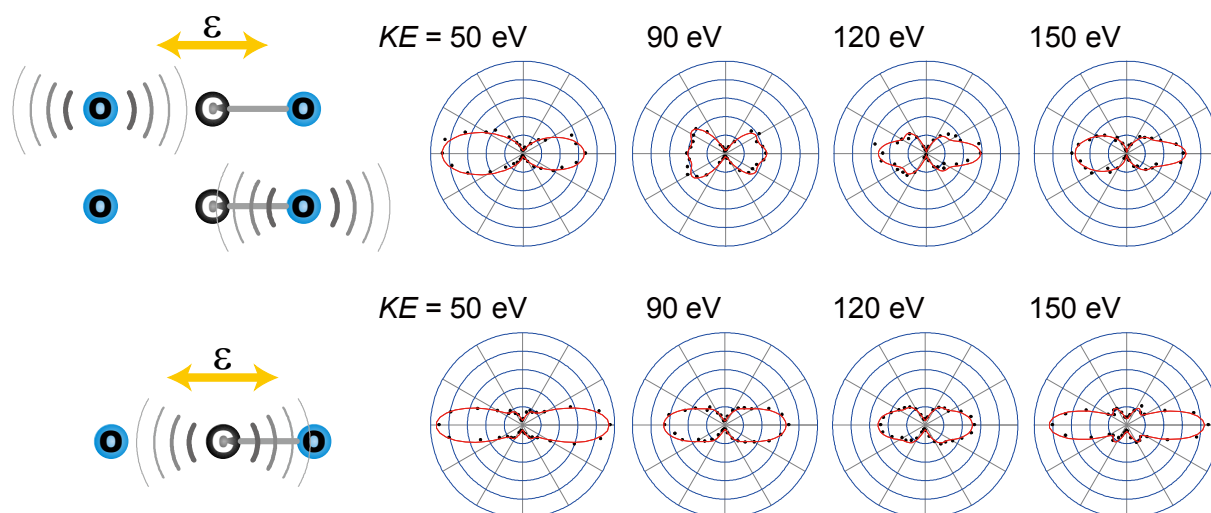


図 CO₂ 分子の 1s 光電離の O⁺-CO⁺ との同時計測による RF-PAD. 平行遷移 (分子軸と励起光の電気ベクトルが平行の配置における光電離) について、上段に酸素 1s 光電離、下段に炭素 1s 光電離の結果を示している。それぞれの測定条件における光電子の運動エネルギーの値は、図中に示している。光電子強度を極座標により示している。点は実験データ、実線は 10 次までの Legendre 多項式を用いてフィッティングした曲線^[1]である。

運動エネルギーが 50 eV 以上の領域においても、酸素 1s 電離過程の RF-PAD は左右非対称であることが確認された^[6]。これは、低運動エネルギー領域^[7]と同様、内殻ホール生成した酸素原子と解離する軸が相関を持つことにより説明される。また、CO 分子の酸素 1s 光電離における MFPAD の結果との比較により、内殻ホールが生成した酸素原子側の結合が優先的に切断されていると、説明する (図中の模式図の上の図に対応させる) ことができる。

炭素 1s 電離過程についても、運動エネルギーに依存して、わずかに左右非対称となることが観測された。このような現象は、低運動エネルギー領域で観測されたことが報告されている^[8]。KE > 30 eV の領域について測定した結果では KE = 120 eV 近傍でその非対称性が強く表れている。炭素 1s 電離後に電子的構造の非対称性は現れないため、酸素 1s 光電離の場合とは異なる機構が働いているはずである。现阶段で推定される機構は、瞬間的には結合軸の長さの違いが生じており、その核配置でつくられる分子ポテンシャルを感じて光電子は飛び出し、その結合長の違いがその後の軸の切断に反映されるため、RF-PAD の非対称性が生じていると考えられる。

[参考文献]

- [1] A. Yagishita, K. Hosaka and J. Adachi, *J. Electron Spectrosc.* **142**, 295 (2005); およびその参考文献.
- [2] A. Yagishita, J. Adachi, and M. Yamazaki, *J. Phys. Conf. Ser.* **212**, 012010 (2010); およびその参考文献.
- [3] T. Suzuki, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **57**, 555 (2006); K. Ueda, *J. Phys.* **B 36**, R1 (2003); J.B. West, in "*Vacuum Ultraviolet Photoionization and Photodissociation of Molecules and Clusters*", edited by C.-Y. Ng (World Scientific, Singapore, 1991); V. McKoy, T.A. Carlson, and R.R. Lucchese, *J. Phys. Chem.* **88**, 3188 (1984) など.
- [4] J. Adachi *et al.*, *J. Phys.* **B 40**, F285 (2007); 足立純一ら, 第 1 回分子科学討論会, 4C03 (2007).
- [5] K. Hosaka, J. Adachi, A. V. Golovin, M. Takahashi, N. Watanabe and A. Yagishita, *Jpn. J. App. Phys.* **45**, 1841 (2006).
- [6] 足立純一ら, 第 25 回化学反応討論会, 1P54 (2009).
- [7] 穂坂綱一, 博士論文 (東京大学, 2005); N. Saito *et al.*, *J. Phys.* **B 38**, L277 (2005).
- [8] S. Miyabe *et al.*, *J. Phys. Conf. Ser.* **194**, 012008 (2009); S. Miyabe *et al.*, *Phys. Rev. A* **79**, 053401 (2009); F.P. Sturm *et al.*, *Phys. Rev. A* **80**, 032506 (2009); X.-J. Liu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 083001 (2008).

2A03 深紫外強レーザー場中原子のシングルショット光電子分光: Ar の多光子 2 重イオン化過程の解明

(分子研¹, 総研大², 理研 XFEL³, 新潟大院・理⁴, 名大院・理⁵, JASRI⁶)

○ 伏谷 瑞穂^{1,2,3}, 彦坂 泰正^{1,2,3,4}, 松田 晃孝^{1,3}, 曾 建銘^{1,3}, 菱川 明栄^{1,2,3,5},
繁政 英治^{1,2,3}, 永園 充³, 登野 健介³, 富樫 格^{3,6}, 大橋 治彦^{3,6}, 木村 洋明^{3,6},
仙波 泰徳⁶, 矢橋 牧名³, 石川 哲也³

【序】近年, 軟 X 線・深紫外域における高強度レーザー場と物質の相互作用が関心をあつめ, 低温高密度プラズマの生成[1], 光スイッチング[2]や生体分子のイメージング[3]等の応用とともに, その物理過程の基礎的理解を目指した原子・分子の非線形ダイナミクスの研究が進められるようになった [4-8]。その結果, 原子・分子の典型的な非線形応答として多光子吸収多重イオン化が起きることが示され, 生成したイオンの収量や運動量の計測に基づいてその機構についての理解が進められて来た[6-8]。本研究では, 深紫外強レーザー場における多光子吸収多重イオン化過程を明らかにするため, イオン化過程において生成した中間状態や終状態を直接反映する光電子の分光計測を行った。特に, ショット毎に光電子スペクトルの計測から決定した FEL 光の波長を非線形過程に由来する信号と同時にモニターすることで, 多光子吸収多重イオン化における共鳴の効果を明らかにすることを目指した。

【実験】 理化学研究所播磨研究所 SCSS 試験加速器より得られた深紫外域自由電子レーザー (FEL) 光 (~21 eV, 30 μ J, ~100 fs, 20 Hz) を楕円ミラーおよび円筒ミラーからなる前置集光系を用いて相互作用領域に集光した。スポットサイズの直径は約 25 μ m であり, FEL 光の強度は ~5 TW/cm² と見積もられた。FEL 光の強度はビームライン上流に設置された Ar ガスアッテネーターを用いて制御・計測した。この FEL 光は自己増幅自発放射 (SASE) 方式により発振しているため, そのエネルギースペクトルにはショット毎の揺らぎがある。このショット毎のスペクトル揺らぎを光電子ピークの揺らぎとして検出するため, 磁気ボトル型光電子分光器を用いたシングルショット計測を行った。イオン化により発生した光電子は永久磁石によって形成された磁気ミラーおよびソレノイドによる誘導磁場により全立体角に渡る高い捕集効率で検出器側へと導かれる。このため, 試料ガスの圧力を低く抑えることができ (10^{-8} Torr), スペクトルゆがみの原因となる空間電荷効果の影響を抑制できた。また, 長さ約 1.5m の飛行管を用いることで, エネルギー分解能の向上を図った ($E/\Delta E = 20$)。光電子のエネルギー校正は FEL 光 (24.4eV) の 3 倍波 (73.2eV) によって放出される Xe のオージェ電子スペクトルを用いて行った。

【結果と考察】 波長 58.0 nm (21.4 eV) の FEL 光照射における Ar の光電子スペクトルを図1に示す。5.6 eV に観測されたピークはエネルギー保存則より 1 光子吸収による 1 価 Ar イオン状態に起因する光電子 ($\text{Ar}^+ 3p^{-1}$) と帰属した。このピークの他に, 10~16 eV のエネルギー領域に 3 本の光電子ピークが観測された。これらのピーク強度は FEL の光強度に対し非線形な振る舞いを示した。この FEL 強度依存の解析の結果, これらの光電子ピークは 1 価 Ar イオン状態が生成した後に 2 光子吸収に

よって2価 Ar イオン状態 ($\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$) が生成する多段階的3光子2重イオン化によるものと帰属した (図1): (i) $\text{Ar} + h\nu \rightarrow \text{Ar}^+ + e^-$, (ii) $\text{Ar}^+ + 2h\nu \rightarrow \text{Ar}^{2+} + e^-$. これら3本のピークはそれぞれ2価 Ar イオンの異なる終状態 (1S , 1D , 3P) に対応している。図2に $\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$ ピークの FEL 波長依存性 (21.0~21.4 eV) を示す。FEL 波長は $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ の光電子ピークをショット毎に測定することで決定した。各々のピークは光子エネルギーが高くなるにつれ、ピーク強度が増大している。このことは、2価 Ar イオンの生成過程において1価 Ar イオンの励起状態への共鳴が重要であることを明瞭に示している [9]。

【参考文献】

- [1] Nagler, *et al.*, Nat. Phys. **5**, 693 (2009).
- [2] Yoneda, *et al.*, Opt. Exp. **17**, 23443 (2009).
- [3] Neutze, *et al.*, Nature **406**, 752 (2000).
- [4] Nagasono, *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 051406(R) (2007).
- [5] Sorokin, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 213002 (2007).
- [6] Moshhammer, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 203001 (2007).
- [7] Sato, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 154103 (2008).
- [8] Motomura, *et al.*, J. Phys. B **42**, 221003 (2009).
- [9] Hikosaka, *et al.*, submitted.

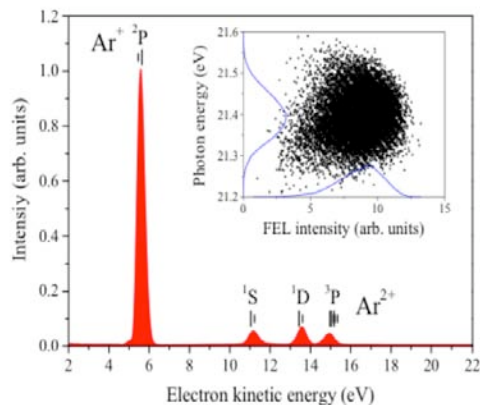


図1 FEL 光 ($h\nu = 21.4\text{eV}$) 照射によって観測された Ar の光電子スペクトル (積算 15000 ショット)。Ar の1光子イオン化による光電子ピーク ($\text{Ar}^+ 3p^{-1}$) の他に Ar^+ の2光子イオン化に起因する3本の光電子ピーク ($\text{Ar}^{2+} 3p^{-2}$) が観測された。(挿入図) シングルショット毎に $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ ピークから求めた FEL の平均光子エネルギーと FEL 強度との相関プロット。

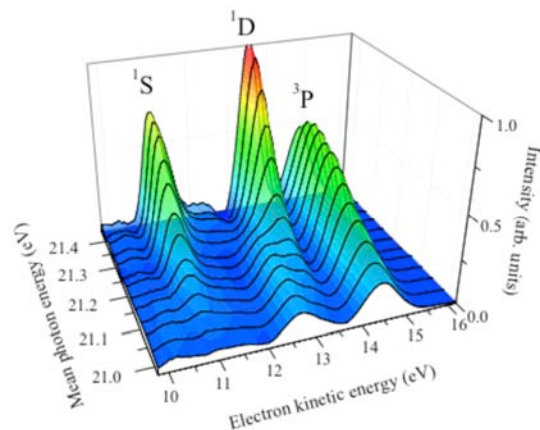


図2 シングルショット計測による Ar^{2+} 光電子ピークの FEL 波長依存性。平均光子エネルギーは3つの FEL の光子エネルギーの設定 (21.0eV, 21.2eV および 21.4eV) で測定した $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ ピークより決定した。ショット毎のスペクトルを平均光子エネルギーに対してソートし、30 meV の光子エネルギー範囲で積分した光電子スペクトルをプロットしている。

2A04

強レーザー場中 Xe 2 重イオン化における電子運動エネルギー相関
(分子研¹, 総研大², 新潟大³, オックスフォード大⁴, 名大院理⁵) ○松田晃孝¹, Tseng,
Chien-Ming¹, 伏谷瑞穂^{1,2}, 彦坂泰正³, Eland, John H. D.⁴, 菱川明栄^{1,2,5}

【序】 強レーザー場にさらされた原子は光との強い相互作用により複数の電子を放出する。特に強レーザー場中原子の非段階的 2 重イオン化過程はこれまで生成イオンの収量変化[1], 放出 2 電子の運動量相関[2]に基づいて数多く研究され, 電子再衝突過程がその起源となることが示されてきた。光電子スペクトルはイオン化ダイナミクスを直接反映するため, 非共鳴レーザー場と原子の相互作用を解明する上で重要な手がかりを与えるが, 一般に強レーザー場中においては複数のイオン化経路が存在するため, その詳細な理解には各々の経路を区別して光電子スペクトルを観測する必要がある[3-5]。本研究では高いエネルギー分解能を持つ磁気ボトル型光電子分光器を用いた新しい電子-電子-イオン同時計測手法を開発し, 電子のエネルギー相関計測から強レーザー場中における Xe の 2 重イオン化過程におけるダイナミクスを明らかにすることを目指した。

【実験】 Yb:KGW 再生増幅器(Pharos-4W, Light Conversion Ltd.)からのレーザー出力(1030 nm, 280 fs, 50 kHz)を凹面アルミミラー ($f=75\text{mm}$)を用いて超高真空内に導入された Xe に集光した($3.0\times 10^{13}\text{ W/cm}^2$)。相互作用領域で生成した電子は, 永久磁石およびソレノイドからなる磁場により長さ 1.5 m の飛行管の終端に設置された MCP 検出器へと導いた。一方, レーザー照射後 2 μs の時間遅延の後に+4.0 および+2.7 kV のパルス電圧(立ち上がり 20 ns, パルス幅 20 μs)を永久磁石およびイオン引き出し電極板に印可することで, 生成したイオンを同じ MCP に導き検出した。レーザーパルスあたりのイオン化事象は 0.01 以下となる条件で測定を行うことで, Xe の 2 重イオン化, $\text{Xe}\rightarrow\text{Xe}^{2+}+e^{-}+e^{-}$, における電子-電子-イオン同時検出時の偽コインシデンスを 5%未満に抑えた。また, 相互作用領域におけるレーザー場強度の校正は Xe^{+} への越閾イオン化光電子スペクトルを測定することにより行った。

【結果と考察】 レーザー場強度 $3.0\times 10^{13}\text{ W/cm}^2$ において Xe^{2+} とコインシデンス検出された 2 つの光電子の運動エネルギーの相関および全解離運動エネルギースペクトルをそれぞれ図 1(a)および図 1(c)に示す。運動エネルギー相関図には $(x, y) = (1.8\text{ eV}, 1.8\text{ eV})$ をピークに扇状に広がった分布に加えて, 対角線に直交した成分が観測された。扇状に広がった分布は, 生成された 2 つの光電子に相関がないと仮定して行ったシミュレーション(図 1(b))によって良く再現できることから, 段階的 2 重イオン化に起因することが分かった。一方, 対角線に直交した成分は, 2 つの電子の間でエネルギーが分配される非段階的 2 重イオン化に起因し, そ

の全解離運動エネルギースペクトルには約 1.2 eV 間隔の鋭いピークが観測される(図 1(c)). 用いたレーザー場における電子再衝突エネルギーの最大値は $3.2U_p = 9.6$ eV であり Xe^+ から Xe^{2+} へのイオン化エネルギー(21 eV)に満たないことから, 本研究によって電子再衝突過程に由来しない非段階的 2 重イオン化過程の存在が初めて明らかになった.

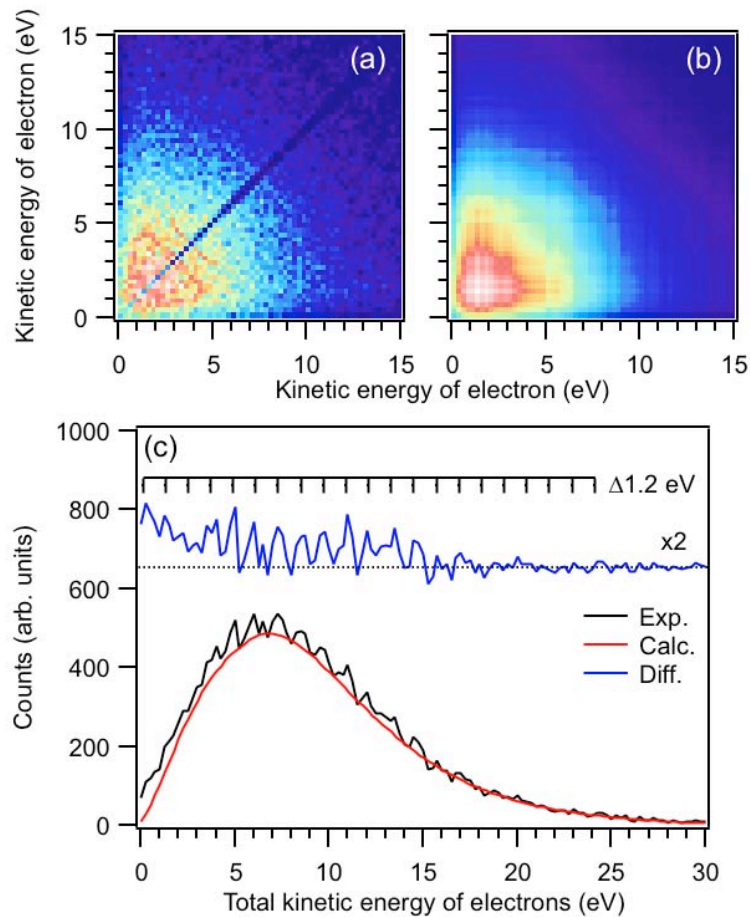


図 1: レーザー場強度 3.0×10^{13} W/cm² における Xe 2 重イオン化の光電子スペクトル. (a) Xe^{2+} とコインシデンス検出された 2 つの光電子の運動エネルギー相関図. 対角線の成分の欠如は検出器の不感時間による. (b) 放出された 2 つの光電子に相関がないと仮定したシミュレーションにより得られた光電子対の運動エネルギー相関図. (c) 放出された光電子の全解離運動エネルギースペクトル. 青線は差スペクトルを示す.

- [1] B. Walker *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1227 (1994).
- [2] Y. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 053001 (2008).
- [3] H. Rottke *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 013001 (2002).
- [4] T. Hatamoto *et al.*, Phys. Rev. A **75**, 061402 (2007).
- [5] A. Matsuda *et al.*, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **169**, 97 (2009).

NeAr ヘテロダイマーにおけるオーজে緩和後の ICD 過程

○坂井 健太郎¹, 大内 孝雄¹, 樋口 格², 福澤 宏宣¹, Liu XiaoJing¹, 奥西 みさき¹,
上田 潔¹, 岩山 洋士³, 永谷 清信³, 八尾 誠³, Zhang Dongdong⁴, Ding Dajun⁴,
Schoeffler Markus⁵, Mazza Tommaso⁶, 為則 雄祐², 齋藤 則生⁷

¹東北大・多元研, ²JASRI, ³京大院・理, ⁴Jilin Univ., ⁵LBNL, ⁶Milan Univ., ⁷産総研・計測標準

原子に軟 X 線を照射して内殻光イオン化させるとオーজে緩和が起き、2 価のイオンが生成される。この時このイオンが電子放出による脱励起がエネルギー的に不可能な励起状態にあり、かつ周囲に原子が存在していた場合、隣接原子から電子が放出されて電子緩和する「原子間クーロン脱励起 (Interatomic Coulombic decay, ICD)」が起きることがある[1]。我々は希ガスクラスタにおけるこれら一連の過程を研究している。本研究では NeAr ヘテロダイマーに焦点を当てた。

実験は SPring-8 の軟 X 線光化学ビームライン BL27SU で行われた。用いた直線偏光軟 X 線の光子エネルギーは、Ar 2p イオン化ポテンシャルおよび Ne 1s イオン化ポテンシャルよりも約 19 eV 高い 268 eV および 889 eV とした。NeAr ヘテロダイマーは超音速分子線として、約 100 K まで冷やした孔径 80 μm のピンホールを持つノズルにより生成・導入され、軟 X 線と垂直に交わる。放出される電子およびイオンの 3 次元運動量を、2 次元検出器を備えた 2 台の飛行時間型運動量分光計により測定した。電場と磁場により全立体角に放出される電子とイオンを検出することが可能である。電子とイオンの検出位置と検出時間から、それぞれの 3 次元運動量が求まる。電子とイオンのエネルギー、およびそれらの相関から、内殻光イオン化された NeAr ヘテロダイマーが電子緩和で迎った反応経路を特定した。

図 1 に光子エネルギー $h\nu = 889$ eV での $\text{Ne}^{2+}\text{-Ar}^+$ イオン対生成における電子エネルギーとイオンの運動エネルギーの和 (Kinetic Energy Release; KER) の相関図を示す。図中の傾き -1 の直線は、Demekhin らにより理論的に予測された KLL オーজে緩和後の ICD 過程に対応する[2]。(a) $\text{Ne}^{2+}(2s^{-1}2p^{-1}3P)\text{-Ar} \rightarrow \text{Ne}^{2+}(2p^{-2}3P)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ 、(b) $\text{Ne}^{2+}(2s^{-1}2p^{-1}1P)\text{-Ar} \rightarrow \text{Ne}^{2+}(2p^{-2}1D)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ 、(c) $\text{Ne}^{2+}(2s^{-1}2p^{-1}1P)\text{-Ar} \rightarrow \text{Ne}^{2+}(2p^{-2}1S)\text{-Ar}^+(3p^{-1})$ 。それぞれのチャンネルを図 2 のエネルギーレベルダイアグラムで示した。図 3 に $h\nu = 268$ eV における $\text{Ar}^{2+}\text{-Ne}^+$ イオン対生成に対する KER 分布を示す。KER 分布と $\text{Ar}^{2+}\text{-Ne}^+$ のポテンシャルエネルギーから、関与する Ar 2p オーজে終状態を予測し、これらの生成比[3]を用いてフィッティングを行った (青線)。結果は測定された KER 分布を良く再現できる。観測された 4 つのチャンネルを同定し、図 4 のエネルギーダイアグラムで示した。(1) $\text{Ar}^{2+}(3p^{-3}2D)4d^3D,3P\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}3P)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 、(2) $\text{Ar}^{2+}(3s^{-2})\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}3P)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 、(3) $\text{Ar}^{2+}(3p^{-3}2P)3d^1P\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}3P)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 、(4) $\text{Ar}^{2+}(3s^{-2})\text{-Ne} \rightarrow \text{Ar}^{2+}(3p^{-2}1D)\text{-Ne}^+(2p^{-1})$ 。チャンネル(2)と(4)には 3 つの電子が関与しており、このような 3 電子 ICD 過程は本研究により初めて観測されたものである。

参考文献

- [1] R. Santra and L. S. Cederbaum, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 153401 (2003).
[2] Ph. V. Demekhin, *et al.*, *J. Chem. Phys.* **131**, 104303 (2009).
[3] H. Pulkkinen *et al.*, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, 3033 (1996).

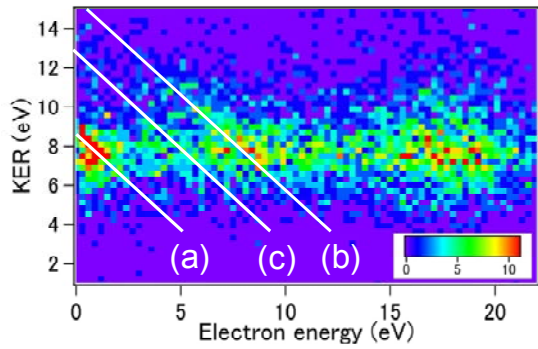


図 1

NeAr を Ne 1s 内殻光イオン化させ $\text{Ne}^{2+}\text{-Ar}^+$ が生成された時に放出された電子のエネルギーと放出されたイオンの運動エネルギーの和 (KER) の相関図

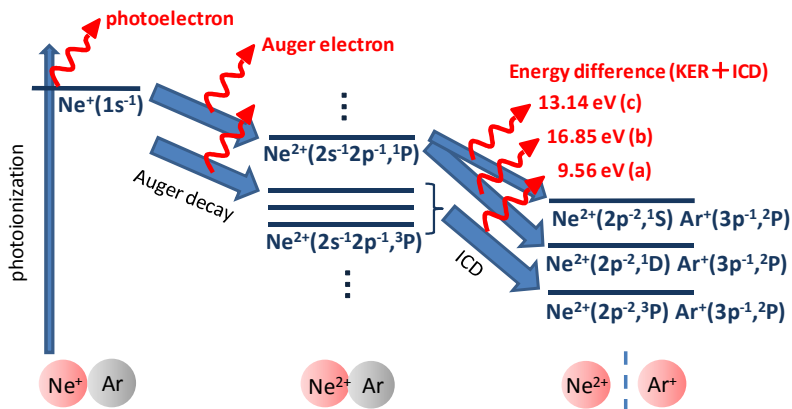


図 2

Ne 1s 内殻光イオン化およびその後の緩和過程に参与した NeAr のエネルギーレベルダイアグラム

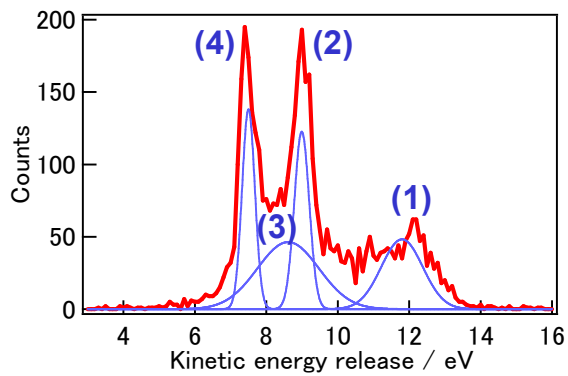


図 3

NeAr を Ar 2p 内殻光イオン化させ $\text{Ar}^{2+}\text{-Ne}^+$ が生成された時の KER 分布

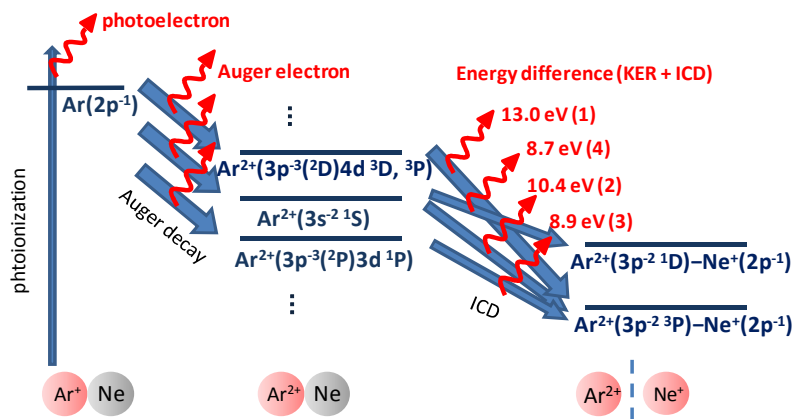


図 4

Ar 2p 内殻光イオン化およびその後の緩和過程に参与した NeAr のエネルギーレベルダイアグラム

強光子場中での O_2 および CO_2 分子の角度分解再散乱 電子スペクトル

(¹ 東北大・多元研、² 早稲田大・理工、³ さきがけ、⁴ 電通大・量子物質、
^{1,5} テキサス A&M 大・化学)

○ 奥西みさき¹、新倉弘倫^{1,2,3}、森下亨^{3,4}、Robert Lucchese^{1,5}、上田潔¹

[序] 気相中の原子・分子に高強度レーザーパルス照射するとイオン化を起し電子が放出される。放出された電子の一部は振動するレーザー電場の折り返しに伴いその向きを変え、電子を放出した親イオンに再衝突をする。再衝突電子が親イオンと弾性衝突すると高いエネルギーを持つ再散乱電子が放出され、再散乱電子スペクトルが観測される。後方弾性散乱電子は再衝突後にレーザー電場の加速により最大約 $10U_p$ という高いエネルギーを持つことが知られている。ここで U_p はレーザー電場中での自由電子が得る運動エネルギーの平均でポンデロモティブエネルギーと呼ばれる。電子の再衝突現象はレーザー電場の 1 光学サイクル (800nm のレーザー光で約 2.7fs) 未満で起こる超高速現象であることから、高エネルギー再散乱スペクトルや、再衝突電子の再結合過程によって引き起こされる高エネルギー高次高調波 (High Harmonic Generation : HHG) 発生による HHG スペクトルを用いた原子・分子の超高速イメージングの可能性が従来から指摘されてきた。

最近、森下ら⁽¹⁾は H 原子と Ar 原子について時間依存シュレディンガー方程式 (TDSE) の数値計算により求めた光電子スペクトルの解析から、最も高い衝突エネルギー ($=3.17U_p$) でイオンに弾性衝突し後方散乱された電子の微分散乱断面積を見積ることが出来ることを示した。更に Chen ら⁽²⁾はこの研究をより小さな衝突エネルギーでの後方再散乱電子に拡張することでより広いエネルギー範囲で電子の微分散乱断面積を見積れることを、TDSE の数値計算により示した。本研究では、 O_2 分子および CO_2 分子の高エネルギー再散乱電子スペクトルを測定し、森下らおよび Chen らの方法で実験的に抽出した電子・イオン微分散乱断面積を、数値計算によって求めた微分散乱断面積と比較した。より広い範囲の衝突運動量での散乱過程を観測するために、 $7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ から $1.2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ のレーザー強度でスペクトルを測定した。

[実験] 波長 800nm パルス幅 100fs、または波長 785nm パルス幅 35fs および 10fs、繰り返し周波数 1kHz の直線偏光したレーザーパルスを $\lambda/2$ 波長板を用いて偏光方向を回転させながら、超高真空槽中に導入した分子に $f=60$ のレンズ、または $f=100 \text{ mm}$ のミラーで集光し、ターゲット分子をイオン化した。放出された電子を飛行時間型電子エネルギー分析器を用いて検出し、光電子の運動量スペクトルを測定した。 $\lambda/2$ 波長板を一定のスピードで繰り返し回転させることでエネルギースペクトルの角度分布を精度良く測定することが出来た。

[結果と考察] 図 1 に様々なレーザー強度で測定した O_2 分子の再散乱電子の 2 次元運動量分布スペクトルを示す。ここで赤線で示した半円上の電子強度分布が運動量 (p) での電子・イオン弾性

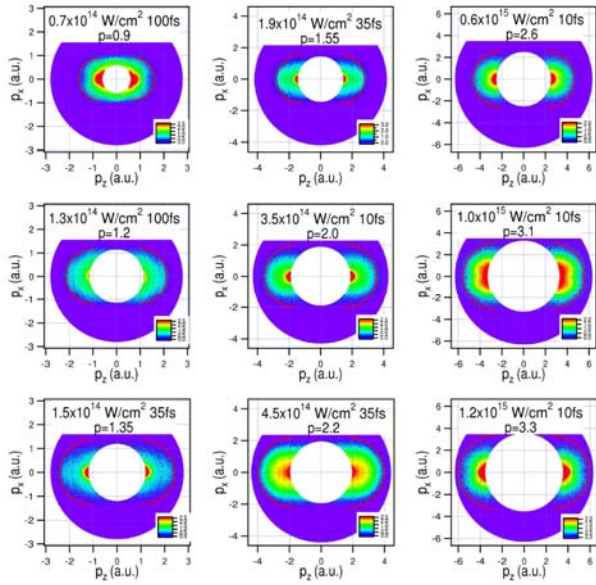


図1 様々なレーザー強度で測定した O_2 分子の2次元運動量分布スペクトル。ここでレーザーの偏光方向が z 軸方向であり、運動量 p は原子単位系での衝突運動量である。

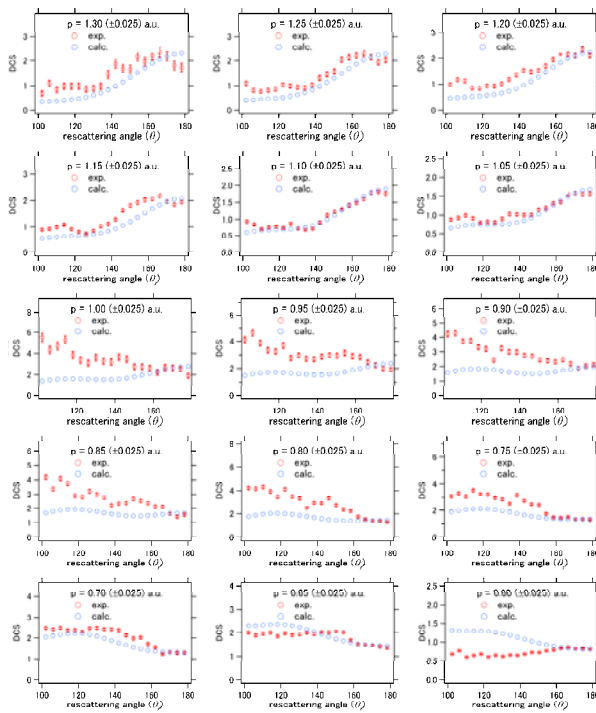


図2 再散乱電子の2次元電子運動量分布から見積もった電子・イオン微分弾性散乱断面積の数値計算との比較。ここで、計算においてイオン化確率のレーザー偏光方向の分子軸に対する依存性は、MO-ADK 理論に基づく計算値を用いた。また、実験値は 170° での計算値で規格化した。

衝突による微分散乱断面積に相当する。レーザー強度の変化に伴い、電子運動量分布が変化していく様子が見られる。これらのスペクトルから抽出した異なる衝突運動量 p での微分弾性散乱断面積の一例を、数値計算によって得られた(自由)電子とイオンの微分散乱断面積と比較して図2に示す。この図の断面積は、最も弱いレーザー強度で測定した2つのスペクトルから求めたものである。この領域で運動量 p が小さな値の時に後方散乱方向(180度方向)への断面積に窪みが観測され、側方への成分が相対的に強くなるのに対して、運動量が増加すると後方散乱成分が強くなり、側方成分が弱くなる傾向を計算でも再現することが出来る。この傾向は定性的には次のように説明することが出来る。 O_2 分子はレーザー光の偏光方向に対して分子軸が約45度方向を向いたときにイオン化の確率が極大を持ち0度または90度方向に近づくにつれ急激に減少する。そこで、45度方向からレーザーの偏光方向に沿って入射する電子の後方再散乱を考えると、これは2つのO原子からの散乱電子波の重ね合わせで表現することができ、衝突運動量 p の値の変化に応じて電子波の相殺的干渉と相加的干渉が交互に現れる。従って、後方散乱に窪みが観測される p が小さい値の領域は相殺的干渉が支配的なのに対して、 p が増加するにつれて相加的干渉の領域に変化する様子がスペクトルに観測されていると考えられる。

O_2 分子および CO_2 分子の広い衝突運動量領域 ($O_2: 0.6 < p < 3.3$, $CO_2: 1.0 < p < 3.3$ a.u.) で同様の比較を行ったところ、実験値と計算値の間はかなり良い一致が見られた。

[参考文献] (1) T. Morishita, A-T. Le, Z. Chen, and C. D. Lin, *Phys. Rev. Lett.* 100, 013903 (2008). (2) Z. Chen, A-T. Le, T. Morishita, and C. D. Lin, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 42, 061001 (2009). (3) M. Okunishi, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 103, 043001 (2009)

強レーザー場による反応制御における量子ダイナミクス

(北大電子研) ○河合 信之輔, 小松崎 民樹

【序】近年のレーザー技術と最適化アルゴリズムの発展により、レーザーパルス形をうまく設計して化学反応を制御することが可能になってきた。望みの生成物を与えるよう最適化されたレーザーパルスは多くが複雑な形をしているが、本研究ではそれがなぜ反応を促進するのかを理解するため、最近特に遷移状態理論の文脈から研究が進められている力学系理論の手法を用いてレーザー場中の反応ダイナミクスを解析する。任意の時間依存性を持つ外場の効果と系の非線形性および量子効果を全て取り込んだ理論により、反応の進行に対するこれらの効果を議論する。

多くの化学反応のポテンシャル面には、反応物領域と生成物領域の間に鞍点が存在し、反応の障壁として働いている。反応が起こるか否かは、第一にはこの鞍点近傍において障壁を超えることができるかどうかによって決定される。以下では、鞍点付近のダイナミクスを(1)外場無し・調和近似・古典力学の場合、(2)量子効果を入れた場合、(3)さらに外場及び非調和性の影響を考慮した場合の3段階に分けて説明する。

【外場無し・調和近似の下での古典力学】

外場が無く、モード間の非線形相互作用も無視できる場合には、基準振動座標(q_1, q_2, \dots)と共役運動量(p_1, p_2, \dots)およびポテンシャルの曲率 λ^2, ω_ℓ^2 を用いてハミルトニアンは

$H = H_{\text{harmonic}} = \frac{1}{2} p_1^2 - \frac{1}{2} \lambda^2 q_1^2 + \sum_{\ell \geq 2} \left(\frac{1}{2} p_\ell^2 + \frac{1}{2} \omega_\ell^2 q_\ell^2 \right)$ と近似できる。相互作用が無いので

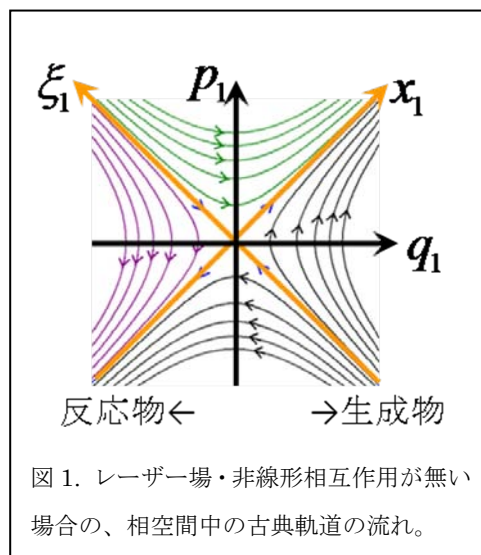
「反応座標方向のエネルギー」 $\frac{1}{2} p_1^2 - \frac{1}{2} \lambda^2 q_1^2$ が保存量となり、古典的には軌道は図1のような双曲線を描く。図の上部が、エネルギーが十分高く反応障壁を超えて反応物側から生成物側に至る軌道に対応する。漸近線に沿った斜め方向の座標

$x_1 = (\lambda q_1 + p_1) / \sqrt{2}$ と $\xi_1 = (p_1 - \lambda q_1) / \sqrt{2}$ を導入すると、初期条件で $x_1 > 0$ であれば時刻 $t \rightarrow +\infty$ で生成物側に、 $x_1 < 0$ であれば反応物側に行く事が分かり、 $x_1 = 0$ が反応の境界を与える。

【量子力学】

量子力学的には、系の波動関数 ψ に対応する Wigner 分布 $\rho_w(\mathbf{q}, \mathbf{p})$ を用いて相空間積分

$\int \rho_w(\mathbf{q}, \mathbf{p}) \Theta(x_1) d\mathbf{q} d\mathbf{p}$ によって反応確率を与えられる。ここで $\Theta(x_1)$ は Heaviside のステップ関数で $x_1 > 0$ のときに1、 $x_1 < 0$ で0である。古典力学との違いは、1本の軌道を考えることがで



きず相空間に広がった分布 $\rho_w(\mathbf{q}, \mathbf{p})$ として扱う必要がある事だが、「 $x_1 > 0$ の領域が生成物に至る」という点については古典力学と全く同じである[1]。

【レーザー場と非調和性の影響】

レーザー場および非線形相互作用の効果を考慮すると、ハミルトニアンは

$$H = H_{\text{harmonic}} + \sum_m a_m q_1^{m_1} q_2^{m_2} \cdots q_n^{m_n} + \mathcal{E}(t)\mu(\mathbf{q}) + \mathcal{E}(t)^2 \alpha(\mathbf{q}) + \cdots$$

のような形になる。展開係数 a_m はポテンシャルの高次項から来るもので、 $\mathcal{E}(t)$ は電場、 $\mu(\mathbf{q})$ と $\alpha(\mathbf{q})$

はそれぞれ双極子と分極率である。この場合、モード間の相互作用の存在により $\frac{1}{2}p_1^2 - \frac{1}{2}\lambda^2 q_1^2$

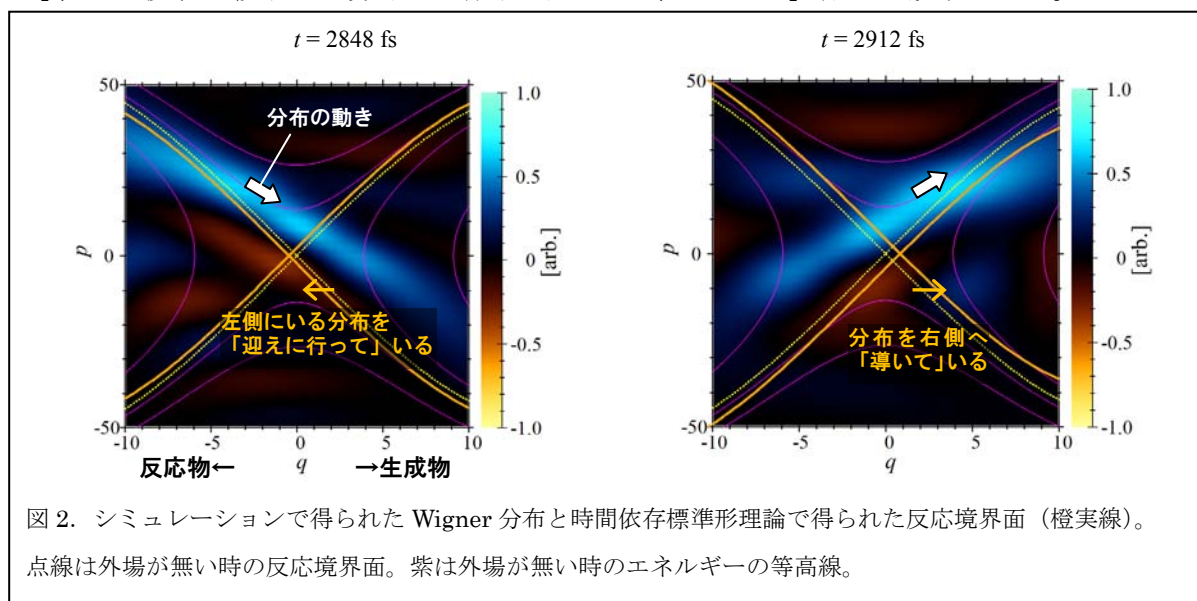
はもはや保存量ではない。本研究では量子標準形理論[2]と呼ばれる理論を時間依存の系に拡張する[3]ことにより、特別な時間依存ユニタリ変換 \hat{U} を構成し、 $\hat{U}\left(\frac{1}{2}\hat{p}_1^2 - \frac{1}{2}\lambda^2\hat{q}_1^2\right)\hat{U}^\dagger$ が

ハミルトニアンと可換になるようにする。このとき \hat{H} の固有状態と $\hat{U}\left(\frac{1}{2}\hat{p}_1^2 - \frac{1}{2}\lambda^2\hat{q}_1^2\right)\hat{U}^\dagger$ の

固有状態が同じになるので、解析を上記の調和近似の場合と同様にすることができる。 $\Theta(x_1)$ を \hat{U} の逆変換で戻せばハミルトニアン \hat{H} に対する反応境界が得られる。

【計算例】

計算例として、ポテンシャルが4次多項式で表される1自由度の系について、レーザー場の最適化計算と、標準形理論の計算を行った。得られたレーザー場の下で時間発展させた波動関数のWigner分布のスナップショットと、標準形理論で得られた反応境界とを重ねたものを図2に示す。分布が左（反応物側）にあるとき反応境界が左に移動して分布を「迎えに行き」、その後右に移動して分布を生成物側へと「導いている」様子が観察される。



[1] N. L. Balazs and A. Voros, *Annal. Phys.*, **199**, 123-140 (1990)

[2] Waalkens *et al.*, *Nonlinearity*, **21**, R1-R118 (2008)

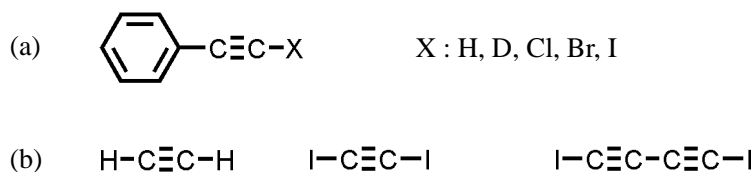
[3] Kawai *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **126**, 164306 (2007)

アセチレン系剛直鎖分子のクーロン爆発における重原子効果

(阪市大院理¹, JST さきがけ²) ○三ツ林 尚哉¹, 八ッ橋 知幸^{1,2}, 中島 信昭¹

【序言】我々は主に有機分子を対象に、気相における高強度フェムト秒レーザー照射によるイオンの生成機構と、生じたイオンの解離機構について研究を進めてきた。¹⁾ 集光強度 10^{15} Wcm^{-2} 程度のレーザーを分子に照射すると、分子は多価イオン化した後にクーロン反発により解離（クーロン爆発）し、分子イオンと共に多価に荷電した分裂イオンが生成する。例えば C^{4+} 、 Si^{4+} 、 Cl^{4+} 、 Br^{5+} 、そして I^{6+} などである。これらのイオンは多価になるほどレーザーの偏光方向に放出されるが、重原子によるイオン放出方向の制御の検討例は少なく、また平面的、立体的に広がった分子を用いており、厳密な議論はなされていない。

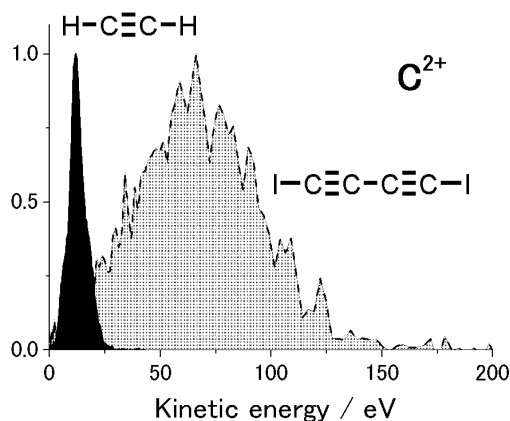
我々は剛直な三重結合を有するフェニルアセチレン(Scheme 1, (a))を用い、イオンの放出が分子構造に大きく依存していることを見出した。三重結合に由来する解離イオンはレーザーの偏光方向に多く放出され、水素、重水素イオンの運動エネルギーは平均 35 eV、最大 80 eV であった。²⁾ 末端原子の詳細な評価は行うことができ、他のフラグメントイオン、特にクーロン爆発による炭素の放出方向および運動エネルギーの評価は分子内での位置の違う炭素からの寄与を含むため困難であった。Cornaggia³⁾ らは 2 原子分子などの直線分子やアセチレンにおけるクーロン爆発について報告している。本研究では剛直な三重結合を有するアセチレン、ジヨードアセチレン、ジヨードジアセチレン (Scheme 1, (b)) を用い、生じた多価イオン放出の異方性およびその運動エネルギーに及ぼす末端原子の効果を検討した。



Scheme 1

【実験】イオン化は Ti:Sapphire フェムト秒レーザー (800 nm, 30 fs, 15 mJ, 100 Hz) を用い、レンズで集光して行った。試料は既報に従い合成し、真空槽に導入した。イオンの飛行軸に対するレーザーの偏光方向はイオン化チャンバー導入前に半波長板によって変化させた。イオンの検出、観測には飛行時間型質量分析計を用いた。集光強度はキセノンの飽和イオン強度を指標として決定した。

【結果】今回観測された H^+ 、 $\text{C}^{m+}(m=1-3)$ 、 $\text{I}^{n+}(n=2-6)$ のピークは分裂して観測された。クーロン爆発によりイオンが飛行軸に対して前後に放出されることによるものである。この分裂から運動エネルギーを見積もることができる。図 1 にレーザーの偏光方向をイオンの飛行軸に対して平行にしたときのアセチレン及びジヨードジアセチレンから放出された C^{2+} の運動エネルギーのスペクトルを示した。同一のレーザー強度及び相対偏光でイオン化を行っているにもかかわらず、運動エネルギーのピーク値に大きな差が生じた。 C^{3+} の運動エネルギーのピーク値はそれぞれ 18 eV (アセチレン)、130 eV (ジヨードジアセチレン) であった。図 2 にはレーザーの偏光方向を



イオンの飛行軸に対して $0-360^\circ$ に変化させたとき、アセチレン及びジヨードジアセチレンから生じる C^+ 放出の角度分布を示した ($0, 180^\circ$: 平行、 $90, 270^\circ$: 直交)。アセチレンではレーザーの偏光方向に対し平行方向に、ジヨードジアセチレンの場合は垂直方向により多く放出していることが分かる。

図1 アセチレン及びジヨードジアセチレンから放出された C^{2+} の運動エネルギースペクトル

$1.5 \times 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$ 、レーザーの偏光方向はイオンの飛行方向に対して平行

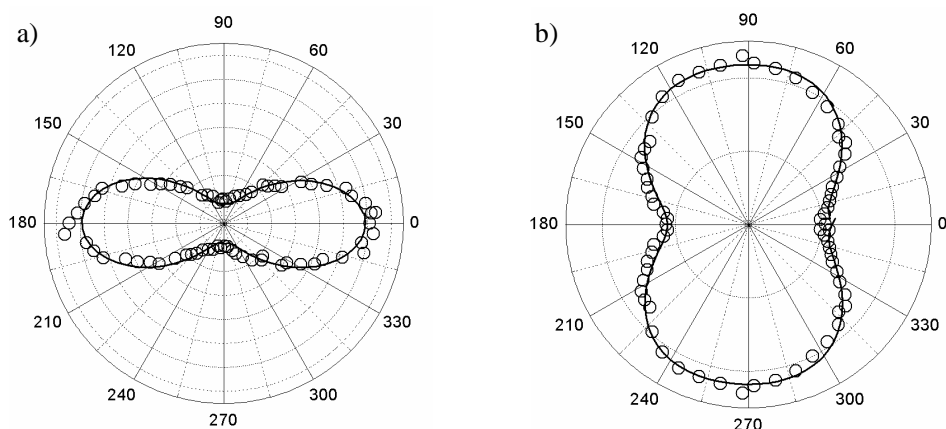


図2 a)アセチレン及び b)ジヨードジアセチレンから放出させた C^+ の角度分布

【考察】 図2で見られた大きな変化は、末端原子の質量の大きな差によるものと考えられる。アセチレンの場合、末端水素原子は非常に軽いため、クーロン爆発により水素イオンは瞬時に放出されるため、炭素の放出は阻害されず、結合軸方向にイオンが放出される。一方、ジヨードジアセチレンの場合、末端ヨウ素原子の質量は非常に大きく、炭素は結合軸方向に放出されない。さらに、レーザー電場により変形を受けることで屈曲した構造となることで、重原子の間から結合軸と直行方向にイオンが放出されると考えている。高い反発エネルギーを受けながらも瞬時に解離できず、分子構造が屈曲することでイオンの放出が可能になることは炭素イオンの運動エネルギーが大きく異なることから支持される。

【参考文献】

- 1) N. Nakashima, S. Shimizu, T. Yatsushashi, S. Sakabe, Y. Izawa, *J. Photochem. Photobiol. C* 1 (2000) 131, N. Nakashima, T. Yatsushashi, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science*, Springer, 2 (2007) 25.
- 2) T. Yatsushashi, M. Murakami, N. Nakashima, *J. Chem. Phys.* 126 (2007) 194316.
- 3) C. Cornaggia, D. Normand, J. Morellec, *J. Phys. B* 25 (1992) L415.

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 2

(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非共鳴イオン化した場合、光解離生成物イオン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イオン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) 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] を行ってきた。その結果、位相制御レーザーパルスの非対称光電場と分子の非対称 HOMO との高次非線形相互作用に基づく異方性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。

今回は、異方性トンネルイオン化における光電子放出の詳細を調べるために、解離生成物イオンと光電子の同時測定に関する実験結果を報告した。今回は、光電子の位相敏感現象の運動量依存性を詳細に調べ、理論計算と比較した結果を報告する。

【実験方法】

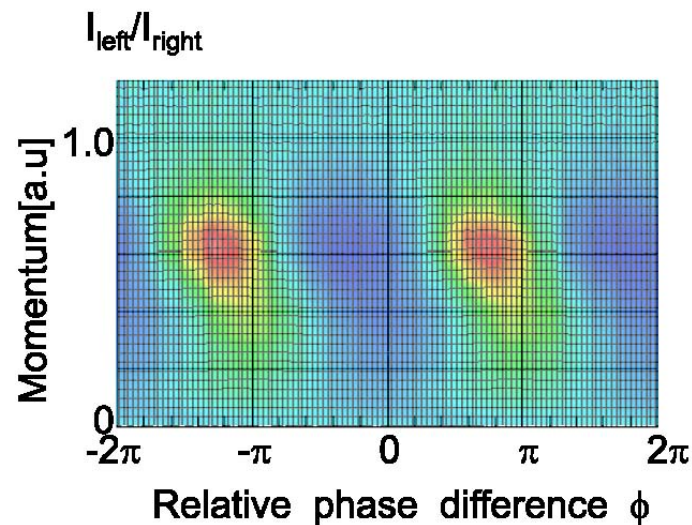
励起光には、フェムト秒レーザー (Ti:Sapphire laser, peak power : $10^{13}\text{-}10^{14}\text{ W/cm}^2$, 時間幅 : 100fs , 繰り返し : 10Hz) の基本波 (800nm) とその第二高調波 (400nm) を用いた。第二高調波を非線形光学結晶によって発生させた後、Mach-Zehnder 干渉計にて励起光を基本波と第二高調波に分離する。第二高調波の光路に石英板 (厚さ : 1mm) を挿入することにより位相差を加え、基本波と第二高調波を再び重ね合わせる。石英板を回転させることによって基本波と第二高調波の位相差を 40 アト秒の精度で変化させた。フェムト秒位相制御レーザーパルスを、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解離生成物イオンの放出角度分布の 2 次元画像データを同時に計測した。

【結果および考察】

前回に引き続き、一酸化炭素 (CO) を対象として実験を行った。強いフェムト秒位相制御レーザー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イオンが観測された。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。

同様に、光電子も同時に観測した。一酸化炭素 (CO) にフェムト秒位相制御レーザーパルスを照射した時に発生する光電子の放出角度分布は、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)。さらに光電子の放出方向は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。図は、光電子の右方向放出成分と左方向放出成分の強度比の位相依存性を運動量に対してプロットした等高線図である。光電子の相対位相差に対する振る舞いは、光電子の運動量に依存し、定性的には $0.5[a.u.]$ 以下の小さい運動量の光電子と、 $0.5[a.u.]$ 以上の大きい運動量の光電子で、位相依存性が異なることが観測された。講演では、理論計算との比較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).

アト秒ピコメートル精度の時空間量子エンジニアリング ～ 極低温分子からバルク固体まで ～

(分子研) ○大森賢治

物質の波動関数の干渉を光で制御する技術をコヒーレント制御と呼ぶ。その応用は、量子コンピューティングなど先端テクノロジーを生み出し、量子論的な世界観の検証を可能にする。我々は、気相孤立分子の電子振動波束にアト秒精度で制御されたレーザー電場の位相情報を転写するという方法を用いて、アト秒ピコメートル精度の時空間コヒーレント制御法を開発した[1-6]。我々が開発したアト秒位相変調器 (APM) はアト秒精度で二つの光パルスの電場振動のタイミング (位相) を操る装置である。我々は、APMから出力された二つのフェムト秒レーザーパルスを照射することによって分子の中にそれぞれのパルスの位相を記憶した二つの振動波束を発生させ、それらの干渉をほぼ完全に制御する事に成功した。さらに、このような波束干渉の時空間模様をピコメートルレベルの空間分解能とフェムト秒レベルの時間分解能で多彩に加工し可視化することにも成功した (→図1) [2,7]。

最近では、この技術に応用した分子コンピューターの開発に成功している。波形整形したフェムト秒レーザーパルスによってヨウ素分子の複数の振動固有状態の複素係数に数値入力を行い、これらの時間発展を利用して離散フーリエ変換を実行した。

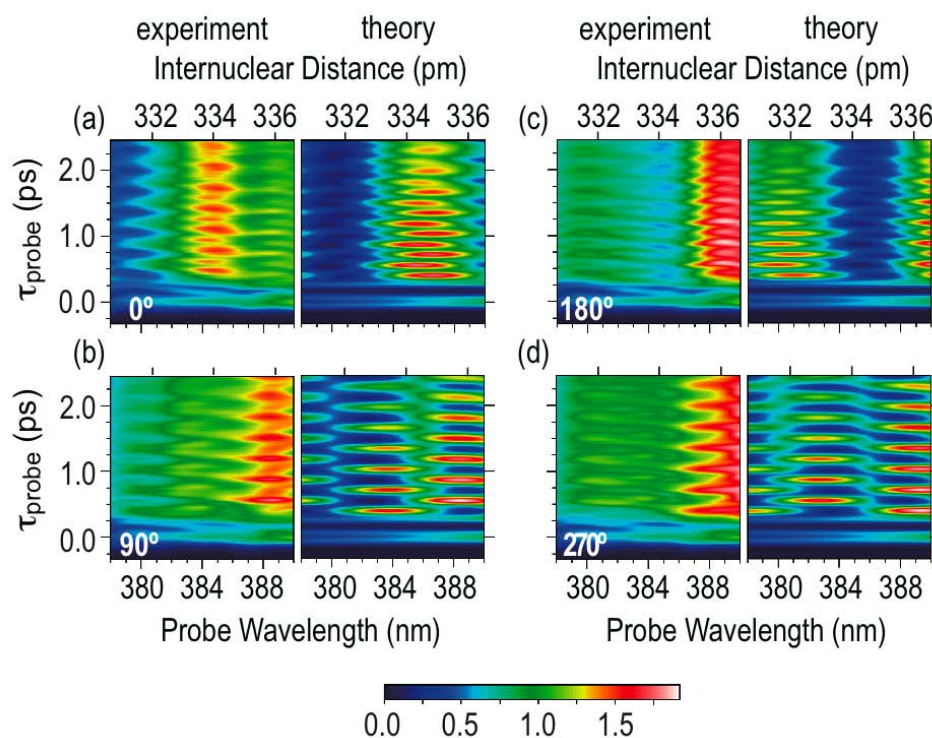


図1. アト秒ピコメートル精度でデザインし可視化された波束干渉の時空間模様。ヨウ素分子内で対向して運動する2個の振動波束の相対位相を(a) 0度; (b) 90度; (c) 180度; (d) 270度に固定した。文献[2]から引用。

演算結果を波束干渉によって読み出し、0.9を超える高い忠実度で変換が実行されている事を確認した(→図2) [1]。時間発展に要した時間は145フェムト秒であり、これは世界最速レベルのIBM Power6のクロック周期の3桁短い。このような電氣的に中性な物質の波動関数を用いた情報処理は、電流漏れが熱やエラーを誘発するシリコンベースの情報処理の限界を超える可能性を秘めている[1,3]。

将来的には、この分子コンピューターを固体中で連結し大規模化することが望まれる。このために我々は、ビスマスや固体パラ水素などのバルク固体を対象にしたコヒーレント制御法の開発を進めており、固体中の原子の2次元運動やFrenkel 励起子干渉の制御に関する画期的な成果を得ている[8,9]。同様に、分子コンピューターを光トラップ中で連結する準備も進めており、つい最近、極低温Rb₂分子を生成することに成功した。

最後に、コヒーレント制御が物質の波動性にに基づく限り、これを極低温分子から巨視的な固体に至る様々な環境で追求すること自体が、量子論的な世界観の検証であるはずだ。例えば、我々の身の回りの巨視的な世界では物質波の干渉は見られないが、原子分子レベルの物質が示す波の性質が系の複雑化とともにいかにして失われて行くかはまだ良く理解されていない。本研究の途上に、この100年来のミステリーをより良く理解するためのヒントが隠されているかもしれない。

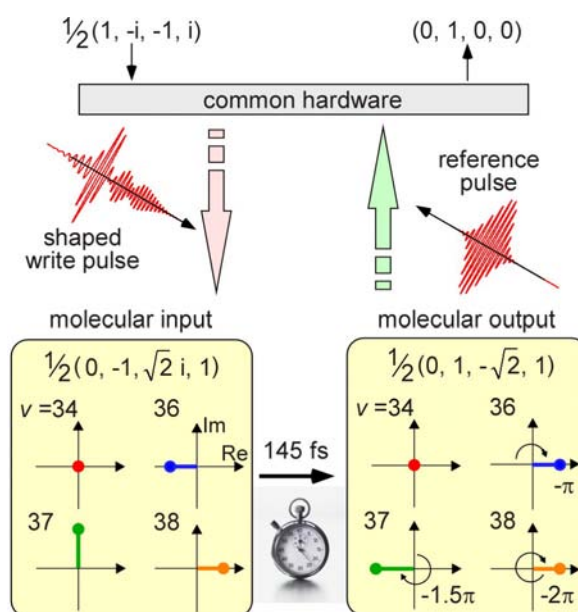


図2. 分子コンピューターによる離散フーリエ変換の概略。ここでは $\frac{1}{2}(1, -i, -1, i) \rightarrow (0, 1, 0, 0)$ を例にとっているが、あらゆる複素入力を変換できる。文献[1]から引用。

【参考文献】

- [1] K. Hosaka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 180501 (2010).
(See also *Physics* **3**, 38 (2010); *Nature* **465**, 138-139 (2010).)
- [2] H. Katsuki *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 103602 (2009).
- [3] K. Ohmori, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **60**, 487-511 (2009).
- [4] H. Katsuki *et al.*, *Phys. Rev. A* **76**, 013403 (2007).
- [5] K. Ohmori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **96**, 093002 (2006).
- [6] K. Ohmori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 243003 (2003).
- [7] H. Katsuki *et al.*, *Science* **311**, 1589-1592 (2006).
- [8] H. Katsuki *et al.*, to be submitted.
- [9] H. Katsuki *et al.*, to be submitted.