

## 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,  $10^{12}$ - $10^{13}$ W/cm<sup>2</sup>) 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】

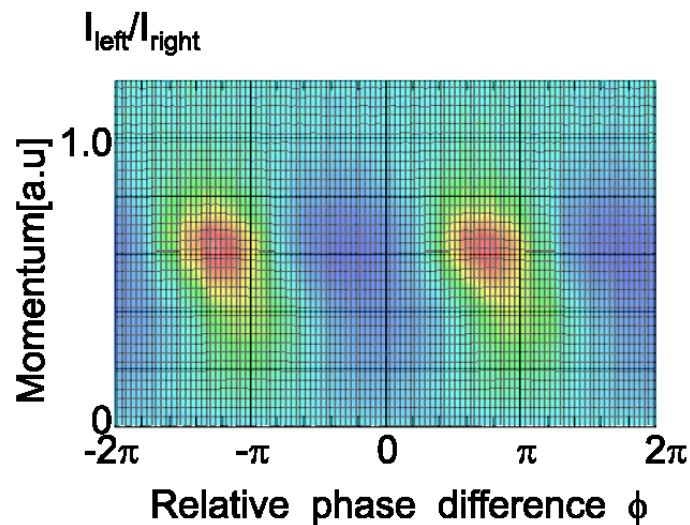
励起光には、フェムト秒レーザー (Ti:Sapphire laser, peak power :  $10^{13}$ ~ $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, 時間幅 : 100fs, 繰り返し : 10Hz) の基本波(800nm)とその第二高調波(400nm)を用いた。第二高調波を非線形光学結晶によって発生させた後、Mach-Zehnder 干渉計にて励起光を基本波と第二高調波に分離する。第二高調波の光路に石英板 (厚さ : 1mm) を挿入することにより位相差を加え、基本波と第二高調波を再び重ね合わせる。石英板を回転させることによって基本波と第二高調波の位相差を 40 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<sup>+</sup>と O<sup>+</sup>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  $\pi$  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  $2\pi$  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  $\pi$  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).