

位相制御レーザーパルスを用いた 分子イオン化過程の量子制御

(産総研 計測フロンティア研究部門) ○大村 英樹

【はじめに】

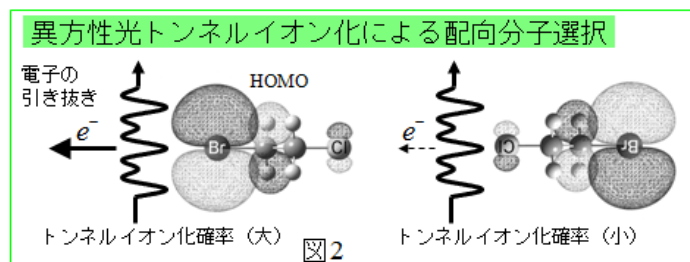
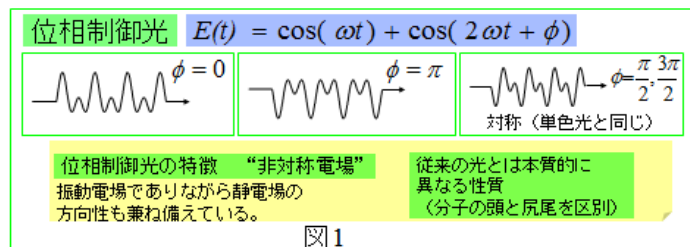
レーザー光のコヒーレントな性質を利用して物質の量子状態および量子ダイナミクスを直接操作し、物性や機能をコントロールしようとする量子制御（またはコヒーレント制御）に関する研究が近年精力的に行われるようになってきた。ランダムな熱運動によってかき消される前のコヒーレント状態にレーザーを作用させ、光と物質のコヒーレント相互作用を通して物質を制御しようというものである。本研究の目的は、波長の異なるレーザーパルスを重ね合わせその相対位相を精密に制御した位相制御レーザーパルスを用いて、通常のレーザー光では困難な分子操作技術を開発するとともに位相制御レーザーパルスを用いた物質制御の新しい方法論を提示することである。

我々は波長の異なるフェムト秒光パルスを重ね合わせその相対位相を精密に制御した位相制御レーザーパルス（時間幅；130 フェムト秒，波長；400nm+800nm，光強度； $10^{12} \sim 10^{13} \text{W/cm}^2$ ）による気体分子の異方性光トンネルイオン化の量子制御と、その結果として起こる分子配向操作（配向選択分子イオン化）を世界に先駆けて実現した[1-12]。気体分子の配向操作は、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情報量が飛躍的に増大することから、非常に重要な分子操作技術である。

【原理】

以下に位相制御レーザーパルスによる異方性光トンネルイオン化の量子制御と配向選択分子イオン化の概略を述べる。レーザー光の基本波（周波数： ω ）とその第二高調波（周波数： 2ω ）の相対位相を精密に制御し重ね合わせたレーザー光を考える（図 1）。レーザー光の基本波とその第二高調波の相対位相をゼロまたは π に固定して重ね合わせれば、その光電場波形は正負で光電場振幅の大きさが異なるために非対称な形状となり、その非対称性は位相差 0 から π にすると反転させることができる。基本波とその第二高調波から構成される位相制御レーザーパルスは正負を区別できない通常のレーザー光の光電場とは異なり静電場的な方向性が生じるため、従来の光とは本質的に異なる性質を示す。

このような非対称光電場で特徴づけられる強い位相制御レーザーパルスで気体分子を非共鳴イオン化すると、分子はトンネルイオン化する。分子のトンネルイオン化記述する理論（分子 ADK モデル）によると、(1)



トンネルイオン化確率は、トンネルイオン化する瞬間の光電場振幅が大きいほど高くなる。

(2) 最外殻軌道波動関数 (HOMO) の波動関数振幅の大きい場所ほどポテンシャル障壁からの染み出しが大きくなるため、トンネルイオン化確率が高くなる、ことが指摘されている。非対称な HOMO と $(\omega+2\omega)$ 位相制御レーザーパルスの非対称光電場が相互作用すると、波動関数振幅の大きい場所から非対称光電場の最大の方向に異方的なトンネルイオン化が起こる確率が高くなるため、トンネルイオン化確率に配向依存性が生じる (図 2)。その結果、ランダム配向の気体分子集団の中から (頭と尻尾を区別した) 配向分子だけが選択的にイオン化される。候補者は、非対称な光電場を持つ位相制御レーザーパルスと非対称分子の波動関数 (HOMO 軌道) との高次非線形相互作用によって異方性光トンネルイオン化が起こり、通常のレーザー光では困難であった頭と尻尾を区別した配向選択分子イオン化が起こることを、論理的に推論し実験で証明した。

【具体的な実験例】

これまでに、極性の非常に小さい分子や分子の波動関数 (HOMO 軌道) を系統的に変化させた分子系、さらに位相制御レーザーパルスの波長とパルス幅を変化させた実験から、異方性トンネルイオン化による配向選択分子イオン化が広範囲な条件で起こることを明らかにしてきた [3-6]。また、強いレーザー場によって発生する光電子の量子ダイナミクスの追跡に、位相制御レーザーパルスが有効であることが報告してきた [4]。

この手法は以下の 4 つの特徴がある。(1) 通常のレーザーでは困難とされていたと気体分子の頭と尻尾を区別した分子配向操作を量子制御の手法を適応して実現している。(2) 光の位相差 ($0, \pi$) のみで右向き左向きの分子配向選択が可能であり分子操作技術としても操作性が高い。(3) 共鳴遷移を必要としないため光の波長を変える必要がなく物質の種類に依存しない。(4) 多原子分子や複雑な形状の分子でも分子配向操作が可能であり、適応範囲の広い汎用的な手法である。

【参照論文】

- [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).
- [6] H. Ohmura, N. Saito, H. Nonaka, and S. Ichimura, Phys. Rev. A **77**, 053405(2008)
- [7] 大村英樹, レーザー研究 37, 16(2009).
- [8] 大村英樹, 光化学 40, 2(2009)
- [9] 大村英樹, 真空(Journal of the Vacuum Society of Japan) **53**, 675(2010)
- [10] 大村英樹, Molecular Science Vol.5, A0039(2011)
- [11] H. Ohmura, N. Saito, and T. Morishita, Physical Review A **83**, 063407(2011)
- [12] H. Ohmura, Directionally asymmetric tunneling ionization and control of molecular orientation by phase-controlled laser fields, Progress in Ultrafast Intense Laser Science VII, Chapter 5. (ISBN:978-3-642-18326-3)