

分子トンネルイオン化の量子制御を利用した レーザー場フーリエ合成

(¹産総研 計測フロンティア研究部門、²電通大) 大村 英樹¹、齋藤 直昭¹、森下 亨²

【はじめに】

最近の高出力極短レーザーパルス発生技術の進展により、高次非線形光学効果を利用した分子のイオン化制御の研究が精力的に行われている。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； $10^{12}\sim 10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ ）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）の研究を行ってきた[1-6]。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。

我々がこれまでに発展させてきた2色の位相制御レーザーパルスによる分子の異方性トンネルイオン化は、光位相に非常に強く依存することがわかっている。この現象を利用し発展させれば、従来計測技術では困難であった課題に対していくつかの新しい方法論を提示できる可能性がある。その一つは、分子の異方性トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザー場フーリエ合成への展開である。

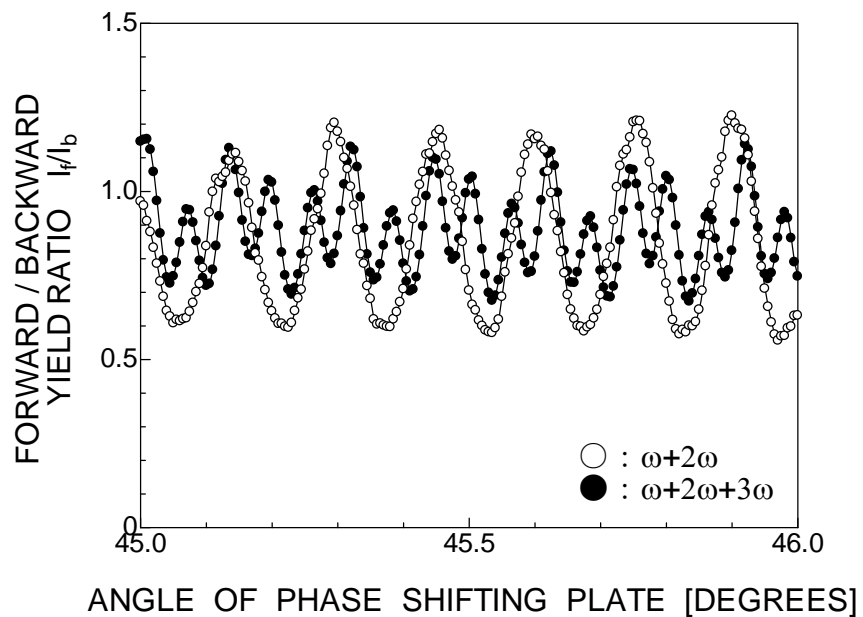
2色の制御を発展させて多色（ $\omega+2\omega+3\omega+\dots$ ）位相制御レーザーの各周波数成分の強度と相対位相を制御してフーリエ合成すれば、任意の光電場波形を合成することができる。多色位相制御レーザーパルスを分子に照射することにより、振動的な電子励起の枠組みを超えて光の一周期以内であるアト秒領域での精密な電子運動制御が期待される。しかしながら光電場実波形（または各周波数間の相対位相）の計測や制御は、現在の超高速エレクトロニクスを用いても困難な課題である。そこで本研究では、分子の異方性トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザー場フーリエ合成によって、レーザー光電場波形の計測や制御に対する新しい方法を開発する。

【実験方法】

励起光には、ナノ秒 Q-switch YAG 秒レーザー（強度： $10^{12}\sim 10^{13}\text{ W}/\text{cm}^2$ ，時間幅：10ns，繰り返し：10Hz）の基本波(1064nm)とその高調波(532nm, 355nm, 266nm)を用いた。高調波を非線形光学結晶によって発生させた後、光路に石英板（厚さ：10mm，入射角 45° ）を挿入することにより位相差を加え、石英板を回転させることによって基本波と各高調波間の相対位相を変化させた。ナノ秒多色位相制御レーザーパルスを、He で希釈した試料分子を含む超音速分子線に照射して光イオン化を起こし、光解離生成物イオンを飛行時間型質量分析装置に測定した。

【結果および考察】 硫化カルボニル（OCS）を対象として実験を行った。強いナノ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、親分子イオンと

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 OC^+ と S^+ は、検出器方向に放出される成分（前方放出成分）と検出器方向と反対側に放出された後、検出器に導かれる成分（後方放出成分）の対として観測された。基本波と第二高調波による 2 色位相制御レーザーパルス ($\omega+2\omega$) の場合、相対位相差が 0



のときは、 OC^+ の前方放出成分が大きく観測され、 S^+ は後方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前方放出成分と後方方向放出成分の大きさの関係が反転した。2 色位相制御手レーザー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、 OC^+ と S^+ の前方放出成分/後方放出成分の比は、明瞭な 2π の周期の振動が観測され（図の白丸は S^+ の結果）、 OC^+ と S^+ がお互いに逆位相で変化した。この結果より配向した OCS 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。

さらに、3 色位相制御レーザーパルス ($\omega+2\omega+3\omega$) でも同様の実験を行った。図の黒丸は、 S^+ の前方/後方放出成分の比を位相板の入射角の関数としてプロットしたものである。この実験では、基本波、第二高調波、第三高調波はお互いに分離せずに位相板を通過している。したがって、 $\omega-2\omega$ 間の相対位相だけでなく $\omega-3\omega$ 間の相対位相も変化しているが、第 3 高調波を重ね合わせその相対位相が変化することによって、周期の早い成分が加わっていることがわかる。この実験結果は、 ω 、 2ω 、 3ω のレーザーパルスが時間的空間的にコヒーレントに重ね合わせられ、 $\omega-2\omega$ 間、 $\omega-3\omega$ 間の相対位相が制御されていることを示している。

講演では、多色の位相制御レーザーパルスの各周波数成分の相対位相を独立に制御できる多重マッハツェンダー干渉計による実験方法について紹介し、分子の異方性トンネルイオン化の量子制御を利用したレーザー場フーリエ合成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, N. Saito, and M. Tachiya, Phys. Rev. Lett. **96**, 173001(2006).

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

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

[5] H. Ohmura, N. Saito, H. Nonaka, and S. Ichimura, Phys. Rev. A **77**, 053405(2008).

[6] H. Ohmura, N. Saito, and T. Morishita, Phys. Rev. A **83**, 063407(2011).

[7] 最近の総説は、吉富大、応用物理 78、141 (2008) を参照。