3A07

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3

(¹産総研、²電通大) ○大村 英樹¹、齋藤 直昭¹、森下 亨²

【はじめに】

高出力極短レーザーパルス発生技術の顕著な進歩により、高次非線形光学応答である分子 のトンネルイオン化を容易に観測することが可能になった。トンネルイオン化はアト秒領域 の電子運動が関与した光学現象であることから、アト秒光科学の中で最も基本的な現象の一 つとして精力的に研究が行われている。我々はこれまでに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;10¹²~10¹³W/cm²)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]。

2色の制御を発展させて多色(ω+2ω+3ω+・・)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。波形 制御された光電場波形のレーザーパルスを分子に照射すれば、単に振動させるだけの電子励 起でなく、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[7]。そこで本研究の目的は、分子の異方性トンネルイオン化の量子制御を利用して、フー リエ合成された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ことである。

前回までに、我々は干渉計フリーの方法によって4色(ω +2 ω +3 ω +4 ω)位相制御レーザ ーパルスを発生させ、分子の異方性トンネルイオン化に関する実験結果を報告した。干渉計 フリーの位相制御レーザーパルス発生方法は、簡便で非常に安定した位相制御が可能である が、4 つの周波数成分間の相対位相差を独立に制御することができないという欠点がある。 そこで今回は、干渉計を用いた4色(ω +2 ω +3 ω +4 ω)位相制御レーザーパルスによる実験を 行い、結果の詳細について報告する。

【実験方法】

励起光には、ナノ秒 Q-switchYAG 秒レーザー(強度:10¹²~10¹³ W/cm²,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、4周波数に対応したアームをもつ多色マッハーツェン ダー干渉計で基本波と各高調波間の相対位相差を変化させた。相対位相差の制御はピエゾス テージで光路長を変化させることにより行った。ナノ秒4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て測定した。

【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(ω +2 ω)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。2 色位相制御レ 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⁺(図(a)黒丸)と



 S^+ (図 (a) 白丸)の前方放出成分/後方放出成分の比は、明瞭な 2 π の周期の振動が観測され、 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 されて検出さていることがわかった。

さらに、3 色(ω +2 ω +3 ω ; 図(b))と4 色位相制御レーザーパルス(ω +2 ω +3 ω +4 ω ; 図(c))でも同様の実験を行った。図(b)では、 ω -2 ω 間の相対位相差 ϕ_{12} を0に固定、図(c)では、さらに ω -3 ω 間の相対位相差 ϕ_{13} を0 に固定した時の実験結果である、両方の実験でOC⁺(黒丸)とS⁺(白丸)の前方放出成分/後方放出成分の比は、明瞭な2 π の周期の振動が観測され、OC⁺とS⁺がお互いに逆位相で変化しており、OCS分子が選択的にイオン化されて検出さていることがわかった。これらの実験結果は、 ω 、2 ω 、3 ω 、4 ω 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、 ω -2 ω 間、 ω -3 ω 間、 ω -4 ω 間の相対位相差が制御されていることを示している。

講演では、多色マッハーツェンダー干渉計による実験方法の詳細について報告し、分子の 異方性トンネルイオン化の量子制御を利用によるフーリエ合成されたレーザー光電場波形の 計測や制御に対する新しい方法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, N. Saito, H. Nonaka, and S. Ichimura, Phys. Rev. A77, 053405(2008).

[4] H. Ohmura, N. Saito, and T. Morishita , Phys. Rev. A83, 063407(2011).

[5] H. Ohmura, N. Saito, H. Nonaka, and S. Ichimura, Phys. Rev. A89, 013405(2014).

[6] H. Ohmura, Review: Advances in Multi-Photon Processes and Spectroscopy (Vol.21), Chapter 2 (p55-103), ISBN:978-981-4518-33-8 (2014)

[7] 最近の総説は、吉冨大、応用物理 78、141 (2008)を参照。