

# 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 4

(<sup>1</sup>産総研、<sup>2</sup>電通大) ○大村 英樹<sup>1</sup>、齋藤 直昭<sup>1</sup>、森下 亨<sup>2</sup>

## Laser-field Fourier synthesis by quantum control of molecular tunneling ionization 4

(AIST<sup>1</sup>、UEC<sup>2</sup>) Hideki Ohmura<sup>1</sup>, Naoaki Saito<sup>1</sup>, Toru Morishita<sup>2</sup>

### 【はじめに】

高出力極短レーザーパルス発生技術の急速な進歩により、高次非線形光学応答の一つ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 2 色の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）の研究を行ってきた[1-6]。

2 色のレーザーパルスによる制御を発展させて、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差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[7]。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。

前回までに、4 色 ( $\omega+2\omega+3\omega+4\omega$ ) 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。配向選択的にイオン化された分子の相対位相差依存性から各周波数成分の相対位相差を決定し、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提示してきた[8]。

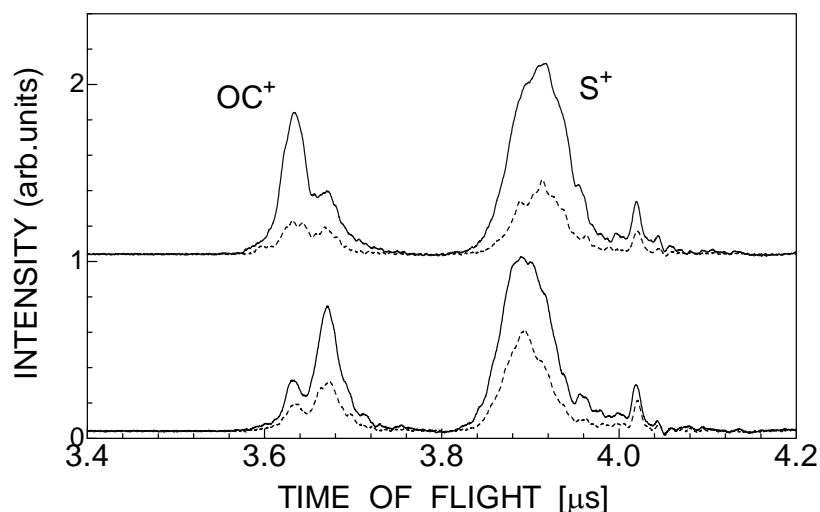
今回は、安定に発生させたフーリエ合成位相制御レーザーパルスを用いた気体分子の新しい光化学反応の探索を行ったので、その結果の詳細について報告する。

### 【実験方法】

励起光には、ナノ秒 Q-switch YAG 秒レーザー（強度： $10^{12}\sim 10^{13}\text{W/cm}^2$ ，時間幅：10ns，繰り返し：10Hz）の基本波(1064nm)とその高調波(532nm, 355nm)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、特定の直線偏光成分だけを偏光素子で選択した。基本波と各高調波間の相対位相差の制御には、位相板を使用した。回転させることのできる位相板の波長分散を利用することによって、各周波数間の相対位相差を変化させた。フーリエ合成された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。強いナノ秒フーリエ合成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。飛行時間の関数としてプロットした time-of-flight スペク



トル (TOF スペクトル) において、光解離生成物である  $\text{OC}^+$  と  $\text{S}^+$  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 (図)。基本波と第二高調波、基本波と第三高調波の相対位相差の組み合わせによって、様々な状態が観測された。 $\text{OC}^+$  の前方放出成分が大きく観測され、 $\text{S}^+$  は後方放出成分が大きく観測される場合 (図の上段) やその逆の振る舞い (図の下段) が観測された。これらの結果は、これまでに基本波と第二高調波から構成される 2 色の位相制御レーザーパルスの結果で報告してきたように、配向した OCS 分子が選択的にイオン化されて、相対位相差によってその配向方向が制御されていることを示している[1-6]。

これに加えて、3 色のフーリエ合成位相制御レーザーパルスでは、位相制御レーザーパルスの相対位相差の組み合わせに依存して、解離生成物イオンの収量が大きく増減することが分かった (図の実線と点線)。この解離生成物イオンの収量の変化は、基本波と第二高調波から構成される 2 色の位相制御レーザーパルスの照射では観測されないことから、3 色フーリエ合成位相制御レーザーパルスで特有の現象であると考えられる。

講演では、3 色フーリエ合成位相制御レーザーパルスの相対位相差依存性の詳細と解析結果について報告し、フーリエ合成位相制御レーザーパルスによる新しい光化学反応探索や新しい分子操作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. A **77**, 053405(2008).

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

[5] H. Ohmura, N. Saito, H. Nonaka, and S. Ichimura, Phys. Rev. A **89**, 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、吉富大、応用物理 78、141 (2008) を参照。

[8] H. Ohmura and N. Saito, Phys. Rev. A **92**, 053408(2015).