

## フーリエ合成レーザー場による分子トンネルイオン化の4状態量子制御

<sup>1</sup>産総研, <sup>2</sup>電通大○吉田 剛<sup>1</sup>, 斎藤 直昭<sup>1</sup>, 森下 亨<sup>2</sup>, 大村 英樹<sup>1</sup>**Four-state quantum control of molecular tunneling ionization by Fourier-synthesized laser field**○Tsuyoshi Yoshida<sup>1</sup>, Naoaki Saito<sup>1</sup>, Toru Morishita<sup>2</sup>, Hideki Ohmura<sup>1</sup><sup>1</sup> National Institute of Advanced Industrial Science and Technology<sup>2</sup> The University of Electro-Communications

**【Abstract】**The tunneling ionization under intense laser pulse is gathering attention as one of the most basic phenomenon in attosecond photo science. In this work, quantum control of molecular tunneling ionization was performed by three-color Fourier-synthesized laser pulse that is generated by fundamental, 2<sup>nd</sup> and 3<sup>rd</sup> harmonics of nanosecond Nd:YAG laser. Under three-color Fourier-synthesized laser pulse irradiation, OCS molecules show not only orientation-selected tunneling ionization but also enhancement and suppression of ionization yield. These two types of functionality can be optimized respectively, and four quantum controlled states which are combination of orientation-selected and ionization enhanced / suppressed were found. In the session, the quantitative analysis method of tunneling ionization and the mechanism of four-state selection of tunneling ionization by Fourier-synthesized laser field will be discussed.

**【序】**

近年の高出力レーザー発生技術の進歩により、高次非線形現象の観測が容易になった。その中でも、分子トンネルイオン化現象はアト秒光科学の基本的現象として注目を集めている。

レーザー光の基本波とその高調波の位相差と相対強度を制御してフーリエ合成を行えば、任意の電場波形を持ったレーザーパルスを作ることができる[1]。このようにフーリエ合成によって発生した位相制御レーザーパルスを分子に照射することで、レーザー電場によるトンネル効果の精密制御が期待される。

前回の講演で基本波、第二高調波、第三高調波の位相差を制御し、フーリエ合成した位相制御レーザーパルスによる分子トンネルイオン化に関する実験について発表した。その中で、基本波と2つの高調波の位相差を制御することで、分子の配向選択とイオン化収量の増強/抑制の組み合わせによる分子トンネルイオン化の4状態量子制御を示し、それがレーザー場による分子操作の複数の機能制御を示唆する非常に重要な結果であることを報告した。しかしながらその制御のメカニズムについては、定性的な解析と解釈にとどまっていた[2]。

今回は、位相に敏感に変化する分子の異方性トンネルイオン化の信号に対して、高次非線形光学応答を考慮した定量的な解析を行い、フーリエ合成した電場波形の再構築を行うとともに、その波形から4状態量子制御のメカニズムについて考察した。

**【方法 (実験・理論)】**

励起光として、ナノ秒パルス YAG レーザー (強度:  $10^{12}\sim 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, 時間幅: 10 ns) の基本波、第二高調波、第三高調波を重ねてフーリエ合成し、位相制御レーザーパルスとした。高調波は非線形光学結晶より発生し、検出器に対して垂直な直線偏光成分を偏光素子で選択した。基本波と各高調波間の位相差の制御は、入射角が制御可能な

位相板にレーザー光を通過させ、その波長分散を利用して行った。実験は、フーリエ合成レーザーパルスを He 希釈した硫化カルボニル (OCS) の超音速分子線に照射して解離性イオン化反応を起こし、生じたフラグメントイオンを、飛行時間型(TOF)質量分析装置を用いて測定した。

### 【結果・考察】

Fig.1 に OCS に対して位相板の入射角が異なる 3 色の位相制御レーザーパルスを照射した場合に生成されるフラグメントイオンの TOF スペクトルを示す。フラグメントイオンとして生成した  $\text{CO}^+$ ,  $\text{S}^+$  は強度の異なるピーク対 (それぞれ  $I_f$ ,  $I_b$ ) として観測され、ピークはそれぞれフラグメントイオンの検出器方向 (前方) とその逆方向 (後方) への放出に対応すると帰属した[3]。Fig.1 の(a),(b)のスペクトル形状の比較から、 $I_f$  と  $I_b$  の強度比は位相板へのレーザー入射角に依存して大きく変化することが観測された。さらに、実線と点線の比較からは、ピーク強度、つまりトンネルイオン化収量も位相板へのレーザー入射角に強く依存することが示された。実験で観測された信号の変化を定量的に評価するため、信号の非対称性と信号強度の二種類の指標を次に示すような形で導入した。信号の非対称性を示す指標(=A)として  $A = (I_f - I_b) / (I_f + I_b)$  と定義し、信号強度をピーク対の積分強度  $I_{\text{total}} = I_f + I_b$  で評価した。

Fig.2 に 3 色の位相制御レーザーパルスにより生成された  $\text{CO}^+$  (白丸) と  $\text{S}^+$  (黒丸) の A 値(a)と  $I_{\text{total}}$  (b)それぞれの位相板へのレーザー入射角依存性を示す。 $\text{CO}^+$ ,  $\text{S}^+$  の A 値は入射角に対して振動しながら変化し、互いに逆位相の依存性を示した。このことから、3 色の位相制御レーザーパルスによって分子の配向選択的なイオン化が達成されているとわかった。また、イオン化収量には、A 値の周期とは異なる振動的な振る舞いが見られ (図は  $\text{CO}^+$  のみ)、配向選択イオン化とイオン化収量の増強/抑制の組み合わせによる分子トンネルイオン化の 4 状態が実現している。このような配向選択イオン化やイオン収量の増強、抑制を理解するために、光電場に関する高次非線形光学応答を考慮したトンネルイオン化モデルを導入し、解析を行った。Fig.2 (a), (b)の実線で示されるように、上記のモデルに従い、定量的な解析を行うことで配向選択的なイオン化とイオン収量の増強/抑制を説明できることが示された。

発表では、分子イオン化の位相依存性に対する定量的な解析方法の詳細と、再構築されたフーリエ合成電場波形から 4 状態量子制御のメカニズムについて議論する予定である。

### 【参考文献】

- [1] H. Ohmura and N. Sato, Phys. Rev A 92, 053408 (2015)
- [2] 分子科学討論会2016、2A11、大村、齋藤、森下
- [3] H. Ohmura, N. Saito, and M. Tachiya, Phys. Rev. A 77, 023408 (2008)

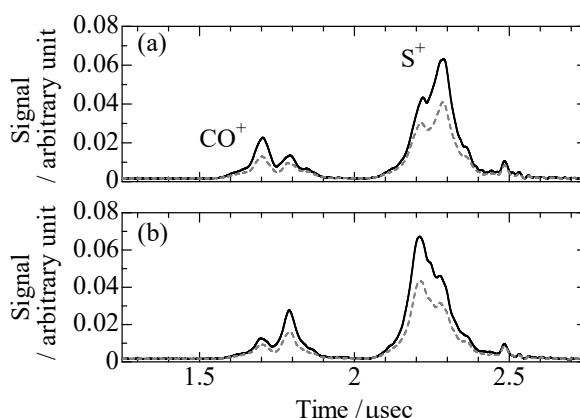


Fig.1 TOF spectra of OCS irradiated with three-color Fourier-synthesized laser pulse.

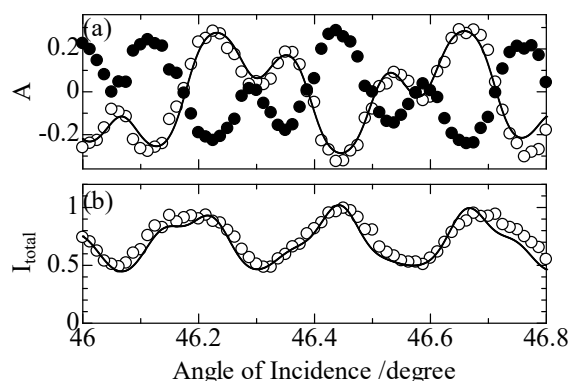


Fig.2 Plots of Asymmetry of photo fragment ions (a) and yield of ionization photo fragment ion (b) as a function of angle of incidence of the phase plate.