

分子トンネルイオン化の量子制御を利用した フェムト秒レーザー場フーリエ合成

産総研

○大村英樹, 吉田剛, 齋藤直昭

Fourier synthesis of femtosecond laser fields using quantum control of molecular tunneling ionization

○Hideki Ohmura, Tsuyoshi Yoshida, Naoaki Saito
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

【Abstract】 We have investigated Fourier synthesis of femtosecond laser fields consisting of fundamental, second harmonic, and third harmonic light with a duration of 130 femtosecond and an intensity of $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ using quantum control of molecular tunneling ionization. We will propose a methodology to estimate relative phase differences between the fundamental light and each harmonic light from the phase-dependent behaviors of orientation-selective molecular tunneling ionization.

【序】 レーザー位相制御技術の進展により、アト秒領域における電子の動力学的な制御が可能となりつつある。その中でもトンネルイオン化はアト秒領域の電子運動が関与した高次非線形光学応答であることから、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； $\sim 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ）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($\omega + 2\omega + 3\omega + 4\omega$)によってフーリエ合成されたナノ秒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てきた[8,9]。今回はフェムト秒レーザーパルスでもフーリエ合成を行い、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する方法を議論するとともに、分子の高次非線形光学応答を利用したフーリエ合成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案する。

【方法 (実験)】 励起光には、再生増幅されたチタンファイヤレーザー（強度： $\sim 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ，時間幅：130フェムト秒，繰り返し：10Hz）の基本波(800nm)とその高調波(400nm, 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、多重Mach-Zehnder干渉計に配置されたピエゾステージによって、基本波と各高調波間の相対位相差(ϕ_{12} , ϕ_{13})を制御した。フーリエ合成されたフェムト秒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・考察】 一酸化炭素 (CO) を対象として実験を行った。強いフェムト秒フーリエ合成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 CO^+ と、解離生成物イオンである炭素イオン C^+ 、酸素イオン O^+ 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、 C^+ と O^+ は、解離によって検出器方向に放出される成分 (前方放出成分: I_f) 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: I_b) のピーク対として観測された。

まず基本波と第二高調波から構成される 2 色フェムト秒フーリエ合成パルス ($\omega+2\omega$) で実験を行った。ピエゾステージで基本波と第二高調波の相対位相差 ϕ_{12} を制御すると C^+ の前方放出成分が大きく観測され O^+ は後方放出成分が大きく観測される場合や、その逆の振る舞いが観測された。これらの結果は、以前に報告したように、OC 分子が配向選択的にイオン化されて、相対位相差の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]。

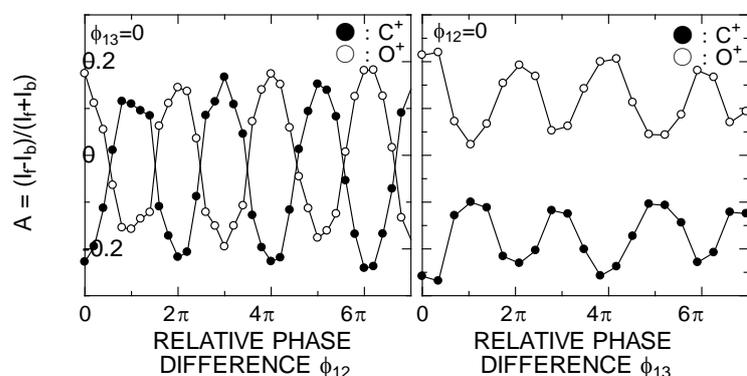


Fig. 1. Phase-dependence of Asymmetric photofragment emission.

既に報告されている OC 分子の位相依存性から $\phi_{12}=0$ を決定して [4]、3 色 ($\omega+2\omega+3\omega$) の実験を行った。放出イオンの異方性を $A=(I_f-I_b)/(I_f+I_b)$ で定義し、相対位相差 ϕ_{12} 、 ϕ_{13} のして関数としてプロットしたものが図 1 である。 ϕ_{12} と ϕ_{13} に対して、 C^+ (黒丸) と O^+ (白丸) は振動的な振舞いを示しお互いに逆位相である

ことから OC 分子が配向選択的にイオン化され、その配向方向が相対位相差によって制御されていることを示している[1-6]。さらに、 ϕ_{12} 依存性は、A 値がプラスマイナスで反転している (選択された配向方向が反転している) のに対して、 ϕ_{13} 依存性は、A 値が反転しないことが分かった。図から明らかな通り、 ϕ_{12} と ϕ_{13} のそれぞれの相対位相差依存性が異なることが分かった。

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、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する方法を議論する。

本研究は科学費補助金 基盤 B (No. 24340097, 16H0413), NEDO 「高効率・輝度次世代レーザー技術 高効率・輝度次世代レーザー技術開発」の支援を受けた。

【参考文献】

- [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, and T. Morishita, *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).
- [9] T. Yoshida, N. Saito, and H. Ohmura, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **51**, 065601 (2018)