

【はじめに】レーザーのコヒーレントな性質を利用することによって、物質制御や光化学反応制御の可能性を探索する量子制御または位相制御と呼ばれる研究が近年勢力的に行われている。我々はこれまでに基本波（800nm）と第二高調波（400nm）を重ね合わせ、その相对位相差を制御したフェムト秒パルス（130fs, $1 \times 10^{12} \text{W/cm}^2$ ）によって分子を励起した場合、永久双極子を持つ分子は（頭と尻尾を区別した）分子配向が誘起されることを報告して来た[1,2]。今回は、強い位相制御光（パルス幅：130fs, 励起光強度： $10^{13} \sim 10^{14} \text{W/cm}^2$ ）によって引き起こされる2原子分子のクーロン爆発過程について報告する。強いレーザー場中の原子分子のイオン化過程に関する近年の研究から、強いレーザー光による振動電場と同期した分子内電子の動的挙動が、イオン化過程に重要な役割を果たしていることが指摘されている。このようなイオン化過程は、アト秒光パルスやX線パルスの発生において本質的な役割を果たしていることが最近の研究から明らかになりつつある。そこで、位相制御された光によってイオン化に關与する電子運動の動力学的な制御の可能性を調べた。

【実験方法】励起光には、フェムト秒レーザー（Ti:Sapphire laser, peak power: $10^{13} \sim 10^{14} \text{W/cm}^2$ 時間幅：130fs、繰り返し：20Hz）の基本波（800nm）とその第二高調波（400nm）を用いた。第二高調波を発生させた後、励起光を Mach-Zehnder 干渉計にて基本波と第二高調波に分離する。第二高調波の光路に石英板（厚さ：3mm）を挿入することにより位相差を加え、基本波と第二高調波を再び重ね合わせる。石英板を回転させることによって基本波と第二高調波の位相差を20アト秒の精度で変化させた。これらのフェムト秒光パルス対を、Heで希釈したIBrの超音速分子線に照射してクーロン爆発を起こし、その光解離生成物を運動量分解飛行時間型質量分析装置にて観測した。

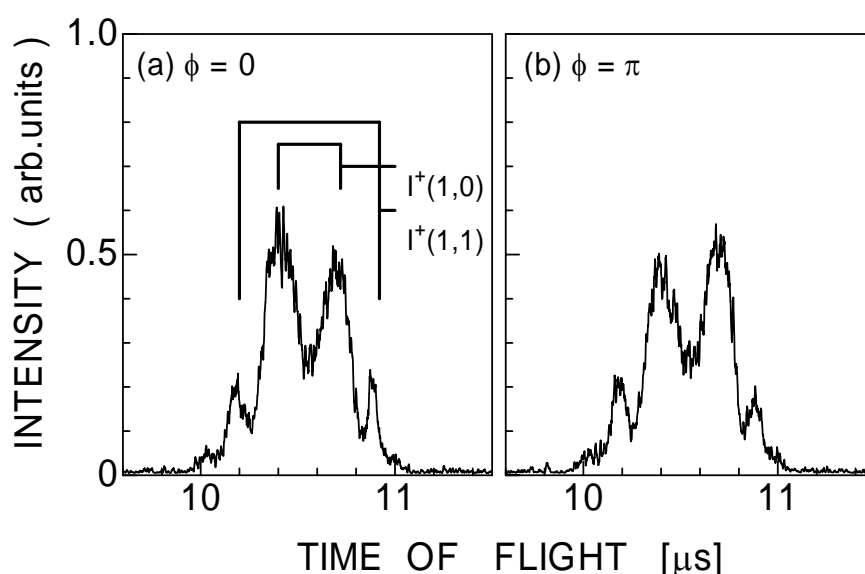


図1

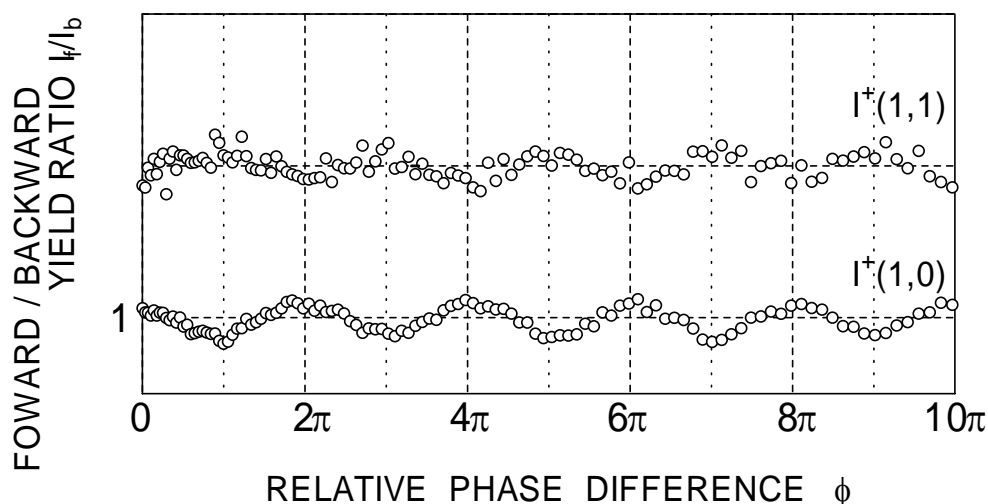


図2

【結果および考察】 基本波と2倍波を同時に照射した時に観測される IBr の TOF スペクトルを図 1 に示す。ヨウ素原子イオンは光解離時における運動量分布を反映したピークの対（forward peak, backward peak）として観測され、複数のピークの対の存在から複数の反応経路があることがわかる。forward ピークと backward ピークの間隔から光解離時に生成物が受け取る運動量を求めることにより、観測された反応経路はクーロン爆発過程

$\text{IBr}^{+(p+q)} \rightarrow \text{I}^{+p} + \text{Br}^{+q}$ における複数の解離経路（ p, q ）によるものと同定できる。今回の励起条件では、主に $\text{I}^+(1,0)$ と $\text{I}^+(1,1)$ が観測された。図 1(a)に見られるように位相差 0 では、 $\text{I}^+(1,0)$ は forward peak が backward peak より大きく観測される。これは永久双極子をもつ IBr が位相制御された光電場によって、光電場方向に（頭と尻尾を区別して）配向した分子だけがイオン化されていることを意味している[1]。他方、 $\text{I}^+(1,1)$ イオンでは、backward peak が forward peak より大きく観測される。図 1(b)は位相差 π における TOF スペクトルである。位相差 0 の場合と比較すると、backward peak と forward peak の大きさは完全に逆転していることがわかる。図 2 は forward peak と backward peak の比（ I_f / I_b ）を基本波と第二高調波との相対位相差の関数としてプロットしたものである。 $\text{I}^+(1,0)$ および $\text{I}^+(1,1)$ は、ともに 2π の周期で明瞭に振動し、お互いに逆位相の関係であることがわかる。以上の結果は、配向制御された分子に対して、非段階的な二重イオン化過程が重要な役割を果たしている可能性があることが示唆される。講演では、すべての解離生成物に関する詳細な実験データをもとに、光解離ダイナミクスとクーロン爆発過程における位相制御の可能性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 and T. Nakanaga, J. Chem. Phys. **120**, 5176(2004).