

## 高次高調波発生とイオンイメージング法の併用による非断熱的分子 配向制御の検証

### Nonadiabatic molecular orientation studied by high-order harmonic generation and ion imaging spectroscopy

峰本紳一郎<sup>1</sup>、勝見亮太<sup>2</sup>、小松原航<sup>2</sup>、Siobhan Tobin<sup>2,3</sup>、Hsu Liu<sup>2,4</sup>、酒井広文<sup>1</sup>

<sup>1</sup>東大院理、<sup>2</sup>東大理、<sup>3</sup>オーストラリア国立大、<sup>4</sup>リード大

Shinichirou Minemoto<sup>1</sup>, Ryota Katsumi<sup>2</sup>, Wataru Komatsubara<sup>2</sup>,

Siobhan Tobin<sup>2,3</sup>, Hsu Liu<sup>2,4</sup>, and Hirofumi Sakai<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Grad. Sch. of Sci., The Univ. of Tokyo, <sup>2</sup>Sch. of Sci., The Univ. of Tokyo,

<sup>3</sup>The Australian National University, <sup>4</sup>Reed College

E-mail: minemoto@phys.s.u-tokyo.co.jp

私たちは、頭と尻尾の向きを区別して分子の向きを実験室系に対して固定する「分子配向」技術の開発と配向度の向上を目指した研究を進めている。これまでに、静電場とナノ秒レーザー電場を組み合わせる手法[1-3]とナノ秒 2 波長レーザー電場のみを用いた全光学的な手法[4]で断熱的な配向制御に成功した。また、プラズマシャッターの導入により、レーザー電場のない条件下での配向制御にも成功した[5,6]。一方、最近フェムト秒 2 波長パルスにより分子回転波束を励起し、偶数次高調波の観測を以て配向した分子から発生したものと解釈する報告がなされている[7]。偶数次と奇数次の強度比から見積もられた配向度は一般的な条件下で期待される配向度より著しく高く、配向のメカニズムには検証の余地が残る。今回私たちは、一酸化炭素分子 CO を試料とし、偶数次高調波の発生に最適化されたポンプ光で実際にどれだけ高い配向度を達成できるかをクーロン爆裂イメージング法で検証し、偶数次高調波の発生メカニズムを解明することを目指している。

実験はフェムト秒レーザー光を用いたポンプ-プローブ型の手法を採用した。ポンプ光は基本波と BBO 結晶で発生させた第 2 高調波からなり、2 波長間の時間差を方解石結晶で補償した後、 $\lambda/2$  波長板を用いて偏光方向を一致させ、真空槽内の分子試料に照射する。一定の遅延時間後にプローブ光を照射し、発生した高次高調波のスペクトルを平面結像型斜入射分光器と X 線 CCD カメラを用いて観測する。

プローブ光がマルチサイクルパルスの場合、反転対称性をもつ媒質に対しては奇数次高調波のみが発生し、偶数次高調波の発生は禁制となる。一方、試料分子が配向していれば、反転対称性が破れるため、偶数次高調波に対する禁制も解かれる。今回の実験では、ポンプ光を照射して約 8.5 ps 後のスペクトルには奇数次高調波のみが観測されるが、CO 分子の回転周期である約 8.8 ps 後には、14 次や 16 次の偶数次高調波が観測される。すなわち、この遅延時間付近では試料分子が非断熱的に配向している可能性を含め、何らかの形で反転対称性が破れていることを示している。今後、ポンプ光の条件を偶数次高調波の発生に最適化した後、実際にどれだけ高い配向度が達成されるかを速度マップ型の装置を用い、クーロン爆裂イメージング法で検証する。

[1] H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, Phys. Rev. Lett. **90**, 083001 (2003).

[2] S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, T. Suzuki, and H. Sakai, J. Chem. Phys. **118**, 4052 (2003).

[3] H. Tanji, S. Minemoto, and H. Sakai, Phys. Rev. A **72**, 063401 (2005).

[4] K. Oda, M. Hita, S. Minemoto, and H. Sakai, Phys. Rev. Lett. **104**, 213901 (2010).

[5] A. Goban, S. Minemoto, and H. Sakai, Phys. Rev. Lett. **101**, 013001 (2008).

[6] J. H. Mun, D. Takei, S. Minemoto, and H. Sakai, Phys. Rev. A **89**, 051402(R) (2014).

[7] P. M. Kraus, D. Baykusheva, and H. J. Wörner, Phys. Rev. Lett. **113**, 023001 (2014).