

高次高調波発生とイオンイメージングを併用して評価した フェムト秒2波長レーザーパルスによるCO分子の非断熱的な配向度

Nonadiabatic orientation of CO molecules with femtosecond two-color pulses

studied by high-order harmonic generation and ion imaging spectroscopy

○峰本紳一郎¹、梅本滉嗣²、住谷達哉²、小松原航²、酒井広文¹ (1. 東大院理、2. 東大理)

○Shinichirou Minemoto¹, Koji Umemoto², Tatsuya Sumiya², Wataru Komatsubara²,

and Hirofumi Sakai¹ (1. Grad. Sch. of Sci., The Univ. Tokyo, 2. Sch. of Sci., The Univ. Tokyo)

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

私たちは、頭と尻尾の向きを区別して分子の向きを制御する「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の回転波束を励起し、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。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することにより、偶数次高調波の発生メカニズムの解明を目指している。

実験はフェムト秒レーザー光（中心波長 $\lambda \sim 800$ nm）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から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、試料分子の反転対称性が何らかの形で破れていれば、偶数次高調波発生に対する禁制も解かれる。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、CO 分子の回転周期である約 8.8 ps 後には、14 次や 16 次等の偶数次高調波が観測された。すなわち、この遅延時間付近では、試料分子の反転対称性が破れていることを示している。

そこで、実際にどの程度の配向度が達成されているかを検証するために、偶数次高調波の発生に用いた2波長のポンプ光を速度マップ型のイメージング装置に導入し、クーロン爆裂により生成した O^+ フラグメントイオンの角度分布から配向の度合 $\langle \cos \theta_D \rangle$ を評価した。ポンプ光とプローブ光の偏光が互いに平行で検出器面にも平行の時は、ポンプ光照射後 8.8 ps 付近で $\langle \cos \theta_D \rangle$ が最大 0.01 程度であることが分かった。一方、プローブ光の偏光方向のみを検出器面に垂直にし、イオン化確率の異方性に起因するバイアスが少ない実験配置で評価すると $\langle \cos \theta_D \rangle$ は 0.005 以下であることが分かった。今回、十分有意な信号強度の偶数次高調波の発生を分子配向のみで説明するには配向度が低過ぎることが明らかになった。したがって、マクロな分子配向以外に反転対称性を破る何らかのメカニズムが偶数次高調波の発生に寄与していることを示唆している。

- [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).