

高強度フェムト秒レーザーパルスを用いた波束操作

(分子科学研究所¹, 総研大², 科学技術振興機構(CREST)³)

○ 香月 浩之^{1,2,3}, 後藤 悠^{1,2}, J.-Ch. Delagnes^{1,3}, 千葉 寿^{1,3}, 大森 賢治^{1,2,3}

【序】ヤングのダブルスリット実験は光の波の干渉効果を示す最も有名な実験である。波動関数も波の一種であり、同様の干渉効果を示すことがよく知られている。これまでに、電子や原子といった粒子の並進運動や原子・分子の電子・振動・回転などの各内部自由度における波動関数の干渉効果の観測がなされてきた。さらに波束を励起するレーザー光を操作することで波束中の各固有状態の振幅・位相を制御することも可能である。我々もこれまでの研究で、単一のフェムト秒レーザーパルスでヨウ素の電子励起状態に作製した振動波束の自己干渉効果を時空間の二次元で可視化する実験[1]や、位相ロックしたダブルパルスを用いて波束中に位相振幅情報を書き込み、読み出す実験を行った[2, 3]。今回はポンプ・プローブ光以外に波束の状態を乱すための高強度フェムト秒パルスを入射し、波束に及ぼす影響を観測した。

【実験】ヨウ素分子の電子状態ポテンシャルを図1に示す。最初の実験では、波長530nm 周辺のパルスレーザーを用いて B 電子励起状態に作成した振動波束に対

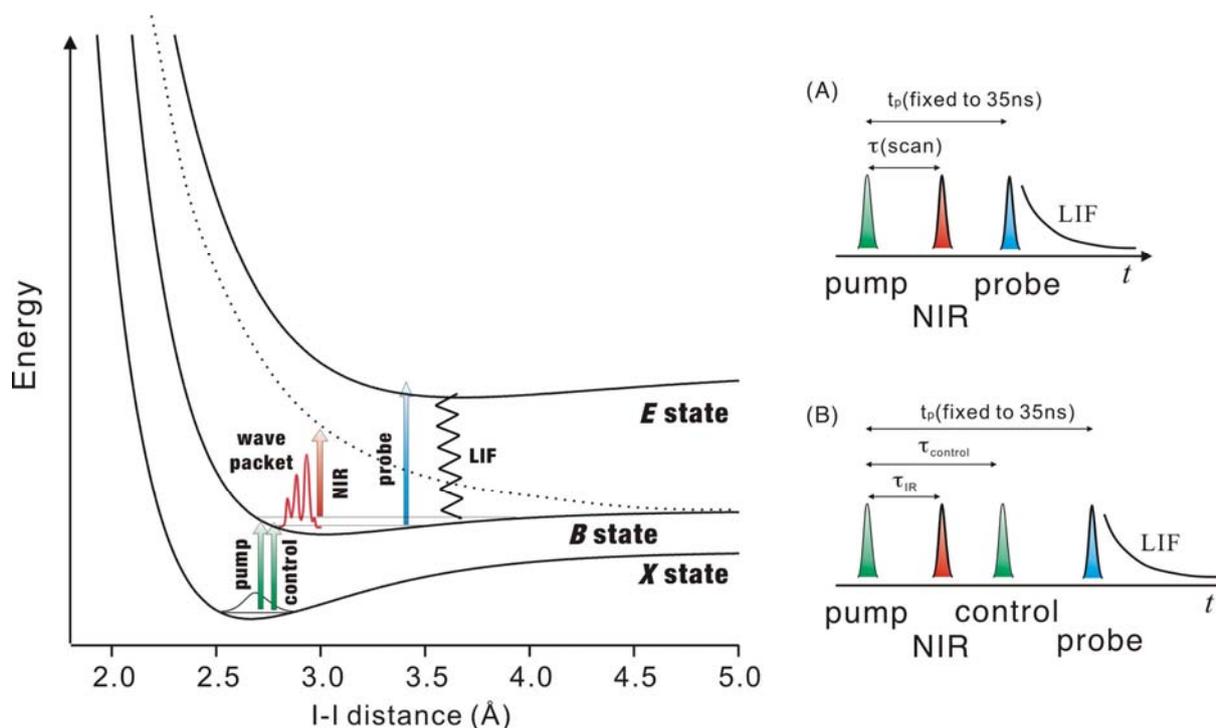


図1 (左) ヨウ素分子の電子状態ポテンシャルと実験スキーム。(右 A)各振動準位のポピュレーションを観測するためのパルスシーケンス。(右 B) 各振動固有関数の位相の変化を観測するためのパルスシーケンス。

し、波長 800nm の高強度フェムト秒パルス(NIR パルス)を照射する。その後、35ns 経過後に特定の E←B 遷移に共鳴した波長のナノ秒プローブ光を用いて波束中に含まれる各振動固有状態のポピュレーションを選択的に計測した (図 1 (A))。さらに NIR パルス照射後に pump 光と同じ波長、強度を持った control パルスを NIR パルス照射後の波束と相互作用させることで、NIR パルスが各振動固有状態の波動関数の位相に影響を与えるかどうかを観測する実験を行った(図 1 (B))。pump 光と control 光の間の遅延時間を高分解能で掃引することで、control 光との相互作用後のポピュレーションはフリンジパターンを形成する。

【結果】 NIR パルスが波束に与える影響としては、(i)マルチフォトン過程による分子のイオン化・解離、(ii)反結合性の電子状態への励起とその後の解離、(iii)共鳴・非共鳴ラマン過程によって、波束内でのポピュレーション分布・位相が乱れる、等が考えられうる。今回の実験では B 状態のポピュレーションをモニターしているため、(i)、(ii)の影響はポピュレーションの減少として観測されるはずである。NIR パルス入射後の各振動準位のポピュレーションを計測した場合、各振動状態に固有の周波数でポピュレーションがビートしている様子が観測された。さらに、位相の測定においても、NIR パルスを入射するタイミングをうまく選ぶことで、固有状態の位相が乱れていることが観測された。この位相擾乱効果には振動準位依存性も認められた。NIR パルスの強度依存性からは、非線形な過程の寄与は認められなかった。波束が B 状態ポテンシャル上を左右に運動するとき、ある核間距離にあるときに NIR パルスによる Franck-Condon 窓を通過し、(ii)及び(iii)の過程が効率的に起こると考えられる。結果に関する詳しい解析、考察について当日発表する。

【参考文献】

- [1] H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, *Science* **311**, 1589 (2006).
- [2] K. Ohmori, H. Katsuki, H. Chiba, M. Honda, Y. Hagihara, K. Fujiwara, Y. Sato, and K. Ueda, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 093002 (2006).
- [3] H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, K. Ohmori, *Phys. Rev. A* **76**, 013403 (2007).