

## 非共鳴高強度短パルスレーザーにより生成した 回転量子波束の位相・振幅の決定

(分子研・総研大) ○長谷川宗良、大島康裕

【序】異方的な分極率を持つ分子が、非共鳴高強度短パルスレーザー光と相互作用すると、非断熱回転励起 (Non-Adiabatic Rotational Excitation: NAREX) により回転波束を生成する事が知られている [1]。実験的に回転波束の波動関数を決定することは、単なる物理的な興味だけでなく分子配列のコヒーレント制御や回転状態分布の制御など応用面においても重要である。従来の研究では、分子配列の観点から回転波束の空間分布の測定がなされてきたが [2]、位相情報も含めて回転波動関数を決定した例は今までない。本研究では、NAREX により生成した回転波束の波動関数の位相・振幅を、実験的に決定するための方法を提案する。

【理論】初期回転状態が  $|J_i\rangle$  である電子基底状態の分子に、非共鳴高強度短パルスレーザーを照射すると、NAREX により回転波束  $|\Psi(t)\rangle$  が生成する。これは回転固有状態  $\{|J\rangle\}$  を基底として次式のように展開できる。

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_J A_{J_i J} e^{i\delta_{J_i J}} e^{-i\omega_J t} |J\rangle \quad (1)$$

ここで  $A_{J_i J}$  および  $\delta_{J_i J}$  は、状態  $|J_i\rangle$  から  $|J\rangle$  への確率振幅および位相であり、実数値をとる。 $\omega_J$  は、状態  $|J\rangle$  のエネルギー (角周波数表示) である。この波束に対して  $\cos^2\theta$  の期待値を考えると、次式のように表すことができる。

$$\langle \Psi(t) | \cos^2\theta | \Psi(t) \rangle = \sum_J A_{J_i J}^2 \langle J | \cos^2\theta | J \rangle + 2 \sum_{J' > J''} A_{J_i J'} A_{J_i J''} \langle J' | \cos^2\theta | J'' \rangle \cos(\omega_{J' J''} t + \delta_{J_i J'} - \delta_{J_i J''}) \quad (2)$$

ここで  $\omega_{J' J''} \equiv \omega_{J'} - \omega_{J''}$  である。(2) 式を時間  $t$  に関してフーリエ変換すると、強度  $2A_{J_i J'} A_{J_i J''} \langle J' | \cos^2\theta | J'' \rangle$  および位相  $\delta_{J_i J'} - \delta_{J_i J''}$  を持つピークが  $\omega = \omega_{J' J''}$  にあらわれる。このため、 $\cos^2\theta$  の期待値を観測することで、振幅  $A_{J_i J}$  および位相  $\delta_{J_i J}$  に関する情報を得ることができる。

振幅および位相情報を得る他の方法として、(1)式で表される波束に対して、時間  $\tau$  の後、同じ強度・パルス幅を持つ第2のパルスを照射することを考える。波束は変調を受け次式で表される波束に変化する。

$$|\Psi(t; \tau)\rangle = \sum_J B_{J_i J}(\tau) e^{-i\omega_J t} |J\rangle \quad (3)$$

ここで  $B_{J_i J}(\tau)$  は、遅延時間  $\tau$  の2つのパルス (ダブルパルス) により状態  $|J_i\rangle$  から状態  $|J\rangle$  へ遷移する確率振幅である。 $B_{J_i J}(\tau)$  の絶対値の2乗は、我々が既に報告しているように波束の回転状態分布として観測可能な量であり、以下のように表わすことができる [3]。

$$|B_{J_i J}(\tau)|^2 = \sum_J A_{J_i J}^2 A_{J_i J}^2 + 2 \sum_{J' > J''} A_{J_i J'} A_{J_i J''} A_{J_i J'} A_{J_i J''} \cos(\omega_{J' J''} \tau + \delta_{J_i J'} + \delta_{J_i J''} - \delta_{J_i J'} - \delta_{J_i J''}) \quad (4)$$

(4) 式の  $\tau$  に関するフーリエ変換は、位置  $\omega = \omega_{J' J''}$  に、強度  $A_{J_i J'} A_{J_i J''} A_{J_i J'} A_{J_i J''}$ 、位相  $\delta_{J_i J'} + \delta_{J_i J''} - \delta_{J_i J'} - \delta_{J_i J''}$  をもつピークを与える。これから、生成した回転波束の波動関数に関する振幅・位相情報を実験的に得ることができる。

【結果・考察】単純なモデルとして  $N_2$  分子を用い、我々の提案した理論を検証した。図1に時間依存の Schrödinger 方程式を計算して得られた  $\cos^2\theta$  の期待値、およびそのフーリエ変換スペクトルを示す。(2)式から期待されるように、 $\cos^2\theta$  の期待値は多くの回転状態間のエネルギー差

に相当する周波数成分から構成されている事がわかる。例えば、 $\omega_{2,0}$  のピークに着目すると、(2)式より、ピーク強度は  $2A_{0,2}A_{0,0}\langle 2|\cos^2\theta|0\rangle$  であり、位相は  $\delta_{0,0} - \delta_{0,2}$  となる。波動関数の絶対位相は観測に影響を与えないため、 $\delta_{0,0} = 0$  としてよく、相対位相  $\delta_{0,2}$  を得ることができる。振幅  $A_{0,J}$  に関しては他のピークの振幅と規格化条件から決定することができるが、 $\cos^2\theta$  の期待値を再現する解が2組あり、一意に振幅を決定できない事がわかった。

図2に時間依存の Schrödinger 方程式を計算して得られた、回転状態  $J = 0$  のポピュレーション変化  $|B_{0,0}(\tau)|^2$ 、およびそのフーリエ変換を示す。ここで、 $\omega_{2,0}$  のピークに着目すると、(4)式より、ピーク強度は  $2A_{0,2}^2A_{0,0}^2$  であり、位相は  $2(\delta_{0,0} - \delta_{0,2})$  となる。位相に関しては、先に述べたように  $\delta_{0,0} = 0$  とし、 $2\delta_{0,J}$  を決定することができる。ただし、 $-\pi \leq 2\delta_{0,J} < \pi$  であるため、波動関数の相対位相  $\delta_{0,J}$  には  $\pi$  の不確かさがともなう。振幅  $A_{0,J}$  に関しては、各ピークの振幅および規格化条件より一意に決めることができる。さらにダブルパルスを用いた測定では、複数の  $J$  に対して  $|B_{0,J}(\tau)|^2$  を測定できるため、遷移振幅  $A_{0,J}$  に加え、波束に関与する任意の状態  $|J_1\rangle$  から  $|J_2\rangle$  への遷移振幅  $A_{J_1,J_2}$  も決定することができる。

表1に、観測量である  $\cos^2\theta$  の期待値、および  $|B_{0,0}(\tau)|^2$  から得られた位相・振幅と、時間依存の Schrödinger 方程式を解いて直接得られた回転波束の位相・振幅を示す。一つの不確かさが伴うが、我々の提案した方法によって、回転波束の波動関数を振幅・位相情報ともに精度よく再構成できている。

表1 NAREX により生成した回転波束の振幅および位相。  $\cos^2\theta$  から得られた振幅には解がもう一組ある。  $|B_{0,0}(\tau)|^2$  から得た位相は  $\pi$  の不確か性を伴う。

	位相				振幅		
	$\cos^2\theta$	$ B_{0,0}(\tau) ^2$	Exact		$\cos^2\theta$	$ B_{0,0}(\tau) ^2$	Exact
$\delta_{0,0}$	0	0	0	$A_{0,0}$	0.277	0.277	0.277
$\delta_{0,2}$	2.22	2.23	2.23	$A_{0,2}$	0.298	0.299	0.298
$\delta_{0,4}$	0.300	0.317	0.316	$A_{0,4}$	0.272	0.273	0.273
$\delta_{0,6}$	2.24	2.26	2.26	$A_{0,6}$	0.619	0.617	0.616
$\delta_{0,8}$	-2.22	-2.19	-2.18	$A_{0,8}$	0.530	0.532	0.532
$\delta_{0,10}$	-0.360	-0.316	-0.308	$A_{0,10}$	0.291	0.290	0.290

【参考文献】

[1] F. Rosca-Pruna and M.J.J. Vrakking, Phys. Rev. Lett., **87**, 153902 (2001); J. Chem. Phys., **116**, 6567 (2002); *ibid.*, **116**, 6579 (2002).  
 [2] H. Stapelfeldt and T. Seideman, Rev. Mod. Phys. **75**, 543 (2003).  
 [3] H. Hasegawa and Y. Ohshima, Phys. Rev. A, **74**, 061401(R) (2006); 分子構造総合討論会 2006 静岡 4C13.

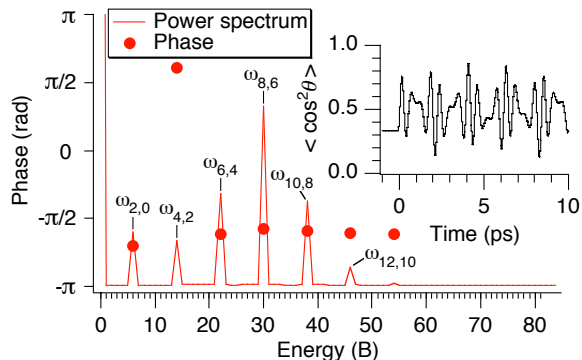


図1  $\cos^2\theta$  の期待値およびそのフーリエ変換スペクトル。

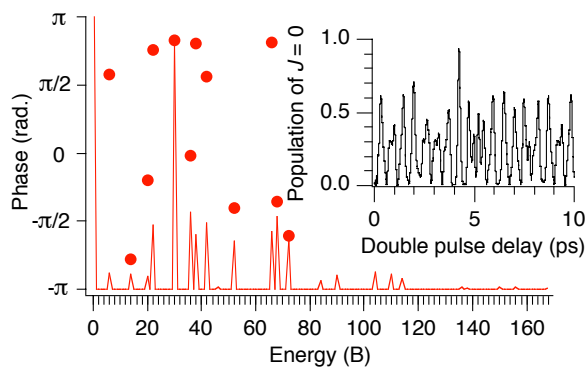


図2 ダブルパルスの遅延時間を変化させた時の  $J = 0$  のポピュレーション変化およびそのフーリエ変換スペクトル。