

## 高強度近赤外フェムト秒パルスを用いた

## 分子振動波束の振幅位相制御

(分子研<sup>1</sup>, 総研大<sup>2</sup>, CREST<sup>3</sup>) ○香月浩之<sup>1,2,3</sup>, 後藤悠<sup>1,2</sup>,  
Delagnes J.Christophe<sup>1,3</sup>, 千葉寿<sup>1,3</sup>, 大森賢治<sup>1,2,3</sup>

【序】分子や原子等のミクロな粒子の運動は量子力学に支配され、波動関数によってその状態は記述される。こうした波動関数は当然“波”の一種であるから、波の特徴である回折や干渉といった現象を示す。電子基底状態にいる分子に適切な波長の超短パルスレーザー光を照射すると、電子振動固有状態のコヒーレントな重ね合わせ（振動波束）が生じる。例えば、二発のパルスを照射すれば分子内に二つの振動波束を作成することができ、これらは互いに干渉し合いながら独立の時間発展を行う。ここで重要な点は、照射したレーザーパルスが保持している位相・振幅の情報が光と分子との相互作用の結果、分子の振動波束に転写されるということである。この結果、光の振幅・位相を制御することにより、生成される分子振動波束の振幅位相制御を行うことが可能となる。我々のグループでは、これまでにいくつかの分子波束の位相振幅制御の書き込み、読み出しのデモンストレーションを行ってきた<sup>[1]-[3]</sup>。本研究では次のステップとして、あらかじめ作成した振動波束に対して高強度のフェムト秒パルスを照射することで、位相振幅情報の書き換えを試みた。

【実験】今回の実験のスキームを図1に示す。対象は Ar ガスをバッファーに用いた分子ジェット中のヨウ素分子である。最初の実験では、波長 533nm 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し、波長 800nm の高強度フェムト秒パルス(NIR パルス)を照射した。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 (Case A))。各振動固有関数の位相の変化を観測するためには、NIR パルス照射後にポンプ光と同じ波長、強度を持ったコントロール光を NIR パルス照射後の波束と相互作用させ、その後にナノ秒プローブ光でポピュレーションの計測を行った (図1 (Case B))。これら二つの実験を組み合わせることで、NIR パルス照射による振動波束の振幅・位相の変化を知ることができる。

【結果】実験の結果、NIR パルス照射後の波束では最大 60%程度のポピュレーションの減少が観測された。ポンプ光と NIR 光の間の遅延時間 $\tau_{\text{NIR}}$ を変化させたとき、各振

動準位のポピュレーションはそれぞれ異なる周期でビートするのが観測された。ビート周期は各振動準位近傍での波束の古典的振動周期と対応している。一方、位相測定においては NIR 光の入射によって最大  $50^\circ$  程度の位相のずれが生じていることが観測された。さらに位相のずれ方は  $\tau_{\text{NIR}}$  によっても変化しているのが観測された。

【議論】 B 状態にある波束に 800nm の NIR 光を照射した場合、起こりうる過程としては(i)多光子イオン化、(ii)反結合性の電子状態への遷移とそれに伴う分子解離、(iii)反結合性の電子状態を中間状態とした Raman 的過程による波束中でのポピュレーションの再分布、等が考えられる。今回の実験では NIR 照射後の B 状態の波束を観測しているため(iii)の過程が重要であると考えられる。時間依存 Schrödinger 方程式を用いたシミュレーションによる結果をふまえて、NIR 光照射によって B 状態上の振動波束に起こる過程について考察を行う。

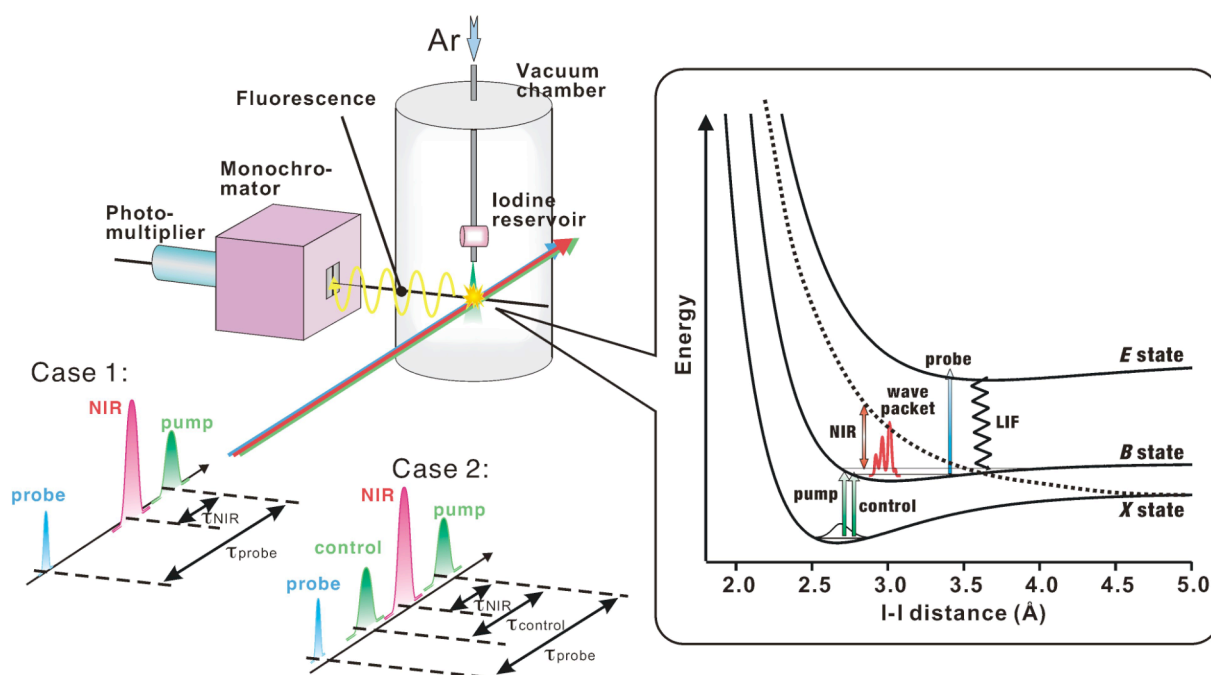


図1 高強度近赤外フェムト秒パルスを用いた波束干渉制御実験のスキーム。Case1:波束中の固有状態のポピュレーションの観測時の光パルス列。Case2: 波束中の固有状態の位相計測のための光パルス列。

#### 【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).