

非共鳴高強度短パルス光で生成した
ベンゼン回転量子波束の実験的位相・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 [1]) により回転波束を生成する事が知られている [2]。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 [3]、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。本講演では、NAREX により生成したベンゼンの回転波束の位相・振幅を、実験的に決定できたので報告する [4,5]。

【実験】サンプル (C_6H_6/He 90 atm) はパルスバルブを用いて真空チャンバーへ噴出し、スキマーで超音速分子線としたのちに、飛行時間型質量分析器 (TOF-MS) へ導入した。フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーからの出力 (ポンプ光: 820 nm, 1~2 mJ/pulse, 50~700 fs, 1 kHz) を焦点距離 300 mm のレンズを用いて相互作用領域に集光し、ベンゼンを回転励起させた。ポンプ光を2つ用いるダブルパルスの実験においては、マイケルソン干渉計によって遅延時間 τ を持つ2つのパルスを生成した。ポンプ光照射後約 100ns 後に、色素レーザーの2倍波 (プローブ光: 258 nm, 10 μJ /pulse, $\Delta E = 0.05$ cm^{-1}) を用いて、励起した分子の回転状態分布を S_1-S_0 6^1_0 遷移を経由した二光子共鳴多光子イオン化 (REMPI) によって測定した。ポンプ光とプローブ光の重なりを確実にするため、およびポンプ光強度の不均一性を出来る限り小さくするために、相互作用領域においてポンプ光は 10 mm 程度焦点位置をずらし、プローブ光は短焦点レンズ ($f = 170$ mm) で集光した。ポンプ光、プローブ光の偏光はともに TOF 軸に平行とした。

【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 (直線偏光では、角運動量 J の射影成分 K, M は保存する)。

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

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。 $\omega_J = E_J/\hbar$ で、状態 $|J\rangle$ の角周波数である。振幅および位相情報を得るために、(1)式で表される波束に対して、時間 τ 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。

$$|\Psi(t; \tau)\rangle = \sum_J B_{J_i J}(\tau) e^{-i\omega_J t} |J\rangle \quad (2)$$

ここで $B_{J_i J}(\tau)$ は、遅延時間 τ のダブルパルスにより状態 $|J_i\rangle$ から状態 $|J\rangle$ へ遷移する複素確率振幅である。 $|B_{J_i J}(\tau)|^2$ は、波束の回転状態分布として実験的に観測可能な量であり、特に、 $J = J_i$ とした場合は、以下のように表わすことができる [5]。

$$|B_{J_i J}(\tau)|^2 = \sum_{J'} A_{J_i J'}^4 + 2 \sum_{J' > J''} A_{J_i J'}^2 A_{J_i J''}^2 \cos(\omega_{J' J''} \tau + 2\delta_{J_i J''} - 2\delta_{J_i J'}) \quad (3)$$

ここで $\omega_{J' J''} \equiv \omega_{J'} - \omega_{J''}$ である。(3)式を用いることで、生成した回転波束の波動関数の振幅・位

相を実験的に決定できる。

【結果・考察】図1にポンプ光としてシングルパルスを用いた場合の励起スペクトルを示す。シミュレーション(図1b)との比較によって、初期の回転温度は0.5 Kと見積もられた。ポンプ光を照射すると、新たな遷移が観測され、 $J = 10$ まで回転状態が励起されていることが分かった(図1c)。この回転励起がNAREXに由来することを確かめるために、時間依存Schrödinger方程式を解き、シミュレーションを行った。計算による励起スペクトルを図1dに示す。計算と実測とは良い一致を示しており、観測された回転励起はNAREXに起因することが裏付けられた。

次に、ポンプ光によって生成した回転波束の振幅・位相を決定するために遅延時間 τ を持つダブルパルスを用いた実験を行った。理論から分かるように、観測されるポピュレーション $|B_{J,J}(\tau)|^2$ のビート信号には、回転波束の位相・振幅情報が含まれている。初期状態 $J = 0$ ($K = 0, M = 0$)に対して、 $|B_{00}(\tau)|^2$ を測定するために、プローブ波長を $R_0(0)$ 遷移に固定し、遅延時間を変化させてイオン収量の測定をおこなった。結果を図2に示す。観測された信号はポンプ光を入射しない時のイオン強度で規格化した。期待されるようにビート信号が観測され、また $T_{rev} = 88$ psの周期性も観測された。観測されたビートから位相・振幅を決定するために、(3)式を用いて非線形最小二乗法によりフィッティングをおこなった。決定された位相($\delta_{J,J}$)およびポピュレーション($A_{J,J}^2$)を図3に示す。また、実験を再現するようにポンプ光強度を調節して得られた計算結果も示した。10 TW/cm²のとき最もよく実験結果を再現するが、実測のパルスエネルギー、時間幅、ビームサイズから評価したポンプ光強度(8.4 TW/cm²)と良く一致した。ここで得られた位相・振幅から、(1)式に従って回転量子波束を初めて完全に再構築することができる。

【参考文献】

- [1] H. Hasegawa and Y. Ohshima, Phys. Rev. A, **74**, 061401(R) (2006).
- [2] F. Rosca-Pruna and M.J.J. Vrakking, Phys. Rev. Lett., **87**, 153902 (2001); J. Chem. Phys., **116**, 6567 (2002); **116**, 6579 (2002).
- [3] H. Stapelfeldt and T. Seideman, Rev. Mod. Phys. **75**, 543 (2003).
- [4] H. Hasegawa and Y. Ohshima, Chem. Phys. Lett., **454**, 148 (2008).
- [5] H. Hasegawa and Y. Ohshima, Phys. Rev. Lett., in press.

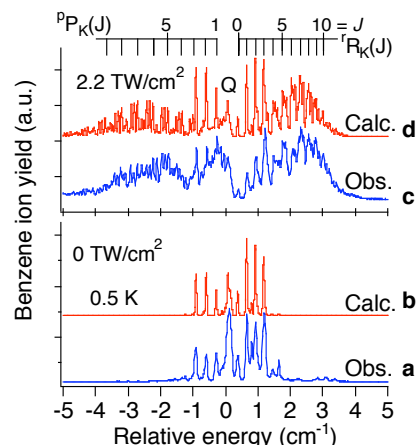


図1 ベンゼン S_1-S_0 6^1_0 遷移の(1+1) REMPI スペクトル。(a), (c)はポンプ光強度を変えて観測したスペクトル、(b), (d)はシミュレーションによるスペクトル。ポンプ光のパルス幅は700 fs。

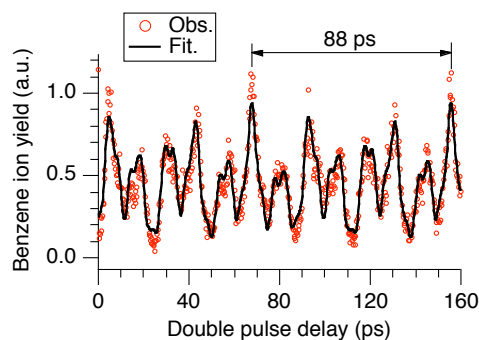


図2 プローブ波長を $R_0(0)$ 遷移に固定し、ポンプ光のダブルパルスの遅延時間を変化させた時の信号強度の変化。ポンプ光のパルス幅は、70 fs、強度は8.4 TW/cm²。

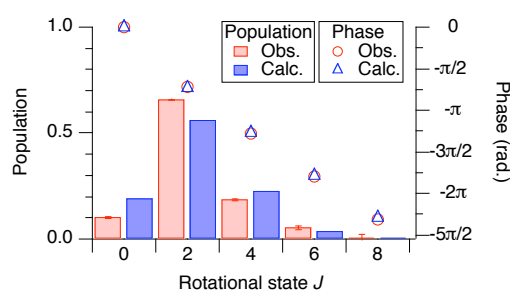


図3 実験から再構築された回転量子波束の位相およびポピュレーションおよび計算値