

4P041

高強度近赤外パルスの波形整形を用いた分子振動波束操作

(総研大¹, 分子研², CREST³, テンプル大⁴)

○後藤悠^{1,2}, 香月浩之^{1,2,3}, 千葉寿^{2,3}, J. Brady⁴, S. Smith⁴, R. J. Levis⁴, 大森賢治^{1,2,3}

【序】コヒーレント制御とは、整形したコヒーレントな光電場を用いて、物質の波動関数を操作する技術であり、結合選択的な化学反応制御や量子計算など様々な分野での応用が期待されている。例えば、我々のグループでは、これまでに二つのレーザーパルス間の遅延時間をアト秒レベルの精度で変化させ、これらによって生じる二つの分子振動波束の干渉を制御してきた [1, 2]。この他にも、空間光変調器 (spatial light modulator, SLM) を用いれば、より複雑な波形整形が可能であり、これに学習適応制御を組み合わせることで、様々なコヒーレント制御が行われている [3]。

最近我々のグループでは、ヨウ素分子の電子励起状態に生成した振動波束に高強度近赤外フェムト秒レーザーパルスを照射した際に、波束を構成する各振動固有状態の振幅と位相に現れる変化について調べてきた。本研究は、さらに近赤外パルスに対して波形整形を施し、その影響を明らかにすることを目的としている。その第一段階として、近赤外パルスのチャープ量を変化させ、各振動固有状態の振幅の変化について調べた。

【実験】図 1 にヨウ素分子のポテンシャルの模式図および実験スキームを示す。ジェット中のヨウ素分子に 530 nm 付近のフェムト秒レーザーパルス (pump pulse) を照射して B 電子励起状態に振動波束を生成し、これに 800 nm の高強度近赤外フェムト秒レーザーパルス (NIR pulse) を照射した。続いて、ナノ秒レーザーパルス (probe pulse) を用いて E - B 遷移を起こし、 E 状態からの蛍光 (LIF) を観測した。バンド幅の狭いナノ秒レーザーパルスを用いることによって、 B 状態上の波束を構成する各振動固有状態のポピュレーションを選択的に観測することができる。このとき、NIR pulse の pump pulse に対する遅延時間 (τ_{NIR}) を掃引し、ポピュレーションの τ_{NIR} 依存性を測定した。さらに、NIR pulse のチャープ量を変化させ、同様の測定を行い、チャープ量依存性を調べた。

【結果】 B 状態上の各振動固有状態のポピュレーションは、NIR pulse の照射によって減少し、 τ_{NIR} の関数として古典的な分子振動周期で振動する。これは、NIR pulse の照射により波束内の振動固有状態間でポピュレーションの再分配が起こり、この際、同一の振動固有状態に至る複数の異なった再分配経路が干渉するためであると考えられる。さらに、NIR pulse をチャープさせたところ、この振動の位相や形状が、NIR pulse のチャープ量に依存して変化

する様子が観測された。NIR pulse にチャープを与えることによって、複数の再分配経路の相対位相が変化し、その結果、振動パターンが変化したと考えられる。

参考文献

1. K. Ohmori, H. Katsuki, H. Chiba. *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 093002 (2006).
2. H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, Phys. Rev. A **76**, 013403 (2007).
3. 例えば、D. Goswami, Physics Reports **374**, 385 (2002); R. J. Levis, G. M. Menkir, H. Rabitz, Science **292**, 709 (2001) などを参照。

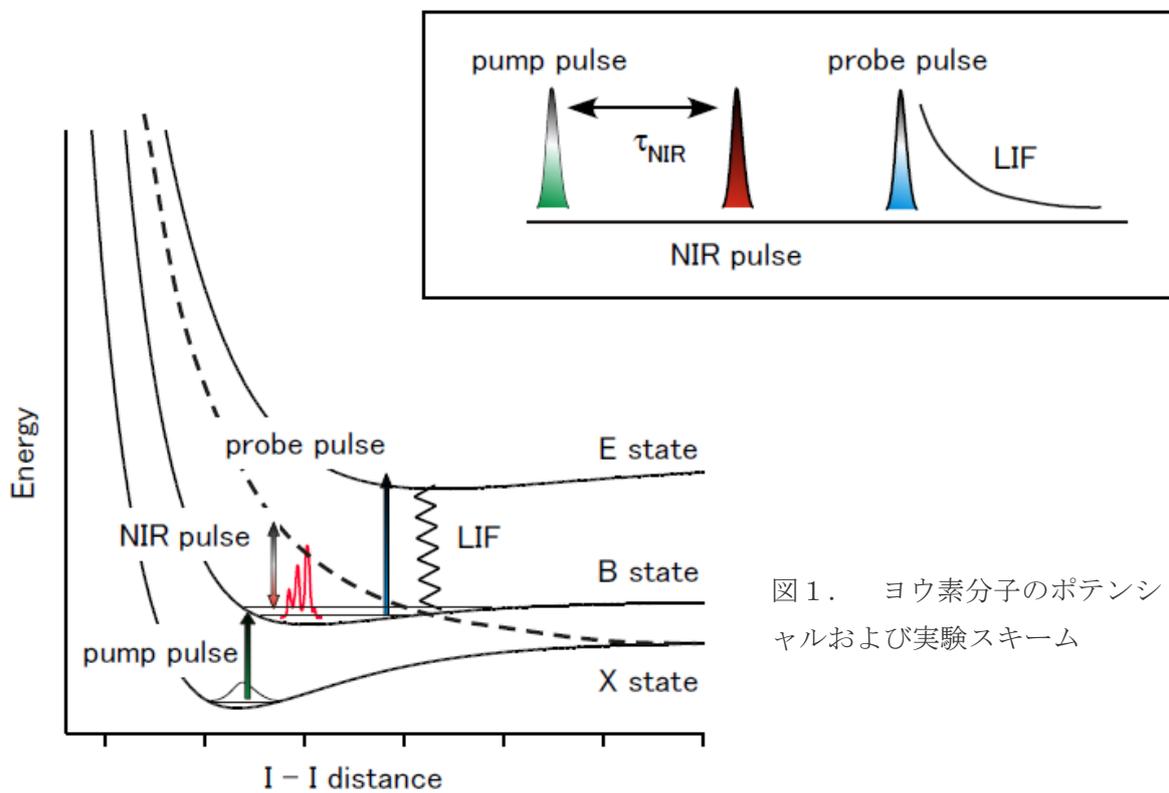


図1. ヨウ素分子のポテンシャルおよび実験スキーム