

## 4A12

### 直線偏光極短パルスによる回転角運動量オリエンテーション

(総研大, 分子研) ○北野健太, 長谷川宗良, 大島康裕

【序】 分子回転の角運動量はベクトルで表わされ、これを空間的に配向させるためには、量子数  $M$  (角運動量の空間固定系  $Z$  軸射影成分) でラベルされる縮退した  $2J + 1$  個の準位への分布に異方性を導入しなければならない。特に角運動量ベクトルの向きは、 $\pm|M|$  の符号と関連している。角運動量の配向に関しては、Optical pumping を始めとして様々な手法が考案され、主に定常状態の視点から研究が行われてきた。我々は、近年確立された手法である非断熱回転励起を用いて、角運動量が配向した波束を生成させる手法を提案する。また、本手法により角運動量の空間分布を実験的に配向することに成功した。

【概要】 量子数  $\pm|M|$  の縮重は、空間固定系  $Z$  軸回りの左右の回転に対して場が対称であることに起因している(図1参照)。相対偏光面が  $45^\circ$  の直線偏光のダブルパルス(ポンプ光)を用いれば対称性を崩すことができる。生成した  $\pm|M|$  分布の異方性は、円偏光プローブパルスの偏光方向を反転させた時のスペクトルの差として検出することが可能である。

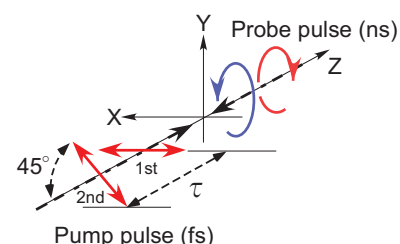


図1 ポンプ光、プローブ光の偏光

【シミュレーション結果】 図2に、ポンプ光照射後の分子の回転状態分布を、ダブルパルスの遅延時間に対して計算した結果を示す。サンプルにはベンゼン分子を考え、初期状態を  $|J,K,M\rangle = |0,0,0\rangle$  とした ( $J$ :角運動量量子数、 $K$ :分子軸射影成分の絶対値)。ポンプ光の電場強度が低い極限(上段)では、 $|J,M\rangle = |2,\pm 2\rangle$  の各状態は、逆位相の正弦波を描く。周期( $\approx 29.3$  ps)は  $|J,K\rangle = |0,0\rangle \leftrightarrow |2,0\rangle$  の遷移周波数の逆数に対応し、これは同準位間に生成した回転波束のビート周期である。電場強度を上げると(下段)、高次の効果により複数の周波数成分を含み、単純な正弦波ではなくなる。しかし、 $1/4, 3/4$  周期近傍でなお大きな異方性が現れている。実験は、下段の強度で行われた。

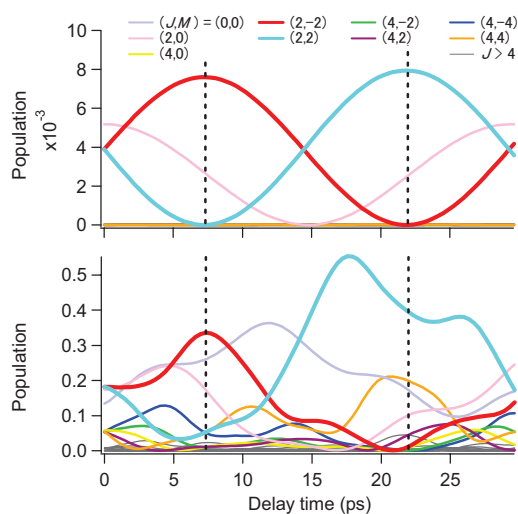


図2 ポンプ照射後の回転状態分布の遅延時間依存性  
(上段:  $0.1 \text{ TW/cm}^2$ , FWHM: 200 fs  
下段:  $1.2 \text{ TW/cm}^2$ , FWHM: 200 fs)

【実験】 サンプルにはベンゼン分子を用い、NeまたはHeに希釈しパルスバルブ(開口時間  $\sim 20 \mu\text{s}$ )によって真空チャンバー中に超音速ジェットとして噴出させた(回転温度  $\sim 1 \text{ K}$ )。ポンプ光にはTi:Sレーザー( $1 \text{ kHz}$ ,  $\sim 800 \text{ nm}$ ,  $\sim 40 \text{ fs}$ )を用い、イオン化を避けるためにパルス幅を広げた後、マイケルソン干渉計に導入して、遅延時間が制御されたダブルパルス( $\sim 70 \mu\text{J/pulse}$ ,  $\sim 200 \text{ fs}$ )を生成させた。干渉計の一方の光路に  $\lambda/4$  板を挿入し、ダブルパルスの偏光面の相対角度を制御した。これを焦点距離  $300 \text{ mm}$  のレンズで集光させ、分子線上に直交して照射した。プローブ光には、エキシマーレーザー励起色素レーザーの2倍波( $\sim 258 \text{ nm}$ , 分解能  $\sim 0.06 \text{ cm}^{-1}$ )を用い、 $\lambda/4$  板を通して円偏光とした。このパルスを焦点距離  $170 \text{ mm}$  のレンズで集光させ、ポンプ光と対向して照射し、 $S_1 - S_0$  遷移を用いた2光子共鳴イオン化(R2PI)によってイオン化させた。生成したイオンを飛行時間型質量分析器(TOF-MS)により検出した。ダブルパル

その遅延時間を固定しプローブ光の周波数を掃引することで、電子基底状態の回転状態分布を反映したスペクトルを得た。また、プローブ光の周波数を任意の回転線に固定し遅延時間を掃引することで、生成した回転波束のダイナミクスを反映したビート信号を観測した。

### 【結果・考察】

#### [周波数掃引]

図3に、シミュレーション結果(点線)と併せて実験結果(実線)を示す。図中の各ピークには対応する遷移を記載している。ダブルパルスの遅延時間を7.3 psとし、シミュレーション及び中段の実験結果では偏光面の相対角度を $-45^\circ$ 、下段では $+45^\circ$ とした。図中で青/赤色は右/左回り円偏光プローブに対応している(図1参照)。中段と下段の実験結果を比較すると、青/赤色のスペクトルが反転している。これは、左右の回転の対称性による帰結である。核スピンの対称性の制限から、ジェット冷却されたベンゼン分子は、主に $|J,K\rangle = |0,0\rangle, |1,0\rangle, |1,1\rangle, |2,2\rangle, |3,3\rangle$  にインコヒーレントに分布している。各 $|J,K\rangle$ に対して $2J+1$ 個の $M$ 状態を考慮すると19個の初期状態がある。図3のスペクトルはこれらのアンサンブル和であり、角運動量が配向した分子アンサンブルを生成させ、観測した結果である。また、遅延時間7.3 psは、 $|J,K\rangle = |0,0\rangle \leftrightarrow |2,0\rangle, |2,2\rangle \leftrightarrow |3,2\rangle$  に生成した波束のビート周期に対して、異方性が極大となる時間である(図2上段)。実際の回転波束のビート周期は初期状態によって異なり、高次の効果を考慮すると様々な周波数成分を含むが、ほぼ全ての遅延時間で異方性が現れる(図2下段)。図3中の多くの回転線で異方性が現れているのはこのためである。

#### [遅延時間掃引]

図4にシミュレーション結果と実験結果を併せて示す。プローブ光の周波数は ${}^1P_2(3)$ に固定した。左/右円偏光プローブに対するスペクトルが、遅延時間のゼロ点に対して対称的である。これは、ゼロ点をまたぐとダブルパルスの相対角度が実効的に反転するからである( $> 0 \leftrightarrow +45^\circ, < 0 \leftrightarrow -45^\circ$ )。他の回転線に対しても同様のスペクトルを観測することに成功した。

【まとめ】 我々は、角運動量が配向した回転波束を生成させ、周波数領域の分布に射影して観測することに成功した。本手法で用いた非断熱回転励起は、非共鳴回転ラマン過程であり、分極率異方性を持つすべての分子に適応することができる。また、ポンプ光強度、ダブルパルス間の遅延時間、偏光面の相対角度の自由度を利用して、回転波束における角運動量の配向度を制御することができる。これは古典的に捉えれば、分子の回転方向、および角速度を制御できるということである。このように、本手法は、角運動量の配向を量子波束の観点から研究する手法として汎用性が高く有用である。

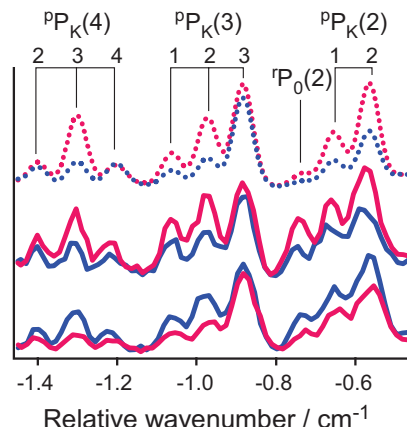


図3 プローブ光周波数を掃引したスペクトル  
上:シミュレーション結果 ( $-45^\circ$ )  
中:実験結果 ( $-45^\circ$ )  
下:実験結果 ( $+45^\circ$ )

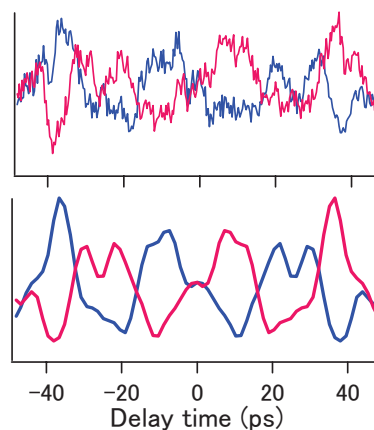


図4 遅延時間を掃引したスペクトル  
(プローブ光周波数:  ${}^1P_2(3)$ ,  
偏光面:  $> 0 \leftrightarrow +45^\circ, < 0 \leftrightarrow -45^\circ$ )  
上:実験結果  
下:シミュレーション結果