

## 近赤外パルスによる分子振動波束の操作

(分子科学研究所<sup>1</sup>, 総合研究大学院大学<sup>2</sup>, CREST<sup>3</sup>, 岩手大学<sup>4</sup>)

後藤悠<sup>1</sup>, 香月浩之<sup>1,2</sup>, 千葉寿<sup>1,3,4</sup>, 大森賢治<sup>1,2,3</sup>

## Controlling vibrational wave packets with near-infrared pulses

(Institute for Molecular Science<sup>1</sup>, The Graduate University for Advanced Studies<sup>2</sup>, CREST<sup>3</sup>, Iwate University<sup>4</sup>)

Haruka Goto<sup>1</sup>, Hiroyuki Katsuki<sup>1,2</sup>, Hisashi Chiba<sup>1,3,4</sup>, Kenji Ohmori<sup>1,2,3</sup>

【序】分子にフェムト秒レーザーパルスを照射すると、複数の振動固有状態がコヒーレントに励起され、振動波束が生成される。この波束は、各固有状態がそれぞれの固有周波数で時間発展するのに応じて、ポテンシャル上で古典的な分子振動に対応する運動を見せる[1]。これを利用し、波束を生成する励起光の位相を調整し、波束中の固有状態の初期位相を調整することにより、波束の運動を制御する試みが行われている[2]。これに対して本研究では、励起光によって生成した分子振動波束が運動を開始した後に別の近赤外パルスを照射した際に起こる、波束の運動及び固有状態の位相の変化を調べた。

【実験】実験では、アルゴンガスをバッファーガスに用いた分子ジェット中のヨウ素分子に対して 540 nm 付近のフェムト秒レーザーパルス（ポンプパルス）を照射し、*B* 電子励起状態に振動波束を生成した。この振動波束に高強度のフェムト秒近赤外パルスを照射し、近赤外パルス照射後の波束について (a) 波束の運動の変化、及び (b) 波束を構成する振動固有状態間の相対位相の変化を調べた[図 1]。

(a) 波束の運動の測定では、フェムト秒プローブパルスを用い、*E* 電子状態からのレーザー誘起蛍光 (LIF) 信号を、ポンプ - プローブの遅延時間を掃引しつつ測定することにより、波束の *B* 電子状態上での運動を観測した。

(b) 位相の測定では、我々のグループで開発された高安定化マイケルソン干渉計(アト秒位相変調器、APM)を用いた[1]。APM で用意したポンプパルスの複製 (リファレンスパルス) によって生成した波束を、近赤外パルス照射後の波束と干渉させた。バンド幅の狭いナノ秒プローブパルスによって固有状態を状態選択し、ポンプ - リファレンスの遅延時間を掃引することによりインターフェログラムを観測した。

【結果と考察】近赤外パルスの照射のタイミングをうまく選べば、ポテンシャルの非調和性によって徐々に非局在化した波束を、再び局在化させたり、より非局在化させたりすることができた。このとき、各固有状態間の相対位相関係が近赤外パルスのタイミングに依存して変化していることが分かった。

参考文献

1. K. Ohmori, Annu. Rev. Phys. Chem. **60**, 487-511 (2009). H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, Phys. Rev. A **76**, 013403 (2007). など
2. M.P.A. Branderhorst, P. Londero, P. Wasylczyk, C. Brif, R.L. Kosut, H. Rabitz, I.A. Walmsley, Science **320** 638 (2008). など

図1 実験の概要：(a) 波束の運動 (b) 波束を構成する振動固有状態間の相対位相

