

## 高強度テラヘルツパルスによる分子配向の実証

(東大物性研) ○北野 健太, 石井 順久, 松本 由幸, 金井 輝人, 板谷 治郎

## Experimental proof of molecular orientation by an intense THz pulse

(ISSP, the University of Tokyo) ○Kenta Kitano, Nobuhisa Ishii, Yoshiyuki Matsumoto,

Teruto Kanai, and Jiro Itatani

【序】異核二原子分子に代表される反転対称性を持たない分子の電子ダイナミクスを解明するためには、分子の回転運動を制御する必要がある。特に、空間のある特定の方向に分子軸を描える技術は分子配向 (orientation) と呼ばれ、盛んに研究されてきた。近年、静電場下で分子に高強度フェムト秒パルス照射することにより、高い配向度を実現する手法が確立されているが[1]、光電子を分子軸系で観測する際、静電場の影響を無視できない。そのため、静電場を用いることなく、かつ、レーザーパルスが照射された後のフィールドフリーの状態での分子配向を実現することが必要となる。その観点から、二波長の高強度レーザーを用いる手法[2]が提案されているが、実験的に実現されている配向度は低い。フィールドフリーで高い配向度を実現するための手法として、高強度テラヘルツ (THz) パルス適用することが有望視されており、近年、室温の分子を対象とした実験により初めて実証された[3]。

同手法をジェット冷却下された分子に適応することは、光電子を測定対象とした実験への展開には必要不可欠であり、また、精密なコヒーレント制御という観点からも重要である。今回、我々はジェット冷却下された HBr 分子に THz パルス照射することにより、分子配向を実現することに成功した。

【実験】HBr 分子の回転定数は、 $B = 8.3482 \text{ cm}^{-1}$  であり、回転量子数を  $J$  として、 $J=0,1$  間のエネルギー差は約  $0.5 \text{ THz}$  ( $1 \text{ THz} = 33.3 \text{ cm}^{-1}$ ) である。これは、パルス面傾斜法[4]により発生する THz パルスのスペクトルのピーク近傍に位置する。同分子を He に希釈しパルスバルブを通じて真空チャンバー中に噴出した。チタンサファイアレーザーからの出力 (Pulse energy: 2.8 mJ, FWHM: 60 fs) を二つのパルスに分割した。パルス対の一方 (Pulse energy: 1.5 mJ) を用いて、パルス面傾斜法により THz パルス生成させ、分子線上に集光させた。他方 (Pulse energy: 1.3 mJ) をプローブパルスとして用い、THz パルスに対する遅延時間を制御して分子線上に集光させた。プ

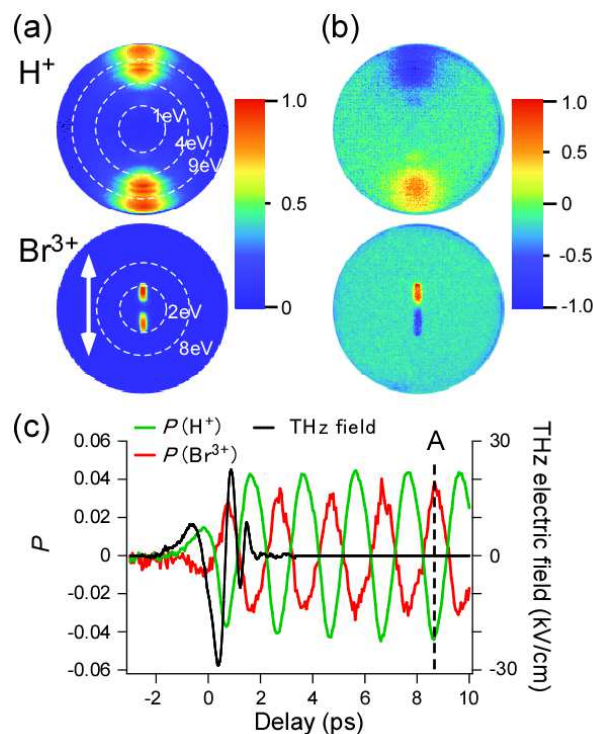


図 1

- (a) プローブパルスのみを照射した場合のフラグメントイオンの二次元運動量画像  
 (b) 遅延時間 A におけるフラグメントイオンの二次元運動量画像。ただし、プローブパルスのみを照射した際の画像との差分を表示している。  
 (c)  $P$  パラメータの THz-プローブパルス間の遅延時間依存性

ローブパルスが照射されることにより、クーロン爆発を介して HBr 分子から種々のフラグメントイオンが生成する。これらを運動量画像観測装置 (Velocity-Map Imaging Spectrometer) により運動量の二次元画像として観測した。検出器にかかる電圧源としてパルス電源 (時間幅: 100 ns) を用いることにより、フラグメントイオンを時間軸上で分離して観測した。THz パルスとプローブパルスとの遅延時間を掃引することにより、THz パルスにより誘起された HBr 分子の回転ダイナミクスに関する信号を得た。

【結果と考察】図 1(a)にプローブパルスのみを照射した場合のフラグメントイオンの観測結果を示す。THz、プローブパルスの偏光方向は平行とし、図中に白色の両矢印で示した。THz パルスを照射しない場合、上向きと下向きの分子がそれぞれ同量だけ存在しているため、両画像は上下に関して対称的となる。THz パルスを照射することによって上向きと下向きの分子の分布量に差が生じる。この異方性を定量的に評価するために、パラメータ、 $P = (I_{\text{up}} - I_{\text{down}}) / (I_{\text{up}} + I_{\text{down}})$  を導入する。ただし、 $I_{\text{up}}$ 、 $I_{\text{down}}$  はそれぞれ上下のイオン強度の合計とする。THz、プローブパルスの各遅延時間で二次元運動量画像を測定し、それを基に  $P$  パラメータを計算した結果を図 1(c)に示す。図中には、実測で得た THz パルスの時間波形を併記している。THz パルスが HBr 分子に照射されると、 $P$  パラメータが変動し始め、THz パルス通過後には周期的に振動していることが分かる。これは、THz パルスによる回転励起に伴い、回転波束が生成され、フィールドフリーの状況下で上向きと下向きの HBr 分子の分布量に異方性が現れたことを示している。図 1(b)に遅延時間  $\Delta$  (図 1(c)中に表示)における各フラグメントイオンの配向画像を示す。

次に、サンプルガスの背圧条件を変えて  $\text{H}^+$ イオンの  $P$  パラメータを測定した結果を図 2(a)に、それらのフーリエ変換によって得られたパワースペクトルを図 2(b)に示す。図中には、HBr 分子の回転エネルギー準位間のエネルギー差を併記している。背圧条件によって、 $P$  パラメータの時間波形、パワースペクトルが大きく変わる。これらをシミュレーション結果と比較することにより、ジェット冷却下における HBr 分子の回転温度および THz パルスとの相互作用による回転励起過程に関して、精密な情報を得ることができる。当日は、この点を含めた解析を行う。

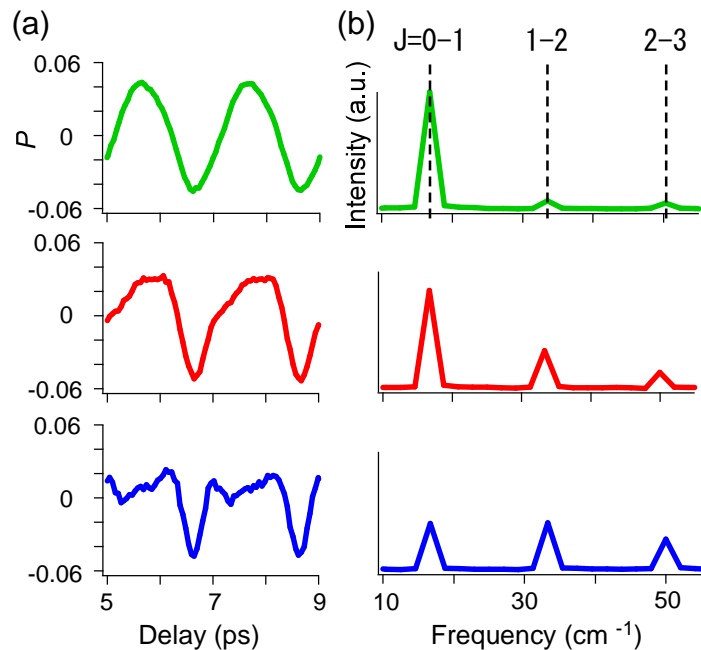


図 2  
(a)  $P$ パラメータの時間変化の背圧依存性 (上段: 5.2 atm, 中段: 3.0 atm, 下段: 2.0 atm)。ただし、THz パルス照射時刻を時間原点とした。  
(b) (a)のフーリエ変換により得られたパワースペクトル。上段の図中には、HBr 分子の各回転準位間のエネルギー差を併記した。

[1] L. Holmegaard *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 023001 (2009); O. Ghafur *et al.*, Nature Phys. **5**, 289 (2009).  
 [2] S. De *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 153002 (2009); K. Oda, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 213901 (2010).  
 [3] S. Fleischer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **107**, 163603 (2011).  
 [4] H. Hirori *et al.*, Appl. Phys. Lett. **98**, 091106 (2011).