

新規画像観測法を用いた分子回転波束ダイナミクスの実時間イメージング  
(分子研, 総研大) ○ 水瀬 賢太, 大島 康裕

Real-time observation of molecular rotational wavepacket dynamics using a  
newly developed ion imaging apparatus  
(IMS, SOKENDAI) ○ Kenta Mizuse, Yasuhiro Ohshima

【序】分子のダイナミクスを直接的に可視化し、実時間で追跡することはダイナミクス研究における基本的な目的である。しかし、通常の気相分子のアンサンブルにおいて、それぞれの分子はランダムに配向、運動しているため、観測したいダイナミクスを可視化することは容易でない。近年研究の進むコヒーレント制御法を適用し、分子集団が揃って運動している状況を実現すれば、画像観測法によって、観測したい運動を明瞭に可視化できるはずである。分子の回転に関しては、超短パルスレーザー場の偏光面に分子がトルクを感じることを利用した制御法が確立され、回転方向まで含めた制御が達成されている<sup>1</sup>。過去の研究では、生成された単一方向回転波束を分光的手法（紫外 CD 分光、回転ドップラー測定など）によって確認、観測してきたが、回転波束ダイナミクスの詳細な理解・キャラクタライズのため、画像観測による直接的な空間情報の可視化が求められてきた。しかし、既存の典型的な画像観測法は、後述する実験上の困難のため、単一方向回転波束への適用が困難であった。本講演では、我々が独自の装置設計により問題を克服し、分子が単一方向に回転しているダイナミクスを極めて明瞭に観測することに成功したことを報告する。

単一方向回転波束の画像観測における困難として、光電場を用いた回転方向制御では、分子回転軸がレーザーの進行方向と一致してしまうことが挙げられる。そのため、回転軸方向に検出器を配置することが困難である（レーザー光が検出器に入射してしまう）。画像観測を用いているほとんどの研究グループでは、レーザーの入射を避けて、検出器の面をレーザー進行と平行に配置する手法を採用しているが（図 1 模式図）、2次元検出器では、例えば図 1 のように、左右どちらを向いている分子でも同一の射影画像を与えるため、回転波束の明瞭な観測が不可能となる。

我々は装置設計の中で、検出器に向かう途中のイオンを、紙面を読む方向から観測すれば、レーザーの進行方向（回転軸）から回転を観測できることに気付いた（図 1, New window）。この基本概念をもとに装置を製作し、 $N_2$ 分子の回転波束に対する時間分解クーロン爆発画像観測実験を行った。

【実験】装置は図 1 の New window の位置に、2次元検出器（MCP/スクリーン/カメラ）と、対向する平行平板パルス電極を設置したものである。超音速ジェット中の $N_2$ 分子にフェムト秒レーザー（円偏光, 400 nm, 100 fs,

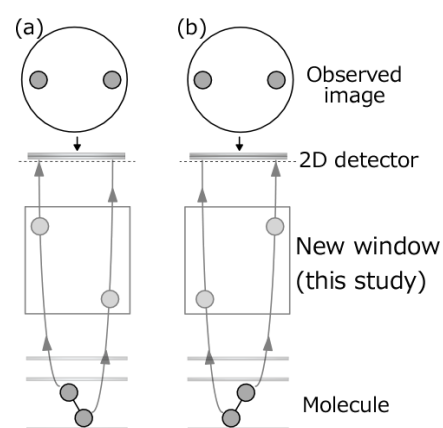


図 1 典型的な画像観測(上方の検出器利用)、および本研究で提案する手法の模式図。回転制御、イオン化用レーザーは紙面に垂直に入射し、回転面は紙面と考える。New windowの導入により、(a), (b)両者を区別しうる画像観測が可能となる。

0.3 mJ) を照射し、クーロン爆発過程で生じた  $N^{3+}$  イオンを光の進行と垂直方向に(通常の TOF のように) 加速した。目的イオンが検出器前方に到達したタイミングで高速パルス高電圧を電極に印加し、初期加速方向と直交した電場によって検出器に射影した。イオン衝突に伴って生じるスクリーン上の蛍光像をカメラによって撮像し、分子の空間分布の測定 (probe) とした。ここで、probe 光を円偏光とすることで、偏光面内における全角度方向( $2\pi$ )の分子を検出している。回転制御の pump としては、45 度偏光の異なる直線偏光パルス対 (800 nm, 120 fs, 0.18 mJ, ~4000 fs 間隔) を用いた。<sup>1c</sup> ここでは、1 発目のパルス照射で分子を偏光軸に沿って整列させ、その瞬間に整列軸から 45 度傾いた 2 発目のパルスを照射することで非対称的なトルクを誘起し、単一方向に回転する波束を生成させた。

## 【結果と考察】

### (1) 1 パルス照射後の回転波束ダイナミクス

図 3 に、直線偏光 1 パルス照射後の回転波束ダイナミクスのスナップショット(一部)を示す。ここでは、角度に依存した輝度情報を極座標で表示している。Pump 光照射前(-700 fs)は等方的(円)であった空間分布が、回転波束生成によって時間的に変化していることが観測された。

Dooley らの 3 次元計測を用いた先行実験<sup>2</sup>と同様、分子回転の周期に応じて分子軸の整列する様子を示すとともに、既報では不明瞭だった、波束の節面などの詳細な構造が観測され、装置の有効性が示された。

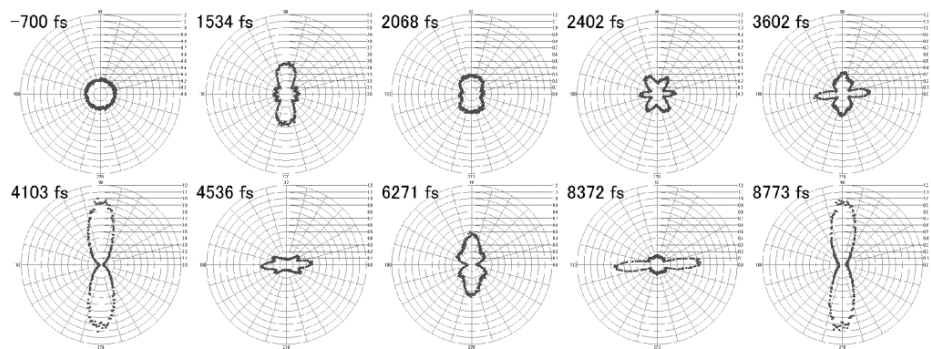


図 2 直線偏光 pump パルスに誘起された  $N_2$  分子回転波束ダイナミクスのスナップショット例。Pump 光の偏光は図の上下方向である。

### (2) 2 パルス照射後の単一方向回転ダイナミクス

図 2 のダイナミクスは 1 発の直線偏光 pump 光に誘起されるものであり、左右の回転が同程度に含まれているため、古典的回転のようには認識できない。異方的トルク発生のための 2nd パルスを照射した場合の観測例が図 3 である。図にみられるように、分子が一方向に回転している様子の詳細な観測に、はじめて成功した。

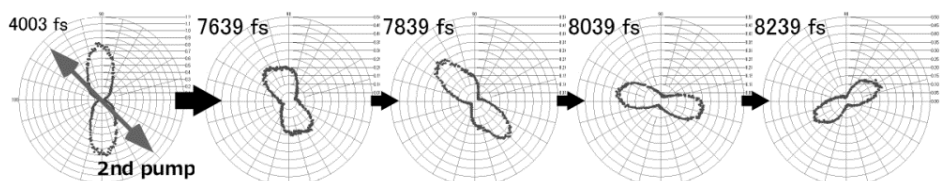


図 3 方向まで制御された分子回転波束ダイナミクスの実時間観測例。

講演では、独自装置の詳細を報告するとともに、図 3 を含む観測結果を molecular movie として上映、明示する。

- 1 (a) H. Stapelfeldt, T. Seideman, Rev. Mod. Phys. **75**, 543-557 (2003); (b) Y. Ohshima, H. Hasegawa, Int. Rev. Phys. Chem. **29**, 619-663 (2010); (c) K. Kitano, H. Hasegawa, Y. Ohshima, Phys. Rev. Lett. **103**, 223002 (2009).
2. P. W. Dooley et al., Phys. Rev. A **68**, 023406 (2003)