

3P011

分子回転波束ダイナミクスのマルチパルス制御と実時間イメージング

(日本女子大¹・理¹, 東工大²・理工², 分子科学研究所³)

○藤本 路夢¹, 水瀬 賢太², 今城 尚志¹, 大島 康裕^{2,3}

Multi-pulse control and real-time imaging of molecular wave packet dynamics

(JWU¹, TokyoTech², IMS³) ○Romu Fujimoto¹, Kenta Mizuse²,

Takashi Imajo¹, Yasuhiro Ohshima^{2,3}

【序】気相分子における運動や速度、配向の分布は一般に不均一であり、ダイナミクスの観測結果は空間平均を取った情報しか得られない。従って、量子状態の揃った分子集団を作り出す操作は、高度で正確な計測を行う上で極めて高い意義を有する。近年では、高強度超短パルスレーザー技術の進歩とあいまって、光と分子の相互作用を利用した回転量子状態のコヒーレント制御に関する研究例が数多く報告されている⁽¹⁾。先行研究では、ダブルパルスによる分子の回転運動方向の制御と実時間での観測がなされ、量子性を含む分子ダイナミクスの可視化が達成されている⁽²⁾。一方向の回転量子波束の生成が実現したことで、パルスの追加によるさらに高度な波束制御の可能性が示唆された。配向や速度の自在な操作が実現できれば、より詳細なダイナミクスの解明に繋がると期待できる。そこで本研究では、N₂分子を対象とし、マルチパルスによる高度な波束制御を実現するとともに、生成した分子回転波束ダイナミクスの実時間発展を、イオン画像観測法によって詳細に観測することを目的とした。

【実験】光源の Ti:Sapphire レーザーより出力された超短パルス光(820 nm,30 fs,2.5 mJ,500 Hz)を DM で分割し、それぞれポンプ光とプローブ光とした。ポンプ光は Michelson 型干渉計を通してさらに分割し、超音速ジェット中の N₂ 分子に照射することで回転量子波束を生成させた。時間遅延 Δt 後に高強度プローブ光を照射し、多重イオン化過程を経てクーロン爆発させた後、生成したフラグメントイオンの空間分布を二次元イメージとして観測し、実時間での追跡を行った。なお、ここで観測されたフラグメントイオン分布は解離直前の分子の配向を直接反映している。ポンプ光照射の時間遅延としては、第 1 のパルスを照射後、分子の整列度合が最大となった瞬間に一方向回転を誘起するための第 2 のパルスを照射し、続けて速度変化を誘起するための第 3 のパルスを照射し、その後の時間発展を観測した。パルスの偏光条件及び照射の時間遅延をパラメーターとして、N₂ 分子の回転量子波束への影響を探った。

【結果と考察】ここでは 3 パルス照射による分子回転運動の減速操作について述べる。図 1 は観測された分子配向分布と励起スキームであり、生成したフラグメントイオンの空間分布を極座標で表している。第 1 のパルス照射時刻を開始点(0 fs)とし、その後の時間発展を観測した。分子の整列度合が最大となる瞬間(12042 fs)に、整

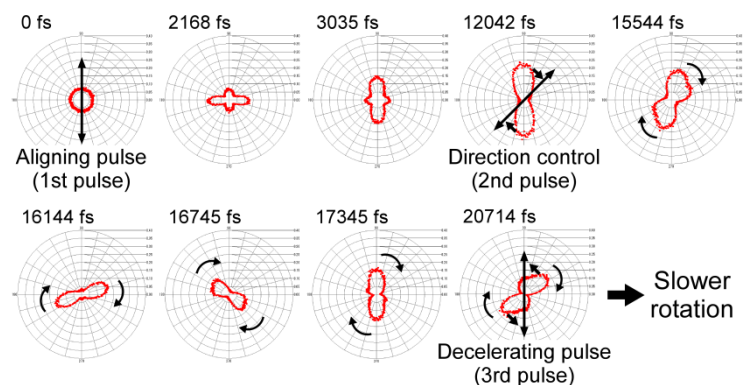


図 1 実時間イメージングにより観測した分子配向分布の極座標表示(抜粋)と励起スキーム。

列軸から 45 度傾けた第 2 のパルス照射することで一方向回転を誘起した。続いて回転途中(20714 fs)で、逆方向にトルクが生じるような角度で第 3 のパルス照射し、右回転運動を減速させた。図 2(a)は分子配向分布の時間発展を示しており、第 2 のパルス照射後に斜線模様が見られた。等方的であった空間分布に生じたこのような変化は、分子の一方向回転波束の生成を反映している。また第 3 のパルス照射後にはコントラストの低下が見られた。解析のため、分子配向関数 $\langle \cos^2 \phi \rangle$ のフーリエ変換を行ったところ [図 2(b)]、第 3 のパルス照射後には $J = 2 \sim 5$ のような高い回転準位成分が減少していることが明らかとなった。以上の結果は、マルチパルス照射による分子の回転速度制御に成功したことの明瞭な証拠であると解釈できる。なお、ここでは減速操作の結果のみを記載したが、講演では様々な条件における波束制御の結果をダイナミクスの映像とともに示す。

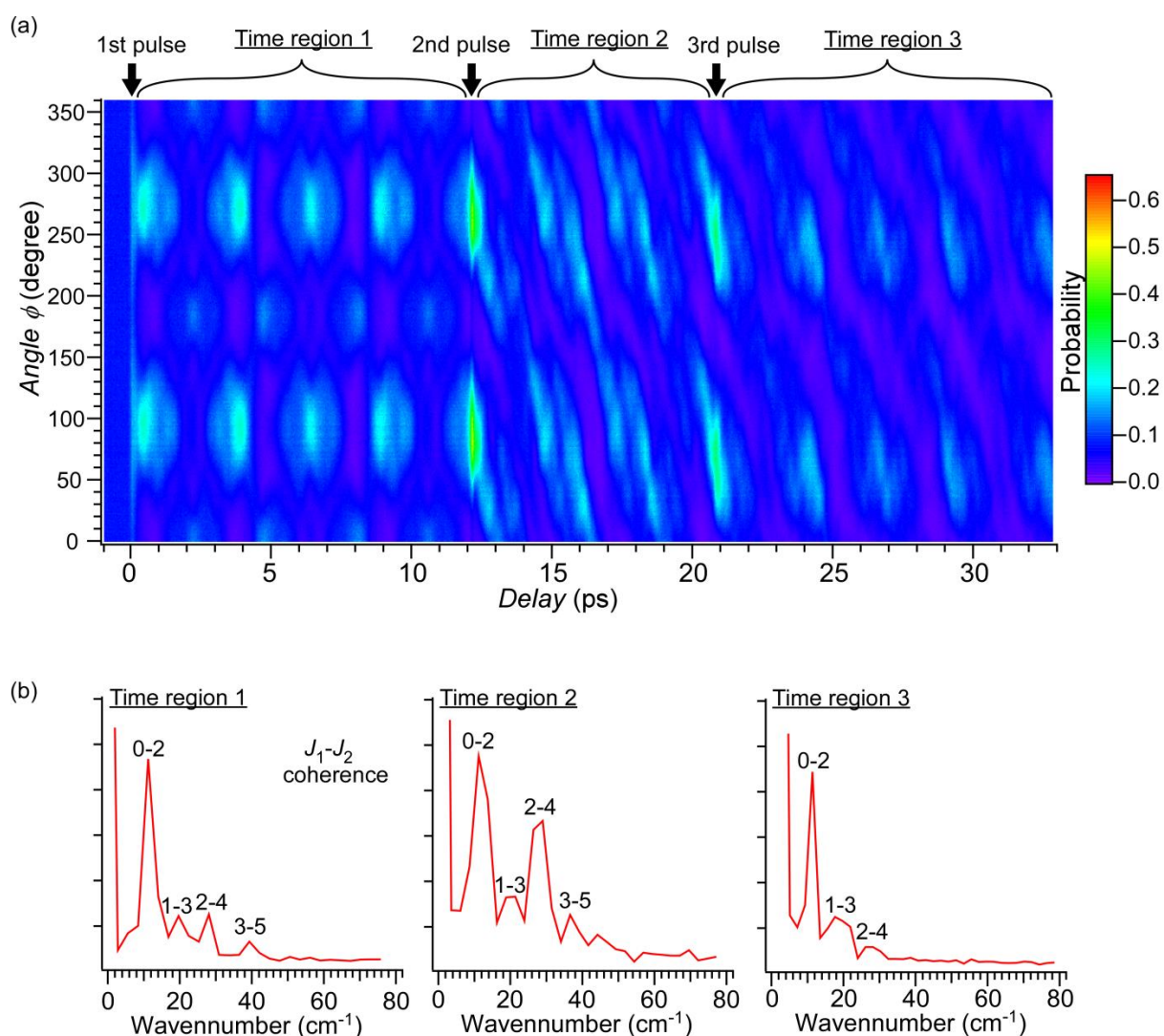


図 2 (a) 図 1 で示した 3 パルス照射実験における分子配向分布の時間発展。(b) 各パルス照射時刻における分子配向関数 $\langle \cos^2 \phi \rangle$ のフーリエ変換スペクトル。

- (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).
- K. Mizuse et al., Sci. Adv. **1**, e1400185 (2015); 水瀬, 大島, 第 8 回分子科学討論会 1A18 (2014).