高分解能断層画像観測装置を用いた

分子回転量子波束ダイナミクスの実時間イメージング

(東工大院・理<sup>1</sup>,北里大・理<sup>2</sup>,分子研<sup>3</sup>)
○藤本 路夢<sup>1</sup>,水瀬 賢太<sup>1</sup>,佐藤 光<sup>2</sup>,石川 春樹<sup>2</sup>,大島 康裕<sup>1,3</sup>

## Real-time imaging of molecular rotational quantum wave packet dynamics using a high-resolution sliced image observation apparatus

(TokyoTech<sup>1</sup>, Kitasato Univ.<sup>2</sup>, IMS<sup>3</sup>)  $\bigcirc$  Romu Fujimoto<sup>1</sup>, Kenta Mizuse<sup>1</sup>, Hikaru Sato<sup>2</sup>, Haruki Ishikawa<sup>2</sup>, Yasuhiro Ohshima<sup>1,3</sup>

【序論】近年、高強度超短パルス光を利用した回転量子波束の生成・制御に関する研究が数多く 報告されている [1]。このような研究において、気相分子に対する荷電粒子イメージング法は、 分子の空間配向分布の時間発展を明瞭に可視化・観測する強力な手法として利用されてきた。こ れまで、2次元・3次元での画像観測がなされてきたが、既存の2次元観測では角度に依存した イオン化を伴うために、配向分布の直接的な特定が困難であった [2]。一方、3次元観測におい ては空間分布の特定は可能であるが、S/N比の低さゆえに高精度なデータ取得が困難であった [3]。 我々はこれらの問題を克服するために、3次元的な広がりを持つ分子配向分布の断層像を直接観 測する手法を考案した [4]。この手法によって観測された配向分布の時間発展には、異なる角速 度に対応する複数の波が干渉し合う量子効果が明瞭に反映されたが、観測した波束はJ ≤ 4 程度 の比較的低い固有状態から構成されるものであった [5,6]。さらに高いJまで励起された回転波束 においては、空間・時間分解能の高い観測装置を用いることで、節部分などの微細構造が明瞭に 観測されると期待される。そこで本研究では、高強度光パルスを用いて分子をより高い回転準位 にまで励起させ、生成した回転量子波束の時間発展を高分解能画像観測装置を用いて詳細に観測 し、干渉効果などの波動性が画像としてどのように観測されるかを明確にすることを目的とした。

【実験】観測装置の概略を図1に示す。フェムト秒 Ti:Sapphire レーザー(820 nm, 30 fs, < 2.5 mJ, 500 Hz)の基本波を pump 光と し、その第2次高調波(407 nm)を probe 光とした。pump 光は 120 mW で直線偏光とし、超音速ジェット中の N<sub>2</sub>分子に集光 することで回転励起を行った。続けて、遅延時間 $\Delta t$  後に高強 度円偏光 probe 光を照射し、多重イオン化過程を経て偏光面内 における全分子をクーロン爆発させた。このとき生じる正電荷 のフラグメントイオン(N<sup>2+</sup>)は、解離前の分子配向を反映する。 3次元的に広がりながら飛行するイオンを装置内部に組み込ま れたスリットで切り出すことで、直接的に空間分布の断層化を 行った [4]。その後、切り出されたイオン雲分布を2次元検出 器(MCP、蛍光スクリーン、カメラ)によって取得した。probe 光の遅延時間を変化させながら同様の操作を連続的に繰り返す ことで、量子波束の実時間発展をスナップショット的に撮影し



図1.二次元画像観測装置

た。なお、本研究で観測している 2 次元断層画像 (角度分布) は波動関数の絶対値の 2 乗  $P = |\Psi(\theta = \pi/2, \phi, t)|^2$  に対応しており、 $\phi$  はレーザー電場の偏光方向 (X 軸) からの角度を示す。

【結果と考察】図2(a)は生成した波束に対応する空間配向分布であり、 $\phi = 0 \sim 180^{\circ}$ に対する分 布強度の時間変化を表す。次に、波束の構成要素である回転固有状態の分布に関する情報を得る ため、分子配向関数 $<\cos^2 \phi >$ のフーリエ変換を行った[図2(b)]。スペクトル上の各ピークは波 束を構成する2つの固有状態間における干渉強度を表している。83 mW pump 光で生成させた波 束は $J \leq 4$ の成分が支配的なものであるのに対して、120 mW pump 光ではJ = 8 - 10程度までの励 起が確認された。また、もともと等方的であった空間分布(t<0)が、パルス照射後は大部分の時 刻で $\phi = 0^{\circ}(180^{\circ})$ 付近に集中していることが確認され、古典的運動との対応の点で興味深い。120 mW pump 光(図2下段)により生成した波束に対応する分子配向分布のスナップショットを図3 に示す。各分布における波束は複数の節を持つことが画像上から確認でき、分子運動を支配する 量子力学的な波動性が明瞭に観測された。講演では、観測装置の詳細や改良を加えた点などを併 せて報告する。







図3. 美時間イメーシングにより観測した 分子配向分布の極座標表示(抜粋)

- H. Stapelfeldt and T. Seideman, Rev. Mod. Phys. 75, 543 (2003).
- [2] F. Rosca-Pruna and M. J. J. Vrakking, Phys. Rev. Lett. 87, 153902 (2001).
- [3] P. W. Dooley et al., Phys. Rev. A 68, 023406 (2003).
- [4] 水瀬, 大島, 第8回分子科学討論会 1A18 (2014).
- [5] K. Mizuse et al., Sci. Adv. 1, e1400185 (2015).
- [6] 藤本,水瀬,今城,大島,第9回分子科学討論会 3P011 (2015).