

3P009

イオンイメージングを利用した分子回転量子波束再構築法の開発

(東京工業大学) ○上野一樹・水瀬賢太・大島康裕

Development of the reconstruction method of molecular rotational wave packet

(Tokyo Institute of technology) ○Kazuki Ueno, Kenta Mizuse, Yasuhiro Ohshima

[序論]

近年、極短パルス光を利用した分子の制御に注目が集まっている [1]。これらの研究ではフェムト秒からピコ秒のスケールで時間発展する量子状態の生成・観測が中心課題となる。このような時間依存する波動関数である量子波束は、一般に固有状態の線形結合として表される。波束を実験的に特定すること、つまり線形結合の展開係数を決定することは波束の再構築と呼ばれている。再構築によって、分子運動に関する全ての物理量が計算可能になる [2,3]。

近年、回転波束の高精度なイメージングが報告されるようになった [4]。ここでは、クーロン爆発によるイオン化過程において円偏光を用いることで、イオン化における角度依存性の影響を取り除いた回転波束のイメージングが実現されている。しかしながら、このような実験データを用いて回転波束の再構築を行うための方法論は確立されておらず、回転速度の定量的見積もりなどは実現されていなかった。そこで本研究では、イメージングで得た回転波束を再構築する、新しい手法を検討したので報告する。

[理論]

2原子分子の回転波束は、固有状態 (J, m) に対応した球面調和関数 $Y_{J,m} = \Theta_{J,m}(\theta)e^{-im\phi}$ を基底関数として以下のように記述される。

$$\Psi(\theta, \phi, t) = \sum_J \sum_m A_{J,m} \Theta_{J,m}(\theta) e^{-im\phi} e^{-i\omega_J t} \quad (1)$$

なお、極座標 (θ, ϕ) は分子の空間配向を示し、レーザーの進行方向を Z 軸とする空間固定系で定義されるとした。ここで、 $A_{J,m}$ は各固有状態の寄与を反映する複素係数である。 $\Theta_{J,m}(\theta)$ は規格化されたルジャンドル陪関数で、実験における観測面は Z 軸となす角度 $\theta = \pi/2$ となる面である。また、時間発展係数 $e^{-i\omega_J t}$ に含まれる ω_J は回転周波数で、回転定数 $B[\text{Hz}]$ と J を用いて $\omega_J = BJ(J+1)$ と示される。

実験から得られる角度分布 $P(\theta = \pi/2, \phi, t)$ は、式(1)で示された波動関数の絶対値の2乗である。

$$\begin{aligned} P(\pi/2, \phi, t) &= \left| \sum_J \sum_m A_{J,m} \Theta_{J,m}(\pi/2) e^{-im\phi} e^{-i\omega_J t} \right|^2 \\ &= \sum_{J'} \sum_{m'} \sum_J \sum_m A_{J',m'}^* A_{J,m} \Theta_{J',m'}(\pi/2) \Theta_{J,m}(\pi/2) e^{i(\Delta m)\phi} e^{i(\Delta\omega)t} \end{aligned} \quad (2)$$

式(2)において、時間成分と角度成分の周期関数が現れる。時間成分についてフーリエ変換を行うことにより、周波数の差分 $(\Delta\omega = \omega_{J'} - \omega_J)$ を取り出すことができ、角度の成分に対してフーリエ変換を行うことで、量子数の差分 $(\Delta m = m' - m)$ に対応したピークが取り出せる。そのため、両成分に関する2次元フーリエ変換を行うことで、2つの差分成分を組み合わせると期待される。

例えば、一方向に回転する波束では、 m の分布が正負で偏り、また、高速な回転ほど ω の大きな成分が寄与する。このように操作=パルス照射の結果を定量的に検証できるので、回転運動の加減速や方向制御など、より高度な波束制御への展開が見込まれる [5]。

[モデル計算の結果]

任意に係数を定めて作成した波束に2次元フーリエ変換を適応し、複素係数 $A_{J,m}$ の振幅と位相の情報を引き出せるか検証した。回転波束は $(J, m) = (0, 0), (2, 0), (2, 2), (2, -2)$ の4つの状態から構成されるとして、その時間発展を以下のように記述した。

$$\Psi(\pi/2, \phi, t) = A_{0,0}\Theta_{0,0}(\pi/2)e^{-i0\phi}e^{-i\omega_0 t} + A_{2,0}\Theta_{2,0}(\pi/2)e^{-i0\phi}e^{-i\omega_2 t} + A_{2,2}\Theta_{2,2}(\pi/2)e^{-i2\phi}e^{-i\omega_2 t} + A_{2,-2}\Theta_{2,2}(\pi/2)e^{-i(-2)\phi}e^{-i\omega_2 t} \quad (3)$$

Case 1では、 $A_{2,2} = A_{2,-2}$ とし、 $\langle m \rangle = 0$ となる波束を考えた。図1aに、 $P(\pi/2, \phi, t)$ の2次元プロットを示す。ここで、時間 t はリバイバル周期 $T_{\text{rev}} = 1/(2B)$ を単位としてプロットしてある。図1bには、図1aを2次元フーリエ変換したパワースペクトルを、 Δm を縦軸、 $\Delta\omega$ を横軸として示した。フーリエ変換プロットには、図1bのように各複素係数の振幅の積が現れる。この情報から再構築を行い、全ての $A_{J,m}$ について振幅を決定した。その結果、 $m = +2$ と -2 では同一の振幅となることが確認された。

Case 2では、 $A_{2,-2} = 0$ として左回転する波束を考えた。図2aに、角度分布の時間発展を、図2bにそのフーリエ変換を示す。 $\Delta m = -2$ のピークが消失しており、波束の回転方向が本手法によって評価できることが確認された。

以上、イメージング画像を実測データとして回転波束の再構築を行う際に、フーリエ変換を用いることは十分に強力であることが判明した。当日は、実験との対応について複素係数 $A_{J,m}$ の位相を含めて報告する。

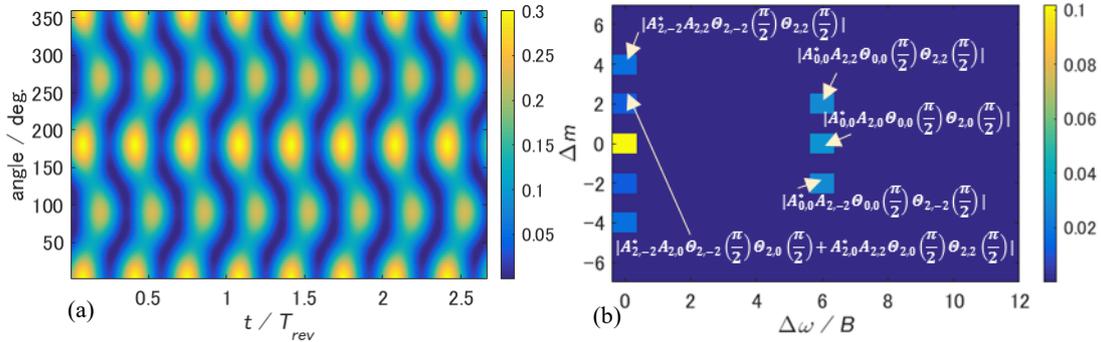


図 1 Case 1における、(a) $P(\pi/2, \phi, t)$ の2次元プロット、ならびに(b)そのフーリエ変換

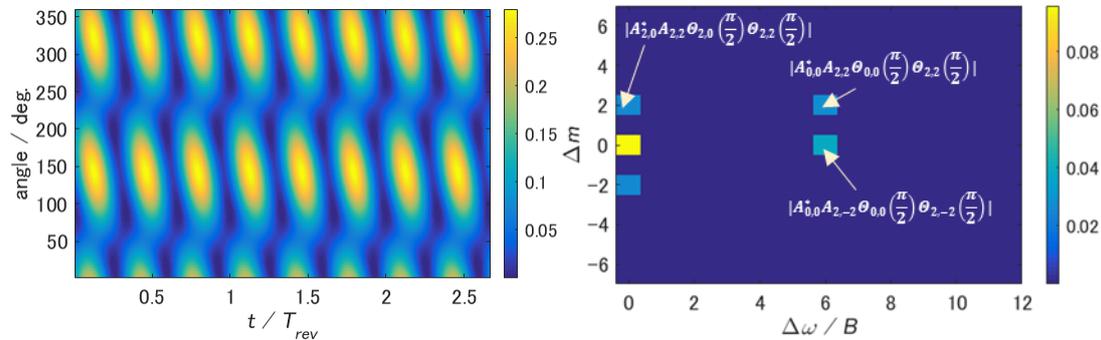


図 2 Case 2における、(a) $P(\pi/2, \phi, t)$ の2次元プロット、ならびに(b)そのフーリエ変換

[参考文献]

- 1, Y. Ohshima and H. Hasegawa, Int. Rev. Phys. Chem. **29**, 4 619 (2010).
- 2, A. S. Mouritzen and K. Molmer, J. chem. Phys. **124**, 244311 (2006).
- 3, H. Hasegawa and Y. Ohshima, Phys. Rev. Lett. **101**, 053002 (2008).
- 4, K. Mizuse, K. Kitano, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, Sci. Adv. **1**, e1400185 (2015).
- 5, 藤本路夢, 水瀬賢太, 今城尚志, 大島康裕, 第9回分子科学討論会 3P011 (2015).