

ダブルパルス励起による回転量子波束の制御

¹東工大院理, ²分子研

○丸澤舜¹, 水瀬賢太¹, 大島康裕^{1,2}

Control of molecular rotational wave packet by double-pulse excitation

○Shun Marusawa¹, Kenta Mizuse¹, and Yasuhiro Ohshima^{1,2}

¹Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology, Japan

²IMS, Japan

【Abstract】 In recent years, creation, control, and observation of molecular rotational quantum wave packet using strong laser pulses have been actively conducted. Quantum wave packet mostly manifests wave-like interference but it is expected to show a semi-classical (particle-like) time-evolution in a limiting situation. To study details of wave packet dynamics and connections between classical and quantum mechanics, we carried out creation and observation of rotational wave packet involving high- J (≥ 10) states. Rotational quantum wave packet of CO molecules was created via impulsive Raman excitation with femtosecond laser pulses, and subsequent dynamics was observed using Coulomb explosion imaging. We used a double-pulse control scheme for efficient rotational excitation, and succeeded in creating a wave packet involving states with up to $J = 14$. In the observed dynamics, semi-classical behaviors corresponding to Glory scattering are clearly visualized. Details on experimental results and semi-classical/quantum analyses will be presented. We will also describe optimization conditions for double pulses and multi-pulses, and future prospects.

【序】 近年、短パルスレーザーによる分子回転量子波束の生成と利用に関する研究が活発に行われている。量子波束とは、複数の固有状態の重ね合わせにより表される時間発展する波動関数である。多数の固有状態から構成される量子波束は古典的挙動に近づくと考えられており[1]、実験的に検証することは興味深い。本研究室では、レーザーで励起した分子集団における分子軸の空間分布（回転波動関数の絶対値の2乗）を高分解能に可視化することに成功してきたが、回転波束に含まれる固有状態は量子数 $J \leq 4$ に留まっていた[2]。本研究では、古典的振るまいがあらわになると期待できる高い J が含まれる回転波束の生成およびそのダイナミクス観測を行った。

【実験】 超音速ジェットにより断熱的に冷却した CO 分子に対して直線偏光フェムト秒レーザー光を照射し、回転励起を行った。レーザー光強度は分子がイオン化しない程度にとどめた上で、光パルスを2発に分け、回転周期に合わせた時間間隔をおいて照射した（このときのレーザーをポンプ 1, 2 とする）。続いて、適当な遅延時間後にポンプ光より高強度の円偏光フェムト秒レーザー（プローブ）を照射し、多重イオン化過程を経て C 原子と O 原子の多価イオンに解離させた。イオンの空間分布を2次元画像観測することでプローブ光照射時刻における CO 分子の配向分布を測定した。

【結果・考察】 二次元検出器で得られた C^{2+} イオンの空間分布 (Fig. 1 上)、ならびにその極座標表示 (Fig. 1 下) を示す。ポンプ光の偏光方向は図の上下方向である。 $t < 0$ の初期状態において等方的であった空間分布が、ポンプ光作用後は細かい節構造を示すことや、偏光方向付近に分布が集中する様子が観測された。細かい節構造を持つことは、生成された波束が幅広い J に対する固有状態から構成されていることを示す。

観測した波束の量子状態分布を考察するために、偏光面からの角度を θ としたときの配向分布の時間変化 $\langle \cos^2 \theta \rangle(t)$ (Fig. 2 上)について、ポンプ1照射後の領域とポンプ1,2で励起後の領域をそれぞれフーリエ変換し、 $\Delta J=2$ のエネルギー差に相当する周波数の情報を得た (Fig. 2 下)。この情報から、ポンプ2によって $J > 10$ まで励起されていることが確認された。加えてポンプ1、ポンプ2のそれぞれの領域での角度分布について、時間平均をとった情報を得た (Fig. 3)。偏光方向への分布の集中は古典でのGlory散乱に対応していると考えられる[1]。このように、高い J の高分解能のイメージングと古典的な対応について確認することに成功した。より高い J 状態では他の準古典的な現象が見られると期待できる[1]。これを実現するためには、多重パルスによる励起と、時間分解能を向上させた光学系の設計が必要であると考えている[3]。当日は、実験の詳細、古典論との対応、およびより高い J を目指した理論的なパルスのデザインについて報告する。

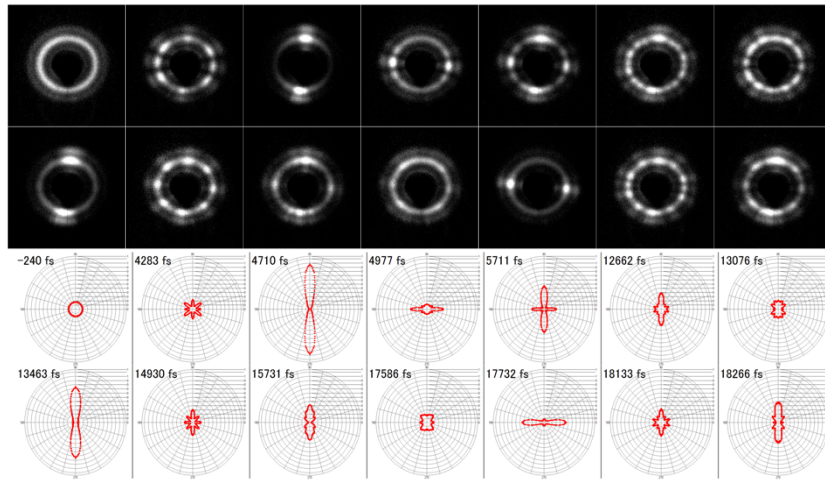


Fig. 1. (Upper) Distribution of C^{2+} created by Coulomb explosion of CO and (lower) the corresponding polar coordinate plots

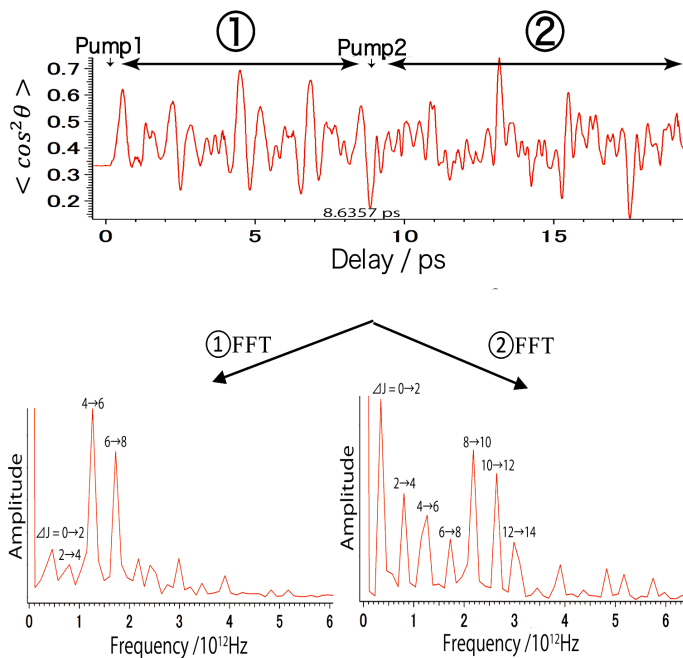


Fig. 2. (Upper) time dependent alignment and (Lower) the corresponding power spectra after Fourier transformation of pump 1 region (left) and pump 2 region (right)

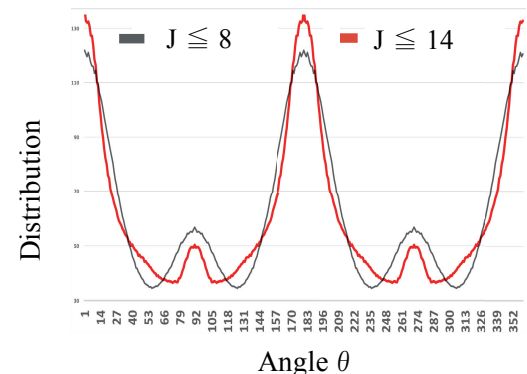


Fig. 3. Time average of angular distribution plots

【参考文献】

- [1] M. Leibscher, I. S. Averbukh, P. Rozmej, and R. Arvieu, Phys. Rev. A **69**, 032102 (2004).
- [2] K. Mizuse, R. Fujimoto, N. Mizutani, and Y. Ohshima, Sci. Adv. **1**, e1400185 (2015).
- [3] J. P. Cryan, P. H. Bucksbaum, and R. N. Coffee, Physical Review A **80**, 063412. (2009).