

イオンイメージング実験をもとにした分子回転波束の再構築

¹東工大理, ²分子研

○上野一樹¹, 水瀬賢太¹, 大島康裕^{1,2}

Reconstruction of molecular rotational wave packets based on ion-imaging experiments

○Kazuki Ueno¹, Kenta Mizuse¹, Yasuhiro Ohshima^{1,2}

¹Department of Chemistry, School of Science, Tokyo Institute of Technology

²Institute for Molecular Science

【Abstract】 Spatio-temporal evolution of quantum systems is fully described with wave packets (WPs), and experimental determination, often termed “reconstruction”, of WPs has a significant importance, and still remains a challenging task. Here we represent a new reconstruction procedure, which is applicable to rotational WPs created by nonadiabatic excitation with ultra-short laser pulses. In the present reconstruction, a rotational WP is expressed as a linear combination of eigenstates and its expanding (complex) coefficients are determined to retrieve experimentally observed time-dependent angular probability of molecular axis of diatomic molecules, recoded by a newly constructed Coulomb explosion ion-imaging setup. Specifically, the amplitude of the coefficients is determined by Fourier transformation of angular distribution and then the phase of the coefficients is determined by the least-squares fitting. The method has been applied to experimental results on nonadiabatically created CO molecules, to show the excitation pathway to create the WP.

【序】 空間中を激しく運動する分子の挙動を制御・観測することを目指した研究が、これまで活発に進められている。中でも極短パルスレーザーを用いた分子運動の制御は注目を集めている。この場合、対応する分子運動の量子状態は、固有状態がコヒーレントに線形結合した量子波束で記述される。量子波束の展開係数を実験情報から決定することは再構築と呼ばれる。再構築を通して波動関数を完全に記述することで、分子運動制御の定量的評価が可能となる。

我々は分子回転運動に着目し、回転方向を制御した量子波束の生成法を考案した [1]。さらに、等方的なクーロン爆発を利用したイオンイメージングを導入した、分子軸配向分布の観測装置を開発した [2]。これら2つの手法を組み合わせることで、分子軸の配向分布が時間発展する様子を実験的に可視化した [3]。この実験から得た観測値は、回転波束の絶対値の二乗に対応しており、再構築に十分な情報を持つと考えられる。本研究では、イメージングにより得られた情報から回転波束の再構築を行うアルゴリズムを開発し、実験結果に適応したので、これを報告する。

【実験】 実験は既報に従った [3]。超音速ジェット法により CO 分子を導入し、回転状態を $J = 0$ まで冷却した。この分子線に直線偏光の励起光を1回ないし2回集光し、回転波束を形成した。波束の時間発展に伴う分子軸配向の変化は、円偏光の観測光によるクーロン爆発イメージングにて記録した。励起パルスを2回照射したダブルパルス実験では、2つの励起パルスの時間間隔と偏光面を調整して一方向回転波束を生成した [1]。

【理論】 2原子分子の回転波束は、球面調和関数 $Y_{J,m} = \Theta_{J,m}(\theta)e^{im\phi}/\sqrt{2\pi}$ を基底関数として式(1)のように示される。

$$\Psi(\theta, \phi, t) = \sum A_{J,m} e^{i\delta_{J,m}} \Theta_{J,m}(\theta) e^{im\phi} e^{-i\omega_J t} / \sqrt{2\pi} \quad (1)$$

なお、 J, m は回転状態を表す量子数である。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。式(1)の下線部は展開係数を示し、 $A_{J,m}$ は振幅、 $\delta_{J,m}$ は位相を示す。 $\Theta_{J,m}(\theta)$ は規格化されたルジャンドル陪関数である。実験における観測面は Z 軸とのなす角 $\theta = \pi/2$ となる面である。また、 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。

観測した角度分布 P は波束の絶対値の二乗 $|\Psi|^2$ であるから、式(2)のように示される。

$$P(\pi/2, \phi, t) = \sum A'_{J',m'} A_{J,m} \Theta_{J',m'}(\pi/2) \Theta_{J,m}(\pi/2) e^{i(\Delta m \phi - \Delta \omega t + \delta_{J',m'} - \delta_{J,m})} / 2\pi \quad (2)$$

式(2)を角度 ϕ と時間 t についてフーリエ変換すると、周期成分の差分 ($\Delta\omega = \omega_{J'} - \omega_J$, $\Delta m = m' - m$) に応じたビートを抽出することができる。フーリエ変換の強度情報から、 $A_{J,m}$ が高精度に決まることが判明した。この強度情報を初期値とし、実測した時間依存の角度分布 $P(\pi/2, \phi, t)$ に対してフィッティング計算を行い、 $\delta_{J,m}$ を決定した。

【結果・考察】 Fig 1 に、観測した配向分布から回転波束を再構築した結果を示す。

(A-1)(A-2)は再構築した波束の振幅についての結果である。シングルパルス実験での結果(A-1)は、各 J に対して m の絶対値が等しい時、振幅も等しいことを示す。一方でダブルパルス実験での結果(A-2)は、 m の絶対値が等しい場合に、 $m > 0$ における振幅が $m < 0$ における振幅よりも大きいことを示し、一方向回転の実現が確認できた。

(P-1)(P-2)は位相についての結果を示す。シングルパルス実験における結果(P-1)は、励起が $|0\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |4\rangle$ と段階的に起こり波束が形成しているとして説明できる。一方でダブルパルス実験の結果(P-2)は、2発目のパルスが m の対称性を崩すように照射されるので、振幅同様に位相においても m の符号が異なるときに値が異なることが示された。

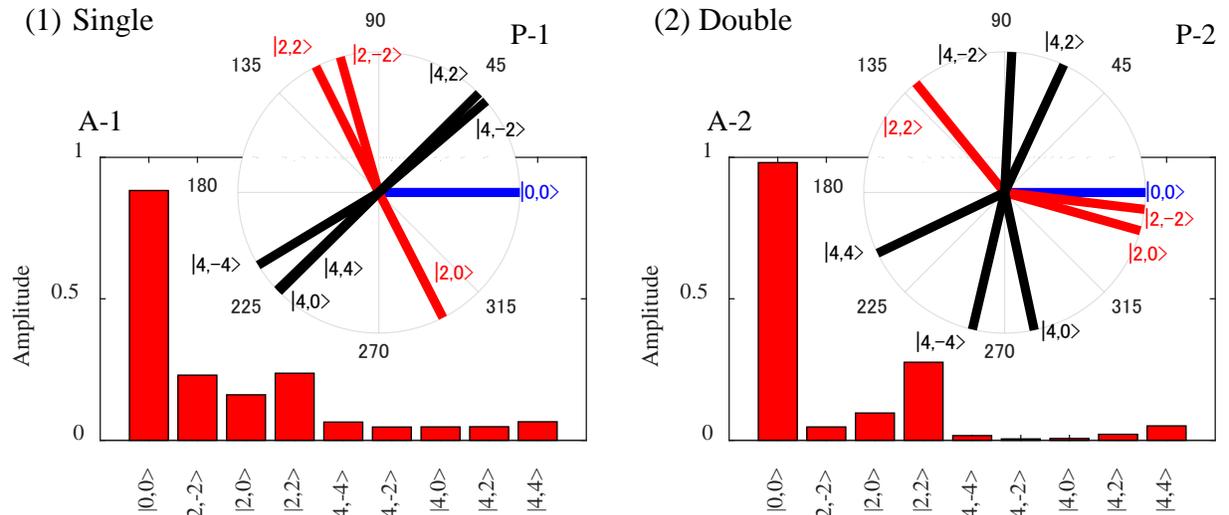


Figure 1. Results of rotational wave packet reconstruction; bar chart and polarplot show amplitudes and phases of the single (1) or double (2) pulses experimental wave-packet

【参考文献】

[1] K. Kitano, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, *Phys. Rev. Lett.* **112** 113004 (2014)
 [2] K. Mizuse, R. Fujimoto, N. Mizutani, Y. Ohshima, *J. Vis. Exp.* e54917, 120 (2017)
 [3] K. Mizuse, K. Kitano, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, *Sci. Adv.* **1**, e1400185 (2015).