

円偏光したフェムト秒パルスによる窒素分子の非断熱的配列制御  
(東大院理) ○鈴木隆行、菅原悠、峰本紳一郎、酒井広文

直線偏光した高強度フェムト秒レーザーパルスを気相分子に照射すると、非断熱的に分子配列を誘起することができる。すなわち、パルス照射後、一定の時間間隔で分子が偏光方向あるいはその垂直方向に向きを揃えた状態が現れる。非断熱配列により、レーザー電場の無い状態で分子の配列が実現できるため、分子物性や衝突反応など多くの分野で注目を集めている。これまで、上述のように直線偏光したポンプ光を用い、パルスの偏光方向と平行な方向、あるいは垂直な面内へ分子を配列させるのが一般的であった。しかし、以下に示すようにポンプ光の偏光を円偏光に変えると、ポンプ光の進行方向、すなわち波数ベクトル方向へ分子を配列できると期待される。今回私たちは、この波数ベクトル方向への分子配列をイオンイメージ法および TOF 質量分析法を用いて観測した。

直線偏光および円偏光を用いた際の座標軸の定義を図 1 に示す。ここで、分子軸と平行および垂直な分極率成分  $\alpha_{//}$ 、 $\alpha_{\perp}$  を持つ 2 原子分子を考える。直線偏光したレーザー電場を  $E(t) = E_0(t) \cos \omega t$  と表すとき、分子が感じる一周期平均されたポテンシャルは、

$$U(t) = -\frac{E_0(t)^2}{4} \{(\alpha_{//} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \theta_l + \alpha_{\perp}\} \quad (1)$$

と、表せる。この非等方的な時間依存ポテンシャルにより、非断熱的な分子配列が誘起される。一方、同じ電場振幅を持つ円偏光の場合のポテンシャルは、

$$U(t) = \frac{E_0(t)^2}{4} \{(\alpha_{//} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \theta_c + \alpha_{\perp} + \alpha_{//}\} \quad (2)$$

と、表せる。式(1)と式(2)の  $\theta$  に依存する項は、符号の違い以外は完全に一致しており、円偏光でも直線偏光と同様に  $z$  軸方向への分子配列が期待できる。また図 1 の  $z$  軸の定義の違いにより、円偏光では波数ベクトル方向に配列が起こることがわかる。

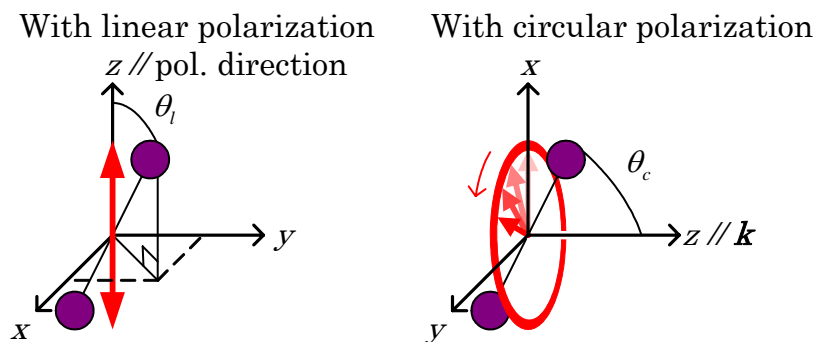


図 1 直線偏光(左)、および円偏光(右)の場合の座標軸の定義。 $z$  軸と分子軸のなす角を  $\theta$  で表す。

実験では Ti:sapphire レーザー増幅器の出力 (パルス幅: ~50 fs、エネルギー: 1.6 mJ/pulse) を 2 つに分け、一方をポンプ光として分子の配列に、もう一方をプローブ光として分子のイオン化に用いた。ポンプ光、およびプローブ光はど

ちらも集光し、真空チェンバー内に導入された窒素分子(回転周期  $T \sim 8.4$  ps)に照射した。ポンプ光の電場振幅  $E_0$  は、直線偏光および円偏光の場合にそれぞれ  $E_0 = 2.0 \times 10^{10}$  V/m ( $1.1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>)、 $E_0 = 2.3 \times 10^{10}$  V/m ( $2.8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>)である。イオンの検出は飛行時間型イオン分析装置およびイオンイメージ法により行った。プローブ光の偏光は検出面と垂直な方向の直線偏光とした。これにより、検出器と平行な面内において、イオン化確率や解離確率に方向依存性が無くなり、フラグメントイオンの分布はもとの分子の向いている方向を反映したものになる。ここで、検出器面内で直線偏光の方向、あるいは円偏光の場合の波数ベクトルの方向からの傾きをそれぞれ  $\theta'_l$ 、 $\theta'_c$  とする。

配列の度合いは、イオンイメージから得られる、 $\cos^2 \theta'_{l,c}$  の平均値  $\langle \cos^2 \theta'_{l,c} \rangle$  で表す。ポンプ光とプローブ光の間の遅延時間  $\tau$  に対する  $\langle \cos^2 \theta'_{l,c} \rangle$  の変化を図 2 に示す。 $\tau = 0$  でポンプ光が照射される。ポンプ光を照射後、どちらの偏光の場合でも  $\langle \cos^2 \theta'_{l,c} \rangle$  のベースラインが 0.6 程度に上昇する様子がわかる。また、窒素分子の回転周期  $T$  (full revival) およびその半分  $T/2$  (half revival) に対応する時間で、分子が  $z$  軸方向へ配列する様子、および、 $xy$  面内に揃う様子がわかる。このとき、式(1)、(2)で示したとおり、ポテンシャルの  $\theta$  依

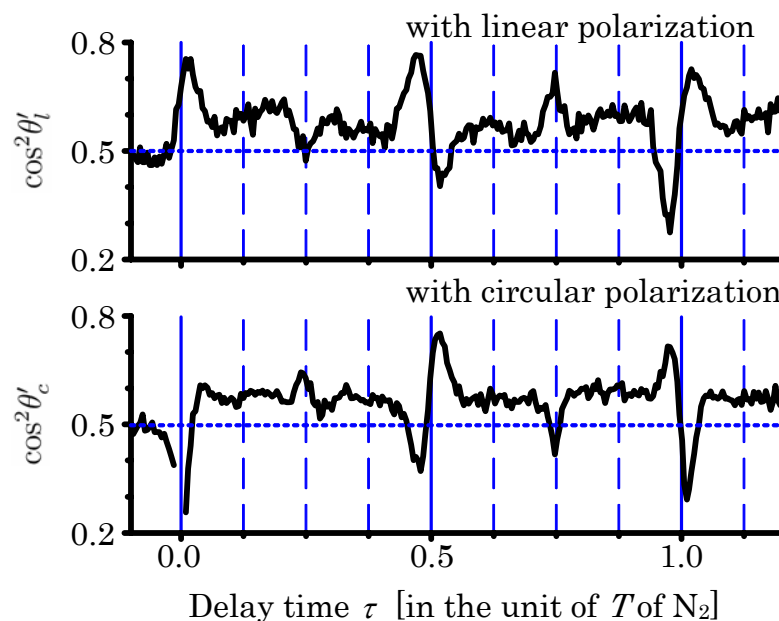


図 2 ポンプ光を照射後の窒素分子の配列度の時間変化。 $\tau = 0$  でポンプ光を照射後、窒素分子の回転周期  $T$  および、その半分  $T/2$  で過渡的な分子配列が起きている。また、円偏光では直線偏光の結果を反転した変化を示している。

存性の符号が両偏光間で逆転していることを反映し、パルス直後の挙動や、fractional revivals での  $\langle \cos^2 \theta' \rangle$  の変化が反転していることがわかる。

一方、TOF スペクトルを測定することによって、2次元検出器面に垂直な方向に関する分子配列の情報が得られる。 $z$  軸方向に対する TOF 軸方向のイオン強度の比を調べることにより、TOF 軸方向を向く分子の増減が分かる。直線偏光でも円偏光でも、分子配列が予想通り起きていることを確認することができた。詳細は講演で議論する。