

3A04 ヨウ素分子の振動波束干渉の時間位置分解観測

(分子研¹, 総研大², 科学技術振興機構・CREST³, ポール・サバティエ大⁴)

○香月 浩之^{1,2,3}, 千葉 寿^{1,3}, Christoph Meier⁴, Bertrand Girard⁴, 大森 賢治

^{1,2,3}

【序】

分子の電子振動状態をフェムト秒レーザーで励起した場合、ブロードなスペクトル幅のためにいくつかの振動固有状態のコヒーレントな重ね合わせ状態（振動波束）を作ることができる。作成された振動波束は非調和ポテンシャル上を時間発展し、その結果波束の分散、および再収束（revival）という現象を示す¹。プローブ光の波長を変化させることにより、波束を検出する核間距離を数十pmの分解能で選択することができる。

ポンプ光として位相ロックしたダブルパルスを用いた場合には、独立に存在する二つの振動波束がお互いに干渉し、より興味深い運動を行う。この状態についても議論する。

【実験】

ヨウ素分子の電子状態ポテンシャルを図1に示す。590nmの中心波長を持ったポンプパルスを用いて基底状態からB電子状態にヨウ素を励起し振動波束を作成する。内側の古典回帰点付近に作成された振動波束は333fsの周期でポテンシャル曲線上を左右に運動する。遅延時間 Δt 経過後にプローブ光を入射させ、B状態からさらに上のE電子状態に励起し、E状態からのLIFシグナルを分光器およびフォトマルを用いて観測した。パルスの時間幅はポンプ光、プローブ光ともに100fs程度である。プローブ光の波長を変化させて、量子ビートの時間変化を観測した。

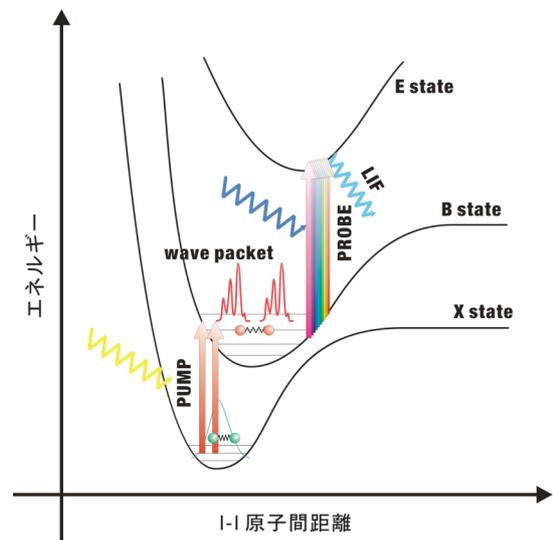


図1：ヨウ素分子の電子状態ポテンシャルと波束の運動。図はダブルパルスによる波束の励起に対応している。

ダブルパルスの実験を行う場合には、真空中に組んだマイケルソン干渉計を応用した位相変調機を用いて、ダブルパルス間の遅延時間 (τ) を ± 20 asの精度で安定化させている。 τ の値は古典振動周期の1.5倍にあたる500fsに固定する。この結果、二つの振動波束をポテンシャルの両端に作成することができる。

【結果】

シングルパルスで B 状態の波束を一個作成した場合、当初局在していた波束は非調和ポテンシャル上を運動するにつれて徐々に非局在化する。これは、波束を構成する各振動固有関数の位相が古典振動周期経過後にも元の関係に戻らないためである。プローブ光の波長を変化させてシグナルを測定すると、プローブ光の波長が 397.2nm の場合と 393.5nm の場合で、 $\Delta t \sim 9\text{ps}$ 近傍の領域(half revival)におけるビートの位相が π 反転しているのが観測された。この位相の反転はさらに 9ps 経過した $\Delta t \sim 18\text{ps}$ 近傍(revival)では元に戻っており、波束の時間発展のシミュレーションから計算されたスペクトルの形状とも非常によく一致を示した。特にプローブ光の波長を 385.3nm にあわせた場合、half revival 近傍において古典振動周波数の 2 倍にあたる成分が存在している。これは最初に局在していた振動波束が非調和ポテンシャル上を運動する間に二つの部分的な波束（サブ波束）に分裂したことに対応している。

図 2 はプローブ波長（核間距離に対応）と遅延時間に対して、シグナルのビート成分を等高線プロットした結果である。核間距離の分解能はプローブのスペクトル幅で決定され、pm 程度の分解能を持つ。非常に精密な波束運動のマッピングが行えることを示している。位相ロックダブルパルスを用いた場合、最初から二つのサブ波束がポテンシャル上に作られるが、これらの相対位相にはポンプに用いた光パルス対の位相情報がそのまま転写されることになる。波束間の位相を 45° ずつ変化させた場合、ビートの山と谷が徐々に反転していく様子が観測された。さらに、特定のプローブ波長では、シングルパルスの half revival 時と同様な倍周波数成分のビートを観測することもできた。

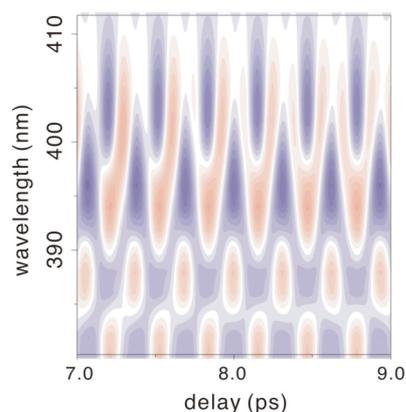


図 2 波束運動の二次元プロット。 $\Delta t \sim 9\text{ps}$ 近傍の half revival 領域を示す。プローブの波長により倍周波数の振動成分が現れることがわかる。

【参考文献】

1. T. Lohmüller, V. Engel, J. A. Beswick, and C. Meier, J. Chem. Phys. 120, 10442 (2004).