

機関番号：12608

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009 ~ 2010

課題番号：21750031

研究課題名 (和文) 波束干渉を用いた短寿命励起状態の高精度準位決定

研究課題名 (英文) High precision state determination of the short-lived electronically excited states with wave packet interferometries

研究代表者

穂坂 綱一 (HOSAKA KOUICHI)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：00419855

研究成果の概要 (和文)：電子励起状態の寿命幅内で近接する2状態は、従来の分光手法では分離不能とされてきた。本研究では、波束干渉の方法論を短寿命電子励起状態に拡張することで、それら2状態の共鳴エネルギーを分離して決定する新しい分光手法の開発を目的とした。原理検証実験を行うために初年度に高精度波束干渉計を整備したが、申請者の移動に伴い実験の実施が困難になった。そのため、より効果的な原理検証に向けて、検証に最適な系を理論研究者と共同で探索した。

研究成果の概要 (英文)：The eigen states whose energy separation is smaller than the life time broadening has been considered to be inseparable with conventional high-precision spectroscopies. The purpose of this work is the development of the conceptually new spectroscopy to resolve these states with applying wavepacket interferometry to short lived electronically excited states. Though the high precision interferometer for the demonstration has been constructed, actual tests have not been executed because I have changed the institute. Then, more efficient systems for the demonstration have been searched with a theoretical collaborator.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：励起分子素過程

1. 研究開始当初の背景

分光学は不均一幅の削減には成功してきたが、均一幅は長い間、物質固有の定数として扱われてきた。最近では外

部環境との強い相互作用により自然放出を抑制する研究も行われているが [Gabrielse. et. al., *PRL* 1985]、寿命幅により重なった2状態はまだ分離され

ていない。

波動関数は波であり光同様に干渉する。代表者はこれまで電子励起状態上の振動波束に対して、波束干渉を用いて固有状態間の相対位相を読みだす基盤技術を開発してきた[Katsuki, Hosaka, et. al., *PRA*, 2007]。波束干渉の技術は、寿命の長い電子励起状態上での振動波束の整形などに応用されているが[Ohmori, et. al., *PRL*, 2006]、寿命の短い状態での研究例は、連続状態へ抜けだす光電子波束の干渉実験に限定される[Wollenhaupt, et. al., *PRL*, 2002]。

寿命が短い共鳴状態では吸収ピークが広がる。太い吸収ピークをもつ励起状態での波束干渉は、各周波数成分の間で位相がズレ、干渉のコントラストが低下するように思える。しかし、共鳴周波数 ω_j から $\delta\omega$ だけ周波数のずれた光 $\omega_j \pm \delta\omega$ で遷移が起こる理由は、回転波近似を施した遷移強度 $\rho(\delta\omega) = \int dt \exp(-i((\omega_j \pm \delta\omega) - \omega_j)t) = \int dt \exp(\mp i\delta\omega t)$ に現れる時間積分の項が、寿命程度の短い時間内に0にならないためであり、 $\omega_j \pm \delta\omega$ にまでエネルギー準位が広がるためではない。つまり、寿命が短くともエネルギー準位が単一であるため、位相は一定速度で回転し続け、可干渉性は失われぬ。

周波数軸の分光法では短寿命励起状態の寿命幅中に近接する2状態は分離できない。しかし、共鳴状態ごとの位相回転速度の違いを利用すると、2つの状態が区別できる。2状態を同時に励起した後で、減衰した波動関数と同じ振幅の波動関数を重ね合わせると、一つの準位では破壊的に干渉し、もう一方の準位だけが生き残るような光励起が可能となる。この短寿命状態のコヒーレンス特性を利用した新しい高精度準位決定法は既に理論的に定式化されている[Teranishi, *PRL*, 2006]。

2. 研究の目的

本研究では、実験的な原理検証を通じ、短寿命励起状態の幅広い吸収スペクトルに埋もれた共鳴状態を研究する新しい方法の確立を目的とする。数10fsで高速に前期解離する分子の振動波束に対して波束干渉実験を行い、2つの離散的な振電状態のエネルギー準位と寿命を分離して決定することまでを期間内の目標とした。

3. 研究の方法

短寿命励起状態を対象とした波束干渉の

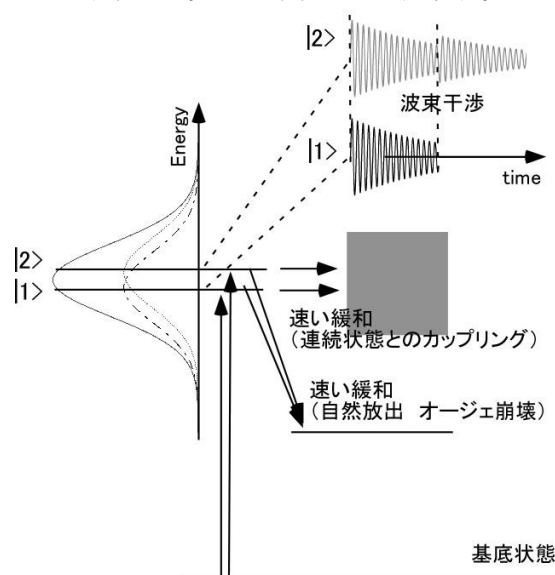


図1 短寿命励起状態を対象とした波束干渉の概念図

概念図を図1に示す。

干渉させる2つの波束の強度比と相対位相を制御すると、隣接する2状態の一方のみのポピュレーションを0にする事が出来る。しかし、残った状態のポピュレーションも相対位相の関数として変化するため、どのタイミングで一方のポピュレーションが0になったか確定できない。

そこで、本計画では図2に示す様に、4つの波束を干渉させることで、2つの励起状態にあるポピュレーションを共に0にする。ポピュレーションを0にするような振幅比、

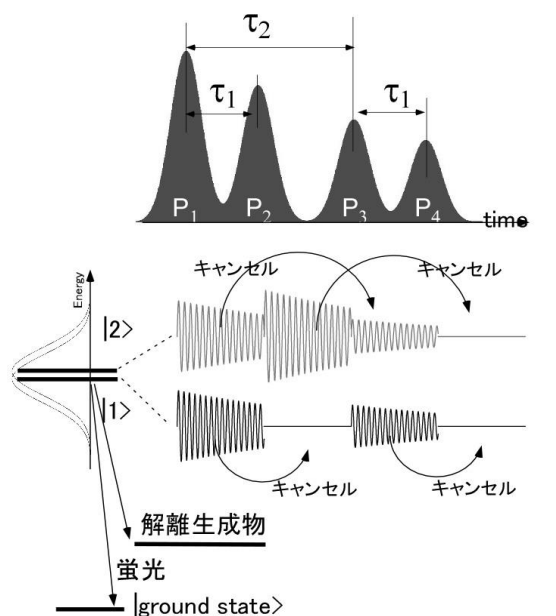


図2 波束干渉を用いた2状態共鳴エネルギー同時決定の概念図

相対位相比より2状態の共鳴エネルギーと寿命を決定する。

4. 研究成果

(1) 高精度光干渉計の作成

本研究では、2連のマイケルソン干渉計を用いて、強度比 r_1 、 r_2 と遅延時間 τ_1 、 τ_2 を制御した4連光パルスによって、振幅比 r_1 、 r_2 と相対位相 Φ_1 、 Φ_2 を制御した4つの分子波束を作り、それらを干渉させる。そのために位相精度で安定化したマイケルソン干渉計の作成とその評価が重要である。

そこで10nmの位置分解能をもった閉ル

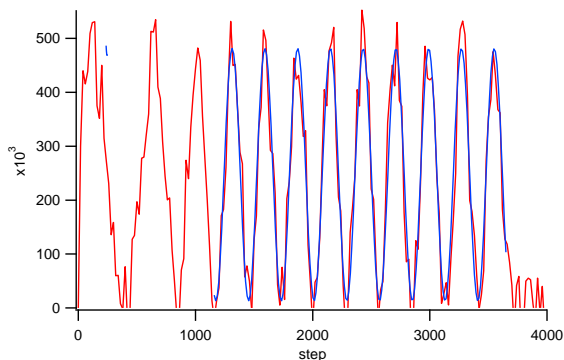


図3 光インターフェログラム

ープ制御のピエゾステージを用い高精度光干渉計を制作した。この干渉計で測定した光インターフェログラムを図3に示す。

高精度の干渉計では空気の対流に伴う光路長の変動が問題になるが、一般的な大学の実験室とは異なり、日本原子力研究開発機構関西光科学研究所のクリーンルーム実験室では、積極的な安定化を図らなくても、十分な位相安定性、再現性が得られた。

(2) 長寿命電子励起状態を用いた予備実験

短寿命励起状態を対象としたテスト実験を行う前に、寿命が長く十分に分裂した励起状態を対象に、4つの波束を干渉させ、それぞれの状態の共鳴エネルギーを決定する予備実験を計画し、そのための実験系を整備した。チタンサファイアレーザー光をRbセルに導入し、レーザーの帯域内で2つの電子励起状態、D1(794nm)とD2(780nm)が同時に励起していることを確認した。

(3) 原理検証実験に最適な系の選択

代表者の移動に伴い実験研究の実施が困難になったため、共同研究の理論研究者とともに原理検証実験に最適な系の探索を行った。当初は使用予定のレーザーのスペックより分子の前期解離を想定していたが、理論研究との比較を行う上では自動イオン化過程が都合の良い系である事が明らかになった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

[1] Ultrafast Fourier Transform with a Femtosecond-Laser-Driven molecule, K. Hosaka, H. Shimada, H. Chiba, H. Katsuki, Y. Teranishi, Y. Ohtsuki and K. Ohmori, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 180501 (2010). 査読有

[2] Photoelectron-Photoion Coincidence Momentum Imaging for Dissociative Ionization of Ethanol in Intense Laser Fields,

K. Hosaka, R. Itakura, K. Yokoyama, K. Yamanouchi, and A. Yokoyama, *Chem. Phys. Lett.* **475**, 19-23 (2009). 査読有

[学会発表] (計5件)

[1] K. Hosaka, Ultrafast Fourier Transform with a Femtosecond-Laser-Driven Molecule, International Conference on Coherent and Nonlinear Optics 2010年8月25日 Kazan (ロシア) 招待講演

[2] 穂坂綱一 強レーザー場中エタノールの解離イオン運動量選別光電子イメージング

物理学年会 2009年9月27日 熊本

[3] 穂坂綱一 電子・イオン運動量同時計測画像法による酸素分子の強レーザー場中解離性イオン化

分子科学討論会 2009年9月24日 名古屋

[4] 穂坂綱一 電強レーザー場中エタノールの光電子・解離イオン3次元運動量相関

分子科学討論会 2009年9月24日 名古屋

[5] 穂坂綱一 Dissociative ionization dynamics of ethanol in intense laser fields studied by photoelectron-photoion coincidence momentum imaging

化学反応討論会 2009年6月1日 大宮

6. 研究組織

(1) 研究代表者

穂坂 綱一 (HOSAKA KOUICHI)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：00419855