

高強度光による H₂O 分子の回転波束生成

(東大院・総文¹・東大先進機構²) ○菊池 勇¹・深堀 信一^{1,2}・長谷川 宗良^{1,2}

Creation of a rotational wave packet of H₂O by an intense laser field (¹ *Graduate School of Arts and Sciences, The Univ. of Tokyo*, ² *Komaba Institute for Science, The Univ. of Tokyo*) ○Isamu Kikuchi,¹ Shinichi Fukahori,^{1,2} Hirokazu Hasegawa^{1,2}

When molecules are irradiated with an intense femtosecond pump pulse, a rotational wave packet is generated.¹⁾ The time-evolution of the rotational wave packet can be pursued by the measurement of parent ions created by an intense femtosecond probe pulse as a function of the delay between the pump and probe pulses because an ionization probability by the probe pulse depends on the angle between the molecular axis and the laser electric field.²⁾ Studies of the rotational dynamics for asymmetric top molecules have been less reported than those for linear molecules. In this study, we investigate the rotational dynamics of H₂O induced by the intense pump pulse by measurement of H₂O⁺ yield ionized by the intense probe pulse as a function of the delay. The peaks appearing in the Fourier-transformed spectrum of the observed H₂O⁺ yield are assigned as the energy differences between rotational eigenstates. From these assignments, we unveil the rotational excitation processes by the intense pump pulse. Furthermore, the dependence of the observed H₂O⁺ yield on the delay is reproduced well by the calculation of $\langle \cos^2 \theta_{zc} \rangle$, where θ_{zc} is the angle between the polarization direction and the *c* axis of H₂O molecule. This result implies that the molecular orbital occupied before the ionization has the lobe along the *c* axis.

Keywords: rotational wave packet; intense femtosecond laser; rotational Raman spectrum; asymmetric top molecule; water molecule

高強度短パルス光を気相分子へ照射すると回転ラマン遷移が起こり、回転波束が生成する¹⁾。回転波束の時間発展は、ポンプ光による回転波束の生成後に高強度のプロブ光を照射して生成した親イオン収量を、ポンプ光とプロブ光の遅延時間の関数として計測することにより知ることができる²⁾。いままで数多くの直線分子の回転波束ダイナミクスが研究されているが^{1), 2)}、非対称コマ分子を対象とした例は少ない。本研究では、回転状態間のエネルギー準位が明瞭に分離できる小さな非対称コマ分子である H₂O を対象とし回転波束ダイナミクスの観測を試みた。

実験では超音速分子線とした H₂O 分子へ遅延時間をつけたポンプ光とプロブ光を照射し、生成した H₂O⁺ の収量を遅延時間の関数として測定した。測定した H₂O⁺ 収量にはビートが見られ、フーリエ変換により得られたスペクトルには複数の明瞭なピークが現れた。これらのピークは H₂O の回転エネルギー差に帰属でき、帰属結果から高強度光による回転励起過程を明らかにした。さらに、光の偏光方向 (*Z* 軸) と H₂O 分子の *c* 軸とのなす角を θ_{zc} として $\langle \cos^2 \theta_{zc} \rangle$ の時間変化を計算したところ、観測したイオン収量の遅延時間依存性を再現できた。これは、イオン化の際に放出電子が占めていた分子軌道が、*c* 軸に平行に広がりを持つことを示唆している。

1) Y. Ohshima and H. Hasegawa, *Int. J. Rev. Phys. Chem.*, 29 (2010) 619.

2) H. Hasegawa, Y. Ikeda, K. Sonoda, T. Sato *et al*, *Chem. Phys. Lett.* 662, 235-239 (2016).