

東俊行

東原子分子物理研究室

理化学研究所 埼玉県和光市広沢 2-1

toshiyuki-azuma@riken.jp



真空中に孤立した分子の **excitation** と **dynamics** の解明に向けて

ミリ秒から数時間に至る極めて遅い時間スケール、かつ極低温における多自由度孤立系の励起／脱励起ダイナミクスの科学は、短パルスレーザーの開発に伴って発展してきたいわゆるフェムト秒やアト秒科学の取り扱う時間領域とは、好対照をなす先端研究領域であり、さまざまな手法の発展によって実験的にこのような状態を用意し観測することが可能になってきたことから、世界的にも幾つかのグループで精力的な実験が始まった。今回は我々のグループが採用した2つのアプローチについて報告するとともに、国際的競争の状況を紹介する。

ひとつは、イオン源によって生成された高温分子イオンを極低温静電型イオン蓄積リング RICE に蓄積し、時間分解回転分光するアプローチである。周囲温度 4K の環境下に長時間蓄積する間、分子イオンは赤外輻射や蛍光によってその内部エネルギーを放出し、振動・回転基底状態へと数 10 分以上に及ぶ長い時間をかけて緩和していく。この冷却過程をリアルタイムに測定し、最終的に振動回転基底状態へ至る様相を観測する。具体的には、 N_2O^+ 正分子イオンを対象として波長可変色素レーザーによって電子遷移を起こさせ、前期解離に伴って放出される数 10keV の中性 N 原子を検出し、いわゆる **action spectroscopy** を行った。極低温リングにおける分子分光スペクトルとして、回転バンドの変化が明瞭に現れている世界で最も高分解能の観測データが得られた。

また、分子イオンを巨大ヘリウム液滴に内包させビームとして取り出す試みも順調に進展してきた。一般に分子の回転エネルギーは 0.1-1K の範囲にあることから、回転状態に関しては RICE 周回によっても十分には冷却されない。そこで、超流動ヘリウムのナノ液滴に注目した。捕捉された分子イオンの環境は気相孤立状態に限りなく近いうえに、内部自由度が 0.4 K まで急冷されることから、回転状態を含めほぼ基底状態にある分子を生成することができる。冷却パルスバルブを採用したヘリウム液滴開発に取り組んだ結果、その液滴サイズを 10^{11} まで増加させることに成功した。また、ヘリウム液滴に捕捉された分子イオンの振動・回転状態を分光的に探索する手法としてレーザー誘起蛍光検出を採用し、既に中性フタロシアニン分子に対するスペクトルから液滴内で振動状態が十分冷却された基底状態にあること確認している。現在、振動回転遷移に対応する微弱な赤外吸収信号を可視領域蛍光として高感度に検出するため、波長可変中赤外レーザーを同時に照射した二重共鳴法の開発に取り組んでいる。これによって、ヘリウム液滴内での分子イオンの振動・回転状態の冷却過程を捉えることが可能となると期待される。