

2P114

常温分子の断熱励起による高次ラマンサイドバンド光の発生

(電通大¹、JSTさきがけ²) ○鈴木隆行^{1,2}、田中涼¹、澤山純樹¹、桂川眞幸^{1,2}

【序】近年、気体分子の振動や回転状態を断熱的に励起し、特定の二準位間に最大値に迫る高いコヒーレンスを持つ分子を高密度に生成することが可能となった。高いコヒーレンスを持つ分子集団は対応する量子状態間の遷移周波数で周期的に屈折率変化をする媒質として振る舞い、通過する光を高効率に変調できる。この結果、ラマンサイドバンド光と呼ばれる広帯域な離散スペクトルが生成される。

ラマンコヒーレンスの生成には、ラマン遷移に対応する周波数差を持つ二種類のレーザー光を同時に入射する。周波数差をラマン遷移の共鳴周波数からわずかに離調することで、断熱的に二準位間の重ね合わせ状態を生成できる。高いコヒーレンスを持つ分子集団による光変調では、周波数の変換効率が高いため、全てのラマンサイドバンド光が励起光と同軸に発生するという特徴を持つ。これはフーリエ合成による超短パルス生成にも有利に働き、超短パルス発生の実践的な新手法として注目できる。

【目的】初期状態におけるラマン過程の上準位の分布は、下準位とは逆位相の重ね合わせ状態の生成に寄与するため、正味のラマンコヒーレンスを低下させてしまう。このため、二準位間の理想的な重ね合わせ状態を生成するためには、単一の量子状態からラマンコヒーレンスを立ち上げることが重要となる。これまでラマン媒質には主に気体水素が用いられ、その振動遷移や回転遷移が利用されてきた。これは、水素分子のエネルギー準位間隔が広く、液体窒素温度まで冷却することでほぼ完全に振動・回転の基底状態にでき、理想的な単一量子状態を用意できるためである。

しかし、常温でも十分なコヒーレンスが生成できれば、取り扱いの容易さから多くの有用性が生まれる。特に、超短パルス生成の新たなアプローチという観点では、より単純で安定なシステム構成が望まれる。そこで本研究では、常温状況下における断熱励起ラマンコヒーレンスの生成と、それによるラマンサイドバンド光の発生を検証し、液体窒素温度に冷却した場合と比較した。

【理論】水素分子は、核スピンの平行と反平行とから回転量子数 J が奇数のオルソ水素と偶数のパラ水素に分類される。オルソ-パラコンバージョンを行って純パラ水素を用意すれば、集団中の分子の回転量子数 J を偶数に制限できる。水素分子の回転定数 $B=60\text{ cm}^{-1}$ を使うと液体窒素温度(77.4 K)ではほぼ全てが $J=0$ に分布し、 $J=2$ の準位は0.1%程度になる。一方、常温(300 K)では $J=0$ の分布(P_0)は全体の52%、 $J=2$ の分布($P_2 \times 3$)は46%となる。ただし、 $J=2$ の準位は磁気量子数 $m=-1, 0, +1$ の三重縮退で、直線偏光した励起光では $J=2, m=0$ のみが $J=0$ とカップルできる。このためラマン過程に寄与する上下準位の分布の差(P_0-P_2)はおよそ37%となる。このことから常温では液体窒素温度の場合と比べ、実効的なラマン媒質の密度が0.37倍に低下した状態になると考えられる。

【結果】二波長発振注入同期チタンサファイアレーザーを使用し、ラマン遷移に対応する二つの周波数成分を持つ励起光を、空間的・時間的オーバーラップさせた状態で発生させた。この励起光を $f=800\text{ mm}$ (常温)または $f=850\text{ mm}$ (液体窒素温度時)のレンズで緩く絞りながら水素封入セル中に入射した。セル中の水素はあらかじめオルソ-パラコンバージョンを行い、純パラ水素に変換してある。水素セルは、液体窒素温度を実現するクライオスタット内に配置されており、液

液体窒素の供給を止めることでセル内の分子数を保ったまま常温にできる。水素セル内の圧力は液体窒素温度で 3 気圧、常温では 12 気圧である。

常温、および液体窒素温度におけるラマンサイドバンド光を発生させた結果を図 1 に示す。励起光の波長は 806 nm と 784 nm で、周波数差を 10.623 THz に設定した。図 1 の左は常温で励起強度 5.1 GW/cm²、図 1 の中央および右は液体窒素温度で、それぞれ励起強度を 1.2 GW/cm²、2.3 GW/cm² とした場合のラマンサイドバンドスペクトルである。常温で励起強度 5.1 GW/cm² のときは、励起光の長波長および短波長側に 3 本ずつサイドバンド光が観測された。液体窒素温度で励起強度 1.2 GW/cm² の場合には両側に 2 本ずつ、2.3 GW/cm² の場合には長波長側に 3 本、短波長側に 5 本観測された。常温で励起強度 5.1 GW/cm² での発生効率は、液体窒素温度での 1.2 GW/cm² と 2.3 GW/cm² の間程度の発生効率といえる。

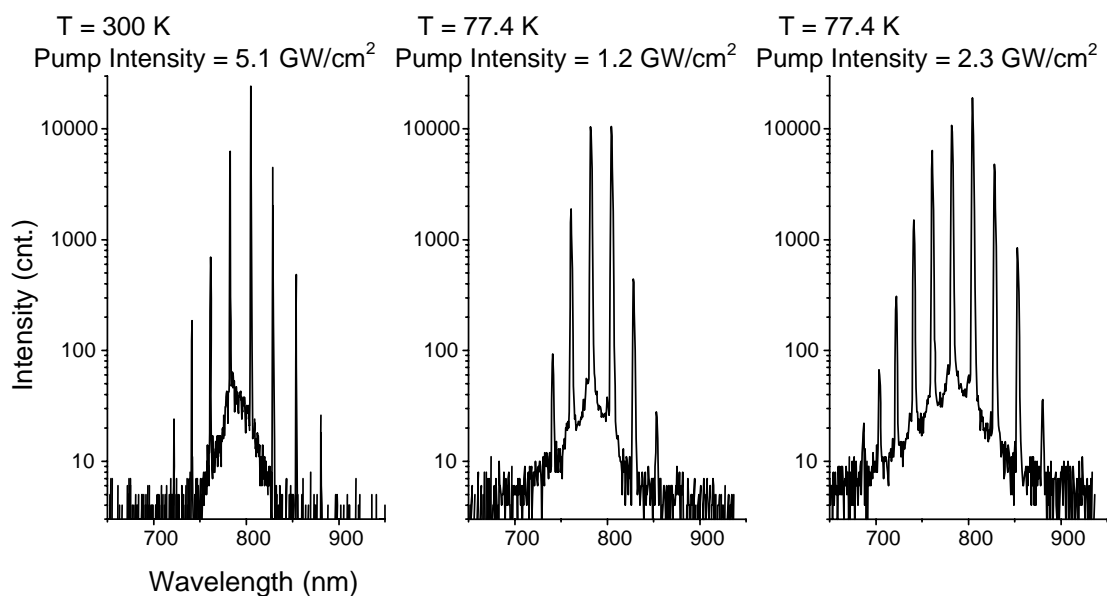


図 1 常温および液体窒素温度のパラ水素から発生させた広帯域ラマンサイドバンドスペクトル。約 3 倍の励起強度で常温でも液体窒素温度と同等の効率が達成された。

ラマン媒質の密度は常温では実効的に 0.37 倍程度と見積もられる。この値から冷却分子使用時と同等の結果となる励起強度を計算すると ~2.7 倍となる。5.1 GW/cm² の 1/2.7 倍はおよそ 1.9 GW/cm² となり、実験結果と矛盾しない。コヒーレンスの生成条件には初期分布による実効的な媒質密度以外にも、励起光の二つの周波数成分の強度比や、共鳴周波数からの離調量なども影響する。しかし今回の結果は、初期分布に起因する媒質の実効的な密度の影響が、常温と液体窒素温度でのコヒーレンス生成効率の違いに対し大きく作用することを示している。

【まとめと展望】 常温パラ水素分子を対象にラマンコヒーレンスの生成と、これによるサイドバンド発生について、液体窒素温度の場合と比較して検証した。励起強度を約 3 倍に上げれば、常温でも冷却水素分子と同程度のラマンサイドバンド光の発生が可能なが分かった。この結果は初期状態における熱分布由来の実効的な媒質密度の低下から予想される結果と一致した。今後はこの結果を踏まえ、セル形状の設計や最適な圧力の検討を行うことで、さらに効率的にコヒーレンスを生成する技術を開発する。このような高コヒーレント分子集団は、超短パルス発生への応用だけでなく、他の応用実験の初期試料としても興味深い対象になることが期待される。