

1P027

非線形コヒーレント分光のためのフーリエ限界ナノ秒パルス OPA の作成とその応用

(分子研・総研大) ○三宅伸一郎、大島康裕

はじめに レーザー光の特徴はそのコヒーレンスの高さにあるといえるが、フーリエ限界のコヒーレンスを有するものとして現在広く入手可能なのは、フェムト秒レーザーに代表される超短パルス光源に限られる。多原子分子やクラスターといった気相での興味深い系の詳細な分光を行うには、GHz 以下の周波数分解能と MV/cm 程度の電界強度が必要となる。これを実現するためには波長分解能と輝度との兼ね合いから、ナノ秒のフーリエ限界パルスが適当である、さらにこのようなコヒーレント光源を用いることにより、誘導ラマン断熱透過(STIRAP)に代表される非線形コヒーレント分光が可能となる。STIRAP はコヒーレント分布移動法の一つであり、類似の分光学的情報が得られる SEP では分布移動効率が 25%に留まるのに対し、単一量子状態への 100%の分布移動が可能である。このため STIRAP を利用すれば、電子基底状態における高振動準位を高感度で測定することが可能になると期待される。そこで本研究は、気相分子系の紫外分光への利用を目的とし、パラメトリック増幅(OPA)をベースとしたナノ秒フーリエ限界光源の開発を行った。さらに STIRAP 実現の最適条件を見出すためのモデル計算を行った。

実験 図 1 に実験配置を示す。OPA の励起光として injection-seeded Nd:YAG レーザーの第 3 高調波(355 nm)を用い、シード光は波長~1050 nm の cw 外部共振器型半導体レーザー(ECDL)を使用した。実験では~260 nm の光が必要であり、この光を得るために OPA のシグナル光(~530 nm)の第 2 高調波発生を行う。OPA 用の非線形結晶には BBO を用い、変換効率を上げるため 14 mm 結晶 2 個と 17 mm 結晶 2 個を用いた。BBO

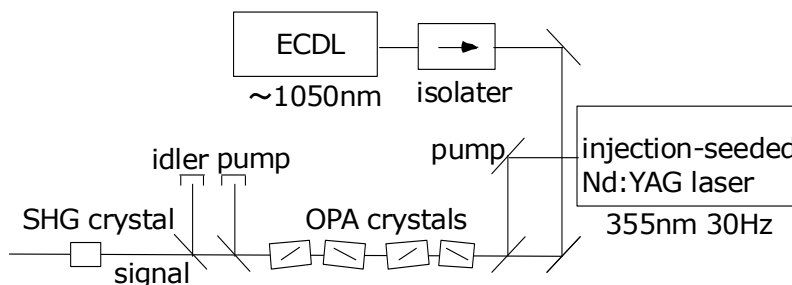


図 1. 実験配置

結晶の大きな walkoff を補正するために結晶の軸を交互に配し、励起光との空間的な重なりを長い距離の間保てるようにした。

結果 アイドラー光をエタロン(FSR:1 GHz, フィネス:40)に導入し、シード光の波長を掃引してアイドラー光の帯域幅を測定した。測定の結果をガウス型関数でフィットしたところ、帯域幅 160 MHz(FWHM)であった。一方アイドラー光のパルス幅を計測し、装置関数を元にデコンボリューションして得た値は 4.3 ns であった。このパ

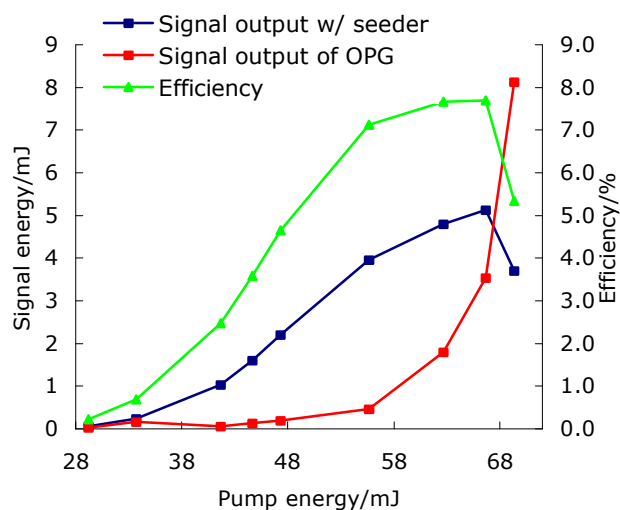


図 2. シグナル光の励起光強度依存性

ルス幅に対するフーリエ限界の帯域幅は約 100 MHz であるので、ほぼフーリエ限界パルスが実現されているといえる。

図 2 に、シグナル光出力の励起光強度依存性を示す。励起光強度は OPG 発生閾値以下の範囲に限定してあるが、励起光強度を増すことでさらに出力を増すこともできる。図 3 にはシード波長依存性を示す。この図は結晶角度を固定した状態でシード光の波長を掃引した時のシグナル光強度をプロットしたもので、FWHMは 1.6 nm、シグナル光のSHGをとった場合 $\sim 38 \text{ cm}^{-1}$ の掃引範囲にあたる。またSHGの変換効率は10%であった。

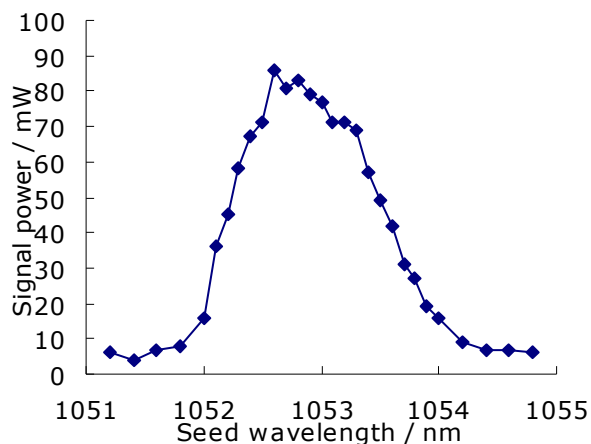


図 3. 結晶角度固定でのシード光波長依存性

今回作成した光源を用いた場合、ベンゼン基底状態の振動準位間の分布移動をSTIRAPにより行う条件を数値計算で求めた。STIRAPの特徴は、系に入射する2つの光のタイミングにより相互作用した後の状態が大きく変化することである。図4に計算結果を示す。強度比1:7の光パルスを7nsの遅延時間にて入射する[図4.b)]と始状態 $|1\rangle$ から終状態 $|2\rangle$ へ100%の分布移動[図4.a)]が実現していることがわかる。一方実験ではModified STIRAPと呼ばれる方式を用いる。この方式では掃引するstokes光が $|2\rangle \rightarrow |3\rangle$ 間の遷移と共鳴したとき系の分布は相互作用前とは変化しないすなわち中間状態 $|2\rangle$ の分布数は0となる。中間状態の分布数をプローブ光でモニターしながらstokes光を掃引することで、基底状態の振動状態 $|3\rangle$ の位置をディップとして観測する。今後この計算結果を元に、ベンゼンクラスターの分光を行っていく予定である。

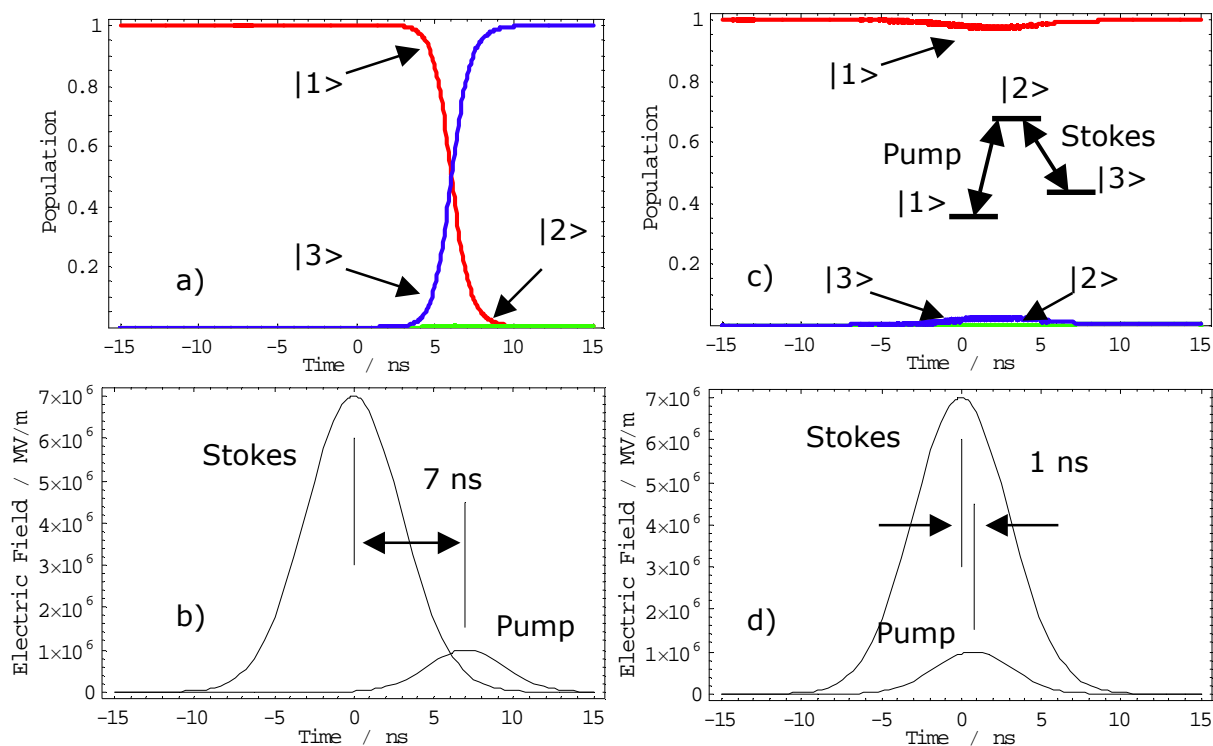


図 4. STIRAP(a,b)と Modified STIRAP(c,d)