

4P023

チャープ断熱ラマン透過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

(総研大・分子研)

○三宅伸一郎、大島康裕

【はじめに】光と分子のコヒーレント相互作用を利用することにより、量子状態分布の反転・移動や量子準位間の干渉を実現することができる。特に、コヒーレント分布移動と呼ばれる、始状態から終状態へ 100%分布を移動する方法として、 π パルスを用いる方法の他に、断熱透過と呼ばれるチャープパルス法や誘導ラマン断熱透過法(STIRAP)等が広く知られている。コヒーレント分布移動はポテンシャル曲面上での核運動を制御する目的でさかんに研究されているが、コヒーレントな光の持つ高い波長分解能とコヒーレント分布移動の高効率性に着目した高感度、高分解能な分光法としての応用も行われている[1]。しかし、単一縦モードの光源すなわち、コヒーレントな光源を利用できる波長領域が限定されていることが、幅広い応用への障害となってきた。特に、分子の振動や回転のエネルギーは数~数千 cm^{-1} 程度であり、対応する周波数領域でコヒーレントな光を連続的に掃引することは容易ではない。付け加えて各方法の問題点として、 π パルス法では高精度な光強度の制御、STIRAPは緩和の遅い適当な中間状態の必要性が挙げられる。本研究では、チャープパルス法を非共鳴ラマンに適用することで、光強度変動に鈍感であり、光源の波長範囲によって分子系が限定されず、容易に広い範囲の波長掃引を実現できる、チャープ断熱ラマン透過法(CARP)を検討した。

【断熱透過の原理】ドレスト状態の描像では、二準位系に共鳴周波数の光を入射すると、ラビ周波数 Ω_0 と等しいエネルギー差をもった断熱状態が生じる。そこで、共鳴周波数を通過するように光周波数を掃引していくと、共鳴に近づくにつれ断熱状態 $|-\rangle$, $|+\rangle$ が互いに反発するように分裂する。ここで、断熱状態とは時間 t をパラメータとみなして系の運動方程式 $H(t)\Phi(t) = E(t)\Phi(t)$ を解いて得られた解である。図1に断熱状態のエネルギー相関図を示す。横軸 Δ は共鳴周波数からのずれ(デチューニング)である。今 $t = -\infty$ で $|1\rangle$ に分布しているとする。ここにラビ周波数 Ω_0 の光を入射し光周波数を掃引すると $|1\rangle$ にある分子は図中 $|-\rangle$ と書いた下側の実線上を運動する。光周波数が共鳴を通過した後、十分離れたところで入射光を止めると系は $t = +\infty$ での $|-\rangle$ の値 $|2\rangle$ へと完全に移動する。

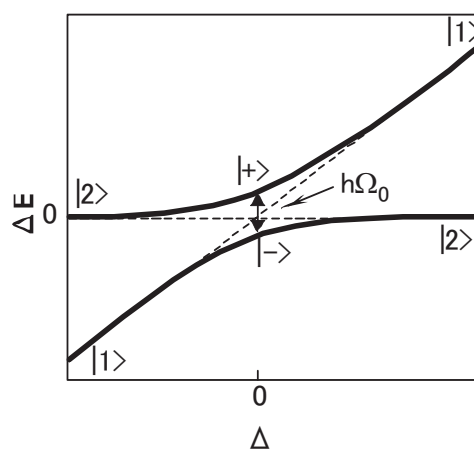


図1 デチューニングに伴う二準位系のエネルギー変化。実線は断熱状態、点線はドレストした系の固有状態を示す。

【CARP: Chirped Adiabatic Raman Passage】次に、二準位間を2光子で結ぶラマン効果にチャープパルス法を応用する場合を考える。エネルギーダイアグラムを図2に示す。共鳴を用いる方法では、光との相互作用は遷移双極子 μ により $V(t) = -\mu \cdot E(t)$ である。一方、ラマン効果では系の分極率 α により $V_{Raman}(t) = -(\alpha/2)[E_{pump}(t) + E_{stokes}(t)]^2$ である。 V_{Raman} を相互作用

として半古典近似によりモデル計算をおこなった。光周波数のチャープは光パルス有位相変調することで生成する。位相変調により周波数 ω_0 の光は $[\omega_0 + m \sin(\omega_m t + \phi_m)]$ と周波数変調を受ける。ここで m は変調深さ、 ω_m は変調波の周波数、 ϕ_m は変調波の相対位相である。変調波は、光パルスの中心と原点を同じくする正弦波を用い、 ω_m は光パルスのFWHMの逆数より幾分大きな値にする。十分な光強度があるうちに光周波数が共鳴周波数に再び近づくと、断熱透過法の性質により分布移動の効率が下がるためである。このことから周波数の増加によりチャープ量を増やすことには限界があり、変調深さを増やしてチャープ量を増やすこととなる。

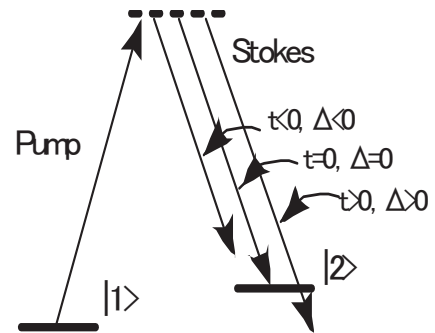


図2 CARPのエネルギーダイアグラム。 $|1\rangle, |2\rangle$ は固有状態、点線は仮想準位。

NO分子の回転ラマン遷移を対象としてモデル計算を行った。ポンプ光、ストークス光共にパルス幅：10 ns、集光半径：100 μm でパルスエネルギーはそれぞれ8 mJ、80 mJとした(図3)。周波数チャープはストークス光のみに施し変調周波数は30 MHz、変調深さは 2π とした。図に示したように $|1\rangle$ の分布を $|2\rangle$ へと完全に移動できていることがわかる。光強度依存性は、2 mJから80 mJまでの強度で安定して分布移動を行うことが確認できた。

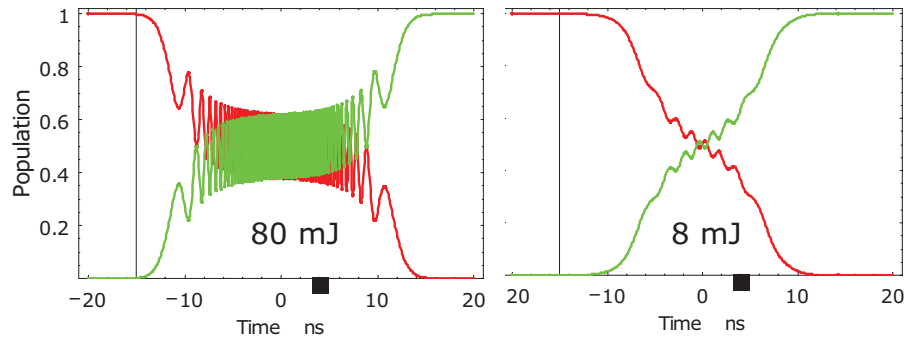


図3 CARPのモデル計算。赤： $|1\rangle$ 、緑： $|2\rangle$ の分布数。

【CARP用光源開発】現在CARPによる基底状態の高精度分光法に用いるためのNd:YAG第二高調波励起OPAを製作中である。図4にブロックダイアグラムを示す。このOPAでは、外部共振器半導体レーザー(ECDL)からの単一縦モードの出力を、縮退近辺でシグナルもしくはアイドラーにシード光として注入することで、ラマン遷移の周波数差を持ったコヒーレントな光が同時に得られる。シード光は、励起レーザーのパルスと同期した変調波を印加した位相変調器(EOM)に入射して位相変調することで、周波数チャープを加える。位相変調された光はポッケルスセルにより適当なパルス幅に切り出し、OPAで増幅を行うのに適切な強度までファイバ増幅器で増幅する。この1 μm 帯の増幅には、975 nm半導体レーザー励起のYb添加ファイバーを利用する。

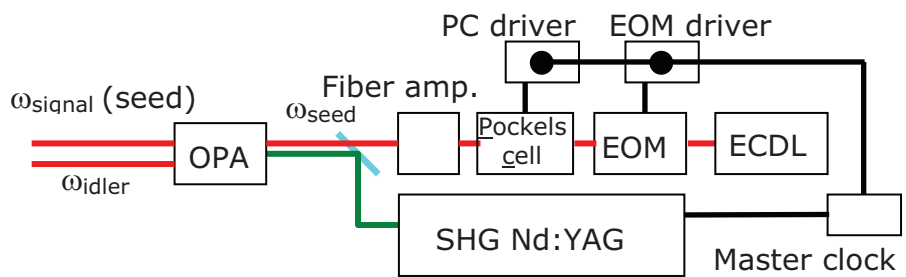


図4 狭帯域チャープパルス縮退OPA

[1] R. Sussman *et al.*, JCP **100**, 4784 (1994).