

4P055

固体パラ水素中での分子波束干渉制御

(分子研¹・CREST²・総研大³・岩手大⁴) ○香月浩之^{1,2,3}・千葉寿^{1,2,4}・大森賢治^{1,2,3}

【序】固体パラ水素は固体でありながら分子間の相互作用が非常に小さく、分子のほぼ自由な振動、回転運動が観測される興味深い系である[1]。励起状態の緩和も非常に遅く、過去の研究で非常に線幅の鋭い遷移が観測されている。我々はこれまで、孤立分子系における電子振動波束のコヒーレント制御の実験を行ってきた[2-4]。今回、同様な量子干渉技術を凝縮系に応用するにあたり、固体パラ水素を対象とし、その振動回転波束の量子干渉制御実験を行った。

【実験】水素原子核はフェルミオンなので水素分子の波動関数はパウリの排他則から核の置換に対して反対称になることが要請される。この結果として、水素分子は偶数の回転量子数を持つパラ水素と奇数の回転量子数を持つオルト水素に分類される。両者間の変換は、磁気的な相互作用のない環境下では非常に遅く、オルト水素とパラ水素はほぼ異なる分子種のように振る舞うことが知られている。液体ヘリウム温度において、オルト・パラ水素はそれぞれほぼ100パーセント $J=1$ 及び $J=0$ の状態を占有する。 $J=0$ のパラ水素の回転波動関数は球対称であるため、 $J=0$ のパラ水素は電気的な多極子モーメントを全く持たないという特徴がある。実験では、予め常磁性触媒を用いてノーマル水素をパラ水素に変換しておく。その後、液体ヘリウム温度に冷却したクライオスタット中に固定した銅製のセル中にパラ水素ガスを流し込むことによって結晶を成長させた。水素は 13.8K 以下の温度で無色透明な固体となり、六方最密充填構造を取る。

実験には CARS 分光法を用いた。図1にパルスのシーケンスを示す。中心波長 600nm (ポンプ光) および 800nm (ストークス光) の各フェムト秒レーザーパルスを遅延時間 0 で重ね合わせることで、 $v=1 \leftarrow 0$ のラマン遷移を起こすことができる。さらに遅延時間 t 経過後にプローブ光パルス(中心波長 570nm) を入射することで、位相整合条件を満たす方向 ($\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3$) に周波数 ($\omega_1 - \omega_2 + \omega_3$) のコヒーレントなシグナル光が散乱される。各パルスのレイアウトは folded BOXCARS 配置を用いた。得られたシグナル光をバンドパスフィルターで分離した後、分光器と CCD ディテクタを用いて、周波数分散スペクトルを観測した。さらに、波束制御を行うためにポンプ光、ストークス光をそれぞれ干渉計を用いてダブルパルスとし、ダブルパルス間の遅延時間 τ をアト秒精度で制御することによって二つのラマン波束間の干渉を制御する実験も行った。

【結果及び解析】通常の3パルスを用いたCARS測定では、 $v=0$ と $v=1$ の状態間のコヒーレンス ρ_{01} の減衰が観測される。実際に行った測定ではプローブ光の遅延時間を250psまでスキャンしたが、シグナルの減少は10%以下にとどまっております、1ns以上の長寿命を持つことがわかる。比較として測定したノーマル水素結晶での ρ_{01} は50ps以内で減衰してしまうことから、固体パラ水素が非常に例外的に緩和の遅い系であることが理解される。固体パラ水素における $v=1$ 励起状態はBloch関数によって記述され、バンド幅 1cm^{-1} 程度のバンド構造を示すことが赤外吸収実験から知られている。言い換えると $v=1$ の励起状態は励起子間相互作用の結果、結晶中に非局在化していることになる。Raman遷移では選択則により波数ベクトル $k=0$ の単一状態のみが許容となることが知られており、今回の観測も単一の量子状態のみを励起していることになる。

次に、プローブ光のタイミングを $t=200\text{ps}$ に固定してダブルパルス対による干渉測定を行ったところ、約8fs周期のフリンジを観測することができた。これは、固体中での振動準位間隔 4153cm^{-1} に対応している。ダブルパルスの間隔 τ を1psから50psまで変化させて同様の測定を行ったが、フリンジコントラストの劣化は見られ

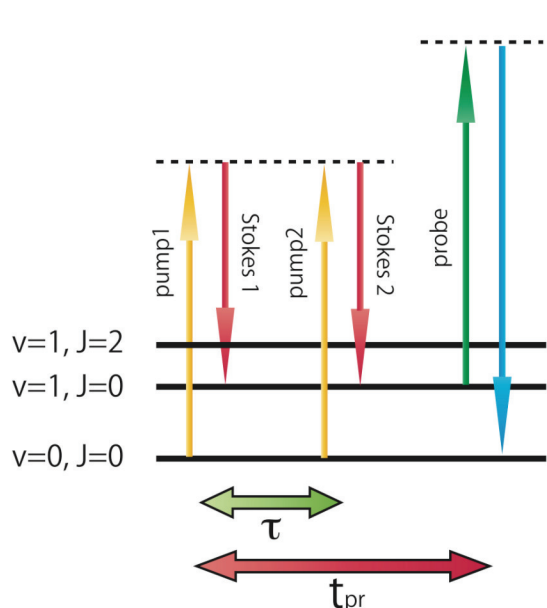


図1 ダブルパルスCARSパルススキーム

なかった。 τ をフリンジの谷及び山の位置に固定して、プローブ光のタイミングをスキャンすることで、 ρ_{01} の振幅がリアルタイムに強め合い・弱め合いの干渉をする様子を観測することにも成功した。

今後、外的要因によってコヒーレンスを乱した時の ρ_{01} の振幅及び位相の変化を測定する予定である。

【参考文献】

- [1] H. Katsuki, T. Nakamura, and T. Momose, J. Chem. Phys. **116**, 8881 (2002)
- [2] H. Katsuki, et al. Phys. Rev. Lett. **102**, 103602 (2009)
- [3] H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, Phys. Rev. A **76**, 013403 (2007)
- [4] H. Katsuki, et al. Science **311**, 1589 (2006)