

3A05 二原子分子の振動波束干渉を用いた位相振幅情報処理

(分子研¹, 総研大², 科学技術振興機構・CREST³, ポール・サバティエ大⁴)

香月 浩之^{1,2,3}, ○穂坂 綱一^{1,3}, 千葉 寿^{1,3}, Christoph Meier⁴,

Bertrand Girard⁴, 大森 賢治^{1,2,3}

【序】

位相ロックされたフェムト秒レーザーパルス対を用いて二原子分子のポテンシャル上に2個の振動波束を作成すると、それらの干渉が起こる。この波束干渉を用いれば波束中に含まれる各振動固有状態のポピュレーション、相対位相を制御し、読み出すことができる。

【実験】

実験の概略を図1に示す。530nmの中心波長を持った位相ロックダブルパルスを用いてヨウ素分子を基底状態からB励起状態に励起して振動波束を作成する。作成された波束は $v=30$ から $v=33$ までの4準位から構成され、古典的振動周期 (T_{vib})=504fsでポテンシャル上を運動する。ダブルパルスの作成には、真空中に組んだマイケルソン干渉計を応用した位相変調機を用い、ダブルパルス間の遅延時間 (τ) を ± 20 asの精度で安定化させている。フェムト秒のプローブパルスを用いた場合、B振動ポテンシャル上での波束のダイナミクスを量子ビートとして観測できる。一方、ナノ秒プローブパルスを用いた場合には、波束中の特定の振動固有状態 v のみを選択的に励起することができる。この結果、ナノ秒レーザーの周波数を掃引することにより振動波束を構成する各固有状態のポピュレーションを測定できる¹。これとは独立に、各振動状態間のポピュレーションフリンジを直接ナノ秒レーザーで観測する実験も行った。この実験により、振動波束中の各固有関数の相対位相をダイレクトに観測することができた。

【結果】

位相ロックダブルパルスによって励起されるB状態の振動状態分布 ρ_n と τ の間には $\rho_n \propto 1 + \cos(\omega_n \tau)$ という関係が成り立つ。各振動状態の遷移周波数 ω_n を遷移の中心の準位 $v = \tilde{n}$ の周りで展開すると、

$$\omega_n = \omega_{\tilde{n}} + (n - \tilde{n}) \frac{2\pi}{T_{\text{vib}}} + (n - \tilde{n})^2 \frac{2\pi}{T_{\text{rev}}}$$

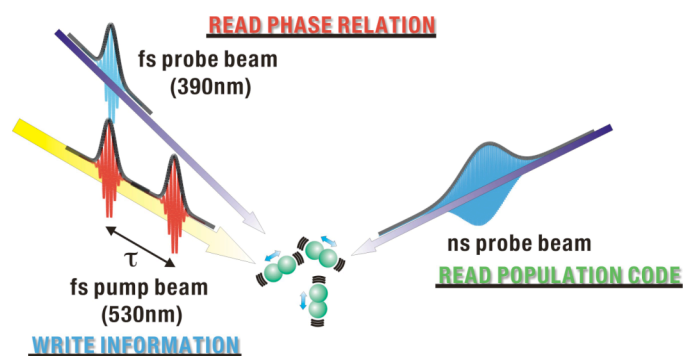


図1 実験スキーム。位相ロックフェムト秒ダブルパルスで書き込んだ位相振幅情報をフェムト秒プローブ及びナノ秒プローブ実験を組み合わせ読み出す。

と表される。ここで T_{vib} は波束の古典的な振動周期にあたり、 T_{rev} はリバイバル(3A04参照)が起こる時間に対応する。今の実験条件下では $T_{vib} \ll T_{rev}$ であるため、 $\tau \sim 1.0T_{vib}$ 近傍での各状態のポピュレーションは $\rho_n(\tau) \propto 1 + \cos(\omega_n(T_{vib} + \delta\tau))$ と表される。これは、各状態のポピュレーションがそれぞれ同位相で振動していることを示している(図2(a))。同様に $\tau \sim 1.5T_{vib}$ の各タイミングでは振動量子数が+1 変化することにより位相が π だけ変化することになり、図2(b)のような各準位のポピュレーションのビートが観測される。ポピュレーションコードを $[\rho_{30} \text{Re}(e^{i\theta_{30}}), \rho_{31} \text{Re}(e^{i(\theta_{31}-\theta_{30})}), \rho_{32} \text{Re}(e^{i(\theta_{32}-\theta_{30})}), \rho_{33} \text{Re}(e^{i(\theta_{33}-\theta_{30})})]$ と定義すると、 $\tau \sim 1.0T_{vib}$ の α, β のタイミングにおけるポピュレーションコードは [4444], [0000] と表される。同様に $\tau \sim 1.5T_{vib}$ の図2(b)に示した $\alpha \sim \delta$ の各タイミングにおけるポピュレーションコードは [0404], [2222], [4040], [2-22-2] と表される。

図2(b)の β と δ に対応するタイミングで位相をロックした場合、各準位のポピュレーションの絶対値はほぼ同じ値となりナノ秒プローブスペクトルのみから両者の判別を行うのは困難である。一方、この状態に対してフェムト秒プローブ実験を行うと、これらのタイミングで両者の位相が π だけ反転している様子が分かる。このようにフェムト秒プローブとナノ秒プローブを組み合わせることによって、位相振幅情報を読み出せることが示された。他のタイミングにおけるコード、および波束運動のシミュレーションとの比較についても当日紹介する。

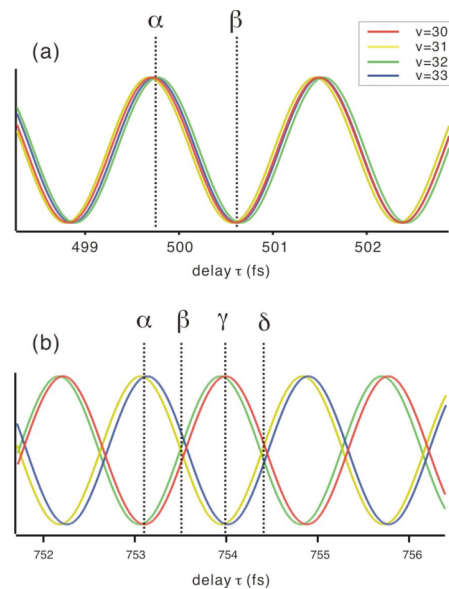


図2 波束中に含まれる各振動準位のポピュレーションのポンプパルス間ディレイ τ に対する位相関係 (計算値)。それぞれ (a) $\tau \sim 1.0T_{vib}$, (b) $\tau \sim 1.5T_{vib}$ 近傍に対応

【参考文献】

1. K. Ohmori, Y. Sato, E. E. Nikitin, and S. A. Rice, Phys. Rev. Lett. **91**, 243003 (2003).