

1P098

ラマンサイドバンド光を応用した超高繰り返しパルス列の発生と分子制御への応用

(電通大¹、学振 PD²、JST さきがけ³) ○鈴木隆行^{1,2}、桂川眞幸^{1,3}

【序】気相分子の回転周期よりも短いパルスを照射すると、分子をダイナミックに整列させることができる。この技術を用いれば、孤立系である気体分子を結晶のように整列させた分子試料を提供できることから、多くの研究への応用が期待できる。応用研究においては、より高い配列度の実現が望まれる。しかし、分子のイオン化閾値を超えない程度にレーザー強度が制限されるため、極限的な回転波束の生成は困難である。これまでに理論研究において、複数のパルスを分子の回転周期に一致した繰り返し周期で照射すると、加算的に回転波束を励起できることが示されている。また実験においても、ダブルパルスを用いて、より高度な配列状態が実現できることが示されている。しかし、理論が要求するような多数のパルスを、個々のパルスエネルギーを保ったまま生成することは容易ではなく、極限的な回転波束の生成は実現できていない。

一方、断熱励起を応用したラマンサイドバンド光の発生法は、超高繰り返し周期を持つフェムト秒パルス列が生成できることで注目を集めている。このパルス列は、集光強度 $\sim 10^{13} \text{W/cm}^2$ 以上に達するフェムト秒パルスが $10^4\text{-}10^5$ 個連続しており、これまでのいかなる光源を用いた実験とも異なるユニークな応用が期待できる。特に、前述の回転状態の制御への応用はその格好の応用例といえる。

【目的】本研究では、分子の回転状態制御にラマンサイドバンド光によるパルス列を応用することを検討した。サイドバンドから作られる個々のパルスの時間間隔は、ラマン過程に寄与する 2 つのエネルギー差で決定される。そのため、ラマンサイドバンド光を用いたパルス列では、パルスの繰り返し間隔を任意に選ぶことができない。このことは、分子制御の際には大きな制限要因となる。分子の回転周期に正確に一致した繰り返し周期を持つパルス列が必要であり、その発生法と、さらには分子制御への応用の実現可能性を検討する。

【考察】ラマン媒質と回転制御の対象分子に同一種類の分子を仮定する。ラマンサイドバンド光に寄与する 2 準位には、分子の回転基底状態とその励起状態、すなわち回転量子数 $J=0 \leftrightarrow 2$ の遷移を選ぶ。分子の回転定数を B とおくと、エネルギー差は $6B$ となり、そのため発生するパルス列の間隔は $1/6B$ となる。分子の回転周期は回転定数 B を用いると $1/2B$ とあらわされる。このため、通常のラマンサイドバンド光発生スキームでは、直接分子制御に応用することは難しい。ここで、回転量子数 $J=1 \leftrightarrow 3$ の遷移に注目する。この遷移のエネルギー差は $10B$ である。もし、 $J=0 \leftrightarrow 2$ 、 $J=1 \leftrightarrow 3$ の 2 つのラマン遷移を同時にカップリングさせることができれば、サイドバンド光は $6B$ と $10B$ のエネルギー差が多重に連なり、結果として $2B$ 間隔の櫛スペクトルを得ることができる。

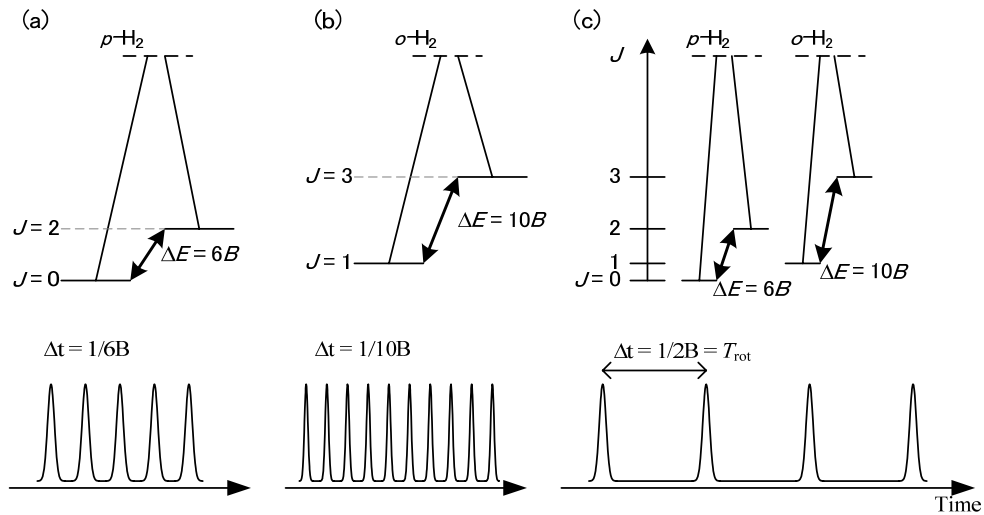


図 1 パラ水素($p\text{-H}_2$)(a)およびオルソ水素($o\text{-H}_2$)(b)使用時のラマン過程のエネルギースキームと、期待されるパルス列のイメージ。(c)パラ、オルソ同時励起の場合。同時励起では分子の固有回転周期に対応したパルス間隔が得られる。

ラマンサイドバンド発生過程における 2 準位間のカップリングでは、上下準位の初期分布の差が重要な要因となる。試料の温度を下げることにより、初期状態でほとんど完全に下準位に分布した試料を得ることができる。しかし、 $J=0$ の分布と同等な量、 $J=1$ の分布が必要である。水素分子では、核スピンの影響により回転状態が制約され、 $J = \text{even}$ もしくは $J = \text{odd}$ に限定される。一般に前者をパラ水素、後者をオルソ水素と呼んで区別される。パラ水素とオルソ水素は光の吸収・放出や他の粒子との衝突過程において、相互の変換はほとんど起こらない。そのため、パラ水素とオルソ水素を適当に混合することで、 J の偶奇の比率を任意に選ぶことができる。試料の冷却を同時に行うことで、 $J=0$ と $J=1$ の分子を任意の混合比で選ぶことができる。水素の回転定数 B はおよそ $1.8 \times 10^{12} \text{ Hz}$ (60 cm^{-1}) である。図 2 に水素分子における液体窒素温度、室温での J の分布を示す。液体窒素温度では $J=2$ や $J=3$ の分布を下準位の 0.1% 程度に抑えることができる。

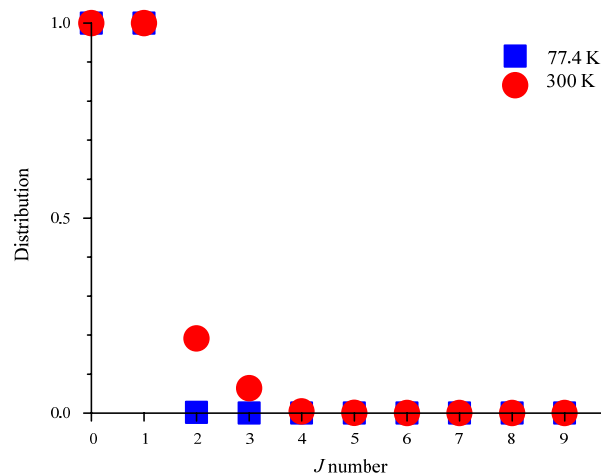


図 2 パラーオルソの 1:1 混合水素気体の回転状態の分布。液体窒素温度では、ほとんど $J=0$ と $J=1$ のみに分布している。

上記の考察から、回転周期に対応したパルス列が得られる可能性が示唆された。詳細な議論は、当日発表にて行う。