フーリエ限界ナノ秒パルスレーザーの開発と紫外・可視高分解能分光への応用

須磨航介、長谷川宗良、○大島康裕（分子研）

○

Department of Electronic Structure, Institute for Molecular Science

Abstract

≈

【序】単一量子状態分布の実現は、原子・分子の物理化学にとって魅力的なテーマの一つである。マクロなサイズの分子集団に対し　　を行うことや、化学反応の制御、超高感度分光、量子情報など、その応用範囲は極めて広い。単一の量子状態の実現には、いくつかの方法が提案されているが、実験的な制約などを考慮すると、誘導ラマン断熱通過　　法が、最も実用的かつ有効な手法の一つと考えられている。　　では、コヒーレンスが良い２つのパルス光（　　、　　）を用意し、両者間の遅延を適当に調節し、時間的、空間的に重ねて照射することで、中間状態（図１の　）の分布をゼロとしたまま始状態から終状態へ断熱的に分布を移動させる。　　は、既に理論的には検証済みであり、いくつかの簡単な系について、その有用性が示されている　　。

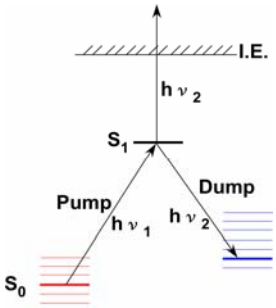

図１　STIRAP の
エネルギー準位構成

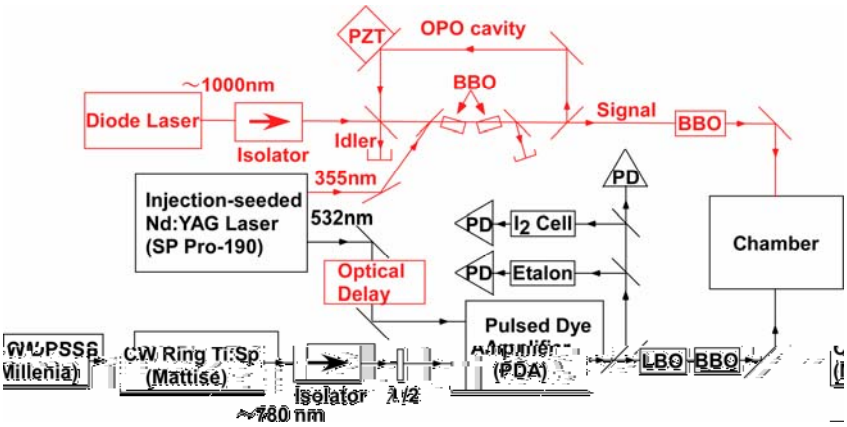

図２　STIRAP の光学系。赤線部分は現在開発中の Dump 光源部分

分子錯体に　　を適用できれば、従来の分光手法を用いた場合では得にくかった電子基底状態における多くの分子間振動準位構造を、極めて高い感度で観測可能であると期待できる。電子基底状態の振動準位構造を調べる手法としては、誘導放出分光法　　等がよく用いられるが、　　では終状態へ最大で　%の分布が移動されるのに対し、　　は、　　状態分布を移動

することが可能であるため、　　に比べ本質的に高感度の分光法である。

我々は　　をベンゼン錯体（ベンゼン２量体、ベンゼン−水　：　錯体）に適用することで、その分子間振動準位構造を決定し、それをもとに詳細な分子間相互作用ポテンシャルを決定することを目標とし、必要な装置開発を行った。

【実験】　　を行うには、十分にコヒーレンスの良い、フーリエ変換限界に近い光源が独立に２つ必要である。本研究で用いるレーザー光のパルス幅は約　ナノ秒なので、線幅が数百　　程度の高分解能の光源が必要となる。光学系の構成図を図　に示す。　　光は、　　レーザー励起の　チタンサファイアレーザーからのシード光を　　レーザー　　励起の色素アンプで増幅し、パルス状の赤外光（～　　、　　）を発生させ、さらに非線形結晶（　、　）により三倍波（～　　、　　）に変換し、ベンゼンやベンゼン錯体の $S \leftarrow S$ 遷移に対応する紫外光を得た。基本波である赤外光の線幅を測定したところ、約　　であり（図　）、フーリエ変換限界に近いパルス光が発生していることが分かった。これを用い、共鳴２光子イオン化により、試験的にベンゼンの $S \leftarrow S$ 遷移の高分解能スペクトルの観測を行った（図　）。図　（ ）に示したように、ベンゼンの単一の回転線の線幅は約　　であり、３倍波についてもフーリエ変換限界に近いパルスが発生していると結論できる。さらに、　−ベンゼン　：　錯体の $S \leftarrow S$ 遷移の観測を行った。ベンゼン単体の信号に比べてかなり弱いものの十分な　　で信号を観測でき、クラスターに対しても十分な検出感度を持つことを確かめた。現在ベンゼン−水　：　錯体の $S \leftarrow S$ 遷移の観測を試みており、発表ではその結果についても報告する予定である。

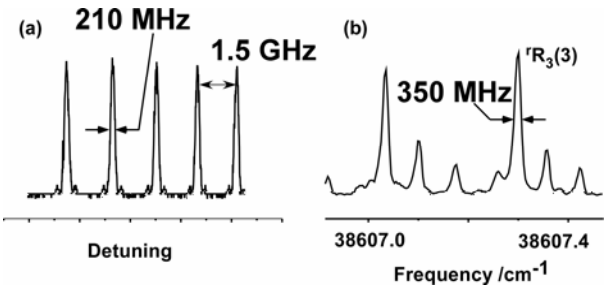

図 3　エタロンのフリンジ　とベンゼンの電子遷移

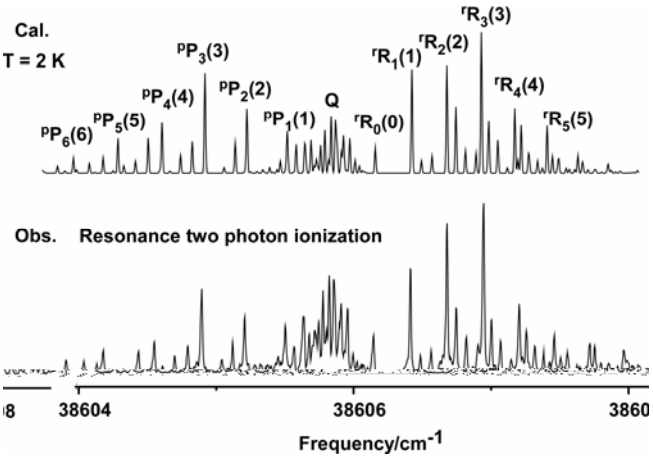

図 4 ベンゼンの $S \leftarrow S$　　遷移
シミュレーション（上）と実測（下）

【展望】引き続き　　光の光源（図２の赤線で示した部分）の開発を行う。　　光の発生には、半導体レーザーの光をシード光とした、光パラメトリック発振　　を用いる。　　で得られる　　光から　　結晶により倍波を発生させ、　　光を得る。これらの光源を開発した後に、ベンゼン−水　：　錯体に対し、　　あるいは、その応用である高分解能イオンディップ分光法　を適用し、電子基底状態における振動準位構造を明らかにしたい。