

ディビジョン番号	1
ディビジョン名	物理化学

大項目	1. 分子分光学および分子集合体の構造
中項目	1-1. 高分解能分光
小項目	1-1-4. 可視・紫外コヒーレント高分解能分光

概要（200字以内）	
<p>コヒーレント高分解能分光は、物質の量子固有状態を詳細に選別した制御が可能な方法論であり、分子集団の量子状態分布を初期状態から単一の終状態へ完全に移動することができる。この優れた分布移動能力を活用した分光実験が行われており、高振動励起状態の詳細な観測や、反応ダイナミクス研究に利用されている。今後のレーザー光源の発展に伴って、分子科学研究のみならず、基礎物理研究や様々な先端的应用分野での利用が期待される。</p>	
現状と最前線	
<p>太陽や電灯のような通常の光源と比較して、レーザーは指向性・単色性・輝度などの面で格段に優れた特性を有している。また、波としての位相が揃っている、つまり、高いコヒーレンスを有することも重要な特性の1つである。コヒーレント光のスペクトル分布幅は、光パルス強度の時間幅とのフーリエ変換の関係のみによって制限され、フーリエ限界パルスと呼ばれる。一方、インコヒーレントな光ではスペクトル分布はフーリエ限界以上の広がりを持ってしまう。これまでに、レーザーのコヒーレンスの良さを積極的に利用して、物質の量子状態を高度に制御する方法論が開発されてきている。特に、連続光やナノ秒パルスのように比較的長い時間スケールで物質と光がコヒーレント相互作用する場合は、必然的に高い周波数分解能が実現されるため、物質の量子固有状態を詳細に選別した制御が可能となる。このような実験的方法論が高分解能コヒーレント分光である。</p> <p>高分解能コヒーレント分光によって、インコヒーレント光を利用した場合では実現不可能な様々な光学過程を誘起できる。なかでも最も重要なのは、ある初期量子状態から別の単一終状態へ分布を完全に移動しうることである。この過程は一般に断熱通過 (Adiabatic Passage) と呼ばれ、磁気共鳴法などでも利用されている [1,2]。物質系がコヒーレント光電場と相互作用すると、その量子状態は無摂動系での固有状態の線形結合となる。電場強度や中心周波数などを光電場の周期に比較して十分ゆっくりと変化させていくと、線形結合の係数もそれに伴って変化していく。2準位系において途中で交差する状況にしておけば、光と相互作用する前後で断熱</p>	

的に系の量子状態の性質が移り変わり、分布の完全移動が実現される。3準位系においても、2つのコヒーレント光パルスとの相互作用を利用した誘導ラマン断熱通過 (Stimulated Raman Adiabatic Passage; STIRAP) によって、同様に完全な状態分布移動が実現できる (概要図参照)。断熱通過を用いた完全状態分布移動は、気相中の原子や分子、低温固体マトリックス中や結晶中にドーピングされた原子・イオン・分子において既に実現されている。

高分解能コヒーレント分光の応用としては、まず、インコヒーレント分光よりも格段に優れた分布移動能力を活用した高感度な分光実験が挙げられる[1]。例えば、分子クラスターの分子間振動に関するエネルギー準位を、高い励起状態まで詳細に観測した研究が報告されている。さらに、2分子衝突反応における反応物の振動状態依存性を明らかにするために、STIRAPによる振動励起状態への分布移動が利用されている[2]。

コヒーレント分布移動に伴って光の運動量が物質系に移行するので、気相中の原子や分子の並進運動状態を変化させることが可能である。原子・分子集団の空間分布を測定することによってこのような並進の制御が確認されており、原子のレーザー冷却、さらに、原子物質波の干渉実験等の先端的な物理実験において活用されている[2]。

高分解能コヒーレント分光は、系の電子遷移に同調した波長で発進する高輝度コヒーレント光源を必要とする。可視・紫外領域の任意の波長に対してこの要請を実現するのは容易ではなく、研究対象はそれほど豊富ではないことが現状の課題となっている。従来は原子を対象とした原理検証実験が主流であったが、今後、レーザー光源の発展に伴って、多様な分子を対象として、分子内・分子間相互作用や化学反応性に関して本質的な情報をもたらす一般的な方法論へと発展することが強く期待される。

[1] 藤村勇一、分光研究、第47巻、第3号、141ページ (1998年)。

[2] N. V. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, and K. Bergmann, Annu. Rev. Phys. Chem. **52**, 763 (2001).

将来予測と方向性

・5年後までに解決・実現が望まれる課題

- 1) 固体レーザー開発や波長変換技術の進展により、赤外から真空紫外領域までの範囲で十分な出力と波長可変性を有するコヒーレント高分解能パルス光源を実現する。
- 2) 多様な分子系へ完全状態分布移動を適用することにより高感度・高分解能な分光計測として確立し、さらに、反応ダイナミクスや固体物性の研究において広範な応用を図る。

・10年後までに解決・実現が望まれる課題

- 1) 複数のコヒーレント高分解能パルス光源間の相対的な光位相を制御する技術を確立し、量子準位のコヒーレント結合状態を能動的に操作する方法論を開拓する。
- 2) 前記の方法論に基づいて、量子状態を詳細に選別した上での化学反応のコヒーレント制御を実現し、さらに、量子通信などの先端的応用分野への展開を図る。

キーワード

光・分子コヒーレント相互作用、フーリエ限界パルス、分布移動、断熱通過

(執筆者: 大島 康裕)