

1C19 光合成アンテナなどの分子凝集体における超高速量子コヒーレント輸送
 (京大院理^{*}、Korea Univ.^{**}) 金賢得^{*}, 谷村吉隆^{*}, Minheang Cho^{**}

紅色光合成細菌などの光合成アンテナ系では図1に示すように、様々な電子励起状態の超高速輸送を示す。これらの超高速な輸送は、太陽光エネルギーによって励起された電子エネルギーが失活する前に LH1 アンテナ中心にある Reaction Center まで運ばれるために実現されたものと思われる。重要なことは、これらの超高速輸送が従来のスタンダードな励起エネルギー輸送方程式である Forster 理論では記述できないという事実である。すなわち、図1に示された超高速輸送は新しい輸送方程式の存在を示唆していると言える。

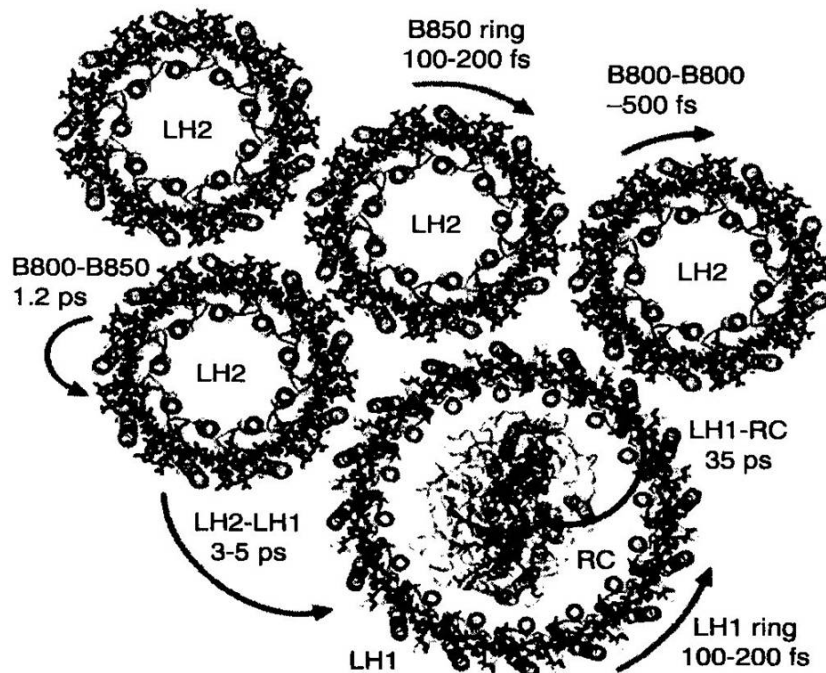


図1：紅色光合成細菌の光合成アンテナ系。時定数は励起エネルギーの輸送にかかる時間を示す。

我々は上図の中でもっとも速い時定数（100fs-200fs）を持つ LH2 アンテナ内の超高速輸送に注目した。LH2 アンテナは18個の B850 クロロフィルが強くカップルした分子凝集体である。このような分子凝集体では、電子励起は凝集体全体に対して（LH2 ではリング全体に対して）起きる。そのような電子励起状態を exciton と呼ぶ。我々はこの exciton の超高速な輸送がどのように起こっているかを理解すべく、その輸送方程式/時間発展式を導出した。また、exciton の超高速輸送の効果を近年目覚ましい進歩を遂げている非線形レーザースペクトロスコーピーで実験的に観測可能な物理量として取り出すことに成功した。

非線形スペクトロスコーピーでは図2のように、試料に複数回の電場パルスをあて、その非線形応答関数を観測する。非線形応答関数には、線形吸収スペクトルよりもより豊富な試料中の分子に関する情報が含まれており、より詳細に分子の性質を調べるのに適している。図2には外部電場との相互作用による density matrix の変化も同時に示している。我々が今回注目した exciton 輸送は $\rho_{\mu\nu} \Rightarrow \rho_{\mu\nu}$ という coherent 状態、すなわち density matrix の off-diagonal part の輸送である。この exciton-exciton coherent transfer (EECT) は、ps オーダーの時間領域では終了しているとされ、これまで注目されてこなかったが、今注目している fs オーダーの超高速な時間領域では有意に効いてくることが予想される。実際、今回計算した EECT の効果を含む場合と含まない場合とで、非線形応答関数に如実な違いが出ることがわかった。

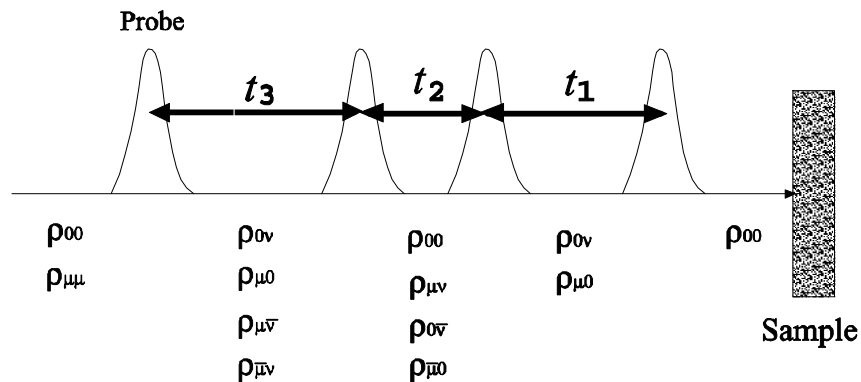


図 2 : 3 次の非線形スペクトロスコピーの概念図。 t_1, t_2, t_3 は各電場パルスの時間間隔である。

図 3 は非線形スペクトロスコピーの実験で観測可能な非線形応答関数のスペクトル結果である。EECT の効果を含む場合と含まない場合とで明白な違いが生まれている。EECT を含まない場合、非線形応答関数は t_1 軸と t_3 軸の対角線方向に伸張され、 t_1 と t_3 の時間間隔に強い相関が見られる。その一方で、EECT を含む場合は t_1 と t_3 の時間間隔にあった相関が壊れ、decoherence が $t_2 = 100$ fs というとても速い時間領域で起こっていることがわかる。このような量子 coherence の消失が通常は ps オーダーで起こることを考えると、これは ultrafast memory loss とでも言うべき現象である。EECT は以上のように fs オーダーでの超高速 decoherence を引き起こす重要な役割を担っていることが分かった。本発表ではより詳細な実験結果との比較なども含めて議論を展開したい。

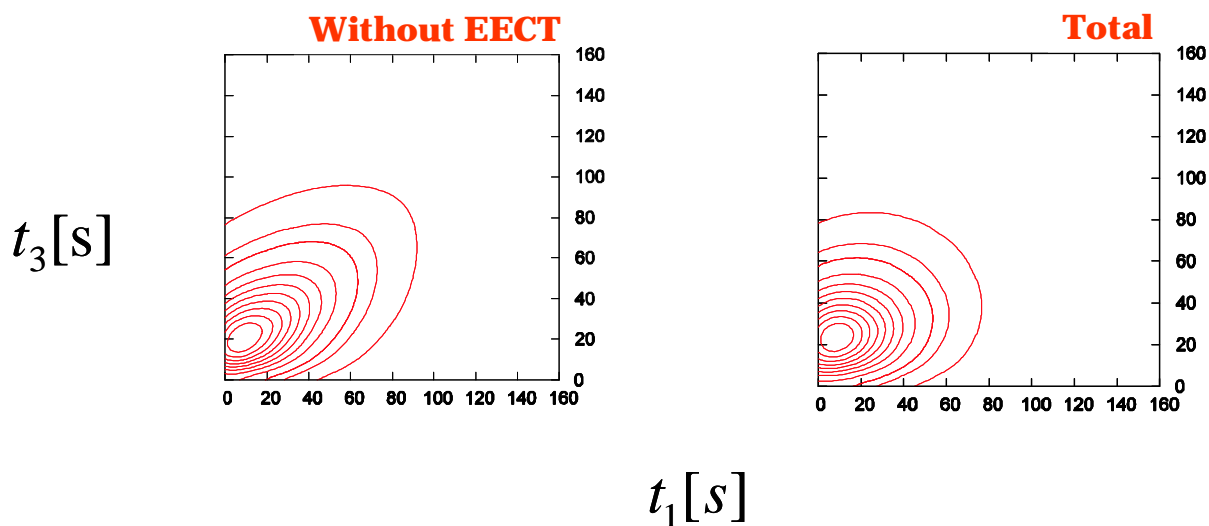


図 3 : 3 次の非線形応答関数を $t_2 = 100$ fs の場合に等高線プロットしたもの。左図が EECT の効果を含まないスペクトルで、右図が EECT の効果を含むスペクトル。

【参考文献】 Kim Hyeon-Deuk, Yoshitaka Tanimura and M. Cho, to be published in J. Chem. Phys. Vol.127(2007).