

固体パラ水素中における非局在励起子の量子干渉制御

(分子研¹, 総研大²) ○香月 浩之^{1,2}, 岡野 泰彬¹, 大森 賢治^{1,2}

【序】 これまでの我々の研究¹⁻⁴において、気相中の孤立ヨウ素分子を対象とした波束干渉制御の研究を行ってきた。本研究では波束干渉制御の手法を量子凝縮系である固体パラ水素に応用し、凝縮系中の非局在励起子(vibron, roton)の量子干渉制御の可能性を探る。パラ水素とは、液体ヘリウム温度において $v=0, J=0$ の量子準位をとる水素分子であり、その波動関数の等方性により、基底状態において全く電気多極子モーメントを持たない。結果的に、凝縮系においても分子間の相互作用は非常に弱く、固体パラ水素の特徴として、振動回転状態はほぼ自由な多体系波動関数を用いて記述することができる。また、特に振動励起子に関してはそのエネルギーが 4150cm^{-1} と非常に大きく、周囲の熱浴とのカップリングが弱いため、非常に長い緩和寿命を持つことが知られている。このような系において、量子状態の制御を高精度に行うことができると、量子情報処理、量子古典境界の探索など様々な意味合いで重要な意義を持つ。

【実験】 図1に、実際の実験で使用した固体パラ水素結晶を示す。直径は 25mm 、長さは 8mm である。結晶は放射状に成長し、マクロなサイズにわたって単結晶構造をとっている。このような結晶を記述する $v=1$ 状態の波動関数は局在基底関数

$$|v_i=1\rangle = \prod_{j \neq i}^n |v_j=0, J=0\rangle |v_i=1, J=0\rangle$$

の一次結合で表すことができる。 i, j は水素分子を表すインデックスである。分子間には弱いけれども無視できない程度の分子間相互作用が存在し、そのハミルトニアンは

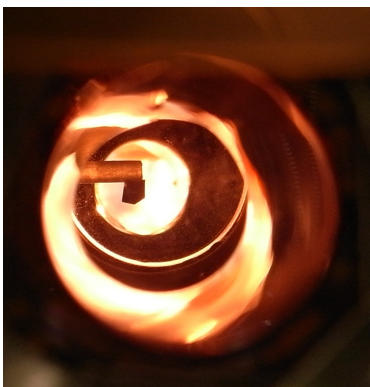


図1 固体パラ水素の写真
φ25xt8mmの銅セル中に作成

3次元のFrenkel励起子と同じ形をしている。振動の純粋励起状態($v=1, J=0$)の場合、分子間相互作用の結果として、振動励起状態はおよそ 3cm^{-1} の幅を持ったバンド構造をとる。本研究ではバンドの一番底にある $k=0$ の状態を励起して、基底状態との間にコヒーレントな重ね合わせの波束を作成し、さらに二つ目の波束と量子干渉をさせることにより、波束のコヒーレント制御を行った。 $v=1, J=0, k=0$ の状態は局在基底関数を用いて、

$$|v=1, J=0, k=0\rangle = \sum_i^N \frac{1}{\sqrt{N}} |v_i=1\rangle$$

と表される。実験には CARS (Coherent anti-Stokes Raman Scattering) の手法を応用し、干渉計を用いてパルス間隔を±10 アト秒の精度でされたポンプパルス対及びストークスパルス対を生成した (図 2 を参照)。Pump-1, Stokes-1 のパルス対で作成してから遅延時間 τ 経過後に二つ目の波束を作成し、最終的な波束の状態を probe パルス入射後の Anti-Stokes 光として計測した。

【結果】 二つの波束を作成する遅延時間 τ を掃引しながら、Anti-Stokes 光の強度を測定した場合、周期 8.03fs のシグナルが観測された。強度は通常の CARS の場合のほぼ 0~4 倍の間で変動しており、非常にコントラストの高い干渉が得られた。 τ を 100ps 程度まで増加させた場合でも、ほとんど干渉のコントラストは劣化せず、固体パラ水素中という凝縮系中の非局在化した励起状態を対象として、精度の高い干渉操作を数百 ps から 1ns 程度の比較的長い期間にわたって行うことが可能であることが

実証された。

固体パラ水素中では振動励起のみではなく、回転の励起子 (roton) を生成することも可能であり、そうした複数の量子準位を対象とした干渉制御も可能である。詳細に関しては当日発表する。

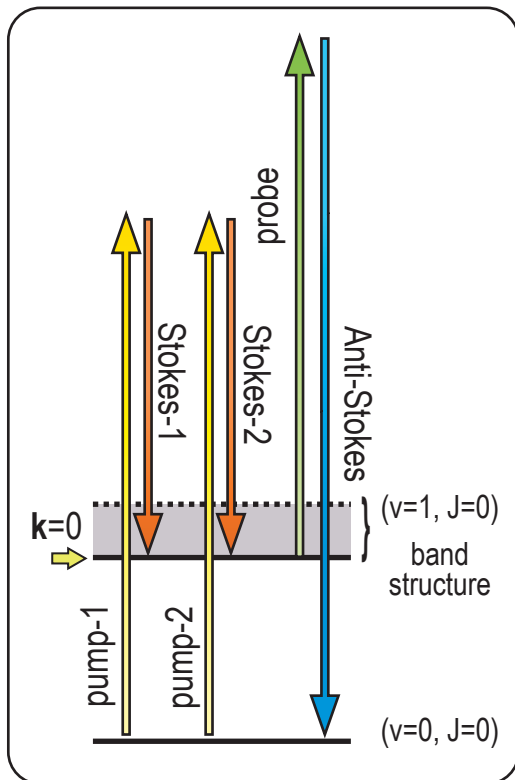


図 2 干渉実験に用いたフリンジ分解 CARS 測定スキーム。

【参考文献】

1. H. Katsuki, et al., Phys. Chem. Chem. Phys. **12**, 5189 (2010).
2. H. Katsuki, et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 103602 (2009).
3. H. Katsuki, et al., Science **311**, 1589 (2006).
4. H. Katsuki, et al., Phys. Rev. A, **76**, 013403 (2007).