

超短レーザーパルスを用いた分子整列・配向制御における周波数ネットワーク機構

(東北大院・理) 中嶋克宏, 阿部弘哉, ○大槻幸義

【序】分子回転による平均化を除き, 分子固定座標系でのダイナミクスを調べるためには分子を整列・配向させる必要がある. 実際, 化学反応制御や分子(電子)構造解明など様々な応用が考えられている. 制御法に関しては, 回転周期と制御電場の時間幅の関係から, 断熱・非断熱的な方法(またはそれらの組み合わせ)に分類できる. 断熱法では静電場や長時間の非共鳴レーザーパルスが使われ, 分極ポテンシャル中に整列・配向した回転状態を生成する. この状態は, 制御電場を遮断すると一緒に失われる. 一方, 非断熱法では非共鳴の超短レーザーパルスにより回転波束を生成する. 回転波束の周期的な運動(リバイバル)を利用することで, 電場照射後に分子を整列・配向できるため近年着目されている.

2原子(直線)分子の整列に関しては, 単一の超短レーザーパルス照射による制御の限界が理論・実験的に知られている[1, 2]. そのため, 複数のパルスをどのように照射するか, 種々の方法が議論されている. 例えば, 回転波束の部分的リバイバルのタイミングに合わせたパルス照射(スキューミング蓄積法)[1], (ブランコ揺らしに似た)整列度合いの変化が最大のタイミングでパルスを照射する方法[3], 回転周期ごとに繰り返しパルスを照射する方法[4]などが提案されている. しかし, 「同様に有効な制御法がいくつも存在する理由」, すなわち, これら制御法の背景にある一般的なルールは知られていない. 一方, 分子の向きまで考慮する配向制御においては, 2原子や直線分子においても低い達成度しか報告されていない. レーザー電場の偏光ベクトルと分子軸のなす角を θ とし, $\cos\theta$ の期待値で配向度合いを表すとすると, 2009年(非断熱制御)および2010年(断熱制御)の報告例では, いずれも0.05程度にとどまっている[5]. 更に, 一方向だけでなく3次元整列・配向制御するにはレーザーパルスの偏光が重要になる. 断熱領域では偏光条件と制御機構に関して定性的な解釈がある. しかし, 超短レーザーパルスを用いる非断熱領域では定性的な理解も十分とは言えない.

このような研究状況を踏まえ, 本研究では制御理論に基づくシミュレーションを行い, 2原子分子における非断熱整列・配向に関する以下の3つの課題に取り組む. ①2原子分子の整列制御機構に対して, 周波数ネットワーク機構に基づく統一的な解釈の提案[6]. ②整列制御を経由する2段階配向制御法の提案[7]. ③偏光条件を陽に含んだ制御シミュレーション法の確立と応用[8].

【理論】 N_2 , CO 分子をそれぞれ具体例に, 整列, 配向制御を考える. レーザーパルスの中心波長を800 nmとすると, 分子は分極率を通してレーザー電場 $\mathbf{E}(t)$ と相互作用する. ここでは直線偏光レーザーパルスによる整列制御を例に, 最適なレーザー電場の設計法を説明する. シュレーディンガー方程式は以下ようになる.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = [H - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t) - \frac{1}{2} \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t)] |\psi(t)\rangle \quad (1)$$

ここで, H はレーザー電場に依存しない分子ハミルトニアン, $\boldsymbol{\mu}$, $\boldsymbol{\alpha}$ は双極子モーメントと分極率を表す(配向制御を考える場合は更に, 超分極率 $\boldsymbol{\beta}$ を通した相互作用も考慮する). 2原子分の

回転波束運動の周期性（リバイバル）から、ある時刻 t_f での整列度合いを最大にするパルスを求めればよい。ここでは整列度合いを表す定量的な指標として次式を用いる。

$$F = \langle \psi(t_f) | P \cos^2 \theta P | \psi(t_f) \rangle \quad (2)$$

P は励起する回転状態を指定する射影演算子である。変分法を(2)式に適用することで、 F を最大にするレーザー電場が従う設計方程式を導く。パルス設計方程式の数値解法には、我々が開発した単調収束が保証された反復計算アルゴリズムを用いる[9]。このように目的の実現に最適な電場を設計し、最適電場下での時間発展を計算する方法を最適制御シミュレーションとよぶ。

【結果と考察】 N_2 分子を考え、時刻 $t_f = (1 \text{ 回転周期})$ において、最大の整列度合いを与える制御電場を計算した。計算条件をかえても常に3つのサブパルスから成る電場が最適制御解として求められた。その際の整列度合いは 0.92 である。計算には振動自由度も含めたが、計算の結果、振動励起はみられず回転状態だけが励起された。そこで以下では回転定数 B の剛体として、計算結果の意味を考える。図1には電場強度に対する強度スペクトルを示す。多数の振動数成分を含むことが分かる。振動数差に着目すると、矢印で表したように、回転ラマン遷移の条件を満たすネットワークを構成していることが分かる。この周波数ネットワークの重要性は、3つのモデルガウスパルスを用いた計算からも示すことができる。図2は、照射タイミングと整列度合いの関係を等高線図で表わす。この結果から、(近似的に)周波数ネットワーク構造が満たされるときに、高い整列度合いが現れることが確かめられる。既報告の整列制御法は、様々な近似的ネットワークの違いとして統一的に理解できる。この例から分かるように、最適制御シミュレーションは多準位系における制御機構を解析するのに有効な手法である。

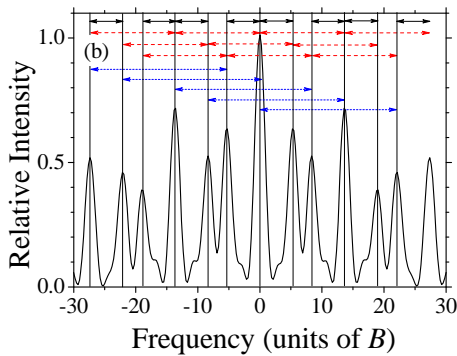


図1 サイクル平均した最適電場の二乗に対する強度スペクトル

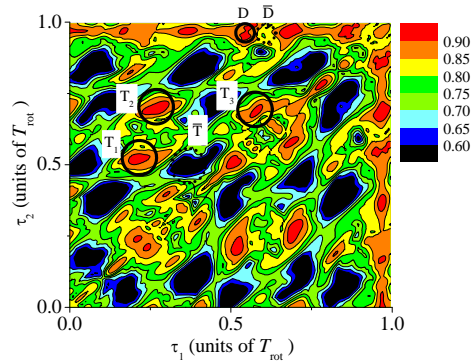


図2 3つのモデルガウスパルスにより得られた整列度合いの等高線図

- [1] M. Leibscher, I. Sh. Averbukh, and H. Rabitz, Phys. Rev. Lett. 90, 213001 (2003)
- [2] O. Ghafur, A. Rouzee, A. Gijsbertsen, W. Siu, S. Stotle, and M. Vrakking, Nat. Phys. 5, 289 (2009).
- [3] K. F. Lee, E. A. Shapiro, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A 73, 033403 (2006).
- [4] J. P. Cryan, P. H. Bucksbaum, and R. N. Coffee, Phys. Rev. A 80, 063412 (2009).
- [5] S. De et al., Phys. Rev. Lett. 103, 153002 (2009); K. Oda et al., Phys. Rev. Lett. 104, 213901 (2010).
- [6] H. Abe and Y. Ohtsuki, Phys. Rev. A 83, 053410 (2011).
- [7] K. Nakajima, H. Abe, and Y. Ohtsuki, *to be submitted*.
- [8] H. Abe and Y. Ohtsuki, *submitted to J. Chem. Phys.*
- [9] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, Phys. Rev. A 77, 033414 (2008).

分子配列制御を利用した同位体選択的イオン化

(1原子力機構・関西, 2東大院・総合文化, 3分子研)

○赤木 浩¹、笠嶋 辰也¹、熊田 高之¹、板倉 隆二¹、横山 淳¹、長谷川宗良²、大島 康裕³

[緒言] 非断熱分子配列[1]と、角度依存-非共鳴多光子イオン化[2]を利用した同位体分離法を提案し、その原理実証のために同位体選択的イオン化実験を行った。二原子分子などの小分子の同位体混合ガスに直線偏光・短パルスレーザー光を照射すれば、回転ラマン遷移によりコヒーレントな回転励起状態が生成し、結果として分子は偏光方向に配列する[1]。この配列が揃った状態は時間の経過とともに崩れていくが、回転周期後に再び配列状態が回復する。その回転周期は同位体分子で異なるため、特定の同位体分子だけが配列したタイミングで直線偏光・短パルスレーザー光をもう1パルス照射し、非共鳴多光子イオン化を起こす。イオン化確率は分子軸と偏光方向のなす角に依存するため[2, 3]、イオン化光の偏光を適切な方向に向けることで、配列した同位体分子を選択的にイオン化できる。

この方法を、分子振動エネルギー差を利用する一般的レーザー同位体分離と比較すると、以下の2つの利点が挙げられる。

- ① 一般的方法では振動遷移にレーザー波長を合わせる必要がある。しかし、技術的に困難な波長があるため、適応できる分子に制限がある。一方、本方法は共鳴過程を使わないため、レーザー波長を調整する必要が無い。従って、原理的に全ての分子に対して適応が可能である。
- ② 一般的方法を重元素に適応した場合、同位体分子間の振動エネルギー差が減少するためにスペクトル重なりが大きくなり、同位体選択性が低下する(表 1)。一方、回転周期差は同位体質量に依存しないため、重元素に対しても選択性が低下しない[4]。従って、重元素同位体の高効率分離が実現する可能性がある。

表 1. 等核2原子分子に対する分子レーザー同位体分離法の比較[4]

	利用する物理量	同位体質量 m_i への依存性	特徴
一般的分子レーザー法	振動エネルギー差 ΔV_{vib}	$\Delta V_{\text{vib}} \propto \sqrt{\frac{1}{m_i}} - \sqrt{\frac{1}{m_i + \Delta m}}$	大きな m_i でエネルギー差減少
本方法	回転周期差 ΔT_{rot}	$\Delta T_{\text{rot}} \propto \Delta m$	質量差 Δm に依存し、 m_i に依存しない

本研究では、分子配列制御と多光子イオン化を利用したレーザー同位体分離を実証するため、窒素分子の同位体混合ガス($^{14}\text{N}_2$ と $^{15}\text{N}_2$)を対象に実験を行い、本方法の有用性を示した。

[実験方法] 短パルスレーザー光(中心波長 795nm、パルス幅 70 fs)をマイケルソン干渉計を使って分子配列光とイオン化光に分けた。真空チャンバー内に導入した $^{14}\text{N}_2/^{15}\text{N}_2/\text{Ar}$ 混合ガス(混合比 $^{14}\text{N}_2: ^{15}\text{N}_2: \text{Ar} = 1:1:6$)に対し、分子配列光とイオン化光をレンズで集光して照射し、生成する $^{14}\text{N}_2^+$ および $^{15}\text{N}_2^+$ イオンを飛行時間型質量分析装置で同位体を選別して検出し、イオン収量 $I(^i\text{N}_2^+)$ ($i=14$ または 15)を得た。分子配列-イオン化パルス間の遅延時間に対するイオン収量比 $\alpha [= I(^{15}\text{N}_2^+)/I(^{14}\text{N}_2^+)]$ を基に、同位体選択性の評価を行った。なお、分子配列光とイオン化光の偏光方向は互いに平行とした。 N_2 の非共鳴多光子イオン化は、偏光方向が分子軸に平行なときに優先的に進行するため[3]、 N_2 が偏光方向に配列した時はイオン収量のピークが現れ、反配列(分子が偏光

方向に対して垂直な平面内にある状態)した時はディップが現れる。

[結果と考察] Fig. 1(a)は、遅延時間 0~5 ps における $^{14}\text{N}_2^+$ (青・破線)および $^{15}\text{N}_2^+$ (赤・実線)イオン収量、(b)はイオン収量比 α の遅延時間依存性である。 $^{14}\text{N}_2$ 分子に対する過去の実験から[5]、この時間領域では、0.25 回転周期(2.1 ps)に反配列し、0.5 周期(4.2 ps)には一旦配列してから反配列することが分かっている。本実験で得られた $^{14}\text{N}_2^+$ 収量にも、2.1 ps 付近で弱いディップが、4.2 ps 付近で強いピークとディップの対が現れており[Fig 1(a)の青・破線]、過去の実験結果[5]を良く再現している。

一方、 $^{15}\text{N}_2$ の回転周期は $^{14}\text{N}_2$ の約 15/14 倍(~1.07)になる。従って $^{15}\text{N}_2$ の 0.25 および 0.5 周期は 2.2 ps および 4.5 ps と、 $^{14}\text{N}_2$ よりいくぶん遅くなるはずである。予想通りに、 $^{15}\text{N}_2^+$ 収量には、2.2 ps に弱いピーク、4.5 ps 付近に強いピークとディップが観測された[Fig 1(a)の赤・実線]。また $^{15}\text{N}_2$ の 0.25 周期(2.2 ps)にはピークが現れており、 $^{14}\text{N}_2$ の場合とは異なっている。この違いは $^{14}\text{N}_2$ と $^{15}\text{N}_2$ の核スピ統計の違いから理解できる[6]。

収量比 α [Fig. 1(b)]には、0.25 周期(2.2 ps)で 1.08 の弱いピークが、0.5 周期(4.3 ps)で 1.18 の強いピークが現れた。すなわち、これらの遅延時間では、 $^{15}\text{N}_2$ を優先的にイオン化できた。

遅延時間 63 ps が $^{14}\text{N}_2$ の 7.5 周期に相当するのに対し、 $^{15}\text{N}_2$ では半周期分少ない 7 周期に相当するため、各同位体イオンのピークとディップが逆位相になる。従って、わずかに遅延時間を変えるだけで、 $^{14}\text{N}_2$ のイオン化と $^{15}\text{N}_2$ のイオン化を、それぞれ高い選択性で実現できるはずである。遅延時間 60~65 ps での実験結果を Fig. 2(a)および(b)に示す。期待通り、各イオン収量は 63 ps 付近で逆位相となり[Fig. 2(a)]、収量比 α は急激な変化を示した[Fig. 2(b)]。遅延時間 62.8 ps での α は 0.85 であり、 $^{14}\text{N}_2$ を優先的にイオン化することが出来た。その 0.2 ps 後(63.0 ps)には、 α は 1.22 と 0.5 周期よりも高いピークを示し、 $^{15}\text{N}_2$ に対する高い選択性を得られることを実証した。

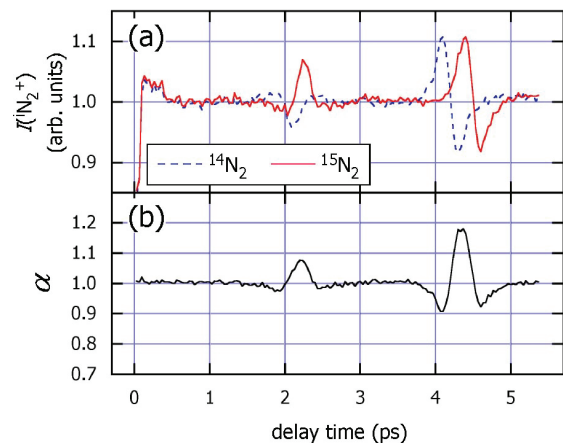


Fig. 1 遅延時間 0~5 ps における実験結果。(a) $^{14}\text{N}_2^+$ イオン(青・破線)および $^{15}\text{N}_2^+$ イオン(赤・実線)収量の遅延時間依存性。(b)イオン収量比 α の遅延時間依存性。

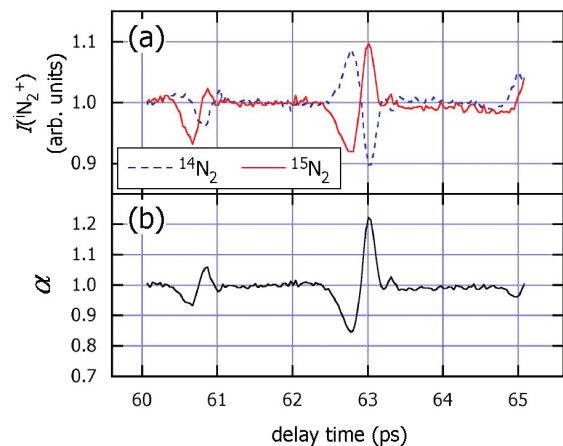


Fig. 2 遅延時間 60~65 ps における実験結果。

[参考文献] [1] H. Hasegawa and Y. Ohshima, *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 053002 (2008).
 [2] R. Itakura, H. Hasegawa, Y. Kurosaki, A. Yokoyama, and Y. Ohshima, *J. Phys. Chem. A*, **114**, 11202 (2010).
 [3] D. Pavičić, K.F. Lee, D.M. Rayner, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 243001 (2007)

[4] H. Akagi, H. Ohba, K. Yokoyama, A. Yokoyama, K. Egashira, and Y. Fujimura, *Appl. Phys. B*, **95**, 17 (2009).
 [5] P.W. Dooley, I.V. Litvinyuk, K.F. Lee, D.M. Rayner, M. Spanner, D.M. Villeneuve, P.B. Corkum, *Phys. Rev. A* **68**, 023406 (2003)
 [6] S. Fleischer, I.Sh. Averbukh, Y. Prior, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 093002 (2007)

波束干渉を用いた電子基底状態における NO 分子の回転状態分布制御

(東大院総合¹, 分子研・総研大²) ○長谷川宗良¹、大島康裕²

【序】気相孤立分子に高強度レーザー光（ポンプ光）を照射すると、非断熱回転励起（インパルシブシラマン）によって、多数の回転状態がコヒーレントに励起され、回転波束が生成する [1]。生成した回転波束に対し、さらにポンプ光を照射すると、複数の回転準位間で干渉がおこる [2]。この量子干渉を用いて、分子軸分布を局在化（分子配列）させる研究が、実時間の実験によって数多く行われている [3]。我々は、以前より周波数領域の観点から回転波束についての研究をおこなってきたが、分子軸分布の制御は、周波数領域の観点でみると回転状態分布の制御に対応する。本研究では、2つのポンプ光を用いた NO の回転波束の干渉による回転状態分布の制御可能性を調べた。

【実験】背圧 20 気圧の NO/Ne 0.1% 混合ガスを、パルスバルブ（1 kHz）を用いて真空チャンバー（サンプルチャンバー）へ噴出し、2つのスキマーを用い超音速分子線としたのちに、差動排気された飛行時間型質量分析器（TOF-MS）へ導入した。フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーからのパルス光（820 nm, 2.5 mJ/pulse, 40 fs, 1 kHz）をマイケルソン干渉計に通し遅延時間 τ を持つ2つのパルス（ポンプ光）とし、焦点距離 600 mm のレンズを用いてサンプルガスに集光することで、NO の回転波束を生成した。ポンプ光照射後約 100ns 後に、色素レーザーの2倍波（プローブ光：226 nm, 10 μ J/pulse, $\Delta E = 0.5 \text{ cm}^{-1}$, 1 kHz）を用い、二光子共鳴多光子イオン化（REMPI）法によって NO⁺ を生成した。ポンプ光とプローブ光の重なりを確実にするため、およびポンプ光強度の不均一性を小さくするために、相互作用領域においてポンプ光は 10 mm 程度焦点位置をずらし、プローブ光は、空間フィルターを用いてビームプロファイルを改善し、さらに短焦点レンズ（ $f = 170 \text{ mm}$ ）を用いて集光した。ポンプ光、プローブ光の偏光はともに TOF 軸に平行とした。全ての装置は 1 kHz で動作可能であるが、回転温度を十分に下げられるためパルスバルブの繰り返しは 250 Hz とした。 $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_{1/2}$ (0,0) バンドの REMPI スペクトルから、全ての分子の回転状態は $J = 0.5$ であることを確認した。

【結果・考察】図 1 に、プローブ波長を $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_{1/2}$ (0,0) バンドの $R_{21}(0.5)$ 、 $P_{11}(1.5)$ 、 $P_{11}(2.5)$ 、 $P_{11}(3.5)$ 、 $P_{11}(4.5)$ 回転遷移に固定し、ポンプ光の遅延時間を掃引した時の NO⁺ の収量を示す。観測された NO⁺ イオンのビート信号は、各回転準位のポピュレーションに比例した量であるため、遅延時間を制御することで回転状態分布を変化させることができることを示している。

次に特定の遅延時間を持つポンプ光を照射した際の

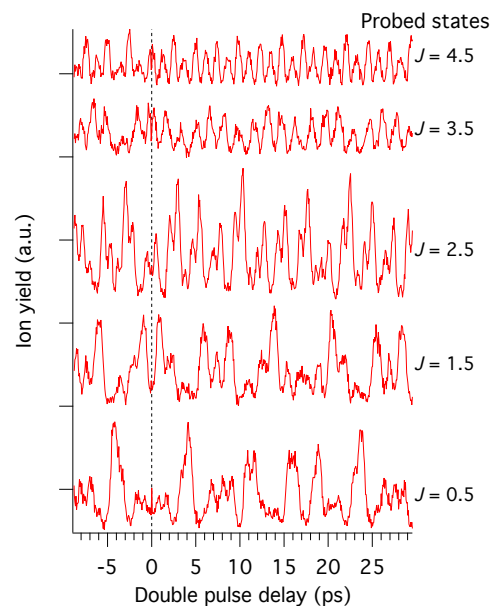


図 1 プローブ光の波長を固定して測定した NO⁺ 収量のポンプ光遅延時間依存性

回転状態分布を得るために、遅延時間を固定して $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_{1/2}$ (0,0)バンドの REMPI スペクトルを測定した。結果を図 2 (a)に示す。図 2 (a)のスペクトルの強度パターンは遅延時間依存性を持ち、異なる遅延時間において回転状態分布が大きく異なっていることが見てとれる。

図 2 (b)に、図 2 (a)のスペクトルから得られた回転状態分布を示す。 $\tau=4.1$ ps, 14.1 ps, 10.5 ps においては、 $J = 0.5, 1.5, 2.5$ にそれぞれ 81 %, 58 %, 66 %の割合でポピュレーションが局在していることがわかる。 $\tau = 13.3$ ps, 17.4 ps においては、 $J = 3.5, 4.5$ へ、それぞれ 35 %, 37 %の割合でポピュレーションが移動している。

このポピュレーション移動を説明するために、二つのポンプ光による回転波束の干渉に基づいたモデルを考えた。このモデルでは、第 1 のポンプ光によって初期状態 $|J_i\rangle$ が、回転波束 $|\Psi(t)\rangle = \sum_{J'} A_{J',J_i} \exp(i\delta_{J',J_i}) \exp(-i\omega_{J',J_i}t) |J'\rangle$ となる。ここで、 A_{J',J_i} および δ_{J',J_i} は実数で、状態 $|J_i\rangle$ から $|J'\rangle$ への確率振幅と位相である。また、 $\hbar\omega_{J',J_i}$ は状態 $|J_i\rangle$ と状態 $|J'\rangle$ のエネルギー差であり、NO の回転定数 $B = 1.696$ cm^{-1} を用いて、 $\omega_{J',J_i} = 2\pi cB(J' - J_i)(J' + J_i + 1)$ と表される。ここへ、遅延時間 τ をおいて第 2 のポンプ光を照射すると、干渉の結果、別の回転波束 $|\Psi(t;\tau)\rangle = \sum_{J''} B_{J'',J_i}(\tau) \exp(-i\omega_{J'',J_i}\tau) |J''\rangle$ となり、2つのポンプ光を照射した後の、回転状態 $|J\rangle$ の存在確率は次式で与えられる [2]。

$$|B_{J,J_i}(\tau)|^2 = \sum_{J'} A_{J',J_i}^2 A_{J,J_i}^2 + 2 \sum_{J' > J''} A_{J',J_i} A_{J'',J_i} A_{J,J'} A_{J,J''} \cos(\omega_{J',J_i}\tau + \delta_{J',J_i} - \delta_{J'',J_i} - \delta_{J,J'} - \delta_{J,J''})$$

この式から、初期状態 $J_i = 0.5$ から、終状態 $J = 0.5$ への遷移確率は、

$$|B_{0.5,0.5}(\tau)|^2 = \sum_{J'} A_{J',0.5}^4 + 2 \sum_{J' > J''} A_{J',0.5}^2 A_{J'',0.5}^2 \cos(\omega_{J',0.5}\tau + 2\delta_{J',0.5} - 2\delta_{J'',0.5})$$

となる。 \cos 項が 1 であれば、 $|B_{0.5,0.5}(\tau)|^2 = 1$ となり初期状態から終状態へ 100 %状態移動がおきたことになる。位相項 $2\delta_{J',0.5} - 2\delta_{J'',0.5}$ を無視し、相互作用行列の大きさが $\Delta J = J' - J'' = 2$ が

$\Delta J = 1$ に比べて支配的であることを考慮すると、 $\tau = 1/4cB = 4.9$ ps において、 \cos 項は 1 となる。図 2 (b)より、 $\tau = 4.1$ ps において、 $J = 0.5$ のポピュレーションが 0.81 となっており実験と理論計算とは比較的よい一致を示す。理論とのずれは、位相項が無視できない事と、 $\Delta J = 1$ の寄与があるためと考えられる。他の状態も同様に、上式から説明でき、モデルの正しさを示している。

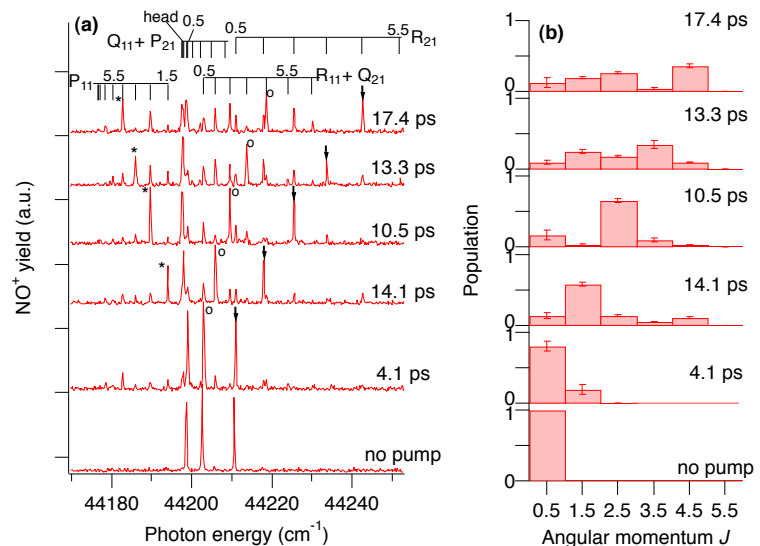


図 2 (a) ポンプ光遅延時間を固定した際の A-X(0,0)バンドの REMPI スペクトル (b) (a)から求めた回転状態分布

【参考文献】

- [1] H. Stapelfeldt and T. Seideman, Rev. Mod. Phys., 75 (2003) 543.
- [2] H. Hasegawa and Y. Ohshima, Phys. Rev. Lett., 101 (2008) 053002.; D. Baek, H. Hasegawa, and Y. Ohshima, J. Chem. Phys., 134 (2011) 224302.
- [3] K. F. Lee et al., J. Phys. B, 37 (2004) L43.; K. F. Lee et al., Phys. Rev. A, 73 (2006) 033403.

極低温リユードベリ原子の超高速コヒーレント制御

(分子科学研究所¹, 総合研究大学院大学², JST-CREST³, 岩手大学⁴)

○武井宣幸^{1,2,3}、Giorgi Veshapidze¹、千葉寿^{1,3,4}、子安邦明^{1,2,3}、大森賢治^{1,2,3}

【序】

コヒーレント制御とは、物質の波動関数の干渉を光で制御する技術である。その応用は、量子情報処理や結合選択的な化学反応制御といった先端テクノロジーの開発に結びつくだけでなく、量子力学的な世界観の検証においても有用である。我々の研究室では、気相孤立分子の電子振動波束にアト秒精度で制御されたレーザー電場の位相情報を完全に転写するという方法を用いて、分子内の波束干渉の時空間模様をピコメートルレベルの空間分解能とフェムト秒レベルの時間分解能で加工し可視化する技術を確立してきた[1-5]。さらにこの技術を用いて、世界最速レベルのスーパーコンピュータの1000倍以上の速さでフーリエ変換を実行する分子コンピュータの開発に成功した[6,7]。今後、分子コンピュータを実用化し、さらに量子・古典境界の謎を解き明かすためには、凝縮系への展開が求められる。

実在の凝縮系は、無数の電子と原子核が協奏する多体系である。その厳密解を求める場合、スーパーコンピュータを用いても数十サイトで計算量の限界を迎える。近年、この複雑な多体系を人工的な実験系で実現し、そこでの模擬実験によって多体問題を解明しようとするアプローチが模索されるようになった[8,9]。このような人工多体系は量子シミュレーターと呼ばれている。

本発表では、我々の開発した超高速観測制御手法と光格子中の極低温原子分子集団を組み合わせた新しい量子シミュレーターの開発について報告する。対象としてレーザー冷却により極低温まで冷却されたRb原子集団を利用し、それを光格子ポテンシャルに導入する。光格子とは、レーザー光の定在波によるシュタルクシフトを利用した周期ポテンシャルのことで、定在波の腹（または節）に原子を捕獲することができる。このようにして捕捉されたRb原子集団に我々の超高速コヒーレント制御法を適用することによって、多体系の時間応答を研究する。我々はこれを超高速量子シミュレーターと呼んでいる。超短光パルスにより原子を複数のリユードベリ状態へとコヒーレントに励起し、リユードベリ電子波束を生成する[10]。照射するレーザー電場を加工することでリユードベリ電子波束の空間広がりをデザインし、隣接サイト間の相互作用を制御する。このようにして形成された電子波束の実時間発展を観測することで、多体系の時間応答を研究する計画である。

本発表では、超高速量子シミュレーターの研究計画と、磁気光学トラップ中に捕獲された冷却Rb原子集団を対象とした予備実験について報告する。また、光双極子トラップ中の高密度Rb原子集団に対して同様の実験を行い、リユードベリ電子波束振

動の原子密度依存性について議論する。

【実験】

実験対象は ^{85}Rb 原子で、それを磁気光学トラップ (MOT) により冷却・捕獲する。捕獲された原子数は 2×10^7 個、密度は $1 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ 程度であった。波長 605nm、時間幅 120fs 程度の超短パルスレーザーにより原子を複数のリュードベリ状態へとコヒーレントに励起し、リュードベリ電子波束を形成する。波束振動の観測には、ポンプ・プローブ法を用いる[10]。ポンプ光による二光子励起でリュードベリ波束を形成し、遅延をつけたプローブ光により原子をイオン化し MCP で測定した。また、リュードベリ状態間の多体相互作用を観測するため、高密度の捕捉が可能な光双極子トラップを導入した。密度は $1 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$ 程度、捕獲された原子数は約 1×10^6 個であった。MOT と同様にリュードベリ波束の観測を行った。

本講演では、これらの実験の詳細および今後の展望について報告する。

【参考文献】

- [1] K. Ohmori, *Annu. Rev. Phys. Chem.* 60, 487 (2009).
- [2] H. Katsuki *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 102, 103602 (2009).
- [3] H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, *Phys. Rev. A* 76, 013403 (2007).
- [4] H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, *Science* 311, 1589 (2006).
- [5] K. Ohmori *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 96, 093002 (2006).
- [6] K. Hosaka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 104, 180501 (2010).
- [7] H. Goto *et al.*, *Nature Physics*, 7, 383 (2011).
- [8] D. Jaksch *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 81, 3108 (1998).
- [9] M. Greiner *et al.*, *Nature* 415, 39 (2002).
- [10] A. ten Wolde *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 61, 2099 (1988).

高強度レーザー誘起量子干渉

(¹分子科学研究所, ²総合研究大学院大学, ³CREST, ⁴INRS, ⁵岩手大学)

○後藤 悠¹, 香月 浩之^{1,2}, Heide Ibrahim⁴, 千葉 寿^{1,3,5}, 大森 賢治^{1,2,3}

電氣的に中性な系の波動関数は、漏れ電流による発熱とエラーのために集積化の限界に近づきつつある半導体集積回路ととって代わる可能性がある。原子・分子は電氣的に中性であり、その固有状態のポピュレーションと位相を情報の担体とし、超短光パルスを用いて多くの固有状態を一度に操作することが可能である。とりわけ分子はスケーラブルな量子情報処理に利用可能であると考えられており、量子情報処理および高い情報密度をもつ古典的な情報処理の両面への応用が期待される。これらの背景から、我々の研究室では分子の固有状態を用いた情報処理 (**molecular eigenstate-based information processing, MEIP**) を提案し、これまでに分子波束の時間発展をもとづいた超高速フーリエ変換 (**ultrafast Fourier transform**) を実現している[1]。しかしながら、さらに一般的なゲート操作のためには、異なる固有状態間の複数の遷移を起こす強い超短パルスによるゲート操作が必要である[2]。本研究で

は、強い非共鳴近赤外フェムト秒レーザーパルスを波束に照射し、これによって変形した波束中の各固有状態のポピュレーションを詳細に観測した[3]。

図1に実験の概略を示す。アルゴンをバッファガスとして用いたジェット中のヨウ素分子に対して 540 nm 付近のフェムト秒レーザーパルス (ポンプパルス) を照射し、*B* 電子励起状態に振動波束を生成した。この振動波束に、1400 nm 付近のフェムト秒近赤外レーザーパルスを照射した。近赤外パルス照射後の波束に、狭帯域ナノ秒プローブパルスを用いて準位選択的に *E* 電子状態に励起し、各振動固有状態のポピュレーション変化をレーザー誘起蛍光法 (LIF) により測定

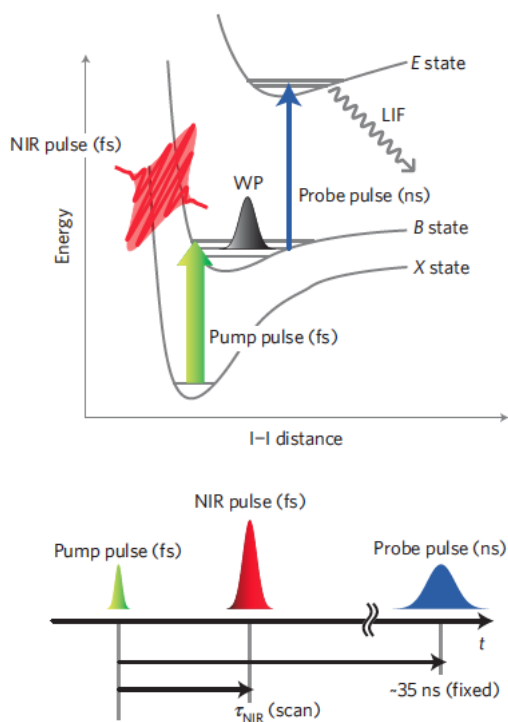


図1：ヨウ素のポテンシャルと実験の概略

した。

ポンプパルスと近赤外パルスの遅延時間 τ_{NIR} を掃引しながら測定したところ、単一の固有状態のポピュレーションに、 τ_{NIR} の関数としてビートが観測された(図2)。複数の振動準位について同様の測定を行った結果、ビートの位相は固有状態間でずれており、これを利用してポピュレーション分布を制御できることがわかった。また、ビートの周期は、波束の古典振動周期にほぼ一致した。さらに、遅延時間 τ_{NIR} の掃引範囲を長くとると、波束のcollapse and revivalと似た振る舞いを観測した。

波束を構成するそれぞれの固有状態は波束の位置の情報を持たないはずである。単一の固有状態上で観測された直感に反するこのビートは、複数の固有状態からコヒーレントに遷移が起きるときに、それらが干渉することによるものであると考えられる。この高強度レーザー誘起量子干渉(strong-laser-induced interference; SLI)は、分子の振動固有状態だけでなく、あらゆる量子固有状態に応用可能なコヒーレント制御の新しい概念である。

参考文献

1. K. Ohmori, Ann. Rev. Phys. Chem. 60 487 (2009), K. Hosaka et al., Phys. Rev. Lett. 104 180501 (2010)など
2. J.P. Palao, R. Kosloff, Phys. Rev. Lett. 89 188301 (2002), R. de Vivie-Riedle, U. Troppmann, Chem. Rev. 107 5082 (2007)など
3. H. Goto et al., Nature Physics 7 383 (2011)

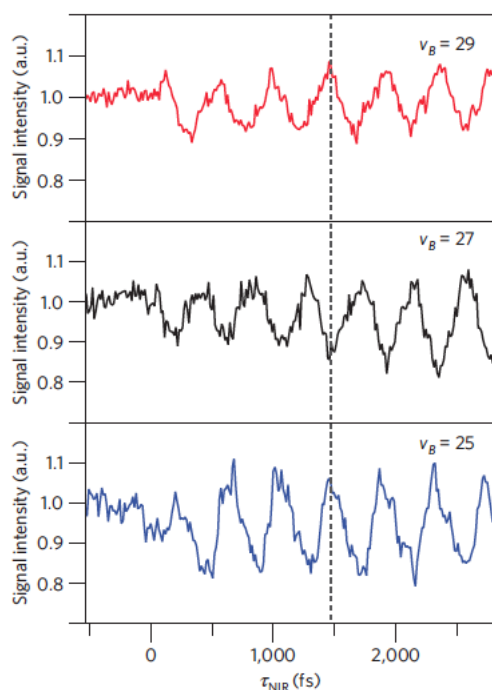


図2：各固有状態上で観測された量子ビート

See Figure 2 in Ref. 3

非断熱相互作用した電子状態間で起こる超短時間振動・電子コヒーレンス

(東北大院理) 藤村 勇一

【序】 最近,十数フェムト秒パルスレーザーが分子の電子・核の実時間動力学研究に利用されるようになり,非断熱遷移直後の量子ビートの観測やコヒーレント分子間エネルギー移動等の分子内・分子間の量子動力学現象が明らかになってきている[1]。さらに,コヒーレント電子ダイナミクスをもとにする新しい分子機能の発現とその制御に向けた基盤研究が発展している。例えば,キラル芳香環分子の π 電子回転が角運動量を持たない直線偏光パルスレーザーにより誘起され,その回転方向がパルス照射方向に依存することが見出された[2]。これはキラル分子のR-,S-識別になり得ることを示唆する。この系では非断熱相互作用が π 電子回転に重要な役割を果たしていることがシミュレーションによって示されたが[3],パルスが2つの電子状態をコヒーレントに励起することにより発現する電子・核量子動力学過程の基本的理解にはまだ至っていない。本研究では非断熱相互作用した電子状態間で起こる超短時間振動・電子コヒーレンスの生成と移動機構を理論的に明らかにする。特に,非断熱相互作用誘起振動コヒーレンス特性を解明し,非断熱遷移に関する実験の解析手段への適用について述べる。

【本論】 簡単のため,電子状態コヒーレンスと振動状態コヒーレンスを生じさせる最低限の量子動力学モデルを用いる。その基底は2つの電子励起状態(b,c)と各々の電子状態に属する振電状態(エネルギー) $b_0(E_{b_0})$, $b_1(E_{b_1})$ と $c_0(E_{c_0})$, $c_1(E_{c_1})$ から成る。ここで, $E_{b_0} < E_{c_0}$, また添え字 0, 1 は振動量子状態を示す。この系に直線偏光パルスレーザーを照射する。この系の時間発展は次式で表される。

$$\Psi(t) = c_{c_1}(t)|\Phi_c X_{c_1}\rangle + c_{c_0}(t)|\Phi_c X_{c_0}\rangle + \eta(c_{b_0}(t)|\Phi_b X_{b_0}\rangle + c_{b_1}(t)|\Phi_b X_{b_1}\rangle) \quad (1)$$

ここで, Φ と X は,それぞれ,電子と核の波動関数, η はパルスの偏光方向に依存するパラメーターである。また, $c(t)$ は次の時間依存 Schrödinger 方程式を解くことにより求められる。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = (\hat{H}_0 + \hat{V}) |\Psi(t)\rangle \quad (2)$$

(2)で \hat{H}_0 と \hat{V} は,それぞれ, Born-Oppenheimer (BO) 分子状態と BO 近似の破れを表す演算子である。

$c_1 \leftrightarrow b_0$ および $c_0 \leftrightarrow b_1$ の2つの状態間で非断熱相互作用 (BO 近似の破れ) が働くとする。

$c1 \leftrightarrow b0$ 遷移に関する解析解は次式で与えられる。

$$\begin{pmatrix} c_{c1}(t) \\ c_{b0}(t) \end{pmatrix} = \frac{1}{\gamma_{c1,b0}} \begin{pmatrix} \left\{ \frac{(\gamma_{c1,b0} - \Delta E_{c1,b0})}{2} c_{c1}(0) - \eta V_{c1,b0} c_{b0}(0) \right\} \exp[-\frac{i\lambda_1 t}{\hbar}] \\ \left\{ -\eta V_{c1,b0} c_{c1}(0) + \frac{(\gamma_{c1,b0} + \Delta E_{c1,b0})}{2} c_{b0}(0) \right\} \exp[-\frac{i\lambda_1 t}{\hbar}] \end{pmatrix} \\ + \frac{1}{\gamma_{c1,b0}} \begin{pmatrix} \left\{ \frac{(\gamma_{c1,b0} + \Delta E_{c1,b0})}{2} c_{c1}(0) + \eta V_{c1,b0} c_{b0}(0) \right\} \exp[-\frac{i\lambda_2 t}{\hbar}] \\ \left\{ \eta V_{c1,b0} c_{c1}(0) + \frac{(\gamma_{c1,b0} - \Delta E_{c1,b0})}{2} c_{b0}(0) \right\} \exp[-\frac{i\lambda_2 t}{\hbar}] \end{pmatrix} \quad (3)$$

ここで,

$$\lambda_1 = E_{c1,b0}^0 - \frac{\gamma_{c1,b0}}{2}; \quad \lambda_2 = E_{c1,b0}^0 + \frac{\gamma_{c1,b0}}{2}, \quad E_{c1,b0}^0 = \frac{E_{c1} + E_{b0}}{2}, \quad \gamma_{c1,b0} = \sqrt{(\Delta E_{c1,b0})^2 + 4|V_{c1,b0}|^2},$$

$\Delta E_{c1,b0} = E_{c1} - E_{b0}$. $V_{c1,b0}$ は $c1$ と $b0$ 状態間の非断熱相互作用。

同様に, $c0 \leftrightarrow b1$ についても解析解を求めることが出来る。

これらの式を用いて, 先ず, 電子状態間コヒーレンスの生成と非断熱相互作用による電子状態間干渉効果の直線偏光パルス照射方向依存性を議論する。次に, 非断熱相互作用誘起振動コヒーレンス移動に関する基本的な二つの密度行列要素, コヒーレント光励起による振動コヒーレンスの時間発展 $\rho_{c1,c0}(t)$ 及び非断熱相互作用誘起振動コヒーレンス時間発展

$\rho_{b1,b0}(t)$ について議論する。非断熱相互作用誘起振動コヒーレンスとパルス励起振動コヒーレンスの比はそれぞれ極値を与える時刻では次式で与えられる。

$$\left| \frac{\text{Re } \rho_{b1,b0}(t)}{\text{Re } \rho_{c1,c0}(t)} \right| \approx \left| \frac{2V_{c1,b0}}{\Delta E_{c1,b0}} \right| \left| \frac{2V_{c0,b1}}{\Delta E_{c0,b1}} \right| \quad (4)$$

これから量子ビートの解析により非断熱相互作用の大きさ及びエネルギー差に関する情報が得られる。

【参考文献】

1. Y. Suzuki, et al., J. Chem. Phys. **132**, 174302 (2010); G. S. Engel, et al, Nature, **446**,782 (2007)
2. M. Kanno, et al., Angew. Chem. Int. Ed., **45**, 7995 (2006).
3. M. Kanno, et al., Phys. Rev. Lett., **104**, 108302 (2010).