

## アト秒パルスを用いた量子干渉シグナルの計算：

## ICN 光解離への応用

(東北大院・理<sup>1</sup>, 分子研・JST-CREST<sup>2</sup>) ○布施泰斗<sup>1</sup>, 大槻幸義<sup>1</sup>, 河野裕彦<sup>1</sup>, 大森賢治<sup>2</sup>

【序】位相ロック・ダブルパルスを用いる量子干渉分光法によって、超高感度で核波束ダイナミクスを（位相も含めて）観測及び操作できる。ヨウ素分子の振動状態に着目した例では、振動状態の重ね合わせを論理基底とみなすことで、波束の自由時間発展によるフーリエ変換(145 fs)実験も報告されている[1]。これらの実験ではまず、時間幅が数 10～数 100 fs のポンプパルスにより核波束を生成する。次に、相対位相がアト秒 (as) 精度で制御されたプローブパルスを照射し、電子コヒーレンス（干渉）を利用した振動波束の制御・測定を行う。アト秒精度が必要なのは、電子ダイナミクスがアト秒からサブフェムト秒の極短時間内で起きるためである。これを拡張し、電子波束を生成しかつ制御・観測するには、時間幅・相対位相ともにアト秒で制御された極短レーザーパルスが必要であると考えられる。そこで本研究では、ICN の光解離を例に、時間幅がサブフェムト秒（アト秒）であるダブルパルスを用いた場合の量子干渉シグナルを計算する。

一般に、量子干渉は分子が波動関数として表されることの直接的な証拠である。この波動関数の可干渉性（コヒーレンス）が環境体との相互作用（エンタングルメント）の結果失われることをデコヒーレンスとよぶ。化学反応コヒーレント制御や量子情報処理など、量子干渉を積極的に利用する場合、デコヒーレンスをできるだけ抑制・回避する必要がある。例えば Walmsley 等のグループは、2原子分子の振動・回転を系・環境体とみなす「最小デコヒーレンスモデル」を提唱し、コヒーレント制御によりデコヒーレンスが制御できるとの結論を導いている[2]。ただし、彼らの提唱したデコヒーレンスモデルでは同一粒子の異なった自由度を用いている。一方、本研究で着目する ICN の光解離は、電子・核（異なる粒子）間の相互作用（エンタングルメント）によるデコヒーレンスのモデルになり得る。実際、量子干渉シグナルの計算結果から、シグナルの減衰は電子コヒーレンスに対するデコヒーレンスと関連付けられることが分かったので報告する。

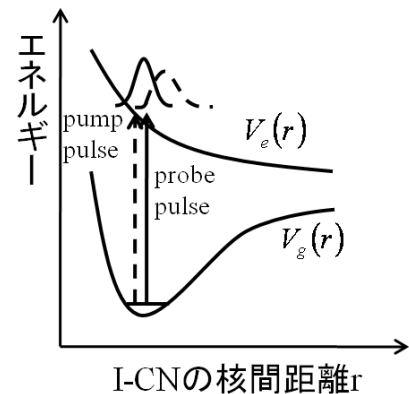


図1：ICN の1次元2電子状態モデルポテンシャル

【理論】解離性の電子状態（図1）からの量子干渉シグナルを計算する。ICN の1次元2電子状態モデルを考える。ICN 分子に(1)式で表わされる位相をロックしたレーザーパルスを照射した場合の量子干渉シグナルを計算する。(1)式の $\sigma$ はパルスの半値全幅 $2\sqrt{\ln 2}\sigma$ 、 $\omega$ は中心周波数、 $\theta$ は相対位相を表す。シュレーディンガー方程式は(2)式で表わされる。ここで添え字  $g$  および  $e$  はそれぞれ電子基底および励起状態を表し、 $T$  は運動エネルギー、 $V$  はポテンシャルエネルギーを表す。また、 $\mu$  は遷移双極子モーメント関数、 $\chi$  は振動の波動関数である。シュレーディンガー方程式の数値解法には split-operator 法と高速フーリエ変換を用いる。

$$E(t) = E_0 \exp\left(\frac{-t^2}{2\sigma^2}\right) \cos \omega t + E_0 \exp\left(\frac{-(t-\tau_d)^2}{2\sigma^2}\right) \cos(\omega(t-\tau_d) + \theta) \quad (1)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} |\chi_g(t)\rangle \\ |\chi_e(t)\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} T + V_g(r) & -\mu_{ge}(r)E(t) \\ -\mu_{eg}(r)E(t) & T + V_e(r) \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |\chi_g(t)\rangle \\ |\chi_e(t)\rangle \end{pmatrix} \quad (2)$$

(1)式中の遅延時間( $\tau_d$ )を変えながら量子干渉シグナルを計算する．具体的には終時刻における解離ポテンシャル上の分布を求め，遅延時間に対してプロットする．

【結果・考察】図2に時間幅 354 as のダブルパルス（挿入図，破線は包絡線関数）を用いて計算した量子干渉シグナル（太い実線）を示す．ここで点線は2つのパルスの相対位相を  $\pi$  ずらした場合の結果であり，シグナルも  $\pi$  だけ位相シフトしている．振動しながら減衰する量子ビートシグナルが得られた．以下，このシグナルの意味を解析する．簡単のため，パルス包絡線関数を  $\delta$  関数で近似する．電場との相互作用を一次までとると波動関数は時刻  $t = 0$  において，

$$|\Psi(t=0)\rangle = [|g\rangle + \alpha|e\rangle]|\chi_g\rangle \quad (3)$$

と表される．( $\alpha = iE_0\mu_{eg}/\hbar$ )ここで， $|g\rangle(|e\rangle)$  は電子基底（励起）状態を表す．解離ポテンシャル上にフランク・コンドン波束 $|\chi_g\rangle$ が生成する ( $\mu_{eg}$ の核座標依存性を無視)．時刻 $t$ では電子と振動の相互作用のために

$$|\Psi(t)\rangle = |g\rangle|\chi_g\rangle + \alpha|e\rangle|\chi_e(t)\rangle \quad (4)$$

$$|\chi_e(t)\rangle = \exp(-iH_e t/\hbar)|\chi_g\rangle \quad (5)$$

となり，電子状態と振動状態の間に量子もつれ（エンタングルメント）が生じる．ここで，電子状態間のコヒーレンスを求めるため，系を表す密度演算子 $|\Psi(t)\rangle\langle\Psi(t)|$ において振動の自由度に関する対角和をとり，電子状態に関する非対角項を求める．

$$\rho_{eg}(t) = \langle e|\text{Tr}_{\text{vib}}\{|\Psi(t)\rangle\langle\Psi(t)|\}|g\rangle = \alpha\langle\chi_g|\chi_e(t)\rangle \quad (6)$$

次に，(6)式で表わされるコヒーレンスの減衰（デコヒーレンス）時間が，量子干渉シグナルの減衰時間と一致することを示す．解離ポテンシャル上の分布から，量子干渉シグナルは，

$$I_{\text{signal}} \propto \langle e|[\text{Tr}_{\text{vib}}|\Psi(t)\rangle\langle\Psi(t)|]|e\rangle = 2|\alpha|^2[1 + \text{Re}\langle\chi_g|\chi_e(\tau_d)\rangle] \quad (7)$$

と求められる．(6)式と(7)式を比較すると，量子干渉シグナルは $\rho_{eg}(t)$ で表される．したがって，量子干渉シグナルの減衰は電子状態間のデコヒーレンスを表し，アト秒パルスを用いればその実時間測定ができることを示している．

一方，紫外領域の振動数の場合，サブフェムト秒（アト秒）時間幅のパルスにおいてはパルス包絡線関数と光搬送波電場が同程度で時間変化する（図3挿入図参照）．この包絡線関数に対する位相をキャリアエンベロープ位相という．極短光パルスにおいては，キャリアエンベロープに対する位相の変化も考慮する必要がある．2つのパルスの相対位相をゼロとし，キャリアエンベロープ位相を  $\pi/2$  だけずらした場合(図3参照)，図2の細い実線で記したシグナルが得られた．キャリアエンベロープ位相は量子ビートにはほとんど影響を与えないことが数値的に確認できた．

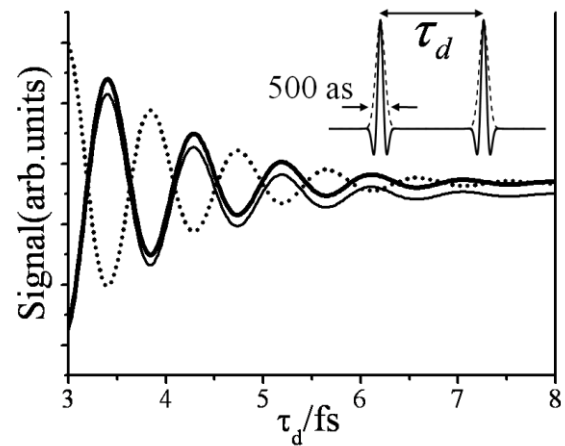


図2：量子干渉シグナルと計算に用いたパルス列

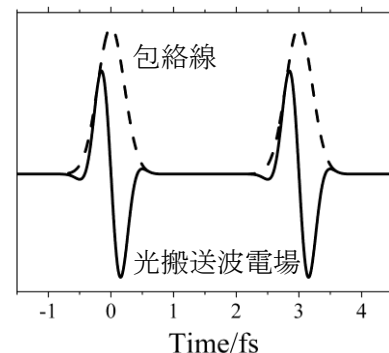


図3：包絡線（破線）に対して位相を  $\pi/2$  ずらしたパルス

[1] K. Hosaka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 180501(2010) .

[2] M. Braderhorst *et al.*, Science. **320**, 638(2008) .