

固体パラ水素を用いた量子状態制御

(分子科学研究所¹, 総合研究大学院大学²) ○香月 浩之^{1,2}, 大森 賢治^{1,2}

光を用いて物質の量子状態を制御する手法は、化学反応の生成物比の制御や量子情報処理などへの応用が期待されており、様々な研究が進められている。我々のグループではこれまで主に気相中の二原子分子を対象として、電子励起状態中に振動波束を作成し、干渉させることでその振幅及び相対位相を制御・観測する研究を行ってきた¹⁻⁶。気相中では分子間の相互作用は非常に弱いため、分子内に作成した波束の位相緩和は十分に遅い。二つのパルス間の遅延時間をアト秒の精度で制御することによって、波束中に含まれる各固有準位の振幅を制御することが可能となる。こうした一連の手法を多体凝縮系中の励起状態（励起子）に応用することができれば、分子間相互作用による位相緩和の影響を制御したり、固体中の高密度な量子状態を対象とした位相振幅情報の書き込み／読み出しなどの応用が期待される。さらに固体中での励起子の時間的、空間的な発展の様子を超短パルスを用いて捉えることが可能となれば、生体分子や太陽電池などで重要な過程である RET (Resonance Energy Transfer) 等の研究にもつながるものと考えている。本研究では、固体パラ水素を対象として、その振動回転励起状態に波束を生成し、制御する実験を行った。

水素分子は核スピン関数の対称性の違いからパラ水素とオルト水素に分類され、それぞれ回転量子数 J が偶数（パラ水素）、及び奇数（オルト水素）しかとらないことが知られている。液体ヘリウム温度においてパラ水素は回転量子数 $J=0$ の状態をほぼ 100% 占有し、その回転波動関数は等方的な関数となる。つまり $J=0$ のパラ水素分子は二原子分子でありながら、希ガス原子と同じような扱いが可能となり、固体パラ水素結晶はイメージとして希ガス結晶に非常に近いといえることができる。 $J=0$ のパラ水素分子は電気的多極子モーメントを持たないため、パラ水素分子間の相互作用は非常に弱く、結晶中であるにもかかわらず、非常に線幅の鋭い遷移が観測されている。一方、分子間の相互作用の結果、通常の固体と同様な振動回転準位のバンド構造を形成することも分光的に知られており、その励起状態は一つの分子上に局在している訳ではなく、複数の分子上に非局在化していると考えられる⁷。つまり、固体パラ水素結晶は固体凝縮系でありながら、気相中の分子と同様な量子的な特徴を色濃く残した系であると捉えることが可能であり、量子状態制御を固体凝縮系に応用する対象として、理想的な特徴を備えている。

今回の実験では、固体パラ水素中に振動回転状態のコヒーレントな波束を生成した。Raman 遷移を用いた励起の場合、選択則によってバンドの一番底にある $\mathbf{k}=0$ という準位のみが遷移許容となっている。測定のスキームを図 1 に示す。Ti:Sapphire 結晶を用いた再生増幅器か

らの出力(中心波長 800nm)を用いて OPA(中心波長 560nm)と NOPA(中心波長 600nm)をポンプし、波長変換を行う。600nm(pump)と 800nm(Stokes)のパルスは同軸に重ねた後干渉計を通して、それぞれ同じ遅延時間 τ を持ったパルス対に変換した。それぞれ pump-1, 2, Stokes-1, 2 と呼ぶ。必要に応じて、遅延時間はフィードバック制御により安定化することもでき、その場合にはおよそ ± 15 as の安定度が得られる。まず、pump-1 と Stokes-1 のペアによって、固体水素中に振動回転波束を作成する。さらに、遅延時間 τ 経過後に pump-2 と Stokes-2 のペアによって、さらに励起が行われる。 τ のタイミングを制御することによって、最初のパルス対で生成したコヒーレンスと二発目のパルス対で生成したコヒーレンスの間に干渉が起こることになる。固体結晶中に生成されたコヒーレンスは、さらに遅延時間 τ_{probe} が経過した後に 560nm の probe 光を入射することによって、Anti-Stokes 光として固体中の量子状態を計測する。実際の測定では、 τ_{probe} を固定して τ を掃引する測定（フリッジ測定）と、 τ を安定化して τ_{probe} を掃引する測定を行った。 τ を精度よく決定、保持することにより $v=1, J=0$ 状態及び $v=1, J=2$ 状態の振幅分布を独立に制御、読み出すことに成功した⁸。

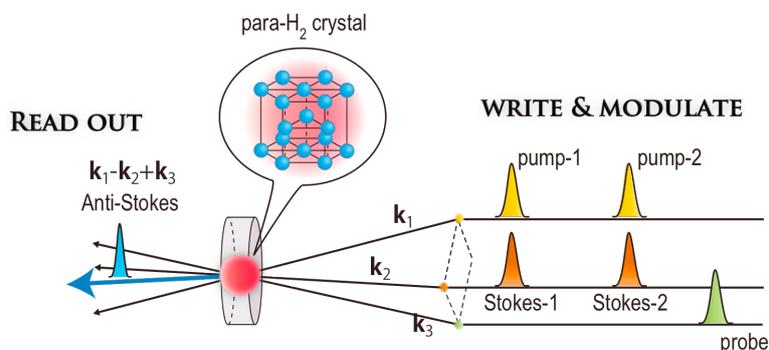


図1 固体パラ水素を対象とした量子コヒーレント制御の模式図

REFERENCES

- [1] H. Katsuki et al., Phys. Rev. A **76**, 013403 (2007).
- [2] K. Ohmori et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 093002 (2006).
- [3] H. Katsuki et al., Science **311**, 1589 (2006).
- [4] H. Katsuki et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 103602 (2009).
- [5] K. Hosaka et al., Phys. Rev. Lett. **104**, 180501 (2010).
- [6] H. Goto et al., Nature Physics **7**, 383 (2011).
- [7] H. Katsuki et al., J. Chem. Phys. **116**, 8881 (2002).
- [8] H. Katsuki et al., submitted.