

強レーザー誘起の量子干渉シグナルの発生機構の解析

(東北大院・理¹, 分子研², JST-CREST³)布施泰斗¹, 大槻幸義¹, 河野裕彦¹, 後藤悠², 香月浩之², 大森賢治^{2,3}

Numerical analysis of generation mechanism of strong-laser-induced quantum interference

(Tohoku Univ.¹, IMS², JST-CREST³)Taito Fuse¹, Yukiyoshi Ohtsuki¹, Hirohiko Kono¹, Haruka Goto², Hiroyuki Katsuki², Kenji Ohmori^{2,3}

【序】超短レーザーパルスにより分子を電子励起すると、励起状態のポテンシャル上に振動固有状態の重ね合わせ（振動波束）が生成する。更に、光振動の精度で位相制御された2つのパルス（位相ロックダブルパルス）を照射すると、生成した2つの振動波束は電子・振動コヒーレンスを保ちながら運動する。その結果、アト秒オーダーの時間分解能で波束の干渉パターンを制御することができ、量子干渉シグナルとして測定できる[1]この応用として、分子を使った（量子）情報処理の可能性が着目されている[2]。分子を情報処理の担体とみなした場合、今までの量子干渉分光法は情報処理の書き込みと読み込みに対応する。実際、振動波束の時間発展を利用した離散フーリエ変換等も報告されている。[2]一方、処理操作に関しては、従来、シミュレーションを中心に研究が進められており[3]、レーザーパルスを用いた振動波束の能動操作の実現が望まれている。

昨年、後藤ら[4]はヨウ素分子の電子励起B状態に生成した振動波束に、高強度の近赤外（NIR）レーザーパルス（中心波長1.4 μm ）を照射し、「振動固有状態に振動波束の位相情報が反映された」新たな量子干渉（強レーザー誘起の量子干渉）シグナルを見出した。これは振動波束が位相も含めて操作できることを示しており、情報処理に向けた大きな前進と期待できる。その中で、周期以外にシグナルの特徴として（推定も含めて）、①ビート振幅が電場強度にほぼ比例する、②シグナルの位相シフトは遅延時間によらない、③干渉シグナルはNIRパルスの位相スペクトルに依存することなどを挙げている。本研究では、まず解析モデルを使って、強レーザー誘起の量子干渉機構に関して、シグナルの定性的な説明を試みる。次に、数値的にシグナルを再現し、それに基づき、振動波束の能動制御に関する知見を得ることを目指す。

【理論】ヨウ素分子を電子基底 X, 励起 B 状態からなる 2 電子状態モデルで近似する。中心波長 540 nm, 時間幅 ~ 100 fs のポンプパルス $E_{\text{pump}}(t)$ を用いて、電子励起状態に振動波束を生成する。NIR パルスは振動波束と分極相互作用すると仮定する。シュレーディンガー方程式は次式で与えられる。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} |\psi_X(t)\rangle \\ |\psi_B(t)\rangle \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} H_X(t) - \frac{1}{2}\alpha_X^{\text{od}}[E_{\text{NIR}}(t - \tau_d)]^2 & -\mu_{XB}(r)E_{\text{pump}}(t) \\ -\mu_{BX}(r)E_{\text{pump}}(t) & H_B(t) - \frac{1}{2}\alpha_B^{\text{od}}[E_{\text{NIR}}(t - \tau_d)]^2 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} |\psi_X(t)\rangle \\ |\psi_B(t)\rangle \end{pmatrix} \quad (1)$$

ここで、 $|\psi_X(t)\rangle(|\psi_B(t)\rangle)$ は X(B)状態での振動波束、 μ_{XB} は遷移モーメント関数を表す。分極相互作用をエネルギーシフト項と振動遷移項とに分け、前者の寄与は振動ハミルトニアン $H_X(t)$, $H_B(t)$ に含める。一方、後者に寄与する分極関数の成分は α_X^{od} , α_B^{od} と表す。数値解析においては NIR パ

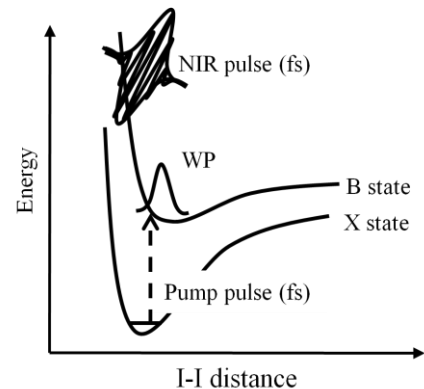


図1: I_2 の 1 次元 2 電子状態モデルポテンシャル

ルスの遅延時間 τ_d を変えながら繰り返し照射し、各遅延時間における量子干渉シグナルを計算する。(1)式の解法には split-operator 法と高速フーリエ変換を用い、シグナルは二つのパルスの遅延時間を変えて照射したときの終時刻における振動固有状態の分布を計算し、遅延時間を横軸に、分布を縦軸にプロットした。一方、解析表式では、(1)式を $\mu_{XB}(r)E_{\text{pump}}(t)$ および $\alpha_B^{\text{gd}}[E_{\text{NIR}}(t - \tau_d)]^2$ に関してそれぞれ一次の摂動で近似する。

【結果】強レーザー誘起の量子干渉におけるビート成分は、 $\alpha_B^{\text{gd}}[E_{\text{NIR}}(t - \tau_d)]^2$ に対してゼロ次と1次の解の干渉項として求められる。

$$I_{B_v}(\tau_d) = \frac{i}{2\hbar^3} \sum_{v_B(\neq v'_B)} \langle \tilde{\chi}_B | v_B \rangle \langle v_B | \alpha_B^{\text{gd}} | v'_B \rangle \langle v'_B | \tilde{\chi}_B \rangle \times \exp \left[i \left(\omega_{B_v} - \omega_{B_{v'}} \right) \tau_d \right] \times \exp \left[-i\delta_{B_v}(0, -\infty) + i\delta_{B_{v'}}(0, -\infty) \right] \times \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp \left[i \left(\omega_{B_v} - \omega_{B_{v'}} \right) t \right] [E_{\text{NIR}}(t)]^2 \quad (2)$$

ただし、「エネルギーフィルタされた Frank-Condon 波束」 $|\tilde{\chi}_B\rangle$ は、分極相互作用がないときの B 状態の振動ハミルトニアン H_B^0 を用いて次式で定義される。

$$|\tilde{\chi}_B\rangle = \tilde{E}_{\text{pump}} \left(\frac{H_B^0}{\hbar} \right) \mu_{BX} |\psi_X(0)\rangle = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-\frac{itH_B^0}{\hbar}} E_{\text{pump}}(t) \mu_{BX} |\psi_X(0)\rangle \quad (3)$$

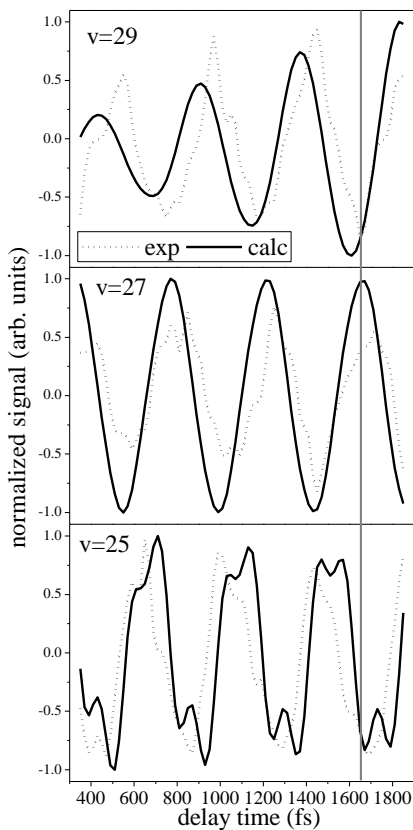


図2 量子干渉シグナルの(ビート成分)再現結果

(2)式は大きく分けて4つの部分から成る。

$\exp \left[i \left(\omega_{B_v} - \omega_{B_{v'}} \right) \tau_d \right]$ 部分は振動波束の“通常の”崩壊とリバイバルを表す項と同じ形をもつ。

3番目の $\exp \left[-i\delta_{B_v}(0, -\infty) + i\delta_{B_{v'}}(0, -\infty) \right]$ 部分は遅延時間を含まない相シフト(詳細は省略)を表しており、文献[4]の推定と一致する。最後の積分項はラマン遷移に対応する強度成分を表す。以上のように、解析表式は実験で得られたシグナルの特徴(推定も含む)を定性的に表している。

次に、実験データの数値的な再現を試みた。X状態の分極関数は文献[5]を用い、B状態の分極関数においては、平衡核間距離だけ変えて用いた。図2に実験データ(点線)と計算の結果(実線)を重ねて示す。下から順に、 $v=25, 27, 29$ に現れる、強レーザー誘起の量子干渉シグナルのビート部分を示す。なお、それぞれのシグナルを規格化して表示した。遅延時間 ~ 1650 fsの縦の補助線で強調したように、振動量子数によってはシグナルの位相が反転する。以上のように、実験と計算データは反定量的に一致している。ただし、干渉シグナルの明瞭度に関しては十分な一致はみられていない。現在、励起条件・分極関数の形などを検討している。

今後の展望として、チャープ・レートなどがシグナルに及ぼす影響、すなわち波束の能動制御を系統的に調べる予定である。

【参考文献】

- [1] K. Ohmori, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **60**, 487 (2009).
- [2] K. Hosaka *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **104**, 180501 (2010); I. Walmsley, *Physics* **3**, 38 (2010).
- [3] Y. Ohtsuki, *Chem. Phys. Lett.* **404**, 126 (2005); *New J. Phys.* **12**, 045002 (2010)及び文献.
- [4] H. Goto, H. Katsuki, H. Ibrahim, H. Chiba, K. Ohmori, *Nat. Phys.* **7**, 383 (2011).
- [5] G. Maroulis, *J. Phys. Chem. A* **101**, 953 (1997)