

Theoretical/Numerical Study on Strong-Laser-Induced Quantum Interference

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

【序】量子干渉分光法は量子干渉を直接捉えるため非常に高精度で測定を行える[1]。位相ロックしたダブルパルスを分子に照射し振電状態の干渉を測定した例では、ほぼ100%の明瞭度をもつシングルパルスがアト秒精度で得られている[2]。この実験法の応用として分子自由度を用いる情報処理も報告されている。即ち、ヨウ素分子の振動重ね合わせ状態を論理基底とみなし振動波束の時間発展を利用すれば、3ビットの離散フーリエ変換が145 fsで実行できる [3]。更に、分子による情報処理のアイデアを進め、レーザーパルスにより積極的に（量子）演算することも提案されている。しかし現在のところ理論・シミュレーション[4]が中心であり、実験による波束の能動操作が待望されている。

このような中、後藤ら[5]はヨウ素分子の電子励起B状態に振動波束を生成し、それに高強度の近赤外(NIR)レーザーパルスを照射することで「振動波束に含まれる位相情報が単一の振動固有状態にまとめられた」新たな量子干渉(強レーザー誘起量子干渉)を見出した。これは振動波束に含まれる各固有状態が強レーザーパルスにより再分配する過程を直接測定したものであり、波束の能動操作に向けた重要な前進である。本研究では、この新たな量子干渉の由来を理論的・数値的に解析し、シングルパルス生成の機構及び特徴を議論する。

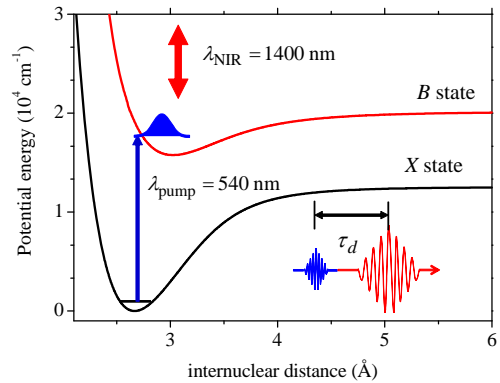


図1: I₂ のX, B状態のポテンシャル曲線と励起の概念図

【理論】ヨウ素分子を電子基底X, 励起B状態からなる2電子状態でモデル化する。それぞれの電子状態での振動波束 $|\psi_X(t)\rangle$, $|\psi_B(t)\rangle$ は次の時間依存のシュレーディンガー方程式に従う。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{bmatrix} |\psi_B(t)\rangle \\ |\psi_X(t)\rangle \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} H_B(t) & -\mu(r)E(t) \\ -\mu(r)E(t) & H_X(t) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} |\psi_B(t)\rangle \\ |\psi_X(t)\rangle \end{bmatrix} \quad (1)$$

全電場 $E(t) = E_{\text{pump}}(t) + E_{\text{NIR}}(t - \tau_d)$ は波長540 nmのポンプパルス, 1400 nmのNIRパルスからなる。ここで τ_d は遅延時間を表す。 $\mu(r)$ は遷移双極子モーメント関数である。B状態の振電ハミルトニアンはNIRパルスによる分極相互作用を考慮して

$$H_B(t) = H_B^0 + V_B^\alpha(t) = H_B^0 - \frac{1}{2} \alpha_B(r) [E_{\text{NIR}}(t - \tau_d)]^2 \quad (2)$$

と表される。X状態についても同様である。初期状態をX状態の最低振動状態とし、 $|\psi_B(t)\rangle$ を遷移双極子相互作用の1次の摂動解として近似する。更に、 $|\psi_B(t)\rangle$ を分極相互作用に関して摂動展開すれば、各振動固有状態の分布をNIRパルス強度のべきとして表せる。これを、NIRパルスが

照射されないときの分布で規格化すると量子干渉シグナルが導かれる。量子数 v_B の振動状態（固有値 $\hbar\omega_{Bv}$ ）に着目すると、強度に比例するシグナル部分は次式で表される。

$$S_{Bv}^{(1)}(\tau_d) = \text{Re} \left\{ \frac{i}{\hbar} \sum_{v'(\neq v)} \langle v_B | \alpha_B(r) | v'_B \rangle \frac{\langle v'_B | \tilde{\chi}_B \rangle}{\langle v_B | \tilde{\chi}_B \rangle} \tilde{I}_{Bv, Bv'} \exp[i(\omega_{Bv} - \omega_{Bv'})\tau_d] \right\} \quad (3)$$

$\tilde{I}_{Bv, Bv'}$ はシュタルクシフトを含むNIR強度のフーリエ積分、一般化したFranck-Condon波束は

$$|\tilde{\chi}_B\rangle = \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 e^{iH_B^0 t_1 / \hbar} E_{\text{pump}}(t_1) \mu_{BX} |\chi_0\rangle = \tilde{E}_{\text{pump}} (H_B^0 / \hbar) \mu_{BX} |\chi_0\rangle \quad (4)$$

で定義される。(3) 式から、量子干渉シグナルは遅延時間 τ_d に対し、着目している振動準位とその付近の準位とのエネルギー差で振動し、明瞭度はNIRパルス強度に比例する。これらは文献[5]の実験報告と一致している[6]。

【結果】定量的な議論のために、分子パラメータを探索しながら(1)式を数値的に解き、実験スペクトルの再現を目指した。

図2に示すように半定量的に再現することができた。なお、探索において、分極関数は平衡核間距離からのズレのべきで表した。その結果、1次と2次の寄与が支配的であった（展開係数はいずれも正）。

この時 (3)式に現れる遷移行列要素の積 $\langle v_B | \alpha_B(r) | v'_B \rangle \langle v'_B | \mu(r) | v_X = 0 \rangle / \langle v_B | \mu(r) | v_X = 0 \rangle$ は常に負の値を取ることが分かる。まず、着目している振動の量子数から、波動関数は外側回帰点付近に大きな確率振幅をもつ。すなわち $\langle v_B | \alpha_B(r) | v'_B \rangle$ が正なら2つの波動関数は外側で同じ符号をもつ。一方、互いに直行していることから、内側回帰点では互いに逆符号を持つ。したがって、行列要素の積は負となる。 $\langle v_B | \alpha_B(r) | v'_B \rangle$ が負の値を持つ場合も同様である。

また、分極関数の形から、NIRパルス誘起のシュタルクシフトにおいて、振動量子数に対する依存性は小さい。以上の結果を(3)式に代入するとシグナルは分子に依存する正の実係数を用いて

$$S_{Bv}(\tau_d) \simeq 1 + \sum_{v'(\neq v)} A_{Bv, Bv'} \sin[(\omega_{Bv} - \omega_{Bv'})\tau_d] \quad (5)$$

と単純化できる [6]。ストークス遷移とアンチストークス遷移の間には π 位相のずれが生じる。両者の寄与が重要な $v=27$ シグナルでは、この π 位相のずれのために非調和振動が包絡線となり、特徴的な明瞭度の増加を示す（点線は(5)式によるフィッティング）。

【参考文献】

- [1] K. Ohmori, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **60**, 487 (2009).
- [2] H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, *Phys. Rev. A* **76**, 013403 (2007).
- [3] K. Hosaka et al., *Phys. Rev. Lett.* **104**, 180501 (2010); I. Walmsley, *Physics* **3**, 38 (2010).
- [4] Y. Ohtsuki, *Chem. Phys. Lett.* **404**, 126 (2005); *New J. Phys.* **12**, 045002 (2010).
- [5] H. Goto, H. Katsuki, H. Ibrahim, H. Chiba, and K. Ohmori, *Nat. Phys.* **7**, 383 (2011)
- [6] Y. Ohtsuki, H. Goto, H. Katsuki, and K. Ohmori, *to be submitted*.

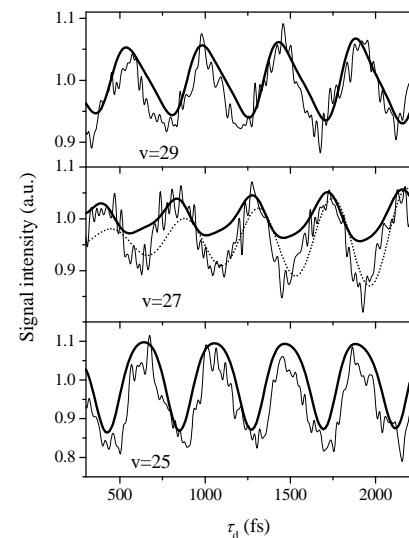


図2：量子数 $v=25, 27, 29$ の実験（細線）・理論（太線）シグナルの比較