

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 6 日現在

機関番号：63903

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2009 ~ 2011

課題番号：21245007

研究課題名（和文）アト秒ピコメートル精度の時空間コヒーレント制御法を用いた量子/古典境界の探索

研究課題名（英文）Exploring quantum/classical boundary by spatiotemporal coherent control with picometer and attosecond precision

研究代表者

大森 賢治（OHMORI KENJI）

分子科学研究所・光分子科学研究領域・教授

研究者番号：10241580

研究成果の概要（和文）：アト秒精度のコヒーレント制御法を固体に応用するとともに、気相孤立分子中の波束を高強度近赤外レーザーパルスで変調するデコヒーレンス模擬実験を行うことにより、量子/古典境界を探索するための実験ツールを開発することに成功した。

研究成果の概要（英文）：We have applied our coherent control with attosecond precision to bulk solids. We have also performed another experiment in which a wave packet in an isolated molecule in the gas phase is modulated with a strong near-infrared laser pulse to mimic decoherence. In a series of these experiments we have succeeded in developing experimental tools to explore quantum/classical boundary.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	10,100,000	3,030,000	13,130,000
2010 年度	15,800,000	4,740,000	20,540,000
2011 年度	9,200,000	2,760,000	11,960,000
年度			
年度			
総計	35,100,000	10,530,000	45,630,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：分子動力学

1. 研究開始当初の背景

物質の波動関数の干渉を光で制御する技術をコヒーレント制御と呼ぶ。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。例えば、我々の身の回りの巨視的な系では物質波の干渉は見られないが、原子分子レベルの物質が示す顕著な波の性質（コヒーレンス）が系の複雑化や拡大とともにいかにして失われて行くか（デコヒーレンス）はまだあまり良く理解されていない。より良い理解のためには、すべての巨視的な物質の構成要素である分子レベルでの顕著なコヒーレ

ンスに人工的な擾乱を加え、その際の応答を定量的に測定し、なおかつ回復させる試みが無効であろう。このような量子シミュレーターを実現するためには高精度のコヒーレント制御技術が必要である。我々は、気相孤立分子の電子振動波動関数に波としての光の位相を完全に転写するという画期的な方法を用いて、アト秒ピコメートル精度の時空間コヒーレント制御法を開発した(日本学士院学術奨励賞(2006); 日本学術振興会賞(2006); K.Ohmori, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **60**, 受理済み (2009); H.Katsuki *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 投稿中 (2008); H.Katsuki *et al.*, *Phys. Rev. A* **76**,

013403 (2007); H.Katsuki *et al.*, Science **311**, 1589 (2006); K.Ohmori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 093002 (2006); K.Ohmori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 243003 (2003)). 我々が開発したアト秒位相変調器 (APM) はアト秒レベルの精度で二つの光パルスの電場振動のタイミング (位相) を操る装置である。我々は、APM から出力された二つのフェムト秒レーザーパルスを照射することによって分子の中にそれぞれのパルスの位相を記憶した二つの振動波束を発生させ、それらが強め合ったり打ち消し合ったりする様子をほぼ完全に制御する事に成功した。さらにこの技術を用いて、波束に含まれるそれぞれの振動固有状態の量子振幅と量子位相に情報を書き込み、これを一定時間分子内に保存した後に読み出すことによって、分子1個で動作する量子メモリーが可能であることを実証した。最近では、このような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観測し制御することにも成功している。

本研究では、これらの超精密観測制御手法と超音速ジェット中の孤立分子集団を組み合わせたデコヒーレンスシミュレーターを用いて、デコヒーレンスのモデル的な検証を試みる。

一方、液体や固体などデコヒーレンスの激しい系を量子散逸系と呼ぶ事にする。本研究では、上記のモデル的な検証に加え、我々独自の量子コヒーレンスの観測制御手法を量子散逸系に適用する事によって、実在系でのデコヒーレンスを定量的に検証する。

これらの研究を通して量子・古典境界に関する知見を深めるとともに、デコヒーレンスを制御するための方法論を探索する。

2. 研究の目的

本研究は、物質の量子力学的な波の性質が失われて行く過程 (デコヒーレンス) を、超音速ジェット中の孤立分子集団、極低温パラ水素固体中の不純物分子、およびバルク固体といった様々な環境下で検証し、分子科学の立場から量子・古典境界に関する理解を深める事を目的としている。平成18~19年度に基盤研究(B)としてご支援いただいた「遺伝アルゴリズムを用いたデコヒーレンスの検証と制御法の開発」の研究成果を発展させるものである。この基盤研究(B)を継承した研究活動は、現在我々のグループにおいて進行中であるが、これまでに高強度レーザー場と超音速ジェット中の孤立ヨウ素分子を組み合わせたデコヒーレンスの量子シミュレーターを開発した (H.Katsuki *et al.*, 投稿準備中 (本研究開始当時; 後に Nature Physics 誌に掲載))。我々の基本的な研究手法がデコヒーレンスの検証に有効である事はこの研究成果によって実証されたと考えている。従ってこれまでに得られた知見を踏まえ、基盤研究(A)として本研究を発展的に継続することによって、より多くの画期的な成果が得られると期待される。

3. 研究の方法

(1)人為的に発生させたデコヒーレンスの検証と抑制

独自に開発したデコヒーレンスシミュレーターを利用して、デコヒーレンスのモデル的な検証と制御を試みる。具体的には、気相分子の励起電子状態ポテンシャル上に振動波束を発生させた後に、decohere パルスを照射してポテンシャルに動的な歪みを加える。その後2個目の波束をつくり、これと1個目の波束とのインターフェログラムを測定する。デコヒーレンスが起これば、フリンジコントラストの減少や位相のずれが観測されるはずである。

(2)量子散逸系でのデコヒーレンスの検証と抑制

同様のデコヒーレンス観測制御法をバルク固体に適用し、熱浴との相互作用によって誘起されるデコヒーレンスの検証と抑制に適用できるかどうかを検討する。

4. 研究成果

(1)人為的に発生させたデコヒーレンスの検証と抑制

非共鳴の赤外高強度フェムト秒レーザーパルスを照射してヨウ素分子の電子ポテンシャルに擾乱を加えることによって、波束内の直交した複数の振動固有状態が混ざり合い干渉する「強レーザー誘起量子干渉」という新しい物理現象を見いだした。本成果は Nature Physics 誌に発表され、Nature Physics 誌や Nature Photonics 誌の News and Views およびリサーチハイライトとして大きく取り上げられた他、中日新聞など国内各紙でも大きく取り上げられ、社会的にも注目を得た。

また、強レーザー誘起量子干渉を起こした振動波束と参照波束とのインターフェログラムを測定し、振動固有状態の位相が変化することを発見した。さらに、この位相変化を能動的に制御することによって、波束がポテンシャル上で徐々に空間的に広がりつづけて行く過程を遅らせたり早めたりすることに成功した。この成果は、現在投稿準備中である。

強レーザー誘起量子干渉は様々な量子系のあらゆるタイプの量子固有状態に共通の普遍的な現象であり、量子系に書き込まれた情報を書き換えユニバーサルな論理ゲートを実行するための基盤技術として期待されるほか、コヒーレント制御およびデコヒーレンス制御の新しい手法としても期待されている。

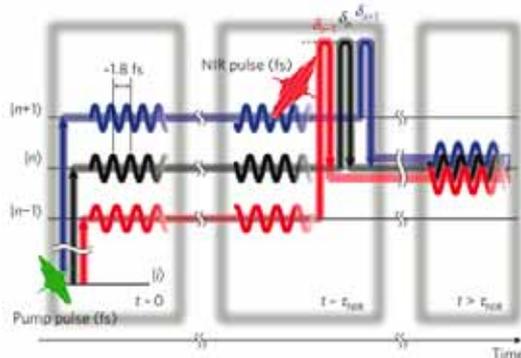


図1. 強レーザー誘起量子干渉の概要。始状態 i から赤外高強度近レーザーパルス (NIR pulse) による照射を経て終状態 n に至る複数の経路が量子力学的に干渉する

(2) 量子散逸系でのデコヒーレンスの検証と抑制

YBa₂Cu₃O₇ の超伝導性と強く結合していると考えられるフォノンモードをアト秒精度で間隔が制御されたフェムト秒レーザーパルス列を使って選択的に励起することに成功した。光で超伝導を制御するための第一歩として期待されている。本成果は、英国の王立化学会の招待論文として発表された。

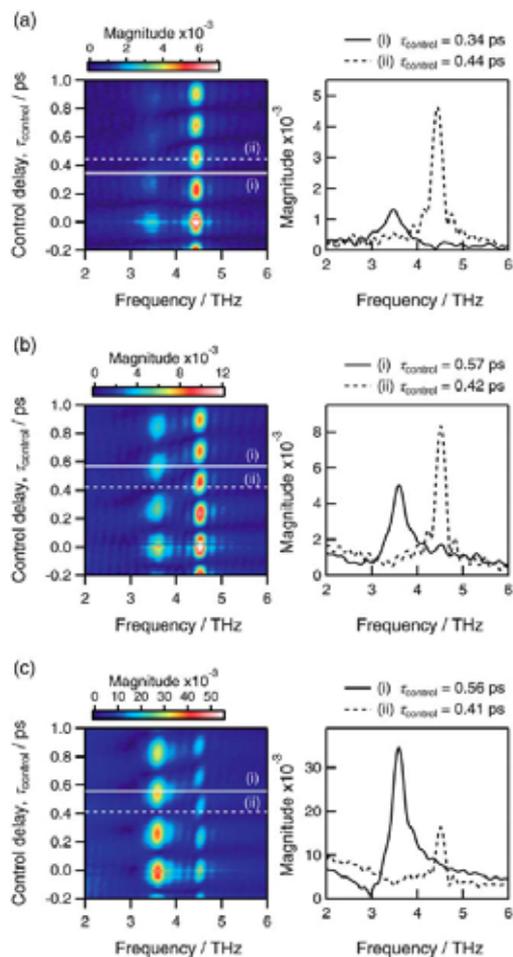


図2. フェムト秒レーザーパルス対によって励起された YBa₂Cu₃O₇ 薄膜内のコヒーレントフォノン振動のフーリエ変換。(a) 296K; (b) 78K; (c) 8K. 左コラムではレーザーパルス対のパルス間遅延時間に対してプロットしてある。右コラムには左コラム中の(i)と(ii)の直線に沿った断面が示してある。パルス間遅延時間を調節することによって Ba-O 結合あるいは Cu-O 結合のいずれかが選択的に励起されている。

固体パラ水素に対してアト秒精度でタイミングを制御された誘導ラマン励起列を適用することによって、結晶中で非局在化したフレンケル型の励起子の量子干渉をほぼ完璧に制御することに成功した。バルク固体中の量子/古典境界を探索するための新しい実験ツールとして期待される。この成果は国際的な科学誌に投稿済みである。

テラヘルツ領域の精密パルス整形技術を用いて、ビスマスのバルク結晶中の直交する二つのフォノンモードをコヒーレントに重ね合わせることによって、バルク固体中の原子の2次元運動を自在に制御することに初めて成功した。本手法は、「直交する二つの運動を重ね合わせると2次元運動になる」という単純で堅牢な原理に基づいており、様々なバルク固体に適用し得る普遍的なものである。この成果は国際的な科学誌に投稿済みである。

以上は本研究の代表的な成果である。これら一連の実験によって、孤立分子を用いたモデル系やバルク固体中で量子/古典境界を探索する為の様々な実験ツールを開発することができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計8件)

- (1) K. Hosaka, H. Shimada, H. Chiba, H. Katsuki, Y. Teranishi, Y. Ohtsuki, and K. Ohmori, Ultrafast Fourier transform with a femtosecond laser driven molecule, Physical Review Letters, 査読有, 104, 2011, 180501 (4 pages)
- (2) H. Goto, H. Katsuki, H. Ibrahim, H. Chiba, and K. Ohmori, Strong-Laser-Induced Quantum Interference, Nature Physics, 査読有, 7, 2011, 383-385
- (3) Y. Okano, H. Katsuki, Y. Nakagawa, H. Takahashi, K. G. Nakamura, and K. Ohmori, Optical manipulation of coherent phonons in superconducting YBa₂Cu₃O₇ thin films, Faraday Discussions, 査読有,

[学会発表](計 73 件)

- (1) Kenji Ohmori, Ultrafast Computing with a Femtosecond-Laser-Driven Molecule, International Workshop on Coherence and Decoherence at Ultracold Temperatures, 2011年9月6~9日, Institute for Advanced Study of Technische Universität München in Garching/Munich, Germany
- (2) Kenji Ohmori, Coherent Control; Present and Future, Gordon Research Conference on "Quantum Control of Light and Matter," 2011年7月31日~8月5日, Mount Holyoke College, South Hadley, MA, USA
- (3) Kenji Ohmori, Optical Manipulation of Coherent Phonons in Superconducting YBa₂Cu₃O_{7-d} Thin Films, Faraday Discussion 153: Coherence and Control in Chemistry, 2011年7月25~27日, Leeds, UK
- (4) Kenji Ohmori, Molecular Eigenstate-Based Information Processing, Lorentz Center Workshop on "Molecular Logic," Lorentz Center, 2011年5月30日~6月2日, Leiden, Netherland
- (5) Kenji Ohmori, Ultrafast Fourier Transform with a Femtosecond-Laser-Driven Molecule (invited), International Workshop on Optimal Control of Quantum Dynamics: Theory and Experiment, Ringberg, 2010年5月31日, Ringberg, Germany
- (6) Kenji Ohmori, Spatiotemporal Coherent Control with Picometer and Attosecond Precision, Gordon Research Conference on "Atomic Physics, 2009年6月28日-7月3日, Tilton, USA

[その他]

ホームページ等

http://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori_g/

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大森 賢治 (OHMORI KENJI)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・教授

研究者番号：10241580

(2) 連携研究者

香月 浩之 (KATSUKI HIROYUKI)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・助教

研究者番号：10390642

武井 宣幸 (TAKEI NOBUYUKI)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・助教

研究者番号：20531841