

平成 22 年 5 月 31 日現在

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2007 ~ 2009

課題番号：19684014

研究課題名(和文) 周波数時間分解分光法を用いた量子位相振幅情報の読み出し

研究課題名(英文) Development of the read-out system for the quantum mechanical amplitude and phase information using the frequency and time resolved spectroscopy

研究代表者

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

研究成果の概要(和文)：極低温クライオスタット中に作成した固体パラ水素中での振動波束の量子干渉を観測・制御するための測定系を開発し、実際の測定を行うことに成功した。干渉計を用いて作成した波長600nmと800nmのフェムト秒ダブルパルスを用いて水素分子の振動波束を独立に二つ生成し、両者の干渉する度合いを別のプローブパルスを用い、CCD観測器を用いた周波数分解シグナルとして計測した。最初の波束の生成後500ピコ秒経過後でも、60%以上の干渉精度を得られることを実証した。

研究成果の概要(英文)：I have succeeded to prepare the experimental setup for the wave packet interferometry experiment within the low temperature solid para-hydrogen crystal. The phase-stabilized double pulses of 600nm and 800nm fs laser pulses were prepared by a home-built Michelson interferometer. The dynamics of the created wave packets were probed by another fs probe pulse. The frequency resolved signal was detected by a CCD detector. We observed an extraordinary long lifetime of the signal fringe contrast, more than 60% even after 500ps from the initial wave packet preparation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,000,000	2,700,000	11,700,000
2008年度	4,300,000	1,290,000	5,590,000
2009年度	2,700,000	810,000	3,510,000
年度			
年度			
総計	16,000,000	4,800,000	20,800,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学 原子・分子・量子エレクトロニクス・プラズマ

キーワード：コヒーレント制御, 超高速分光, 量子干渉

## 1. 研究開始当初の背景

重ね合わさった波が示す干渉効果の観測については、19世紀初頭にヤングの実験により光の干渉が観測されて以来様々な媒質の「波」において報告がなされている。分子や原子を記述する波動関数も波の一種であり、物質波における干渉効果の観測がこれまでになされてきた。超短パルスレーザーを用いることで、光パルスが持つスペクトル幅内の複数のエネルギー準位を同時に励起し、明確な位相関係を持った固有状態の重ね合わせ（以降波束と呼ぶ）を作ることが可能となった。この際、光と粒子との相互作用を通じて、光の持つエネルギー・位相が分子原子に「転写」されるため、そうした情報を保持した分子や原子の励起状態波束を作製することができる。これまでの実験では、波束の干渉現象を観測することが主要なテーマとされてきたが、近年の液晶位相変調器や音響光学素子の発達に伴い、光パルス整形技術を用いて分子・原子系のコヒーレンスを研究者が外側から制御することが可能となりつつある。光パルスによる分子・原子のコヒーレント制御実験の例を挙げれば、分子振動の特定のモードのみを選択的に高振動準位に励起することによる化学反応制御や分子・原子の量子状態をビットと見なしてその状態の読み書きを行う実験などである。このようなコヒーレント制御実験を行う場合重要になってくる要素は、実際に制御された結果をいかに正確に読み出せるかという部分である。

これまでの私の研究では、分子の電子振動励起状態を対象とし、フェムト秒レーザーパルスを用いて二原子分子の電子励起状態に振動波束を作製し、波動関数が示す波の本質に根ざした干渉現象を観測・制御する実験を行ってきた。例を挙げて紹介すると、文献[1](H. Katsuki et al., *Science* 311, 1589 (2006))では電子励起状態において二つの振動波束が重なり合うときに生じる干渉現象を、フェムト秒ポンプ-プローブ法を応用することで時間分解能約 100 フェムト秒、空間分解能 1 ピコメートルという非常に高い時空間分解能で観測することに成功した。分子のコヒーレント制御およびその結果の位相振幅読み出し実験を行うためには、Michelson 型干渉計を高度に安定化できるように改良したアト秒位相変調器(APM)と呼ばれる装置を用いている(K. Ohmori et al., *PRL*, 91, 243003 (2003))。これは入射したフェムト秒パルスを二つのパルスに分けて射出する装置だが、干渉計本体を真空チャンバー中に設置するなどの工夫によりパルス間の遅延時間を±40 アト秒という非常に高い精度で維持することが可能となっている。このよう

位相ロックされたダブルパルスを用いて分子の振動波束に書き込んだ振幅及び相対位相に関する情報を、フェムト秒プローブ光による量子ビートの測定とナノ秒プローブ光によるポピュレーション測定を組み合わせることで読み出すことに成功した(文献[2], K. Ohmori et al., *PRL*, 96, 093002 (2006))。

## 2. 研究の目的

我々が用いてきた位相振幅情報読み出しの方法では波束の状態を読み出す手段としてフェムト秒レーザーによる量子ビート信号の観測と、ナノ秒レーザーによるポピュレーション分布の観測を組み合わせる必要があるが、測定に時間がかかる。また、遺伝アルゴリズムを用いて光の波形を最適化するような実験を行う場合、フィードバック制御を行う必要があるが、素早いフィードバック制御を行うためには位相振幅情報の読み出しの高速化・簡略化が求められる。本研究課題ではより汎用性に富み、高速な波束情報読み出し手法を開拓することを主目的とする。対象とする分子はガスジェット中の孤立ヨウ素分子と、凝縮系の固体パラ水素を予定している。

## 3. 研究の方法

当初の計画では、作成した波束の位相振幅情報の読み出しに、レーザー誘起蛍光を用いることを予定していた。気相中のサンプルを対象とした実験においては、レーザー誘起蛍光の測定は非常にシンプルかつ、強力なものである。一方、クライオスタット中に作成した極低温サンプルを対象とした実験においては、レーザー誘起蛍光やそれに由来するアップコンバージョン光を効率よく集めるためには大きな立体角を確保する必要があるが、所持しているクライオスタット中の限られたスペースでは、そのための光学部品を配置することが物理的、冷却能力的にも困難であることが明らかになった。このため、当初からもう一つの候補に挙げていた、CARS(コヒーレントアンチストークスラマン散乱)の手法によってシグナル光を読み出すことに専念した。CARSではシグナル光がコヒーレントに射出されるため、クライオスタット外部でも効率よくシグナル光を集められるという利点がある。

中心波長 600nm と 800nm の二色のパルスを時空間的に重ねて固体パラ水素分子に入射することで、インパルスラマン遷移によって基底状態と振動量子数  $v=1$  の状態の間のラマン波束を作成することができる。ここですらに、それぞれのパルスを干渉計によってダ

ブルパルスにすることによって、2つの独立した波束を任意のタイミングで作成することが可能となる。このために、これまでに作成した Michelson 型干渉計をさらに改良し、同軸に入射した二色のパルスについて全く同じ時間間隔のダブルパルスを生成する。ダブルパルス間の遅延時間はピエゾステージによって非常に高精度に掃引することが可能となっている。両者のタイミングをアト秒精度で制御することによって、周期 8 fs で振動する二つの波束を自在な位相関係で重ね合わせることが可能となる。生成した波束状態は別のプローブパルスによって、CARS シグナルとして周波数スペクトルとして観測する。これによって異なる回転準位に由来するシグナルも分離して計測できる。

#### 4. 研究成果

まず、パラ水素コンバータを作成し、純度 >99.5% 以上のパラ水素をノーマル水素から作成することに成功した。生成したパラ水素ガスをクライオスタット中に固定した銅製セルに流し込むことによって、クラックのほとんどない、透明なパラ水素結晶を作成することに成功した。過去の研究から、こうして結晶成長させたパラ水素結晶はマクロなスケールで結晶軸の定義が可能な単結晶であることが知られている。得られた結晶に、600nm と 800nm のパルス対を入射することで  $v=0, J=0$  状態と  $v=1, J=0$  状態さらに  $v=0, J=2$  状態の重ね合わさった振動回転波束を作成することに成功した。通常の CARS 測定から、振動コヒーレンスの寿命はナノ秒スケールの非常に長いものであることが得られた。振動励起状態が固体中で非局在化していることを考慮すると、この値はバルクな分子性結晶中としては非常に大きな値である。この理由は、極低温下のパラ水素が等方的な波動関数を持ち、分子間の相互作用が非常に弱いことがあげられる。実際、ノーマル水素の結晶で同様な測定をした場合には 40ps 程度でコヒーレンスは失われることも確認した。

次に、干渉計によって作成した 600nm, 800nm の各ダブルパルスを用いて、二つの波束を結晶内に作成する実験を行った。図 1 にパルス照射の時空間スキームを示した。プローブ光のタイミングを固定しておき、パルス対間の遅延時間 ( $\tau$ ) を掃引する実験を行った。得られた anti-Stokes シグナルはおよそ 8fs の周期で振動しており、この周期は  $v=0, v=1$  状態間のエネルギー差に対応している。フリンジのコントラストは、 $\tau=1$ ps の近辺では  $\sim 87\%$  という非常に高い値が得られた。また、 $\tau$  を 500ps までのばした場合でも、60%以上のフリンジコントラストを保持していることが確認された。

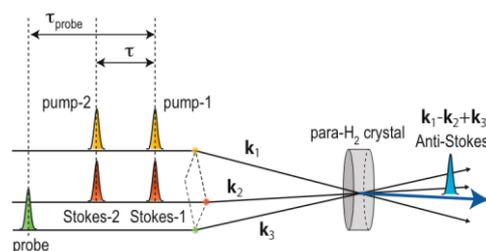


図 1 固体パラ水素中での波束干渉制御スキーム。pump-1, Stokes-1 で生成した波束と pump-2, Stokes-2 で生成した波束間の干渉を probe パルスで計測する。

さらに、パルス対間の時間間隔 ( $\tau$ ) を固定して、probe 光の遅延時間 ( $\tau_{\text{probe}}$ ) を掃引する実験を行った。 $\tau$  を波束同士の干渉が強め合うタイミングまたは弱め合うタイミングで安定化させるために、He-Ne レーザーの干渉パターンをモニターしながら、その強度変化に対してフィードバックを掛けるシステムを構築し、 $\pm 10$ as の精度で  $\tau$  を安定化させることに成功した。この結果、二つの波束が強め合っ、振幅がほぼ 4 倍に増大したり、弱め合っ、振幅がほぼ 0 に消える様子をリアルタイムで測定することに成功した。

固体水素の振動励起状態は弱い分子間相互作用で非局在化している。凝縮系における量子干渉制御実験は、量子ドットや量子ワイヤーなどの低次元系で多くの報告がなされているが、今回行ったような、バルクな固体の非局在励起状態を対象とした量子干渉制御実験は過去に例がないものと思われる。今後、異なる回転準位やフォノンの準位を含めたより精細な量子制御を予定している。さらに、時間的な干渉制御だけでなく、空間的な干渉制御を行い、その情報をホログラフィックに読み取るような研究が今後可能になるのではないかと期待している。このような研究は固体中の励起子ダイナミクスを明らかにするという観点からも、将来的な量子情報処理という観点からも重要な意味を持つと考えている。

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 5 件) すべて査読あり

(1) H. Katsuki, et al. (他 4 名)

"Wave Packet Interferometry with Attosecond Precision and Picometric Structure"

Phys. Chem. Chem. Phys. **12**, 5189-5198 (2010) 10pages

(2) H. Katsuki, et al. (他 4 名)

"Actively tailored spatiotemporal images of quantum interference on the picometer and femtosecond scales"

Phys. Rev. Lett. **102**, 103602 (2009) 4pages

(3) 香月浩之

「アト秒精度の分子波束干渉制御」

応用物理 **78**, 136-140 (2009) 5pages

(4) 香月浩之, 大森賢治

「アト秒精度の波束干渉制御」

レーザー研究 **36**, 31-36 (2008) 6pages

(5) H. Katsuki, et al. (他 3 名)

"READ and WRITE Amplitude and Phase Information by Using High-Precision Molecular Wave-Packet Interferometry"

Phys. Rev. A **76**, 13403 (2007) 13pages

[学会発表] (計 14 件)

(1) 香月浩之 (招待講演)

"分子振動波束制御の基礎と応用"

2010 年 3 月 1 日

2009 年度宇宙空間原子分子過程研究会 「原子衝突におけるコヒーレント相互作用」  
@JAXA 宇宙科学研究本部, 相模原

(2) 香月浩之, 千葉寿, 大森賢治

"固体パラ水素中での分子波束干渉制御"

2009 年 9 月 21 日

第 3 回分子科学討論会 名古屋大学東山キャンパス

(3) H. Katsuki, H. Chiba, K. Ohmori

"Wave packet interferometry in a bulk solid hydrogen"

2009 年 8 月 3 日

Gordon Research Conference (Quantum control of light & matter)

Mount Holyoke College, South Hadley, MA

(4) 香月浩之, 後藤悠, 千葉寿, 大森賢治

"高強度赤外パルスを用いた波束干渉制御  
ーデコヒーレンスのモデル研究"

2009 年 3 月 28 日

日本化学会第 89 春季年会@日本大学 船橋キャンパス

(5) 香月浩之, 後藤悠, J. C. Delagnes, 千葉寿, 大森賢治

"高強度近赤外レーザー光による振動波束のコヒーレンス制御"

2008 年 11 月 11 日

エクストリームフォトリクスシンポジウム @竹島, 蒲郡

(6) 香月浩之, 後藤悠, J. C. Delagnes, 千葉寿, 大森賢治

"高強度近赤外フェムト秒パルスを用いた分子振動波束の振幅位相制御"

2008 年 9 月 25 日

第 2 回分子科学討論会 福岡国際会議場

(7) Hiroyuki Katsuki (招待講演)

"Influence of Strong Laser Pulses on the Amplitudes and Phases of

Vibrational Wave Packets; Model Study of Decoherence"

2008 年 1 月 4 日

5th Asian Conference on Ultrafast Phenomena @ National university of Singapore

(8) 香月浩之 (招待講演)

「アト秒精度の波束干渉を用いた振動波束の制御と観測」

2007 年 12 月 7 日

日本分光学会先端レーザー分光部会 @東京大学、本郷

(9) 香月浩之 (招待講演)

「アト秒精度の波束干渉を用いた振動波束の制御と観測」

2007 年 11 月 27 日

物性研短期研究会「短波長コヒーレント光と物質中のコヒーレンスの生成・消滅」@東大物性研、柏

(10) H. Katsuki, H. goto, J. C. Delagnes, H. Chiba, K. Ohmori

"Influence of Strong Laser Pulses on the Amplitudes and Phases of Vibrational Wave Packets; Model Study of Decoherence"

2007 年 9 月 27 日

6th International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science

Green Park Resort, Pisa, Italy

(11) 香月浩之, 後藤悠, J. C. Delagnes, 千葉寿, 大森賢治

"高強度フェムト秒レーザーパルスを用いた

波束操作”

2007年9月17日

第1回分子科学討論会 仙台, 東北大学

(12) H. Katsuki and K. Ohmori (招待講演)  
“Visualizing and Controlling Picometric  
Quantum Ripples in Molecules”

2007年8月27日

2007 CLEO Pacific Rim, seoul, Korea

(13) Hiroyuki Katsuki (招待講演)

2007年7月6日

第12回日韓分子科学合同シンポジウム「光  
分子科学の最前線と将来」, Jejudo, Korea

(14) Hiroyuki Katsuki (招待講演)

“Visualizing and Controlling Ultrafast  
Vibrational Wave-Packet Interference”

2007年5月8日

11th East Asian Workshop on Chemical  
Dynamics, Tokyo University of Science,  
Japan

[その他]

ホームページ等

[http://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori\\_g/](http://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori_g/)

第三回 PCCP 賞受賞(2009年)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

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: 19684014