

量子のさざ波を 光で制御する

大森 賢治

光分子科学研究領域
光分子科学第二研究部門
教授

(併)分子制御レーザー開発研究センター・
センター長



おおもり・けんじ

1987年 東京大学卒業

1992年 同大学院工学系研究科博士課程修了、工学博士 東北大学助手・助教授を経て2003年9月より現職

2004年～2005年 東北大学客員教授併任

2007年～2008年 東京工業大学客員教授併任

2009年～現在 東京大学大学院理学系研究科流動講座教授併任

2001年～現在 JST CREST 事業併任

はじめに

物質を構成する電子や原子核は粒子であると同時に波でもある。我々はこの電子や原子の波を光で観察し制御する研究を進めている。このような技術はコヒーレント制御と呼ばれ、1980年代半ばに物理化学分野の理論研究者が化学反応を制御するために提唱した方法論である^{1,2)}。現在では化学、物理学、情報科学を横断する学際的な技術となり、これによって、これら3分野を融合した新しい学問領域が出現しようとしている。これに伴い、物理学者や情報科学者達は分子を基盤とする化学の領域に急速に接近しつつある。

コヒーレント制御とは？

図1に示すように、二原子分子がレーザーパルスに照射され上位の電子状態に励起される場合を考える。このパルスのフーリエ変換限界：

$$E_p(t) = E_0(t) \cos(\omega_0 t) \quad (1)$$

における時間形状 $E_0(t)$ の幅が分子の古典的な振動周期（通常サブピコ秒のオーダー：ピコ = 10^{-12} ）よりも短ければ、複数の振動固有状態（原子の定在波：図1上段の各離散状態）が一度に励起され、それらの重ね合わせ状態：

$$\Psi(r, t) = \sum_n c_n |v=n\rangle = \sum_n c_n \psi_n(r) \exp(-i(\omega_n t - \phi_n)) \quad (2)$$

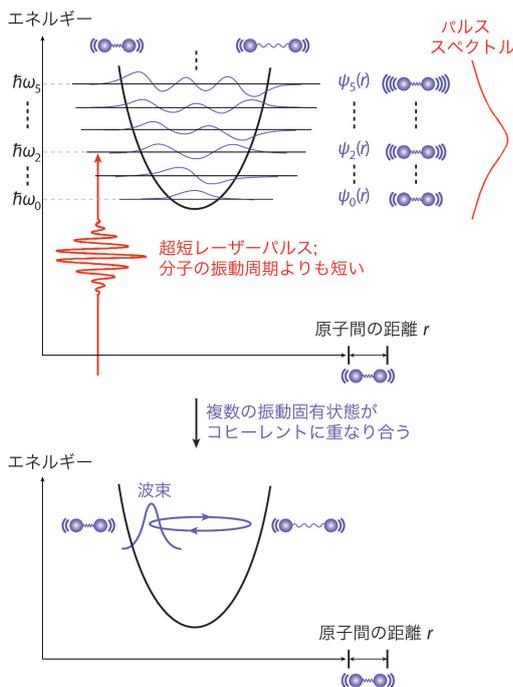


図1 超短レーザーパルスによる振動波束生成の概念図
Annu. Rev. Phys. Chem. 60, 487 (2009)より転載。

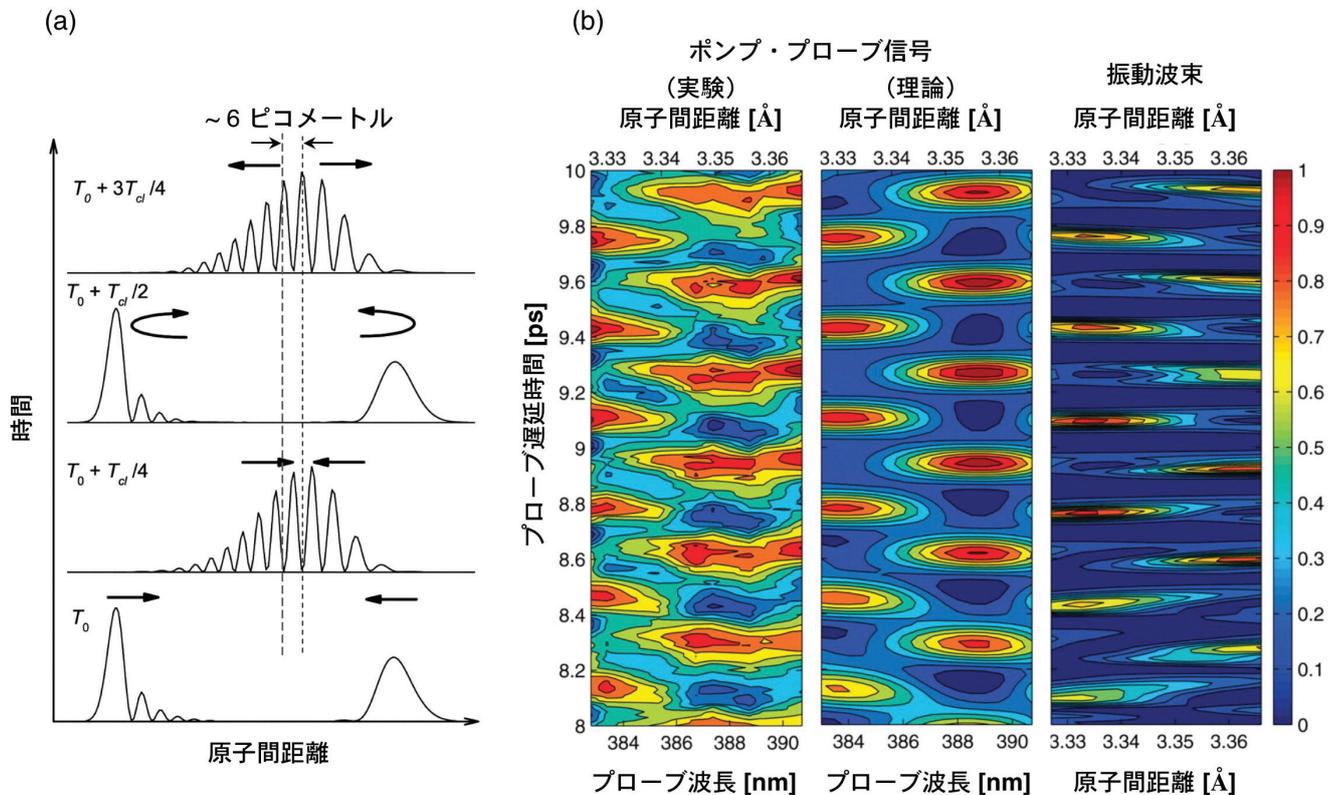


図2 量子さざ波 (a) ヨウ素分子の中で互に対向する2個の振動波束が干渉する様子。2個の波束が交差する一瞬(～100フェムト秒)の間だけ、ピコメートルスケールのさざ波が現れる。 T_{cl} は古典的な分子振動の周期で、この場合0.3ピコ秒程度。(b) 左から順に、実験的に可視化されたヨウ素分子中の量子さざ波; 実験信号の理論シミュレーション; 波束運動の理論シミュレーション。Science 311, 1589 (2006)より転載。

が形成される。その結果、強め合う場所に波束と呼ばれる局在した原子波が発生し、結合軸上を行ったり来たりする状態ができる(図1下段)。ここで、 $\psi_n(r)$ は n 番目の振動準位 $v = n$ の固有関数、 ω_n はその遷移角周波数で ω_0 にほぼ等しい。つまり各固有状態は $2\pi/\omega_n$ 秒の周期で振動しており、 c_n と ϕ_n はその振幅(揺れ幅)と位相(揺れのタイミング)である。この固有状態を励起した周波数領域におけるレーザー電場の振幅と位相は c_n と ϕ_n に転写されるので、

レーザー電場を制御すれば波束を制御することができる。波長が500 nm程度の可視光で励起する場合、固有状態はおよそ1.7フェムト秒周期(フェムト= 10^{-15})という超高速で振動することになる。従って、 ϕ_n を制御する為には、レーザー電場の振動をアト秒精度(アト= 10^{-18})で制御しなければならない。ここでは二原子分子の振動固有状態を例にとって説明したが、コヒーレント制御の方法論は様々な量子系の任意の固有状態に適用することができる。

アト秒ピコメートル精度の時空間コヒーレント制御

例えば図2 (a) に模式的に示されたように、1個のヨウ素分子内に2個の振動波束が発生すると、それらが交差する瞬間だけ干渉し、量子さざ波(Quantum Ripple)と呼ばれる過渡的な定在波が発生する。さざ波はピコメートル領域の微小な空間で形成され、100フェムト秒程度の寿命しか持たない。我々は最近、フェムト秒レー

レーザーパルスを用いた独自の手法を用いて、初めてこのさざ波を可視化することに成功している(図2(b))³⁾。さざ波が作り出す美しい時空間模様(図2(b))は量子カーペットと呼ばれている⁴⁾。もし2個の波束を発生させる2発のフェムト秒レーザーパルスの時間間隔をアト秒レベルで調節できれば、波束間の相対的な位相を同レベルで調節し量子カーペットの模様を多彩にデザインできることが理論的に予測される。筆者らは、これを可能にする高安定光干渉計(アト秒位相変調器: APM)を開発した⁴⁻⁹⁾。APMは真空容器中に組み上げたマイケルソン干渉計で、片方の光路には気体セルが設置されており、この圧力を調節することでパルス間隔をアト秒レベルで制御することができる。537 nmのレーザーパルス対の時空間間隔をゼロ付近にした状態でAPMの気体セルの圧力を掃引して得られる光学インターフェログラムを図3に示す。このように、1.79フェムト秒周期のレーザー電場の振動が観測される。このインターフェログラムをsine関数で最小二乗フィットした際の振動周期の標準偏差は700zepto秒であった⁷⁾(zepto=10⁻²¹)。さらにフィードバック制御を施すことによって、パルス対の時空間間隔を長時間安定させることが可能である。図4は、我々の研究グループが実際に実験を行っている様子を示す写真である。正面の壁に投影された画面はAPMから出射された二つのフェムト秒レーザーパルス対を分光器に入射して測定した干渉スペクトルである。このスペクトルの山が隣の山まで移動すると、空間的に隔たった2個のフェム

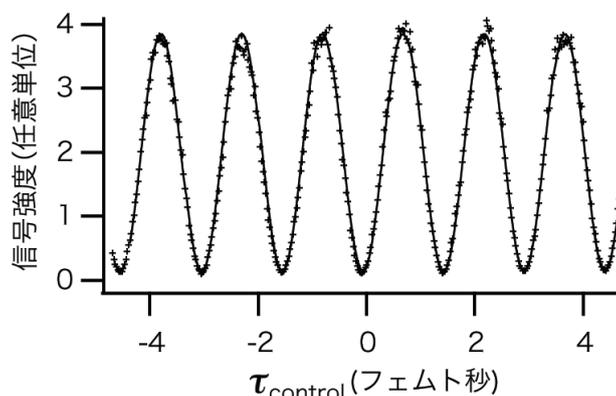


図3 光の干渉 二つのレーザーパルス(中心波長 537 nm)の干渉を示す光学インターフェログラム。+が測定値で実線は最小二乗フィットしたsine関数。横軸は波長から算出したインターフェログラムの周期(=1.79フェムト秒)で較正した。 $\tau_{\text{control}} = 0$ は任意。Phys. Rev. A 76, 013403 (2007)より転載。

ト秒パルスの時間間隔が2フェムト秒程度変化したことになる。人がぼやける程度の露光時間で撮影しても、その間スペクトルにぶれが見られない事がわかりいただけだと思う。実際には40分以上の連続測定を行う事も多いが、その間この壁上の干渉波形はほぼ静止している。我々はこのAPMを用いて量子カーペットの時空間模様をピコメートル精度で多彩にデザインすることに成功した(図5)⁴⁾。これはカーボンナノチューブの直径の1/1000の微小空間における極限的な精密加工である。このアト秒ピコメートル精度の時空間コヒーレント制御は、コヒーレント制御の一つの到達点であり、物質の波動性をより良く理解する上で重要な進歩であるが、より良い理解は新たなテクノロジーの起点にもなる。例えば、量子カーペットは、波束に含まれる固有

状態が有する振幅と位相を読み出す為の有効な道具であり^{4,6-9)}、その発展形として分子の波動関数を用いた情報処理が現れて来る。

分子の波動関数を用いた情報処理

現代の高速情報処理は高集積回路に負うところが大きい。しかし、シリコン集積回路の高集積化がこれ以上進行し、絶縁体の幅が数原子層レベルにまで到達すると、電子のしみ出しによって熱やエラーが発生することが予測されている¹⁰⁾。最新の分子エレクトロニクス¹¹⁾を用いたとしても、電荷を情報の担体として用いる限り、この本質的な問題点を回避することはできない。これを解決する為には、電氣的に中性な物質の波動関数を情報担体として使

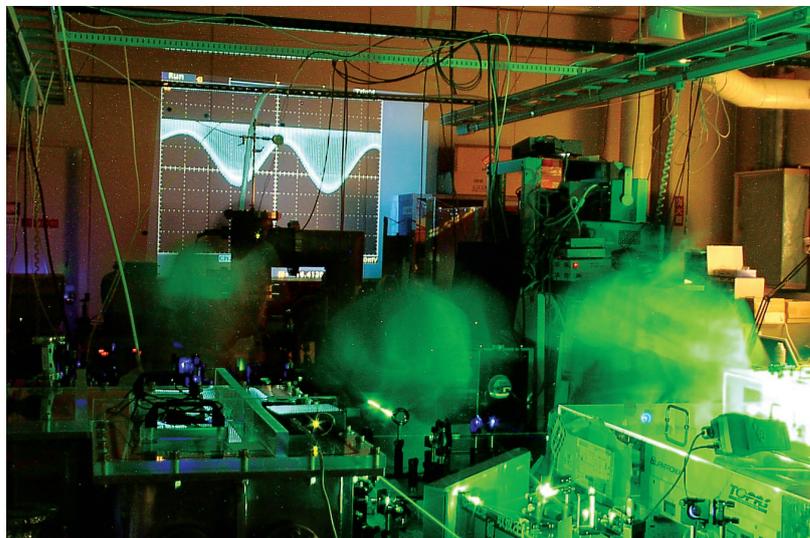


図4 実験風景 左手前にある真空容器がアト秒位相変調器 (APM)。正面の壁上に投影されているスペクトル干渉波形が静止していれば、APMから出てきた二つのフェムト秒レーザーパルスの間隔がアト秒レベルで静止しているということを意味する。

えば良い。既に図1で説明したように、超短レーザーパルスは原子や分子の多数の固有状態に同時にアクセスすることができる。例えば、10個の振動固有状態を重ね合わせることは、さほど困難ではないし、パルスシェーパーを使えば各状態の振幅と位相を独立に制御できる。この場合、各々の固有状態の振幅と位相をそれぞれ $[0, 1]$ および $[0, \pi]$ と2値化すれば4種類の2値コード $(0, 0)$, $(0, \pi)$, $(1, 0)$, $(1, \pi)$ を取り得るので、全体では $4^{10} = 1,048,576$ 通りの異なった情報をオングストロームスケールの1個の分子に入力することができる。原子や分子が持つこの生来的な高集積性は、情報素子としての大きな魅力である。特に、分子は最近、大規模な量子コンピューターを構築する上で有用な素子として注目されている¹²⁾。分子の固有状態を用いた情報処理は、それが古典的であ

れ量子的であれ、注目すべき研究課題である^{8,9)}。

既に我々は、二原子分子の振動固有状態を用いて振幅位相情報の読み書きを実現し^{4,9)}、分子1個1個が情報素子として機能し得ることを実証するとともに、論理ゲートの開発も進めており、最近では分子1個で離散フーリエ変換を実行することにも成功している^{13,14)}。

今後の展望

超高速化学と極低温原子物理はこれまで独立に発展を遂げてきた。しかし最近、極低温極性分子を用いた量子計算機の大規模化¹²⁾、あるいは量子シミュレーターや基礎物理定数の精密測定¹⁵⁾などが提案されて以降、原子物理学者や量子光学者が、分子を対象とする化学分野に高い関心を示すようになって

いる。一方、化学の立場から見ると、極低温分子を用いれば、コヒーレント反応制御に大きな進展が見られるかもしれないし、量子計算素子や量子シミュレーターとしての新たな分子機能を引き出せるかもしれない^{8,9)}。さらには、コヒーレント制御の方法論が、極低温分子の生成そのものに役に立つかもしれない。今後、化学と物理の両分野の研究者が協力して、極低温分子のコヒーレント制御に基づく新しい研究分野を構築しようとする流れができつつある¹⁶⁾。

物質の波動性の検証と制御は、孤立した原子分子ばかりでなく、液体や固体、あるいは生体分子など広い範囲で行われるようになってきている^{17,18)}。このような複雑系では、多数の原子や分子が複雑に相互作用しており、物質の波としての性質が失われやすい。これは「デコヒーレンス」と呼ばれる現

象である。今後、デコヒーレンスを制御するための努力が必要になってくるだろう。

このような展望の下に、我々は現在、レーザー冷却された極低温⁸⁷Rb原子集団、あるいは半金属バルク固体や固体バラ水素等の凝縮系における超高速コヒーレント制御や、デコヒーレンス制

御に関する実験研究を推進している。

一方、孤立した原子や分子の波の世界と我々の身の回りの決定論的な世界はどのようにつながっているのだろう。コヒーレント制御が物質の波動性に根ざしている以上、様々な環境下でその可能性を追求することは、量子論的な世界観の検証でもあるはずだ。100年

の謎を解くためのヒントがそこに隠されているかもしれない。

本研究をゼロから立ち上げ、発展させる上で重要な役割を果たしてくれた香月浩之博士（分子科学研究所助教）と千葉寿氏（岩手大学技術職員）に感謝する。

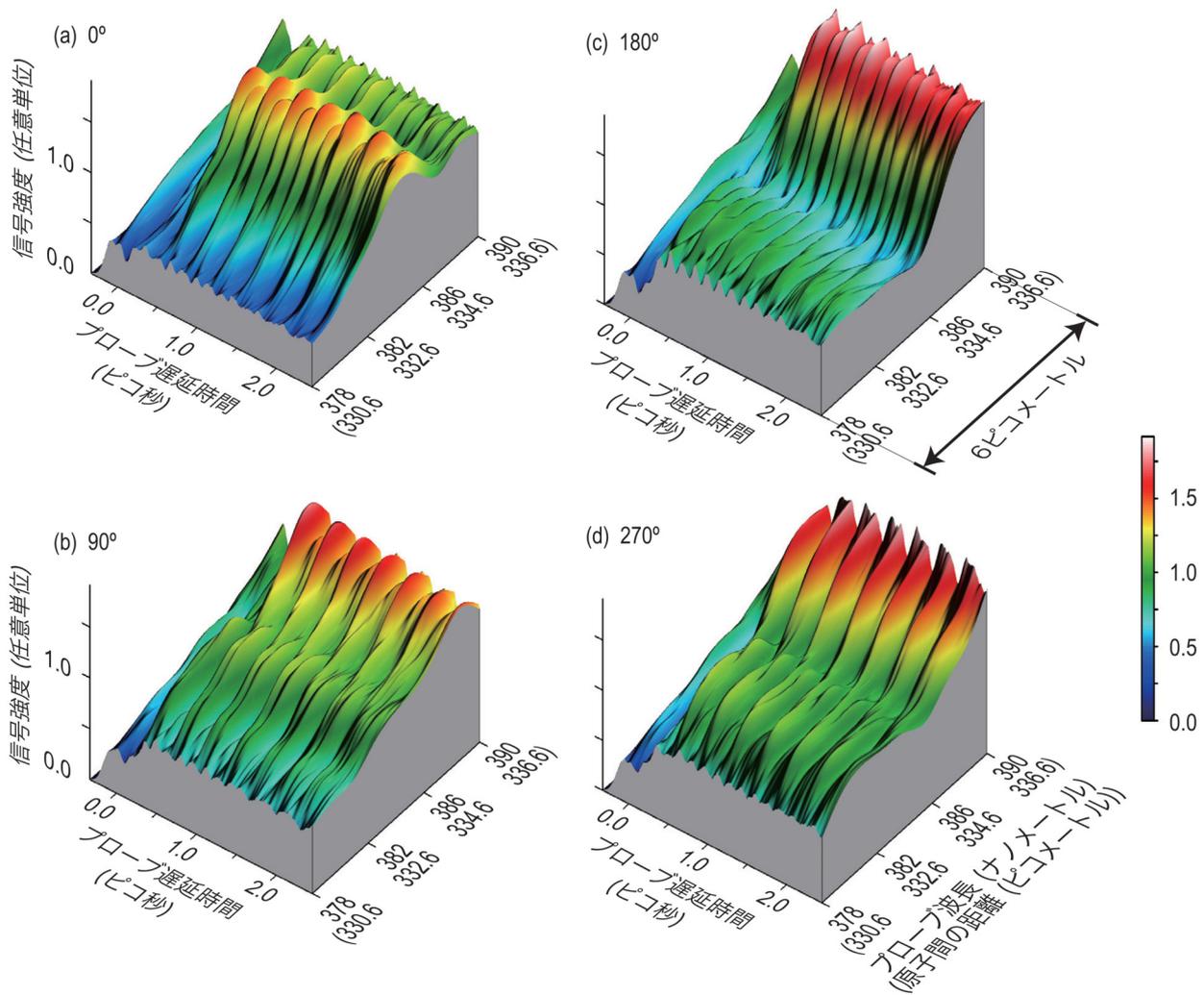


図5 波動関数の極限的な精密加工 APMから出力されたレーザーパルス対でヨウ素分子のB電子状態に2個の波束をつくる。 τ_{control} は古典的な分子振動周期の1.5倍付近に設定。(a)から(d)へとレーザーパルス対の相対位相 θ_{p-c} を 90° ずつ変化させると、波束干渉が描く波動関数の時空間模様(量子カーペット)がピコメートルスケールで劇的に変化する。 $\theta_{p-c} = 0$ は任意。Phys. Rev. Lett. 102, 103602 (2009)より転載。

参考文献

- 1) M. Shapiro, J. W. Hepburn, and P. Brumer, *Chem. Phys. Lett.* **149**, 451 (1988)
- 2) D. J. Tannor, R. Kosloff, and S. A. Rice, *J. Chem. Phys.* **85**, 5805 (1986).
- 3) H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, *Science* **311**, 1589 (2006).
- 4) H. Katsuki, H. Chiba, C. Meier, B. Girard, and K. Ohmori, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 103602 (2009).
- 5) K. Ohmori, Y. Sato, E. E. Nikitin, and S. A. Rice, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 243003 (2003).
- 6) K. Ohmori, H. Katsuki, H. Chiba, M. Honda, Y. Hagihara, K. Fujiwara, Y. Sato, and K. Ueda, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 093001 (2006).
- 7) H. Katsuki, K. Hosaka, H. Chiba, and K. Ohmori, *Phys. Rev. A* **76**, 013403 (2007).
- 8) K. Ohmori, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **60**, 487 (2009).
- 9) K. Ohmori, *Proceedings of the Japan Academy, Ser. B* **84**, 167 (2008).
- 10) 例えば、D. Normile, *Science* **293**, 787 (2001); M. Lundstrom, *Science* **299**, 210 (2003).
- 11) J. E. Green, J. W. Choi, A. Boukai, Y. Bunimovich, E. Johnston-Halperin, E. Delonno, Y. Luo, B. A. Sheriff, K. Xu, Y. S. Shin, H.-R. Tseng, J. F. Stoddart, and J. R. Heath, *Nature* **445**, 414 (2007).
- 12) 例えば、D. DeMille, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 067901 (2002); A. Micheli, G. K. Brennen, and P. Zoller, *Nat. Phys.* **2**, 341 (2006); A. André, D. DeMille, J. M. Doyle, M. D. Lukin, S. E. Maxwell, P. Rabl, R. J. Schoelkopf, and P. Zoller, *Nat. Phys.* **2**, 636 (2006); P. Rabl, D. DeMille, J. M. Doyle, M. D. Lukin, R. J. Schoelkopf, and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 033003 (2006).
- 13) Y. Teranishi, Y. Ohtsuki, K. Hosaka, H. Chiba, H. Katsuki, and K. Ohmori, *J. Chem. Phys.* **124**, 114110 (2006).
- 14) K. Hosaka, H. Shimada, H. Chiba, H. Katsuki, Y. Teranishi, Y. Ohtsuki, and K. Ohmori, to be submitted.
- 15) <http://jilawwww.colorado.edu/yelabs/>
- 16) 分子研レターズ59号「IMSニュース」の記事「第8回エクストリームフォトニクス研究会“Ultrafast meets ultracold”」を参照.
- 17) V. I. Prokhorenko, A. M. Nagy, S. A. Waschuk, L. S. Brown, R. R. Birge, and R. J. D. Miller, *Science* **313**, 1257 (2006).
- 18) H. Lee, Y.-C. Cheng, and G. R. Fleming, *Science* **316**, 1462 (2007).