

大森 賢治

自然科学研究機構・分子科学研究所・光分子科学研究領域・研究主幹・教授

## アト秒精度の凝縮系コヒーレント制御

### §1. 研究実施の概要

量子シミュレーター班は、光格子に導入する原子・分子の生成に重点を置いて研究を進めた。磁気光学トラップ中に捕獲された冷却 Rb 原子集団にフェムト秒光パルス照射することで、各原子内にリュードベリ電子波束を生成し、この波束の時間発展をフェムト秒レーザーパルスで追跡することに成功した。また、波束を構成する各リュードベリ状態に対する測定法の開発を行った。これらの測定法を、次年度以降に行う量子シミュレーター実験において、隣接サイト間の相互作用を操作した場合に生じる効果を観測することに活用する。同様に、冷却 Rb 原子集団に整形したフェムト秒光パルス照射することで、光会合による Rb<sub>2</sub> 分子の生成を実現した。

バルク固体班は、フォノンの巨視的量子状態の制御に重点を置いて研究を進めた。酸化物強誘電体や超伝導体を対象にコヒーレントフォノンの計測や制御を行った。特に銅酸化物高温超伝導体 (YBaCu<sub>2</sub>O<sub>3-d</sub>) に対してフェムト秒レーザーパルス列を適用し、常伝導状態と超伝導状態 (50K 以下) の両方における Ba-O および Cu-O フォノンモードの選択的制御を実現した。また、ワイドバンドギャップ半導体を用いて、2次ラマン過程で励起された2フォノン束縛状態の観測に成功した。

理論班は、擬1次元結晶および光学格子中の原子系を対象として、振動外場により駆動された量子系の振る舞いを明らかにし、これを用いた量子ダイナミクスのコヒーレント制御の可能性を探った。また、分子内振動と強く結合した電子励起状態をもつ分子性結晶を対象に、電子・振動系の多自由度コヒーレント制御理論の構築に着手した。

### §2. 研究実施体制

(1) 大森グループ

① 研究分担グループ長:大森賢治 (自然科学研究機構・分子科学研究所・光分子科学研究領域、研究主幹/教授)

② 研究項目

- ・超高速量子シミュレーターの開発
- ・リユードベリ電子波束の観測
- ・フェムト秒光パルスによる光会合
- ・超伝導体のコヒーレントフォノン計測・制御

(2) 中村グループ

① 研究分担グループ長:中村一隆 (東京工業大学応用セラミックス研究所、准教授)

② 研究項目

- ・酸化物強誘電体のコヒーレントフォノン計測
- ・半導体のフォノン量子状態計測
- ・超伝導体のコヒーレントフォノン計測・制御

(3) 萱沼(理論)グループ

① 研究分担グループ長:萱沼洋輔 (大阪府立大学 21 世紀科学研究機構、特認教授)

② 研究項目

- ・振動外場による擬1次元系の量子ダイナミクス制御理論

### §3. 研究実施内容

#### ・リユードベリ電子波束の観測

・磁気光学トラップ中の Rb 原子集団に対して、フェムト秒光パルスを用いたポンプ・プローブ測定を行い、リユードベリ電子波束の時間発展を観測した。波長 605nm の光パルスによる二光子励起により、14d 状態を中心とした主量子数の異なる d 状態をコヒーレントに重ね合わせて動径振動波束を生成した。それをプローブ光によりイオン化し、振動周期が 300fs 程度の振動波束を観測した。また、波束を構成する各リユードベリ状態を測定するために field ionization 法を導入した。ナノ秒光パルスによる二光子励起のあとに DC 高電場を印加し、イオン化閾値が各量子数に依存することを利用して各リユードベリ状態を測定した。

#### ・フェムト秒光パルスによる光会合

・磁気光学トラップ中の Rb 原子集団に対して、フェムト秒光パルスを用いた光会合を行い、Rb<sub>2</sub> 分子を観測した。励起光としてパルス幅 100fs、中心波長 800nm の光パルスから Rb 原子の D1 線 (795nm) より短波長側をカットしたものを使用して、5S+5P 状態に漸近するポテンシャル中に分子を形成した。そこから波長 480nm の光パルスにより一光子イオン化を行い Rb<sub>2</sub><sup>+</sup>イオンを観測した。また、ポンプ・プローブ測定により、光会合過程においてコヒーレント過渡現象を観測した。

#### ・酸化物強誘電体のコヒーレントフォノン計測

・フェムト秒時間分解過渡透過強度変化計測を行ない、強誘電体単結晶 LiTaO<sub>3</sub>(0001) のコヒーレントフォノンのダイナミクスを調べた。振動数 6.12, 7.75, 8.37, 10.54, 11.82, 13.76THz を持つ6つのコヒーレント光学フォノンを観測し、それぞれ E(TO<sub>1</sub>), E(TO<sub>2</sub>), E(LO), A<sub>1</sub>(LO<sub>1</sub>), A<sub>1</sub>(LO<sub>2</sub>), E(TO<sub>3</sub>)モード振動と同定した。また透過率強度変化を減衰振動の組み合わせを用いた解析により、それぞれのコヒーレントフォノンの緩和時間を求めた。E(LO)モードの寿命が 1.5ps と一番長く、他のモードの寿命は 1ps 以下であった。特に、最も振動数の低い E(TO<sub>1</sub>)モードのフォノンでは、励起後の時間経過にともなう周波数のソフトニングが起こることが分かった。

#### ・半導体のフォノン量子状態計測

・半導体単結晶 ZnTe のフェムト秒時間分解過渡透過強度変化計測を行なった。励起には、バンドギャップ以下のエネルギーである 800nm のレーザー光を用い、ラマン過程によるフォノン励起を行なった。ZnTe(110)では、3.67THz のコヒーレント振動が観測された。振動強度の偏光依存性が等方的であることおよび振動数が TA(X)の2倍よりも高いことから、この振動は2次ラマン過程で励起された 2TA(X)モードのフォノン束縛状態と同定した。また、2次ラマン過程で生成する2フォノンモードは、スクイーズド状態に対応する。

・超伝導体のコヒーレントフォノン計測・制御

鉄系酸化物超伝導体  $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  ( $x=0.075$ ) のコヒーレントフォノンダイナミクスをフェムト秒時間分解過渡反射率測定により調べた。全対称振動モードである  $A_{1g}(\text{Sm})$  および  $A_{1g}(\text{As})$  モードのコヒーレント光学フォノンの振動に加えて、鉄に関連した振動モードの  $B_{1g}(\text{Fe})$  のコヒーレント光学フォノンが時間領域分光で初めて観測された。また試料温度を室温から液体ヘリウム温度まで変化させ、常伝導状態と超伝導状態 (50K 以下) におけるコヒーレントフォノンの計測を行なった。伝導状態によるフォノンダイナミクスの違いについては、現在解析中である。

銅酸化物超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-d}$  のコヒーレントフォノンダイナミクスをフェムト秒時間分解過渡反射率測定により調べ、 $\text{Ba-O}$  と  $\text{Cu-O}$  の2つのモードのコヒーレントフォノン振動を計測した。常伝導状態と超伝導状態 (77K 以下) では2つのモードの強度比が大きく異なっていた。さらにフェムト秒レーザーパルス列を用いて、常伝導状態と超伝導状態の両方でモード選択的なフォノン制御を実現した。

・振動外場による擬1次元系の量子ダイナミクス制御理論

擬1次元固体および光学格子中の **cold atom** を対象として、振動外場が量子ダイナミクスに及ぼす影響を理論的に明らかにした。振動外場により量子トンネリングが抑制される **dynamic localization** はよく知られていたが、これとは対照的に、後方散乱が抑制される結果、トンネル障壁が透明化される新規な現象を見出した。その応用として、パイエルス絶縁体に振動外場を加えることで、金属相へ転移する量子相転移現象の予言を行った。

## §4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. H. Goto, H. Katsuki, H. Ibrahim, H. Chiba and K. Ohmori "Strong-Laser-Induced Quantum Interference", Nature Physics (in press). (DOI:10.1038/NPHYS1960)  
(Highlighted by “News and Views” in Nature Physics)

### (4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 0 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 0 件)