



國立交通大學

National Chiao Tung University

出國報告（出國類別：學術研究合作參訪及出席國際會議）

題目：赴加拿大拉瓦爾大學參訪暨出席卡爾加利第 21 屆國際激光物理國際會議

服務機關：物理研究所

姓名職稱：寺西慶哲 助理教授

前往國家：加拿大 拉瓦爾 及 卡爾加利

出國期間：101/07/12-07/29

報告日期：102/01/16

一、摘要（200-300 字）

本人於民國 101 年 07 月 12 日起至民國 101 年 07 月 22 日止前往加拿大魁北克省拉瓦爾大學(University Laval)進行學術交流訪問共同討論合作研究的相關課題，並受邀口頭發表一場演講。起源於加拿大拉瓦爾大學於 07 月 19 日起至 07 月 22 日止所進行的專題討論會，故其光學中心教授 Prof. S. L. Chin 隨及邀請本人於民國 101 年 07 月 12 日起至 101 年 07 月 22 日止進行為期 11 天的參訪學術訪問交流，並順道參加拉瓦爾大學於 07 月 19 日起至 07 月 22 日止所進行的專題討論會，會議期間雙方除了進行學術研究討論專題討會外，並口頭提供發表一場演講。其會議名稱為：超快強激光場科學小型研討會(Mini-symposium on Ultrafast Intense Laser Science)，口頭演講題目為：強激光場中分子的高度非線性激發(Highly Multiphoton Excitation of Methane by Single or Double Pulses of Intense Laser Field)。

學術訪問交流討論完後並於 101 年 07 月 23-28 日前往位於加拿大卡爾加利的卡爾加利大學參加第 21 屆國際激光物理研討會(21th International Laser Physics Workshop, LPHYS'12, Calgary, Canada)，此研討會的專門研究領域包括 (1)激光物理的近代發展趨勢 (2)強場與阿托秒物理 (3)生物光子學 (4)激光物理 (5)非線性光譜學 (6)冷阱捕獲原子物理 (7) 量子國際科學 及 (8)光纖激光器等。本人於 7 月 27 日期間做了口頭演講，題目為『量子控制光譜的重疊共振與選擇態的數值模擬 (Numerical Simulation of Quantum Control Spectroscopy for Overlapping Resonance with State Selectivity)』。

二、目次

一、封面.....	01
摘要.....	02
二、目次.....	03
(一) 簡介.....	04
(二) 參考文獻.....	04
三、本文.....	05
(一) 目的.....	05
(二) 過程.....	08
(三) 心得.....	25
(四) 建議.....	26
(五) 附件.....	27

(一) 簡 介

陳瑞良教授(Prof. See Leang Chin)是加拿大拉瓦爾大學光學、光子學及激光中心物理系的教授，主要從事飛秒強激光光絲、飛秒激光誘導螢光、強激光電離、原子分子布居數捕獲、超激發態以及飛秒激光材料加工方面的研究。2001-至今加拿大首席超快強激光科學研究員，2011 年獲加拿大物理學家協會終身物理成就獎。陳瑞良教授(Prof. S. L. Chin)他對超快強激光科學做出了非常卓越的貢獻，他也曾經是超快強激光領域的原創者。

LPHYS'12 是最活躍的激光物理國際研討會之一。今年的 LPHYS 於 7 月 23 日至 27 日期間於加拿大卡爾加里大學舉辦。本人於 7 月 22 日上午 7 點 55 分從蒙特婁搭機(加拿大航空 AC165)，上午 10 點 33 分抵達卡爾加里研討會，並於 7 月 27 日期間做了口頭演講，題目為『量子控制光譜的重疊共振與選擇態的數值模擬 (Numerical Simulation of Quantum Control Spectroscopy for Overlapping Resonance with State Selectivity)』。

(二) 參考文獻

- [1] F. Kong, Q. Luo, H. Xu, M. Sharifi, D. Song, and S. L. Chin, J. Chem. Phys. **125**, 13320 (2006).
- [2] Y. Teranishi, M. Hayashi, F Kong, S. L. Chin, S. D. Chao, H. Mineo, and S. H. Lin, “Highly multiphoton molecular excitation by an intense laser pulse”, Mol. Phys. **106**, 333 (2008). (Prof. R. D. Levine’s special issue).
- [3] D. Song, A. Azarm, Y Kamali, K. Liu, A. Xia, Y. Teranishi, S. H. Lin, F. Kong, S. L. Chin, “Neutral dissociation of superexcited oxygen molecules in intense laser fields”, J. Chem. Phys. **A 114**, 3087 (2010).
- [4] A. Azarm, H. L. Xu , Y. Kamali, J. Bernhardt, D. Song, A. Xia, Y. Teranishi, S. H. Lin, F. Kong, S. L. Chin, “Direct observation of super-excited states in methane created by a femtosecond intense laser field”, J. Phys. **B41**, 225601 (2008).
- [5] A. Azarm, D. Song, K. Liu, S. Hosseini, Y. Teranishi, S. H. Lin, A. Xia, F. Kong, S. L. Chin, “Neutral Dissociation of Hydrogen Molecules in a Strong Laser Filed through Superexcited States”, J. Phys. **B44**, 085601 (2011).

三、本文

(一) 目的(包括原定計畫目標、主題、緣起、預期效益或欲達成事項。)

原定計畫目標：

1. 參訪、學術交流(2012年07月12-22日)－加拿大魁北克市拉瓦爾大學的光學、光子學及激光中心物理系 **Prof. See Leang Chin** 並出席拉瓦爾大學所舉辦的小型研討會。
2. 參加國際會議(2012年07月23-28日)－加拿大卡爾加利市卡爾加利大學所舉辦的第21屆國際激光物理研討會(LPHYS'12)。

主 題

本人於民國2012年07月12日起至民國101年07月22日止前往加拿大魁北克省拉瓦爾大學(Laval University)進行學術研究參訪交流。此一行程起緣於拉瓦爾大學的 S. L Chin 教授的邀請，進行為期11天的參訪學術訪問交流，並於07月19日全天參加專題討論會，會議名稱為：超快強激光場科學小型研討會(Mini-symposium on Ultrafast Intense Laser Science)，於會議期間並做了一場口頭發表演講，演講題目為：強激光場中分子的高度非線性激發(Highly Multiphoton Excitation of Methane by Single or Double Pulses of Intense LASER Field)。本人與上述單位已建立了長期的合作關係，這次演講內容是與強激光場的分子激發課題相關研究內容互有關係，在最近總算獲得了滿意的結果而利用這個機會對他們做了報告。

緣 起

本人受到拉瓦爾大學 S. L. Chin 教授的邀請，因此前往拉瓦爾大學進行學術研究參訪，我們目前的研究工作是正在進行有關強激光場的分子激發研究合作。模式鎖定振盪器和啁啾脈衝放大器(Mode-Locked Oscillators and Chirped Pulse Amplifiers)的發明開闢了新的強場科學可能性。Peta-watt 峰強度現在可以經由桌面激光器使用，目前眾多新的現象及技術已經被揭露出來。當分子被強激光輻射，會引起各種非線性動力學過程。例如校準(alignment)，結構的變化，以及伴隨著高階諧波所產生的離子化或庫侖爆炸。經由強激光的電子激發卻一直很少被關注。最近，S. L. Chin's 團隊經由強激光照射後，找到各種氣體分子電子激發態的中性碎片，如甲烷、乙烯及正丁烷。

預期效益

庫侖爆炸會破壞各種化學鍵這是眾所皆知的，因而導致同時產生帶電的碎片。即使他們發現幾乎也導致破壞所有化學鍵，還沒有完全歸因於庫侖爆炸，但到新的機制，因為碎片是中性的。我們提出了一個理論模型來解釋這一新現象¹。我們假設碎片的存在是經由從激發母體分子一個新的激發機制所產生的，激發態的最終態會呈現寬分佈。在我們的模型中，我們假設第一激發態能量遠大於光子的能量，並且，激發態的能量之間的間距是相同或小於光子能量。因此激發很難從基態發生，因為大的激發能量，而激發態之間的轉換速度遠遠超過從基態的轉變。

因此，基態的激發概率不依賴於最終狀態，因為激發態的群體往往由於激

發態之間小能量分離快速，所以往往會被重新分配。在甲烷的例子，幾乎所有的激發態的激發概率依賴於激光的強度有能量的，也就是 I^{10} 。對應到激光強度的實驗觀測，CH 碎片的螢光實驗在 A 態有依賴 I^{10} 的能量。我們的模型顯示甚至是被建立在超激發態(SES's)，這也與實驗結果符合一致。傳統的研究是利用電子散射及同步輻射來準備 SES。強短脈衝激光在另一方面可能會在這一領域開放新的研究可能性。由於泵的非線性過程，強激光可以產生 SESs，這是很難從電子散射或同步加速器輻射中創建出來的。

事實上，Kong 等人已經找到了好幾個氧分子新的 SESs³。激烈的短脈衝激光的另一個後果是可能會成為時間分辨光譜。Ali 等人(S. L. Chin's 團隊)已經開始進行了一種泵浦-探針(Pump-Probe)實驗^{4,5}，在這泵浦脈衝建立 SES's 及破壞探測脈衝以期能得到 SES 生命週期(Lifetime)能可能性。近年來，Xu 等人經由弱激光脈衝場中的短波長(400nm)分子激發找到了明顯增強的中性碎片。

雖然顯而易見的是，強短脈衝激光是一種新的研究超激發態有前途的工具，但有幾個基本問題仍然存在著，如下所示：

- (1) 為什麼 SESs 可以在強激光場生存?
- (2) 什麼是在 SES 母體分子的碎片機制?
- (3) Ali 等人的泵浦-探針(Pump-Probe)實驗破壞 SES 機制是什麼?
- (4) Xu 找到的增強機制是什麼?

為了回答這些問題，我們已經進行了數值模擬。

欲達成事項

這次訪問拉瓦爾大學的目的之一是為了顯示我們最近的模擬結果及理論解釋，並取得 Chin's 研究小組的實驗結果。另一個目的是要取得他們詳細的實驗細項資訊。我們也應該討論我們最近取得的成就在日後公佈。參加一個小型研討會作專題演講，也是這次訪問的目的之一。

(二) 過程 (出國期間行程、參訪單位及訪問過程)

關於參訪、學術交流部份(2012 年 07 月 12-22 日)

因為與加拿大魁北克市拉瓦爾大學的光學、光子學及激光中心物理系合作研究多年，可以參考文獻[3][7][11][13]。並於 2008 年時就開始進行多方合作並共同發表文章至今，實驗的部分是與大陸北京中國科學院化學所的孔繁熬教授(Prof. F. Kong)實驗室及加拿大拉瓦爾大學光學，光子學及激光中心物理系陳瑞良教授(Prof. S. L. Chin)實驗室合作，而理論方面則是由台灣林聖賢院士(Prof. S. H. Lin)主導。陳瑞良教授(Prof. See Leang Chin)現在他是該科研領域裡世界聞名的一位帶頭人。他不僅是因為做了大量重要的科研工作而聞名，更加上他的領先發現和優異成果，得到了同行的認可。例如他發現的強光場電離已聞名於全世界，許多研究專家都非常佩服他在光絲現象的科研成績，共有許多研究學者讚賞他在多光子吸收過程的研究。同時，其研究的創新品質及其成果所造成的影響均得到一致贊同。他將科研成果傳播到國際社會的意願也為人們所稱道。

他總是欣然接受出席在該科研領域內舉行的各種重大國際會議，並介紹其科研成果。陳教授在事業上各方面的表現，細節和貢獻都特別強調了他的科學領導能力。在培養高素質人才的領域裡，他的貢獻，遠高於一般教授的平均水準；他所訓練的研究生，平均每年有近一個博士和一個以上的碩士畢業。他在加拿大科學界的影響，可以從他參與許多合作專案上看出。還應強調的是，魁北克市當年創建國家光學研究所時，他是舉足輕重的關鍵人物。現在這所機構的活躍發展，正是陳博士的生動寫照：他在科學界裡的影響範圍，遠遠超出我們的所知；他與許多實驗室共同研發得到的結果，也同樣有深遠的影響。

於是我於 2011 年時就與 Prof. S. L. Chin 共同於 J. Phys. B 發表了一篇文章，題目為『氫分子經由超激發態在強激光場下的中性解離』。由簡要的理論實驗研究內容可得知當分子經由強雷射照射發光(波長在 800 nm 情況下)，會導致各種非線性動力學的過程。例如分子的校準、結構改變離子化高階簡諧的產生或庫倫爆炸。然而，經由強雷射所導致的電子激發，比較不被重視。近年來，Kong 等人由強雷射照射各種氣體分子找到了電子激發態的中性碎片，且已知庫倫爆炸同時會導致各種化學鍵斷裂並產生帶電的碎片。即使 Kong 發現化學鍵斷裂的結果，也不會因為碎片是中性而歸因於庫倫爆炸，故這是一個新的機制。

我們假設碎片的產生是經由激發母體分子而來的，並且呈現寬廣的分佈。光子能量必須遠小於第一激發態，且大於或等於其他激發態之間的能量，就能呈現寬廣的分佈態。因為光子能量遠小於第一激發能，導致從基態到激發態的躍遷不易發生，而激發態之間的躍遷速度又比前者來的迅速。

無論最終態為何，都不會影響基態的躍遷趨勢，因為激發態之分布會重新且快速的平均分配至每個激發態(包含超激發態)上。其計算結果與近期實驗所發現的超激發態形成原因相符。

傳統的研究指出，可利用電子碰撞或同步輻射源來產生超激發態之現象，而強短脈衝亦具有開啟這方面研究的可能性，其原因為非線性激發過程能使強雷射製造出電子碰撞或同步輻射源很難達成的超激發態，Kong 等人也發現某些氧氣分子確實具有超激發態之性質。另一因素為可利用時間解析光譜儀來研究超激發態。Chin's 研究團隊在 pump-probe 實驗中得知第一個脈衝能產生超激發態之現象，第二個脈衝則導致超激發態受到破壞，其結果能推測出超激發態的可能壽命。

在超激發態的研究中，雖然已經證明強短脈衝雷射是一個優良的方法，但仍有幾個基本問題依舊存在：為什麼超激發態可以存在於強雷射場中？母體分子在超激發態的碎片機制是什麼？泵-探針實驗中，第二道脈衝又是如何破壞超激發態？故本篇研究重點著重於(a)理論計算強短脈衝雷射到達超激發態或高階簡諧之過程(b)超激發態的飛秒與阿秒動力學。

而理論方面的研究方向則是以文獻[2]為主，繼續延伸研究。在文獻[2]中討論了分子在強激光場下電子激發，其主要研究內容為強激光場下多光子分子的高激發研究。因此這次研究的主要目地也包含了強激光場中分子的多光子激發處理。當第一激發態的能量比光子的能量及躍遷激發態兩者之間的能量大時，光子的激發態會有很強烈的耦合，而基態的耦合是弱的。在這種情況下，

每一個激發態的激發機率是沿著線性函數的，我們可以用全對數圖以激發的機率對強激光強度來作圖，求出其最終態的斜率。

此次計畫前往加拿大魁北克光學、光子學及激光中心物理系的主要目地，是要討論預期即將完成的工作及具體成果即將發表文章的相關內容，因為有很多問題尚待解決，還有要討論下一階段的研究目標及未來的研究方向。預期可以讓合作多年的此一研究計畫可以繼續延伸擴展，並共擬新的研究題材，讓此一研究方向繼續發展下去，並達成新的共識共同發表文章。

2012 年 07 月 12-22 日參訪加拿大魁北克拉瓦爾大學詳細行程如下所示：

- 7月12日(四) 搭長榮航空 BR2198 的航班於上午 8 點 50 分離開台灣。於日本當天時間下午 13 點 15 分到達成田(東京)。隨後即趕搭加拿大航空 AC10 的航班於下午 13 點 55 分離開成田。由於時差的關係(加拿大魁北克/蒙特婁比台灣慢 13 個小時)，故於加拿大當地時間 7 月 12 日(五)上午 10 點 30 分到達卡爾加里。隨即搭乘加拿大航空 AC144 的航班於中午 12 點 15 分離開卡爾加里，於下午 18 點 09 分到達蒙特婁(卡爾加里與魁北克時差慢 2 小時)。
- 7月13日(五) 上午 01 點 30 分到達魁北克。隨後即乘坐計程車到達拉瓦爾大學。上午 10 點 00 分到下午 6 點與 Prof. Chin 討論他們的研究工作。
- 7月14日(六) 上午在辦公室工作。
中午到下午 3 點與 Prof. Chin 討論他們的實驗設備。
- 7月15日(日) 在辦公室分析他們的最近實驗結果。
- 7月16日(一) 早上到中午一直與 Ali Azarm (Prof. Chin 實驗室的博士後研究員)討論他的最近工作。下午與 S. Hosseini (Prof. Chin 實驗室的學生)討論他的工作。

- 7月17日(二) 上午在辦公室準備下午的討論。下午與 Prof. Chin 實驗室研究生及博士後討論本人的理論研究內容。
- 7月18日(三) 上午與 T. J. Wang (博士後研究員)討論他的最近研究。下午在辦公室工作及準備十九日的演講。
- 7月19日(四) 全天參加專題討論會，會議名稱為：強激光場中分子的高度非線性激發 (Highly Multiphoton Excitation of Methane by Single or Double Pulses of Intense LASER Field)。並口頭發表做了一場演講，口頭演講題目為：強激光場中分子的高度非線性激發 (Highly Multiphoton Excitation of Methane by Single or Double Pulses of Intense LASER Field)。
- 7月20日(五) 上午進行專題討論會，下午4點到6點與 Prof. Popov (Lomonosov Moscow State University, Russia)討論研究工作細節及雙方合作項目。
- 7月21日(六) 上午在辦公室工作。中午到下午3點30分與 Prof. Chin 討論本人的理論研究。下午4點到5點與 Prof. Xu (Jilin University, China)討論他們及本人的論文發表之方式。之後乘坐客運(Orleans Express)於下午6點00分離開魁北克，下午9點40分到達蒙特婁。
- 7月22日(日) 搭乘加拿大航空 AC165 的航班於上午07點55分離開蒙特婁，於上午10點33分到達卡爾加利，下午在飯店看研究文獻及研究工作相關資料。

2012年07月23-28日參加加拿大卡爾加利大學所舉辦的第21屆國際激光物理研討會(LPHYS'12)詳細行程如下所示：

- 7月23日~27日 參加國際研討會
- 7月28日 搭機回台
- 7月29日 抵達台灣

Publication Lists

(Original Papers)

- [1] Y. Ohtsuki, Y. Teranishi, P. Saalfrank, G. Turnici, and H. Rabitz, "Monotonically convergent algorithms for solving quantum optimal control problems described by an integrodifferential equation of motion", *Phys. Rev. A* **75**, 033407 (2007). **Times Cited: 19**

- [2] Y. Teranishi, M. Hayashi, F Kong, S. L. Chin, S. D. Chao, H. Mineo, and S. H. Lin, “Highly multiphoton molecular excitation by an intense laser pulse”, *Mol. Phys.* **106**, 333-339 (2008). **Times Cited: 7**
- [3] A. Azarm, H. L. Xu , Y. Kamali, J. Bernhardt, D. Song, A. Xia, Y. Teranishi, S. H. Lin, F. Kong, S. L. Chin, “Direct observation of super-excited states in methane created by a femtosecond intense laser field”, *J. Phys. B* **41**, 225601 (2008). **Times Cited: 6**
- [4] Wang Qiaoqiao, Wu Di, Zhang Dongdong, Jin Mingxin, Liu Fuchun, Liu Hang, Hu Zhan, Ding Dajun, Mineo Hirobumi, Dyakov Yuri, Teranishi Yoshiaki, Chao Sheng, Mebel Alexander, Lin Sheng-Hsien, "Ionization and Dissociation Processes of Pyrrolidine in Intense Femtosecond laser Field", *The Journal of Physical Chemistry C* **113**, 11805-11815 (2009). **Times Cited: 4**
- [5] Q. Q. Wang, H. Mineo, D. Wu, M. X. Jin, C. H. Chin, Y. Teranishi, S. D. Chao, D. Ding, and S. H. Lin, “Molecular ionization of Cyclohexanone in Femtosecond Laser Fields: An Application of ADK Theory”, *Laser Physics*, **19**, 1671-1676 (2009)
- [6] Y. H. Wang, Y. Teranishi, H. Mineo, S. D. Chao, H. L. Selzle, H. J. Neusser, E. W. Schlag, S. H. Lin, “Theoretical Study of ZEKE spectroscopy and dynamics of high Rydberg states”, *Chemical Physics Letters*, **486**, 104-109 (2010).
- [7] D. Song, A. Azarm, Y Kamali, K. Liu, A. Xia, Y. Teranishi, S. H. Lin, F. Kong, S. L. Chin, “Neutral dissociation of superexcited oxygen molecules in intense laser fields”, *J. Phys. Chem. A* **114**, 3087-3095 (2010). **Times Cited: 2**
- [8] K. Hosaka, H. Shimada, H Chiba¹, H. Katsuki, Y Teranishi, Y Ohtsuki, and Kenji Ohmori, “Ultrafast Fourier transform in a femtosecond laser driven molecule”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 180501 (2010). (This paper has been selected for a Highlighted article in PRL, PRL editor’s suggestions, a Viewpoint in *Physics*, and a Research Highlight in *Nature*) **Times Cited: 4**
- [9] A. Kondorskiy, S. Nanbu, Y. Teranishi, and H. Nakamura, “Control of Chemical Dynamics by Lasers”, *J. Phys. Chem. A* **114**, 6171 (2010). **Times Cited: 1**
- [10] H. Mineo, Y. Teranishi, SD, Chao, SH. Lin, “Ultrafast electronic motion in hydrogen molecular ions induced by a high power intense laser”, *Chem. Phys. Lett.* **499**, 45 (2010).
- [11] A. Azarm, S. Ramakrishna, A. Talebpour, S. Hosseini, Y. Teranishi, H. L. Xu, Y Kamali, J. Bernhardt, S. H. Lin, T. Sideman, and S. L. Chin, “Pupulation Trapping and Rotational Revival of N₂ Molecules During Filamentation of a Femtosecond Laser Pulse in Air”, *J. Phys. B* **43**, 235602 (2010). **Times Cited: 1**
- [12] Y. H. Wang, H. Mineo, S. D. Chao, H. L. Selzle, H. J. Neusser, E. W. Schlag, Y. Teranishi, and S. H. Lin, “A master Equation Approach to the Dynamics of Zero Kinetic Energy (ZEKE) States and ZEKE Spectroscopy”, *J. Chem. Phys.* **134**, 064316 (2011).
- [13] A. Azarm, D. Song, K. Liu, S. Hosseini, Y. Teranishi, S. H. Lin, A. Xia, F. Kong, S. L. Chin, “Neutral Dissociation of Hydrogen Molecules in a Strong Laser Field through Superexcited States”, *Journal of Physics B* **44**, 085601 (2011).

Refereed Proceedings

- [1] Y. Teranishi and M. Hayashi, D. Song, A. Azarm, F. Kong, S. L. Chin, H. Mineo, and S. H.

Lin, “Highly Multiphoton Excitation of Molecule by Intense Laser Field”, *2009 LASERS & ELECTRO-OPTICS & THE PACIFIC RIM CONFERENCE ON LASERS AND ELECTRO - OPTICS*, Vol. 1, 164 (2009).

國際會議

- [1] “Conveyance of Quantum Particle by a Moving Potential Well with Acceleration”, Dynamics and Manipulation of Quantum Systems (2008) (招待講演)
- [2] “Electronic Excitation of Molecules by an Intense Laser Field”, The 12th International Conference on Multiphoton Processes (ICOMP12) and The 3rd International Conference on Attosecond Physics (ATTO3) (2011/07/03-08)

Invited talks

- [1] “Conveyance of Quantum Particle by a Moving Potential Well with Acceleration”, International Workshop on Dynamics and Manipulation of Quantum Systems (2008), Tokyo.
- [2] “Optimal Conveyance Scheme of a Quantum Particle Trapped in a Potential Well”, Second International Workshop on Dynamics and Manipulation of Quantum Systems (2009), Tokyo.

Recent Invited Talks in Domestic Meetings or Seminars

- [1] “Highly Multiphoton Excitation of Molecule induced by intense femto-second lasers”, Seminar of Center for Quantum Science at NCTU (2008).
- [2] “Laser Control of Atomic and Molecular Processes”, at IAMS Seminar (2009).
- [3] “Laser control of atomic and molecular processes”, 2012 年理論計算化學研討會 (2012/02/24-25), Taipei

關於國際會議部份（2012 年 07 月 23-28 日）

量子調控共振狀態及選擇性光譜重疊的數值模擬摘要如下所示：

量子控制理論是一個逆向問題，當我們從哈密頓系統的知識找到外加磁場達到預期的結果。從實驗的角度來看，在另一方面，最佳外場控制即使沒有使用反饋控制算法先前的知識系統也可以被發現。具有反饋實驗獲得的最佳場應該包含系統的信息，這可以使我們獲得光譜數據，這是很難從光譜的常規方法得到的。按照這個思路，我們提出了一種新的光譜方法稱為量子調控光譜。在這裡，我們解決了一個逆向問題，我們從反饋實驗中得到了最佳場找到了系統信息。通常逆向問題都會有多幾種解決方案。設定控制目標及限制導致對系統信息的唯一解是必須的。

我們已經提出了一項計劃，從密切橫向共振態去得到選擇性光譜。即使當多個共振峰彼此重疊，我們可以從每一個共振態得到選擇性光譜。我們尋求一個有限數目脈衝的脈衝序列，可以導致總零激發機率約束條件下的時間延遲，脈衝之間的相位差及強度比。它證明我們可以從最佳的脈衝序列的共振狀態單一決定位置及寬度。更進一步，我們可以得到脈衝對實現狀態條件下之間的選擇性激發態。

在這項研究中，我們舉兩個例子(重疊的超精細狀態，密切橫向螺旋)，進行可能的數值模擬實驗，討論我們計劃的有效性。我們預期的計劃是經由阿秒脈衝序列應用到激發的過程中。

在會場中的互動是非常熱絡的，每個人都詳述自己的研究領域及未來更進一步的研究方向，讓我可以更進一步獲得各種研究訊息，真的是收益良多。參加這種國際性研討會除了與世界各地專家討論之外，還可與許多來自不同國家的學生做交流，並聽取雙方交流資訊，由於來自不同國家各有不同的背景，研究的方法、內容與目的，也是值得我要更進一步去了解的部份。對於我的研究方向內容，簡略詳述如下：

(一般觀點)

有關理論物理化學中心的研究主題之一可能是以搜索的方式來控制選擇產品中的化學反應。因為激光的發明，所以激光一直被視為最有前途的工具之一。這是困難的，然而，直到找到超快脈衝及脈衝形狀最新發展情況的一個可行激光技術控制方案。這可以很容易理解，這兩種技術是分子激光控制不可少的過程，要注意以下幾點：

- (1) 超快脈衝有很大的峰強度及廣泛的帶寬，分別導致很大的非線性轉換過渡機率及相干轉換成許多不同態。
- (2) 脈衝形狀技術使我們能夠準確地利用這些控制特性的所需。

現今對於超快及脈衝形狀的技術仍然有發展的空間，在實現量子控制的化學過程所產生的興趣與日俱增。

雖然仍然存在一個很大的大問題是如何找到最佳的脈衝形狀來實現控制。到目前為止，已經提出了各式各樣的方法。拉比子(Rabitz)提出了最優控制理論以

變分方程的數值來求解脈衝的形狀，以達到最大的反應機率。他還提出了所謂的反饋控制方案，其中一個最佳的脈衝形狀搜索實驗的理論預測是沒有任何幫助的。這些計劃是強大的，但有一個很大的缺點就是它的控制機制是很難理解。理論上透明的控制計劃，另一方面，可以幫助我們理解控制機制，並討論各方面的控制方案，如穩健性、效率等等。這些計劃的例子是泵-探針方案，受激拉曼絕熱通道(Stimulated Raman Adiabatic Passage, STIRAP)及布魯默-夏皮羅(Brumer-Shapiro)計劃。他們在理論上是透明的，但脈衝的形狀都非常簡單，因此適用性是有限的。

(我們的成就)

為了克服在傳統計劃中的障礙，我們提出了基礎上新的非絕熱過渡控制理論。這裡是以靜止的激光誘導動力學來描述弗羅奎茲(Floquet)波函數，被視為絕熱的參數與激光的頻率及強度誘導，這些絕熱參數的時間依賴關係考慮及使用非絕熱過渡分析理論所帶來的影響¹⁻²。因為在許多情況下，非絕熱過渡所謂的過渡點附近的地方，我們可以把整個動態納入局部的非絕熱過渡及絕熱傳播。如果我們能定期掃去許多絕熱躍遷需要的絕熱參數部份。那麼就可以實現通過控制調整它們之間的干涉效應³。基於這樣的思路，我們提出了一些新的控制計劃，其效率和穩定性方面的詳細討論⁴⁻⁶。由於我們的控制理論允許的頻率及強度的各種功能皆為時間的函數，因此我們可以提出各種控制方案。我們無法以誘導選擇性激勵緊密地激發態⁷直接擴展控制理論到一個新的計劃。高強度超短脈衝激光技術的最新進展實現了超快的過渡及超快時間分辨光譜⁸。然而，由於

其廣泛的帶寬，它被認為難以誘導過渡到一個特定的最終狀態與超短脈衝。根據我們的控制理論，在另一方面，它是能夠與量子干涉的幫助下，以消除不需要的轉換，即使當能量間隔遠小於帶寬^{9,10}。我們的計劃可以選擇性地激發到激發機率單位的密切激發態之一的不確定性定義的時間內實現的不確定性原理 $\Delta\tau = \hbar/\Delta E$ 。如果所需的最終轉移機率小於 1，則選擇性激發可以實現比不確定性時間更快。這是根據日本原子能研究所的一個實驗小組合作實驗驗證(Dr. Yokoyama's group)。我們已經實現了選擇性激發內具有高選擇性的不確定性時間的一半，甚至更短^{5,6}。控制理論是一種逆問題中，我們發現外場哈密頓系統的知識，以達到預期的結果。另一方面，從實驗的角度來看，控制最佳的外部磁場可以發現即使沒有通過使用反饋控制方案先前的系統知識。通過反饋實驗獲得的最佳場應該包含的信息系統，這可以使我們獲得由傳統的光譜學方法很難獲得的光譜數據。根據這一思路提出的新方法，稱為量子調控光譜的光譜⁷。在參考文獻[11]我提出從每一個共振態去得到選擇性光譜態的計劃。即使幾個共振峰相互重疊的，我們可以從每一個諧振狀態去得到選擇性光譜態。上面所提到的控制方案是利用強度或頻率的時間依賴關係所引起的非絕熱過渡。非絕熱過渡可以取得的地方特別是在周邊的電位曲線交叉點的核運動。非絕熱過渡也可用於這種控制。作為這種控制方案的一個例子，我們以分子解離過程為例。結合與游離交叉處之間的的勢能曲線連續波(CW)激光及干擾條件下調節激光頻率與振動水平，從而導致選擇性解離產品^{12,13}。這種控制的想法是適用於各種化學反應過程。為了討論耗散系統的量子控制，我們開發了一種新的數值算法來

求解變分方程最初是由拉比子(Rabitz)的最優控制問題。即使變分方法並不能提供透明的直覺，它給了我們一個數值解的形脈衝，因此有時它可能是有用的，特別是當我們討論耗散系統¹⁴。我們還討論了利用脈衝形狀手法技巧的量子計算法^{15,16}。

(研究目標)

儘管我們的量子控制理論是適用於各種化學過程，至今還是只有很少的實驗已經完成。這主要的原因可能是因為我們沒有提出這麼多實際試驗。這個項目的目的是在不同的系統中提出實驗，以及開發新的控制理論。將進行數值模擬，並與實驗合作者，我們將討論所需的實驗條件。我的研究有(1)自旋交叉極化，(2)利用量子控制產生新的光譜。這計劃的目的是要證明我們的理論是可以適用於在各式不同場。在這項自旋交叉極化的研究中，既沒有形狀脈衝也沒有量子控制的想法已經利用至今。我們的研究將是第一項建議，利用自旋交叉極化形狀脈衝及量子控制的想法，並有望帶來新一代技術進入這一領域。自旋極化利用射頻場，它可以很容易地以高準確度成形。我們已經開始與日本分子科學研究所尼西木拉(Nishimura)教授合作，最近已成功完成第一原理驗證實驗。這裡在氯仿中嵌入 EBBA(N-(4-EthoxyBenzylidene)-4'-ButylAniline)結晶的碳(¹³C)自旋及二次啣啾，我們所設計的射頻脈衝引起氫 1(¹H) 到碳 13(¹³C)交叉極化。本實驗的目的是使該系統可以被近似為一個簡單的兩自旋系統具有固定取向。這是必要的，但是，概括我們的計劃是適用於實際系統。在許多例子，從許多氫 1(¹H)的影響是不可忽略的，應考慮氫 1-氫 1(¹H-¹H)耦合。我們將進行了數值模擬，

以找到最佳方案 n 個氫 1 碳 13($^1\text{H}n^{13}\text{C}$)系統，並提出了一個實驗。由於射頻脈衝形狀技術是非常複雜的，我們認為，核磁共振(NMR)量子控制的例子是一個理想的方法。在實驗中的激光光譜學，單色或窄帶激光已長期被使用，最近已經發展並利用超短脈衝激光的時間分辨光譜。狀脈衝的激光，然而，還是沒有用於光譜學的目的。我們將證明形狀脈衝的可用性及光譜量子控制方法重要性的想法。我們提出了量子控制光譜可以獲得重疊共振選擇性光譜態的例子或在超短時間分辨光譜的例子。這個光譜的例子中，我們將討論氦原子雙激發態及原子/分子在強激光場中的光譜及時間分辨光譜技術。

參考文獻

- [1] H. Nakamura, “Nonadiabatic Transitions: Concepts, Basic Theories and Applications”, (2nd edition, World Scientific / Imperial College Press, Singapore, 2012).
- [2] C.Zhu, Y.Teranishi, and H.Nakamura, Nonadiabatic Transitions due to Curve Crossings: Complete Solutions of the Landau-Zener-Stueckelberg Problems and Their Applications, *Advances in Chemical Physics* **117**, 127-233 (2001).
- [3] Y. Teranishi and H. Nakamura, “Control of Time-dependent Nonadiabatic Processes by an External Field”, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2032 (1998).
- [4] Y. Teranishi and H. Nakamura, “New way of controlling molecular processes by time-dependent external field”, *J. Chem. Phys.* **111**, 1415 (1999).
- [5] H.Nakamura, “Nonadiabatic Chemical Dynamics: Comprehension and Control of Dynamics, and Manifestation of Molecular Functions”, *Adv.Chem.Phys.* Vol. **138**, 95-212 (2008).
- [6] A.Kondorskiy, S.Nanbu, Y.Teranishi, and H.Nakamura, “Control of Chemical Dynamics by Lasers: Theoretical Considerations” *J. Phys. Chem. A* (feature article) **114**, 6171-6187 (2010)
- [7] K. Nagaya, Y. Teranishi, and H. Nakamura, “Selective Excitation Among Closely Lying Multi-Levels”, in “Laser Control and Manipulations of Molecules” edited by A.Bandrauk, R.J.Gordon, and Y.Fujimura, American Chemical Society, (2001).
- [8] K. Nagaya, Y. Teranishi, and H. Nakamura, “New way of controlling molecular processes by a sequence of linearly chirped pulses”, *J. Chem. Phys.* **117**, 9588 (2002). (This paper has been selected for November 2002 issue of *Virtual Journal of Ultrafast Science*.)
- [9] K. Yokoyama, Y. Teranishi, Y. Toya, T. Shirai, Y. Fukuda, M. Aoyama, Y. Akahane, N.

- Inoue, H. Ueda, K. Yamakawa, A. Yokoyama, H. Yamada, A. Yabushita, A. Sugita, "Optimal control of ultrafast selection", J. Chem. Phys. 120 (2004) 9446.
- [10] H. Yamada, K. Yokoyama, Y. Teranishi, A. Sugita, T. Shirai, M. Aoyama, Y. Akahane, N. Inoue, H. Ueda, K. Yamakawa, A. Yokoyama, M. Kawasaki, and H. Nakamura, "Selective transition to the closely lying states $Cs(7D_{3/2})$ and $Cs(7D_{5/2})$ by femtosecond laser pulses", Phys. Rev. **A72**, 063404 (2005). (This paper has been selected for January 2006 issue of Virtual Journal of Ultrafast Science.)
- [11] Y. Teranishi, "Quantum-control spectroscopy with exact state selectivity", Phys Rev. Lett. **97**, 053001 (2006). (This paper has been selected for September 2006 issue of Virtual Journal of Ultrafast Science.)
- [12] K. Nagaya, Y. Teranishi, and H. Nakamura, "Laser control of molecular photodissociation with use of the complete reflection phenomenon", J. Chem. Phys. **113**, 6179 (2000).
- [13] H. Fujisaki, Y. Teranishi, and H. Nakamura, "Control of photodissociation branching using the complete reflection phenomenon: Application of HI molecules", J. Theo. Comp. Chem. **1**, 245 (2002).
- [14] Y. Ohtsuki, Y. Teranishi, P. Saalfrank, G. Turnici, and H. Rabitz, "Monotonically convergent algorithms for solving quantum optimal control problems described by an integrodifferential equation of motion", Phys. Rev. **A75**, 033407 (2007).
- [15] Y. Teranishi, Y. Ohtsuki, K. Hosaka, H. Chiba, H. Katsuki, and K. Ohmori, "Implementation of quantum gate operations in molecules with weak laser fields", J. Chem. Phys. **124**, 114110 (2006). (This paper has been selected for April 2006 issue of Virtual Journal of Ultrafast Science and April 2006 issue of Virtual Journal of Quantum Information)
- [16] K. Hosaka, H. Shimada, H. Chiba, H. Katsuki, Y. Teranishi, Y. Ohtsuki, and Kenji Ohmori, "Ultrafast Fourier transform in a femtosecond laser driven molecule", Phys. Rev. Lett. **104**, 180501 (2010). (This paper has been selected for a Highlighted article in PRL, PRL editor's suggestions, a Viewpoint in *Physics*, and a Research Highlight in *Nature*)

使用的方法、程序及進展

(1) 自旋交叉極化

現在經常使用固態核磁共振儀的自旋交叉極化來提高核自旋(S 自旋)的靈敏度及相對低旋磁比，經由核自旋(I 自旋)的較大極化來轉換，如 ^1H 。例子如多重 (N) I 自旋及單一 S 自旋，可以得到漢米頓(Hamiltonian)式子

$$H(t) = H_{\text{rf}}(t) + \Omega_S S_x + \sum_{i=1}^N \Omega_i I_{xi} + 2 \sum_{i=1}^N d_i I_{xi} S_x \\ + D \sum_{i < j}^N (2 I_{xi} I_{xj} - I_{yi} I_{yj} - I_{zi} I_{zj})$$

式中 無線電頻率 (rf) 場為 $H_{\text{rf}}(t) = \omega_I(t)(I_{z1} + I_{z2}) + \omega_S(t)S_z$ 。 Ω_S 及 Ω_i 各別為 S 自旋及 i -th I 自旋化學位移。 $\omega_S(t)$ 及 $\omega_I(t)$ 是各別表示為 rf 場激活依時的射頻場 在 S 及 I 自旋

表示的時間依賴性的射頻場作用在 S 和 I 旋轉

d_i 是 S 自旋及 I_i 自旋之間異核耦合常數， D 是 I 自旋同核之間的耦合常數。

應當指出，和 D 依賴於分子的取向。我們會找到最好的射頻場，實現了高效的從 I 自旋的自旋極化轉移。在單一的 I 自旋的例子，可以直接應用於我們的控制方案，我們已經找到了控制計劃，利用二次線性調頻（二次函數），最近已被我們的合作者實驗驗證（在 2012 年 7 月）。現在，我們詳細分析其結果。我們正計劃開發這一新的交叉極化技術到更多一般的例子。

第一個發展是多個 I 自旋的情況下，以推廣我們的技術。開始是從兩個 I 自旋的情況下，我們將討論更多個 I 自旋的例子。在這些例子，簡單的二次方程鳴叫(chirping)無法很好地發揮作用，但我們考慮了 $\omega_I(t)$ 鋸齒波函數(sawtooth function)的功用進行數值模擬，以確認這項新計劃的作用，並制定出切實可行的實驗技術。在我們的模擬中，求解薛丁格方程的分裂運算符方法計算程序已經建構完成。在目前的實驗中，我們選擇了嵌入在 MBBA (n-4' - Methoxy Benzylidene - n - Butyl Anilin)晶體，可以是固定的分子取向的氯仿。如果我們的計劃行之有效的分子沒有固定的方向，這將是更有益的。在這種情況下，同核

(homo- nuclear)與異核(hetro- nuclear)耦合(couplings)是依時性(time dependent)的。我們正計劃開發兩個方案。其中之一是採用魔角旋轉(magic angle spinning)，樣品分子是經由快速旋轉而平均出的耦合依時關係而另一個計劃則是利用圓極化場(circularly polarized fields)。

(2) 新的光譜方法：利用量子控制

我們最近提出了一種新的光譜方法稱為反饋光譜儀，激光場中實現了指定的過程，是實驗所得到的反饋方法及光譜數據獲得最佳的激光場的分析。這個光譜的第一個例子中，我已經證明了我們的方法可以提供完善的選擇性光譜的短壽命共振態。我打算提出這個光譜的實驗驗證。以氦原子雙激發態為例，討論激光泵浦雙激發態，然後通過自電離的實驗計劃將進行數值模擬。全維的波包將通過所謂的離散變量表徵-拉蓋爾方法(Discrete Variable Representation-Laguerre Method)計算，其中一個隨時間變化的波包是以一個拉蓋爾多項式(Laguerre polynomial)的零點網格空間數值表示，能夠直接使用依時的薛丁格方程來求解並有效地使用動能算符在正交多項式的計算。

我們對這個問題將開始構建計算程序，然後模擬光譜方案，以實現我們的測量討論的實驗條件。

最近在強場高階非線性原子/分子程序科學領域的發展開闢了新的可能性。在強激光場中從觀測到的離子/電子發射或輻射去討論原子/分子的動態。詳細的信息可以不通過該方法進行檢索。由於在激烈場動態超快，使用阿托秒(ATTO

Second)激光場，但因為超堅牢度選擇性信息而丟失狀態。

我們計劃利用我們的量子調控光譜，提出了一種新的實驗，在激烈的領域提供選擇性態的動態。在這裡，我們討論了量子力學的分子具有強烈的紅外線(IR)脈衝～為 100fs 時間，連同多個紫外線-阿托秒脈衝(UV-ATTO Second Pulses)微擾。因為動力是相當複雜的，精確的模擬還是需要超越當前的可用性的計算資源。因此，我們以氫原子為例，我們可以使用相同的程序開發他雙激發態解釋上述光譜的量子控制。除氫的分子或原子，我們會運用簡單的近似。第一近似忽略的連續狀態。這種近似已經由強紅外線(IR)激光場的研究中使用的超分子的激發，並且我們可以使用已經構建的計算代碼。這種近似的有效性將被檢查以氫原子作為範例。然後，我們要學習我們合作者他的原子與甲烷分子的例子，因為他們已經在做強場實驗。

會議結束後因為無交通工具於當天返台，故待到 28 日才搭乘加拿大航空 AC9 離開卡爾加里，29 日下午 14 點 25 分到達成田(東京)機場。當天下午 15 點 55 分搭乘國泰航空 CX451 離開成水，下午 18 點 30 分到達桃園國際機場。

(三) 心得

參訪、學術交流方面：拉瓦爾大學他們最近的研究工作在於遠端感應及利用激光絲遠程激光發射。高多光子激發在這些過程中起著重要的作用，我們已經確認我們的未來合作的發展方向。重要的議題之一是強激光場中的水分子激發，因為這種分子採用的是激光誘導的雪形成和遠程發射激光實驗。我們為了這些程序，正在計劃去建立一個理論，使用我們的強場激發基本理論。另一個問題是激發機制和捕獲現象之間的關係。捕獲的現象是雷伯登(Rydberg)態及連續(Continuum)態之間的拉曼(Raman)型過渡轉換，被提出來解釋抑制的電離率。我們已經發現我們的強場激發理論是與捕獲現象有密切相關。在這小型的研討會中，我跟 Popov 教授討論研究捕獲的現象及未來合作的可能性。

國際研討會方面：由於許多來自世界各地科學家也都前來卡爾加利出席了這次會議，由於此次參加會議的領域範圍涵蓋很廣，如(1)激光物理的近代發展趨勢 (2)強場與阿托秒物理 (3)生物光子學 (4)激光物理 (5)非線性光譜學 (6)冷阱捕獲原子物理 (7) 量子國際科學 及 (8)光纖激光器等各個領域，甚至是生物學科的最新進展。我可以學到自己本身沒有接觸過的領域，這是是非常有趣的且值得去聽取其它專家學者們的研究方向。除了這些科學部份的研究，在科學研究報告中也有相關量子控制理論問題在這裡，我們解決了一個逆向問題，我們從反饋實驗中得到了最佳場找到了系統信息。通常逆向問題都會有多幾種解決方案。設定控制目標及限制導致對系統信息的唯一解是必須的。

(四) 建議

1. 由於強激光場下分子的激發研究已逐漸發展成形，且經由這次的訪談已經確定了我們未來合作發展方向的計畫，唯獨缺少了研究經費補助，希望政府當局能多重視補助經費，以期許計畫能如期順利展開，朝向世界國際一流頂尖大學邁進。
2. 關於國際研討會合作研究部分，我們已經提出了一項合作研究計畫，從密切橫向共振態去得到選擇性光譜。我們尋求一個有限數目脈衝的脈衝序列，可以導致總零激發機率約束條件下的時間延遲，脈衝之間的相位差及強度比。它證明我們可以從最佳的脈衝序列的共振狀態單一決定位置及寬度。更進一步，我們可以得到脈衝對實現狀態條件下之間的選擇性激發態。在這項研究中，我們舉兩個例子(重疊的超精細狀態，密切橫向螺旋)，進行可能的數值模擬實驗，討論我們計畫的有效性。我們預期的計畫是經由阿秒脈衝序列應用到激發的過程中。因此期望此計畫能被政府當局重視。
3. 國際性會議有助於了解目前世界最新發明及應用上的最新發展、新想法與實驗技術，是非常值得推崇的。這對所有的研究學者都有很大的助益。

(五) 附件

**21th International Laser Physics Workshop
(LPHYS'12)**

July 23–27, 2012, Calgary, Canada

PROGRAM



www.lasphys.com



Astro Ltd.



UNIVERSITY OF
CALGARY



Institute for
Quantum Information Science
at the University of Calgary

