

最適制御シミュレーションによる非共鳴レーザーパルスを用いた振動波束制御法の開発

(東北大院理¹・奈良先端大²・分子研³・総研大⁴)

石井玲音¹・難波知太郎¹・○大槻幸義¹・香月浩之²・大森賢治^{3,4}

Development of vibrational wave-packet control with non-resonant laser pulses by using optimal control simulation (¹ Department of Chemistry, Graduate School of Science, Tohoku University, ² Nara Institute of Science and Technology, ³ Institute for Molecular Science, ⁴ The Graduate University for Advanced Studies (SOKENDAI)

Reon Ishii,¹ Tomotaro Namba,¹ ○Yukiyoshi Ohtsuki,¹ Hiroyuki Katsuki,² Kenji Ohmori^{3,4}

Recent development of laser technology enables us to measure and manipulate molecular dynamics using mildly intense non-resonant laser pulses. By using the controlled strong electric fields, for example, the laser pulses have been applied to the control of rotational wave packets including the molecular alignment control. The stimulated Raman pumping is always accompanied by the coherent population return (CPR), which makes it difficult to achieve the population inversion even in a simple two-state model¹⁾. This is interpreted by using the Bloch sphere, in which the rotational axis is distorted by the dynamic Stark shift. The effects have been experimentally measured²⁾ in the rovibrational population transitions in H₂. The procedures for controlling molecular dynamics using the non-resonant pulses, therefore, have not been fully developed. The purpose of the present study is to develop the control method by means of optimal control simulation³⁾ through the case study of a vibrational wave packet in the electronically excited *B* state of I₂. In the example of population inversion, we will show that the optimal solution is the pulse train, whose temporal interval is determined by the vibrational period derived by the vibrational energy differences. This control scenario is applicable to the population inversions between various vibrational states. We are now trying to extend the control method to adjust the wave-packet shapes and to suppress the dephasing.

Keywords : Nonresonant Laser Pulse; Raman Transition; Optimal Control; Vibrational State

近年のレーザー技術の進歩により、非共鳴の高強度のレーザーパルスが分子ダイナミクス測定や操作に応用されている。例えば、制御された強電場を印加できることから分子整列などの回転波束の制御に盛んに利用されている。一方、誘導ラマン遷移ではコヒーレント分布リターン (CPR) が伴うため、単純な2状態モデルにおいても分布反転は難しい¹⁾。これは動的シュタルクシフトによるブロッホ球での回転軸のずれで説明されている。実験的にも H₂ の振動回転状態における低い分布遷移確率として観測されており²⁾、非共鳴パルスを用いる分子ダイナミクス制御法は開発の途上にある。そこで本研究ではヨウ素分子の電子励起 *B* 状態の振動波束を例に、最適制御シミュレーションを用いて制御法の開発を目指す³⁾。分布反転制御の例では、照射の時間間隔が振動周期であるパルス列が最適解であった。この結果は種々の振動状態間の分布反転に適用可能であることも見出している。現在、振動波束の整形や位相緩和抑制の制御に拡張を試みている。

1) N. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, L. K. Bergmann, *Ann. Rev. Phys. Chem.* **52**, 763 (2001).

2) N. C.-M. Bartlett, J. Jankunas, R. N. Zare, *J. Chem. Phys.* **134**, 234310 (2011).

3) Y. Ohtsuki, T. Namba, H. Katsuki, K. Ohmori, *Phys. Rev. A* **104**, 033107 (2021).