

整形中赤外パルスによるジカルボニル金属錯体の振動コヒーレント制御 II

Vibrational Coherent Control of Metal Di-Carbonyl using Shaped Mid-IR Pulses II

農工大(光ナノ)¹, 農工大(工)² °田山 純平¹, 榎本 薫里², 芦原 聡²

Tokyo Univ. of Agri. & Technol., °J. Tayama, K. Enomoto, and S. Ashihara

E-mail: ashihara@cc.tuat.ac.jp

レーザーコヒーレント制御とは、レーザー光によって物質の波動関数の振幅および位相を制御する手法である。整形中赤外パルスで分子振動をコヒーレント制御すれば、振動モードに沿った核波束が生成する。コヒーレント制御として反応座標と同じ向きの振動モードを選択すれば、化学反応を誘起することができる(図 1(a))。振動遷移を用いたコヒーレント制御が可能となれば、電子遷移を用いたコヒーレント制御では扱いにくかった反応も光による制御の対象になる可能性がある。

複数の振動モードに沿った核波束の運動を選択的に制御することができれば、どんな反応座標に沿った化学反応でも制御できる(図 1(b))。複数の振動モードの重ね合わせで表現される反応座標に沿った化学反応の制御をするには、高振動励起により波束を作る技術と、複数経路を通して生成する波動関数同士を強め合うように干渉させる(図 1(c))技術が必要である。本研究では複数の振動モードのコヒーレント制御のためのモデル系として、2 自由度系、ロジウムジカルボニル(RDC)の CO 伸縮の対称モード・反対称モードの結合モードをターゲットとし、この結合モードのコヒーレント制御を行った。前回までの発表では、励起光の位相変調によって励起経路間の干渉が部分的に制御できることまでを報告した。今回は、結合モードの振動励起に関わる遷移のすべての遷移周波数について同時に位相変調を行い、励起状態波動関数の振幅を最大化した結果を主に報告する。

RDC の結合バンドの励起には 6 つの周波数からなる 8 つの励起経路が存在する。そこで図 2(a)に示すように 6 つの周波数について位相変調したポンプ光でポンプ-プローブ測定を行った。6 つの遷移周波数の移相量を順番に最適化していったところ、結合音の過渡吸収信号(ポンプ-プローブ遅延時間 750 fs)は大きくなっていった(図 2(b))。これは、8 つの励起経路それぞれを経て生成された波動関数同士が強め合うように干渉し、干渉後の波動関数の振幅が大きくなったことを示す。

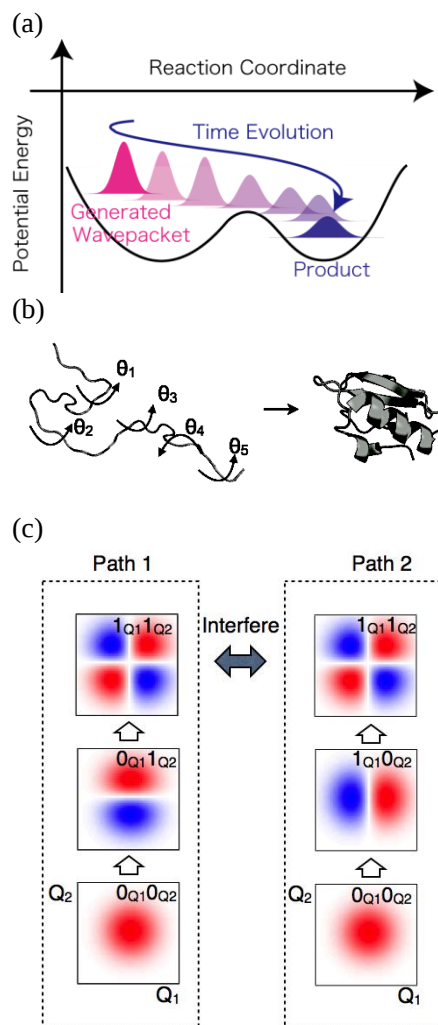
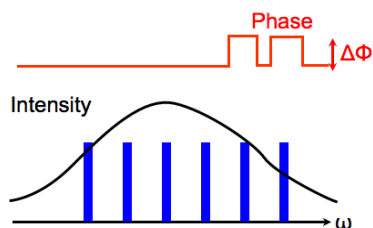
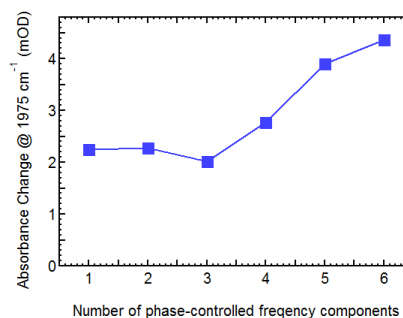


図 1(a)振動コヒーレント制御による化学反応の誘起(b)複数振動モードの制御による化学反応の操作。(c)2 自由度(Q1, Q2)が存在する場合の経路間干渉(励起経路 Path1, 2 を経てできた励起状態波動関数(1_{q1}1_{q2})の干渉)



(a)



(b)

図 2 (a) ポンプ光のステップ位相変調。(b)経路間干渉の最適化により増大した過渡吸収。