

波形整形中赤外パルスによる液相分子の2振動自由度コヒーレント制御

Coherent control over two vibrational degrees of liquid-phase molecule

by shaped mid-infrared pulses

○若林 直樹¹、田山 純平²、芦原 聡²(1. 農工大工、2. 東大生研)

○Naoki Wakabayashi¹, Jumpei Tayama², Satoshi Ashihara²

(1.Tokyo Univ. of A&T, 2.IIS, the Univ. of Tokyo)

E-mail: ashihara@iis.u-tokyo.ac.jp

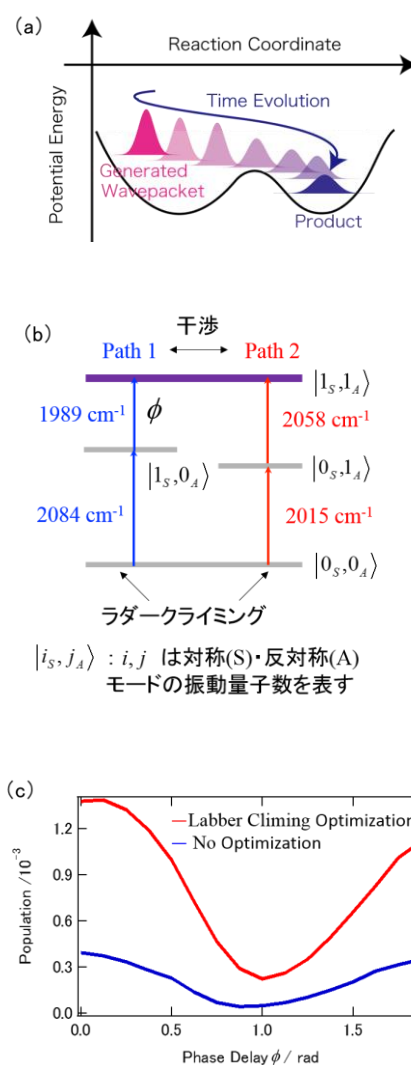
レーザーコヒーレント制御とは、レーザー光により物質の波動関数の振幅・位相を制御する手法である。赤外光は分子振動に共鳴するため、分子の振動コヒーレント制御に用いることができる(図1)。これまでに、赤外パルスにより1つの振動座標に沿った分子の解離反応⁽¹⁾を誘起が行われてきた。一方で反応座標は複数の振動モードで表される場合が多く、複数のモードをコヒーレントに制御できれば、より多くの化学反応に対象を拡げることができる。

化学反応を誘起するには、分子振動を高いエネルギー準位に励起すること(高振動励起)が必要である。その手法として、赤外励起によって振動量子数を1つずつ上昇させるラダークライミング制御と、複数ある励起経路から生成された波動関数同士の干渉(経路間干渉)制御がある。そこで本研究では、2自由度の振動励起効率を最大化する波形整形中赤外パルスの設計および解析を理論・実験の両面で行った。前回までの発表⁽²⁾では、RDC分子の2自由度、対称・反対称モードの結合音モード(図2の $|1_S, 1_A\rangle$)の励起効率制御を、経路間干渉操作により行った。今回は、経路間干渉に加えラダークライミング効率制御を同時に行い、励起効率向上を目指した。さらに、数値計算ではリウヴィル経路解析により、励起効率を最大にするパルス波形を探索した。

結合音バンドへの励起効率制御には、Path 1, Path2 それぞれのラダークライミング効率を最適化した後、Path1 と Path2 の干渉が強めあうように Path2 に位相遅延 ϕ を付加した。図3は ϕ に対する結合音バンドへの励起効率制御の計算結果であり、ラダークライミング効率を最適化した場合と最適化していない場合を示した。計算・実験どちらの場合も経路間干渉による励起効率の変化を示し、ラダークライミングを最適化した場合の励起効率は、最適化していない場合に比べ、向上した。以上示したように、ラダークライミングと経路間干渉を同時に制御することで、それぞれの操作のみを行った場合に比べてより高い励起効率が達成されることが示された。

[1] L. Windhorn, K-L. Kompa, J. Chem. Phys, 119, 641(2003).

[2] J. Tayama, S. Ashihara, JSAP, 20a-A3-8(2013)



図(a)振動コヒーレント制御による

化学反応の誘起

(b)RDC分子のエネルギー準位図

(c)位相遅延に対する結合音への

励起効率変化