

### 3P086 電子励起状態を介した高振動励起状態の生成に関する光量子制御

○高田裕輔<sup>1</sup>, 一谷和弘<sup>1</sup>, 佐野雅敏<sup>1</sup>, 峠田篤人<sup>1</sup>, 杉森公一<sup>2</sup>, 長尾秀実<sup>1</sup>, 西川 清<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>金沢大院・自然, <sup>2</sup>金城大)

#### 【序】

近年, レーザー技術の進歩は目覚しく, フェムト秒オーダーの超短パルス高強度レーザーの開発により, 化学反応ダイナミクスを直感的に観察することが可能となった. また, 光パルス技法の発展により, 光吸収の過程の制御や反応経路の位相制御などが可能となった.

チャープパルス法とは, 入射波の振動数を時間的に変調させることで, pump パルスと dump パルスをひとつのパルス中で実現し目的状態へ高確率で遷移させる方法である.

以前に OH ラジカル分子において電子基底状態における振動状態間でのレーザー制御を行ない, 高振動励起状態の生成に関するシミュレーションを行った. 本研究では, OH 分子の電子励起状態を考慮した二準位系モデル(電子基底状態( $X^2\Pi$ )と電子励起状態( $A^2\Sigma^+$ ))を対象とする. 基底状態に束縛された OH 分子にチャープパルスレーザーを照射し, 電子励起状態への pump と電子基底状態への dump を繰り返して電子基底状態の高振動励起状態への高効率な遷移を行うことを目的とするシミュレーションを行った.

#### 【計算方法】

一般に分子系のハミルトニアン( $H_0$ )は運動エネルギー( $T$ )とポテンシャルエネルギー( $V$ )の和で与えられる. OH ラジカル分子の電子基底状態における振動状態及び解離状態は以下のようなモースポテンシャルを用いて記述できる.

$$V_x(x) = D_e \left(1 - \exp[-\alpha(x - x_e)]\right)^2 \quad (1)$$

また, 電子励起状態についても同様に, 以下のように与えられる.

$$V_A(x) = D'_e \left(1 - \exp[-\alpha'(x - x'_e)]\right)^2 + V' \quad (2)$$

ここで,  $D_e$  と  $D'_e$ ,  $\alpha$  と  $\alpha'$ ,  $x_e$  と  $x'_e$  はそれぞれ, 解離エネルギー, モースパラメータ, 平衡核間距離である[4]. また,  $V'$  は 2 つのポテンシャル曲面のエネルギー差である. この系の固有値及び, 固有関数は解析解で与えられる. 光と分子系の相互作用のハミルトニアンは半古典近似では

$$H_{\text{int}}(x, t) = -\mu(x)E(t) \cong -\mu_{m,n}E \exp\left[-\left((t-t_0)^2/\sigma^2\right)\right] \sin \omega(t)t \quad (3)$$

と与えられ, ここで,  $\mu(x)$  は双極子モーメント関数で,  $\mu_{m,n} = \mu_{n,m} = \int \psi_m^* x \psi_n dx$  と表す.  $E(t)$  はガウス型波形を持つ外部電場,  $t_0$ ,  $\sigma$  はそれぞれ, パルス波の中心時間, 幅である. また, チャープパルスでは振動数は  $\omega(t)$  と表され, 時間とともに変化し,  $\omega(t) = \omega_0 - \omega_1(t/T)$  と記述できる. ( $T$  は外場の照射時間, 振動数の変化は  $\omega_0$  (初期振動数)  $\rightarrow \omega_0 - \omega_1/2$  (時刻  $T$  での振動数) である.)

系の時間発展について以下の近似を行う[2]. 微小時間発展演算子  $U(\Delta t)$  を用いると

$$|\Psi(x, t_0 + \Delta t)\rangle = U(\Delta t)|\Psi(x, t_0)\rangle, \quad U(\Delta t) = U_H \cong U_V^{1/2} U_T U_V^{1/2} \quad (4)$$

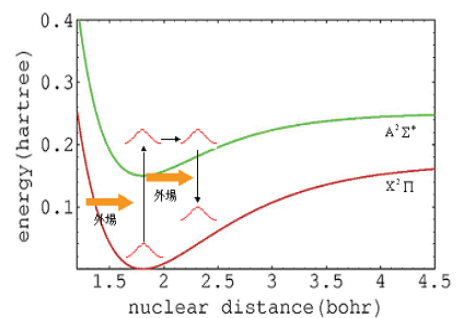


図1. 2つのエネルギー曲面  
電子基底状態( $X^2\Pi$ ), 電子励起状態( $A^2\Sigma^+$ )

となる．ここで， $U_H = \exp[-iH\Delta t/\hbar]$ ， $U_V = \exp[-i(V + H_{int})\Delta t/\hbar]$ ， $U_T = \exp[-iT\Delta t/\hbar]$ はそれぞれ微小時間発展演算子である． $|\Psi(x, t_0)\rangle$ は初期波束， $|\Psi(x, t_0 + \Delta t)\rangle$ は微小時間変化後の波束である．

本研究では，(4)式を二準位系モデルに適応し解く([1],[3])．

$H=H_0+H_{int}=T+U$ より，行列  $U$  について  $U = \begin{pmatrix} V_X & W \\ W & V_A - \hbar\omega \end{pmatrix}$  と記述され，これより

$$U_V = \exp[-iU\Delta t/\hbar] = \exp[-i(V_X + (V_A - \hbar\omega))\Delta t/2\hbar] \begin{pmatrix} A & B \\ B & A^* \end{pmatrix}. \quad (5)$$

ここで， $A = \cos\phi - i(dU\Delta t/\hbar)(\sin\phi/\phi)$ ， $B = -i(W\Delta t/\hbar)(\sin\phi/\phi)$  である．位相  $\phi$  は  $\phi = \sqrt{W^2 + dU^2} \Delta t/\hbar$ ，エネルギー差  $dU$  は  $dU = (V_X - (V_A - \hbar\omega))/2$  とした． $W$  は外場との相互作用のハミルトニアンである．

## 【結果】

### 定常波のレーザーによる状態 $X^2\Pi$ と $A^2\Sigma^+$ との rabi 振動

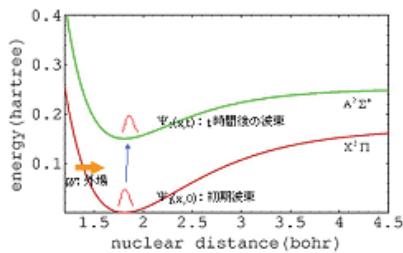


図 2. 研究概要図

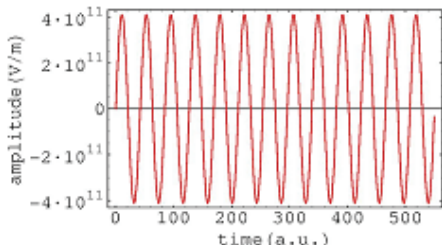


図 3. 外場の強度と時間変化

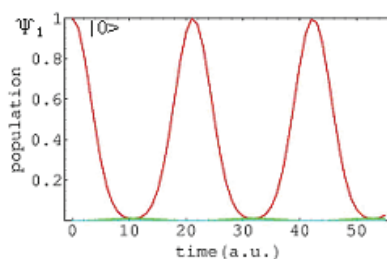


図 4.  $X^2\Pi$  における占有確率の時間変化

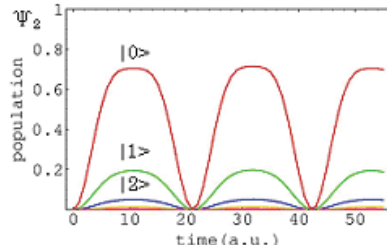


図 5.  $A^2\Sigma^+$  における占有確率の時間変化

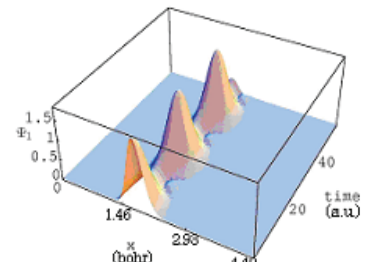


図 6.  $X^2\Pi$  における波束の時間変化

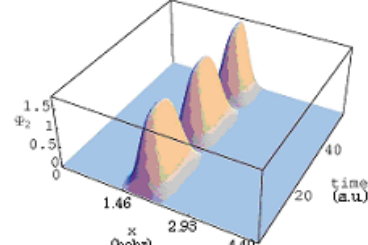


図 7.  $A^2\Sigma^+$  における波束の時間変化

上の結果は，図 3 のような外場を与え，研究概要図(図 2)に示す通りのシミュレーションを行った．図 4，図 5 に示したのは  $X^2\Pi$  ( $\Psi_1$ ) と  $A^2\Sigma^+$  ( $\Psi_2$ )，それぞれに関する占有確率である．この結果から，外場によって二つの状態間での遷移が行われていることがわかる． $X^2\Pi$  について占有確率が無くなる時間があり，そのとき  $A^2\Sigma^+$  では一番大きく  $|0\rangle$  が存在し，他の束縛状態についても，遷移がみられた．

尚，研究結果の詳細は当日報告する．

## References

- [1] B. M. Garraway, and K-A. Suominen, Rep. Prog. Phys. **58**, 365 (1995)
- [2] M. R. Hermann, and J. A. Fleck, Jr., Phys. Rev. A. **38**, 6000 (1988)
- [3] B. M. Garraway, and K-A. Suominen, Cont. Phys. **43**, 97 (2002)
- [4] S. Noorizadeh, G. R. Pourshams, J. M. Structure. **678**, 207 (2004)