

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

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

Vibrational Coherent Control of Metal Di-Carbonyl using Shaped Mid-IR Pulses
(Photon-Nano Science, Tokyo Univ. of Agri. & Technol.¹, Dept. of Applied Physics,
Tokyo Univ. of Agri. & Technol.²) J. Tayama¹, K. Enomoto², and S. Ashihara²
E-mail: ashihara@cc.tuat.ac.jp

【序】 レーザーコヒーレント制御とは、波形制御した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し、波動関数同士の干渉を操作する技術のことである。¹ これまで、電子遷移に共鳴する紫外・可視領域の光を用いたコヒーレント制御が、分子配向制御²、配向選択的解離³、波束干渉を利用した量子情報の書き込み・読み出し⁴などを対象に行われてきた。

振動遷移に共鳴する整形中赤外パルスを用いたコヒーレント制御を分子系に適用すれば、振幅と位相の制御された振動波動関数を生成し、それらの重ね合わせ状態を作ることによって、望みの座標に核波束を生成することが可能である。こうして整形中赤外パルスを用いて反応経路上に核波束を生成し、ポテンシャル面上を運動させることで、化学反応の誘起や反応経路の選択を実現することができる(図 1(a))。振動コヒーレント制御による反応制御の対象となるのは熱的に起こる反応であり、電子遷移を利用した場合の光化学反応とは異なる反応を対象にすることができる。

振動コヒーレント制御を用いて反応の誘起や経路の選択を実現するには、振動波動関数の位相と振幅を制御する技術の確立が不可欠である。本研究では、整形中赤外パルスによりヘキサン中のジカルボニル金属錯体、Rhodium dicarbonylacetylacetonate(以降 RDC と略記する。また、図 2 に分子構造を示した。)、および Iridium dicarbonylacetonate を 2 段階振動励起し、励起経路間の干渉を操作した。

【実験】 図 1(b)に実験装置の概略を示す。中赤外パルスを回折格子で周波数成分ごとに空間的に分散し、音響光学素子(AOM)で各波長成分に位相変調および振幅変調を与え、回折格子で周波数成分ごとの空間的な分散を除いて整形中赤外パルスを得た。波形整形器の振

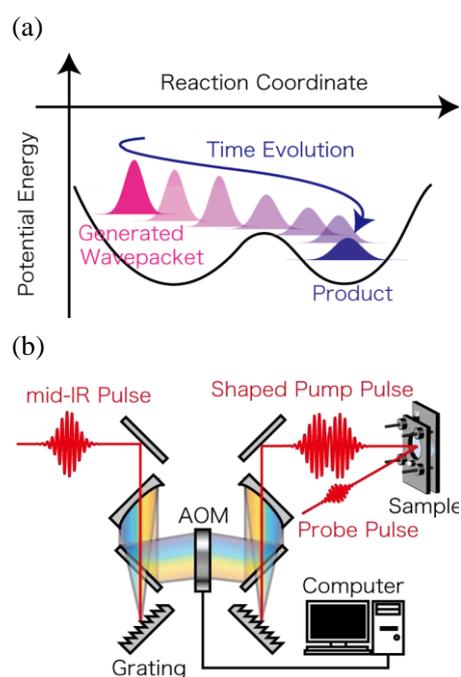


図 1(a)振動コヒーレント制御による化学反応の誘起(b)整形中赤外パルスポンプ-プローブ測定系。

幅・位相変調の波数分解能は 8.7 cm^{-1} であった。⁵
 この整形中赤外パルスを用いてポンプ-プローブ測定を行った。

【結果と考察】 図2にRDCの構造及びエネルギー準位図を示す。表記 $|i_s j_A\rangle$ は分子の固有状態を表し、 i_s および j_A はそれぞれ2つのカルボニル基の対称・反対称伸縮振動モードの $\nu=i$, $\nu=j$ 状態を表す。フーリエ限界パルスによるヘキサン中RDC

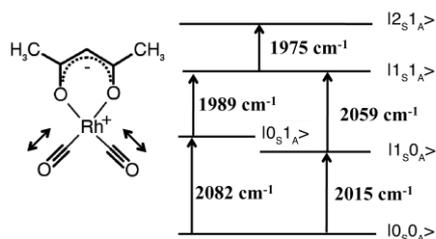


図2 RDCの構造とエネルギー準位.

分子のポンプ-プローブ信号を図3(a)に示す。図3(a)挿入図に示したように、過渡信号には2つのカルボニル基の対称・反対称モードの重ね合わせを起源とする量子ビートが観測された。

ヘキサン中RDCの $|2_s 1_A\rangle \leftarrow |1_s 1_A\rangle$ 遷移領域(1975 cm^{-1})のポンプ-プローブ信号には、コヒーレンス移動を考慮すると8経路の経路間干渉が反映される。ポンプパルスの $2059 \text{ cm}^{-1} (|1_s 1_A\rangle \leftarrow |1_s 0_A\rangle)$ 遷移にステップ状位相変調 ϕ_4 を与えたところ、図3(b)のように 1975 cm^{-1} のポンプ-プローブ信号が変調された。これは、整形した中赤外パルスにより、経路間干渉が制御されたことを意味している。

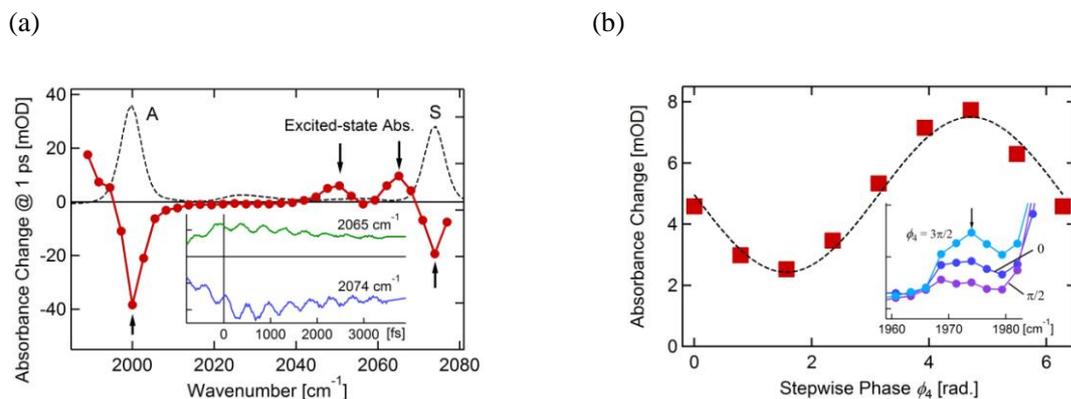


図3 (a) 遅延時間1 psにおけるヘキサン中RDCのポンププローブ信号。挿入図は 2065 cm^{-1} , 2074 cm^{-1} における過渡信号。(b) 1975 cm^{-1} にステップ状位相変調 ϕ_4 を与えた時のヘキサン中RDCのポンプ-プローブ信号(遅延時間1 ps)。挿入図は遅延時間1 psにおけるヘキサン中

【参考文献】

- ¹ H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, and K. Kompa, *Science* **288** (5467), 824 (2000).
- ² Y. Ohshima and H. Hasegawa, *International Reviews in Physical Chemistry* **29** (4), 619 (2010).
- ³ H. Ohmura, N. Saito, and M. Tachiya, *Physical Review Letters* **96** (17) (2006).
- ⁴ K. Ohmori, *Annual Review of Physical Chemistry* **60**, 487 (2009).
- ⁵ S. Ashihara, Y. Hirasawa, and K. Enomoto, *Conference on Lasers and Electro-Optics Europe(CLEO/EUROPE), CF.5.4* ((Munich, 2011)).