

水素結合系におけるプロトンの非定常状態へのレーザー制御

(金沢大理) ○山口智也、坂本功、太田靖人、長尾秀実、西川清

[序]

近年、化学反応の光制御や光分子デバイスを開発することを目的として、レーザーパルスによる量子状態を制御するための様々な方法が提案されてきた。

我々が注目している方法の1つは最適化制御法 (OCT) [1]である。OCT によって生成したパルス系列は理論的には高効率であるが、実験的に生成するには通常とても複雑な形状をしている。一方、我々はこれまで3準位系において2つの固有状態間で完全遷移を実現する誘導ラマン断熱通過法 (STIRAP法) [2]を種々の系に適用して、その有効性を明らかにしてきた。本研究ではSTIRAP法を非定常状態 (波束) への遷移の制御が可能となるように一般化した。具体的には1-メチルマロンアルデヒド分子における水素結合に関与するプロトンの運動を図1に示したモデルポテンシャルで記述し、プロトンの基底状態から励起状態への光制御シミュレーションを行った。

[方法]

STIRAP法では、パルス列は2つのレーザーパルスから構成される。ここで、外部電場 $E(t)$ は中心時間 t_i 、パルス幅 σ_i 、周波数 ω_i で表される2つのガウシアン関数の重ね合せによって次のように記述される。

$$E(t) = E_1 \cos(\omega_1 t) \exp\left[-\left(\frac{t-t_1}{\sigma_1}\right)^2\right] + E_2 \cos(\omega_2 t) \exp\left[-\left(\frac{t-t_2}{\sigma_2}\right)^2\right] \quad (1)$$

また、2状態間の遷移に重要な役割を果たす時間依存のラビ振動数 $\Omega_{ij} = \mu_{ij} E(t) / \hbar$ を導入する。我々は時間依存の Schrödinger 方程式を数値的に解き、その結果を表示するSTIRAP法のシミュレータを作成した。図2は基底状態 $|\phi_0\rangle$ から第1の励起状態 $|\phi_1\rangle$ への完全な遷移の例である。[3]

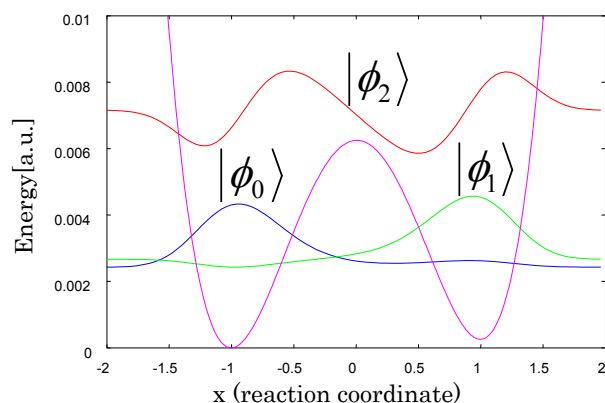


図1 非対称水素結合モデルポテンシャル

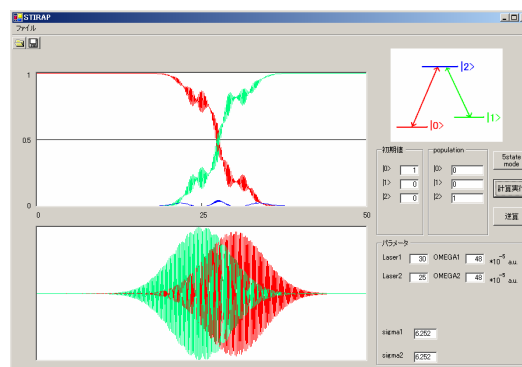


図2 STIRAP 法による励起制御

我々は 5 準位からなるモデルシステムにおいて、3 個の固有状態の重ねあわせで非定常状態の生成を試みる。一般に STIRAP 法において、いくつかの固有状態の重ねあわせで任意の非定常状態への完全遷移を実現するには、外部レーザーパラメーター {ラビ振動数、パルス間隔、パルス幅など} を適切に変化させる必要がある。

本研究では、基底状態 $|\phi_0\rangle$ から重ね合わせ状態 $C_1|\phi_1\rangle + C_2|\phi_2\rangle + C_3|\phi_3\rangle$ への完全遷移を考えるが、ここでは中心時間 t_i およびラビ振動数 Ω_{ij} を変化させることで、例えば $C_1:C_2:C_3=1:1:1$ のような占有確率の比率を実現する数値制御シミュレーションを行う。

図 3 はそのシミュレーションの実行及び結果の表示画面である。

我々は、最適化アルゴリズムを用いることで、任意の重ね合わせ状態を実現させるためのパルス（レーザーパラメーター）を導出する方法を確立させた。本研究の方法は、最適化制御法のように高効率な遷移が期待できるにもかかわらず、パルス系列は STIRAP 法に基づいているため、それほど複雑にはならないという利点がある。これにより我々は任意の目的状態を STIRAP 法で実現させることが可能になり、レーザーによる量子状態制御の新たな可能性を明らかにした。

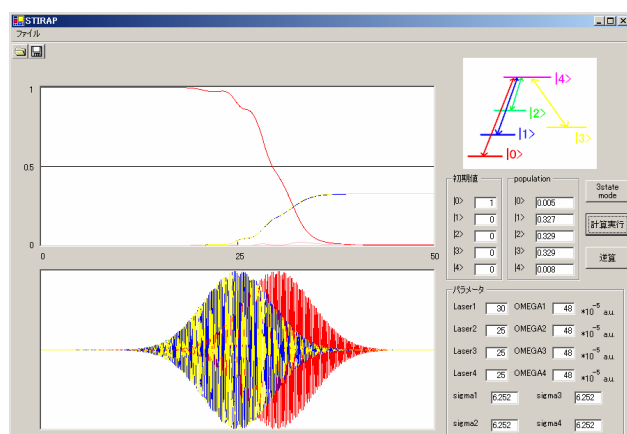


図 3 $C_1:C_2:C_3=1:1:1$ のパルス列及び Population

[References]

- [1] W. Zhu, J. Botina, H. Rabitz, J. Phys. Chem. **108** (1998) 1953.
N. Došlić, O. Kühn, J. Manz, and K. Sundermann, J. Phys. Chem. **102** (1998) 9645.
Y. Fujimura, L. Gonzalez, K. Hoki, J. Manz, Y. Ohtsuki, Chem. Phys. Lett. **306** (1998) 1.
- [2] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, K. Bergmann, J. Phys. Chem. **92** (1990) 5363.
K. Bergmann, H. Theuer, and B. W. Shore, Rev. Modern Phys. **70** (1998) 1003.
- [3] Y. Ohta, T. Yoshimoto, K. Nishikawa, Chem. Phys. Lett. **316** (2000) 551.