

## 1P100 誘導ラマン断熱通過と多光子過程の競合に関する理論的研究

(金沢大院自然) ○杉森公一, 伊藤智哉, 小谷公子, 長尾秀実, 西川 清

**【序】** 外場としての光, 特にレーザーパルスによる分子状態制御(機能・構造・物性など)には励起状態の理論的検討が必要である。誘導ラマン断熱通過法(STIRAP 法)[1]は, 先ず目的の終状態と中間状態の準位間に相当するエネルギーを持つレーザーを照射し, 次に始状態-中間状態間に同様にレーザーを照射することで理論的に全ポピュレーションを完全遷移させる方法である。特に STIRAP によるレーザーパルスはレーザーパラメータ (強度・幅・振動数・偏光など) の依存性が小さく, 照射するパルスが多少変わっても選択的な遷移を可能としている。これまでに, 特定の高振動状態への励起, 水素結合系におけるプロトンの運動制御, 光学異性体やシストランス幾何異性体の転換などに適用し興味深い結果を得ている[2]。

STIRAP は電磁場と分子系との相互作用を考える際に, 電磁場を古典的な電場として記述する半古典的方法を取っており, 遷移過程で引き起こされる電子励起状態は単にコヒーレンスな状態の重ね合わせにより表現される。始状態から終状態までの遷移過程間には, 経由するいくつかの準位の存在を前提としているが, 強いレーザーパルスを当てた際の多光子吸収(MPA), それに伴うイオン化過程のような励起状態は考慮されていない。

近年ではレーザー技術の進展により, 非常に強い強度を持つレーザーパルスの利用が可能となった。分子系と光の相互作用において, その光強度が大きくなるにつれ, 分子系で新しい非線形光過程が表れる。即ち, 原子・分子の分極・変形, 飽和, 離散準位間の遷移, 多光子過程やイオン化過程, above-threshold ionization(ATI)などの大変興味深い現象が解析されてきている。

そこで本研究では, 半古典的理論の枠組みで, 光反応制御に関わる励起状態化学の新規の理論モデル構築を行うため, 強いレーザー光による多光子吸収やイオン化を含めるモデルを構築し, 分子系におけるラマン過程(STIRAP)と多光子吸収(MPA)過程の競合をシミュレーションにより解析する。

**【理論】** 多光子吸収によるイオン化過程に関する研究は, 原子系から分子系まで幅広く行われている。Mercouris らは, 時間依存 Schrödinger 方程式(TDSE)を数値的に解き, 多光子吸収について幾つかの原子系での計算結果を報告した[3,4]。本研究では, 半古典論で次のような TDSE

$$i\hbar \frac{d}{dt} \Psi(t) = (H_0 + V(t))\Psi(t) \quad (1)$$

$$\Psi(t) = \sum C_n(t) |n\rangle \quad (2)$$

を解く。ここで  $H_0$  は分子系のハミルトニアン,  $V(t) = -\mu E(t)$  は電場と分子の双極子の相互作用であり,  $\mu$  は遷移双極子モーメント演算子である。なお, 状態ベクトルは  $H_0$  (無摂動の分子系) の固有状態で展開する。具体的なシミュレーションは, 電場  $E$  の強度と他のレーザーパラメータを変化させ, 各固有状態のポピュレーション  $|C_n(t)|^2$  を計算する。そして電場  $E$

の強度を変化させ STIRAP と MPA の競合過程を解析・検討する。ただし、光と原子の相互作用と分子のクーロン相互作用が同程度になり分子系の固有状態が定義できないような超強光子場の領域( $E > 10^9$  V/cm)は取り扱わない。

### 【計算に用いるモデル】

本研究で取扱う系としては、下図に示す Morse oscillator で表されたモデルと実際の二原子分子を考える。

#### (1) モデル計算(Morse oscillator) :

Morse oscillator の離散的な状態を用いたモデルにより数値シミュレーションを行い、STIRAP と MPA の競合関係を考察する。また、高振動励起状態の生成についての詳細な解析を行う。

#### (2) 二原子分子( $H_2$ , OH)への適用 :

*ab initio* 法を用いて断熱ポテンシャル (電子状態) を計算し、数値的に分子の振動状態を求め上述の方法に適用させる。そしてレーザーパルスの電場強度を変えて STIRAP と MPA の分岐比を求める。可能ならば多光子過程による分子の解離を含むようなシミュレーションも試みる。

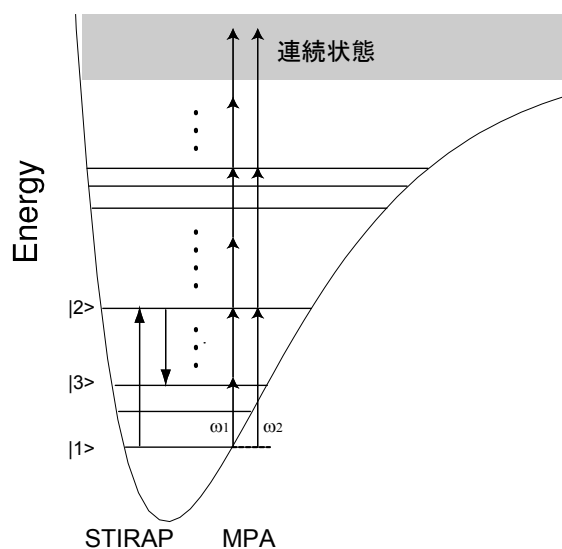


Fig. Morse oscillator における STIRAP, MPA の関係  
(ここで $\omega_1, \omega_2$ はレーザーパルスの角振動数である)

### 【参考文献】

- [1] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, K. Bergmann, *J. Chem. Phys.* **92**, 5363(1990); K. Bergmann, H. Theuer, B. W. Shore, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1003(1998).
- [2] Y. Ohta, T. Yoshimoto, K. Nishikawa, *Nonlinear Opt.* **26**, 137(2000); Y. Ohta, T. Bando, T. Yoshimoto, K. Nishi, H. Nagao, K. Nishikawa, *J. Phys. Chem A* **105**, 8031(2001).
- [3] Th. Mercouris, Y. Komninos, S. Dionissopoulou, C. A. Nicolaides, *Phys. Rev. A* **50**, 4109(1994).
- [4] C. A. Nicolaides, S. Dionissopoulou, Th. Mercouris, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **29**, 231(1996).