

1P104 レーザーパルスを用いたキラル分子モーターの量子制御に関する理論的研究
 (東北大院理¹・トロント大²) 八巻昌弘¹, 保木邦仁², 藤村勇一¹

【序】物質の扱える最小単位である分子を組み立てて機能をもたせることは、物質科学の究極の目的の一つである。近年の技術の進歩により特定の機能発現をねらった分子設計が可能になってきており、様々な分子機械の研究が進められている [1]。分子モーターを設計するにあたって、動力に化学反応・熱・光といった選択肢がある。我々はレーザーパルスにより駆動する(回転)分子モーターのモデルを提案する。レーザーパルスは時間相関の外場として魅力的で、非常に短時間での運動制御が期待できる。

外の系に対する仕事を考える前に、まずモーター分子だけの孤立系を想定し、分子内部回転の方向制御を試みる。電場に円偏光を用いる場合、分子内部回転の方向は電場の回転方向(実験室座標系)で決定される [2,3]。本研究では分子内座標系で回転方向を揃えることを目指すので、直線偏光を用いることとする。

【理論】電場との相互作用を可能にするために回転部が双極子モーメントを持つものを選ぶ。図 1a が計算に用いた分子 2-oxa[2.2.1]bicycloheptan-7-ol である。水酸基 -OH の分子内部回転を座標 α とした。分子パラメータは ab initio 分子軌道法で求めた (Gaussian98 : B3LYP / 6-31+G(d,p))。図 1b は座標 α に対するポテンシャルエネルギー関数 $V(\alpha)$ で分子のキラリティが反映されている。図 1c は双極子モーメント関数 $\mu(\alpha)$ で x 成分の変位は $\cos \alpha$, y 成分の変位は $\sin \alpha$ で近似できる。

波束を目的状態まで励起させるパルスは局所制御理論により設計した。

$$\mathbf{E}(t) = -2A \operatorname{Im} \langle \psi(t) | \hat{W} \boldsymbol{\mu} | \psi(t) \rangle \quad (1)$$

\hat{W} は目的状態を射影する演算子, A は電場エネルギーを抑制するパラメータである。状態は次の Schrödinger 方程式に従う。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = [\hat{H}_M(\alpha) - \boldsymbol{\mu}(\alpha) \cdot \mathbf{E}(t)] |\psi(t)\rangle \quad (2)$$

\hat{H}_M は分子ハミルトニアンである。

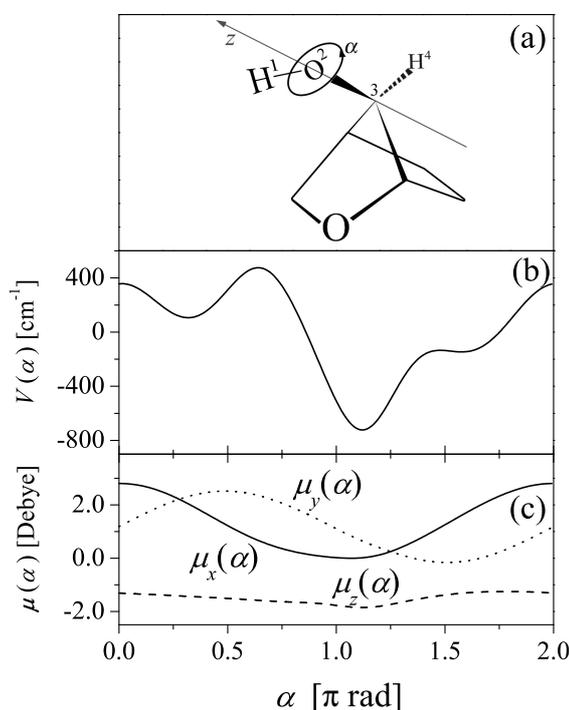
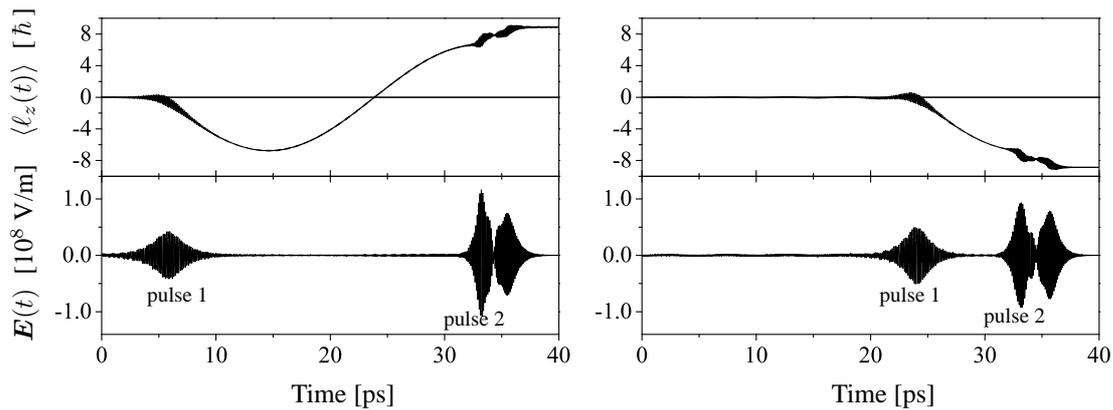


図 1: (a) モデル分子と回転座標 α の定義 (b) 分子内部回転ポテンシャル関数 $V(\alpha)$ (c) 双極子モーメント関数 $\mu(\alpha)$



(a) $|+m\rangle$ をターゲットにした場合

(b) $|-m\rangle$ をターゲットにした場合

図 2: (上) 角運動量期待値 $\langle \ell_z(t) \rangle$ (下) 局所制御電場 $E(t)$

【結果】 始状態の波束は振動基底状態 $|0\rangle$ にあり、目的状態は角運動量固有状態 $|\pm m\rangle$ とした。正方向の回転 $|+m\rangle$ と逆方向の回転 $|-m\rangle$ それぞれの場合について角運動量期待値 $\langle \ell_z(t) \rangle$ を計算して回転を評価した。

図 2 に a 正回転, b 逆回転を目的状態にとった場合の角運動量期待値 $\langle \ell_z(t) \rangle$, および局所制御電場 $E(t)$ を示した。始めの状態 $n = 0$ から $n = 12$ までの経路は重要ではないので省略した。図 2 は $n = 13, 14$ に pulse1 によってコヒーレンスが生成し、角運動量期待値が生成している段階である。得られる角運動量の符号は続く pulse2 の時間差のみに依存していることが分かる。この制御結果は次の式で理解することができる。

$$\langle \ell_z(t_2) \rangle \approx (m + 1)\hbar \sin(\theta(t_1) + \Delta\omega \Delta t) \quad (3)$$

ここで t_1, t_2 は pulse1, pulse2 の入射時刻, $\theta(t_1)$ は pulse1 によってコヒーレンスが生成した準位間の位相差をあらわし, $\Delta\omega$ は pulse1 でコヒーレンスが生成した準位間のエネルギー差, Δt は pulse1 と pulse2 の遅延時間である。この制御結果より、直線偏光レーザーパルスを用いれば, pulse1, pulse2 の遅延時間 Δt を調節することで任意の方向の回転が得られるといえる。

このモデルでは計算のために小さな分子を用いたが、実際に仕事をすることができる分子モーターはこれよりはるかに大きい。従って高次の相互作用(分極率)の項が寄与してくる可能性が考えられる。当日は分極率を駆動原理に考慮したモデルについても発表予定である。

1. J.-P. Sauvage, editor *Molecular machine and motors*. Springer, Berlin, 2001.
2. K. Hoki, M. Yamaki, and Y. Fujimura. *Angew. Chem. Int. Ed.*, **42**, 2976-2978, 2003.
3. K. Hoki, M. Yamaki, S. Koseki, and Y. Fujimura. *J. Chem. Phys.*, **118**, 497-504, 2003.