

2P23

非共鳴パルスによる動的シュタルク効果を用いた IBr の選択的光解離の最適制御

○田代 智大, 吉田 将隆, 大槻 幸義, 河野 裕彦

東北大院理

tomohiro.tashiro.p1@dc.tohoku.ac.jp

【序】非共鳴パルスを用いれば、振動数やフランク・コンドン領域などの制約を受けないため、分極相互作用を用いて目的の状態を直接制御できる。回転ラマン散乱を利用した分子の整列制御は代表的な応用例である。一方、光化学反応においては、動的シュタルク効果による非断熱遷移の制御が期待され、IBr の選択的光解離を目的に制御実験[1]が報告された。そこで本研究は、非線形最適制御シミュレーション[2]を適用し、最適な制御機構を明らかにする。

【理論】IBr の光解離を図 1 に示す 3 電子状態(X , B , Y) で記述する。①共鳴ポンプパルスにより B 状態に振動波束を生成する。これに②最適な非共鳴レーザーパルス $E(t)$ を照射し、 Br または Br^* の一方を選択的に生成する。解離確率を求めるため、ターゲット演算子

$$W = \int dr |Dr\rangle w(r) \langle Dr|, D = B \text{ または } Y \quad (1)$$

を導入する。ここで、 $w(r)$ は解離とみなす核間距離を指定する重み関数である。最適なパルスは目的時刻 t_f における期待値 $F = \langle \psi(t_f) | W | \psi(t_f) \rangle$ を最大にするパルスと定義される。変分法を用いて導出されるパルス設計方程式とシュレーディンガー方程式を連立して解き、最適パルス $E(t)$ と解離ダイナミクスを求める。

【結果】準備評価として、初期時刻 $t=0$ に B 状態にフランク・コンドン波束が生成したと仮定し、 Br または Br^* の解離確率を最大化する。図 2 に示すように、最適解は異なる中心時刻をもつ単一の超短パルスとして求められた。図 2 挿入図に各パルスに対応した解離確率を示す。 Br^* への解離を促進するパルスは、図 3 に示すように波束がポテンシャル交差点を通過する前に照射される。通過の際は、電場により変形された光誘起ポテンシャル面と波束は互いに逆向きに動く。これにより、波束の相対速度が増加し、透熱ポテンシャルの乗り移りの確率が減少し、 Br^* への解離確率が増加すると解釈できる。

【参考文献】

[1] B. J. Sussman *et al.*, *Science* **314**, 278 (2006).

[2] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, *Phys. Rev. A* **77**, 033414 (2008).

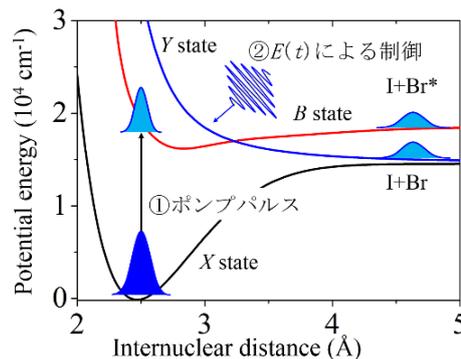


図 1 IBr の透熱ポテンシャル

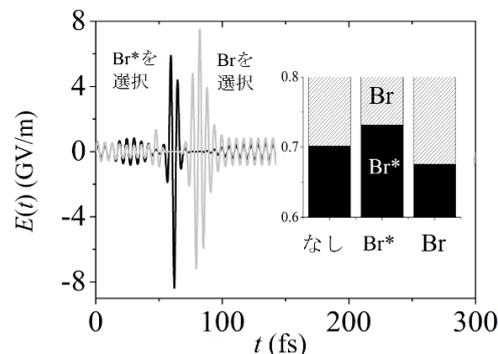


図 2 最適パルスと解離確率

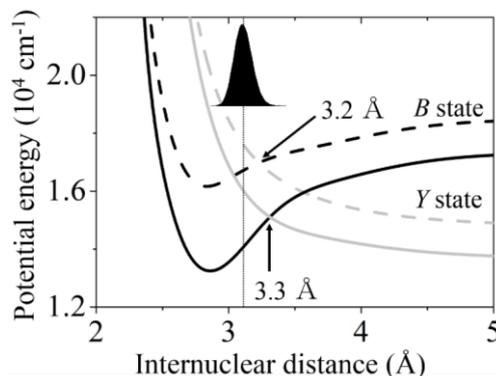


図 3 光誘起ポテンシャル(実線)とパルス照射時の B 状態上の波束の位置