

位相ロック 2 色強レーザー場によるキラル分子の 3 次元配向制御理論

(東大院理・東大 CINQIE) ○ 竹本典生, 山内 薫

【序】非常に強い電場を用いると、気体分子の自由回転を抑制し、分子の向きを空間に対して固定することができる [1, 2]。例えば、非常に強い静電場によって、異核 2 原子分子の永久電気双極子を電場ベクトルの方向に配向させることができる。また、この分子を直線偏光レーザーの光電場の中においた場合には、分子軸が電場の偏向軸に沿って配列する。このような分子配向・配列法は、主に直線分子などの対称性の高い分子を対象にして研究が進んできた。一方、これまでに行われたもっとも対称性の低い分子に対する完全配向制御としては、楕円偏光レーザー場と静電場を組み合わせ、 C_{2v} 対称性分子の C_2 軸を配向し、他の二つの慣性主軸を配列させた実験がある [3]。

本研究では、任意の対称性をもつ分子に適用可能な分子配向法を提案する。この方法によって、 C_1 対称性分子に固定された 3 つのデカルト座標軸を全て同時に、空間固定座標系に対して配向させることができる。この配向方法に基づいて、キラル分子のラセミ混合物から一方の鏡像異性体を抽出する新たな光科学的方法が開発されると期待される。

【モデル】今回提案された配向法においては、 $(\omega, 2\omega)$ -2 色の直線偏光レーザー光を、偏光方向が斜交するように重ね合わせて得られるレーザー電場を用いる。合成された電場ベクトルが周期 $\tau = 2\pi/\omega$ の間に描く軌跡の例を図 1 に示す。これらの軌跡は、点群対称操作のうち、電場偏向面に関する鏡映操作についてのみ対称である。このような電場と C_1 対称性分子との相互作用は、分子を電場に対して相対的に回転させる操作について対称性をもたない。よって、我々がここで用いる 2 色レーザー電場は、任意の対称性の分子を 3 次元的に配向するのに必要かつ十分な異方性を提供する。

我々は、スケールパラメータとして 2 色レーザー光強度 $I_{\text{tot}} = \frac{c\epsilon_0}{2} ([F^{(\omega)}]^2 + [F^{(2\omega)}]^2)$ 、また、電場の異方性を表す 3 つの無次元パラメータとして、2 色楕円度 $e = ([F^{(\omega)}]^2 - [F^{(2\omega)}]^2) / ([F^{(\omega)}]^2 + [F^{(2\omega)}]^2)$ 、偏光交差角 θ 、および相対位相 ϕ を用いて、2 色レーザー電場を特徴づける。ここで、 $F^{(\omega)}$ 、 $F^{(2\omega)}$ は、それぞれ、 ω -、 2ω -周波数成分の電場強度を表す。さらに、分子は分極率および超分極率をとおして、2 色レーザー光から電場の 2 次と 3 次に比例する実効的ポテンシャルを感じるとする [4]。2 次のポテンシャルが対角化されるように空間固定座標系 XYZ を定義することにより、分子の分極率主軸 ξ 、 η 、 ζ から構成される分子固定座標系 $\xi\eta\zeta$ が、 XYZ 、 $X(-Y)(-Z)$ 、 $(-X)Y(-Z)$ 、または $(-X)(-Y)Z$ のいずれかに、およそ一致することが示される。そこで、 $\hat{\xi}$ 、 $\hat{\eta}$ 、 $\hat{\zeta}$ 基底の \hat{X} 、 \hat{Y} 、 \hat{Z} 基底に対する射影成分の分子集団に関する統計平均 $\{\langle \hat{X} \cdot \hat{\xi} \rangle, \langle \hat{Y} \cdot \hat{\eta} \rangle, \langle \hat{Z} \cdot \hat{\zeta} \rangle\}$ によって、分子の配向度を定量化した。分子固定軸が空間固定軸に完全に配向している場合、これらの値は ± 1 をとり、全く配向していない場合には 0 をとる。

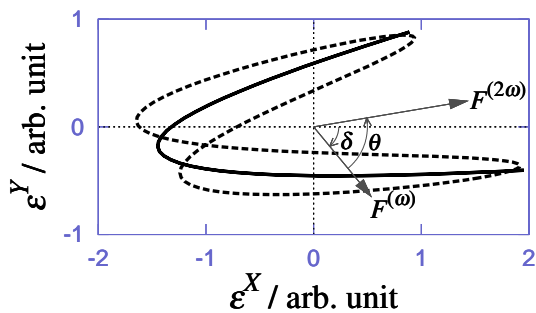


図 1 2 色レーザー電場の時間経過に沿った軌跡。相対位相 ϕ が 0 の場合 (実線) と、 $\pi/4$ の場合 (破線) を示す。 $e = -1/2$ 、 $\theta = \pi/3$ 。

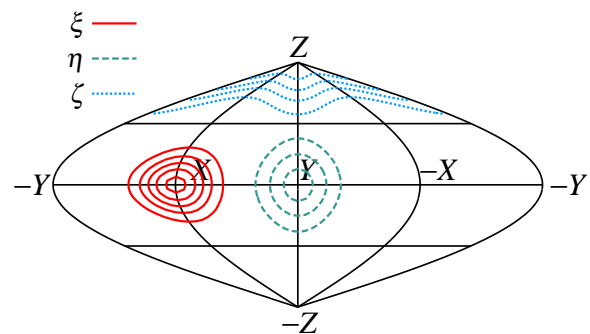


図 2 分子の分極率主軸 ξ, η, ζ の空間固定座標系 XYZ における角度分布。初期回転温度 0.1K。 $I_{\text{tot}} = 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、 $e = -1/2$ 、 $\theta = \pi/3$ 、 $\phi = 0$ 。

我々は、キラル分子のひとつ、L-アラニン ($\text{NH}_2\text{-C}^*\text{H}(\text{CH}_3)\text{-COOH}$) について数値計算を行い、今回の新しい分子配向法の有効性を検証した。ここでは、分子の回転周期に比べて十分に長いレーザーパルスを考え、自由回転状態に平衡分布していた分子集団が、電場中の準定常的な配向状態へ断熱的に移行すると仮定した。

【結果と考察】 2色レーザー光強度 $I_{\text{tot}} = 1.0 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、異方性パラメータ $e = -1/2$ 、 $\theta = \pi/3$ 、 $\phi = 0$ によって特徴づけられる2色レーザー光を、回転温度 0.1 K のL-アラニン分子集団に照射した場合について、空間固定 XYZ 座標系における分子固定軸 ξ 、 η 、 ζ の角度分布を図2に示す。この図から、 ξ 、 η 、 ζ 軸がそれぞれ、 $+X$ 、 $+Y$ 、 $+Z$ 軸方向に配向し、3次元分子配向が達成されていることが確認できる。

図3に、2色レーザー光強度 I_{tot} に対する配向度の依存性を示す。電場の異方性パラメータは、 $e = -1/2$ 、 $\theta = \pi/3$ 、 $\phi = 0$ に固定した。初期回転温度 0 K および 0.1 K の場合ともに、 I_{tot} を増加させると、最も分極率の大きい主軸 ξ については $I_{\text{tot}} = 4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 付近で、また他の2つの主軸 η 、 ζ についても $I_{\text{tot}} = 7 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ 付近で急激に配向度が向上することがわかる。さらに I_{tot} を増加させると、初期回転温度が 0 K の場合、分子固定座標軸が空間固定座標軸に対して $\xi \rightarrow X$ 、 $\eta \rightarrow Y$ 、 $\zeta \rightarrow Z$ へと完全に配向された状態に近づくことがわかる。初期回転温度が 0.1 K の場合には、励起状態にも確率分布があるので、0 K の場合に比べて達成される配向度は低くなる。

さらに、 $I_{\text{tot}} = 1.0 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、 $\theta = \pi/3$ 、 $\phi = 0$ において、2色楕円度 e を変化させながら配向度を求めた。この結果、2色楕円度が $-1 < e \lesssim 0.24$ の領域では、 $\xi \rightarrow X$ 、 $\eta \rightarrow Y$ 、 $\zeta \rightarrow Z$ へと配向した。そして、 $0.24 \lesssim e < 1$ の領域においては、 $\xi \rightarrow X$ 、 $\eta \rightarrow -Y$ 、 $\zeta \rightarrow -Z$ へと配向することがわかった。このことは、 ω -、 2ω -成分の電場強度を調節することによって、電場の異方性を変化させ、分子配向の方位を制御できることを示している。さらに、各分子固定軸の配向は広範囲の2色楕円度にわたって達成されており、本研究で提案する方法が高い安定性をもつことが示された。

本研究で提案されたレーザー電場は、電場偏向面に対して鏡面对称性をもつ。このような電場の中では、ひとつのキラル分子のL-体とD-体は、互いに鏡像関係にある配向に固定される。したがって、別々に配向された一対の鏡像異性体に対して、一方のみを効率良く解離またはイオン化させるように、別のレーザー光をさらに照射することにより、他方の鏡像異性体だけをラセミ体から抽出することが可能となる。

【まとめ】 位相ロックされた $(\omega, 2\omega)$ -2色レーザー場を用いて、任意の対称性をもつ分子の配向を実験室固定座標系に対して一意に固定する新しい方法を提案した。キラル分子L-アラニンに対する計算の結果、分子集団の回転温度を 0.1K 程度まで冷却すれば、レーザー光強度 $10^{12}\text{-}10^{13} \text{ W/cm}^2$ において、広範囲の2色楕円度に対して、高い配向度が達成されることが示された。

【参考文献】

- [1] H. Stapelfeldt and T. Seideman, Rev. Mod. Phys. **75**, 543 (2003).
- [2] T. Seideman and E. Hamilton, Adv. At. Mol. Opt. Phys. **52**, 289 (2005).
- [3] H. Tanji, S. Minemoto and H. Sakai, Phys. Rev. A **72**, 063401 (2005).
- [4] T. Kanai and H. Sakai, J. Chem. Phys. **115**, 5492 (2001).

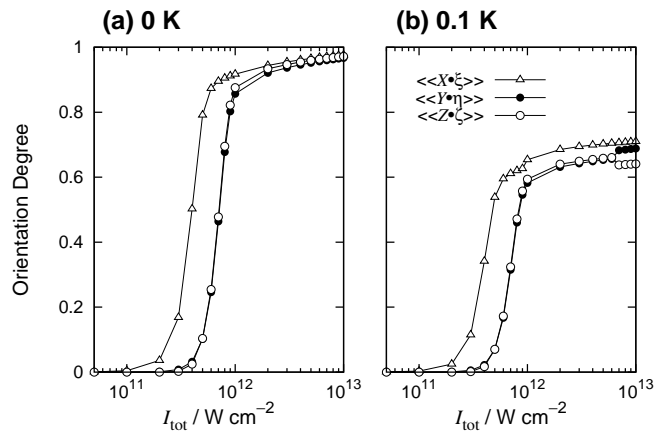


図3 2色レーザー光強度に対する配向度の依存性。初期回転温度 0 K の場合 (a) と、0.1 K の場合 (b)。 $e = -1/2$ 、 $\theta = \pi/3$ 、 $\phi = 0$ 。