

## 振動回転遷移を用いる N<sub>2</sub> 分子整列パルスの 最適制御シミュレーションによる数値設計

(東北大院理\*, JST-CREST\*\*) ○中上和幸\*, 水本義彦\*,\*\*, 大槻幸義\*,\*\*

### 【序】

分子整列は量子ダイナミクス研究において重要な機構の一つである。分子を空間的に整列させることで、高次高調波の発生効率を高める制御、立体配置操作を通じた化学反応制御など多くの応用が期待されている。レーザーパルスを分子サンプルに照射するとある程度の確率で分子を整列させることができる。しかし応用段階に至るまでの十分な精度はまだ実現されていない。

本発表では誘起双極子を含む最適制御シミュレーション法<sup>[1,2]</sup>を使って、非共鳴二光子遷移を利用した窒素分子の整列制御機構を解析する。ここでは回転状態に加え振動状態にも着目し、(1)振動状態間遷移を通じた分子整列制御、(2)振動回転状態の同時制御、を目指す。

### 【理論】

窒素分子(N<sub>2</sub>)の分子内振動および回転（回転周期  $T_{rot} = h/2B_0$ ； $B_0$ は振動基底状態の回転定数）を考慮する。分子は直線偏光パルス  $E(t)$  と分極  $\alpha$  を通して相互作用する。核間距離を  $r$  とする。電場の偏光軸と分子軸の成す角を  $\theta$  とし、時間依存の量子リウヴィル方程式は以下のように表わされる。

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = -\frac{i}{\hbar} \left[ L - \frac{1}{2} \left\{ \Delta\alpha(r) \cos^2 \theta + \alpha_{\perp} \right\} E^2(t), \rho(t) \right]$$

$L$ は分子振動・回転を表すリウヴィリアン、 $\rho(t)$ は密度演算子、 $\Delta\alpha(r)$ は核間距離に依存する分子軸平行方向と垂直方向の分極率の差、 $\alpha_{\perp}$ は分子軸垂直方向の分極率を表す。電場の偏光軸方向への分子整列をターゲットとする。ここでは  $\cos^2 \theta$  の期待値を用いて整列の達成度を表す。また同時に振動状態についても特定の状態をターゲットとする。制御時間においてこれらの同時ターゲット期待値を最大とするものが最適パルスである。パルス設計方程式を解きながら系の時間発展シミュレーションを繰り返し、最適パルスを求める。

シミュレーションには多光子遷移を制御するために我々が提案した対称分割繰り返し計算法を用いる<sup>[1]</sup>。また、振動回転状態の同時計算で増大する計算時間を抑えるために新規に開発した並列アルゴリズムを用いる<sup>[3]</sup>。制御時間軸での計算分割を利用することで繰り返し計算あたりの時間を短くすることができる。これらの単調収束性により、特定の収束閾値まで数値的に正確なシミュレーション結果を得ることができる。

## 【結果および考察】

制御時間 8.38 ps (1 回転周期)にて終時刻に振動量子数  $v=1$  の状態かつ分子整列をターゲットとした計算結果を示す。このターゲットを表現する演算子を  $\mathbf{X}$  とする。振動回転基底状態を初期状態とする。図 1(a)は計算により得られた最適制御パルス、(b)は  $\mathbf{X}$  と整列達成度  $\cos^2\theta$  の期待値および  $v=0$  と  $v=1$  の分布の時間変化を示す。制御時刻  $t=0.5T_{rot}$  付近で分子整列の達成度  $\langle\cos^2\theta\rangle$  が高い値を示している。このときに  $v=0$  と  $v=1$  の振動状態分布反転が起こされている。制御時間後半では振動回転の同時ターゲット期待値  $\langle\mathbf{X}\rangle$  は  $\langle\cos^2\theta\rangle$  とほぼ一致しており、制御終時刻において 0.948 の高い制御達成度を示している。

図 1(c)は  $v=0$ 、(d)は  $v=1$  での各回転状態分布 (回転量子数  $j$ ) の時間発展を表す。 $t=0.5T_{rot}$  付近において複数の回転状態が同時励起されている。分子整列を実現している回転状態の重ね合わせを保ったまま振動状態を励起している。

$t=0.5T_{rot}$  は分子整列ハーフリバイバルの時刻であり、このタイミングでの振動状態制御が振動回転同時制御において重要である。

図 2 は図 1(a)の制御パルスのパワースペクトルを表す。振動状態  $v=0,1$  のエネルギー差  $2330\text{ cm}^{-1}$  間隔での強いピークおよびサイドバンドが見える。強いピーク周波数での誘導ラマン過程により振動励起が起こり、比較的弱いサイドバンドとの誘導ラマン過程によって回転状態が逐次励起されて分子整列を達成している。

## 【参考文献】

- [1] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, *Phys. Rev. A*, **77**, 033414 (2008).
- [2] K. Nakagami, Y. Mizumoto, and Y. Ohtsuki, *submitted to Phys. Rev. A*.
- [3] K. Nakagami and Y. Ohtsuki, *in preparation*.

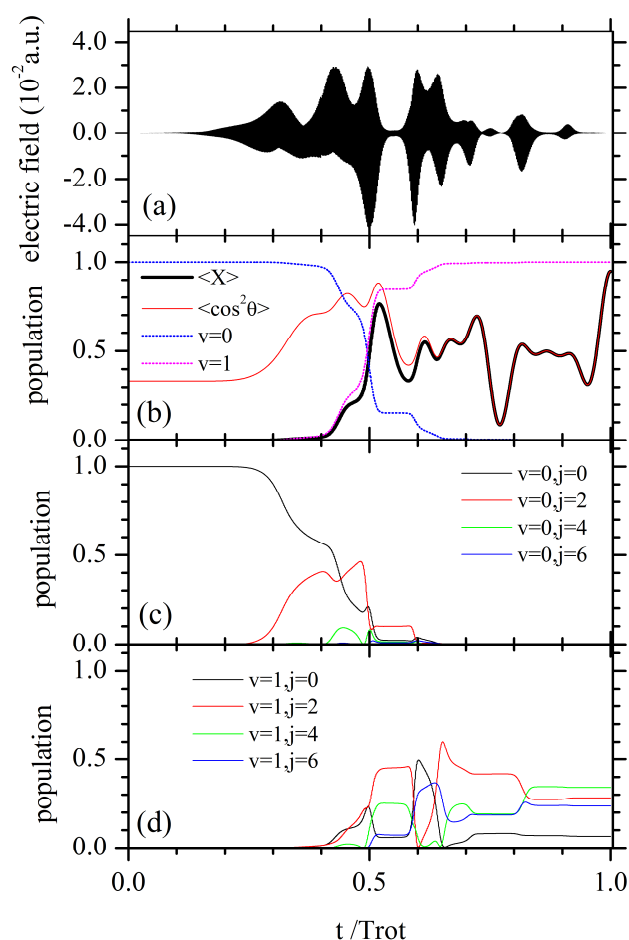


図 1 振動状態  $v=1$  かつ分子整列の制御結果

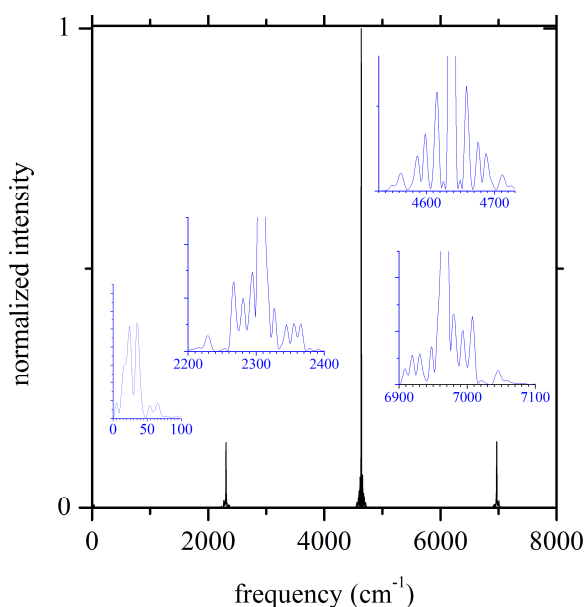


図 2 制御パルスのパワースペクトル