

最適偏光パルスによる分子の振動回転状態の任意制御

(東北大院・理¹, JST-CREST²) ○阿部弘哉¹, 中上和幸¹, 大槻幸義^{1,2}, 河野裕彦¹

【序】

分子の回転状態を適当に励起することにより分子の整列・配向を制御することができる。分子の整列・配向制御は化学反応における立体効果の直接的な測定や電子構造の解明、高次高調波発生(HHG)制御などへの幅広い応用が期待できる。本研究では、最適制御理論を用いて分子の振動回転状態を任意に制御する楕円偏光レーザーパルスを数値設計し、制御機構を解析する。

【理論】

窒素分子を考える。無極性分子であるから、パルス電場 $\mathbf{E}(t)$ と分極 $\boldsymbol{\alpha}(r)$ を通して相互作用し、球座標におけるハミルトニアンは

$$H = -\frac{\hbar^2}{2\mu} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial}{\partial r} \right) + V(r) + \frac{|\mathbf{J}|^2}{2\mu r^2} - \frac{1}{2} \mathbf{E}(t) \cdot \boldsymbol{\alpha}(r) \mathbf{E}(t) \quad (1)$$

とかける。ここで $V(r)$ は振動のポテンシャル、 \mathbf{J} は角運動量演算子、 μ は換算質量である。楕円の長・短軸を空間固定の X, Y 軸とし、パルス電場を

$$\mathbf{E}(t) = \begin{pmatrix} E_X(t) \\ E_Y(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \text{Re } \boldsymbol{\varepsilon}(t) \\ \text{Im } \boldsymbol{\varepsilon}(t) \end{pmatrix} \quad (2)$$

と表し、複素電場 $\boldsymbol{\varepsilon}(t)$ を最適化により数値設計する。ただし、パルスの進行方向は Z 軸とする。分子軸と Z 軸のなす角を θ_z 、方位角を φ_z とする。波長は、現在最も超短パルス整形技術の進んだ Ti:Sapphire レーザーの波長 800nm 付近を仮定する。

目的汎関数を次のように定義する。

$$F = \langle \boldsymbol{\psi}(t_f) | W | \boldsymbol{\psi}(t_f) \rangle + 2 \text{Re} \left[\frac{i}{\hbar} \int_0^{t_f} dt \langle \boldsymbol{\xi}(t) | \left(i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H \right) | \boldsymbol{\psi}(t) \rangle \right] \quad (3)$$

ここで、 t_f は制御時刻（終時刻）、 W はターゲット演算子、 $|\boldsymbol{\xi}(t)\rangle$ はラグランジュ未定乗数、 $|\boldsymbol{\psi}(t)\rangle$ は核の波動関数である。第1項は目的とする状態への達成度を表す。第2項は系が運動方程式を満たすことを要請するためのものであり、恒等的に0である。(3)式の変分をとることにより最適化条件が導かれる。最適制御シミュレーションには、非線形相互作用に対しても単調収束が保証された対称分割アルゴリズムを用いる^[1]。

【結果と考察】

制御の例として窒素分子を Z 軸方向に整列させることを考える ($W = \cos^2 \theta_z$)。整列度合を定量化するために、ターゲット期待値を $\langle \cos^2 \theta_z \rangle (t) \equiv \langle \boldsymbol{\psi}(t) | \cos^2 \theta_z | \boldsymbol{\psi}(t) \rangle$ と定義する。

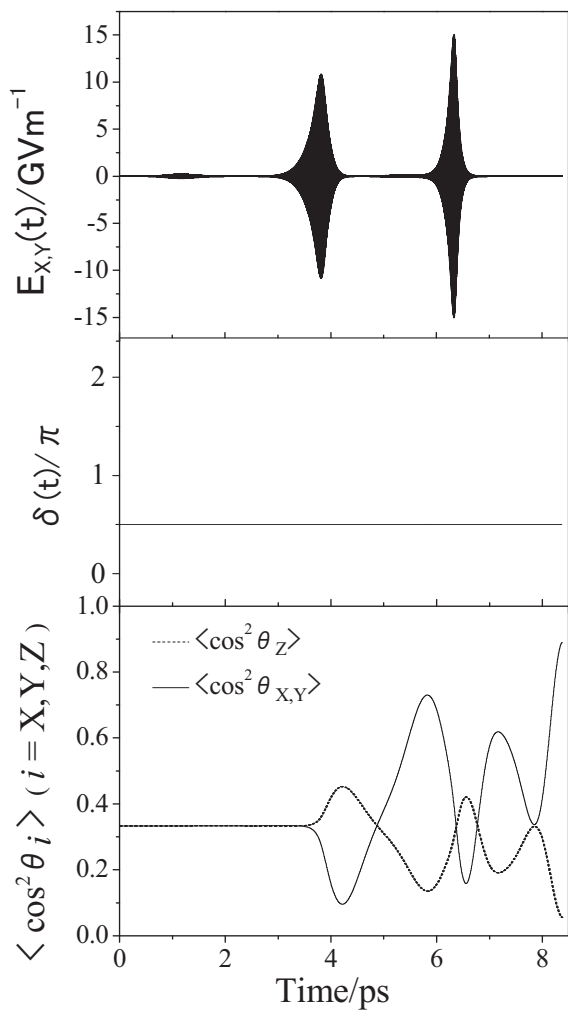


図 1. (上)最適偏光パルス
(中) $E_x(t), E_y(t)$ の位相差 $\delta(t)$
(下) 分子軸と各軸がなす角度の
余弦の時間発展

得られた最適パルスを図 1 に示す. E_x, E_y は全く同じ包絡線関数をもつ. 時間依存の位相差から, 最適パルスは円偏光パルス列であることがわかる.

終時刻(8.4ps)でのターゲット期待値から, 制御達成度は 0.89 であった. 図 2 に示した回転波束からも, 分子が Z 軸方向に高い確率で整列していることがわかる. 今回用いたアルゴリズムの収束の様子を図 3 に示す. 繰り返し計算回数に対して, 目的汎関数が単調に収束している.

図 4 には振動の分布の時間発展を示す. 制御時間内において, 振動励起は殆ど誘起されていない. すなわち, 回転波束の制御だけに着目した場合, 振動励起を介さない回転ラマンポンピングが最適解になっている. 振動・回転の同時制御に関して現在, 研究を進めている.

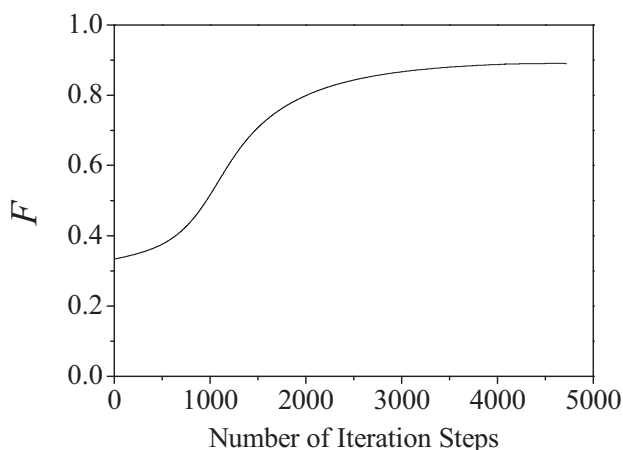


図 3. 目的汎関数の収束

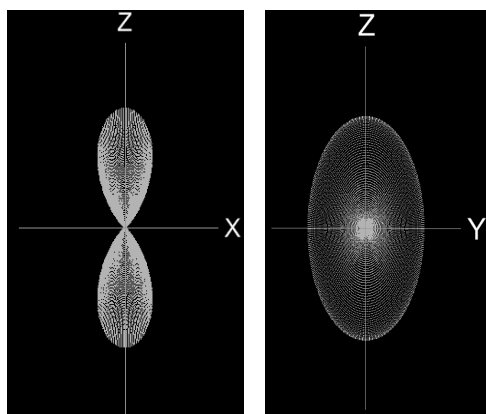


図 2. 終時刻における分子軸の角度分布
(XZ および YZ 平面への射影)

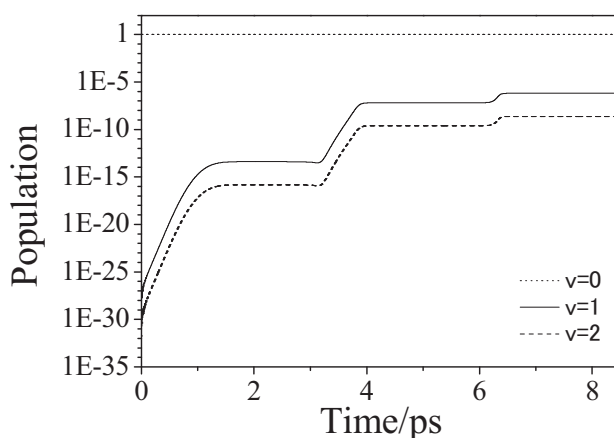


図 4. 振動の分布の時間発展

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