

偏光レーザーパルスによる空間固定系に対する  $N_2$  分子の核波束制御

(東北大院・理) ○阿部弘哉, 大槻幸義, 河野裕彦

## 【序】

分子の回転波束を自在に操作することができれば, 分子を任意の方向に整列させることができ, 電子構造の解明や化学反応の制御, 及び高次高調波発生制御への応用が期待できる. また分子の振動回転状態を量子ビットとすることで, 新たな量子情報処理への応用も期待される[1]. 高強度の超短パルスによる非断熱相互作用を通して回転波束を制御し, パルス照射後の電場のない状況で整列を実現することが, 応用上は重要となる. Leibscher らは剛体回転子モデルを用いて, 1つの超短パルスによる整列制御には限界があるが, 2つ以上の超短パルス列を用い回転波束のリバイバルのタイミングに合わせて“キック”することで, 整列の度合いが高まることを示した[2]. 一方, 回転波束の一般的な制御を行うためには, 偏光レーザーパルスを用いる必要がある. Daems らは, 偏光条件を固定した楕円偏光パルスを用いて, パルス照射後に  $CO_2$  分子を直交する2つの方向に交互に整列させる実験を行った[3].

本研究では  $N_2$  分子の振動回転波束の制御を通して, 空間固定系で特定の方向に整列した状態を実現するパルスを, 偏光条件まで含めて最適化し数値設計する. シミュレーションには, 非線形相互作用を含む系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[4]を用いる. 得られた最適偏光パルスから核波束ダイナミクスの解析を行う.

## 【理論】

$N_2$  分子は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

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

と表せる. 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,  $\mu$  は換算質量である. 空間固定の座標系を図1のようにとり, パルス電場を

$$\mathbf{E}(t) = E_x(t) \mathbf{e}_x + E_y(t) \mathbf{e}_y \quad (2)$$

と表す. ここで  $\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y$  はそれぞれ  $X, Y$  方向の単位ベクトルである. レーザーパルスの進行方向は  $Z$  軸である. 電場の  $X, Y$  成分である,  $E_x(t), E_y(t)$  をそれぞれ最適化し, 最適偏光パルスを数値設計する. また, 分子軸と  $Z$  軸のなす角を  $\theta_z$ , 方位角を  $\phi_z$  とする. 振動状態と回転状態というエネルギーのオーダーが大きく異なる状態を同時に制御するために, Ti:Sapphire レーザーの波長 800 nm 付近の波長領域で, 非共鳴二光子遷移を利用する.

制御時刻  $t_f$  における制御達成度を定量化するために, 以下のターゲット期待値を導入する.

$$F = \langle \psi(t_f) | W | \psi(t_f) \rangle \quad (3)$$

ここで,  $W$  は目的とする状態を表すターゲット演算子,  $|\psi(t)\rangle$  は核の波動関数である.  $F$  を最大にする最適パルスは, 運動方程式の拘束条件の下での変分法により求められる.

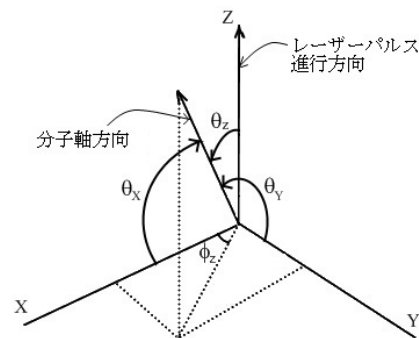


図1. 空間固定座標系

## 【結果と考察】

振動・回転の異なった自由度を同時制御する場合、自由度ごとの制御目的はしばしば互いに相反する。そのような例として、 $N_2$ 分子を電場進行方向（空間固定 $Z$ 軸方向）に整列させ、かつ、振動基底状態 $v=0$ から $v=1$ へ分布反転させるターゲットを取り上げる。以下のシミュレーションでは、制御目的をターゲット演算子

$$W = \cos^2 \theta_z |v=1\rangle\langle v=1| \quad (4)$$

で表すことにする。分子が $Z$ 軸方向に整列するほど、分子とパルス電場との相互作用は弱くなり、振動波束の制御が難しくなる。そこで電場の偏光条件を最適化することで、相反する制御目的を達成するための機構を解析する。なお、シミュレーションでは温度 $T=0\text{ K}$ 、制御時間を1回転周期 $T_{\text{rot}}$ と仮定する。

シミュレーション結果を図2に示す。制御パルス電場の $X$ 成分と $Y$ 成分はいずれもサブパルスから成るが、形は大きく異なる。すなわち、偏光条件が時間とともに変化する最適パルスが得られた。サブパルスの位置は $E_x, E_y$ ともほぼ同じで、回転波束の $Z$ 軸方向の分布が最小になるタイミングと一致する。例えば、 $t/T_{\text{rot}}=0.2$ 付近では、回転波束の $Y$ 軸方向の分布が大きくなっているが、これに対応して $E_y$ 強度が高くなっている。一方、 $t/T_{\text{rot}}=0.5$ 付近では、回転波束の $X$ 軸方向の分布が大きく、 $E_x$ 強度が高い。回転波束の $Z$ 軸方向への広がりを低く抑え、その間に振動状態を制御し、最後の $t/T_{\text{rot}}=0.8$ 付近のサブパルスで、回転波束の分布をターゲットに近づけている。なお、 $E_x$ と $E_y$ を入れ替えても同じ制御達成度が得られる。

上で述べた制御機構の妥当性を検証するために、図3に、 $Z$ 軸方向への分子整列だけをターゲットとした場合の結果を示す。図2の結果とは大きく異なり、円偏光パルス列が最適解として得られた。

振動・回転の異なった自由度を同時制御する場合、パルス電場のベクトルとしての性質である偏光条件が、重要な役割を果たすことが分かった。

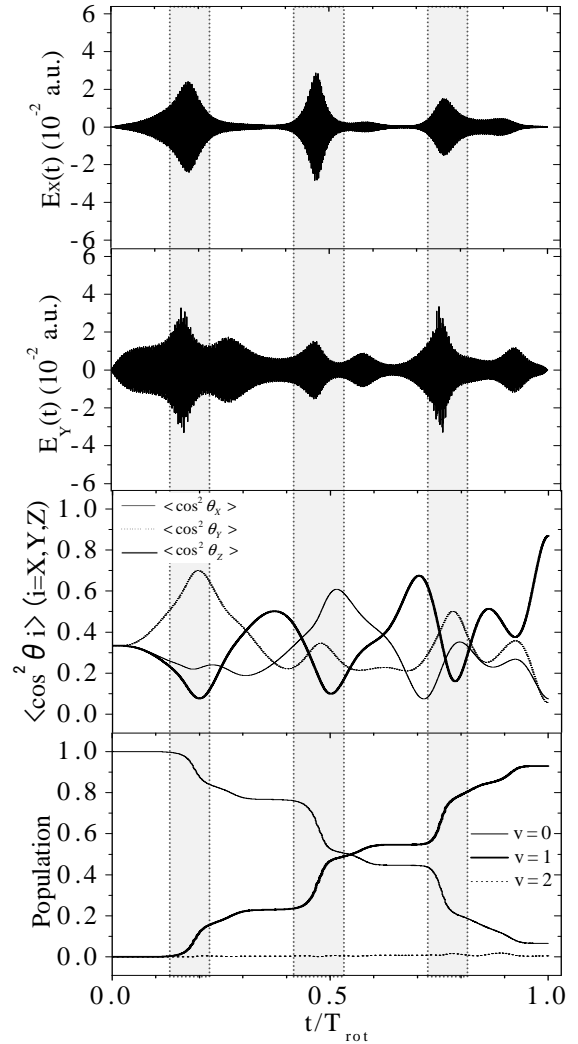


図2. 振動回転波束同時制御

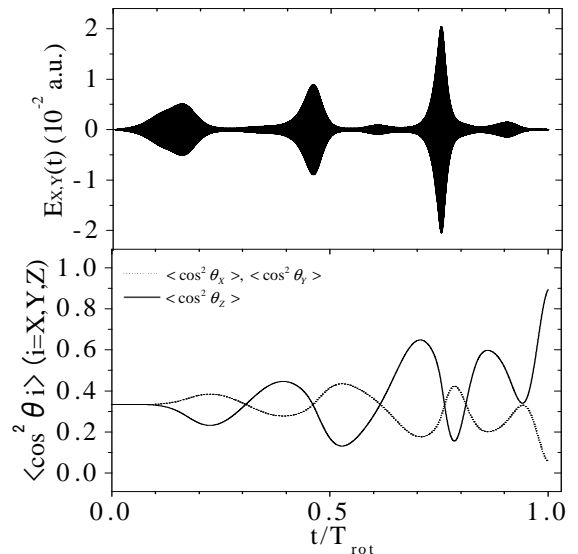


図3.  $Z$ 軸方向への整列制御

[1] D. DeMille, Phys. Rev. Lett. **88**, 067901 (2002)

[2] M. Leibscher, I.Sh. Averbukh, and H. Rabitz, Phys. Rev. A. **69**, 013402 (2004)

[3] D. Daems, S. Guérin, E. Hertz, H.R. Jauslin, B. Lavorel, and O. Faucher, Phys. Rev. Lett. **95**, 063005 (2005)

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