

3P109

## 800 nm +400 nm レーザーパルスを組み合わせた

### 動的配向制御の最適化シミュレーション

(東北大院・理) ○中嶋克宏, 阿部弘哉, 大槻幸義, 河野裕彦

【序】 分子を空間的に整列・配向させることで、化学反応における立体効果の解析や高次高調波の発生制御など、様々な応用が期待されている。分子整列・配向の制御法として断熱的な方法と非断熱的な方法がある。前者は静電場、または回転周期より十分長い時間幅のレーザーを照射し、分極ポテンシャルを誘起することにより電場の存在下で整列・配向を保持する。一方、後者は回転周期よりも短い時間幅のレーザーパルスで照射し、回転波束を生成し、分子を整列・配向させる。コヒーレンスが保たれている限り、周期的なタイミングで回転波束の局在化(リバイバル)がおり、電場が存在しない条件での整列・配向が可能となる。以下では非断熱条件下での配向制御に絞って議論を行う。

整列制御とは異なり、配向制御を行うには空間的に非対称な相互作用が必要である。しかし、回転運動の周期はレーザー電場の振動周期に比べて非常に長いため、多くの場合、非対称な相互作用は時間平均化され消えてしまう。そこで、静電場を利用して対称性を破ることで、配向制御を行った実験が報告されている[1,2]。しかし、静電場は配向制御以外のダイナミクスに影響を与える可能性があり応用上望ましくない。

一方、基本波とその第二高調波を組み合わせたレーザーにより、静電場を用いずに配向させる手法が理論的に提案されている。昨年、800 nm と 400 nm の2つの波長領域から成るレーザーパルスを用いて、わずかではあるが CO 分子を配向制御した実験が報告された[3]。これを踏まえ本研究では、3次の分極相互作用まで取り入れた最適制御シミュレーションを行い、800 nm + 400 nm 波長領域での異核二原子分子(CO)の配向制御機構を数値的に解析する。

【理論】 CO 分子の基底電子状態における振動と回転(回転周期  $T_{\text{rot}}=8.64$  ps) について考える。レーザー電場  $\mathbf{E}(t)$  と相互作用する分子のハミルトニアンを次のように表す。

$$\hat{H} = \hat{H}_0 - \boldsymbol{\mu}(r) \cdot \mathbf{E}(t) - \frac{1}{2} \tilde{\boldsymbol{\alpha}}(r) \cdot \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t) - \frac{1}{6} \tilde{\boldsymbol{\beta}}(r) \cdot \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t) \quad (1)$$

ここで、 $\hat{H}_0$  は電場との相互作用を含まないハミルトニアン、 $r$  は核間距離、 $\boldsymbol{\mu}(r)$  は永久双極子モーメント、 $\tilde{\boldsymbol{\alpha}}(r)$  は分極率、 $\tilde{\boldsymbol{\beta}}(r)$  は超分極率である。電場  $\mathbf{E}(t)$  は直線偏光であるとする。

偏光軸と分子軸のなす角を  $\theta$  とし配向度合を次のような  $\cos\theta$  の期待値で評価する。また、整列度合は  $\cos^2\theta$  の期待値で評価する。

$$F = \langle \psi(t_f) | \cos\theta | \psi(t_f) \rangle \quad (2)$$

$F$  の電場  $\mathbf{E}(t)$  に関する変分をとることにより、 $F$  を最大化するような最適電場を求める。ここで、 $t_f$  は制御終時刻、 $|\psi(t)\rangle$  は核の波動関数である。最適制御シミュレーションには、非線形相互作用を含む場合でも単調収束が保証された対称分割アルゴリズム[4]を用いる。

【結果と考察】 配向制御シミュレーションの結果を示す。温度 0 K、 $t_f = 2T_{\text{rot}}$  とした。図 1(a)は最適制御電場、図 1(b)は  $\cos\theta$ 、 $\cos^2\theta$  の期待値、図 1(c)は回転量子数  $J$  が偶数[奇数]である状態の分布の総和の時間変化を示す。終時刻において  $F=0.85$  の配向度合が得られた。図 2 の強度スペクトルから、最適制御電場には 800 nm と 400 nm を中心とする成分が多数含まれることが分かる。これらの振動数成分は  $J=0$  と  $J=1$  のエネルギー差に相当する間隔で等間隔に現れており、回転状態を励起する多数の誘導ラマン過程(図 3)に対応している。配向制御に必要な奇数の回転量子数を持つ状態は、電場との 3 次の相互作用により生成する(図 3(b))。また、最適制御電場は主に 2 つのパルスで構成されており、配向度合が回復するタイミングに合わせてパルスを照射することで配向度合を高めている。回転波束のリバイバルにより、パルス照射後も周期的に高い配向度合が得られている。

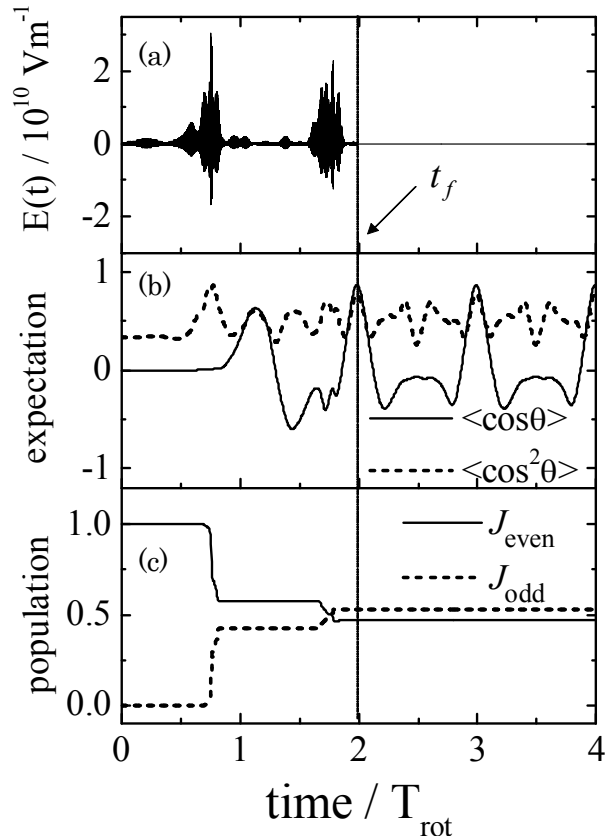


図 1. CO 剛体回転子の配向制御シミュレーション

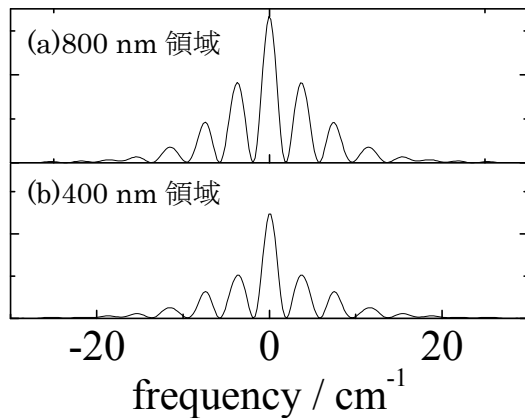


図 2. 最適制御電場の強度スペクトル  
横軸は中心波長(a)800 nm,(b)400nm  
からの差を表す

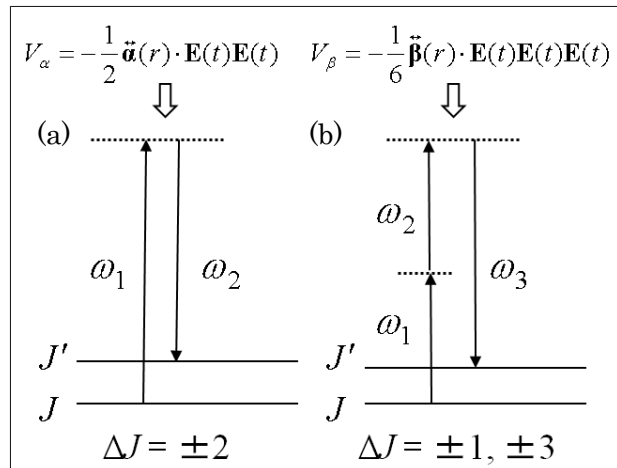


図 3. 誘導ラマン過程による回転励起

- [1]A. Goban *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 013001 (2008).
- [2]O. Ghafur *et al.*, *Nat. Phys.* **5**, 1225 (2009).
- [3]S. De *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 153002 (2009).
- [4]Y. Ohtsuki and K. Nakagami, *Phys. Rev. A.* **77**, 033414 (2008).