

CO 分子配向制御におけるレーザーパルスの最適化：  
 整列を経由する 2 段階機構

(東北大院・理) ○中嶋克宏, 阿部弘哉, 大槻幸義, 河野裕彦

【序】分子や電子のダイナミクスを研究する上で、分子の向きをそろえることは重要である。気相における通常の実験では分子の向きはランダムであり、分子の向きに依存する効果は空間的に平均化され失われてしまう。分子を整列・配向させることができれば、分子固定系での実験が可能になる。なお、図 1 に 2 原子分子を例に示したが、分子の角度分布を非等方にするを整列制御 (図 1(a))、さらに向きまでそろえることを配向制御 (図 1(b)) とよぶ。

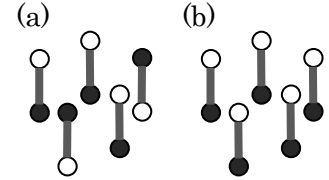


図 1 2 原子分子の(a)整列 (b)配向の古典的な描像

気体分子の整列制御法として、直線偏光の超短レーザーパルスと誘起双極子モーメントとの相互作用を利用する手法がある。この場合、分子軸がレーザーの偏光方向に平行 (整列した状態) になるように力が働く。この手法により等核二原子分子などを整列制御させることで、波動関数イメージングを含むさまざまな応用が報告されている[1]。

一方、配向制御の場合、分子を一方向に向けるために、空間的に非対称な相互作用が必要である。従来静電場が多く用いられてきたが、静電場は配向制御以外のダイナミクスにも影響を与える可能性があり応用上望ましくない。近年、800 nm の基本波とその第二高調波を組み合わせた非対称なレーザーパルス (図 2) により、わずかではあるが CO 分子を静電場を用いずに配向制御した実験が報告された[2]。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 CO 分子の配向制御機構を数値的に解析する。

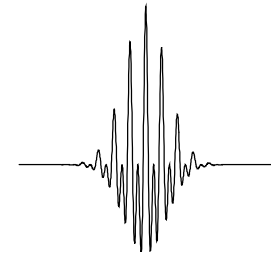


図 2 非対称レーザーパルスの波形

【理論】CO 分子を剛体回転子 (回転周期  $T_{\text{rot}} = 8.64$  ps) で近似する。直線偏光レーザー電場(1)

$$\mathbf{E}(t) = \boldsymbol{\varepsilon}_{800}(t) \cos \omega t + \boldsymbol{\varepsilon}_{400}(t) \cos 2\omega t \quad (1)$$

との相互作用を考える。ここで、 $\boldsymbol{\varepsilon}_{800}(t)$ 、 $\boldsymbol{\varepsilon}_{400}(t)$  はそれぞれレーザー電場の 800 nm, 400 nm 成分の包絡線関数である。搬送周波数  $\omega$  についてサイクル平均をとると、全ハミルトニアンは(2)式で与えられる。

$$H = BJ^2 - \frac{1}{4} \boldsymbol{\alpha} \cdot [\boldsymbol{\varepsilon}_{800}(t) \boldsymbol{\varepsilon}_{800}(t) + \boldsymbol{\varepsilon}_{400}(t) \boldsymbol{\varepsilon}_{400}(t)] - \frac{1}{8} \boldsymbol{\beta} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}_{800}(t) \boldsymbol{\varepsilon}_{800}(t) \boldsymbol{\varepsilon}_{400}(t) \quad (2)$$

ここで、 $B$  は回転定数、 $J$  は角運動量演算子、 $\boldsymbol{\alpha}$  は分極率、 $\boldsymbol{\beta}$  は超分極率である。偏光方向と分子軸のなす角を  $\theta$  とし配向度合を(3)式のような  $\cos \theta$  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。

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

ここで、 $t_f$  は制御終時刻、 $|\psi(t)\rangle$  は回転波動関数である。(3) 式の  $F$  に極大値を与えるレーザー電

場が配向制御に最適な電場である。レーザー電場  $E(t)$  における  $F$  の第一変分から、電場設計方程式が導かれる。これを数値的に解き、最適電場とダイナミクスを同時に求める方法を最適制御シミュレーションとよぶ。本研究では、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[3]を用いる。

【結果と考察】CO 分子の配向制御を目的にした最適制御シミュレーションの結果を図 3 に示す。温度 0 K、制御終時刻  $T_{\text{rot}}$  とした。図 3(a)には最適電場の包絡線関数、図 3(b)は  $\cos^2\theta$ ,  $\cos\theta$  の期待値の時間変化を示す。終時刻において高い配向度合 ( $F=0.92$ ) が得られた。最適電場は主に 2つのパルスから成る。最初のパルスが照射されると  $\cos^2\theta$  の期待値が高まる。つまり分子が整列した状態(図 1(a))になる。再び整列度合いが高まるタイミングで、2つ目のパルスが照射されることで分子は配向する。

この結果をもとに半値全幅 83 fs の 2つのガウスパルス(図 4 挿入図)を用いて解析した。時刻 0 のパルスは 800 nm パルス(ピーク強度 15 GV/m)であり最適電場と同じく整列にのみ寄与する。時刻  $\tau$  のパルスは 800 nm + 400 nm の非対称パルス(両成分ともにピーク強度 20 GV/m)

であり分子を配向させることができる。パルス遅延時間  $\tau$  を変化させながら配向度合の最大値を計算した(図 4)。その結果、非対称パルスの入射時の整列度合が高いほど得られる配向度合も高くなることが分かった。なお、800 nm パルスの代わりに同強度の非対称パルスで計算しても図 4 とほぼ同じ結果が得られた。以上から分子整列を経由する機構が配向制御に重要であると考えられる。

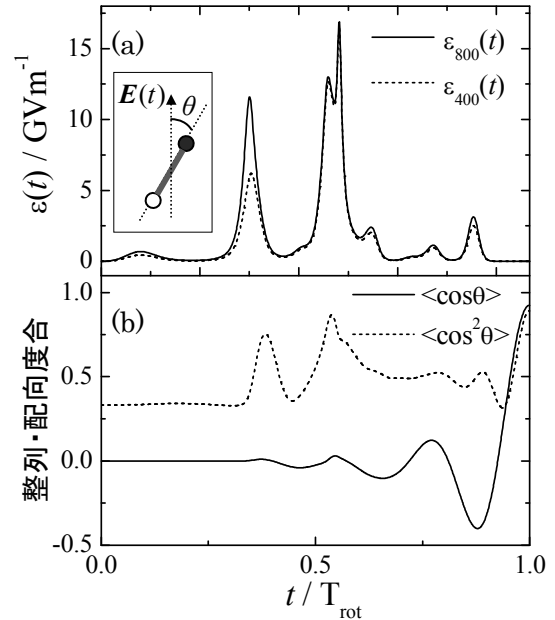


図 3 (a) 最適電場の包絡線関数  
(b) 整列・配向度合

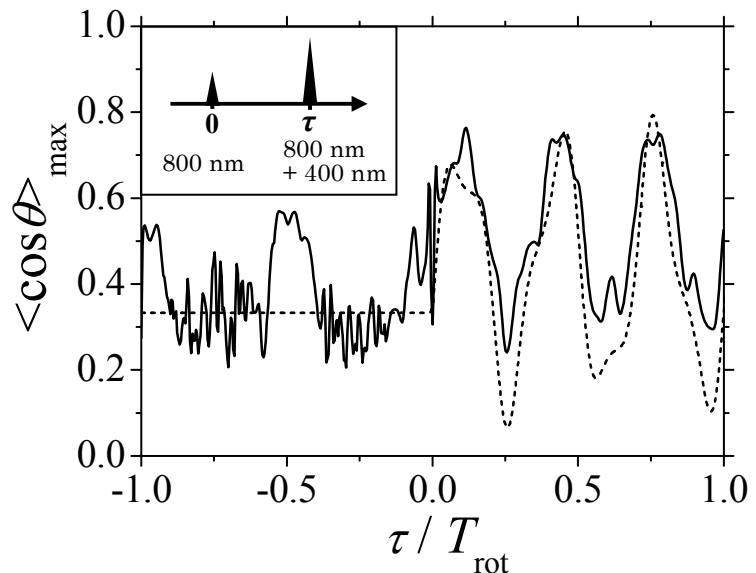


図 4 実線： $\tau$  に対する配向度合の最大値  
破線：非対称パルス入射時の整列度合

- [1] J. Itatani, P. Corkum *et al.*, *Nature* **432**, 867 (2004).
- [2] S. De *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 153002 (2009).
- [3] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, *Phys. Rev. A.* **77**, 033414 (2008).