

## 超短レーザーパルスを用いた分子整列・配向制御における周波数ネットワーク機構

(東北大院・理) 中嶋克宏, 阿部弘哉, ○大槻幸義

【序】分子回転による平均化を除き, 分子固定座標系でのダイナミクスを調べるためには分子を整列・配向させる必要がある. 実際, 化学反応制御や分子(電子)構造解明など様々な応用が考えられている. 制御法に関しては, 回転周期と制御電場の時間幅の関係から, 断熱・非断熱的な方法(またはそれらの組み合わせ)に分類できる. 断熱法では静電場や長時間の非共鳴レーザーパルスが使われ, 分極ポテンシャル中に整列・配向した回転状態を生成する. この状態は, 制御電場を遮断すると一緒に失われる. 一方, 非断熱法では非共鳴の超短レーザーパルスにより回転波束を生成する. 回転波束の周期的な運動(リバイバル)を利用することで, 電場照射後に分子を整列・配向できるため近年着目されている.

2原子(直線)分子の整列に関しては, 単一の超短レーザーパルス照射による制御の限界が理論・実験的に知られている[1, 2]. そのため, 複数のパルスをどのように照射するか, 種々の方法が議論されている. 例えば, 回転波束の部分的リバイバルのタイミングに合わせたパルス照射(スキューミング蓄積法)[1], (ブランコ揺らしに似た)整列度合いの変化が最大のタイミングでパルスを照射する方法[3], 回転周期ごとに繰り返しパルスを照射する方法[4]などが提案されている. しかし, 「同様に有効な制御法がいくつも存在する理由」, すなわち, これら制御法の背景にある一般的なルールは知られていない. 一方, 分子の向きまで考慮する配向制御においては, 2原子や直線分子においても低い達成度しか報告されていない. レーザー電場の偏光ベクトルと分子軸のなす角を $\theta$ とし,  $\cos\theta$ の期待値で配向度合いを表すとすると, 2009年(非断熱制御)および2010年(断熱制御)の報告例では, いずれも0.05程度にとどまっている[5]. 更に, 一方向だけでなく3次元整列・配向制御するにはレーザーパルスの偏光が重要になる. 断熱領域では偏光条件と制御機構に関して定性的な解釈がある. しかし, 超短レーザーパルスを用いる非断熱領域では定性的な理解も十分とは言えない.

このような研究状況を踏まえ, 本研究では制御理論に基づくシミュレーションを行い, 2原子分子における非断熱整列・配向に関する以下の3つの課題に取り組む. ①2原子分子の整列制御機構に対して, 周波数ネットワーク機構に基づく統一的な解釈の提案[6]. ②整列制御を経由する2段階配向制御法の提案[7]. ③偏光条件を陽に含んだ制御シミュレーション法の確立と応用[8].

【理論】 $N_2$ ,  $CO$ 分子をそれぞれ具体例に, 整列, 配向制御を考える. レーザーパルスの中心波長を800 nmとすると, 分子は分極率を通してレーザー電場 $\mathbf{E}(t)$ と相互作用する. ここでは直線偏光レーザーパルスによる整列制御を例に, 最適なレーザー電場の設計法を説明する. シュレーディンガー方程式は以下ようになる.

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = [H - \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t) - \frac{1}{2} \boldsymbol{\alpha} \cdot \mathbf{E}(t)\mathbf{E}(t)] |\psi(t)\rangle \quad (1)$$

ここで,  $H$ はレーザー電場に依存しない分子ハミルトニアン,  $\boldsymbol{\mu}$ ,  $\boldsymbol{\alpha}$ は双極子モーメントと分極率を表す(配向制御を考える場合は更に, 超分極率 $\boldsymbol{\beta}$ を通した相互作用も考慮する). 2原子分の

回転波束運動の周期性（リバイバル）から、ある時刻  $t_f$  での整列度合いを最大にするパルスを求めればよい。ここでは整列度合いを表す定量的な指標として次式を用いる。

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

$P$  は励起する回転状態を指定する射影演算子である。変分法を(2)式に適用することで、 $F$  を最大にするレーザー電場が従う設計方程式を導く。パルス設計方程式の数値解法には、我々が開発した単調収束が保証された反復計算アルゴリズムを用いる[9]。このように目的の実現に最適な電場を設計し、最適電場下での時間発展を計算する方法を最適制御シミュレーションとよぶ。

【結果と考察】  $N_2$  分子を考え、時刻  $t_f = (1 \text{ 回転周期})$  において、最大の整列度合いを与える制御電場を計算した。計算条件をかえても常に3つのサブパルスから成る電場が最適制御解として求められた。その際の整列度合いは 0.92 である。計算には振動自由度も含めたが、計算の結果、振動励起はみられず回転状態だけが励起された。そこで以下では回転定数  $B$  の剛体として、計算結果の意味を考える。図1には電場強度に対する強度スペクトルを示す。多数の振動数成分を含むことが分かる。振動数差に着目すると、矢印で表したように、回転ラマン遷移の条件を満たすネットワークを構成していることが分かる。この周波数ネットワークの重要性は、3つのモデルガウスパルスを用いた計算からも示すことができる。図2は、照射タイミングと整列度合いの関係を等高線図で表わす。この結果から、(近似的に)周波数ネットワーク構造が満たされるときに、高い整列度合いが現れることが確かめられる。既報告の整列制御法は、様々な近似的ネットワークの違いとして統一的に理解できる。この例から分かるように、最適制御シミュレーションは多準位系における制御機構を解析するのに有効な手法である。

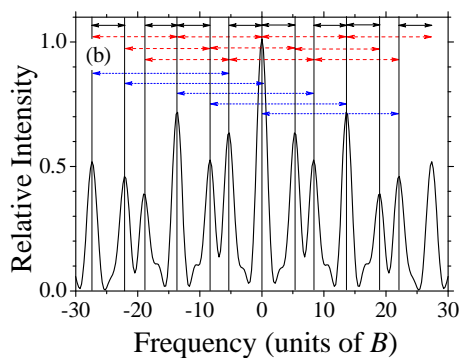


図1 サイクル平均した最適電場の二乗に対する強度スペクトル

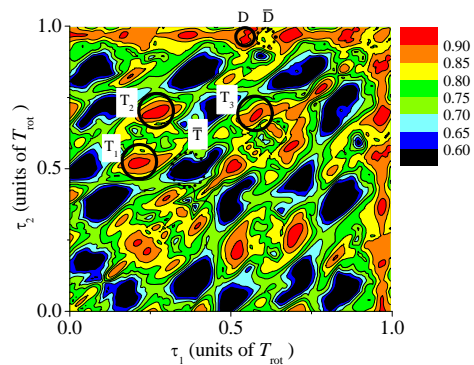


図2 3つのモデルガウスパルスにより得られた整列度合いの等高線図

- [1] M. Leibscher, I. Sh. Averbukh, and H. Rabitz, Phys. Rev. Lett. 90, 213001 (2003)
- [2] O. Ghafur, A. Rouzee, A. Gijsbertsen, W. Siu, S. Stotle, and M. Vrakking, Nat. Phys. 5, 289 (2009).
- [3] K. F. Lee, E. A. Shapiro, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A 73, 033403 (2006).
- [4] J. P. Cryan, P. H. Bucksbaum, and R. N. Coffee, Phys. Rev. A 80, 063412 (2009).
- [5] S. De et al., Phys. Rev. Lett. 103, 153002 (2009); K. Oda et al., Phys. Rev. Lett. 104, 213901 (2010).
- [6] H. Abe and Y. Ohtsuki, Phys. Rev. A 83, 053410 (2011).
- [7] K. Nakajima, H. Abe, and Y. Ohtsuki, *to be submitted*.
- [8] H. Abe and Y. Ohtsuki, *submitted to J. Chem. Phys.*
- [9] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, Phys. Rev. A 77, 033414 (2008).