

同位体選択的なレーザー分子整列の最適化シミュレーション

(東北大院・理¹) 中島薫¹、中嶋克宏¹、大槻幸義¹、河野裕彦¹Optimization Simulation of Isotope Selective
Laser-Induced Molecular Alignment(Tohoku Univ.) Kaoru Nakashima, Katsuhiko Nakajima, Yukiyoshi Ohtsuki, Hirohiko Kono

[序] 同位体は物理的、化学的に似通った性質を示し、それらを分離することは基礎から応用まで広く興味を持たれている。分離の最初のステップは同位体のごくわずかな違い（同位体シフト）を増幅することである。近年、量子干渉を利用した同位体シフトの増幅法が提案されている。例えば、レーザーパルスで分子の電子励起状態に振動波束を生成する方法では、同位体間の質量の違いによる振動周期のずれを波束の空間的な位置のずれとして増幅する[1]。しかし、共鳴遷移を利用することからレーザーの発振波長の制限や、同位体シフトが質量数に依存することから、重元素への適用の困難さといった問題がある。

一方、回転波束を利用する方法では同位体シフトは質量差のみに依存するため、重元素への応用が期待されている[2]。そこで本研究では、 $C^{18}O/C^{16}O$ 1:1 混合気体を具体例として、回転準位の多光子遷移の観点から確率振幅を通じて同位体シフトを効率的に蓄積していく方法を議論する。展望として実験で用いられている $^{15}N_2/^{14}N_2$ 同位体分離を行っていくが、窒素の同位体は核スピン異性体を持ち、これら異性体は回転準位の偶奇性に選択的な分布を示すため、これらの異性体の存在を陽に取り入れていかなければならない。

[理論・計算] CO 分子を剛体回転子 ($C^{16}O$ の回転周期 $T_{rot}=8.66$ ps) で近似する。直線偏光レーザーパルスを仮定する。

$$E(t) = \epsilon(t)\cos\omega t \quad (1)$$

$\epsilon(t)$ はレーザー電場の包絡線関数である。レーザーパルスの光振動数 ω が回転遷移振動数に比べて非常に大きいと仮定し、 ω についてサイクル平均をとると、各同位体のハミルトニアンは(2)式で与えられる。分子軸とレーザー電場の偏光ベクトルのなす角を θ とすれば、

$$H_{xi} = B_{xi}J^2 - \frac{1}{4}\{(\alpha_{//} - \alpha_{\perp})\cos^2\theta + \alpha_{\perp}\}\epsilon^2(t) \quad xi=C^{16}O, C^{18}O \quad (2)$$

ここで、 B_{xi} は回転定数、 J は角運動量演算子であり、 $\alpha_{//}, \alpha_{\perp}$ は分極率テンソルの分子軸に平行、垂直な成分となっている。同位体の 1:1 混合物について、分子間の相互作用を無視すると、全密度演算子は各同位体の密度演算子の和で表せる[3]。

$$\rho(t) = \frac{1}{2}(\rho_{x1}(t) + \rho_{x2}(t)) \quad (3)$$

系は量子力学的リウビル方程式に従って時間発展をする。

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{xi}(t)}{\partial t} = [H_{xi}, \rho_{xi}(t)] \quad (4)$$

$C^{18}O/C^{16}O$ の混合気体にレーザーパルスを照射し、一方の同位体の分子集団を偏光ベクトルの方向に揃え（整列）、他方を偏光ベクトルと垂直な面に揃える（反整列）ことを目的とする。同位体を

分離するパルスはそれぞれ $\cos^2 \theta$ と $\sin^2 \theta$ の期待値を最大にするものとして定義する。この時、目的の達成度合いを以下のように定義する。

$$F = \text{Tr}\{\cos^2 \theta \rho_{X1}(t_f) + \sin^2 \theta \rho_{X2}(t_f)\} \quad (5)$$

ここで、 t_f は制御終時刻となっている。

(4)式を拘束条件として、変分法により F が極大となるパルス包絡線の設計方程式を導き、繰り返し計算によってそれを解く事によって $C^{18}O/C^{16}O$ 1:1 混合気体に関するレーザーパルス形を数値的に求める[4]。

[結果・考察] 図1は最適化シミュレーションの結果である。整列の度合いを $\cos^2 \theta$ の期待値で評価する。 $C^{16}O$ を整列、 $C^{18}O$ を反整列させるパルスを設計した。また、温度 $T=0$ K、制御時間を $C^{16}O$ の一回転周期 T_{rot} とする。 $tT_{rot}=0.25$ に大きなサブパルスを持つパルス列が得られた($F = 1.47$)。また、 $tT_{rot}=0.25$ に存在するパルスのみを入射したとき($F=1.40$)。この事から、単一パルスによる回転波束の励起が制御に有効な機構と考え、電場振幅 $\epsilon_0 = 15.0 \text{ GVm}^{-1}$ のガウスパルスを入射した時の同位体の回転波束のダイナミクスを解析したのが図2であり、

$\Delta(t) \equiv \langle \cos^2 \theta_{16} \rangle(t) - \langle \cos^2 \theta_{18} \rangle(t)$ となっている。最適電場のタイミングで一周内で $\Delta(t)$ が最大になり(枠内)、達成度 F の値も最適電場と比べほぼ遜色ない結果となった($F=1.46$)。以上の事から、同位体を選択的に整列させるためには単パルスにより回転波束を励起し、以降のパルスによって達成度合いを更に高めている。この結果を踏まえ、 $^{15}N_2, ^{14}N_2$ に対しても最適制御シミュレーションを行い、核スピン異性体が同位体分離に及ぼす影響を議論する。

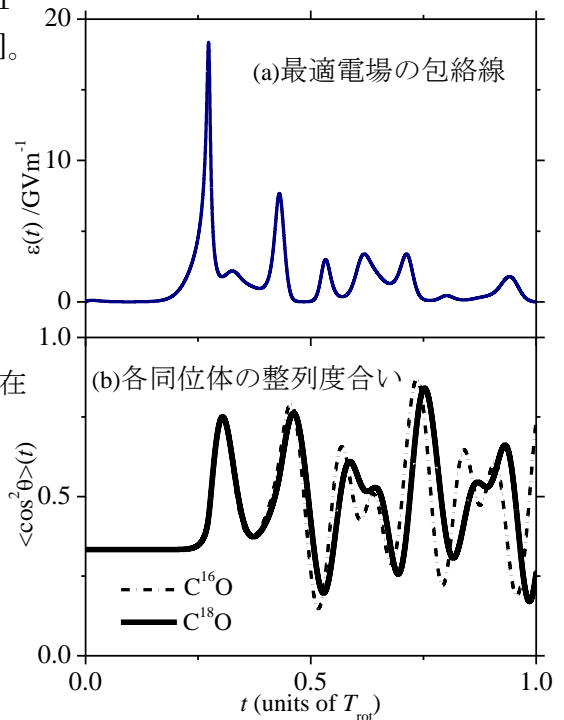
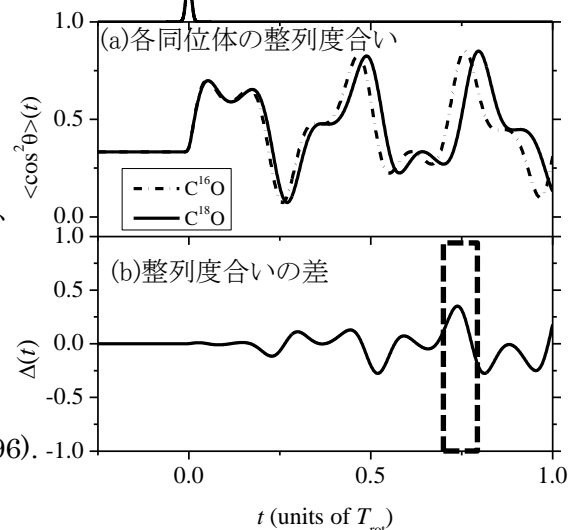


図1 : (a)最適電場と(b)整列度合い



[1]I.Sh Averbukh *et al.*, *Phys. Rev. Lett* **77**, 3518 (1996).

[2]H.Akagi *et al.*, *Appl. Phys. B* **95**, 17 (2009).

[3] Y.Ohtsuki, Y.Fujimura, *Chem. Phys.* **338**, 285 (2007).

[4]H.Abe and Y.Ohtsuki, *Phys. Rev A* **83**, 053410 (2011).

図2 : 単一ガウスパルス励起に対する (a)整列度合いと(b)整列度合いの差