

### 3A01

## レーザー誘起分子配向の最適制御シミュレーション： 整列を経由する2段階の配向制御

(東北大院・理) 中嶋克宏, 阿部弘哉, 大槻幸義

Optimal Control Simulation of Laser-Induced Molecular Orientation:  
Two-Step Orientation Control via Alignment

(Tohoku Univ.) Katsuhiko Nakajima, Hiroya Abe, Yukiyoshi Ohtsuki

**【序】** 分子固定座標系で分子ダイナミクスを誘起・観測するためには, 分子を整列・配向させることが不可欠である. 電子基底状態において, 整列・配向に必要なトルクは双極子および誘起双極子相互作用を通して分子に加えらる. 分子の向きを考慮しない整列制御では, 非共鳴パルスによるインパルス・ラマン回転励起がしばしば使われる. レーザーパルス照射後, 回転波束の繰り返し運動(リバイバル)により, パルス電場が存在しない下での分子整列が実現できる. 現在, パルスの偏光条件を調整することで, 空間の任意の方向(3D)への整列制御も報告されている. 整列制御における中心課題は, 最適な制御法の探索や応用にシフトしているといえる [1].

非対称分子における分子固定系の実現には, 分子の向きまで揃える配向制御が必要である. 配向制御では, 整列制御と違い対称性を破る相互作用が必須である. その観点から, 従来の研究を2つのカテゴリーに分類できる. 1つ目は, 静電場やテラヘルツ・パルスを導入し双極子相互作用を利用する方法である. しかし, 高強度のテラヘルツ・パルス発生 of 技術的な困難さや, 静電場下では完全に外場ゼロといえないなど課題がある [2].

2つ目は位相ロックした2色のレーザーパルスを用い, 3次の分極相互作用を通して非対称な相互作用を導入する. いくつかの実験グループが有効性を報告しているものの, 限定的な成功に留まっている. 本研究では理論・シミュレーションの観点から, 波形整形したレーザー・パルスを用いることで, より低い強度で高い配向度合いを実現することを目指す. そのために, 我々が開発した, 非共鳴の最適制御シミュレーションを用いる [3]. 数値結果を解析することで, 整列を経由する2段階の配向制御が有効であることが分かったので報告する [4].

**【理論】** 位相ロックした2色(振動数  $\omega + 2\omega$ )の直線偏光レーザーパルスを仮定する. 回転定数  $B$  の剛体回転子で近似した CO(配向制御のプロトタイプ)を具体例に偏光方向に1次元配向させる.

$$E(t) = \varepsilon_{\omega}(t)\cos(\omega t) + \varepsilon_{2\omega}(t)\cos(2\omega t + \eta) \quad (1)$$

相対位相  $\eta$  が相互作用の非対称性の度合いを決める. 例えば  $\eta = 0.5\pi$  ではパルス電場は対称な形をとり, 分子を整列させることができない. ここでは,  $\eta = 0$  を考える. 分子軸とパルスの偏光角とのなす角を  $\theta$  とし, 相互作用に現れる分極率・超分極率成分を  $\alpha(\theta)$ ,  $\beta(\theta)$  と表す. 電場の振動数  $\omega$  に関してサイクル平均したハミルトニアンは以下で与えられる.

$$\bar{H}^t = B\hat{J}^2 - \frac{1}{4}\alpha(\theta)[\varepsilon_{\omega}^2(t) + \varepsilon_{2\omega}^2(t)] - \frac{1}{8}\beta(\theta)\varepsilon_{\omega}^2(t)\varepsilon_{2\omega}(t) \quad (2)$$

最適制御シミュレーションは、与えられた(モデル)ハミルトニアンの下で、目的を最大確率で実現するレーザーパルス形を求める第一原理法である。ここでは、与えられた回転状態において「 $\cos\theta$ の期待値(配向度合い)を最大にする状態 $|\chi\rangle$ 」の生成をターゲットに選ぶ。すなわち、「目的時刻 $t_f$ における演算子 $W = |\chi\rangle\langle\chi|$ の期待値の最大化」として定式化する。最適化条件は

$$\text{Im}\left\{\langle\xi(t)|[2\alpha(\theta)\varepsilon_\omega(t) + \beta(\theta)\varepsilon_\omega(t)\varepsilon_{2\omega}(t)]|\psi(t)\rangle\right\} = 0 \quad (3)$$

および

$$\text{Im}\left\{\langle\xi(t)|[4\alpha(\theta)\varepsilon_{2\omega}(t) + \beta(\theta)\varepsilon_\omega^2(t)]|\psi(t)\rangle\right\} = 0 \quad (4)$$

である。ただし、ラグランジュ未定乗数 $|\xi(t)\rangle$ は運動方程式による拘束条件を表す。時間発展演算子 $U(t, 0)$ を用いれば、 $|\xi(t)\rangle = U(t, t_f)|\xi(t_f)\rangle = U(t, t_f)W|\psi(t_f)\rangle$ で与えられる。シミュレーションには我々が開発した単調収束保証の反復アルゴリズムを用いる [3]。

【結果】 下図に、最適制御シミュレーションから得られた (a) レーザー電場 (包絡線関数), (b) 整列・配向度合いの時間変化, (c) 偶数 (波線)・奇数 (実線) の回転量子数をもった分布および回転量子数の平均値の時間発展を示す。なお、温度は  $T=0\text{ K}$  を仮定した。

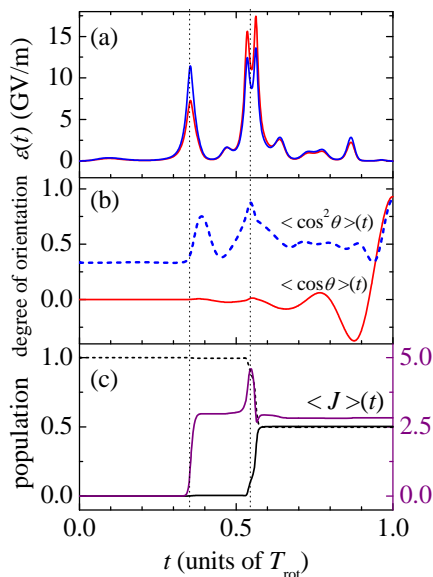


図 最適制御シミュレーションの結果説明はテキスト参照。

最適パルスは目的時刻で非常に高い配向度合い0.93を示す。細かい構造もあるが、それらを除いても達成度に殆ど影響はない。すなわち、配向制御は2つのサブパルスで実現されていることが分かる。サブパルスの照射タイミングと整列度合いの時間変化を比較すると、最初のサブパルスは整列制御にのみ寄与していることが分かる。2番目のサブパルスが配向を誘起しており、その照射タイミングは波束の整列度合いのピークと一致している。すなわち、整列を経由する2段階の配向制御機構を強く示唆する。

もしこれが有効であるなら、最適パルスの代わりにガウスパルスの組を用いても同様の結果が得られるはずである。そこで、ガウスパルスの強度および遅延時間を変えて、配向度合いを計算し、2次元マップに表示した。その結果、いくつかの領域(強度と遅延時間の組み合わせ)で高い配向度合いを実現できることが分かった[4]。

#### 【参考文献】

- [1] H. Abe and Y. Ohtsuki, *Phys. Rev. A* **83**, 053410 (2011); *Chem. Phys.* **400**, 13 (2012)およびその中の参考文献.
- [2] O. Ghafur *et al.* *Nat. Phys.* **5**, 289 (2009); S. Fleischer *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **107**, 163603 (2011).
- [3] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, *Phys. Rev. A* **77**, 033414 (2008).
- [4] K. Nakajima, H. Abe, and Y. Ohtsuki, *J. Phys. Chem. A* (special issue) *in press*.