

## 光パルス列中での分子の回転遷移過程の数理モデル

(原子力機構\*, 東北大院・情報科学\*\*) ○松岡雷士\*, 瀬川悦生\*\*, 市原晃\*, 横山啓一\*

### A mathematical model for rotational transition processes of molecules in a train of optical pulses

(JAEA\*, Tohoku Univ.\*\*)

○Leo Matsuoka\*, Etsuo Segawa\*\*, Akira Ichihara\*, Keiichi Yokoyama\*

【序】広帯域レーザーパルス中での分子の回転遷移過程は非断熱分子配列(Molecular alignment)及び非断熱分子配向 (Molecular orientation) の観点から盛んに研究が進められ、様々な応用に発展している。近年、分子の回転周期に同期した光パルス列の照射が配列度の向上に有効であることが示され、パルス列化による多光子過程抑制などの利点と合わせて応用への期待が高まっている[1,2]。一方で我々はパルス列照射による分子配列・配向のもう一つの側面である回転ポピュレーション分布の同位体選択的な集団移動に着目し、熱回転分布の存在する分子集団を一括して処理可能なレーザー同位体分離法を提案し、理論研究及び数値計算を進めてきた[3-5]。

パルス列照射による回転分布移動を利用した同位体選択においては、分子をどこまで回転励起できるかを条件ごとに評価することが重要となる。仮に照射パルスの帯域に制限が無かったとしても、分子の回転励起にはある上限が存在する。これは遠心力歪みの影響によって高回転励起準位間の遷移周波数が等間隔のコムからシフトし、光パルス列によって形成される光周波数コムの周波数ピークと徐々にズレが生じていくことによると解釈することができる。回転励起の上限は個々のケースを数値計算することによって求めることができるが、その上限は個々のパルス強度にも依存するため、パルス列のパラメータに対して一見してわかりにくい依存性を示している。

本研究は光パルス列による分子回転励起の上限を数値シミュレーションを行わずに評価する手法の確立を目的とした。時間依存シュレーディンガー方程式を数理モデルに簡略化し、いくつかの仮定の下で導出される数理モデルの解析解と数値計算結果との対応についての考察を行った。

【数理モデル】分子回転分布移動の時間依存シュレーディンガー方程式として以下を考える。

$$i \frac{d}{dt} C_J(t) = -\frac{\varepsilon(t) \cdot \mu_0}{2} [\exp\{(E_J - E_{J-1}) \cdot i \cdot t\} \cdot C_{J-1}(t) + \exp\{(E_J - E_{J+1}) \cdot i \cdot t\} \cdot C_{J+1}(t)],$$

$$E_J = 2\pi B_M J(J+1) - 2\pi D_v J^2(J+1)^2. \quad (1)$$

ここで  $C_J(t)$  は回転量子数  $J$  の準位の時間  $t$  における複素振幅である。  $\hbar = 1$  とし、簡単のために双極子モーメントが  $J$  に依存せず全て  $\mu_0/2$  であることを仮定している。パルス間隔  $T_r = 1/(2B_f)$  のテラヘルツ帯域のパルス列による電場を以下のように表現する。

$$\varepsilon(t) = \frac{\gamma}{\mu_0} \left[ 1 + 2 \sum_{j=0}^{J_{\max}-1} \cos\{2\pi \cdot 2B_f(j+1)t\} \right]. \quad (2)$$

式(2)を式(1)に代入し、まず  $\Delta B = B_M - B_f$  が十分に小さいことを仮定して高次の振動項を無視する近似を行って簡易な数理モデルを構築した。この近似は光パルス列を光周波数コムとして考えたときに、コムの各周波数ピークが最も近接した周波数の回転遷移線のみに影響を及ぼすと仮定

することに対応している。さらに得られた三重対角行列を数学的にスペクトル分解し、時間順序が可換であると仮定して積分を実行すると、 $\mathbf{J} = \mathbf{r}$  から  $\mathbf{J} = \mathbf{s}$  への時間発展に対して以下の無限級数形の解析表現を得ることが出来る。

$$C_{rs}(t) = \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{N-1} \left( \frac{\gamma}{2\pi(\beta_s - \beta_r)} \right)^m \frac{1}{m!} (\exp\{2\pi i(\beta_s - \beta_r)t\} - 1)^m \cos^m((k+1)\pi/(N+1)) y_{sk} y_{kr},$$

$$\beta_J = \Delta B J(J+1) - D_v J^2(J+1)^2, \quad y_{jk} = \sqrt{2/(N+1)} \sin((j+1)(k+1)\pi/(N+1)).$$
(3)

この解析表現において  $\gamma$  と  $t$  は可換ではないが、 $\Delta B, D_v \rightarrow 0$  の極限では  $\gamma$  と  $t$  が可換になる形に漸近する。この極限の形は遠心力歪みの無い理想的な分子に対応する数理モデルにおいて時間順序の可換性を仮定せずに得られる解析解と厳密に一致する。式(3)の解析表現において確率振幅の時間平均値に直接関連があると考えられるのは級数内の最初の項のみであるため、我々はパルス列による回転励起を特徴付ける統一的なパラメータとして  $u = \gamma / |\beta_s - \beta_r|$  を採用した。

【数値解析と考察】パルス列による回転励起の上限を評価するため、パラメータ  $u$  とポピュレーション分布の時間平均との対応を数値計算によって評価した (図 1 a,b)。いくつかの条件についての計算結果から、分布は  $u$  が 10 程度から明らかな減少を開始し、 $u < 3$  となる条件では全く分布が存在しないという経験則を得た(図 1 c)。この結果から、各回転準位における  $u$  の値さえ計算すれば、経験則と照らし合わせて回転励起の上限が数値シミュレーションを行わずに評価できることが明らかになった。現モデルではテラヘルツ波による直接回転遷移を対象にしているが、非共鳴回転ラマン遷移による回転分布移動についても全く同様のモデル化が可能である。また本手法では  $\Delta B$  と  $D_v$  が互いに打ち消し合って極値を形成する条件については予測結果と数値計算結果に若干のずれが生じており、理論的・数値的検証の余地が残っている。

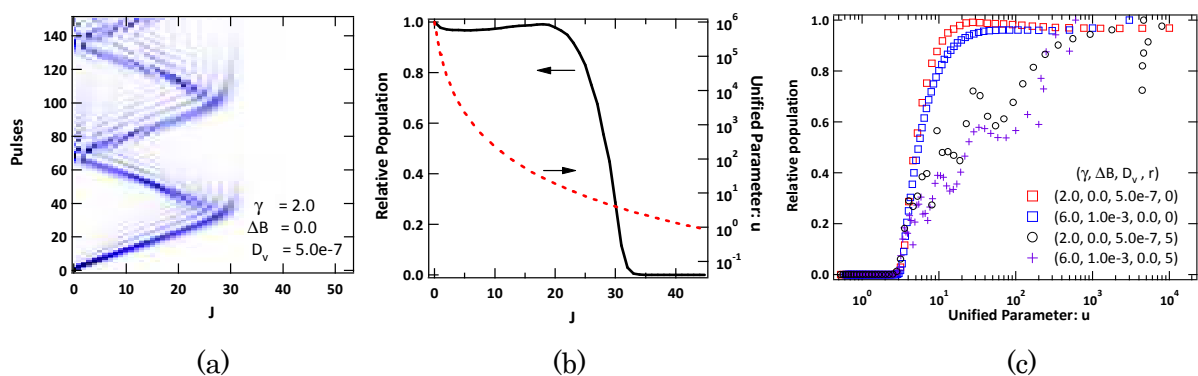


図 1. (a) パルス列照射による分子の回転ポピュレーション分布の時間発展の一例 (b) 同条件における回転ポピュレーション分布の時間平均値とパラメータ  $u$  (c) 様々なパルス照射条件と初期準位に対して計算された回転ポピュレーション分布の時間平均値とパラメータ  $u$  との関係

[1] J. P. Cryan, P. H. Bucksbaum, and R. N. Coffee, Phys. Rev. A, 80, 063412 (2009)  
 [2] H. Abe, and Y. Ohtsuki, Phys. Rev. A, 83, 053410 (2011)  
 [3] L. Matsuoka, T. Kasajima, M. Hashimoto, and K. Yokoyama, J. Kor. Phys. Soc., 59, 2897 (2011).  
 [4] L. Matsuoka, A. Ichihara, M. Hashimoto, and K. Yokoyama, Proceedings of 10th International Conference GLOBAL2011 Toward and Over the Fukushima Daiichi Accident, CD-ROM (2011).  
 [5] A. Ichihara, L. Matsuoka, Y. Kurosaki, and K. Yokoyama, Chin. J. Phys., (Accepted).