

### 3P024

フェムト秒レーザーパルスと THz パルスを組み合わせた CO 分子の配向制御：温度効果

(東北大院・理) ○吉田 将隆, 中島 薫, 大槻 幸義, 河野 裕彦

#### Controlling the orientation of CO molecules with combined fs laser and THz pulses: Temperature effects

(Tohoku Univ.) ○Masataka Yoshida, Kaoru Nakashima, Yukiyoshi Ohtsuki, Hirohiko Kono

【序】分子を特定の空間固定系に対して整列・配向できれば、分子座標系での実験が可能となる。特に、分子の向きもそろえる配向制御では、空間的に非対称な相互作用が必要であり、主に2つ方法が提案されている。1つは位相ロックした2色のフェムト秒レーザーパルスと3次の分極相互作用を用いる方法である。しかし位相ロックの難しさや試料分子が十分に低温であることなどの条件のため[1]、CO分子を用いた実証実験においても低い配向度合いに留まっている[2,3]。

他方、THzパルスを利用する方法は[4]、双極子相互作用による共鳴励起を通し、より容易に分子配向を制御できると期待されている。実際、OCS分子にTHzパルスを照射し、分子配向を確認した実験も報告されている[5]。しかしTHzパルス単独で十分な配向度合いを実現するには、高強度の整形THzパルスが必要であり、現時点でこのようなパルスは実験的に得られていない。

そこで近年、THzパルスとフェムト秒レーザーパルスとを組み合わせた制御が着目されている[6,7]。この制御では、強度に問題のあるTHzパルスと、高強度のレーザーパルスにより誘起された(空間的に対称な)分極相互作用を考える。両者を併用することで、互いの難点を補い配向度合いを高めるというアイデアである。しかし2つの性質の異なる相互作用が同時に関わるため、実際の制御法は十分には分かっていない。そこで、本研究では我々が開発した非共鳴の最適制御シミュレーション法を用い[8]、CO分子を例に、配向度合いを最大にするためのTHzパルスとフェムト秒パルスを数値設計する。パルス波形から分子配向の最適な制御機構を解析する。

【理論】剛体回転子でモデル化したCO分子に、互いに平行な直線偏光したTHzパルスとフェムト秒パルスを照射する。全電場は $\mathbf{E}_{\text{tot}}(t) = \hat{\mathbf{e}}[E(t) + \varepsilon(t) \cos \omega t]$ で表される。 $E(t)$ はTHzパルス、 $\varepsilon(t)$ と $\omega$ はフェムト秒パルスの包絡線と振動数である。フェムト秒パルスの振動数 $\omega$ は回転の遷移振動数に比べて非常に大きいため、ハミルトニアンは $\omega$ に関してサイクル平均でき、その結果、次式で与えられる。

$$H = B\mathbf{J}^2 - \mu \cos \theta E(t) - \frac{1}{2} \alpha(\theta) \left[ \{E(t)\}^2 + \frac{1}{2} \{\varepsilon(t)\}^2 \right] \quad (1)$$

ここで $B\mathbf{J}^2$ は回転子のハミルトニアン、 $\mu$ は双極子モーメント、 $\alpha(\theta)$ は分極率成分である。なお、 $\theta$ は分子軸とレーザーパルスの偏光方向とのなす角である。系を表す密度演算子 $\rho(t)$ は量子力学的リウビル方程式に従って時間発展する。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = [H, \rho(t)] \quad (2)$$

次に、配向度合いを最大にするパルスを設計するため、制御目的を表す汎関数 $F$ を導入する。

$$F = \text{Tr}[\rho(t_f) \cos \theta] - \int_0^{t_f} \frac{dt}{\lambda(t)\hbar} [E(t)]^2 \quad (3)$$

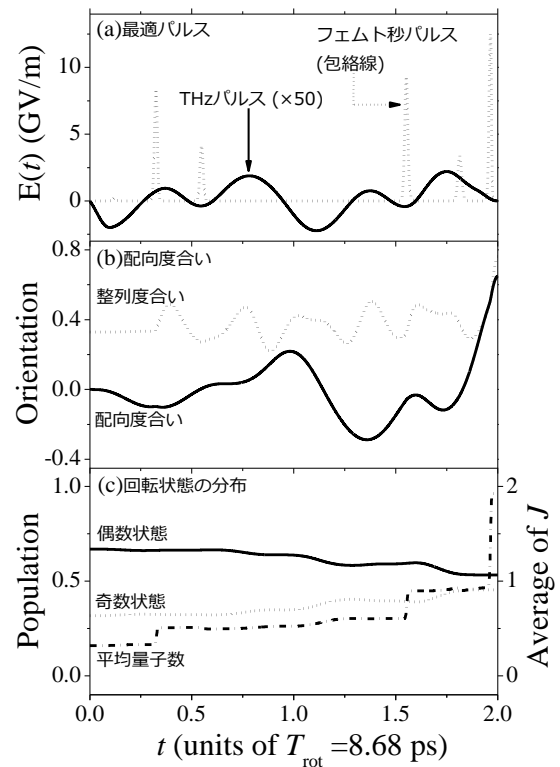
第一項は目的時刻 $t_f$ における配向度合い、第二項はTHzパルスエネルギーからくるペナルティである。 $(\lambda(t))$ は第一項に対して第二項をどの程度評価するのかを定めるパラメータである)。最適パルスは $\mathbf{F}$ を最大にするパルスとして定義され、(2)式の拘束条件下での変分法により、それぞれの設計方程式が導ける。

$$E(t) = -\lambda(t)\text{Im}\{\text{Tr}[\mathcal{E}(t)\{\mu + \alpha(\theta) E(t)\}\rho(t)]\} \quad (4)$$

$$0 = \text{Im}\{\text{Tr}[\mathcal{E}(t)\alpha(\theta)\rho(t)]\} \quad (5)$$

ただし、ラグランジュ未定乗数 $\mathcal{E}(t)$ は(2)式の拘束条件を表し、時間発展演算子 $U(t, 0)$ により $\mathcal{E}(t) = U(t, t_f) \mathcal{E}(t_f) U(t, t_f)^\dagger$ で与えられる。最適制御シミュレーションでは、最適パルスを求めながら系の時間発展を計算する。

【結果・考察】温度は $T=3\text{K}$ 、目的時刻として $t_f = 2T_{\text{rot}}$ を仮定する。ただし、回転周期 $T_{\text{rot}}=8.68\text{ps}$ は $|J=0\rangle \rightarrow |J=1\rangle$ の遷移振動数の逆数として定義される。図(a)に示すように、最適なTHzパルスは変調の少ない単純な振動を示す。一方、最適なレーザーパルスは鋭いピークを持ったフェムト秒のパルス列で表される。図(a)のパルスは高い配向度合い0.65を実現する(図(b))。各回転状態の分布の時間発展(図(c))から、THzパルスは主に各初期状態の遷移を誘起し、量子数が偶数・奇数の回転状態間の重ね合わせを生成することが分かる。このような共鳴遷移の誘起は、強度スペクトルからも確認している。一方、フェムト秒パルスは回転ラマン過程( $\Delta J=\pm 2$ )を通して回転状態を励起する。特に、目的時刻付近に現れる高強度のフェムト秒パルスは、一挙に複数の回転状態を励起し、高い配向度合いを達成させている。この結果から、THzパルスとフェムト秒パルスを組み合わせた最適制御では、まずTHzパルスが偶奇の回転状態間の重ね合わせ状態を作り、次いで高強度のフェムト秒パルスが回転励起を一挙に促進する。この2段階の機構により高い配向度合いを実現する。



図：最適制御シミュレーションの結果

#### 【参考文献】

- [1] K. Nakajima et al., J. Phys. Chem. A 116, 11219 (2012).
- [2] S. De et al., Phys. Rev. Lett. 103, 153002 (2009).
- [3] K. Oda et al., Phys. Rev. Lett. 104, 213901 (2010).
- [4] Z.-Y. Zhao et al., J. Chem. Phys. 139, 044305 (2013).
- [5] S. Fleischer et al., Phys. Rev. Lett 107, 163603 (2011)
- [6] K. Kitano et al., Phys. Rev. A 84, 053408 (2011)
- [7] C.-C. Shu et al., Phys. Rev. A 87, 013408 (2013)
- [8] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, Phys. Rev. A 77, 033414 (2008)