

3P025

レーザーパルスにより誘起される同位体選択的な分子整列の最適化

(東北大院・理) ○中島 薫、大槻 幸義、河野 裕彦

Optimizing isotope-selective molecular alignment induced by laser pulses

(Tohoku Univ.) ○Kaoru Nakashima, Yukiyo Ohtsuki, Hirohiko Kono

[序] 超短レーザーパルスは、複数の量子状態のコヒーレントな重ね合わせ（波束）を生成する。波束を用いた同位体分離は、量子干渉による高い選択性が期待できることから近年注目されている。例えば、弱い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、同位体間のごくわずかな振動周期の違い（同位体シフト）を、波束の空間的な位置のずれとして増幅する[1]。一方、回転波束を用いる方法[2]では、回転ラマン遷移を通し波束の空間的な異方性すなわち分子整列を通して同位体シフトを増幅する。一般に、分子のイオン化はレーザーパルスの偏光ベクトルと分子の向きとのなす角に依存するので、分子整列の違いを利用すれば同位体選択的なイオン化を促進できる。したがって、同位体選択的な分子整列がこの分離スキームの要となる。そこで本研究は $^{14}\text{N}_2/^{15}\text{N}_2$ 混合物を例として、同位体選択的な分子整列を最適化するレーザーパルスを制御理論により数値設計する。最適パルスの波形を解析することで制御機構を明らかにする。

[理論・計算] N_2 分子を剛体回転子で近似する。便宜上ここでは同位体分子 $^{14}\text{N}_2$, $^{15}\text{N}_2$ をそれぞれ a, b と記す。制御には包絡線関数 $\epsilon(t)$, 中心周波数 ω の直線偏光レーザーパルス $E(t) = \epsilon(t)\cos\omega t$ を用いる。振動数 ω が回転遷移の振動数に比べて非常に大きい場合、 ω についてサイクル平均をとることができ各同位体のハミルトニアンは以下のように与えられる。

$$H_x = B_x J^2 - \frac{1}{4} \{(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \theta + \alpha_{\perp}\} \epsilon^2(t) \quad (x = a, b) \quad (1)$$

B_x は回転定数、 J は角運動量演算子、 $\alpha_{\parallel}, \alpha_{\perp}$ は分極率テンソルの分子軸に平行、垂直な成分、 θ は分子軸とレーザー電場の偏光ベクトルとのなす角である。分子間の相互作用が無視できる場合、全密度演算子は各同位体の密度演算子の和で表せ[3], 1:1 混合物ならば

$$\rho(t) = \frac{1}{2} \{\rho_a(t) + \rho_b(t)\} \quad (2)$$

となる。密度演算子 $\rho_x(t)$ は量子力学的リウビル方程式に従う。

$$i\hbar \frac{\partial \rho_x(t)}{\partial t} = [H_x, \rho_x(t)] \quad (3)$$

本研究では、 $^{14}\text{N}_2$ の分子軸をレーザーパルスの偏光ベクトルに平行に（以後、整列状態と呼ぶ。）、 $^{15}\text{N}_2$ を垂直な面に（以後、反整列状態と呼ぶ。）揃えることを制御目的とする。同位体を選択的に整列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。

$$F = \text{Tr}\{\cos^2\theta\rho_a(t_f) + \sin^2\theta\rho_b(t_f)\} \quad (4)$$

ここで、 t_f は制御終時刻とする。(3)を拘束条件として、変分法によって、 F が極大となるパルス包絡線の電場設計方程式を導き、繰り返し計算によってそれを解くことで最適なレーザーパルスを数値的に求める

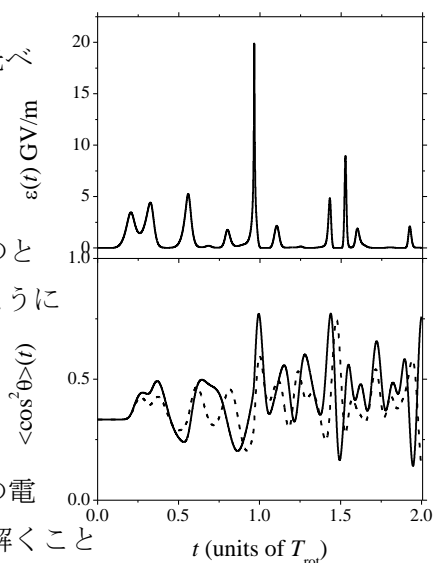


図1 (a)最適電場の包絡線関数

(b)各同位体の整列度合い（実線： $^{14}\text{N}_2$ 、破線： $^{15}\text{N}_2$ ）

[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。整列の度合いは、 $\cos^2\theta$ の期待値で評価する。制御終時刻を $^{14}\text{N}_2$ の2回転周期 $2T_{\text{rot}} \sim 16.7$ ps、温度 $T = 5$ Kを仮定。 $t/T_{\text{rot}} \approx 1$ に大きなピークを持つ最適電場が得られた($F=1.63$)。このピークだけを取り出して混合物に照射したところ、達成度合いはほとんど下がらなかった($F=1.55$)。すなわち、最適パルスは単一のパルスにより良く近似できると考えられる。これを踏まえ、次に δ パルスを仮定した解析を試みた。図2に示すように、同位体の整列度合いの差（選択性）は、 δ

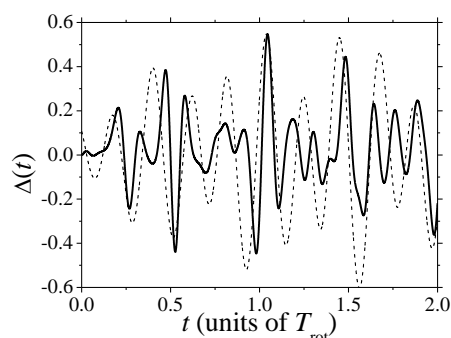


図2 $t=0$ で20GV/m,100 fsのガウスパルスを照射した際の窒素の同位体（5 Kで熱分布）の整列度合いの差

$$\langle \cos^2\theta \rangle_{14}(t) - \langle \cos^2\theta \rangle_{15}(t)$$

実線：数値解 破線：モデル計算

パルスを照射してから質量数の小さいほうの同位体の1回転周期後に最大値をとることが分かった。この結果は、計算の終時刻、温度に依存しないことが確認されている。また、COの同位体($\text{C}^{16}\text{O}/\text{C}^{18}\text{O}$)に対しても同様の計算を行ったが、単一のパルスが有効であり、温度、計算の終時刻に非依存という結果は変化しなかった。すなわち、多くの場合、単一パルスが同位体選択的な分子整列を実現する最適パルスとなる。ただし、選択性はパルス強度に大きく依存するため、適切なパルス強度を選択する必要がある。

[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).