

窒素分子の回転波束への振動回転相互作用の影響

(原子力機構・関西*, 東大院・総合文化**, 分子研***) ○横山 淳*, 赤木 浩*,
熊田高之*, 板倉隆二*, 長谷川宗良**, 大島康裕***

Effect of ro-vibrational coupling on rotational wavepacket of N₂

(JAEA-KPSI*, Univ. of Tokyo**, IMS***) ○Atsushi YOKOYAMA*, Hiroshi Akagi*, Takayuki KUMADA*, Ryuji ITAKURA*, Hirokazu HASEGAWA**, Yasuhiro OHSHIMA***

【序】最近、我々は、超短パルスレーザー照射により回転波束を生成し、特定の同位体分子の分子軸が揃った時刻にもうひとつの超短パルスレーザーで同位体選択的にイオン化する同位体分離法の原理実証を窒素分子を用いて行った。¹⁾分子の整列度 ($\langle\langle\cos^2\theta\rangle\rangle$ 、 θ はレーザーの偏光方向と分子軸の成す角)は、回転周期ごとにピークを持つが、時間が長くなるにつれて、その形は振動回転相互作用の影響で変形していく。本研究では、振動および回転を取り入れた時間依存シュレディンガー方程式を解くことで、その効果を見積もった。

【計算方法】波動関数 $\Psi(r, \theta; t)$ を Legendre 陪関数で展開し、

$$\Psi(r, \theta; t) = \sum_{J=0}^{J_{max}} \sum_{m=-J}^J f_{J,m}(r; t) P_J^{|m|}(\cos\theta) \quad (1)$$

シュレディンガー方程式 (2) を Split-Operator 法により解くことで、初め $|j_0, m_0\rangle$ 状態のみに分布していた波動関数の時間発展を計算した。

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = H\Psi \quad (2a)$$

$$H = -\frac{\partial^2}{2m\partial r^2} + \frac{j^2}{2mr^2} + U(r) - \frac{\varepsilon(t)^2}{2} (\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_{\perp}) \quad (2b)$$

ここで、 m は換算質量、 r は核間距離、 $\Delta\alpha$ はレーザー偏光方向に並行 (α_{\parallel}) 及び垂直 (α_{\perp}) な分極率の差、 $\varepsilon(t)$ は時刻 t におけるレーザー電場強度、 θ は分子軸とレーザー偏光方向のなす角である。また、ポテンシャル $U(r)$ は LeRoy ら⁽²⁾によって求められた以下のポテンシャル関数を用いた。

$$U(r) = D_e \left\{ 1 - \left(\frac{r_0}{r} \right)^6 \left[\frac{1+R_{86}/r^2}{1+R_{86}/r_0^2} \right] \exp \left[-\phi(r) \frac{r^4-r_0^4}{r^4+r_0^4} \right] \right\}^2 \quad (3a)$$

$$\phi(r) = \sum_{i=0}^N \phi_i \left(\frac{r^4-r_0^4}{r^4+r_0^4} \right)^i \quad (3b)$$

その後、得られた波動関数を用い、初期状態分布をボルツマン分布として平均化した整列度 $\langle\langle\cos^2\theta\rangle\rangle$ を求めた。

$$\langle \langle \cos^2 \theta \rangle \rangle = \frac{\sum_{J=0}^{J_{\max}} g_J e^{-\frac{J(J+1)}{2mr_0^2 kT}} \sum_{m=-J}^J \langle J, m | \cos^2 \theta | J, m \rangle}{\sum_{J=0}^{J_{\max}} (2J+1) g_J e^{-\frac{J(J+1)}{2mr_0^2 kT}}} \quad (4)$$

【結果】図1に、初期回転温度 150K の $^{14}\text{N}_2$ 分子を $10\text{TW}/\text{cm}^2$ のレーザーでアライメントして 124.5-128ps 後にイオン化した場合の実験によって得られたイオン強度と計算によって得られた整列度の比較を示す。剛体回転子を仮定した計算 (2b) 式において第 1 及び 3 項を無視) で得られた整列度 (破線) は、分子軸がランダムに配向した時の値 (1/3) を基準にして負と正の方向に同じ値だけ振れた反対称なピーク波形を示すのに対して、実験で得られたイオン強度 (黒丸) は、正の方向に大きく振れた非対称なピーク波形を示す。この波形は、振動回転相互作用を考慮した(2b)式のハミルトニアンを用いた計算 (実線) でうまく再現された。また、図 2 に示すように $\langle J | \cos^2 \theta | J \rangle$ ($=\sum_{m=-J}^J \langle J, m | \cos^2 \theta | J, m \rangle$) は、周期の違いを除いて J が小さければ剛体回転子を仮定した場合 (破線) と、振動回転相互作用を考慮した場合 (実線) で違いが見られないが、 J が大きくなるにつれてピークの値がずれていく。従って、回転温度が低い場合には、図 3 に示すように剛体回転子を仮定した場合に予測されるピーク波形と類似した波形を示す。

【参考文献】

- (1) H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, Appl. Phys. B **109**, 75 (2012)
- (2) R. J. LeRoy Y. Huang, C. Jary, J. Chem. Phys. **125**, 164310 (2006)

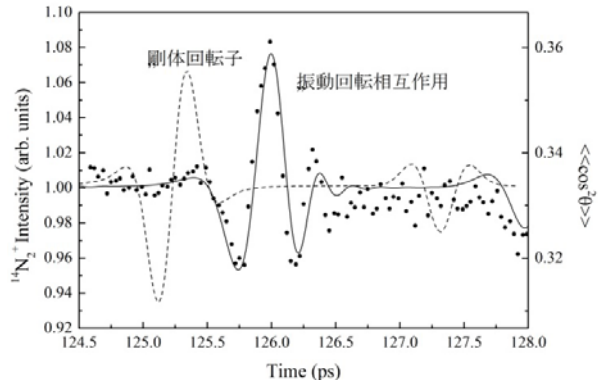


図 1 $^{14}\text{N}_2^+$ 強度と計算による整列度の比較

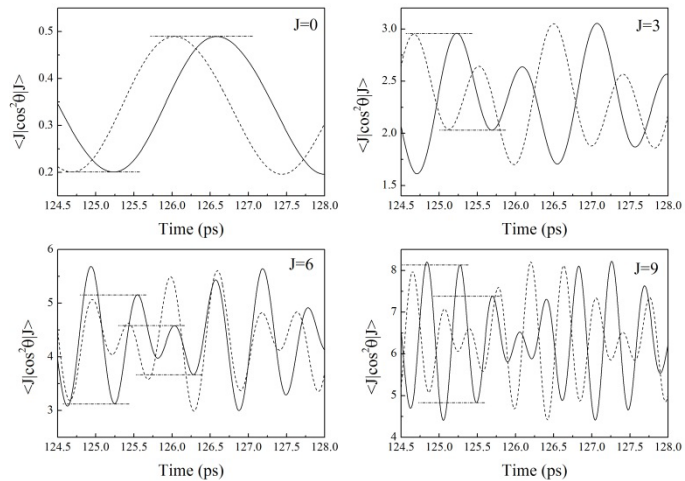


図 2 $\langle J | \cos^2 \theta | J \rangle$ の J 依存性

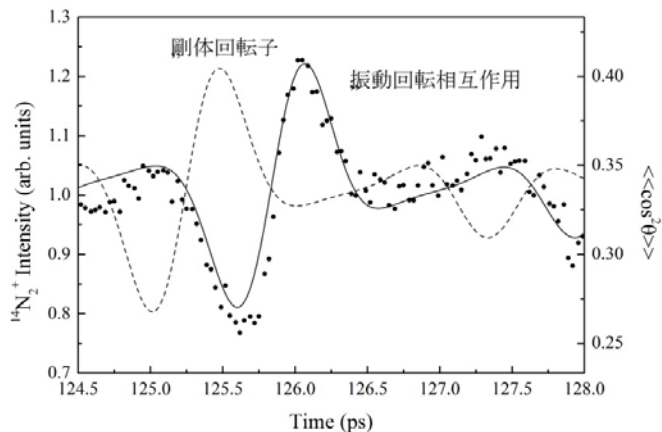


図 3 回転温度 30K における $^{14}\text{N}_2^+$ 強度と剛体回転子 (破線) 及び振動回転相互作用 (実線) を考慮した計算による整列度の比較