

非共鳴光パルス列中での二原子分子の回転遷移過程の数理モデル

(広島大院・工) ○松岡 雷士

A mathematical model for rotational transition processes of diatomic molecules in a train of non-resonant optical pulses

(Hiroshima Univ.) ○Leo Matsuoka

【序】回転周期に同期した光パルス列の照射による二原子分子の回転励起過程は、非断熱分子配列や非断熱分子配向の観点から盛んな研究が行われている[1]。特に非共鳴光パルス列によって誘起される二光子過程による回転励起はフェムト秒レーザーによって容易に実現が可能であり、テラヘルツ光が必要となる共鳴一光子過程と比較すると既に実験的な報告が多くなされている[2,3]。最近ではこの光パルス列による回転励起過程とアンダーソン局在のアナロジーを議論した理論研究が報告されており[4]、パルス列によるスムーズな回転励起とそれを阻害するメカニズムを明確に議論する必要性が高まっている。

実在の二原子分子を想定した場合、回転周期に同期した非共鳴光パルス列中で、ある準位以上への回転励起を阻害する要因は主に二つある。一つは光パルスのスペクトル幅の不足により、ある準位以上へ二光子励起するための周波数成分がパルスのスペクトルの中で構成できない場合。もう一つは遠心力歪みの影響によって光パルス列が形成する光周波数コムと分子の回転励起スペクトルのコムの間不整合が発生する場合である。実験でターゲットとされる N_2 などの場合、既存のフェムト秒レーザーパルスのスペクトル幅では一つ目の阻害要因が支配的になる場合が多い。しかしながら二つ目の遠心力歪みによる回転励起阻害の影響は、パルス強度に対して複雑な依存性を示すため、しばしば議論の混乱の源となっている。

我々は光パルス列による分子の同位体選択的な集団ポピュレーション移動を解析するため、テラヘルツ光パルス列による共鳴一光子回転励起過程について数理解析と数値解析を組み合わせたアプローチを行ってきた[5]。これまでの研究の中で、遠心力歪みとパルス周期不整合による回転分布の局在化と、そのパルス強度依存性を明確に示す多項式パラメータの抽出に成功している。本研究では非共鳴二光子過程による回転遷移過程の数理モデルを構築し、既存の共鳴一光子過程の数理モデルに帰着させることによって、非共鳴光パルス列中での回転分布局在化を時間発展数値シミュレーション無しでキャラクタライズできるパラメータの導出を行った。

【数理モデル】本研究ではパルス間隔 T_p の非共鳴光パルス列としてエンヴェロップを使わずに電場振幅を以下のように定義する。

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \sum_{m=0}^{\infty} f(m) \cdot \cos \left\{ 2\pi(m+1) \frac{t}{T_p} \right\}, \quad (1)$$

ただし $f(m)$ は電場の離散的な周波数スペクトルであり、以下のガウス型で定義する。

$$f(m) = A \sqrt{\exp \left(- \left(\frac{m - m_0}{\text{width}} \right)^2 \right)}, \quad \left(\sum_{m=0}^{\infty} f(m) = 1 \right), \quad (2)$$

コサイン関数をオイラーの公式で展開した後に電場を二乗し、さらに実際に有効な項のみを取り出すことによって、電場の二乗は以下のように書くことが出来る。

$$\varepsilon^2(t) \cong \frac{\varepsilon_0^2}{2} \sum_{m=0}^{\infty} F(m) \exp\left(\pm 2\pi i m \frac{t}{T_p}\right), \quad (3)$$

$$F(m) = \sum_{n=0}^{\infty} f(n) \cdot f(n+m). \quad (4)$$

式(4)は式(2)中の width が $(1/T_p)$ に対して十分に大きい場合、ある範囲の m に対してはほぼ一定値であるとみなすことが出来る。この一定値を F_J とおくこととする。

二原子分子の時間依存シュレーディンガー方程式に対して式(3)を代入し、最も変化の緩やかな項のみを取り出す回転波近似を施す。さらに時間発展に影響を与えない対角項を無視すると、分子回転と光の相互作用は以下の式で近似的に記述することが可能となる。

$$i \frac{d}{dt} C_J(t) = -\frac{\Delta\alpha \cdot \varepsilon_0^2 \cdot F_J}{16} [\exp\{(\beta_J - \beta_{J-2}) \cdot it\} \cdot C_{J-2}(t) + \exp\{(\beta_J - \beta_{J+2}) \cdot it\} \cdot C_{J+2}(t)], \quad (5)$$

$$\beta_J = E_J - \frac{\pi J(J+1)}{T_p}, \quad (6)$$

ただし、 $\Delta\alpha$ は分子の平行分極率と垂直分極率の差であり、 E_J は回転量子数 J の分子の遠心力歪みの項を含む回転エネルギーである。

式(5)の形は J の増減が 2 であること除けば、我々が既に一光子過程で議論してきた近似式と同一である。このため $J=J_0$ から時間発展する回転の確率分布が局在化する範囲は、以下の式を満たす範囲の J を求めることによって近似的に決定することができると考えられる。

$$\frac{\Delta\alpha \cdot \varepsilon_0^2 \cdot F_J}{16 |\beta_J - \beta_{J_0}|} \geq \frac{1}{2}. \quad (7)$$

【考察】本研究で示した式(7)は式(4)が一定値に近似できるという条件を前提としているため、頻繁に実験で用いられている N_2 などのターゲットに対してはそのままでは定量的な予測を与えない可能性がある。しかしながら各パラメータ間の比例・反比例関係はこの前提条件とは無関係であると考えられ、右辺の値を数値計算によって事前に導出しておけば、局在範囲の強度依存性を式(7)で説明できる可能性は大きい。また逆にアルカリハライドなどの回転周期の長い二原子分子においては式(4)を一定値とする前提条件がよく成立するため、右辺の修正無しでも有用な回転励起上限の見積もり方法となり得るものと期待できる。

【参考文献】

- [1] H. Abe, and Y. Ohtsuki, Phys. Rev. A, **83**, 053410 (2011)
- [2] J. P. Cryan, P. H. Bucksbaum, and R. N. Coffee, Phys. Rev. A, **80**, 063412 (2009)
- [3] S. Zhdanovich, C. Bloomquist, J. Floß, I. Sh. Averbukh, J. W. Hepburn, and V. Milner, Phys. Rev. Lett., **109**, 043003 (2012)
- [4] J. Floß, I. Sh. Averbukh, Phys. Rev. Lett., **113**, 043002 (2014)
- [5] 松岡雷士, 市原晃, 瀬川悦生, 横山啓一, 第 17 回理論化学討論会・名古屋 (2014)