

## 光パルス列による分子回転励起過程における

## 磁気量子数の影響の数理解析

(広島大院・工\*, 東北大院・情報科学\*\*) ○松岡 雷士\*, 瀬川 悦生\*\*

**A mathematical analysis on rotational excitation of diatomic molecules in a train of optical pulses including the effect of magnetic quantum number**

(Hiroshima Univ.\*, Tohoku Univ.\*\*\*) ○Leo Matsuoka\*, Etsuo Segawa\*\*

【序】分子回転周期に同期したテラヘルツ光パルス列による二原子分子の量子共鳴回転励起過程は、分子配向制御や同位体分離などへの幅広い応用が期待されている[1]。光パルス列によって誘起される連続的な回転励起と分布局在化のダイナミクスは数値計算による取扱いは容易であるが、原因と結果を直接つなぐ理論的な解釈が既往の研究によって得られているとは言い難く、目的に応じた最適なパルス列照射条件を求める際には未だに議論の混乱がしばしば生じている。

我々はこれまでにパルス列照射の初期条件から回転分布の時間発展に関する情報を数値計算無しで導出するための理論研究を行ってきた[2]。本研究ではこれまで均一と仮定して議論を簡略化していた遷移モーメントの  $JM$  依存性を考慮した数理モデルを対象とし、高い  $M$  を持つ回転シリーズ特有のダイナミクスについて議論する。特に、完全な量子共鳴を仮定した際に高い  $M$  のシリーズにおいて出現するソリトン状の回転分布の時間発展について数学的な根拠が得られたため、数値計算との比較も交えて発表する。

【数理解析】分子回転周期と完全に同期した直線偏光のテラヘルツ光パルス列の照射を想定する。テラヘルツ光が対象の分子の回転共鳴周波数を含む領域において均一な強度分布を持つことを仮定し、さらに遠心力歪みが無視できる条件、もしくは、位相制御によって完全に補償され得ることを想定する。時間依存シュレーディンガー方程式に回転波近似を施すと、以下の連立方程式を得ることが出来る。

$$-i \frac{d}{dt} C_{JM}(t) = \gamma \sqrt{\frac{J^2 - M^2}{(2J-1)(2J+1)}} C_{J-1,M}(t) + \gamma \sqrt{\frac{(J+1)^2 - M^2}{(2J+1)(2J+3)}} C_{J+1,M}(t), \quad (1)$$

ここで  $C_{JM}(t)$  は時間  $t$  における準位  $(J, M)$  の複素振幅であり、 $\gamma$  は分子の永久双極子モーメントと均一と仮定したテラヘルツ光のスペクトル強度の積である。

式(1)の時間発展を数理的に解析するために、まず古典的な隣接遷移過程を記述するために利用される Karlin-McGregor の定理[3]の量子力学への拡張を行う。式(1)においては遷移モーメントが時間に依存しないため、解析解を行列の  $\exp$  で表現することが出来ることを利用すると、以下の表現を導出できる。

$$C_{JM}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \exp(i\gamma tx) p_{J_0-M}(x) p_{J-M}(x) w(x) dx, \quad (2)$$

ここで  $J_0$  は時刻 0 における初期準位、 $p(x)$  は式(1)の行列要素に対応する直交多項式、 $w(x)$  は直交

関係が成り立つために必要となる重み関数である。既往の文献[4]より式(1)に対応する直交多項式は超球多項式であることがわかっている。超球多項式を用いて解析解を記述し、さらにいくつかの漸近近似を施すと、回転準位の励起に対応する確率変数は時間無限大において以下の密度関数  $\rho(x)$  を持つ確率分布に弱収束するという定理を得ることができる。

$$\rho(x) = \frac{2}{B(M+1, 1/2)} \cdot \frac{x^{2M+1} \cdot \left\{ q_{J_0-M}(\sqrt{1-x^2}) \right\}^2}{\sqrt{1-x^2}} \quad (3)$$

ここで  $B(z)$  はベータ関数、 $q_n(z)$  は規格化された超球多項式、また確率変数  $x$  は  $x=(J-M)/\gamma t$  として物理と対応している。

### 【数値計算との比較と考察】

図 1 に式(1)を数値計算によって時間発展させた結果と式(3)との比較例について示す。数値計算は  $\gamma t=500$  まで時間発展させている。数値計算結果は激しい振動成分を含んでいるが、スムージングによって平均化した分布は式(3)によって描かれる分布と非常によく一致する。

高い  $M$  のシリーズにおいて時間発展がソリトン状に観測されるのは式(3)の  $x^{2M+1}$  の影響であり、この影響は時間発展の初期準位には依存しない。初期準位によって影響を受けるのは分布の形状である。まず初期準位が偶数の場合は分布の右端が無限大に発散する形状となる。逆に奇数の場合は分布の右端が 0 に収束する。また分布に出現する山のピークの数は  $J_0-M$  が 0、もしくは 1 のときには一つであるが、 $J_0-M$  が 2 増えるごとにピーク数が 1 ずつ増加する。

数値計算結果の時間無限大の分布への収束速度は  $J_0-M$  と  $M$  の増加によって急激に遅くなっていく。例えば  $\gamma t=500$  の場合に  $(J_0-M, M)=(0,0)$  と  $(J_0-M, M)=(0,9)$  について比較を行うと、数値計算結果を適切にスムージングした分布と定理による分布の平均二乗誤差はおおよそ 100 倍の違いを示している。

また今回はテラヘルツ波のスペクトル強度を一定として遷移モーメントの  $JM$  依存性を考慮しているが、逆に遷移モーメントがどのような値を取るとしても、テラヘルツ波のスペクトル強度と遷移モーメントの積を今回のモデルと同様に制御することが出来れば、低い  $J$  の準位に分布を残さない回転分布移動の制御が可能となることが示されている。

### 【参考文献】

- [1] A. Ichihara, L. Matsuoka, E. Segawa, and K. Yokoyama, Phys. Rev. A **91**, 043404 (2015).
- [2] L. Matsuoka, Phys. Rev. A **91**, 043420 (2015).
- [3] F. A. Grünbaum, Probability, Geometry and Integrable Systems **55**, 241-260 (2007).
- [4] T. S. Chihara, “An introduction to orthogonal polynomials”, Dover Publications (2011).

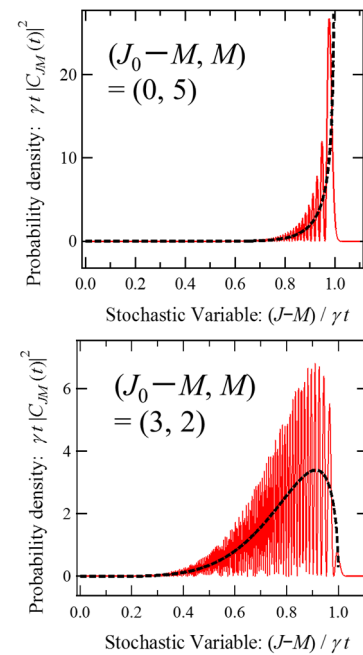


図 1. 数値計算結果との比較の例。実線が数値計算、破線が定理。