

## 最適非共鳴レーザーパルスによる同位体選択的な分子整列制御

<sup>1</sup>東北大院理, <sup>2</sup>京大エネ研

中島 薫<sup>1</sup>, 吉田将隆<sup>1</sup>, 中嶋 隆<sup>2</sup>, ○大槻幸義<sup>1</sup>

### Isotope-selective molecular alignment control by using optimal non-resonant laser pulses

Kaoru Nakashima<sup>1</sup>, Masataka Yoshida<sup>1</sup>, Takashi Nakajima<sup>2</sup>, ○Yukiyoshi Ohtsuki<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Department of Chemistry, Tohoku University, Japan*

<sup>2</sup> *Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Japan*

**【Abstract】** We apply pulse-energy-specified optimal control simulation to the C<sup>16</sup>O/C<sup>18</sup>O mixture to numerically design optimal pulses with the aim of isotope selective alignment. The selectivity is defined by the difference in the degree of alignment between the heavy isotopologue (H) and the light isotopologue (L). The optimal pulse consists of several subpulses, which are classified into three groups. The first group of the subpulses effectively excite the rotational wave packet without improving the selectivity. The second pulse selectively excite the target isotopologue (H) regardless of the other isotopologue (L). The final intense subpulse brings the wave packets to their target states to maximize the selectivity. We also propose the pulse-partitioning analyses, which show that the coherent and the incoherent inter-subpulse cooperation almost equally contributes to the improvement of the selectivity.

**【序】** 窒素 15 や酸素 18 など自然界での存在比が極めて小さな安定同位体は、分子の標識として医療などへも応用が進んでおり、効果的な分離法の開発が望まれる。同位体同士の化学的な性質はほとんど同じであるため、分離には物理的な性質のわずかな違い（同位体シフト）を利用する必要がある。量子干渉を利用すれば、波動関数の確率振幅を通して同位体シフトの効果的な増幅が期待できる。

例えば、2原子分子気体として存在する場合、回転定数の違いによる同位体選択的な整列制御の利用が考えられる。実際、同位体ごとに異なる分布が実現できれば、光イオン化の異方性を利用し、同位体選択的なイオン化が誘起できる。そこで本研究では、目的の同位体を含む分子をある方向に、他方をそれと直角な方向に整列制御させる [1]。気体分子の整列制御には、非共鳴レーザーパルス誘起の分極相互作用（回転ラマン散乱）が有効である。ただし単一レーザーパルスの照射では、パルスエネルギーを高めても整列度合いを高めるには限界があることが知られており、パルス列照射が必要である。そこで最適制御理論を用いて、同位体選択的な分子整列を実現するためのレーザーパルスを数値的に設計し、パルス構造から同位体選択に最適な制御機構を明らかにする。数値設計されたパルス列がどの程度量子干渉を利用しているかを定量化するため、パルス分割法を提案する [1]。

**【理論】** 具体例として <sup>12</sup>C<sup>18</sup>O/<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O（回転子モデル）の 1 : 1 混合物を考える。便宜上、<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O を H (Heavy isotope), <sup>12</sup>C<sup>16</sup>O を L (Light isotope) と表すことにする。直線偏光のレーザーパルスを仮定するとハミルトニアンは、

$$H_I(t) = B_I \hat{J}^2 - \frac{1}{4} \alpha(\theta_I) [\varepsilon(t)]^2, \quad \alpha(\theta_I) = (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \theta_I + \alpha_{\perp} \quad (I = H, L) \quad (1)$$

となる。（ $B_I$  : 回転定数,  $\hat{J}$  : 角運動量演算子,  $\varepsilon(t)$  : レーザーパルスの包絡線,

$\alpha_{\parallel}, \alpha_{\perp}$  : 分極率の分子軸平行・垂直成分,  $\theta_1$  : 分子軸とレーザーの偏光ベクトルのなす角) 密度演算子  $\rho_H(t)$ ,  $\rho_L(t)$  ( $\text{Tr}\{\rho_1(t)\}=1$ とする) は以下の Liouville 方程式に従う。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho_1(t) = [H_1(t), \rho_1(t)], \quad \rho_1(t=0) = \rho_1^0 \quad (\text{ボルツマン分布}) \quad (2)$$

制御目的として H を偏光方向に整列, L を反整列とする。同位体選択的な整列度合いを表す量として, 次式で定義される選択の度合い  $\Delta(t)$  を導入する。

$$\Delta(t) = \text{Tr}\{\rho_H(t) \cos^2 \theta_H\} - \text{Tr}\{\rho_L(t) \cos^2 \theta_L\} \quad (3)$$

最適パルスは  $\Delta(t)$  を最大にするパルスとして定義される。変分法を適用することで, 最適パルスが従う非線形の連立微分方程式 (パルス設計方程式) が導かれる。レーザーパルスのエネルギーを指定した単調収束アルゴリズムを適用しシミュレーションする [2,3]。

**【結果・考察】** ここでは回転温度  $T=10$  K, パルスフルエンス  $4.5 \text{ J/cm}^2$  を仮定した。 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$  の回転定数の逆数で定義される回転周期 (8.7 ps) を単位に時間を示す。単一のガウスパルスを照射した場合, 回転波束の性質および同位体シフトのため, 10~11 周期において「H が整列, L が反整列」のタイミングが現れる。これを念頭に, 制御時間を 13 周期にし, (3) 式の選択度合いを最大にする最適パルスを設計する。

図 1 に結果を示す。最適なパルス列は同じフルエンスで選択度合いを 0.56 (単一ガウスパルスと比較して 20% 増加) まで高めている。図 1 に示すように, 最適パルスは役割に応じて①, ②, ③の 3 つに分類できる。①は 3 つのサブパルスからなり, 両方の同位体の回転励起を促進する[2]。②のサブパルスの間隔は  $^{12}\text{C}^{18}\text{O}$  の回転周期に一致しており, 一方の同位体だけを選択的に励起する [4]。③の最後のパルスは目的時刻  $t_f$  で 2 つの整列度合いが山・谷となるように  $t_f$  の 1.5 周期前に現れる。

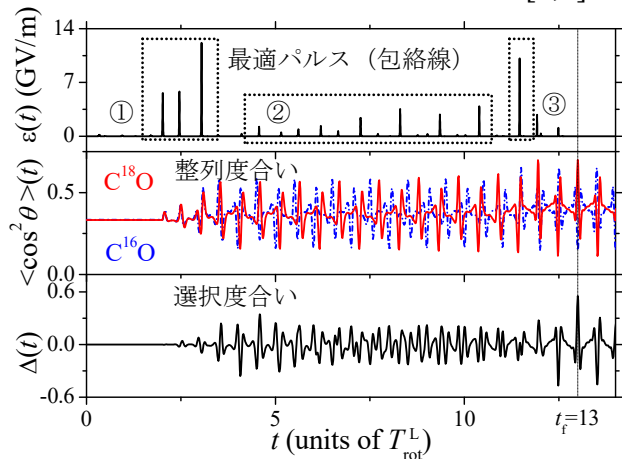
次に, 最適パルス中のサブパルスがどの程度量子干渉を利用しているかを解析する。Liouville 空間での時間発展演算子を用いると, 密度演算子の形式解は

$$\rho_1(t_f) = G(t_f, 0) \rho_1(0) = G(t_N, t_{N-1}) \cdots G(t_n, t_{n-1}) \cdots G(t_1, t_0) \rho_1(0) \quad (t_N = t_f, \quad t_0 = 0) \quad (4)$$

と表せる。ここで  $n$  番目のサブパルスの寄与が  $G(t_n, t_{n-1})$  に含まれるように, 時刻を分割したとする。自由時間発展演算子を用いた恒等式  $G(t_n, t_{n-1}) = \delta G(t_n, t_{n-1}) + G_0(t_n - t_{n-1})$  を利用すれば,  $\delta G(t_n, t_{n-1})$  がサブパルスからの寄与を表す。この関係を(4)式に代入することで, 単一パルスの独立した寄与の和, 2パルスの量子干渉...などに分類できる。数値計算の結果, 図 1 の例では量子干渉の寄与は約 50% であると見積もられる [1]。

### 【参考文献】

- [1] K. Nakashima, M. Yoshida, T. Nakajima, and Y. Ohtsuki, *Mol. Phys.* **115** 1730 (2017).
- [2] H. Abe and Y. Ohtsuki, *Phys. Rev. A* **83**, 053410 (2011).
- [3] M. Yoshida and Y. Ohtsuki, *Phys. Rev. A* **90**, 013415 (2014).
- [4] J. Floß and I. Sh. Averbukh, *Phys. Rev. A* **86**, 021401(R) (2012).



**Fig. 1.** (a) Optimal pulse (envelope function), (b) time evolution of degrees of alignment, and (c) that of selectivity,  $\Delta(t)$ .