

## 二光子過程を含む同位体選択的振動回転励起の量子制御

<sup>1</sup>量研機構, <sup>2</sup>原子力機構  
○黒崎 譲<sup>1</sup>, 横山 啓一<sup>2</sup>

### Quantum control of isotope-selective rovibrational excitations including two-photon processes

○Yuzuru Kurosaki<sup>1</sup>, Keiichi Yokoyama<sup>2</sup>

<sup>1</sup> *Quantum Beam Science Research Directorate, Takasaki Advanced Radiation Research Institute, National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology, Japan*

<sup>2</sup> *Materials Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency, Japan*

**【Abstract】** We investigate laser-controlled mechanisms of isotope-selective rovibrational excitations for diatomic molecules in relatively strong electric fields on the basis of the Hamiltonian including both the one-photon and two-photon field-molecule interaction terms. Optimal control theory (OCT) calculations are carried out for the fifty-fifty mixture of diatomic isotopologues,  ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$  and  ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ , and the electric fields that best realize isotope-selective excitations are obtained. Three isotope-selective controls, i.e., pure vibrational, pure rotational, and vibrational-rotational excitations, are considered and two total times ( $T$ 's), 1280000 and 2560000 a.u. (31.0, and 61.9 ps), are chosen for all the three excitations. We thus obtain optimal fields that can successfully realize the isotope-selective rovibrational excitations in relatively strong electric fields; the final yields for the three excitations are calculated to be 0.6 – 0.8 for  $T = 1280000$  a.u. and 0.8 – 0.9 for  $T = 2560000$  a.u.

**【序】** 本研究では、比較的強い電場による同位体選択的振動回転励起の量子制御について考察する。ここでは二種の同位体分子 ( ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$  と  ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ) の 1:1 混合気体を考え、一方の同位体分子のみの振動回転状態を選択的に励起するレーザーパルスを最適制御理論により求める。以前我々[1]は同じ系の量子最適制御計算を行い、高効率でターゲット状態への遷移を実現する最適電場を見出した。しかしながら、相互作用ハミルトニアンとして一光子過程しか考慮していなかった。本計算では同じ系について、一光子、二光子過程をともに考慮し量子最適制御計算を行う。初期状態は両同位体分子の振動回転の基底状態( $\nu=0, J=0$ )とする。ターゲット状態については、振動励起では  ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$  ( $\nu=1, J=0$ ) ;  ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$  ( $\nu=0, J=0$ )、回転励起では  ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$  ( $\nu=0, J=2$ ) ;  ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$  ( $\nu=0, J=0$ )、振動回転励起では  ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$  ( $\nu=1, J=2$ ) ;  ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$  ( $\nu=0, J=0$ )とする。パルスの全時間( $T$ )は 1280000, 2560000 a.u. (31, 61.9 ps)に設定する。

**【方法 (理論)】** 本計算では最適制御理論(Optimal Control Theory, OCT)[2]に基づき、以下の汎関数  $J$  を最大にする電場を求める :

$$J = \sum_A p_A \langle \psi_A(T) | O_A | \psi_A(T) \rangle - \alpha \int_0^T dt \varepsilon(t)^2 - 2 \sum_A p_A \text{Re} \left[ \int_0^T dt \left\langle \chi_A(t) \left| \frac{\partial}{\partial t} + iH^A(R, \theta, \varepsilon(t)) \right| \psi_A(t) \right\rangle \right] \quad (1)$$

右辺第一項は波動関数  $\psi_A(t)$  のターゲット状態  $\Phi_A$  への遷移確率の和を表し ( $O_A = |\Phi_A$

$\langle \Phi_A |$ ),  $p_A$  は同位体  $A$  の存在確率である。第二項は電場  $\epsilon(t)$  のフルエンスに対するペナルティ項で、 $\alpha$  は正の数である。第三項は  $\psi_A(t)$  が Schrödinger 方程式を満たすという拘束条件に起因する項で、 $\chi_A(t)$  は Lagrange 未定乗数である。 $H^A$  は同位体  $A$  の Hamiltonian で電場との相互作用部分には一光子および二光子過程を含む。ここでは  $\psi_A(t)$ ,  $\chi_A(t)$ ,  $\epsilon(t)$  それぞれに関して  $\delta J = 0$  の条件より得られる方程式を  $J$  値が収束するまで繰り返し解き、最適電場を得る。本計算では核波動関数を動径・角度部分に変数分離し、二次元の時間依存 Schrödinger 方程式をグリッド法で数値的に解く。動径方向のグリッド数を 32、角度方向のそれを 20 とする。計算に必要なポテンシャル、双極子モーメント、分極率は過去に MRSDCI 法により得られた値[3]を用いる。

**【結果・考察】** Table 1 に OCT 計算の結果をまとめる。yield は式(1)第一項の値で、最適電場によるターゲット状態への遷移確率である。まず振動励起については、 $T = 1280000$  a.u. のとき yield は 0.781 となったが、 $T = 2560000$  a.u. では 0.930 と増加した。最適電場のスペクトル解析から、 $T = 1280000$  a.u. のとき二光子吸収が主な制御機構であるが、ラマン過程や一光子過程の寄与もあることがわかった。一方  $T = 2560000$  a.u. のときはラマン過程の寄与は非常に小さい。回転励起については、 $T = 1280000$  a.u.,  $2560000$  a.u. のときの yield はそれぞれ 0.673, 0.925 となった。制御機構は両方の  $T$  で二光子吸収が主であり、ラマン過程や一光子過程の寄与はほとんどないことがわかった。振動回転励起については、 $T = 1280000$  a.u.,  $2560000$  a.u. のときの yield はそれぞれ 0.603, 0.823 となり、振動励起、回転励起のそれより小さい。制御機構は両方の  $T$  で二光子吸収が主で一光子過程の寄与もわずかにあるが、ラマン過程はほとんど寄与しないことがわかった。

**Table 1.** Yields and properties of the resultant optimal electric fields

$T$ / a.u.	$\alpha$	$\omega_l$ / a.u. <sup>a</sup>	$\omega_h$ / a.u. <sup>b</sup>	Max. field amp. / a.u.	Fluence / a.u.	Yield
Vibrational excitation: ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ ); ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ ) $\rightarrow$ ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ ( $\nu = 1, J = 0$ ); ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ )						
1280000	0.75	0.001	0.05	$7.784 \times 10^{-3}$	13.546	0.781
2560000	10.0	0.001	0.05	$3.123 \times 10^{-3}$	4.420	0.930
Rotational excitation: ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ ); ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ ) $\rightarrow$ ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 2$ ); ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ )						
1280000	0.5	$1.0 \times 10^{-6}$	$1.0 \times 10^{-3}$	$5.067 \times 10^{-3}$	6.004	0.673
2560000	0.1	$1.0 \times 10^{-6}$	$1.0 \times 10^{-3}$	$5.026 \times 10^{-3}$	12.004	0.925
Vibrational-rotational excitation: ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ ); ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ ) $\rightarrow$ ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ ( $\nu = 1, J = 2$ ); ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ ( $\nu = 0, J = 0$ )						
1280000	1.0	$7.5 \times 10^{-4}$	1.0	$2.649 \times 10^{-3}$	1.559	0.603
2560000	50.0	$7.5 \times 10^{-4}$	1.0	$3.645 \times 10^{-3}$	5.663	0.823

<sup>a</sup>Lower cutoff frequency. <sup>b</sup>Higher cutoff frequency

### 【参考文献】

- [1] Y. Kurosaki and K. Yokoyama, Chem. Phys. **493**, 183 (2017).  
 [2] S. Shi and H. Rabitz, J. Chem. Phys. **92** (1990) 364.  
 [3] Y. Kurosaki and K. Yokoyama, J. Chem. Phys. **137**, 064305 (2012).