

パルスレーザー場を用いた多準位系量子制御の断熱描像による解析

(慶大理工) 常盤浩太郎、菅原道彦、藪下聡

【序】分子とレーザーのコヒーレントな相互作用を利用した量子制御法は分子の量子状態分布の反転、移動を実現するための有用な手段である。型3準位系については、パルスレーザー場を用いた制御法である STIRAP がよく知られている。この制御法は中間準位に分布が存在しないため、中間準位に付随する緩和による分布の損失を回避することができる。本研究では、図1に示すはしご型4準位系[1]に対して、中間準位|2>および|3>に分布を介さずに初期準位|1>から目的準位|4>まで遷移させるためのレーザー場が満たす条件を、断熱状態を解析することにより検討した。

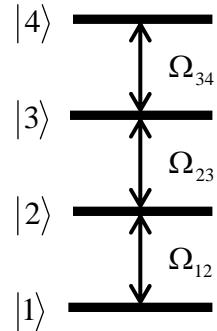


図1 はしご型
4準位モデル系

【理論】図1に示すように、はしご型4準位系は準位|1>-|2>, |2>-|3>, |3>-|4>間で、それぞれ分子とレーザー場と時間 t に依存する相互作用 $\Omega_{12}(t)$, $\Omega_{23}(t)$, $\Omega_{34}(t)$ を通して遷移が許容されている。このとき、ハミルトニアン行列は、

$$H(t) = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{12}(t) & 0 & 0 \\ \Omega_{12}(t) & 0 & \Omega_{23}(t) & 0 \\ 0 & \Omega_{23}(t) & 0 & \Omega_{34}(t) \\ 0 & 0 & \Omega_{34}(t) & 0 \end{pmatrix} \quad (1)$$

と表される。断熱状態 $|\Phi_\nu(t)\rangle$ は(1)のハミルトニアン中の t をパラメーターとみなして固有値問題、

$$H(t)|\Phi_\nu(t)\rangle = E_\nu(t)|\Phi_\nu(t)\rangle \quad (\nu = \text{I, II, III, IV}) \quad (2)$$

を解くことによって定義される。この断熱基底を用いて波動関数を $\Psi(t) = A_\nu(t)|\Phi_\nu(t)\rangle$ と展開すると、展開係数 $A_\nu(t)$ が満たす時間依存のシュレディンガー方程式は、固有値 $E_\nu(t)$ を用いて、

$$\frac{d}{dt} \begin{bmatrix} A_{\text{I}}(t) \\ A_{\text{II}}(t) \\ A_{\text{III}}(t) \\ A_{\text{IV}}(t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -iE_{\text{I}}(t) & \frac{-\dot{\theta}(t) - \dot{\varphi}(t)}{2} & \frac{\dot{\theta}(t) - \dot{\varphi}(t)}{2} & 0 \\ \frac{\dot{\theta}(t) + \dot{\varphi}(t)}{2} & -iE_{\text{II}}(t) & 0 & \frac{-\dot{\theta}(t) + \dot{\varphi}(t)}{2} \\ -\frac{\dot{\theta}(t) + \dot{\varphi}(t)}{2} & 0 & -iE_{\text{III}}(t) & \frac{\dot{\theta}(t) + \dot{\varphi}(t)}{2} \\ 0 & \frac{\dot{\theta}(t) - \dot{\varphi}(t)}{2} & \frac{-\dot{\theta}(t) - \dot{\varphi}(t)}{2} & -iE_{\text{IV}}(t) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A_{\text{I}}(t) \\ A_{\text{II}}(t) \\ A_{\text{III}}(t) \\ A_{\text{IV}}(t) \end{bmatrix} \quad (3)$$

と書くことができる。ここで、 $\theta(t)$ および $\varphi(t)$ は $\Omega_{12}(t)$, $\Omega_{23}(t)$, $\Omega_{34}(t)$ に依存する関数である。レーザとの相互作用が緩やかに時間変化する場合、すなわち $d\Omega_{12}(t)/dt$, $d\Omega_{23}(t)/dt$, $d\Omega_{34}(t)/dt$ が小さければ $\dot{\theta}(t), \dot{\varphi}(t)$ も小さくなるため、断熱条件 $|E_{\text{I}}(t)|, |E_{\text{IV}}(t)| \gg |(\dot{\theta}(t) + \dot{\varphi}(t))/2|, |(\dot{\theta}(t) - \dot{\varphi}(t))/2|$ が成り立ち、断熱状態 $|\Phi_\nu(t)\rangle$ は互いに混じり合うことなく独立に時間発展する。今、 $\Omega_{34}(t)$, $\Omega_{23}(t)$, $\Omega_{12}(t)$ の順にレーザーを照射する条件の下で初期状態|1>

[1]Y. B. Band, P. S. Julienne, *J. Chem. Phys.* 95, 5685, (1991)

は $A_{II}(0) = 1/\sqrt{2}$, $A_{III}(0) = -1/\sqrt{2}$ と展開され、断熱近似が有効である限り、時間発展の最中に $|A_{II}(t)|^2 = |A_{III}(t)|^2 = 1/2$ および $A_I(t) = A_{IV}(t) = 0$ が保たれる。したがって、初期状態 $|1\rangle$ の下で(3)式を解くにあたり、

$$\frac{d}{dt} A_{II}(t) = -iE_{II}(t)A_{II}(t) \quad A_{III}(t) = -A_{II}^*(t) \quad (4)$$

のみを考慮すればよい。(4)式を用いて初期準位 $|1\rangle$ から目的準位 $|4\rangle$ へ遷移させるための条件

$$-\int_0^t E_{II}(t')dt' = \int_0^t E_{III}(t')dt' = \pi/2 \quad (5)$$

が求められる。これは固有値 $E_{II}(t)$, $E_{III}(t)$ が(5)式を満たすように $\Omega_{12}(t)$, $\Omega_{23}(t)$, $\Omega_{34}(t)$ を設計する必要があることを意味している。また、中間準位 $|2\rangle$ および $|3\rangle$ の確率振幅 $c_2(t)$, $c_3(t)$ の時間発展は、

$$\begin{aligned} c_2(t) &= -i\sqrt{2} \cos[\varphi(t)] \text{Im}[A_{II}(t)] \\ c_3(t) &= -\sqrt{2} \sin[\theta(t)] \text{Re}[A_{II}(t)] \end{aligned} \quad (6)$$

と近似的に表すことができる。中間準位 $|2\rangle$ と $|3\rangle$ を介さずに分布を遷移させるためには、 $c_2(t)$ は $\cos[\varphi(t)]$ と $\text{Im}[A_{II}(t)]$ の積から成っているので、 $c_2(t)$ を常に小さく保つにはそれらが重ならず打ち消しあうようになることが望ましい。 $\Omega_{34}(t)$, $\Omega_{23}(t)$, $\Omega_{12}(t)$ の順にレーザーパルスを照射する条件下では、振幅が $\Omega_{12}(t)$, $\Omega_{34}(t) \ll \Omega_{23}(t)$ であるとき、 $\cos[\varphi(t)]$ と $\text{Im}[A_{II}(t)]$ との重なりが少なくなる。また、この条件下では $\sin[\theta(t)]$ と $\text{Re}[A_{II}(t)]$ の重なりも少なくなるので、 $c_3(t)$ も小さく保たれ、中間準位 $|2\rangle$ と $|3\rangle$ を分布が介さなくなるように制御できる。

【結果】上記の条件を満たすレーザーパルスと分子との相互作用として、 $\Omega_{12}(t) = 2.4 \exp[-(t-65)^2/15^2]$, $\Omega_{23}(t) = 12 \exp[-(t-50)^2/15^2]$, $\Omega_{34}(t) = 2.4 \exp[-(t-35)^2/15^2]$ を選び、(1)式のハミルトニアンを用いて時間依存のシュレディンガー方程式を数値的に解いたところ、図2のように中間準位に分布をさせずに $|1\rangle$ から $|4\rangle$ へとほぼ 100% の分布遷移を達成することが出来た。また、(3)式を数値的に解いて得られた $\theta(t)$, $\varphi(t)$, $A_{II}(t)$ の各成分の時間発展を図3

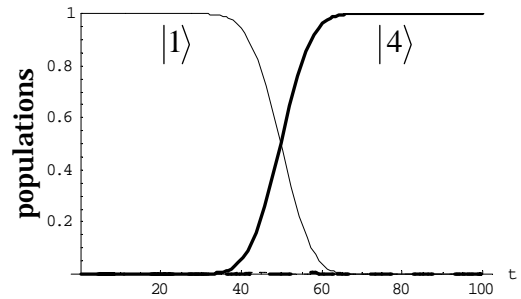


図2 準位分布の時間発展

に示した。 $c_2(t)$ を構成する $\cos[\varphi(t)]$ と $\text{Im}[A_{II}(t)]$ の重なりは小さく、 $c_3(t)$ においても $\sin[\theta(t)]$ と $\text{Re}[A_{II}(t)]$ について同様であるため、中間準位への分布が抑えられていることがわかる。

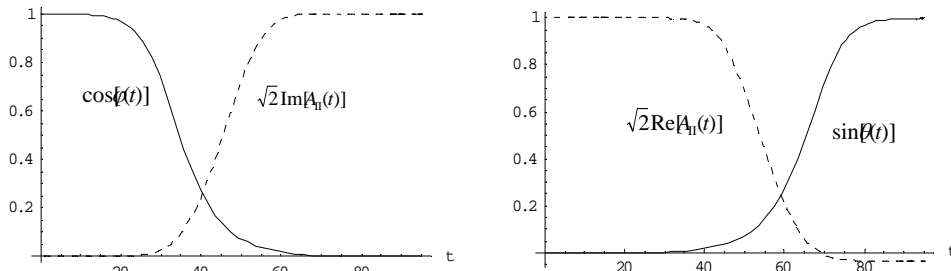


図3 $\theta(t)$, $\varphi(t)$, $A_{II}(t)$ の時間発展