

凝縮相中での分子整列制御に対する 最適制御シミュレーション

(東北大院理¹, JST-CREST²) 大槻幸義^{1,2}, 中上和幸¹

【序】 分子整列・配向制御は巨視的に異方性のある量子系を実現する。そのような系の実現は、化学反応制御、高次高調波発生の制御から回転量子ビットに対するゲート操作など、さまざまな応用にとって重要である。分子整列・配向制御には大きく分けて2つの方法(断熱法・非断熱法)が提案されている[1]。断熱法では、回転周期よりも十分長い時間幅を持ったレーザーパルスが使われる。レーザー電場により誘起される分極相互作用を利用することで「振り子状態」を生成し、電場照射下において分子整列・配向を保持する。一方、非断熱法では回転周期よりも十分に短いレーザーパルスを照射することで回転波束を生成し、分子を整列・配向させる。デコヒーレンスが無視できる場合、レーザー電場照射後も回転エネルギー構造に由来したタイミング(リバイバル)で、回転波束は繰り返し高い整列・配向状態を示す。非断熱法を利用した分子整列制御法としては例えば、時間間隔を最適化した短パルス列照射による整列度合いの増幅法なども報告されている[2]。これらの理論解析においては、レーザー電場誘起の双極子相互作用が仮定されている。即ち、パルスの搬送波に関して平均化した相互作用を前提にしており、分子はパルス包絡線関数に追従する。

我々はレーザーパルスの振動数や位相を利用し、分子を高い確率で整列・配向させるコヒーレント制御法を最適制御シミュレーションにより解析している[3, 4]。そのような制御例として、既に、誘導ラマンポンピングの重要性や整列保持におけるトンネリングコヒーレント破壊機構(CDT: coherent destruction of tunneling)などを見出している。分子整列・配向における誘導ラマンポンピングの重要性は(最適制御)実験の結果とも一致する[5, 6]。

本研究では、凝縮相中での分子整列・配向制御における緩和の影響を最適制御法により数値解析する[7]。非マルコフマスター方程式を用いて、緩和が制御機構に及ぼす影響を系統的に解析する[8]。シミュレーションには、我々の開発した対称分割最適制御シミュレーション法を非マルコフ緩和へ拡張したアルゴリズムを使用する。

【理論】 極性分子の例として、HCN 剛体モデルを考える。電気双極子モーメント(μ)および分極(α)を通して直線偏光パルス電場 $E(t)$ と相互作用する。電場の偏光方向と分子軸のなす角を θ とすると、ハミルトニアンは次のように表される。

$$H_0 = B\hat{J}^2 - \mu E(t) \cos \theta - \frac{1}{2}(\Delta\alpha \cos^2 \theta + \alpha_{\perp})E^2(t) \quad (1)$$

但し、分極の分子軸に対して平行・垂直成分を α_{\parallel} , α_{\perp} (両者の差を $\Delta\alpha$) と表した。

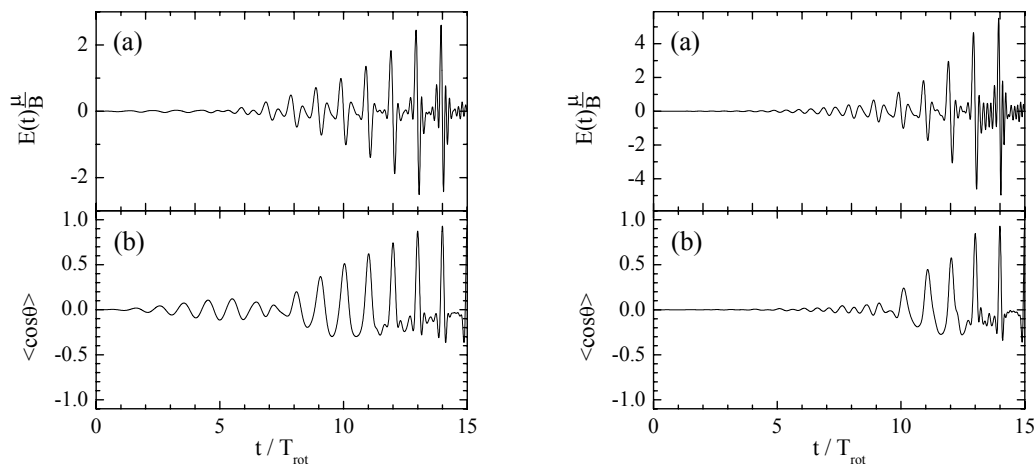
系の状態を密度演算子 $\rho(t)$ を使って表す。系は指数関数の記憶項をもった非マルコフマスター方程式に従うものとする(以下、時間の単位として回転周期 13ps を用いる)。

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = -\frac{i}{\hbar} [H_0, \rho(t)] - \int_0^t dt' \gamma e^{-|t-t'|/\tau} \rho(\tau) \quad (2)$$

ここでは結合パラメータ $\gamma=0.005$ と記憶時間 $1/\tau=0.5$ で特徴付けられる非マルコフ緩和を考える。

最適制御シミュレーションにおいては、制御目的を表す演算子 X (ターゲット演算子とよぶ) を導入する。 $\cos \theta$ は配向の度合いを表すのにしばしば用いられるので、 $X = \cos \theta$ をターゲット演算子に選ぶ。最適パルスは、「ターゲット演算子の期待値をある指定時刻に最大にするパルス」として定義される。そのような電場は運動方程式の拘束条件(2)のもとで、変分法を使って求めることができる。その結果得られる電場設計方程式(非線形の連立微分方程式)を、我々が開発した対称分割アルゴリズムを使って数値的に解きシミュレーションを行う[3, 8].

【結果】 左図が(a)最適パルスと(b) $\cos \theta$ の期待値の時間発展である。右図に同じカップリングパラメータにおけるマルコフ極限の結果を示す(時間の単位は回転周期 13ps).



終時刻におけるターゲット演算子の期待値は、いずれの場合も約 95%と求まった。非マルコフ緩和の場合、有限の環境体コヒーレンス時間を利用することで約半分の強度でマルコフ極限とほぼ同じ制御達成度を得ている。また、ここで得られた制御達成度は、気相中の結果とほぼ同じである。即ち、ある程度の緩和の強さまでならば、制御パルス強度を高めることで、緩和の影響がない場合とほぼ同様の制御が可能である。

以上の結果から凝縮相であっても分子整列・配向に対するコヒーレント制御は有効であることが分かる。応用として、等方的媒質中に非等方的分布をつくりそれを通して環境情報を検出する方法やパラ水素固体における分子回転量子ビットの可能性などが考えられる。

[参考文献]

- [1] H. Stapelfeldt and T. Seideman, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 543 (2003).
- [2] M. Leibscher, I. Sh. Averbukh, and H. Rabitz, *Phys. Rev. A* **69**, 013402 (2004).
- [3] Y. Ohtsuki and K. Nakagami, *Phys. Rev. A* **77**, 033414 (2008).
- [4] K. Nakagami, Y. Mizumoto, and Y. Ohtsuki, *submitted to Phys. Rev. A*.
- [5] H. Hasegawa and Y. Ohshima, *Phys. Rev. A* **74**, 061401(R) (2006).
- [6] T. Suzuki, Y. Sugawara, S. Minemoto, and H. Sakai, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 033603 (2008).
- [7] Y. Ohtsuki et al., *J. Chem. Phys.* **120**, 5509 (2004); Y. Ohtsuki et al., *Phys. Rev. A* **75**, 033407 (2007).
- [8] Y. Ohtsuki, *J. Chem. Phys.* **119**, 661 (2003).