

Theoretical designing of laser pulse sequence for controlling dephasing dynamics

(Department of Fundamental Science and Technology, Graduate School of Science and Technology, Keio University) M. Sugawara

【序】レーザーによる多原子分子の振動ダイナミクスの量子制御を困難にしている主な要因として、振動位相緩和の存在が挙げられる。本研究では、位相緩和過程の代表例である分子内振動エネルギー再分配 (Intramolecular Vibrational Relaxation = IVR) の初期過程において、一旦乱れた固有状態間の位相関係の回復を可能とするレーザーパルス列の設計を試みる。この際、2準位系動力学の解釈に使用されるブロッホベクトルモデルを多準位系に拡張し、フォトンエコー等における位相回復手法の描像を設計の指針とする。

【理論】図1の様な Bixon-Jortner (BJ)モデル準位系を考える。初期状態 $|i\rangle$ と光学遷移が許容である中間状態 $|m\rangle$ がレーザー場 $u(t)$ と結合し、 $|m\rangle$ は等間隔 $\varepsilon$ で分布しているバックグラウンド準位 $\{|B_j\rangle\}$ と強度 $v$ で結合している。また、照射するレーザー、 $u(t) = u_0 \cos[\omega t + \delta]$  (初期位相 $\delta$ )の角振動数 $\omega$ は $|i\rangle \leftrightarrow |m\rangle$ 遷移に共鳴している。以下の手順に従って位相緩和制御を実現するパルス列を設計する。

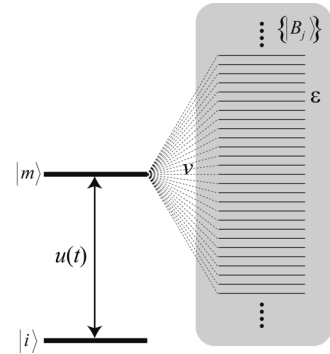


図1 Bixon-Jortner モデル準位系[1]

《手順1：ブロッホベクトルの定義》

分子固有状態 $\{|\phi_j\rangle\}$ を用いて、系の状態を $|\Psi(t)\rangle = a|i\rangle + \sum_j c_j(t)|\phi_j\rangle$ と表す。この時、 $b = \sqrt{1-a^2}$ 、 $\alpha_j = \arg[a_j]$ 、 $\beta_j = \arg[c_j]$ を用いて、 $j$ 番目のブロッホベクトルを $\mathbf{B}_j = (ab \cos[\alpha - \beta_j], -ab \sin[\alpha - \beta_j], (a^2 - b^2)/2)$ と定義する。

《手順2：制御レーザーパルスの設計とその最適化》 $n$ 個のパルス列照射下における系の時間発展演算子 $\tilde{U}_{\text{seq}}^{(n)}(t)$ を、 $\tilde{U}_{\text{seq}}^{(n)}(t) = \tilde{U}_{\text{free}}(t) \prod_{i=1}^n \tilde{U}_{\text{free}}(\tau^{(i,i-1)}) \tilde{U}_{\text{opt}}(\Delta t^{(i)}, \delta^{(i)})$ と定める。ここで、 $\tilde{U}_{\text{opt}}(\Delta t, \delta)$ と $\tilde{U}_{\text{free}}(\tau)$ はそれぞれ、パルス照射中、パルス間の時間発展演算子である。また、 $\Delta t^{(i)}, \delta^{(i)}$ は $i$ 番目のパルス持続時間及び初期位相、 $\tau^{(i,i-1)}$ は $i-1$ 番目と $i$ 番目のパルス間の時間間隔を表す。初期状態 $|i\rangle$ にパルス列を照射した後の系の状態は $|\tilde{\Psi}(t)\rangle \equiv \tilde{U}_{\text{seq}}^{(n)}(t)|i\rangle$ で与えられるため、任意の目標状態 $|f\rangle$ との差 $|\delta\Psi\rangle \equiv |f\rangle - |\Psi\rangle$ を関数 $I(t', \dots, \tau^{(i,i-1)}, \Delta t^{(i)}, \dots) = \langle \delta\Psi | \delta\Psi \rangle \geq 0$ で評価し、 $I$ を最小化することにより制御パルス列のパラメータ $(t', \dots, \tau^{(i,i-1)}, \Delta t^{(i)}, \dots)$ の最適化を実行する。

【結果】BJモデル系のパラメータを $v = 0.01$ 、 $\varepsilon = 0.01$ 、 $\alpha = 0.0$ 、光学過程の相互作用強度を $u_0 \mu_{ge} = 1$ とした。上述のブロッホベクトルの定義によると状態 $|i\rangle$ は $z$ 軸方向の単位ベクトル $(0, 0, 1)$ の集合に対応し、 $|i\rangle$ に $\pi/2$ パルス照射することによって生成する重ね合わせ状態 $|f\rangle \equiv (|i\rangle + |m\rangle)/\sqrt{2}$ は $(0, -1, 0)$ の集合として表現される (図2(a)参照)。この状態 $|f\rangle$ は状態 $|m\rangle$ に起因する位相緩和を伴い、準位分布は $\pi/2$ パルス照射後時間と共にバックグラウンド状態へ流出する。この過程は、ブロッホベクトル $\{\mathbf{B}_j\}$ が $xy$ 平面上に扇状に広がることに対応する (図2(b)参照)。そこで、この状態に制御パルス列を照射し、 $\pi/2$ パルスを照射直後の重ね合わせ状態 $|f\rangle$ を再生させることを試みた。1つ目の例である《タイプ1》のパルス列は、フォトンエコーに類似の制御描像に基づいたもので、図2(b)の状態にパルス持続時間が $2\pi$ である矩形パルスを照射することによって実現される。この $2\pi$ パルスによって、扇状に広がった

ブロッホベクトルは  $x$  軸まわりに  $360$  度回転するが、回転後の扇の広がり方は照射前と比較すると  $y$  軸に対して対称に位置している。このため、 $2\pi$  パルス照射後一定時間 (図 2 (b)と同じ時間) 経過したところで、ベクトルは再び収束し緩和過程が起こる前の状態  $|f\rangle$  を回復する。

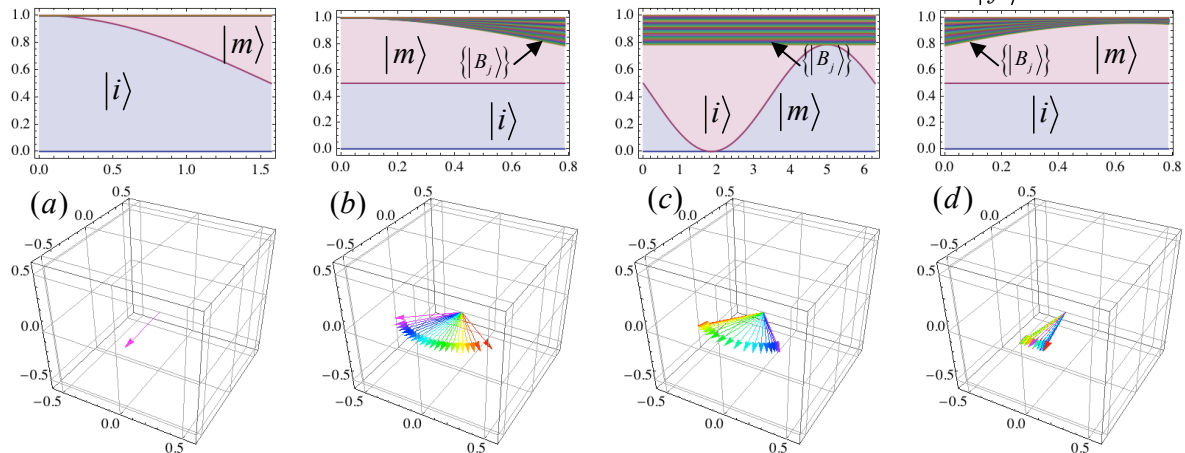


図2 《タイプ1》のパルス列照射：初期状態  $|i\rangle$  に順番に以下の演算子(a)~(d)を演算した場合の準位分布の時間変化 (上段)、及び各ステージの終時刻におけるブロッホベクトル (下段)：(a)  $\tilde{U}_{\text{opt}}(\pi/2, 0)$ , (b)  $\tilde{U}_{\text{free}}(\pi/4)$ , (c)  $\tilde{U}_{\text{opt}}(2\pi, 0)$ , (d)  $\tilde{U}_{\text{free}}(\pi/4)$

### 《タイプ2：初期位相、パルス間隔を数値的に最適化したパルス列》

パルス列として、互いに逆位相である2つのパルスをパルス時間幅  $p$ 、パルス間隔  $f$  で照射し、その後  $t'$  だけ時間発展させる時間発展演算子として  $\tilde{U}_{\text{free}}(t')\tilde{U}_{\text{opt}}(p, 0)\tilde{U}_{\text{free}}(f)\tilde{U}_{\text{opt}}(p, \pi)$  を採用し、 $I(t', p, f)$  の値が最小になる様に、パラメータを決定した。図 3 (a)~(f) に最適化されたパルス列照射中の準位分布及びブロッホベクトルの時間発展を示す。最適化された2つのパルスによって  $xy$  平面上に扇状に集められたブロッホベクトル (図 3 (e)参照) は《タイプ1》の場合と同様に自由時間発展  $\tilde{U}_{\text{free}}(t')$  によって再び収束し目標状態の  $|f\rangle$  にほぼ到達している。最適化の結果、目標状態への到達度は《タイプ1》よりも良好な結果が得られている。

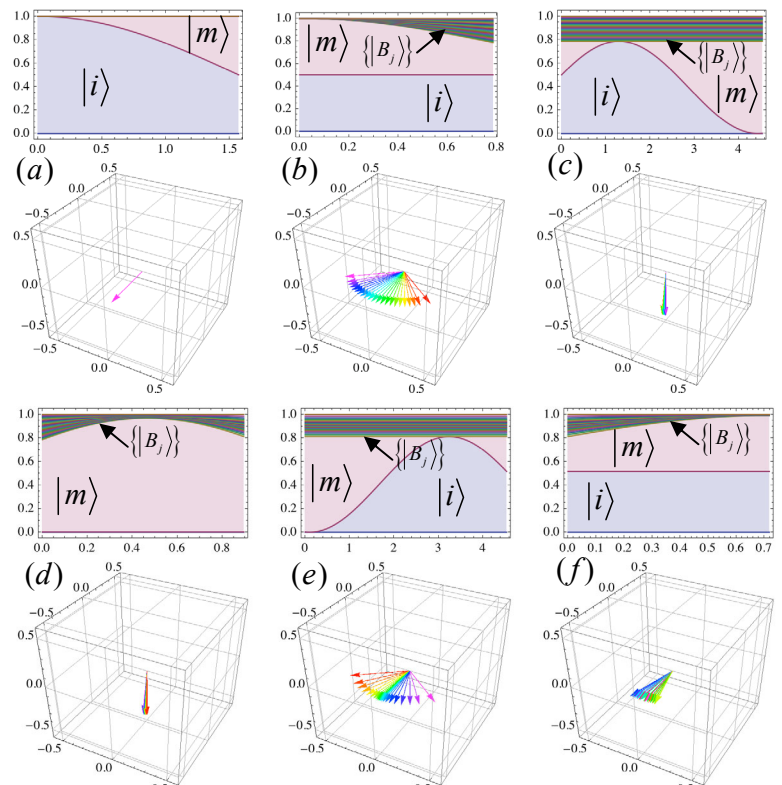


図3 《タイプ2》のパルス列照射：初期状態  $|i\rangle$  に順番に以下の演算子(a)~(f)を演算した場合 (パルスシーケンス照射下) での準位分布の時間変化、及び各ステージの終時刻におけるブロッホベクトル：(a)  $\tilde{U}_{\text{opt}}(\pi/2, 0)$ , (b)  $\tilde{U}_{\text{free}}(\pi/4)$ , (c)  $\tilde{U}_{\text{opt}}(p, \pi)$ , (d)  $\tilde{U}_{\text{free}}(f)$ , (e)  $\tilde{U}_{\text{opt}}(p, 0)$ , (f)  $\tilde{U}_{\text{free}}(t')$ ：(a)~(f)は各時間発展の終時刻でのブロッホベクトル

【参考文献】 [1] M. Bixon and J. Jortner, J. Chem. Phys., **48**, 715 (1968).