

4P100

局所制御理論による非極性直線分子の配列制御レーザー場設計

(慶大院・理工) ○菅原道彦

Theoretical designing of alignment control laser field for non-polar linear molecules by local control theory

(Keio Univ.) ○M. Sugawara

【序】レーザーを利用した分子の振動・配向状態の量子制御は、理論・実験の両面から注目を集めている。レーザー・分子間の相互作用として双極子近似が有効である分子系では、局所制御理論による制御場設計が可能である。一方で、非極性分子の配列制御等、レーザー場の2乗に比例する分極相互作用が重要である系では、動的シュタルクシフトを考慮する必要があり、通常の局所制御理論に基づいた定式化で扱うことが難しい。本研究では、制御レーザー場を主要振動数で振動する部分とそれに比べて十分にゆっくり変化するエンベロップ関数の積として表現することにより、局所制御理論によるレーザー場設計が可能であることを示す。

【理論】非極性分子のハミルトニアン \hat{H}_0 、分極演算子を $\hat{\alpha}$ 、制御入力レーザー場を $u(t)$ としたとき、全系のシュレディンガー方程式

$$\frac{d}{dt}|\Psi(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_0 - \hat{\alpha}u(t))|\Psi(t)\rangle, \quad (1)$$

と与えられる。但し、 $\hat{H}_0 = \sum E_i |i\rangle\langle i|$ (分子の回転固有状態： $\{|i\rangle\}$ 、固有エネルギー： $\{E_i\}$)。ここで、 $u(t)$ を次の形に規定する。

$$u(t) = \sum_{i \neq j} \sqrt{2u_{ij}^{(e)}(t)} \cos[\omega_{ij}t]. \quad (2)$$

ω_{ij} は状態 $|i\rangle$ と $|j\rangle$ の間の2光子遷移に関わるレーザー場の角振動数成分である。また、 $\sqrt{2u_{ij}^{(e)}(t)}$ は各成分のエンベロップ関数であり、その時間変化は ω_{ij} の時定数と比較して十分ゆっくりであるとする。(1)式中のハミルトニアンは

$$\hat{H}_0 - \hat{\alpha}u(t) = \hat{H}_0 + \hat{\alpha} \sum_{i \neq j} u_{ij}^{(e)}(t) + \hat{\alpha} \sum_{i \neq j} u_{ij}^{(e)}(t) \cos[2\omega_{ij}t] \quad (3)$$

と変形され、右辺第2項はエンベロップ関数の時間変化に依存する動的シュタルクシフトを生じさせる項である。ここで、エンベロップ変化について断熱的な描像を導入し、各時刻で $\hat{G}_0 \equiv \hat{H}_0 + \hat{\alpha} \sum_{i \neq j} u_{ij}^{(e)}(t)$ を対角化するユニタリ変換 \tilde{T} を導入する。演算子 $\tilde{F}_0 = \tilde{T}^\dagger \hat{G}_0 \tilde{T}$ 、 $\tilde{\beta} = \tilde{T}^\dagger \hat{\alpha} \tilde{T}$ 、及び新たな系の状態 $|\tilde{\Phi}(t)\rangle \equiv \tilde{T}^\dagger |\Psi(t)\rangle$ (但し、 $\tilde{F}_0 |\tilde{\phi}_i\rangle = \tilde{\lambda}_i |\tilde{\phi}_i\rangle$ ($i=0,1,\dots$))を導入するとシュレディンガー方程式(1)は、

$$\frac{d}{dt}|\tilde{\Phi}(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar}(\tilde{F}_0 - \tilde{\beta} \sum_{i \neq j} \tilde{u}_{ij}^{(e)} \cos[2\omega_{ij}t])|\tilde{\Phi}(t)\rangle \quad (4)$$

と変形できる。さらに、時間発展演算子 $\tilde{U}_0(t) \equiv \exp[-i\tilde{F}_0 t / \hbar]$ を用いて相互作用表示に移行する。すなわち、 $\bar{F}_0(t) = \tilde{U}_0^\dagger(t) \tilde{F}_0 \tilde{U}_0(t)$ 、 $\bar{\beta}(t) = \tilde{U}_0^\dagger(t) \tilde{\beta} \tilde{U}_0(t)$ 、 $|\bar{\Phi}(t)\rangle \equiv \tilde{U}_0^\dagger(t) |\tilde{\Phi}(t)\rangle$ を導入すると、(1)式は

$$\frac{d}{dt}|\bar{\Phi}(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar}\bar{\beta}(t)\sum_{i\neq j}\tilde{u}_{ij}^{(e)}\cos[2\omega_{ij}t]|\bar{\Phi}(t)\rangle \quad (5)$$

ここで、動的シュタルクシフトを考慮した共鳴条件である $2\omega_{ij} = (\tilde{\lambda}_j - \tilde{\lambda}_i)/\hbar$ を課すこと
によって激しく変化する振動数成分 $\cos[2\omega_{ij}t]$ を取り除くことができ、最終的に(5)式は

$$\frac{d}{dt}|\bar{\Phi}(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar}\sum_{i\neq j}\bar{\beta}_{ij}\tilde{u}_{ij}^{(e)}|\bar{\Phi}(t)\rangle \quad (6)$$

へ変形される。ここで、 $\bar{\beta}_{ij}$ は $|i\rangle \rightarrow |j\rangle$ 間の2光子遷移に関わる分極定数成分である。こ
の運動方程式に局所制御理論を適用し、エンベロープ関数 $\tilde{u}_{ij}^{(e)}$ 及び断熱的に変化する各振
動数成分を設計する。制御の基準となる評価関数を制御量演算子 \hat{O} の期待値として
 $y(t) = \langle \bar{\Phi}(t) | \hat{O} | \bar{\Phi}(t) \rangle$ のように定義する。 $y(t)$ の時間微分を(6)式を用いて計算すると、

$$\dot{y}(t) = 2\sum_{i\neq j}\text{Im}\langle \bar{\Phi}(t) | \hat{O}(t) \bar{\beta}_{ij} | \bar{\Phi}(t) \rangle \tilde{u}_{ij}^{(e)} \quad (7)$$

となる。この時間微分を常に0以上に保つようにするためには、各パルスエンベロープを
 $\tilde{u}_{ij}^{(e)}(t) = A_0 \text{Im}\langle \bar{\Phi}(t) | \hat{O}(t) \bar{\beta}_{ij} | \bar{\Phi}(t) \rangle$ ($A_0 > 0$) と設計すればよい。

【結果】等核2原子分子モデル系の回転準位の分布制御に上述の理論を適用した。基底と
して、球面調和関数の基底状態 $Y_{0,0} = |0\rangle$ と第2励起状態 $Y_{2,0} = |1\rangle$ をとり、初期状態の $|0\rangle$ か
ら励起状態 $|1\rangle$ への遷移を2光子共鳴過程を利用して実現する。 $\hat{O} = |\bar{1}\rangle\langle\bar{1}|$ と定義し、 $y(t)$
として状態 $|\bar{1}\rangle$ の準位分布をとり、上述の理論により設計されたレーザー場の ω_2 及び制
御レーザー場 $u(t)$ を図1に示す。図2に示すように $|\bar{0}\rangle$ 、 $|\bar{1}\rangle$ の準位分布の変化を見ると、
設計指針通り状態 $|\bar{1}\rangle$ の準位分布が短調増加している。一方、設計された制御レーザー場
照射下の、状態 $|0\rangle$ 及び $|1\rangle$ の準位分布の時間変化を図2に示す。最終状態として、分子が
より配列している状態である目標状態 $|1\rangle$ は得られているものの途中では $|1\rangle$ の準位分布
の単調増加は保証されていない。これは、設計理論で保証されている条件があくまで $|\bar{1}\rangle$
の分布の単調増加であり、レーザー場による動的シュタルクシフトが顕在化する時
間領域では $|1\rangle$ と $|\bar{1}\rangle$ が異なった状態であることに起因する。しかし、エンベロープ
関数が断熱的に変化する限り、パルス照射前後では、状態 $|0\rangle$ と $|\bar{0}\rangle$ 、状態 $|1\rangle$ と $|\bar{1}\rangle$ がそ
れぞれ一致するため、(6)、(7)式を基にした制御則を適用することが出来る。

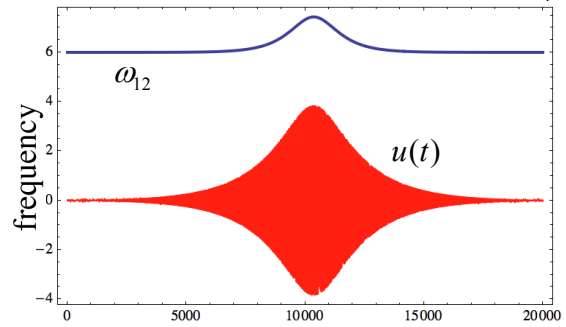


図1 設計された制御レーザー場 (赤・下) と、
その中心振動数 (青・上) の時間変化

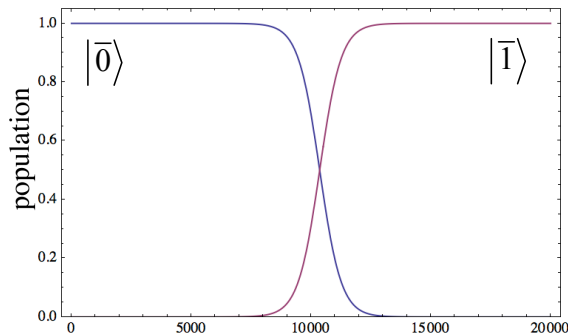


図2 状態 $|\bar{0}\rangle$ と $|\bar{1}\rangle$ の準位分布の時間変化

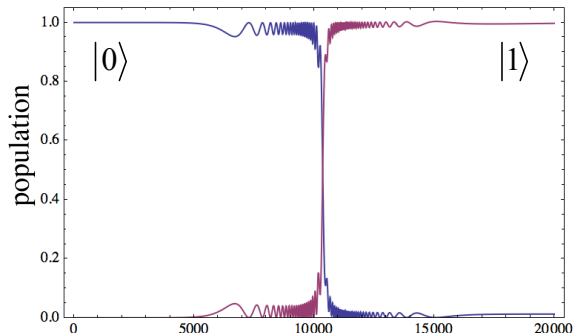


図3 状態 $|0\rangle$ と $|1\rangle$ の準位分布の時間変化