

非マルコフダイナミクスの量子最適制御

(東北大院理) 大槻幸義

【序論】 分子固有状態の重ねあわせ状態を生成し，その量子干渉を利用することによって目的状態を高確率で実現することが量子制御のアイデアである．エネルギー広がりを持つ重ね合わせ状態を位相も含めて制御する必要から，通常，エネルギー不確定幅の広い超短レーザーパルスが使われる．近年のレーザー技術の進歩により，目的に合ったパルス波形を自在に整形することが可能になってきている．実際，学習アルゴリズムとパルス整形装置とを組み合わせた量子最適制御実験が数多く報告されるようになり，原理検証的な実験はほぼ確立されつつある．これらの実験対象は，孤立（気相）分子にとどまらず，強光子場，生体分子を含む凝縮相中でのダイナミクスにまで及んでいる．特に，凝縮相中での成功は，量子制御が化学的に重要な溶液系などへ適用することが可能性であることを示しており，非常に興味をもたれる．

一方，量子干渉が環境体からの摂動で容易に壊されてしまうことを考えれば，凝縮相における量子制御が可能であることは自明ではない．即ち，孤立系における制御機構と比較して，単に収率が低下するだけなのか，それとも質的に異なった制御機構が表れているのか解明する必要がある．そこで本研究では，量子最適制御実験に対応した，量子最適制御理論を使って，散逸が量子制御機構に及ぼす影響を系統的に解析する．特に，量子制御実験が超短（数百フェムト秒以下）パルスを用いて行われていることに注目し，有限の熱浴相関時間（非マルコフダイナミクス）の下での制御機構を明らかにする．

【理論】 環境体からの影響を取り入れるために，分子の時間発展は非マルコフマスター方程式で記述されるとする， $\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = -\frac{i}{\hbar} L_S' - \int_0^t d\tau \Gamma(t-\tau) \rho(\tau)$ ．ここで $\rho(t)$ は系の状態

を記述する縮約密度演算子，リウヴィリアン L_S' は系のハミルトニアン L_S の交換子を表す．但

し，分子系は電気双極子相互作用を通してレーザーと相互作用するとする．環境体として調和振動子熱浴を仮定し，系・熱浴相互作用を最低次の摂動で取り入れる．ローレンツ型の熱

浴スペクトル分布関数を仮定すると，緩和を表す 式中の積分核は： $\exp[-\gamma_C(t-\tau)]$ と指数

的に減衰する．最適制御理論に従い，最小のパルスエネルギーで，目的時刻にターゲット分布（演算子 W で表されるとする）を最大にするパルスを変分法を使って求める．最適制御パ

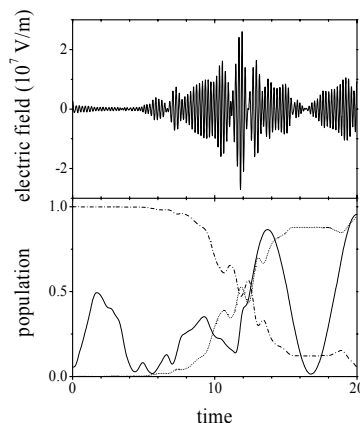
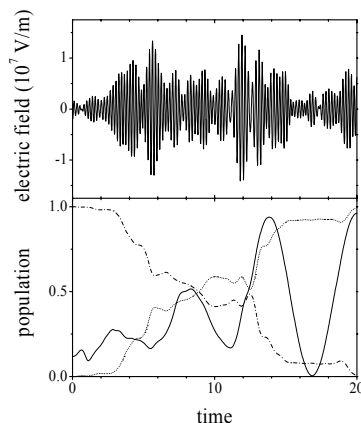
ルスは $E(t) = \frac{i}{2} A \text{tr}\{\Xi(t)[\mu, \rho(t)]\}$ となる．ここで， A はパルスエネルギー由来のペナル

ティに重みを与えるパラメータ， μ は電気双極子演算子である．系が方程式 に従うという拘束条件は，ラグランジュ未定乗数 $\Xi(t)$ を通して考慮されており，次の運動方程式に従う．

$$\frac{\partial}{\partial t} \Xi(t) = -\frac{i}{\hbar} L_S^t \Xi(t) + \int_t^{t_f} d\tau \Gamma^\dagger(\tau-t) \Xi(\tau) \quad (\text{終時刻条件 } \Xi(t_f) = W). \quad \sim \quad \text{を連立して}$$

解くことで、目的を達成するのに最適な制御パルスが求められる．本研究では、まず、この非線形の 2 点境界値問題を解くための単調アルゴリズムを証明する．

【結果】 分子系を変位した調和振動子モデルで近似した場合の結果を以下に示す．ここでは、励起電位状態における、2 つの振動 ($v=0,1$) の重ねあわせ状態をターゲット状態を考える．エネルギー（時間）は調和振動子の振動数（の逆数）を単位にはかっている．異なった



熱浴相関時間における最適制御解を求め、制御機構に対する非マルコフ効果を解析する．

左図： $\tau_c = 0.03$

右図： $\tau_c = 0.3$

上図は最適制御電場、下図は基底・励起状態における分布の時間発展（それぞれ

一点差線、点線で表されている）およびターゲット波束との重なり積分を励起状態分布で規格化したものを実線で示している．これらの結果をまとめると、制御機構は記憶項の減衰時間を表す時定数 $\tau_c = 1/\gamma_c$ と典型的なパルス長 τ_p との関係から 3 タイプに分類することができる．

$\tau_c \gg \tau_p$: 緩和の影響をあまり受けない領域． $\tau_c = 0.03$

$\tau_c \ll \tau_p$: マルコフ極限．この場合、制御パルスは緩和を避けるために終時刻付近でのみ発生する．

$\tau_c \sim \tau_p$: 非マルコフ効果が顕著に現れる領域．制御機構はパルス強度によって大きく変化する．パルス強度が強く、相関時間内での励起が可能な場合は、緩和の影響を受けない直接の過程が重要になる．一方、パルスフルエンスが小さくパルス強度が低い場合は、熱浴誘起のダイナミクスを一部利用しながらの制御機構が有利になる．実際、相関時間一定の下で、パルスフルエンスを変えて最適制御解を求めると、パルス強度の増加に伴った制御機構の質的变化が現れることが分かる（結果は当日示す）．別な見方をすれば、パルスフルエンス一定であっても、熱浴相関時間のわずかな変化によって制御機構が大きく変わる可能性がある．このように、凝縮相における量子制御機構を理解する上で、非マルコフダイナミクスを考慮することは非常に重要である．

【参考文献】

- Y. Ohtsuki, *J. Chem. Phys.* **119**, 661 (2003) および参考文献.
Y. Ohtsuki et al. *Chem. Phys.* **287**, 197 (2003).