

一般解法の開発と計算効率の比較

(東北大院理, INRIA, プリンストン大) 大槻幸義, G. Turinici, H. Rabitz

【序論】 波動関数の干渉を利用した量子制御が理論・実験両面から盛んに研究されている。量子制御においては通常、レーザーパルスに含まれる（振幅・位相）情報を波動関数に書き込む（コーディング）。波動関数の強めあう干渉を利用して目的の状態を高確率で生成するとともに、弱めあう干渉によって副反応を取り除く。波動関数の可干渉性に基づく新しい制御機構の解明や新規機能の予測・開発には、最適制御理論を使った系統的な解析が有効である。着目する分子ダイナミクスをモデル化し、それを最適制御するレーザーパルスが理論設計できれば、パルスをデコーディングすることで制御機構を理解できるからである。しかし、非線形の2点境界値問題（初期状態と目的とする状態が存在するため）が含まれるため、シミュレーション解析に要求される計算量は多く、そのため高速の数値計算アルゴリズム開発が不可欠となっている。

本発表では、まず、直積空間を導入することによって、物理・化学的に興味をもたれる種々の最適化問題が少数の“標準形”にまとめられることを示す。次に、この標準問題を解くための、単調収束アルゴリズム群が存在することを証明する。振電状態に対応した数準位モデルを使って、アルゴリズム群の間の収束の様子の違いや緩和の影響などを数値的に比較解析する。

【理論】 電場 $E(t)$ と線形に相互作用する分子を考える。分子の時間発展は、運動方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |u(t)\rangle = [\alpha - \beta E(t)] |u(t)\rangle \quad (1) \quad \text{に従うとする。ここで、} |u(t)\rangle \text{ は分子状態を記述す}$$

るベクトル（波動関数、密度演算子など）、演算子 α と β は非エルミートでもかまわない。多くの場合、終時刻における目的状態および中間状態での確率分布の時間変化の制御が問題となる。典型例は当日発表するが、最適化問題は次の2つの“標準形”（タイプ I, II とよぶ）評価関数の最大化問題に帰着できることが分かる。

$$J_I = 2 \operatorname{Re} \langle X | u(t_f) \rangle + 2 \operatorname{Re} \int_0^{t_f} dt \langle Y(t) | u(t) \rangle - \frac{1}{\hbar A} \int_0^{t_f} dt [E(t)]^2 \quad (2)$$

$$J_{II} = \langle u(t_f) | X | u(t_f) \rangle + \int_0^{t_f} dt \langle u(t) | Y(t) | u(t) \rangle - \frac{1}{\hbar A} \int_0^{t_f} dt [E(t)]^2 \quad (3)$$

ここで、 $|X\rangle$ と $|Y(t)\rangle$ (X と $Y(t)$) は終状態と中間状態を指定するベクトル（エルミート演算子）である。また、右辺第3項はパルスフルエンスをできるだけ低く抑えるためのペナルティ項である。運動方程式①の拘束条件の下で、変分法を適用すると最適制御電場の設計方程式が得られる。今回、我々が提案するアルゴリズムを用いると、例えば、評価関数②の

場合は、以下の繰り返し計算としてまとめることができる。(k回目のステップを示す)

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\lambda^{(k)}(t)\rangle = [\alpha^\dagger - \beta^\dagger \bar{E}^{(k)}(t)] |\lambda^{(k)}(t)\rangle - i\hbar |Y(t)\rangle \quad (\text{終条件} |\lambda^{(k)}(t_f)\rangle = |X\rangle) \quad (4)$$

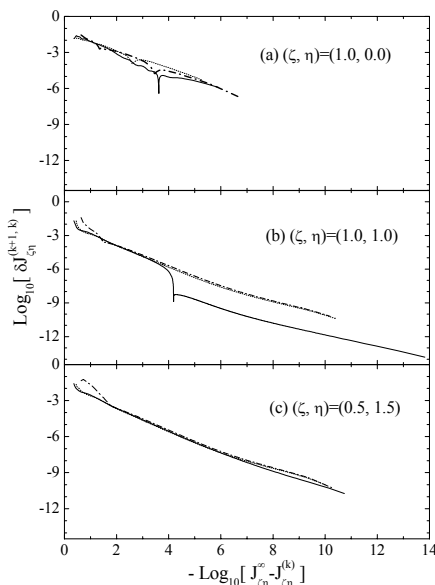
$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |u^{(k)}(t)\rangle = [\alpha - \beta E^{(k)}(t)] |u^{(k)}(t)\rangle \quad (\text{初期条件} |u^{(k)}(0)\rangle = |u_0\rangle) \quad (5)$$

$$\bar{E}^{(k)}(t) = (1 - \eta_k) E^{(k-1)}(t) - \eta_k A \text{Im} \langle \lambda^{(k)}(t) | \beta | u^{(k-1)}(t) \rangle \quad (6)$$

$$E^{(k)}(t) = (1 - \varsigma_k) \bar{E}^{(k)}(t) - \varsigma_k A \text{Im} \langle \lambda^{(k)}(t) | \beta | u^{(k)}(t) \rangle \quad (7)$$

これは任意の収束パラメータ $0 \leq \eta_k, \varsigma_k \leq 2$ に対して、単調収束することが証明できる。

【結果】 1つの始状態 ($|1\rangle$)、2つの中間状態 ($|2\rangle$ & $|3\rangle$) と1つの終状態 ($|4\rangle$) からなる系を考える。エネルギー固有値と遷移モーメントは $\varepsilon_1 = 0$, $\varepsilon_2 = 30.0$, $\varepsilon_3 = 30.5$, $\varepsilon_4 = 55.0$, $\mu_{12} = \mu_{13} = \mu_{24} = -\mu_{34} \equiv \mu_0$ とする。光学ブロッホ方程式で緩和過程が記述されるとして、終状態 $|4\rangle$ へ分布を遷移させるパルスを設計した。3通りの緩和条件下での収束の様子を図に示す。実線、点線、一点差線は、それぞれ位相緩和パラメータ $\gamma_{mn}^{(d)} = 0.1$, $\gamma_{mn}^{(d)} = 0.3$, $\gamma_{mn}^{(d)} = 0.5$ が (R1), (R2), (R3) に対応する。終状態 $|4\rangle$ の分布緩和レートは 0.1。



結果を左図に示す。y軸はk+1回目とk回目の評価関数の値の差の対数表示。x軸は“収束値”とk回目の評価関数の値の対数表示にマイナスをつけたものを表す。但し、収束値とは、繰り返し計算の単調収束性が数値精度上の限界で保たれなくなる直前の値である。収束の様子を、このx-y平面的なトラジェクトリとして示す。いずれの緩和および収束パラメータの下でも、高い数値精度で単調収束していることが分かる。計算時間に関しては、最短のものを1とした場合の相対値で表すと、最長のものは452となる。この場合、トラジェクトリには左図中央の実線に見られるようなトラップ構造が現れる。一度トラップ構造に捕捉されると、その時点で収束パラメータを代えても計算時間はあまり改善できない、したがって、トラップされてしまった

場合は、それ以前の電場および異なった収束パラメータを使い、計算を再スタートさせる必要がある。また、今回の試行においては、大きな緩和パラメータの存在下で、計算がトラッピングされにくくなった。一般的に結論付けるには至っていないが、緩和存在下では汎関数空間における評価関数の構造が単純化することが示唆される。

Y. Ohtsuki & H. Rabitz, *CMP Proceedings and Lecture Notes*, **33**, 151 (2003).

Y. Ohtsuki, G. Turinici & H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* submitted.