

局所制御理論による振電励起制御レーザー場の設計

慶大院・理工 菅原道彦

【1】序

近年のレーザー技術によってもたらされる高強度フェムト・アト秒領域の超短パルスは、分子振動の時間スケール領域に達しており、ピーク強度は分子を強制振動させるほどの出力を併せ持っている。これらの事実は、分子と高強度・非定常レーザー場とのコヒーレントな相互作用を利用して望みの量子力学的非平衡状態を作り出し、積極的に分子量子状態を目的の状態に遷移させるといった「量子ダイナミクスの制御」の可能性を示唆している。すなわち、レーザー場を精密に設計することにより電子移動、イオン化、化学反応などの様々な物理現象に対するミクロスコピックな観点からの量子制御が期待される。我々は量子系の運動方程式の形を考慮し各時刻での系の情報のみを用いて（時間領域で）局所的に制御場を設計する局所制御理論に注目し研究を行ってきた。この理論の大きな特徴として、最適制御理論に基づいた理論において不可避である数値的な扱いが困難な二点境界値問題を回避できるということが挙げられる。これまで、我々はこの一般的局所制御理論を準位分布の制御、波束動力学の制御（終状態指定、トラッキング問題等）に適用してきた。本研究では、局所制御理論の適用範囲を紫外レーザー領域にも広げ、電子励起過程を利用した振動波束制御を可能とするレーザー場の設計を目指す。この際、フロケ描像の下で系を定式化することによりパルスのエンベロープのみを最適化の対象とする。これにより、電子遷移に対応するキャリア振動数を一定に保った形で制御場の設計ができるため、実際のレーザー生成においてより現実的であるレーザー場を提示できる。

【2】一般理論

高強度・非定常レーザー場による2つの電子状態間の振電励起を考慮するためにフロケ描像を採用する。回転波近似の下で系のシュレディンガー方程式は

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \psi_g(t) \\ \psi_e(t) \end{pmatrix} &= -\frac{i}{\hbar} \begin{pmatrix} H_g + \hbar\omega & \mu \cdot u(t) \\ \mu \cdot u(t) & H_e \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \psi_g(t) \\ \psi_e(t) \end{pmatrix}, \\ &\equiv -\frac{i}{\hbar} (\hat{H}_0 + \hat{V}u(t)) \cdot \Psi(t) \end{aligned} \quad (1)$$

と書くことができる。但し、 H_g 、 H_e 、 μ はそれぞれ電子基底状態、励起状態のハミルトニアン及び遷移モーメント演算子である。また、 ω はパルスエンベロープ $u(t)$ のレーザーパルスの中心角振動数を示している。

ここで、現在の状態が目的の量子状態とどの程度合致しているかを評価する量として $y(t) = y(\langle \hat{O}_1(t) \rangle, \langle \hat{O}_2(t) \rangle, \dots, \langle \hat{O}_N(t) \rangle)$ を導入する。 $\langle \hat{O}_i(t) \rangle$ ($i=1,2,\dots,N$) は i 番目の観測量に対する演算子 $\hat{O}_i(t)$ の期待値であり、演算子 $\hat{O}_i(t)$ には運動方程式

$$\frac{d\hat{O}_i(t)}{dt} = i[\hat{O}_i(t), \hat{H}_0], \quad (2)$$

を要請する。時刻 t に対して $y(t)$ を微分し、シュレディンガー方程式(1)式及び(2)式を考慮することにより、評価指数の時間微分は

$$\frac{dy}{dt} = 2 \sum_{i=1}^N \frac{\partial y(t)}{\partial \langle \hat{O}_i(t) \rangle} \text{Im} \langle \hat{O}_i(t) \hat{V} \rangle u(t), \quad (3)$$

と表される。ここで、制御レーザー場エンベロープを

$$u(t) = A_0 \sum_{i=1}^N \frac{\partial y(t)}{\partial \langle \hat{O}_i(t) \rangle} \text{Im} \langle \hat{O}_i(t) \hat{V} \rangle, \quad (4)$$

とおくことにより、 $y(t)$ の単調増加を保証するレーザー場を設計することが出来る。

【3】応用

モデル系として電子基底状態に調和振動子型、励起状態としてモース型の断熱ポテンシャルを持つ分子を考える。電子基底 $|g\rangle$ 、励起状態間 $|e\rangle$ のエネルギー差に相当する振動数のレーザーを照射した場合フロケ描像における二つの断熱ポテンシャルは図1に示すように交差する。今回は制御量演算子 $\hat{O}_i(t)$ として電子励起状態上の振電状態への射影演算子を採用することにより、電子励起を促進するパルス設計を行う。制御量演算子 $\hat{O}_i(t)$ は系のハミルトニアンと交換可能であるため運動方程式(2)式の右辺は0となり、結果として $\hat{O}_i(t)$ は時間

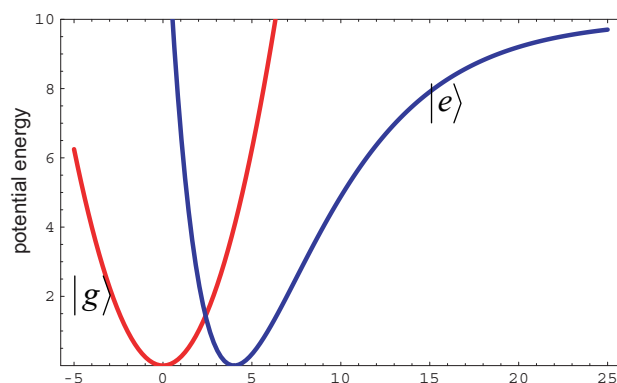


図1 フロケ描像下の断熱ポテンシャル

発展しない。このため、レーザー場は(4)式に $\hat{O}_i(t)$ の初期状態演算子をそのまま代入することによって得られる。シュレディンガー方程式の時間発展は4次のルンゲ・クッタ法で数值的に解いている。

図2に設計されたパルスエンベロープの下での基底状態、励起状態の準位分布の時間変化を示す。設計されたレーザー場の下で、準位分布が電子基底状態から励起状態へほぼ100%移動している様子が示されている。図3は得られたレーザーパルスのエンベロープの時間変化を示している。得られたエンベロープによると、制御レーザー場が二つのパルス列として設計されていることがわかる。図2には二つのパルスが照射される時間帯に対応し、分布が二段階の過程を経て励起されている様子が示されている。

振動数が時間変化するようなチャープパルスのエンベロープ設計も本理論で取り扱うことが出来る。また、二つの独立な系をハミルトニアンに組み込んで制御場を設計することにより、同位体分子の選択的励起する制御場を設計することも可能である。これらの結果については当日発表する予定である。

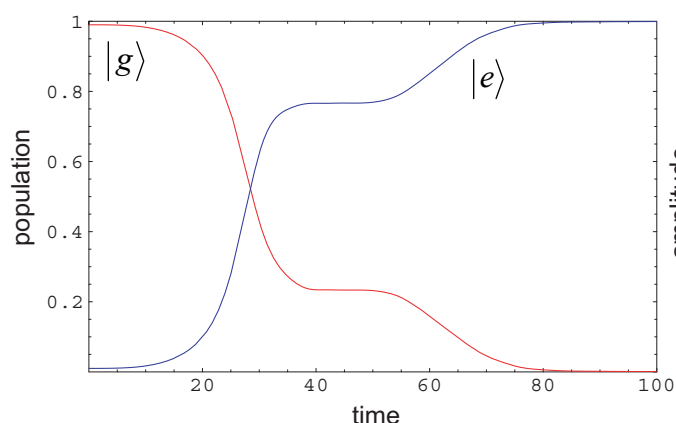


図2 準位分布の時間変化

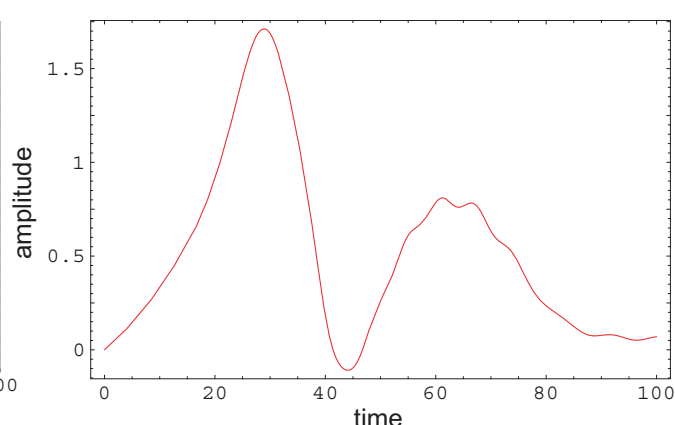


図3 設計されたエンベロープの時間変化

【参考文献】

- M. Sugawara, Chem. Phys. Lett., **358**, 290 (2002).
- M. Sugawara, J. Chem. Phys., **118**, 6784 (2003).