

機関番号：11301

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008 ~ 2010

課題番号：20350001

研究課題名 (和文) 量子最適制御シミュレーション法の大幅な拡張と実用化に向けた
基盤研究への展開

研究課題名 (英文) Development of optimal control simulation and its applications

研究代表者

大槻 幸義 (OHTSUKI YUKIYOSHI)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：40203848

研究成果の概要 (和文)：

分子とレーザーパルスの非線形な分極相互作用を扱える最適制御シミュレーション・アルゴリズムを開発した。(1) 直線偏光パルスによる整列制御の例では、電場の二乗の強度スペクトルが回転ラマン遷移条件を満たすようにネットワーク構造を構成することを明らかにし、従来の種々の制御機構を統一的に理解した。(2) CO 分子の配向制御においては、整列+配向の2段階制御機構の有効性を提案した。(3) 偏光も最適化した振動回転同時制御では、直線偏光では生成できない振動回転波束の生成機構を数値的に示した。

研究成果の概要 (英文)：

We have developed quantum optimal control simulation that can treat nonlinear interactions between a molecule and laser fields. (1) The simulation is applied to the alignment control of a nitrogen molecule. From the power spectrum of the cycle-averaged intensity of the optimal pulse, we have proposed a frequency network mechanism that effectively connects a few lowest rotational states through Raman transitions to achieve a high degree of alignment. (2) In the orientation control of a CO molecule, we have shown the effectiveness of a two-step control, in which an alignment pulse appear prior to an orientation pulse. (3) We further extended the simulation to explicitly include the polarization of a laser pulse. It was applied to the simultaneous rovibrational control with the aim of creating a rovibrational wave packet that cannot be achieved by a linearly polarized pulse.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2009 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	6,000,000	1,800,000	7,800,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：コヒーレント制御，レーザーパルス，最適化，分子整列，分子配向

1. 研究開始当初の背景

物理化学は化学反応制御をターゲットに量子系のレーザー制御において最も基盤研究が進んでいる分野である。その理論研究の牽引役の一つが量子最適制御シミュレーション法である。分子ハミルトニアン情報だけにに基づき、分子ダイナミクスを制御するための最適な外場（レーザーパルスなど）を第一原理設計できるので、汎用性に富んでおり量子情報から光化学反応制御まで幅広く用いられている。

近年、巨視的な異方性をもつアンサンブルを生成するためにレーザーパルス誘起の分子整列・配向制御が着目されている。この制御が達成できると、電子状態イメージングに代表される分子固定系での分光実験、X線光子源としての高次高調波発生制御、配向した分子を用いた表面プロセスなど、基礎研究から実用技術に渡る幅広い応用が期待されている。しかし、最小分子である2原子分子においてさえ制御機構が明らかにされておらず、応用への大きな障害となっていた。特に、分子の向きまで揃える配向制御では、制御できるのかまたはある方向を向いた分子だけを選択励起しているかさえ論争が続いてい。更に、配向制御を主張する実験においてさえ、配向度合いは（最大100パーセントとして）数パーセントにとどまっている。このような根本問題に対する可能性を陽に示すには、第一原理計算である最適制御シミュレーションが有効である。しかし、分子とレーザーの線形相互作用を仮定する従来法では分子整列・配向制御を取り扱うことはできない。

2. 研究の目的

レーザーパルスを用いた巨視的な異方性をもつアンサンブルの生成や凝縮相への応用のためには、従来の最適制御シミュレーション法を大幅に拡張する必要がある。具体的には、従来の分子とレーザーパルスの線形な相互作用を非線形に拡張する。また、密度演算子の従うリウヴィル方程式を解くために、高速かつメモリを抑制した新たな数値計算アルゴリズムを開発する。これらの新規シミュレーションを用いて、レーザーパルス誘起の分子整列・配向や凝縮相中のダイナミクス制御機構を明らかにする。

3. 研究の方法

本研究では、代表者が開発してきた量子最適制御シミュレーション法を大幅に拡張し、分子とレーザーパルスの非線形な相互作用および計算量増大の課題を克服する。非線形問題の解決には新たに対称分割アルゴリズムを提案する。すなわち、非線形なレーザー電場を（人為的に）対称に分割する。各反復計算ステップにおいて補助ステップを導入し、対称分割された電場成分を順次反復更新する。この反復計算は単調収束が保障される。また、収束が達成されると、人為的に分割された電場は、同一電場に収束することも保証される。一方、密度演算子の従うリウヴィル方程式を高速に解くために、記憶項を計算するための新規の漸化式を導入する。このオリジナル開発した漸化式の計算はメモリを殆ど必要としないために、マルコフ極限と同じ計算量で時間発展を計算することができる。以上のオリジナルのシミュレーションを用い以下に述べる課題を解決する。

4. 研究成果

(1) 分極（誘起双極子）相互作用を含む最適制御シミュレーション法の開発

800 nm 領域のレーザーパルスにおいて、現在最も超短パルス整形技術が進んでいる。分子はこのレーザーパルスと誘起双極子を通して非線形に相互作用する。この非線形な相互作用を最適制御シミュレーションに取り入れるために対称分割アルゴリズムを提案した。まず、非線形なレーザー電場を（人為的に）対称に分割する。各反復計算ステップにおいて補助ステップを導入し、対称分割された電場成分を順次反復更新する。この反復計算は単調収束を保障することを証明した。また、収束が達成されると、人為的に分割された電場は、同一電場に収束することも示した。

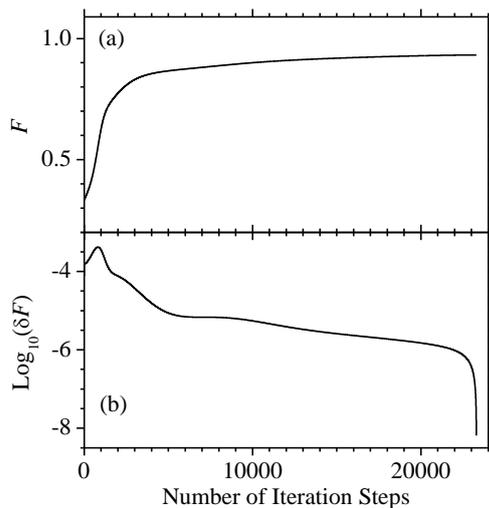


図1 対称分割アルゴリズムを用いた反復計算の収束の様子

数値的なパフォーマンスを図1に示す。計算では窒素分子の振動回転自由度を取り込んでいる。直線偏光方向への整列を目的にし、最適解を得るための繰り返し計算を行った。図1の横軸は繰り返し計算の回数、縦軸は解の探索精度を表す。単調収束の様子が数値的にも示され、8桁の精度で解を探索していることが分かる。なお、この探索精度は、最適

電場を計算する際の時間グリッド幅に依存する。グリッドを細かくすることで更に計算精度を上げることができる。

(2) 分子整列制御における振動数ネットワーク機構の提案

非等方な分子アンサンブル生成として、まず分子整列制御の成果を述べる。分子整列機構としては、一見全く異なる様々な機構が提案されている。これらの方法の根底にある、共通する制御機構の存在に答えたのがここでの研究成果である。

(1) で開発した新規最適制御シミュレーション法を用いて、分子の古典回転1周期内での整列制御パルスを設計した。なお、レーザーパルスの瞬間強度に比例するペナルティの導入法を開発し、実験に使われるパルスピーク強度に即したシミュレーションを行った。最適パルスは3つのパルスから成り、その照射タイミングは、従来提案のいずれとも異なっていた。サイクル平均した電場二乗の強度スペクトルを計算すると、図2に示すように、回転ラマン遷移を誘起するネットワーク構造をしていることが分かった。種々の近似ネットワークを構成することが可能であり、その結果、従来、様々な制御機構が提案されていたことを明らかにした。

(3) 分子配向制御における整列・配向2段階制御機構の提案

理論・実験のプロトタイプ分子であるCO分子を用いて、分子配向を誘起する最適パルスを数値設計した。ここでは3次の分極相互作用まで考慮しシミュレーションを行った。パルスの中心周波数は800 nm+400

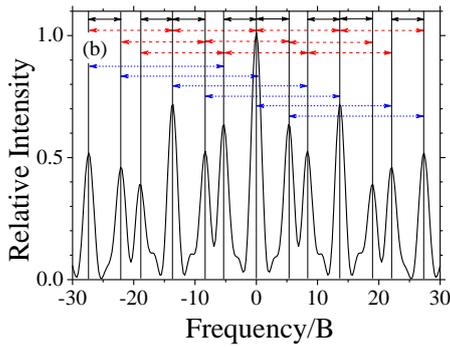


図2 最適電場の二乗の強度スペクトルの拡大図。周波数は回転定数を単位に表している。矢印はラマン遷移に対応する周波数間隔であることを示す。

nm である。最初のパルスは分子をを整理させ、2つめのパルスで分子を配向させることが分かった。整理→配向という2段階制御の有効性はモデルパルスを用いた計算でも示すことができる。図3にはその1例を示す。整理パルスと配向パルスの遅延時間 τ に対し、配向度合いをプロットしている。 τ が負の領域では配向→整理パルスの順で、 τ が正の領域では整理→配向パルスの順で照射される。後者では整理度合いと配向度合いの2つの結果に非常に良い相関がみられることが分かる。この制御機構は実験においても実現が容易であり、学会などを通して広く実験検証を提案しているところである。

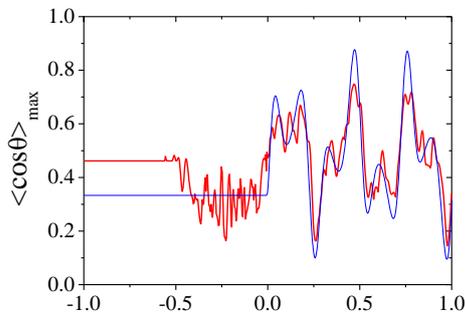


図3 配向度合い τ / T_{rot} の整理・配向パルスの遅延時間 (τ) 依存性

最初のパルスが分子を整理させる。2つ目の

パルスが作る分極ポテンシャルにより、目的の方向に配向した分子は安定化される。反対の方向を向いた分子は不安定化し、運動が駆動される。この2つの波束成分が干渉し合うことで高い配向度合いが達成できると解釈できる。

(4) 偏光も最適化した振動回転制御

(1) を更に一般化し、偏光条件も最適化するようにシミュレーションアルゴリズムを拡張した。パルスの進行方向を(空間固定)Z軸、偏光ベクトルがXY平面にあるという条件で、2方向同時制御を行った。その結果、0.90の確率で目的の回転波束を得ることができた。この波束を生成するパルスにおいては、 $Y=X$ 方向および $Y=-X$ 方向への直線偏光が交互に現れる。一定の(楕円)偏光パルスでは生成できず、偏光も含めた制御の重要性を示している。なお、このような偏光も含めたパルス電場の整形実験法は2004年にドイツのグループにより報告されている。

偏光も含めると振動回転波束を様々な形に同時制御することが可能である。この空間固定された核波束に対し電子は空間分布する。すなわち、分子固定系での電子ダイナミクス制御の基盤を確立できた。

(5) 密度演算子の従うリウヴィル方程式の高速数値解法の開発

密度演算子の従うリウヴィル方程式を高速に解くために、記憶項を計算するための新規の漸化式を導入する。記憶項はしばしば指数減衰関数により特徴づけられる。この記憶項に対しては、計算の漸化式が存在し、その結果、マルコフ極限と同じ計算量・メモリで時間発展を計算することができることを証明した。更に、ある状態からある状態へと遷移させるだけでなく、「演算子として振る舞うパルス」の最適制御法も開発した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

① H. Abe and *Y. Ohtsuki, *Frequency-network mechanism for alignment of diatomic molecules by multi-pulse excitation*, Phys. Rev. A **83**, 053410 (2011).

査読有

② Y. Mizumoto and Y. Ohtsuki, *Path integral molecular dynamics simulation of quasi-free rotational motion of CO doped in a large para-hydrogen cluster*, Chem. Phys. Lett. **501**, 304 (2011). 査読有

③ Y. Ohtsuki, *Simulating quantum search algorithm using vibronic states of I₂ manipulated by optimally designed gate pulses*, New J. Phys. **12**, 045002 (18 pages) (2010), also in Virtual Journal of Quantum Information, **10** (2010). 査読有

④ K. Hosaka, H. Shimada, H. Chiba, H. Katsuki, Y. Teranishi, Y. Ohtsuki, *K. Ohmori, *Ultrafast Fourier transform with a femtosecond-laser-driven molecule*, Phys. Rev. Lett. **104**, 180501 (2010). 査読有

⑤ 大槻幸義「量子最適制御シミュレーション法の開発と分子科学への応用」第 38 回制御理論シンポジウム資料, pp. 353-356 (2009).

査読無

⑥ K. Nakagami, Y. Mizumoto, and Y. Ohtsuki, *Optimal alignment control of a nonpolar molecule through nonresonant multiphoton transitions*, J. Chem. Phys. **129**, 194103 (9 pages) (2008). 査読有

[学会発表] (計 18 件)

① Y. Ohtsuki, Nonresonant multiphoton

optimal control of cold molecules, Pacificchem 2010, Honolulu, Hawaii, USA, Dec. 15-20 (2010).

② Y. Ohtsuki, Optimal gate pulse design robust against Decoherence, Pacificchem 2010, Honolulu, Hawaii, USA, Dec. 15-20 (2010).

③ Y. Ohtsuki, Nonresonant multiphoton optimal control simulation of molecular alignment and orientation, G-COE International Symposium on Physical Chemistry, Tohoku Univ. Sendai, Sep. 2-3 (2010).

④ 大槻幸義「デコヒーレンスに強いゲートパルスの最適設計」第 13 回理論化学討論会, 北海道大学国際交流会館, 札幌市, 2010 年 5 月 23 日-25 日.

⑤ 大槻幸義「分子科学における量子最適制御シミュレーション: 化学反応制御から量子情報処理」制御理論部会最先端ワークショップ「分子科学が拓く制御理論応用の新潮流」京都大学東京オフィス, 平成 22 年 3 月 8 日.

⑥ Y. Ohtsuki, Development of optimal control simulation and its applications to molecular alignment and quantum information processing, Okazaki Conference “New Frontier in Quantum Chemical Dynamics” IMS, Okazaki, Feb. 21 - 23 (2010).

⑦ 大槻幸義「デコヒーレンスに強いゲートパルス設計法の開発と実装シミュレーション」日本物理学会 2009 年秋季大会, 熊本大学黒髪キャンパス, 熊本市 (2009 年 9 月 25 日~9 月 28 日).

⑧ 大槻幸義「量子最適制御シミュレーション法の開発と分子科学への応用」第 38 回制御理論シンポジウム, コスモスクエア国際交流センター, 大阪市 (2009 年 9 月 14 日-16 日).

⑨Y. Ohtsuki, Quantum optimal control via linear and nonlinear interactions: Applications to dynamical decoupling and molecular alignment, Workshop on Quantum Control of Light and Matter, Kavli Institute Theoretical Physics (University of California, Santa Barbara) July 16 (2009).

⑩Y. Ohtsuki, Monotonically convergent algorithms for solving quantum optimal control problems in chemistry and physics,” The IMA Workshop on Coherence, Control, and Dissipation, Institute for Mathematics and its Applications, University of Minnesota, Mar. 1, 2009 -Mar. 6 (2009).

⑪大槻幸義, 中上和幸「凝縮相中での分子整列制御に対する最適制御シミュレーション」第2回分子科学討論会, 福岡国際会議場, 福岡, 2008年9月24日-27日.

⑫大槻幸義, 中上和幸「対称分割アルゴリズムを用いた非共鳴最適制御シミュレーションとランドスケープ」第11回理論化学討論会, 慶応義塾大学理工学部, 横浜市, 2008年5月22日-24日.

他

[図書] (計1件)

①Y. Ohtsuki and W. Domcke, *Laser control of ultrafast dynamics at conical intersections*, Conical Intersections (Advanced Series in Physical Chemistry vol. 17, World Scientific) (2011).

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:

出願年月日:
国内外の別:

○取得状況 (計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織
(1) 研究代表者

大槻 幸義 (OHTSUKI YUKIYOSHI)
東北大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号: 40203848