

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年3月31日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2011

課題番号：20550021

研究課題名（和文） 強レーザー場による空間分割を利用した量子制御理論の構築

研究課題名（英文） A new quantum control scheme based on effective decomposition by intense laser fields

## 研究代表者

菅原 道彦 (SUGAWARA MICHHIKO)

慶應義塾大学・理工学部・講師

研究者番号：40276415

研究成果の概要（和文）：強レーザー場を用いた量子状態空間の分割を利用することにより、レーザーを用いた量子制御手法を分子系に応用する際の課題である(1)緩和過程の回避、(2)量子制御に要する時間スケールの調整、(3)多準位量子系に対する物理的制御描像の提示、の3点を解決することが出来た。また、本手法をチオホスゲン分子に適用したところ、位相緩和を効果的に回避しながら、 $\pi$ パルス法等の確立された従来法による量子制御が可能であることを示すことが出来た。

## 研究成果の概要（英文）：

In this study, we have developed a new quantum control scheme utilizing the effective decomposition of quantum space brought by the irradiation of intense CW-laser fields, which makes it possible to solve three major problems in applying coherent laser control scheme to various molecules, i.e., (1) elimination of dissipation process, (2) manipulation of time scale of control process, (3) clarification of physical picture for quantum control of multi-level system. We have successfully applied the present method to Thiophosgene molecule and shown that the dissipation process can be effectively eliminated while the system dynamics can be controlled by well-established conventional control schemes such as  $\pi$ -pulse method.

## 交付決定額

(金額単位：円)

|        | 直接経費      | 間接経費      | 合計        |
|--------|-----------|-----------|-----------|
| 2008年度 | 1,400,000 | 420,000   | 1,820,000 |
| 2009年度 | 700,000   | 210,000   | 910,000   |
| 2010年度 | 700,000   | 210,000   | 910,000   |
| 2011年度 | 600,000   | 180,000   | 780,000   |
| 年度     |           |           |           |
| 総計     | 3,400,000 | 1,020,000 | 4,420,000 |

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：化学物理、量子制御、レーザー、空間分割

## 1. 研究開始当初の背景

レーザーの技術革新がもたらした短パルス・高出力化を背景に、従来観測手段として用いられていたレーザーを、目的の量子状態へ遷

移させるための道具として活用する、「量子制御」の概念が広く受け入れられる様になっていた。量子制御理論の黎明期には、二つの定常

レーザーの位相差を利用した生成物の分岐比制御、チャープパルスによる段階的遷移の促進、 $\Lambda$ 型3準位系における誘導ラマン断熱通過法等、光学過程の物理描像を基にした研究が活発になされた。一方で、一般的な分子系を抽象的な制御対象と捉え、望みの量子状態へ導くレーザー場を数学的手法と数値計算を用いて最適化する一般量子制御理論も数多く提案されてきた。

上述の量子制御法は一定の成果を収めているが、分子系への応用を見据えた更なる発展のためには、3点の課題

- ①緩和過程の回避
- ②量子制御に要する時間スケールの調整
- ③一般的な多準位量子系に対する物理的制御描像の提示の克服

が急務であった。

## 2. 研究の目的

本研究の主目的は、強レーザー場によってもたらされる空間分割現象を利用して、中間準位に緩和過程を有する一般的な多準位量子系に対して、上述の①から③の課題を克服できる新たなレーザー量子制御手法を構築することである。この研究成果によって、量子系に関するあらゆる情報量（準位の占有量、量子力学的位相）の制御を可能とするコヒーレント量子制御の対象範囲が広がり、量子素子操作の実現や精密なレーザー反応制御等への応用が期待される。

## 3. 研究の方法

本研究は以下に示す手順によって遂行する。

- (1) 一般の多準位量子系をP-Q空間に分割するために必要とされるレーザー照射条件を、射影演算子法[H. Feshbach, Ann. Phys. 5, 357 (1958)]を用いて理論的に明らかにする。この際、強レーザー場と分子系との相互作用を適切に取り扱うために、光子場を量子化して得られる数状態と分子の固有状態とのテンソル積(ド

レスト描像)を基底として採用する。また、制御対象の量子系動力学を得るためにシュレディンガー方程式のグリーン関数表示に射影演算子法を適用することにより定式化を行う。ここで、P、Q空間をそれぞれ、「(直接的光学遷移が許されない)制御対象準位からなる部分空間」、「緩和過程が付随する中間準位からなる部分空間」と定義しP空間の変数のみで構成される制御対象系のグリーン関数、すなわち制御対象系のシュレディンガー方程式を得ることが出来る。

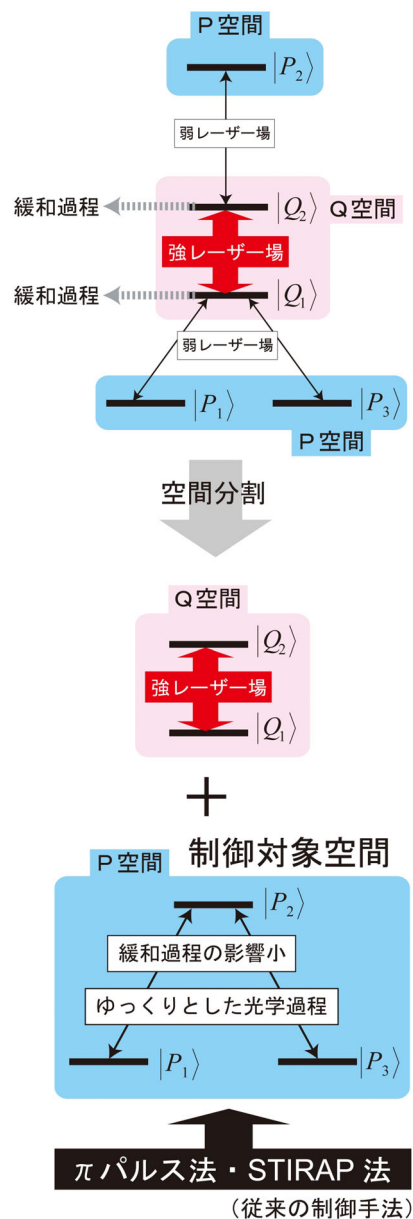


図1 強レーザーによる空間分割の描像

- (2) 射影演算子法を用いて得られるP空間のグリーン関数の形式がレゾルベント形式に似た形で与えられることを利用し、擬似レゾルベント形式中のハミルトニアン演算子に対応する部分の複素変数  $z$  依存性を無視することによって、有効ハミルトニアンを定義する。
- (3) 緩和過程を含むモデル多準位系に対して、(1)、(2)を中間準位に緩和過程が存在するモデル系として「梯子型」と「枝分かれ型」の2種類の4準位系、及び「枝分かれ型」5準位系を採用し、これらのモデル系に対して「2準位 (P空間) + 2準位 (Q空間)」または「3準位 (P空間) + 2準位 (Q空間)」の空間分割が実現されることを数値実験で確認する。また、より具体的な分子系に近い **Bixon-Jortner** モデルや、実在するチオホスゲン分子に対して完成された制御理論を適用しその有用性を明らかにする。

#### 4. 研究成果

- (1) 上記の方法に従って定式化をによりP空間の変数のみで構成される制御対象系のグリーン関数の表式中のレーザーパラメーター依存性を詳細に検討することにより、P、Q空間を擬似的に孤立化させるために必要なレーザー照射条件を明らかにすることができた。この結果、P-Q空間の分離は、Q空間内の準位を強レーザー場によって強く結合させることによって実現されることが明らかになった。
- (2) また、射影演算子法を用いて得られるP空間のグリーン関数の形式がレゾルベント形式に似た形で与えられることを利用し、この擬似レゾルベント形式中の変数  $z$  にP空間の零次の縮退したエネ

ルギーを代入することによって、孤立化されたP空間の動力学を規定する有効ハミルトニアンを導出に成功した。

- (3) 緩和モデル系として中間準位が等間隔に分布するバックグラウンド準位と均等に結合する **Bixon-Jortner** モデルに本理論を適用して、中間準位を制御対象空間から分離することを試みた。数値計算の結果、中間準位からの準位分布の流出 (緩和過程) を抑制でき、始状態から終状態へのほぼ 100%分布移動が可能であることが示された。さらに、実際の分子として多くの振動モードが非線形相互作用によって結合している **SCCl<sub>2</sub>** 分子について本手法を適用し、特定のCS伸縮運動モードの選択励起が可能であるかを **FORTTRAN** による数値計算シミュレーションによって検証した。この結果、中間状態と始・終状態間を直接レーザーによって結合させた場合は、50%程度の分布の損失 (多モードへのエネルギー散逸) が生じる (図2)。

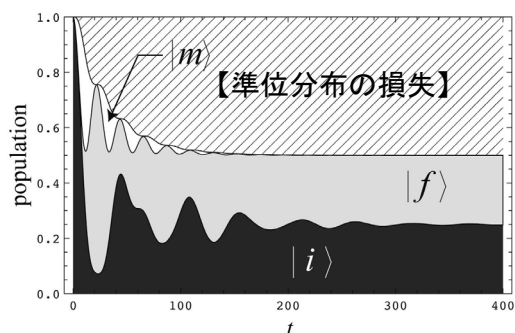


図2 中間状態へ直接励起した場合の準位分布の時間変化

一方、補助準位を導入し空間分割用レーザーを照射し、中間状態と補助準位を強く結合させた場合は散逸過程が著しく抑制されほとんど準位分布がバックグラウンド状態へ流出することなく、最終目標準位へ遷移させることが可能であるという計算結果が得られた (図3参照)。これより、本手法を用いることによって、

98%程度の収率で  $\text{SCCl}_2$  分子の選択的励起が可能であることが判明した。

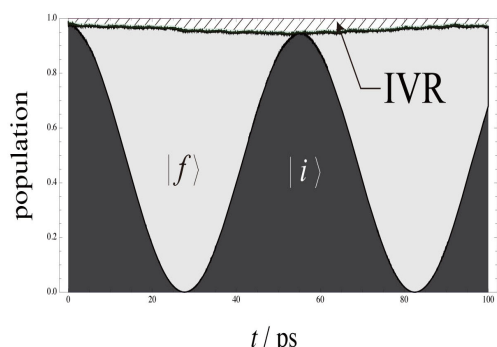


図3 補助準位を用いた場合の準位分布の時間変化 (IVRによる損失が小さい)

コヒーレント量子制御は、対象を分子振動の動力学に限れば化学反応制御に対応する。しかし、量子系に関するあらゆる情報量(準位の占有量、量子力学的位相)の制御を可能にするこの制御描像は、近年精力的に研究されている量子素子の創製、及びその操作の実現にも密接に関連しており、将来その様な関連分野の発展に寄与出来る理論的な成果を上げられたといえる。

##### 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4件)

- ① M. Sugawara, "Suppression of Intramolecular Vibrational Energy Redistribution by Intense CW-Laser Fields", *Adv. in Phys. Chem.*, 査読有, **2011**, Article ID 584082.
- ② M. Sugawara, "Laser control of a multilevel quantum system as static parameter optimization with the help of effective decomposition", *Physical Review A*, 査読有, **81**, 2010,013410.
- ③ "光・レーザーであやつる化学反応", 菅原道彦, *化学と教育*, 査読有, **58**, 201

0, 532-535.

- ④ M. Sugawara, "A new quantum control scheme for multilevel systems based on effective decomposition by intense laser fields", *Journal of Chemical Physics*, 査読有, **130**, 2009, 094103.

[学会発表] (計16件)

- ① 菅原道彦, 最適化レーザーパルスシーケンスによる分子振動位相緩和の制御, 分子科学討論会, 2011年9月23日, 札幌・札幌コンベンションセンター
- ② 鶴岡暦人, 菅原道彦, 藪下聡, *n*型半導体におけるドナー電子制御レーザー場の理論的設計, 分子科学討論会, 2011年9月22日, 札幌・札幌コンベンションセンター
- ③ 菅原道彦, 加藤大輝, 藪下聡, 極性分子に対する配向制御レーザー場の理論的設計, 理論化学討論会, 2011年5月13日, 岡山・岡山大
- ④ 鶴岡暦人, 菅原道彦, 藪下聡, *n*型半導体におけるドナー電子制御レーザー場の理論的設計, 理論化学討論会, 2011年5月12日, 岡山・岡山大
- ⑤ 菅原道彦, コヒーレントレーザーによる分子内振動緩和過程の制御と抑制, 分子科学討論会, 2010年9月16日, 大阪・阪大
- ⑥ 加藤大輝, 菅原道彦, 藪下聡, 極性非対称コマ分子に対する3次元配向制御レーザー場の理論的設計, 分子科学討論会, 2010年9月16日, 大阪・阪大
- ⑦ 鶴岡暦人, 菅原道彦, 藪下聡, *n*型半導体における光電流のレーザー制御, 分子科学討論会, 2010年9月16日, 大阪・阪大
- ⑧ 菅原道彦, 共鳴2光子過程を利用した局

- 所量子制御理論の開発,理論化学討論会,  
2010年5月23日,札幌・北大
- ⑨ 加藤大輝, 菅原道彦, 藪下聡, 極性非対称  
コマ分子に対する配向制御レーザー場の  
理論的設計, 理論化学討論会, 2010  
年5月23日, 札幌・北大
- ⑩ 菅原道彦, レーザーによる分子ダイナミ  
クスの量子制御, 制御理論部会最先端ワ  
ークショップ-分子化学が拓く制御理論  
応用の新潮流, 2010年3月9日, 東  
京・京都大学東京オフィス
- ⑪ M. Sugawara, “A new control scheme for  
multi-level quantum system based on  
effective decomposition by intense CW-laser  
fields.”, The 69<sup>th</sup> Okazaki Conference on  
“New Frontier in Quantum Chemical  
Dynamics. 2010年2月22日, 岡  
崎・岡崎カンファレンスセンター
- ⑫ 菅原道彦, 強レーザー場による空間分割  
を利用した分子内振動緩和過程の抑制と  
振動ダイナミクスの量子制御, 分子科学  
討論会, 2009年9月23日、名古  
屋・名大
- ⑬ 加藤大輝, 菅原道彦, 藪下聡, 局所最適化  
理論による分子配向制御レーザー場の理  
論的設計, 分子科学討論会, 2009年9  
月23日、名古屋・名大
- ⑭ 菅原道彦, 強レーザー場による空間分割  
を利用した分子内緩和過程のレーザー制  
御, 理論化学討論会, 2009年5月29  
日, 本郷・東大
- ⑮ 加藤大輝, 菅原道彦, 藪下聡, 極性直線  
分子に対する配向レーザー場の理論的設  
計, 理論化学討論会, 2009年5月2  
9日, 本郷・東大
- ⑯ 菅原道彦, レーザー場による多準位量子  
系の位相緩和制御 - グリーン関数によ  
る定式化, 分子科学討論会, 2008年9

月26日, 福岡・九大

[その他]

ホームページ URL

[http://sepia.chem.keio.ac.jp/kenkyu3\\_new.html](http://sepia.chem.keio.ac.jp/kenkyu3_new.html)

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

菅原 道彦 (SUGAWARA MICHHIKO)

慶應義塾大学・理工学部・講師

研究者番号：40276415

##### (2) 研究分担者

該当なし

##### (3) 連携研究者

該当なし