

[序]凝縮相におけるレーザーパルスを用いた量子制御では、吸収や分散等のパルス伝播効果が無視できなくなる。共鳴レーザーパルスを用いた制御は、パルスエネルギーの吸収により物質内部での制御の達成確率が著しく低下する。そのため、物質の吸収帯と異なる振動数をもった非共鳴レーザーパルスを用いることが望まれる。そのような例として、非共鳴レーザーパルスを用いた純メタノール(標準状態で数密度約 $10^{28} \text{ m}^{-3}$ )のC-H伸縮モードの選択的な励起がWeinachtらによって報告された。そこではパルスの伝播効果が重要な役割を果たすと示唆されているが[1], 詳細な制御機構は明らか

になっていない。この解決を目的に、本研究は伝播効果を取り込んだ非共鳴レーザーパルスの最適制御法を開発し、

メタノールのC-H伸縮モードの選択的励起に適用する。

[理論]レーザー電場 $E(x, t)$ は $x$ 軸方向に伝播、 $z$ 軸方向に直線偏光していると仮定する。また、分子とレーザーパルスは分極相互作用を通じて相互作用する。全系はMaxwell-Liouville方程式に従い時間発展する

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(x, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(x, t) \quad (1)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho(x, t) = \left[ H_0 - \frac{1}{2} E(x, t) \bar{\alpha} E(x, t), \rho(x, t) \right] \quad (2)$$

ここで、 $c$ は光速

$\bar{\alpha}$ は分極率の等方的な値、 $\rho(x, t)$ は分子の密度行列、 $P(x, t)$ は巨視的分極であり、分子の数密度を $N$ とすると

$$P(x, t) = N \text{Tr}(\bar{\alpha} \rho(x, t)) E(x, t)$$

と表わされる。目的の演算子を $W$ とすると、制御の達成度合いを、以下の汎関数 $F$ で評価する。

$$F = \frac{1}{M} \int_0^M dx \text{Tr}(W \rho(x, t_f)) \quad (3)$$

$t_f$ は制御の終時刻、 $M$ は媒質の長さである。(3)の汎関数に対して、分子が(2)に従い時間発展することを拘束条件として変分法を適用すると、最適な入射パルスの設計方程式を得る。また、メタノールのC-H伸縮モードの基底状態 $|g\rangle$ 、C-H対称伸縮(非対称伸縮)が励起された状態 $|S\rangle(|A\rangle)$ の3準位モデルによって記述する。

[結果]初期条件として分子は全て $|g\rangle$ に存在したとする。 $|S\rangle$ を選択的に励起することを目的とし、 $t_f \cong 0.23 \text{ ps}$ ,  $M = 7.5 \mu\text{m}$ に設定した。また、数密度 $N = 10^{28} \text{ m}^{-3}$ とする。得られたパルスの各位置での時間発展を図1に示した。図2は拡大図である。伝播に伴い、パルスが伸長もしくは圧縮されるのが確認できる。強度スペクトルを計算すると(ここでは示していない)、伝播を考慮した最適な入射パルスは考慮しない最適パルスに比べ多数のストークス/反ストークスサイドバンドを含んでいる。また、これらの新たなサイドバンドはストークス/反ストークスラマン遷移を起こすとともに、それ自身がポンプ光となりうるので、パルス伝播に伴う制御確率の低下を防いでいる。[1]T. C. Weinacht *et al.*, *J. Phys. Chem. A* **103**, 10166 (1999) [2]Y. Ohtsuki and K. Nakagami *Phys. Rev. A* **77**, 033414 (2008)

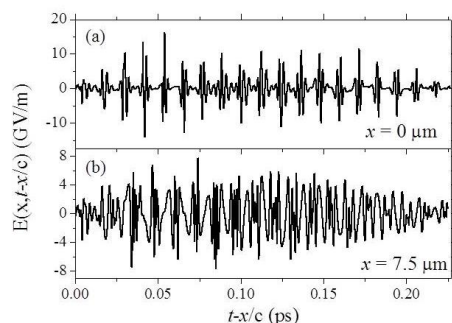


図1.(a)最適な入射パルス  
(b)入射位置から $7.5 \mu\text{m}$ の位置での最適パルス

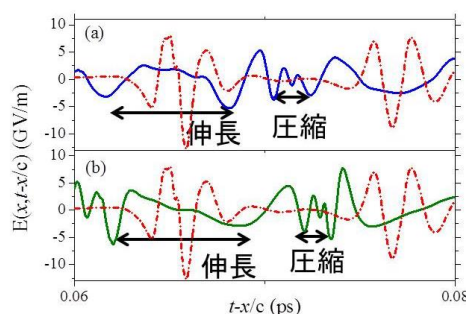


図2.(a)  $x = 3.75 \mu\text{m}$ での最適パルス  
(b)  $x = 7.5 \mu\text{m}$ での最適パルス  
1点鎖線は $x = 0 \mu\text{m}$ での(入射)最適パルス

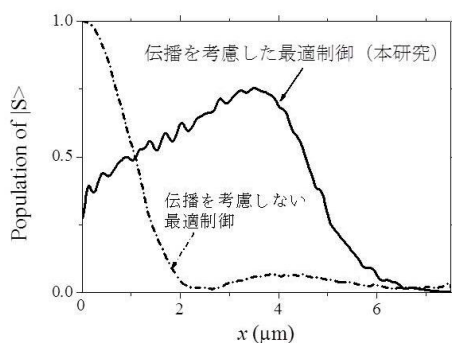


図3. 終時刻での $|S\rangle$ の分布の位置依存性  
実線: パルス伝播効果を考慮して得られた最適パルスを入射した場合  
鎖線: パルス伝播効果を考慮しない最適制御[2]で得られた最適パルスを入射した場合