

最適に制御された量子分子動力学： 摂動と多重解の存在 formulation

Metin Demiralp*, Herschel Rabitz

Department of Chemistry, Princeton University, Princeton, New Jersey 08544-1009

(Received 22 April 1992)

本研究では、量子力学系の最適制御を、制御する光電場に関して摂動論の枠組みで考察する。制御問題は、物理的目的、罰則、制約を含むコスト関数で表現される。結果として得られる非線形変分方程式は、光電場強度の累乗展開における低次の項を考慮することで線形化される。光学場は線形積分方程式を満たすことがわかり、その解は対応するカーネルに関連する一般化された固有値問題で表現されることがあります。フィールドの完全な決定は、積分方程式の解と、特性乗数パラメータに関する付随する線形化されたスペクトル方程式の根によって指定されます。後者のパラメータの各離散値は、変分方程式の特定の解に対応する。その結果、非常に一般的な条件下では、よく提起された量子力学的最適制御問題の解は、数え切れないほど無限に存在することが論じられた。

PACS number(s): 03.65.-w, 34.30.+h

I. INTRODUCTION

最近、量子力学的なシステムの制御を探索することに大きな関心が寄せられている [1- 3]。この興味は、原子・分子スケールでの動的現象を積極的に操作したいという長年の願望や、その他の応用に起因しています。一般に、制御は、調整された外部（光）場の適用によって達成されることが想定されている。現象が本質的に量子力学的であることから、調整された場は、建設的・破壊的な量子波の干渉を微妙に操作することで制御を実現する。この原理は、量子現象の最も基本的なもの（例えば、二重スリット実験で生じる干渉パターン）に根ざしており、これらの基本原理は実験的に検証されている [4]。によって

分子制御の目的の複雑さによって、調整されるフィールドは単純なcwソースから複雑なコヒーレントパルス形状に及ぶ可能性があります。現在の理論的研究では、回転、振動、電子の自由度を含む様々な制御目的の初期調査が行われている [5 - 24]。シュレディンガーを満足させながら、制御目標と競合するペナルティ（過剰な光場強度、望ましくない分子状態へのアクセスなど）を柔軟に導入できる最適制御の枠組み [25- 28] に、上記の設計計算が一般的に当てはめられてきた。を導入し、シュレディンガー方程式を満足させる。そして、最適化は、求める未知の光場に関して、正の半正定値のコスト関数を最小化することからなる。この過程で重要なことは、制御問題の非線形性である。

シュレディンガー方程式は波動関数に対しては線形であるが、制御問題としては未知の制御場と波動関数が2次関数的に入るため非線形である。さらに、伝統的な2次コスト関数を用いて変分最適化方程式を求めると、Schrodinger方程式とその連立補助形式が導かれるが、どちらも非線形 Schrodinger方程式を思わせる3次非線形性を含んでいる [29]。後者の方程式は、物理学の関連分野でソリトン波や他のタイプの異常な波動をサポートすることが知られているが、量子制御領域におけるこの事柄の完全な意義は探求されていないのは不思議なことである。しかし、量子制御問題を固有の非線形フレームワークに置き換えることで、光フィールドの最適設計解が複数存在する可能性が出てきた。この可能性は、実際の数値計算で経験的に確認されているが、著者らの知る限り、これまで慎重に検討されることはなかった。本論文は、量子制御理論における摂動論的アプローチを開発し、量子最適制御問題に複数の解が存在することの本質を明らかにするものであり、本論文とその関連論文 [31] を予定している。ここで開発された定式化は数値的な実装が可能であるが、現在の関心は、量子制御プロセスに対する分析的かつ概念的な洞察を得ることにある。本論文のセクションIIでは、コスト関数の定義と変分方程式を求めることにより、最適量子制御の定式化を簡潔に要約する。セクションIIIでは、波動関数とそのアジョイント（最適化プロセスにおけるラグランジュ乗数関数）に対して、制御場の強さの無限級数による摂動展開を紹介する。その結果、最適制御の定式化は、「場の方程式」と「スペクトルの方程式」を解くことに縮小される。

Optimally controlled quantum molecular dynamics: A perturbation formulation and the existence of multiple solutions

Metin Demiralp* and Herschel Rabitz

Department of Chemistry, Princeton University, Princeton, New Jersey 08544-1009

(Received 22 April 1992)

This work considers optimal control of quantum-mechanical systems within the framework of perturbation theory with respect to the controlling optical electric field. The control problem is expressed in terms of a cost functional including the physical objective, the penalties, and constraints. The resultant nonlinear variational equations are linearized by considering the lowest-order term in an expansion in powers of the optical-field strength. The optical field is found to satisfy a linear integral equation, and the solution may be expressed in terms of a generalized eigenvalue problem associated with the corresponding kernel. A full determination of the field is specified through the solution to the integral equation and the roots of an accompanying linearized spectral equation for a characteristic multiplier parameter. Each discrete value of the latter parameter corresponds to a particular solution to the variational equations. As a result, it is argued that under very general conditions there will be a denumerably infinite number of solutions to well-posed quantum-mechanical optimal-control problems.

PACS number(s): 03.65.-w, 34.30.+h

I. INTRODUCTION

There has been considerable recent interest in exploring the control of quantum-mechanical systems [1–3]. This interest stems from a long-standing desire to actively manipulate dynamical events at the atomic and molecular scale, as well as other applications. In general, control is envisioned to be achieved by the application of a tailored external (optical) field. Given that the phenomena are inherently quantum mechanical, the tailored fields achieve control by delicately manipulating constructive and destructive quantum wave interferences. The principles involved are rooted in the most elementary of quantum phenomena (e.g., the interference pattern generated by a double slit experiment), and experimental verification of these basic principles has been seen [4]. Depending on the complexity of the molecular control objective, the tailored fields may range from simple cw sources to complex coherent pulse shapes. Current theoretical work has made an initial exploration of a variety of control objectives involving rotational, vibrational, and electronic degrees of freedom [5–24].

The design calculations referred to above have generally been cast into an optimal control framework [25–28] that allows for the flexible introduction of control objectives and competing penalties (e.g., excessive optical-field fluence, access to undesirable molecular states, etc.) while satisfying Schrödinger's equation. The optimization then consists of minimizing a positive-semidefinite cost functional with respect to the sought-after unknown optical field. An important point in this process concerns the nonlinear nature of the resultant control problem. Although Schrödinger's equation is linear with respect to the wave function, as a control problem it is nonlinear

since the unknown controlling field and the wave function enter quadratically. Furthermore, using a traditional quadratic cost functional, the variational optimizing equations lead to the Schrödinger equation and its coupled adjoint form, both containing a cubic nonlinearity reminiscent of the nonlinear Schrödinger equation [29]. It is curious that the latter equations are known to support solitonic and other types of unusual wave behavior in related areas of physics, although the full significance of this matter in the quantum control domain has not been explored. However, the rendering of the quantum control problem into an inherent nonlinear framework opens up the possibility of there being multiple optimal design solutions for the optical fields. This prospect has been verified empirically in actual numerical calculations, but until now, to the authors' knowledge, not carefully explored. The present paper and its planned companion [31] develop a perturbation-theory approach in quantum control theory that clearly reveals the nature of there being multiple solutions to quantum optimal-control problems. Although the formulation developed here could be implemented numerically, present interest is directed toward obtaining analytical and conceptual insight into the quantum control process.

Section II of the paper will succinctly summarize the optimal quantum control formulation by defining the cost functional and obtaining the resultant variational equations. Section III will introduce a perturbation expansion for the wave function and its adjoint (i.e., the Lagrange multiplier function entering the optimization process) in terms of an infinite series in the strength of the controlling field. As a result, the optimal-control formulation will be reduced to solving a "field equation" and a "spectral equation." Section IV will deal with the linearized

field equation, and similarly, Sec. V will deal with the 第IV節では、線形化された線形化スペクトル方程式を扱う。量子最適制御問題で複数の解が見つかる可能性に関して、一般的な結論が導かれる。

II. DERIVATION OF THE DYNAMICAL EQUATIONS

この分子に対して、振幅を $\delta(t)$ とする電場を印加すると、分子の進化は予想される自由な分子運動から逸脱することになる。このずれは、電場の周波数や時間構造を変えることで操作できる。このようにして、分子の特定の結合を緩和したり、あるいは切断したり、分子の動的な進化を制御することができる。場の存在下での分子のハミルトニアンは次のように書くことができる：

$$H = H_0 + \mu \mathcal{E}(t), \quad (2.1)$$

ここで μ は検討中の分子の時間非依存な双極子関数を表し、場の振幅は時間によってのみ変化する。場のベクトルの性質は暗黙のうちに理解され、 $\delta(t)$ はスカラー振幅となる。等価的に純粋な磁場や電磁場を使用することもできる。しかし、唯一の変化は、場と分子との相互作用の構造である。式(2.1)の定式化は、電子、振動、回転の自由度を包含し、非線形場効果の適切な項も追加することができる。 $b(t)$ が与えられている限り、 H と $i\hbar$ を介して記述される系の順方向ダイナミクスには、何ら変わったところはない。量子力学の標準的な方法を用いれば、原理的にはこの問題は解決する。しかし、分子の運動が、我々が望むものに限りなく近い新しいルートをたどるような場を設計したいと考えたとき、この問題は新たな視点を持つことになる。適切なフィールドを選択する基準は、最適制御理論によって定式化された逆問題を提起している[25 - 28]。最適制御理論は、適切なコスト関数の選択と、それに対応するオイラー方程式の導出によって実現される。ここで、磁場と分子の相互作用が時間間隔 0 にわたって存在すると仮定し、エルミート演算子 0 で特徴づけられる観測量を考える。もし、 0 の期待値が 0 によって表される与えられた目標値にできるだけ近くなることを望むなら、以下の目的項をコスト関数の一部として選択することが可能である。

$$\mathcal{J}_0 = \frac{1}{2} [\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle - \bar{O}]^2. \quad (2.2)$$

次のステップは、ペナルティ項の定義である。この目的のために、本研究では2つの異なるペナルティ項のみを考慮する。そのうちの1つは、適切に選択された重み関数 ($W(t)$ で示される) を介して、場-分子相互作用中に 0 で示される望ましくない観測演算子の期待値を抑制することを目的としている。

$$\mathcal{J}_p^{(1)} = \frac{1}{2} \int_0^T dt W_p(t) \langle \psi(t) | \hat{O}^\dagger | \psi(t) \rangle^2, \quad W_p(t) > 0 \quad t \in [0, T]. \quad (2.3)$$

これは次のように表すことができる。第2のペナルティ項は、フィールドオーエンスを最小化する可能性を可能にする。この項もまた、 $W(t)$ で示される適切な重み関数を含み、以下のように与えられる：

$$\mathcal{J}_p^{(2)} = \frac{1}{2} \int_0^T dt W_{\mathcal{E}}(t) \mathcal{E}(t)^2, \quad W_{\mathcal{E}}(t) > 0, \quad t \in [0, T]. \quad (2.4)$$

これまで、波動関数は直接または間接的にコスト項に入っていた。しかし、波動関数は量子力学の基本方程式を満たす必要があります。シュレディンガー方程式は、時間的・空間的に変化するラグランジュ乗数 λ を介して制約項としてコスト関数に明示的に導入することができる（構成空間表現を想定）。したがって、実数値の寄与を考慮することで、以下のようなコスト項を書くことができる：

$$\mathcal{J}_{c,d} = \int_0^T dt \left\langle \lambda(t) \left| i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(t) \right| \psi(t) \right\rangle + \int_0^T dt \left\langle \lambda^*(t) \left| -i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(t) \right| \psi^*(t) \right\rangle. \quad (2.5)$$

さて、トータルコスト項は、これらの個別コスト項の合計として、次のように書ける段階になりました：

$$\mathcal{J} = \mathcal{J}_0 + \mathcal{J}_p^{(1)} + \mathcal{J}_p^{(2)} + \mathcal{J}_{c,d}. \quad (2.6)$$

上記では最初の3項を明示的に与えたが、実際にはさらにflexibilityがあり、他の様々な物理的コスト項を組み入れることができる。上記のコスト関数によって最適に制御されるflexibilityの力学方程式は、cFの定常変分条件によって得られる。

$$\delta \mathcal{J} = 0. \quad (2.7)$$

δ は磁場振幅 \mathcal{E} に加えて $\lambda(t)$, $g(t)$ に依存するので、cFの変動はこれらの変数の変動の線形結合として表すことができる。したがって、この線形結合の係数は、個々に消滅しなければならない。これらの方程式は次のような形に還元される：

$$i\hbar \frac{\partial \psi(t)}{\partial t} = [H_0 + \mu \mathcal{E}(t)] \psi(t), \quad (2.8a)$$

$$\psi(0) = \tilde{\psi}, \quad (2.8b)$$

$$i\hbar \frac{\partial \lambda(t)}{\partial t} = [H_0 + \mu \mathcal{E}(t)] \lambda(t) - W_p(t) \langle \psi(t) | \hat{O}^\dagger | \psi(t) \rangle \hat{O}^\dagger \psi(t), \quad (2.9a)$$

$$\lambda(T) = \frac{i}{\hbar} \eta \hat{O} \psi(T), \quad (2.9b)$$

$$\mathcal{E}(t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}(t)} \text{Re}[\langle \lambda(t) | \mu | \psi(t) \rangle], \quad (2.10)$$

$$\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle = \bar{O} + \eta, \quad (2.11)$$

where Re denotes the real part. The intermediate con-

field equation, and similarly, Sec. V will deal with the linearized spectral equation. General conclusions will be drawn concerning the likelihood of finding multiple solutions to quantum optimal-control problems.

II. DERIVATION OF THE DYNAMICAL EQUATIONS

Consider a molecular system whose free motion is completely described through its time-independent Hamiltonian H_0 and its initial state characterized by the wave function $\tilde{\psi}$. If we apply an electrical field whose amplitude is denoted by $\mathcal{E}(t)$ to this molecule, then its evolution will deviate from its expected free molecular motion. A deviation can be manipulated by changing the field's frequency or temporal structure. In this way, it may be possible to relax or even to break certain bonds in the molecule or otherwise control its dynamical evolution. We can write the Hamiltonian of the molecule in the presence of the field as follows:

$$H = H_0 + \mu \mathcal{E}(t), \quad (2.1)$$

where μ stands for the time-independent dipole function of the molecule under consideration and the field amplitude varies only with time. The vector nature of the field is implicitly understood and $\mathcal{E}(t)$ is the scalar amplitude. We could equivalently use a purely magnetic or electromagnetic field. However, the only change would be in the structure of the field-molecular interaction. The formulation in Eq. (2.1) encompasses electronic, vibrational, or rotational degrees of freedom, and appropriate terms for nonlinear field effects could also be added.

As long as $\mathcal{E}(t)$ is given, there is nothing unusual about the forward dynamics of the system that is described via H and $\tilde{\psi}$. Standard methods of quantum dynamics would, in principle, solve the problem. However, the problem takes on a new perspective when we want to *design* a field such that the motion of the molecules follows a new route that is as close as possible to one we desire. The criteria for choosing an appropriate field poses an inverse problem formulated through optimal-control theory [25–28]. Optimal-control theory is implemented by the selection of an appropriate cost functional and the derivation of the corresponding Euler equations.

We now assume that the field-molecule interaction exists over the time interval $0 < t \leq T$, and consider an observable that is characterized by a Hermitian operator \hat{O} . If we desire that the expectation value of \hat{O} become as close as possible to a given target value represented by \tilde{O} , then the following objective term can be chosen as a part of the cost functional

$$\mathcal{J}_0 = \frac{1}{2} [\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle - \tilde{O}]^2. \quad (2.2)$$

The next step is the definition of the penalty terms. For this purpose, we consider only two different penalty terms in this work, one of which is aimed at suppressing the expectation value of an undesired observable operator denoted by \hat{O}' during the field-molecule interaction via an appropriately chosen weight function denoted by $W_p(t)$. This can be expressed as

$$\mathcal{J}_p^{(1)} = \frac{1}{2} \int_0^T dt W_p(t) \langle \psi(t) | \hat{O}' | \psi(t) \rangle^2, \quad (2.3)$$

$$W_p(t) > 0 \quad t \in [0, T].$$

The second penalty term allows for the possibility of minimizing the field fluence. This term also includes an appropriate weight function denoted by $W_{\mathcal{E}}(t)$ and is given as follows:

$$\mathcal{J}_p^{(2)} = \frac{1}{2} \int_0^T dt W_{\mathcal{E}}(t) \mathcal{E}(t)^2, \quad W_{\mathcal{E}}(t) > 0, \quad t \in [0, T]. \quad (2.4)$$

Until now, the wave function has directly or indirectly entered the cost terms. However, it must satisfy the fundamental equation of quantum mechanics. The Schrödinger equation may be introduced explicitly in the cost functional as a constraint term via a Lagrange multiplier λ , which varies temporally and spatially (assuming a configuration-space representation). Therefore, by considering a real-valued contribution, we can write the following cost term:

$$\mathcal{J}_{c,d} = \int_0^T dt \left\langle \lambda(t) \left| i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(t) \right| \psi(t) \right\rangle + \int_0^T dt \left\langle \lambda^*(t) \left| -i\hbar \frac{\partial}{\partial t} - H(t) \right| \psi^*(t) \right\rangle. \quad (2.5)$$

Now, we are at a point where the total cost term can be written as a sum of these individual cost terms as follows:

$$\mathcal{J} = \mathcal{J}_0 + \mathcal{J}_p^{(1)} + \mathcal{J}_p^{(2)} + \mathcal{J}_{c,d}. \quad (2.6)$$

Although the first three terms were given explicit forms above, in practice there is additional flexibility to build in a variety of other physical cost terms. The dynamical equations of the system, which is optimally controlled through the above cost functional, are obtained by the stationary variational condition of \mathcal{J}

$$\delta \mathcal{J} = 0. \quad (2.7)$$

Since \mathcal{J} depends on $\lambda(t)$, $\psi(t)$ in addition to the field amplitude \mathcal{E} , the variation of \mathcal{J} can be expressed as a linear combination of the variations of these variables. Therefore, the coefficients of this linear combination must individually vanish. These equations can be reduced to the following form:

$$i\hbar \frac{\partial \psi(t)}{\partial t} = [H_0 + \mu \mathcal{E}(t)] \psi(t), \quad (2.8a)$$

$$\psi(0) = \tilde{\psi}, \quad (2.8b)$$

$$i\hbar \frac{\partial \lambda(t)}{\partial t} = [H_0 + \mu \mathcal{E}(t)] \lambda(t) - W_p(t) \langle \psi(t) | \hat{O}' | \psi(t) \rangle \hat{O}' \psi(t), \quad (2.9a)$$

$$\lambda(T) = \frac{i}{\hbar} \eta \hat{O} \psi(T), \quad (2.9b)$$

$$\mathcal{E}(t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}(t)} \text{Re}[\langle \lambda(t) | \mu | \psi(t) \rangle], \quad (2.10)$$

$$\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle = \tilde{O} + \eta, \quad (2.11)$$

where Re denotes the real part. The intermediate con-

を導入し、解析を容易にする。制御問題がうまく提起されると、 $t = T$ のときに期待値0を与えられた値0に正確に達成することを要求することができる：

$$J_{c,o} = \eta [\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle - \bar{O}], \quad (2.12)$$

ここで g は定数のラグランジュ乗数である。この場合も上記の変分式が成立する。同様の中間ステップを経て、(2. 8a)から(2. 10)の式で与えられる方程式と全く同じものが得られる。唯一の違いは、式(2. 11)の右辺に g が存在しないことで、式(2. 11)をより一般的な以下の形に置き換えます：

$$\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle = \bar{O} + \alpha \eta, \quad (2.13)$$

where the new parameter α is defined as

$$\begin{aligned} \text{do を使用する場合は } 1 \text{ (柔軟な場合)} \\ \alpha = \text{tit}, \text{ , を使用する場合は } 0 \text{ (制約のある場合)}. \end{aligned} \quad (2.14)$$

tt)'0を含む場合、係数 g は目標値からの偏差を測定するだけである。この係数 g は、第IV、V章に続く解析において、最適制御問題の多重解の存在を証明する上で重要な役割を果たす。以上のように、ここで規定したコスト関数は物理的に妥当なものであるが、他の形式を選択することも可能である。本論文の目的は、式(2. 8)–(2. 11)の多重解の存在を探ることであり、これらの式の形は、8の形、またシステムハミルトニアンに直接依存する。注目すべき特殊なケースは、二次コスト関数を用いたEhrenfestの定理による調和振動子システムの制御である[8, 11]。この場合、制御問題に対する一意解が存在する。以下に示すように、今回紹介するより一般的なケースでは、逆の状況が発生する。

III. PERTURBATIVE REDUCTION OF THE DYNAMICAL EQUATIONS

仮に磁場振幅が既知であると仮定すると、式(2. 8a)と式(2. 8b)は未知の波動関数 $g(t)$ を決定することになるが、式(2. 8a)の磁場-分子相互作用寄与は摂動として考慮しない。ダミーの秩序化パラメータ v を使用することで、このパラメータは後で等しくなり、次のように進めることができる。

$$i\hbar \frac{\partial \psi(v, t)}{\partial t} = [H_0 + v\mu \mathcal{E}(t)] \psi(v, t), \quad (3.1a)$$

$$\psi(v, 0) = \tilde{\psi}, \quad (3.1b)$$

$$\psi(v, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \psi_j(t) v^j, \quad (3.2)$$

$$i\hbar \frac{\partial \psi_j(v, t)}{\partial t} = H_0 \psi_j(t) + \mu \mathcal{E}(t) \psi_{j-1}(t), \quad j \geq 0, \psi_{-1} \equiv 0, \quad (3.3a)$$

$$\psi_j(0) = \tilde{\psi} \delta_{j0} \quad j \geq 0. \quad (3.3b)$$

式(3. 3a)と(3. 3b)の正式解は、次のような形になります。

$$\psi_j(t) = \frac{(-i)^j}{\hbar^j} e^{-(i/\hbar)H_0 t} \mathcal{S}_0^j \tilde{\psi}, \quad (3.4)$$

ここで、 0 は空間依存性を明示的に示さない任意の波動関数 $P(t)$ に作用するものとして、以下のように定義される：

$$\mathcal{S}_0 \hat{\psi}(t) = \int_0^t d\tau \mathcal{E}(\tau) Q_\mu(\tau) \hat{\psi}(\tau). \quad (3.5)$$

上記の積分演算子のカーネルは、自由伝搬子進化型双極子演算子で定義されます。

$$Q_\mu(t) = e^{(i/\hbar)H_0 t} \mu e^{-(i/\hbar)H_0 t}. \quad (3.6)$$

ここで、 ρ が空間変数の有界関数である通常の場合を想定し、自由伝搬子の単位性を利用すると、いくつかの中間操作を経て、以下の不等式を書くことができます：

$$\|\psi_j(t)\| \leq \frac{\|\mu\|^j}{\hbar^j} \frac{\left[\int_0^t d\tau |\mathcal{E}(\tau)| \right]^j}{j!}, \quad j \geq 0 \quad (3.7)$$

$$\|\psi(t)\| \leq \exp \left[\frac{\|\mu\|}{\hbar} \int_0^t d\tau |\mathcal{E}(\tau)| \right], \quad (3.8)$$

ここで $\frac{1}{\hbar} \|\mu\|$ が仮定された。したがって、摂動展開は、秩序化パラメータ v のすべての有限領域において、また磁場-分子相互作用時間中の空間変数のすべての値に対して収束する。ほとんどの分子系は双極子関数が有界であるため、 ρ の有界性の仮定は実用例では深刻な制約とはならない。しかし、分子がイオンとして解離するような場合には、束縛されていない双極子関数を使わなければならないことがある。このような状況では、波動関数の v の累乗による摂動展開が有限の収束半径を持つことになる。つまり、点 $v=1$ が収束領域に含まれることは保証されない。しかし、既知の参照場 ϕ を導入し、[6–6]についての新しい展開を考えることによって、収束挙動を強化することができる。より一般的には、解析的継続法を用いて、展開が漸近的であれば、それを加速したり収束させたりすることができる。実際には、すべての計算は有限の領域で行われ、この条件下では真の双極子関数の特異点は生じないだろう。最後に、本論文では、摂動論の低次で十分な弱い場限定して考察を行う。この問題は、ここではこれ以上扱わず、以後、境界磁場-分子相互作用のみを扱うと仮定する。

stant variable η is introduced to facilitate the further analysis.

When the control problem is well posed, we could demand the exact achievement of the expectation value of \hat{O} to the given value \bar{O} when $t = T$. Then, we would replace the objective term given by Eq. (2.2) with the following objective constraint term:

$$\mathcal{J}_{c,o} = \eta [\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle - \bar{O}], \quad (2.12)$$

where η is a constant Lagrange multiplier. The above variational formulation follows through for this case also. After similar intermediate steps, exactly the same equations given by the formulas from (2.8a) to (2.10) are obtained. The only difference is the nonexistence of η in the right-hand side of the Eq. (2.11), and thus we replace Eq. (2.11) with the following more general form:

$$\langle \psi(T) | \hat{O} | \psi(T) \rangle = \bar{O} + \alpha \eta, \quad (2.13)$$

where the new parameter α is defined as

$$\alpha = \begin{cases} 1 & \text{if } \mathcal{J}_0 \text{ is used (flexible case)} \\ 0 & \text{if } \mathcal{J}_{c,o} \text{ is used (constrained case).} \end{cases} \quad (2.14)$$

In the case involving \mathcal{J}_0 the coefficient η just measures the deviation of the objective from its target value. In the analysis to follow in Secs. IV and V the coefficient η will play an important role in establishing the existence of multiple solutions to the optimal-control problem. As pointed out above, the cost functional prescribed here is physically reasonable, although other forms could be chosen. The purpose of this paper is to explore the existence of multiple solutions for Eqs. (2.8)–(2.11), and the form of these equations directly depends on the form of \mathcal{J} and also the system Hamiltonian. A notable special case is control of a harmonic-oscillator system within Ehrenfest's theorem using a quadratic cost functional [8,11]. In this case there is a unique solution to the control problem. As shown below, the opposite circumstance arises in the more general case introduced here.

III. PERTURBATIVE REDUCTION OF THE DYNAMICAL EQUATIONS

If we temporarily assume that the field amplitude is known, then the Eqs. (2.8a) and (2.8b) would determine the unknown wave function $\psi(t)$. We now consider the field-molecule interaction contribution in Eq. (2.8a) as a perturbation. By using a dummy ordering parameter ν , which will be taken equal to unity later, we can proceed with

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\nu, t)}{\partial t} = [H_0 + \nu \mu \mathcal{E}(t)] \psi(\nu, t), \quad (3.1a)$$

$$\psi(\nu, 0) = \tilde{\psi}, \quad (3.1b)$$

$$\psi(\nu, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \psi_j(t) \nu^j, \quad (3.2)$$

$$i\hbar \frac{\partial \psi_j(\nu, t)}{\partial t} = H_0 \psi_j(t) + \mu \mathcal{E}(t) \psi_{j-1}(t), \quad j \geq 0, \quad \psi_{-1} \equiv 0, \quad (3.3a)$$

$$\psi_j(0) = \tilde{\psi} \delta_{j0} \quad j \geq 0. \quad (3.3b)$$

The formal solution of Eqs. (3.3a) and (3.3b) can be cast into the form

$$\psi_j(t) = \frac{(-i)^j}{\hbar^j} e^{-(i/\hbar)tH_0} \mathcal{S}_0^j \tilde{\psi}, \quad (3.4)$$

where \mathcal{S}_0 is defined to act on an arbitrary wave function $\hat{\psi}(t)$ without explicitly denoted spatial dependence as follows:

$$\mathcal{S}_0 \hat{\psi}(t) = \int_0^t d\tau \mathcal{E}(\tau) Q_\mu(\tau) \hat{\psi}(\tau). \quad (3.5)$$

The kernel of the above integral operator is defined in terms of the free propagator evolved dipole operator

$$Q_\mu(t) = e^{(i/\hbar)tH_0} \mu e^{-(i/\hbar)tH_0}. \quad (3.6)$$

If we now assume the normal case that μ is a bounded function of spatial variables and utilize the unitarity of the free propagator, we can write the following inequalities after some intermediate manipulations:

$$\|\psi_j(t)\| \leq \frac{\|\mu\|^j}{\hbar^j} \frac{\left[\int_0^t d\tau |\mathcal{E}(\tau)| \right]^j}{j!}, \quad j \geq 0 \quad (3.7)$$

$$\|\psi(t)\| \leq \exp \left[\frac{|\nu| \|\mu\|}{\hbar} \int_0^t d\tau |\mathcal{E}(\tau)| \right], \quad (3.8)$$

where $\|\tilde{\psi}\| = 1$ was assumed. Therefore, the perturbation expansion converges in every finite domain of the ordering parameter ν and for all values of the spatial variables during the field-molecule interaction time.

The boundedness assumption on μ is not a serious restriction in practical examples, since most molecular systems have bounded dipole functions. However, we may have to use unbounded dipole functions in cases where molecules dissociate as ions. This circumstance will force the perturbation expansion of the wave function in powers of ν to have a finite convergence radius. This means that we cannot guarantee that the point $\nu = 1$ is included in the convergence domain. However, the convergence behavior could be enhanced by introducing a *known* reference field $\tilde{\mathcal{E}}$ and considering a new expansion about $[\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}}]$. More generally, analytic continuation methods could be used to accelerate or make convergent the expansion if it is asymptotic. In practice all calculations are carried out over a finite domain and no true dipole function singularities would arise under these conditions. Finally, in the present paper we shall confine our attention to weak fields where the lowest order of perturbation theory suffices. This matter will not be treated further here, and henceforth we assume that we are only dealing with bounded field-molecule interactions.

Now, by again assuming the field amplitude is known, we can write the following generalized form of Eqs. (2.9a) and (2.9b) via a dummy ordering parameter ν to obtain a

perturbation expansion of the Lagrange multiplier function

$$i\hbar \frac{\partial \lambda(v, t)}{\partial t} = [H_0 + v\mu \mathcal{E}(t)]\lambda(v, t) + \sum_{j=0}^{\infty} \mathcal{F}_j(t)v^j, \quad (3.9a)$$

$$\lambda(v, T) = \frac{i}{\hbar} \eta \hat{O} \sum_{j=0}^{\infty} \psi_j(T)v^j, \quad (3.9b)$$

where

$$\mathcal{F}_j = -W_p(t) \sum_{k=0}^j \sum_{l=0}^{j-k} \langle \psi_{j-k-l}(t) | \hat{O} | \psi_l(t) \rangle \hat{O}' \psi_k(t), \quad j \geq 0. \quad (3.10)$$

ここで、再び場の振幅が既知であると仮定して、式(2.9a)と式(2.9b)をダミー秩序パラメータ v を介して以下の一般化した形で書くと式(3.9)の解は、級数展開で次のように表すことができる。

$$\lambda(v, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \lambda_j(t)v^j, \quad (3.11)$$

ここで、係数は以下の再帰的偏微分方程式を満たす。

$$i\hbar \frac{\partial \lambda_j(t)}{\partial t} = H_0 \lambda_j(t) + \mu \mathcal{E}(t) \lambda_{j-1}(t) + \mathcal{F}_j(t), \quad (3.12a)$$

$$\lambda_j(T) = \frac{i}{\hbar} \eta \hat{O} \psi_j(T), \quad j \geq 0. \quad (3.12b)$$

いくつかの中間的な操作の後、上の最後の2つの方程式の解を次のように明示的に書くことができます：

$$\lambda_j(t) = \sum_{k=0}^j \left[\frac{i}{\hbar} \right]^{j-k+1} e^{(i/\hbar)(T-t)H_0} \mathcal{S}_T^{j-k} \times \left\{ \eta \hat{O} \psi_k(T) + \int_t^T d\tau e^{-(i/\hbar)(T-\tau)H_0} \mathcal{F}_k(\tau) \right\} \quad j \geq 0 \quad (3.13)$$

where

$$\mathcal{S}_T \hat{\psi} = \int_t^T d\tau \mathcal{E}(\tau) Q_\mu(\tau) \hat{\psi}. \quad (3.14)$$

0と0'がともに有界であると仮定すると、波動関数の摂動展開の場合と同様の詳細なノルム解析により、ラグランジュ乗数関数について次の不等式を結論づけることができる：

$$\|\lambda(t)\| \leq \left[\frac{|\eta| \|\hat{O}\| + \|\hat{O}'\|^2 \int_0^T d\tau W_p(\tau)}{\hbar} \right] \times \exp \left[\frac{4|v| \|\mu\|}{\hbar} \int_0^T d\tau |\mathcal{E}(\tau)| \right]. \quad (3.15)$$

この結果は、ラグランジュ乗数関数の摂動展開は、 p 、0、0'が有界のままであれば、 v のすべての有限値に対して収束することを意味している。もし、演算子0と0'のいずれかが非有界であれば、 $A(v, t)$ の摂動展開の収束半径は有限な値に減少し、有界双極子関数の場合でも $v=1$ が収束領域内にあることは保証できなくなる。

この点を見るには、 $A(v, t)$ の挙動が後者の量と強く関係しているため、詳細な解析に入らずに0tfの挙動を調べれば十分である

$$\|\hat{O}\psi(v, t)\| < \sum_{j=0}^{\infty} \sigma_j(t) \|\psi_j(t)\| |v|^j, \quad (3.16)$$

where

$$\sigma_j(t) = \frac{\|\hat{O}\psi_j(t)\|}{\|\psi_j(t)\|}, \quad j \geq 0. \quad (3.17)$$

By using Eq. (3.7) one can replace Eq. (3.16) with the following:

$$\|\hat{O}\psi(v, t)\| < \sum_{j=0}^{\infty} \frac{\sigma_j(t)}{j!} v^j, \quad (3.18)$$

where

$$\bar{v} = \frac{\|\mu\| |v| \int_0^t d\tau |\mathcal{E}(\tau)|}{\hbar}. \quad (3.19)$$

0_j、 $j=0$ の列は0が束縛されないため、 j が無限大になったときの0の漸近挙動は式(3.16)の展開の収束性に強く影響します。 j が大きいときのcr.の漸近挙動によっては、収束領域が有限、あるいは $v=0$ という点まで縮小してしまうことがある。これは明らかに望ましくない状況であり、このようなケースを排除することが必要である。演算子の非束縛性の除去は、コスト項8、および \mathcal{A}_4 を以下のように再定義することで達成できる：

$$\mathcal{A}_0 = \frac{1}{2} [\langle \psi(T) | \varphi_1(\hat{O}) | \psi(T) \rangle - \varphi_1(\bar{O})]^2, \quad (3.20a)$$

$$\mathcal{A}_p^{(1)} = \frac{1}{2} \int_0^T dt W_p(t) \langle \psi(t) | \varphi_2(\hat{O}') | \psi(t) \rangle^2, \quad W_p(t) > 0 \quad (3.20b)$$

ここで、 φ_1 と φ_2 は適当に選んだ単調関数で、(10)(x)と $p_z(x)$ は x が実数のとき有界である。に関する式(3.8)以下のコメントの多くは、このようなものである。

perturbation series convergence also apply here. Henceforth we shall assume convergence of the expansion for $\lambda(t)$.

ここで、同時に v に依存する以下の時間関数を定義する：

$$\Phi(v, t) = \frac{2}{W_p} \text{Re}[\langle \lambda(v, t) | \mu | \psi(v, t) \rangle], \quad (3.21)$$

$$\Omega(v, t) = \langle \psi(v, t) | \hat{O} | \psi(v, t) \rangle. \quad (3.22)$$

関数 Φ は求める場 $\Phi'(t)$ 、 $Q(v, t)$ は求める観測値である。これらの関数の v の累乗での級数展開は次のようになる。

$$\Phi(v, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \Phi_j(t)v^j, \quad (3.23)$$

$$\Omega(v, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \Omega_j(t)v^j, \quad (3.24)$$

where

perturbation expansion of the Lagrange multiplier function λ

$$i\hbar \frac{\partial \lambda(\nu, t)}{\partial t} = [H_0 + \nu \mu \mathcal{E}(t)] \lambda(\nu, t) + \sum_{j=0}^{\infty} \mathcal{F}_j(t) \nu^j, \quad (3.9a)$$

$$\lambda(\nu, T) = \frac{i}{\hbar} \eta \hat{O} \sum_{j=0}^{\infty} \psi_j(T) \nu^j, \quad (3.9b)$$

where

$$\mathcal{F}_j = -W_p(t) \sum_{k=0}^j \sum_{l=0}^{j-k} \langle \psi_{j-k-l}(t) | \hat{O} | \psi_l(t) \rangle \hat{O}' \psi_k(t), \quad j \geq 0. \quad (3.10)$$

The solution of the Eqs. (3.9) can be expressed in a series expansion as

$$\lambda(\nu, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \lambda_j(t) \nu^j, \quad (3.11)$$

where the coefficients satisfy the following recursive partial differential equations

$$i\hbar \frac{\partial \lambda_j(t)}{\partial t} = H_0 \lambda_j(t) + \mu \mathcal{E}(t) \lambda_{j-1}(t) + \mathcal{F}_j(t), \quad (3.12a)$$

$$\lambda_j(T) = \frac{i}{\hbar} \eta \hat{O} \psi_j(T), \quad j \geq 0. \quad (3.12b)$$

After some intermediate manipulations we can explicitly write the solution of the last two equations above as follows:

$$\lambda_j(t) = \sum_{k=0}^j \left[\frac{i}{\hbar} \right]^{j-k+1} e^{(i/\hbar)(T-t)H_0} \mathcal{S}_T^{j-k} \times \left\{ \eta \hat{O} \psi_k(T) + \int_t^T d\tau e^{-(i/\hbar)(T-\tau)H_0} \mathcal{F}_k(\tau) \right\} \quad j \geq 0 \quad (3.13)$$

where

$$\mathcal{S}_T \hat{\psi} = \int_t^T d\tau \mathcal{E}(\tau) Q_{\mu}(\tau) \hat{\psi}. \quad (3.14)$$

If we assume that both \hat{O} and \hat{O}' are bounded, then a detailed norm analysis similar to the case of the perturbation expansion of the wave function enables us to conclude the following inequality for the Lagrange multiplier function:

$$\|\lambda(t)\| \leq \left[\frac{|\eta| \|\hat{O}\| + \|\hat{O}'\|^2 \int_0^T d\tau W_p(\tau)}{\hbar} \right] \times \exp \left[\frac{4|\nu| \|\mu\|}{\hbar} \int_0^T d\tau |\mathcal{E}(\tau)| \right]. \quad (3.15)$$

This result means that the perturbation expansion of the Lagrange multiplier function converges for all finite values of ν as long as μ , \hat{O} , and \hat{O}' remain bounded.

If one of the operators \hat{O} and \hat{O}' is unbounded, then the convergence radius of the perturbation expansion for $\lambda(\nu, t)$ is reduced to a finite value and we can no longer guarantee that $\nu=1$ is inside the convergence domain even for the bounded dipole function case. To see this

point, it is sufficient to investigate the behavior of $\hat{O}\psi$ without getting into a detailed analysis, since the behavior of $\lambda(\nu, t)$ is strongly related to the latter quantity

$$\|\hat{O}\psi(\nu, t)\| < \sum_{j=0}^{\infty} \sigma_j(t) \|\psi_j(t)\| |\nu|^j, \quad (3.16)$$

where

$$\sigma_j(t) = \frac{\|\hat{O}\psi_j(t)\|}{\|\psi_j(t)\|}, \quad j \geq 0. \quad (3.17)$$

By using Eq. (3.7) one can replace Eq. (3.16) with the following:

$$\|\hat{O}\psi(\nu, t)\| < \sum_{j=0}^{\infty} \frac{\sigma_j(t)}{j!} \bar{\nu}^j, \quad (3.18)$$

where

$$\bar{\nu} = \frac{\|\mu\| |\nu| \int_0^T d\tau |\mathcal{E}(\tau)|}{\hbar}. \quad (3.19)$$

Since the sequence $\{\sigma_j\}_{j=0}^{\infty}$ is unbounded due to the unboundedness of \hat{O} , the asymptotic behavior of σ_j when j goes to infinity strongly affects the convergence nature of the expansion in Eq. (3.16). Depending on the asymptotic behavior of σ_j at large values of j , the convergence domain may shrink to being finite or even to the point $\nu=0$. This obviously is an undesired situation and it is necessary to eliminate these cases.

The removal of the unboundedness of the operators can be accomplished through the redefinition of the cost terms \mathcal{J}_0 and $\mathcal{J}_p^{(1)}$ as follows:

$$\mathcal{J}_0 = \frac{1}{2} [\langle \psi(T) | \varphi_1(\hat{O}) | \psi(T) \rangle - \varphi_1(\bar{O})]^2, \quad (3.20a)$$

$$\mathcal{J}_p^{(1)} = \frac{1}{2} \int_0^T dt W_p(t) \langle \psi(t) | \varphi_2(\hat{O}') | \psi(t) \rangle^2, \quad W_p(t) > 0 \quad (3.20b)$$

where φ_1 and φ_2 are appropriately chosen monotonic functions and $\varphi_1(x)$ and $\varphi_2(x)$ are bounded when x is real. Many of the comments below Eq. (3.8) about the perturbation series convergence also apply here. Henceforth we shall assume convergence of the expansion for $\lambda(t)$.

We now define the following temporal functions which, at the same time, depend on ν :

$$\Phi(\nu, t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}} \text{Re}[\langle \lambda(\nu, t) | \mu | \psi(\nu, t) \rangle], \quad (3.21)$$

$$\Omega(\nu, t) = \langle \psi(\nu, t) | \hat{O} | \psi(\nu, t) \rangle. \quad (3.22)$$

The function Φ is the sought-after field $\mathcal{E}(t)$ and $\Omega(\nu, t)$ is the desired observable. The series expansions of these functions in powers of ν are

$$\Phi(\nu, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \Phi_j(t) \nu^j, \quad (3.23)$$

$$\Omega(\nu, t) = \sum_{j=0}^{\infty} \Omega_j(t) \nu^j, \quad (3.24)$$

where

$$\Phi_j(t) = \frac{2}{W_\varepsilon(t)} \sum_{k=0}^j \text{Re}[\langle \lambda_k(t) | \mu | \psi_{j-k}(t) \rangle], \quad j \geq 0 \quad (3.25)$$

$$\Omega_j(t) = \sum_{k=0}^j \langle \psi_k(t) | \hat{O} | \psi_{j-k}(t) \rangle, \quad j \geq 0. \quad (3.26)$$

By using these equations we can rewrite Eqs. (2.10) and (2.13) as follows:

$$\mathcal{E}(t) = \sum_{j=0}^{\infty} \Phi_j(t), \quad (3.27)$$

$$\sum_{j=0}^{\infty} \Omega_j(T) = \tilde{O} + \alpha \eta. \quad (3.28)$$

これらをそれぞれ、場の方程式、スペクトルの方程式と呼ぶ。以下、公称系に対応する $v=1$ における関連式を評価する。

IV. LINEARIZED FIELD EQUATION

式(3.4)、(3.13)の $i/t(v, t)$, $A, (v, t)$ の摂動展開係数の構造を調べると、 $i/t(t)$, $A, (t)$ は場の振幅の観点から j 次の均質関数であることが直ちにわかる。この結果は、式(3.25)で与えられる関数 $\Omega_j(t)$ も $8(t)$ 上で j 次の同次関数であることを意味する。したがって、式(3.27)の右辺は、場の振幅に関して整数の展開となる。この式は、分子運動を最適に制御するために必要な磁場振幅を決定するものである。したがって、これは場の方程式と表記することができる。場の方程式の性質をよりよく理解するために、まず、その線形化された形を調べることが有用である。線形化された場の方程式の解を W_L とすると、式(3.25)から次の式が簡単に導き出せる:

$$\mathcal{E}_L(t) = \Phi_0(t) + \Phi_1^{(L)}(t), \quad (4.1)$$

ここで、唯一の場依存項は $W_L(t)$ で示される。上付き文字 (L) は、 $4, (t)$ の場の振幅を $L(t)$ に置き換えることを意味する。ここで、以下のように同定することができる。

$$\Phi_0(t) = \frac{2}{W_\varepsilon(t)} \text{Re}[\langle \lambda_0(t) | \mu | \psi_0(t) \rangle], \quad (4.2)$$

とし、 $t/t_0(t)$ の明示的な表現とSec. IIIを利 $\lambda_0(t)$ given in usingして、以下の式を推論する:

$$\Phi_0(t) = -\eta u_1(t), \quad (4.3)$$

where

$$u_1(t) = \frac{2}{W_\varepsilon(t)} \text{Im}\{\langle \tilde{\psi} | Q(T) Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle\}, \quad (4.4)$$

with Im denoting the imaginary part and

$$Q(t) = e^{(i/\hbar)tH_0} \hat{O} e^{-(i/\hbar)tH_0}. \quad (4.5)$$

The derivation of the explicit expression for $\Phi_1^{(L)}(t)$

necessitates long and tedious manipulations with the final result as follows:

$$\begin{aligned} \Phi_1^{(L)}(t) = & \int_0^t d\tau u_2(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau) + \int_t^T d\tau u_3(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau) \\ & - \eta \int_0^t d\tau u_4(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau) \\ & - \eta \int_t^T d\tau u_5(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau), \end{aligned} \quad (4.6)$$

where

$$u_j(\tau, t) = \frac{2}{W_\varepsilon(t)} \text{Re}[\bar{u}_j(\tau, t)], \quad j=2, 3, 4, 5 \quad (4.7)$$

and

$$\bar{u}_2(\tau, t) = v_1(\tau, t) + v_3(\tau, t) + v_5(\tau, t) + v_7(\tau, t), \quad (4.8a)$$

$$\bar{u}_3(\tau, t) = v_2(\tau, t) + v_4(\tau, t) + v_6(\tau, t) + v_8(\tau, t), \quad (4.8b)$$

$$\bar{u}_4(\tau, t) = v_9(\tau, t) + v_{11}(\tau, t), \quad (4.8c)$$

$$\bar{u}_5(\tau, t) = v_{10}(\tau, t) + v_{11}(\tau, t), \quad (4.8d)$$

and

$$\begin{aligned} v_1(\tau, t) = & -\frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q_\mu(\tau) Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9a)$$

$$\begin{aligned} v_2(\tau, t) = & -\frac{1}{\hbar^2} \int_\tau^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q_\mu(\tau) Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9b)$$

$$\begin{aligned} v_3(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) Q_\mu(\tau) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9c)$$

$$\begin{aligned} v_4(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_\tau^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) Q_\mu(\tau) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_\mu(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9d)$$

$$\begin{aligned} v_5(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q_\mu(\tau) Q'(\tau_1) \\ & \times Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9e)$$

$$\begin{aligned} v_6(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_\tau^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q_\mu(\tau) Q'(\tau_1) \\ & \times Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9f)$$

$$\begin{aligned} v_7(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) Q_\mu(t) \\ & \times Q_\mu(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9g)$$

$$\begin{aligned} v_8(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_\tau^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) Q_\mu(t) \\ & \times Q_\mu(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9h)$$

$$v_9(\tau, t) = \frac{1}{\hbar^2} \langle \tilde{\psi} | Q(T) Q_\mu(t) Q_\mu(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (4.9i)$$

$$v_{10}(\tau, t) = \frac{1}{\hbar^2} \langle \tilde{\psi} | Q(T) Q_\mu(\tau) Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (4.9j)$$

$$v_{11}(\tau, t) = \frac{1}{\hbar^2} \langle \tilde{\psi} | Q_\mu(\tau) Q(T) Q_\mu(t) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (4.9k)$$

$$\Phi_j(t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}(t)} \sum_{k=0}^j \text{Re}[\langle \lambda_k(t) | \mu | \psi_{j-k}(t) \rangle], \quad j \geq 0 \quad (3.25)$$

$$\Omega_j(t) = \sum_{k=0}^j \langle \psi_k(t) | \hat{O} | \psi_{j-k}(t) \rangle, \quad j \geq 0. \quad (3.26)$$

By using these equations we can rewrite Eqs. (2.10) and (2.13) as follows:

$$\mathcal{E}(t) = \sum_{j=0}^{\infty} \Phi_j(t), \quad (3.27)$$

$$\sum_{j=0}^{\infty} \Omega_j(T) = \bar{O} + \alpha \eta. \quad (3.28)$$

We call these the field equation and spectral equation, respectively, due to reasons that will be made clear in the following sections. Hereafter we evaluate the relevant expressions at $\nu=1$ corresponding to the nominal system.

IV. LINEARIZED FIELD EQUATION

An examination of the structure of the perturbation expansion coefficients of $\psi(\nu, t)$ and $\lambda(\nu, t)$ in Eqs. (3.4) and (3.13), respectively, immediately reveals that $\psi_j(t)$ and $\lambda_j(t)$ are j th-order homogeneous functionals in terms of the field amplitude. This result implies that the function $\Phi_j(t)$ given by Eq. (3.25) is also a j th-order homogeneous functional on $\mathcal{E}(t)$. Hence the right-hand side of Eq. (3.27) is a well-ordered expansion with respect to the field amplitude. This equation determines the necessary field amplitude for optimal control of molecular motion. Therefore it can be denoted as the field equation.

To get a better understanding of the nature of the field equation, it is useful to investigate, at first, its linearized form. If we denote the solution of the linearized field equation by \mathcal{E}_L , we can simply derive the following equation from Eq. (3.25):

$$\mathcal{E}_L(t) = \Phi_0(t) + \Phi_1^{(L)}(t), \quad (4.1)$$

where the only field-dependent term is denoted by $\Phi_1^{(L)}(t)$. The superscript (L) implies the substitution $\mathcal{E}_L(t)$ for the field amplitude in $\Phi_1(t)$. We may now identify

$$\Phi_0(t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}(t)} \text{Re}[\langle \lambda_0(t) | \mu | \psi_0(t) \rangle], \quad (4.2)$$

and use the explicit expressions of $\psi_0(t)$ and $\lambda_0(t)$ given in Sec. III to deduce the following equation:

$$\Phi_0(t) = -\eta u_1(t), \quad (4.3)$$

where

$$u_1(t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}(t)} \text{Im}\{\langle \tilde{\psi} | Q(T) Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle\}, \quad (4.4)$$

with Im denoting the imaginary part and

$$Q(t) = e^{(i/\hbar)tH_0} \hat{O} e^{-(i/\hbar)tH_0}. \quad (4.5)$$

The derivation of the explicit expression for $\Phi_1^{(L)}(t)$

necessitates long and tedious manipulations with the final result as follows:

$$\begin{aligned} \Phi_1^{(L)}(t) = & \int_0^t d\tau u_2(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau) + \int_t^T d\tau u_3(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau) \\ & - \eta \int_0^t d\tau u_4(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau) \\ & - \eta \int_t^T d\tau u_5(\tau, t) \mathcal{E}_L(\tau), \end{aligned} \quad (4.6)$$

where

$$u_j(\tau, t) = \frac{2}{W_{\mathcal{E}}(t)} \text{Re}[\bar{u}_j(\tau, t)], \quad j=2,3,4,5 \quad (4.7)$$

and

$$\bar{u}_2(\tau, t) = v_1(\tau, t) + v_3(\tau, t) + v_5(\tau, t) + v_7(\tau, t), \quad (4.8a)$$

$$\bar{u}_3(\tau, t) = v_2(\tau, t) + v_4(\tau, t) + v_6(\tau, t) + v_8(\tau, t), \quad (4.8b)$$

$$\bar{u}_4(\tau, t) = v_9(\tau, t) + v_{11}(\tau, t), \quad (4.8c)$$

$$\bar{u}_5(\tau, t) = v_{10}(\tau, t) + v_{11}(\tau, t), \quad (4.8d)$$

and

$$\begin{aligned} v_1(\tau, t) = & -\frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q_{\mu}(\tau) Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9a)$$

$$\begin{aligned} v_2(\tau, t) = & -\frac{1}{\hbar^2} \int_{\tau}^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q_{\mu}(\tau) Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9b)$$

$$\begin{aligned} v_3(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) Q_{\mu}(\tau) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9c)$$

$$\begin{aligned} v_4(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_{\tau}^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) Q_{\mu}(\tau) \tilde{P} Q'(\tau_1) \\ & \times Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9d)$$

$$\begin{aligned} v_5(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q_{\mu}(\tau) Q'(\tau_1) \\ & \times Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9e)$$

$$\begin{aligned} v_6(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_{\tau}^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q_{\mu}(\tau) Q'(\tau_1) \\ & \times Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9f)$$

$$\begin{aligned} v_7(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_t^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) Q_{\mu}(t) \\ & \times Q_{\mu}(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9g)$$

$$\begin{aligned} v_8(\tau, t) = & \frac{1}{\hbar^2} \int_{\tau}^T d\tau_1 W_p(\tau_1) \langle \tilde{\psi} | Q'(\tau_1) \tilde{P} Q'(\tau_1) Q_{\mu}(t) \\ & \times Q_{\mu}(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \end{aligned} \quad (4.9h)$$

$$v_9(\tau, t) = \frac{1}{\hbar^2} \langle \tilde{\psi} | Q(T) Q_{\mu}(t) Q_{\mu}(\tau) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (4.9i)$$

$$v_{10}(\tau, t) = \frac{1}{\hbar^2} \langle \tilde{\psi} | Q(T) Q_{\mu}(\tau) Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (4.9j)$$

$$v_{11}(\tau, t) = \frac{1}{\hbar^2} \langle \tilde{\psi} | Q_{\mu}(\tau) Q(T) Q_{\mu}(t) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (4.9k)$$

and

$$Q(t)' = e^{(i/\hbar)tH_0} \hat{O}' e^{-(i/\hbar)tH_0}, \quad (4.10)$$

$$\bar{P} = |\bar{\psi}\rangle\langle\bar{\psi}|. \quad (4.11)$$

DLの線形化された場の方程式が線形積分方程式であることは明らかである。この方程式をより具体的に、として定義される積分演算子を使用することができます。

$$\mathcal{M}f(t) \equiv \int_0^t d\tau u_2(\tau, t) f(\tau) + \int_t^T d\tau u_3(\tau, t) f(\tau) - f(t), \quad (4.12)$$

$$\mathcal{N}f(t) = \int_0^t d\tau u_4(\tau, t) f(\tau) + \int_t^T d\tau u_5(\tau, t) f(\tau), \quad (4.13)$$

ここで、 $f(t)$ は区間 $[0, T]$ 上の平方可積分関数である。二次元積分と部分積分の三角恒等式を用い、いくつかの中間操作を行った後、これらの積分演算子のカーネルが対称であることを示すことができる。言い換えれば

$$(f(t), \mathcal{M}g(t)) = (\mathcal{M}f(t), g(t)), \quad (4.14)$$

$$(f(t), \mathcal{N}g(t)) = (\mathcal{N}f(t), g(t)), \quad (4.15)$$

ここで、 $f(t)$ と $g(t)$ は時間区間において正方可積分 under the な重み関数 $W(t)$ であり、新しいスカラー積は次のよ $[0, T]$ and うに定義される。

$$(f(t), g(t)) \equiv \int_0^T dt W(t) f(t) g(t). \quad (4.16)$$

したがって、線形化された場の方程式をこれらのエルミート演算子で書き直すと、次のようになります：

$$\mathcal{M}\mathcal{E}_L(t) - \eta\mathcal{N}\mathcal{E}_L(t) = \eta u_1(t). \quad (4.17)$$

ここで、 \mathcal{A}' の定値性を調べます。この目的のために、対角行列を評価することで進めます。

elements

$$\begin{aligned} (f(t), \mathcal{N}f(t)) &= \frac{2}{\hbar^2} \{ f(t) \bar{\psi}, Q(T) Q_1(t) f(t) \bar{\psi} \} \\ &+ \frac{2}{\hbar^2} \{ f(t) \bar{\psi}, Q(T) Q_2(t) f(t) \bar{\psi} \} \\ &+ \frac{2}{\hbar^2} \text{Re} [\langle Q_3(T) \bar{\psi} | Q(T) | Q_3(T) \bar{\psi} \rangle], \end{aligned} \quad (4.18)$$

where

$$Q_1(t) f(t) \bar{\psi} \equiv Q_\mu(t) \int_0^t d\tau Q_\mu(\tau) f(\tau) \bar{\psi}, \quad (4.19)$$

$$Q_2(t) f(t) \bar{\psi} \equiv \int_0^t d\tau Q_\mu(\tau) Q_\mu(\tau) f(\tau) \bar{\psi}, \quad (4.20)$$

$$Q_3(T) \equiv \int_0^T dt Q_\mu(t). \quad (4.21)$$

ここで、新しいスカラー積 $[\cdot, \cdot]$ は、波動関数のヒルベルト空間と、相互作用期間にわたる時間の重み付け ($W(t)$ のもと) 正積分関数のカルテシアン積上で定義される。

$$\{f(t)\bar{\psi}_1, g(t)\bar{\psi}_2\} \equiv \text{Re} \left[\int_0^T dt W(t) f(t) g(t) \langle \bar{\psi}_1 | \bar{\psi}_2 \rangle \right], \quad (4.22)$$

その明示的な定義は、 $f(t)$, $g(t)$, P_i , and $i\hbar \partial_t$ が対応する Hilbert 空間における任意の関数であることを示す。ここで、 0 が (正または負) の定積分演算子であるとき、 N は (正または負) の定積分演算子であることは極めて容易に理解される。目的コスト項の定義に柔軟性があるので、最適制御問題の設計者は、一般性や不都合をあまり損なわずに、常に正定値 0 演算子を選択することができる。しかし、これによって、線形化された場の方程式に現れる重み付き固有値問題の実数値スペクトルを扱うことができる。以後、 0 (したがって N) は正定値であると仮定する。式 (4.17) の解を探るために、次の一般化固有値問題を考える：

$$\mathcal{M}e_k = \eta_k \mathcal{N}e_k, \quad k \geq 1 \quad (4.23)$$

$$(e_j, \mathcal{N}e_k) = \delta_{j,k}, \quad j, k \geq 1 \quad (4.24)$$

であり、固有関数 e_k と固有値 η_k を持つ。上記の固有関数は、区間 $[0, T]$ 上の $W(t)$ に関して平方可積分である関数の完全な基底セットを形成しています。[このスペクトルの存在と離散性は、線形積分演算子の理論によって示される [30]。通常、単位作用素の重み付き固有値問題を考えるが、 JV は正定値なので JV' との変換により式 (4.23) の固有値問題をこのタイプに変換することができる。 JR に対称で非特異なカーネル (Hilbert-Schmidt kernel) が存在することにより、式 (4.23) で与えられたスペクトルの離散性を証明することができる。] したがって、このヒルベルト空間内の任意の関数は、これらの関数の線形結合で一意に展開することができる。この結果を利用して、 q_L が上記のスペクトルの外にある場合の線形化された場の方程式の解を書くことができる。

$$\mathcal{E}_L(t) = \eta_L \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(e_k, u_1)}{\eta_k - \eta_L} e_k(t). \quad (4.25)$$

$u_i(t)$ が任意の $e_i(t)$ に直交せず、 i_L が上記スペクトルから外れる限り、 $\delta t(t)$ はまだ決定されていない単一のパラメータ g_L のみに依存します。ただし、次の式が成立する場合、

$$(e_K, u_1) = 0, \quad K = k_1, k_2, \dots \geq 1, \quad (4.26)$$

の場合、式 (4.25) の係数は k が k_1, k_2, \dots に等しいときに任意となり、 g_L は対応する固有値に等しくなる。となり、 g_L は対応する固有値と等しくなることがある。したがって、この場合、線形化された場の方程式の解は、さらに未決定の任意パラメータを含む。この特殊なケースと g_L の決定については、次の章で扱う。

section.

V. LINEARIZED SPECTRAL EQUATION

前節で見たように、線形化された場の方程式の解は、1つの任意のパラメータを含む。

and

$$Q(t)' = e^{(i/\hbar)tH_0} \hat{O}' e^{-(i/\hbar)tH_0}, \quad (4.10)$$

$$\tilde{P} = |\tilde{\psi}\rangle\langle\tilde{\psi}|. \quad (4.11)$$

It is clear that the linearized field equation for \mathcal{E}_L is a linear integral equation. To put this equation into a more amenable form, we can use the integral operators defined as

$$\mathcal{M}f(t) \equiv \int_0^t d\tau u_2(\tau, t) f(\tau) + \int_t^T d\tau u_3(\tau, t) f(\tau) - f(t), \quad (4.12)$$

$$\mathcal{N}f(t) = \int_0^t d\tau u_4(\tau, t) f(\tau) + \int_t^T d\tau u_5(\tau, t) f(\tau), \quad (4.13)$$

where $f(t)$ is a square integrable function over the interval $[0, T]$. By using the triangular identity for two-dimensional integration and integration by parts, and after some intermediate manipulations, one can show that the kernels of these integral operators are symmetric. In other words,

$$(f(t), \mathcal{M}g(t)) = (\mathcal{M}f(t), g(t)), \quad (4.14)$$

$$(f(t), \mathcal{N}g(t)) = (\mathcal{N}f(t), g(t)), \quad (4.15)$$

where $f(t)$ and $g(t)$ are square integrable under the weight function $W_{\mathcal{E}}(t)$ over the time interval $[0, T]$ and the new scalar product is defined as

$$(f(t), g(t)) \equiv \int_0^T dt W_{\mathcal{E}}(t) f(t) g(t). \quad (4.16)$$

Therefore, we can rewrite the linearized field equation in terms of these Hermitian operators as follows:

$$\mathcal{M}\mathcal{E}_L(t) - \eta\mathcal{N}\mathcal{E}_L(t) = \eta u_1(t). \quad (4.17)$$

We now investigate the definiteness of \mathcal{N} . We can proceed for this purpose by evaluating its diagonal matrix elements

$$\begin{aligned} (f(t), \mathcal{N}f(t)) &= \frac{2}{\hbar^2} \{f(t)\tilde{\psi}, Q(T)Q_1(t)f(t)\tilde{\psi}\} \\ &+ \frac{2}{\hbar^2} \{f(t)\tilde{\psi}, Q(T)Q_2(t)f(t)\tilde{\psi}\} \\ &+ \frac{2}{\hbar^2} \text{Re}[\langle Q_3(T)\tilde{\psi} | Q(T) | Q_3(T)\tilde{\psi} \rangle], \end{aligned} \quad (4.18)$$

where

$$Q_1(t)f(t)\tilde{\psi} \equiv Q_{\mu}(t) \int_0^t d\tau Q_{\mu}(\tau) f(\tau)\tilde{\psi}, \quad (4.19)$$

$$Q_2(t)f(t)\tilde{\psi} \equiv \int_0^t d\tau Q_{\mu}(\tau) Q_{\mu}(\tau) f(\tau)\tilde{\psi}, \quad (4.20)$$

$$Q_3(T) \equiv \int_0^T dt Q_{\mu}(t). \quad (4.21)$$

Here the new scalar product $\{\cdot, \cdot\}$ is defined on the Cartesian product of the Hilbert spaces for wave functions and for the weighted [under $W_{\mathcal{E}}(t)$] square-integrable functions of time over the interaction period. Its explicit definition is written

$$\{f(t)\tilde{\psi}_1, g(t)\tilde{\psi}_2\} \equiv \text{Re} \left[\int_0^T dt W_{\mathcal{E}}(t) f(t) g(t) \langle \tilde{\psi}_1 | \tilde{\psi}_2 \rangle \right], \quad (4.22)$$

where $f(t)$, $g(t)$, $\tilde{\psi}_1$, and $\tilde{\psi}_2$ are arbitrary functions in their corresponding Hilbert spaces. Now, it is quite easily seen that \mathcal{N} is a (positive or negative) definite integral operator when \hat{O} is (positive or negative) definite. Since there is a flexibility in the definition of the objective cost term, the designer of the optimal control problem can always choose a positive-definite \hat{O} operator without much loss of generality or inconvenience. This, however, enables us to deal with a real-valued spectrum for the weighted eigenvalue problem appearing in the linearized field equation. Henceforth, we assume that \hat{O} (therefore \mathcal{N}) is positive definite.

To explore the solution to Eq. (4.17), consider the following generalized eigenvalue problem:

$$\mathcal{M}e_k = \eta_k \mathcal{N}e_k, \quad k \geq 1 \quad (4.23)$$

$$(e_j, \mathcal{N}e_k) = \delta_{j,k}, \quad j, k \geq 1 \quad (4.24)$$

with eigenfunctions e_k and eigenvalues η_k . The above eigenfunctions form a complete basis set for functions that are square integrable with respect to $W_{\mathcal{E}}(t)$ over the interval $[0, T]$. [The existence and the discreteness of the relevant spectrum can be shown via the theory of linear integral operators [30]. Usually one considers unit operator weighted eigenvalue problems, and we can transform the eigenvalue problem in Eq. (4.23) to this type through a transformation with $\mathcal{N}^{1/2}$ since \mathcal{N} is positive definite. The existence of a symmetric and nonsingular kernel (i.e., Hilbert-Schmidt kernel) in \mathcal{M} enables us to prove the discreteness of the spectrum given in Eq. (4.23).] Hence any function in this Hilbert space can be uniquely expanded in a linear combination of these functions. This result can be employed to write the solution of the linearized field equation for the case where η_L is outside the above spectrum

$$\mathcal{E}_L(t) = \eta_L \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(e_k, u_1)}{\eta_k - \eta_L} e_k(t). \quad (4.25)$$

As long as $u_1(t)$ does not become orthogonal to any $e_k(t)$ and η_L is outside the above spectrum, $\mathcal{E}_L(t)$ depends on only a single as yet undetermined parameter η_L . However, if the following equation holds,

$$(e_K, u_1) = 0, \quad K = k_1, k_2, \dots \geq 1, \quad (4.26)$$

then the associated coefficients of Eq. (4.25) become arbitrary when k is equal to k_1, k_2, \dots , and η_L can be equal to the corresponding eigenvalues. Hence, the solution of the linearized field equation contains additional undetermined arbitrary parameters in this case. This special case and the determination of η_L will be treated in the next section.

V. LINEARIZED SPECTRAL EQUATION

As we have seen in the last section, the solution of the linearized field equation includes one arbitrary parameter

この任意性を取り除くために、線形化後に先に定義したスペクトル方程式を使うことができる。 $0(v, t)$ の振動展開係数は場の振幅の同次関数であることが簡単に証明できるので、式(3.28)の左辺は D の冪に関してよく整理している。したがって、線形化したスペクトル方程式を簡単に次のように書くことができる：

$$\Omega_0(T) + \Omega_1^{(L)}(T) = \tilde{O} + \alpha \eta_L, \quad (5.1)$$

ここで、上付き文字または下付き文字は、未知数が線形化された方程式の解として決定されることを意味し、 $f_0(T)$ は場の振幅に依存しない。さて、 $0_0(T)$ と $1_1(T)$ については、丁寧な解析の結果、次のような明示的な式を書くことができる、

$$\Omega_0(T) = \langle \tilde{\psi} | Q(T) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (5.2a)$$

$$\Omega_1^{(L)}(T) = (u_1(t), \mathcal{E}_L(t)), \quad (5.2b)$$

と式(4.25)から、線形化されたスペクトル方程式を次のような形で確定することが可能である：

$$\rho(\eta_L) = \alpha + \{ \tilde{O} - \langle \tilde{\psi} | Q(T) | \tilde{\psi} \rangle \} \frac{1}{\eta_L}, \quad (5.3)$$

where

$$\rho(\eta_L) \equiv \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(e_k, u_1)^2}{\eta_k - \eta_L}, \quad (5.4)$$

とし、 $u_1(t)$ の集合 $\{e_{k|k}\}$ に関する固有関数展開に現れる係数はいずれも消失しないと仮定した。 $p(i|L)$ は、極が単純で、重み演算子 JV のもとでの積分演算子 JM の固有値に位置する多相関であることがわかる。関数 $p(i|L)$ は、 g_L が単調に増加するにつれて、任意の2つの連続する極の間で、から単調に増加する。線形化されたスペクトル方程式の右辺は、 0_{g_L} に位置する垂直漸近線と a を縦軸とする水平漸近線を持つ双曲線なので、 g_L に対して無限の解を生成する。これらの値を g_L^k 、 $k=1$ とすると、式(4.23)で定義される $i|L^k$ と $i|L$ の間に1対1の対応が成立することができる。スペクトル g_L^k の異なる点はすべて異なる場の振幅を定義するので、場として使用する最適な関数は無限に存在することになる。これらの可能性は、次の式で与えられる：

$$\mathcal{E}_L^{(k)}(t) = \eta_L^{(k)} \sum_{j=1}^{\infty} \frac{(e_j, u_1)}{\eta_j - \eta_L^{(k)}} e_j(t). \quad (5.5)$$

ここで、 $(e^*, u_1) = 0$ だが、他の係数はすべて存続する場合を考えてみよう (u_1 に直交する付加ベクトル e の場合も同様である)。この場合、 $p(i|L)$ は g_L と g_L^k の間に位置する極が欠落している。

しかし、それ以外は以前と同じ性質を持っています。 $p(i|L)$ の構造に垂直漸近線がないため、解の数が減るのは明らかですがはまだ無限大である。この場合、場の振幅の解を次のように書くことができる：

$$\mathcal{E}_L^{(j)}(t) = A e_n(t) + \eta_L^{(j)} \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq n}}^{\infty} \frac{(e_k, u_1)}{\eta_k - \eta_L^{(j)}} e_k(t), \quad (5.6)$$

ここで、 3 はこの時点での任意の定数である。式(5.6)を式(5.2b)に代入すると、再び同じ線形化スペクトル式(5.3)と(5.4)になり、 $j \neq n$ では問題が発生しない。 $j = n$ の場合、2つの可能性がある。まず、 A^0 の場合、式(5.6)は、 $i|L^k$ が式(5.3)と(5.4)の欠根となり、フィールド式(4.17)を満たすことが分かる。 $A \neq 0$ の場合、式(5.6)を(4.17)に代入すると、 $g_L^k = g^*$ が要求されます。しかし、この要求により、式(5.3)と(5.4)は、制御問題で既に初期に規定されていた 0 を $adjustment$ することによってのみ満たされることになる。このように、一般に $(e^*, u_1) = 0$ ならば、 $A = 0$ と結論づけられる。欠根の処理は、 H_0 を再定義して e_k を変更するか、あるいは高次摂動論に移行することで影響を受ける可能性もある。

VI. CONCLUSION

本論文の第一の目的は、量子力学的最適制御問題における多重解の存在を確立することである。この目的の解析は、かなり一般的なコスト関数から出発し、結果のオイラー方程式の振動展開で進められた。波動関数とそれに対応するラグランジュ乗数関数の振動展開により、場の方程式とスペクトルの方程式が導かれる。これらの方程式は、場に関して線形化される。かなり穏やかな条件と仮定の下で、量子力学的最適制御問題の解は一般に無限に存在すると結論づけられた。実際、これらの解はそれぞれ、コスト関数の対応する値に関して、あるレベルのメリットを持つことになる。コスト関数の真の最小値に対応しない解でも、物理的には十分満足できる場合がある。別の見方をすれば、複数の解が存在するということは、コスト関数に追加のコストや制約を導入して、最終的に複数の解をさらに識別できるようになるという見通しを立てたに過ぎない。また、コスト関数の一般的でない選択肢にも複数の解が存在するかどうか興味深い問題である。本論文では、最適制御問題の多重解の同定を主目的としているが、摂動論は、量子制御問題に計算的にアプローチするための実用的な手段を提供する可能性がある。もちろん、解は摂動論の仮定に反してはならないし、関係する様々な演算子のために導入された有界性基準を満たすように注意する必要がある。

η_L . To remove this arbitrariness we can use the previously defined spectral equation after its linearization.

Let us consider Eq. (3.24) with $\nu=1$. Since one can easily prove that the perturbation expansion coefficients of $\Omega(\nu, t)$ are homogeneous functionals in the field amplitude, the left side of Eq. (3.28) is well ordered with respect to the powers of \mathcal{E} . Hence we can easily write the linearized spectral equation as follows:

$$\Omega_0(T) + \Omega_1^{(L)}(T) = \tilde{O} + \alpha \eta_L, \quad (5.1)$$

where the superscripts or subscripts imply that the unknowns are to be determined as the solutions of the linearized equations and $\Omega_0(T)$ does not depend on the field amplitude. Now, we can write the following explicit expressions for $\Omega_0(T)$ and $\Omega_1^{(L)}(T)$ after a careful analysis,

$$\Omega_0(T) = \langle \tilde{\psi} | Q(T) | \tilde{\psi} \rangle, \quad (5.2a)$$

$$\Omega_1^{(L)}(T) = (u_1(t), \mathcal{E}_L(t)), \quad (5.2b)$$

and Eq. (4.25) makes it possible to finalize the following form for the linearized spectral equation:

$$\rho(\eta_L) = \alpha + \{ \tilde{O} - \langle \tilde{\psi} | Q(T) | \tilde{\psi} \rangle \} \frac{1}{\eta_L}, \quad (5.3)$$

where

$$\rho(\eta_L) \equiv \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(e_k, u_1)^2}{\eta_k - \eta_L}, \quad (5.4)$$

and we assumed that none of the coefficients appearing in the eigenfunction expansion of $u_1(t)$ with respect to the set $\{e_k\}_{k=1}^{\infty}$ vanish. We see that $\rho(\eta_L)$ is a meromorphic function whose poles are simple and located at the eigenvalues of the integral operator \mathcal{M} under the weight operator \mathcal{N} . The function $\rho(\eta_L)$ increases monotonically from $-\infty$ to ∞ between any two consecutive poles as η_L monotonically increases. Since the right side of the linearized spectral equation is a hyperbola with a vertical asymptote located at $\eta_L=0$ and a horizontal one whose ordinate is α , it produces an infinite number of solutions for η_L . Let us denote these values by $\eta_L^{(k)}$, $k \geq 1$. Then one can establish a one-to-one correspondence between $\eta_L^{(k)}$ and η_k defined in Eq. (4.23). Since every different point in the spectrum $\eta_L^{(k)}$ defines a different field amplitude, there will be an infinite number of optimal functions to be used as the field. These possibilities are given through the following equation:

$$\mathcal{E}_L^{(k)}(t) = \eta_L^{(k)} \sum_{j=1}^{\infty} \frac{(e_j, u_1)}{\eta_j - \eta_L^{(k)}} e_j(t). \quad (5.5)$$

Let us now consider the case where $(e_n, u_1)=0$ but all other coefficients survive (the case of additional vectors e_j orthogonal to u_1 is similar). In this case, $\rho(\eta_L)$ has a missing pole located between η_{n-1} and η_{n+1} . However, otherwise it has the same properties as before. The lack

of a vertical asymptote in the structure of $\rho(\eta_L)$ obviously causes a decrease in the number of solutions although they are still infinite. In this case, we can write the solution for the field amplitude as follows:

$$\mathcal{E}_L^{(j)}(t) = A e_n(t) + \eta_L^{(j)} \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq n}}^{\infty} \frac{(e_k, u_1)}{\eta_k - \eta_L^{(j)}} e_k(t), \quad (5.6)$$

where A is an arbitrary constant at this point. Substitution of Eq. (5.6) into Eq. (5.2b) again leads to the same linearized spectral Eqs. (5.3) and (5.4) and no problem arises for $j \neq n$. In the case $j=n$ there are two possibilities. First, if $A=0$ then we see that Eq. (5.6) will satisfy the field Eq. (4.17) with $\eta_L^{(n)}$ simply being the missing root of Eqs. (5.3) and (5.4). If $A \neq 0$, then substitution of Eq. (5.6) into (4.17) demands that $\eta_L^{(n)} = \eta_n$. However, this requirement in turn leaves Eqs. (5.3) and (5.4) as being only satisfied by the adjustment of \tilde{O} , which was already prescribed initially in the control problem. Thus in general we conclude that if $(e_n, u_1)=0$, then $A=0$. Treatment of the missing root could also be affected by redefining H_0 to alter $\{e_k\}$, or possibly going to higher-order perturbation theory.

VI. CONCLUSION

The primary goal of this paper is to establish the existence of multiple solutions to quantum-mechanical optimal-control problems. The analysis of this objective was carried out starting with a rather general optimizing cost functional and proceeding with a perturbation expansion of the resultant Euler equations. The perturbation expansion for the wave function and the corresponding Lagrange multiplier function lead to the field and spectral equations. These equations were then linearized with respect to the field. Under rather mild conditions and assumptions, it was concluded that an infinite number of solutions to the quantum-mechanical optimal-control problem will generally exist. In practice, each of these solutions will have certain levels of merit with regard to the corresponding value of the cost functional. Solutions that do not correspond to the true minimum of the cost functional may nonetheless be quite satisfactory physically. From another perspective, the existence of multiple solutions merely opens up the prospect of introducing additional costs and constraints into the cost functional to ultimately further discriminate among the multiple solutions. Another interesting issue to explore is whether multiple solutions will exist for other less general choices for the cost functional.

Although the identification of multiple solutions to the optimal-control problem is the primary purpose of the present paper, perturbation theory may nonetheless provide a practical means for computationally approaching quantum-control problems. Naturally, the solutions must not violate the perturbation-theory assumptions, and care is needed to satisfy the boundedness criteria introduced for the various operators involved. One attraction of this approach is that the solution for the field in

このアプローチの魅力の一つは、式(5.5)の場の解が反復を必要としないことである(standard method)であり、摂動アプローチの計算上の実行可能性を確立することは今後の課題である。高次の摂動補正をさらに分析するために、付随する論文が計画されている。

ACKNOWLEDGMENTS

陸軍研究局、空軍科学研究所、海軍研究局からの支援に感謝する。

-
- *Permanent address: Faculty of Sciences and Letters, Engineering Sciences Department, İstanbul Technical University, Ayazağa Campus, Maslak, 80626 İstanbul, Turkey.
- [1] A. H. Zewail and N. Bloembergen, *J. Phys. Chem.* **88**, 5459 (1984).
 - [2] Aa. S. Sudbø, P. A. Schulz, E. R. Grant, Y. R. Shen, and Y. T. Lee, *J. Chem. Phys.* **70**, 912 (1979).
 - [3] J. M. Jasinski, J. K. Frisoli, and C. B. Moore, *Faraday Discuss. Chem. Soc.* **75**, 289 (1983).
 - [4] C. Chen and D. S. Elliot, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1737 (1990).
 - [5] D. J. Tannor and S. A. Rice, *J. Chem. Phys.* **83**, 5013 (1985); *Adv. Chem. Phys.* **70**, (1987); S. A. Rice and D. J. Tannor, *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2* **82**, 2423 (1986).
 - [6] M. Shapiro and P. Brumer, *J. Chem. Phys.* **84**, 4103 (1986); P. Brumer and M. Shapiro, *Chem. Phys. Lett.* **126**, 54 (1986).
 - [7] T. A. Holme and J. S. Hutchinson, *Chem. Phys. Lett.* **124**, 181 (1986); *J. Chem. Phys.* **86**, 42 (1987).
 - [8] S. Shi, A. Woody, and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **88**, 6870 (1988).
 - [9] J. G. B. Beumee and H. Rabitz, *J. Math. Phys.* **31**, 1253 (1990).
 - [10] S. Shi and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **92**, 364 (1990).
 - [11] S. Shi and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **92**, 2927 (1990).
 - [12] M. Dahleh, A. P. Peirce, and H. Rabitz, *Phys. Rev. A* **42**, 1065 (1990).
 - [13] C. D. Schwieters, J. G. B. Beumee, and H. Rabitz, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 1736 (1990).
 - [14] S. Shi and H. Rabitz, *Comput. Phys. Commun.* **63**, 71 (1991).
 - [15] H. Rabitz and S. Shi, *Adv. Mol. Vibr. Coll. Dyn.* (to be published).
 - [16] L. Shen and H. Rabitz, *J. Phys. Chem.* **95**, 1047 (1991).
 - [17] P. Gross, D. Neuhauser, and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **94**, 1158 (1991).
 - [18] K. Yao, S. Shi, and H. Rabitz, *Chem. Phys.* **150**, 373 (1990).
 - [19] C. D. Schwieters and H. Rabitz (unpublished).
 - [20] Y. S. Kim, H. Rabitz, A. Aşkar, and J. B. McManus, *Phys. Rev. B* **44**, 4892 (1991).
 - [21] P. Gross, D. Neuhauser, and H. Rabitz (unpublished).
 - [22] R. Kosloff, S. Rice, P. Gaspard, S. Tersigni, and D. Tannor, *Chem. Phys.* **139**, 201 (1989).
 - [23] G. Huang, T. Tarn, and J. Clark, *J. Math. Phys.* **24**, 2608 (1983).
 - [24] J. Manz, *J. Chem. Phys.* **91**, 2190 (1989).
 - [25] D. G. Luenberger, *Introduction to Dynamic System, Theory, Models, and Applications* (Wiley, New York, 1979).
 - [26] A. E. Bryson and Y. C. Ho, *Applied Optimal Control* (Hemisphere, New York, 1975).
 - [27] T. Kailath, *Linear Systems* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, 1980).
 - [28] H. Kwakernaak and R. Sivan, *線形最適制御* (Wiley, New York, 1972).
 - [29] P. G. Drazin and R. S. Johnson, *Solitons: an Introduction*. (Cambridge University Press, New York, 1989).
 - [30] F. G. Tricomi, *Integral Equations* (Dover, New York, 1985).
 - [31] M. Demiralp and H. Rabitz (unpublished).

Eq. (5.5) does not require iteration (except for the constant $\eta_L^{(k)}$), and it remains for further work to establish the computational viability of the perturbation approach. A companion paper is planned to analyze the higher-order perturbation corrections further.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors acknowledge support from the Army Research Office, the Air Force Office of Scientific Research, and the Office of Naval Research.

*Permanent address: Faculty of Sciences and Letters, Engineering Sciences Department, İstanbul Technical University, Ayazağa Campus, Maslak, 80626 İstanbul, Turkey.

- [1] A. H. Zewail and N. Bloembergen, *J. Phys. Chem.* **88**, 5459 (1984).
- [2] Aa. S. Sudbø, P. A. Schulz, E. R. Grant, Y. R. Shen, and Y. T. Lee, *J. Chem. Phys.* **70**, 912 (1979).
- [3] J. M. Jasinski, J. K. Frisoli, and C. B. Moore, *Faraday Discuss. Chem. Soc.* **75**, 289 (1983).
- [4] C. Chen and D. S. Elliot, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 1737 (1990).
- [5] D. J. Tannor and S. A. Rice, *J. Chem. Phys.* **83**, 5013 (1985); *Adv. Chem. Phys.* **70**, (1987); S. A. Rice and D. J. Tannor, *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 2* **82**, 2423 (1986).
- [6] M. Shapiro and P. Brumer, *J. Chem. Phys.* **84**, 4103 (1986); P. Brumer and M. Shapiro, *Chem. Phys. Lett.* **126**, 54 (1986).
- [7] T. A. Holme and J. S. Hutchinson, *Chem. Phys. Lett.* **124**, 181 (1986); *J. Chem. Phys.* **86**, 42 (1987).
- [8] S. Shi, A. Woody, and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **88**, 6870 (1988).
- [9] J. G. B. Beumee and H. Rabitz, *J. Math. Phys.* **31**, 1253 (1990).
- [10] S. Shi and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **92**, 364 (1990).
- [11] S. Shi and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **92**, 2927 (1990).
- [12] M. Dahleh, A. P. Peirce, and H. Rabitz, *Phys. Rev. A* **42**, 1065 (1990).
- [13] C. D. Schwieters, J. G. B. Beumee, and H. Rabitz, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 1736 (1990).
- [14] S. Shi and H. Rabitz, *Comput. Phys. Commun.* **63**, 71 (1991).
- [15] H. Rabitz and S. Shi, *Adv. Mol. Vibr. Coll. Dyn.* (to be published).
- [16] L. Shen and H. Rabitz, *J. Phys. Chem.* **95**, 1047 (1991).
- [17] P. Gross, D. Neuhauser, and H. Rabitz, *J. Chem. Phys.* **94**, 1158 (1991).
- [18] K. Yao, S. Shi, and H. Rabitz, *Chem. Phys.* **150**, 373 (1990).
- [19] C. D. Schwieters and H. Rabitz (unpublished).
- [20] Y. S. Kim, H. Rabitz, A. Aşkar, and J. B. McManus, *Phys. Rev. B* **44**, 4892 (1991).
- [21] P. Gross, D. Neuhauser, and H. Rabitz (unpublished).
- [22] R. Kosloff, S. Rice, P. Gaspard, S. Tersigni, and D. Tannor, *Chem. Phys.* **139**, 201 (1989).
- [23] G. Huang, T. Tarn, and J. Clark, *J. Math. Phys.* **24**, 2608 (1983).
- [24] J. Manz, *J. Chem. Phys.* **91**, 2190 (1989).
- [25] D. G. Luenberger, *Introduction to Dynamic System, Theory, Models, and Applications* (Wiley, New York, 1979).
- [26] A. E. Bryson and Y. C. Ho, *Applied Optimal Control* (Hemisphere, New York, 1975).
- [27] T. Kailath, *Linear Systems* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, 1980).
- [28] H. Kwakernaak and R. Sivan, *Linear Optimal Control* (Wiley, New York, 1972).
- [29] P. G. Drazin and R. S. Johnson, *Solitons: an Introduction* (Cambridge University Press, New York, 1989).
- [30] F. G. Tricomi, *Integral Equations* (Dover, New York, 1985).
- [31] M. Demiralp and H. Rabitz (unpublished).