

Maxwell + 分極力場 MD マルチスケールシミュレーションによる DCMBI 結晶の瞬間誘導ラマン散乱誘起テラヘルツ波発生プロセス (筑波大 計算センター) ○山田 篤志

ISRS-induced terahertz wave generation process in DCMBI crystalline solid by Maxwell + polarizable MD multi-scale simulation (*Center for Computational Sciences, University of Tsukuba*) ○Atsushi Yamada

We present a novel computational scheme of classical molecular simulation that is unified with Maxwell's equations based on a multi-scale model to describe the coupled dynamics of light electromagnetic waves and molecules in crystalline solids [1]. The method is applicable to light-matter interaction systems that involve atomic motions in spectroscopy, photonics and optical science. Since the scheme simultaneously traces the light propagation on a macroscopic scale and the microscopic molecular motion under the light, this enables us to treat experimental setup and mimic its measurement process. We performed simulation of vibrational spectroscopy of terahertz wave generation induced by ISRS (impulsive stimulated Raman scattering) in organic molecular crystal [2], DCMBI. The simulation provides the detailed behaviors of the interacting light fields and molecules in the spectroscopic process.

Keywords: Maxwell+Polarizable MD method, Multi-scale simulation, Molecular Vibrational Spectroscopy, ISRS

分光測定で得られる光シグナルは、非線形性を含む光と物質の相互作用と、反射や干渉、増幅のような光の伝搬により引き起こされる変調の結果である。そこには分子の構造や電子状態、振動といった微視的な状態と、波長、時間幅、強度、偏光方向、パルス間隔といったレーザー光の条件、さらに物質の膜厚やマクロ形状など様々な実験系の要因を反映している。このような複雑な物理に対してこれまでの計算化学では、物質の原子・分子レベルの状態に基づく分光解析が発展してきた。本研究では、物質中の光伝搬も取り入れることによる分光系の詳細な記述を可能にする計算化学を目指し、分極力場モデルを用いた分子シミュレーションと Maxwell 方程式とを統合した手法: Maxwell + Polarizable MD 法を開発した[1]。これは、マクロスケール (波長サイズ $\sim\mu\text{m}$) で伝搬する光電磁波とミクロスケール ($\text{\AA}\sim\text{nm}$) の分子運動の大きく異なる両スケールの物理を、多階層 (マルチスケール) モデルに基づき時間領域で統合した手法であり、振動分光やフォトンクスなどの固体系において相互作用する光電磁波と分子の動力学を詳細かつ包括的に記述することができる。本発表では、有機分子結晶 DCMBI に対する瞬間誘導ラマン散乱 (ISRS) 誘起テラヘルツ波発生分光実験のシミュレーションを行い、パルス光入射からテラヘルツ波発生までの分光過程における光と分子の運動の詳細と解析結果を報告する[2]。

[1] A. Yamada, *J. Chem. Phys.*, **152**, 094110 (2020)

[2] A. Yamada, *J. Chem. Phys.*, **153**, 244506 (2020)