

FDTD-Q 法による分子振動緩和ダイナミクスの数値解析

Numerical analysis of vibrational relaxation dynamics by using FDTD method

新潟大自然研¹, 新潟大超域², °宮脇 昌俊¹, 岡 寿樹²

Niigata Univ.¹, Niigata Univ.², °Masatoshi Miyawaki¹ and Hisaki Oka²

E-mail: h-oka@eng.niigata-u.ac.jp

1. はじめに

コヒーレント制御は、光を用いて物質量子状態を直接制御する技術である。一般的に効率的な制御の実現には、パルス入射タイミングや最適パルス波形の予測等が必要となり、数値解析が極めて重要となる。このような解析法の一つに FDTD-Q 法[1]を用いた分子ダイナミクス解析がある[2]。FDTD-Q 法は簡便かつ比較的高精度に Schrödinger 方程式を解ける一方、緩和の効果が取り込まれていない欠点がある。

一般的に緩和過程の解析は密度行列を必要とし計算コストがかかる。そのため FDTD-Q 法のような簡便な計算法が望ましい。そこで本研究では、FDTD-Q 法に確率的 Schrödinger 方程式を適用し、緩和過程を取り扱える解析法へと拡張したので報告する。Pump-dump 法によるホット分子生成のコヒーレント制御[2,3]を例に本解析法の有用性を示す。

2. 解析モデル

比較のため文献[2]の解析モデルを採用する。図1に概念図を示す。K₂分子の¹Σ_g⁺(基底状態)と¹Π_u(励起状態)を考え、pump-dump 法によるホット分子生成における位相緩和の影響を FDTD-Q 法で解析する。断熱ポテンシャルは Morse ポテンシャルで近似し、変数は文献[3,4]を参考にした。また pump パルス、dump パルスは文献[2]と同様、それぞれ中心波長 636 nm (v=0→v'=5)、677 nm (v'=5→v=11) とし、パ

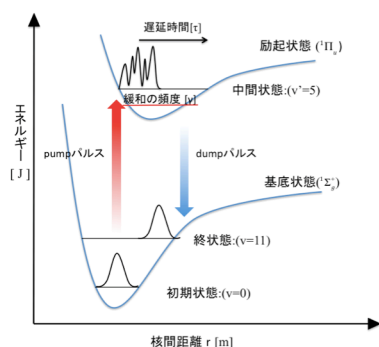


図1. 解析モデル及び pump-dump 法概念図

ルス幅はともに 30 fs のガウスパルスとした。

Pump-dump 間の入射遅延時間 τ を変化させ、終状態 v=11 の準位数を最大にする最適遅延時間を求める。位相緩和は乱数による位相反転として FDTD-Q 法に導入する。励起状態の位相反転の頻度を γ [Hz]とし、乱数による確率過程を考える。十分大きなサンプル数に対しアンサンブル平均をとり終状態の準位数を求める。

3. 計算結果

計算結果の一例を図2に示す。終状態の準位数を τ [fs]の関数としてプロットした。ここで γ ¹=220 fs、サンプル数は 2200 である。緑が位相緩和なし、紫が位相緩和ありに対応する。計算結果から、位相緩和の存在により全体的に準位数が低くなることが分かる（今回の系では 1/3 程度）。最適遅延時間は、位相緩和なしで $\tau \approx 220$ fs、位相緩和ありで $\tau \approx 250$ fs という結果が得られた。この結果から、最適遅延時間と同程度の位相緩和は、準位数を減少させるが、最適遅延時間には余り影響しないことが分かる。

講演では、更に γ の値を変化させた計算を行い、その影響について詳細に解析する。また縦緩和の導入に関しても議論する予定である。

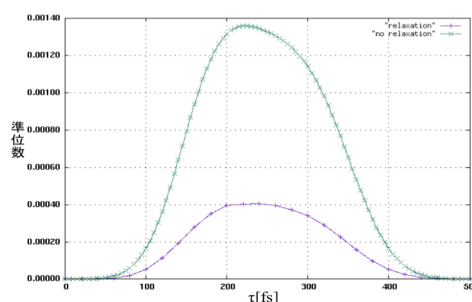


図2. 終状態準位数 v=11 の τ 依存性

参考文献

- [1] A. Soriano et al., J. Appl. Phys. 95, 8011 (2004).
- [2] 喜多亮介, 岡寿樹, 第75回秋季学術講演会 18P-Ap4-1.
- [3] R. Pausch et al., J. Chem. Phys. 110, 9560 (1999).
- [4] V. M. Garcia et al., J. Chem. Phys. 109, 504(1998).