

Pump-dump 法による光異性化反応過程の FDTD-Q 解析

FDTD-Q analysis of photoisomerization dynamics by using pump-dump scheme

新潟大自然研¹, 新潟大超域² ○朝平 孝弘¹, 岡 寿樹²

Niigata Univ.¹, Niigata Univ.², °Takahiro Asahira¹, 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、物質の量子状態を光で直接制御する技術である。現在、物理や化学、生物系など様々な分野へ応用されているが、中でも分子系光反応の制御は究極の目標といえる。しかし効率的な光反応制御の実現には、パルス光の照射タイミングや波形整形等を適切に制御する必要があり、数値解析による予測が極めて重要になる。

本研究では、FDTD 法を Schrödinger 方程式に適用した FDTD-Q 法 [1] を光異性化反応系に応用し、分子波束ダイナミクスを簡便に計算できる数値解析法を構築したので報告する。Pump-dump 法による光異性化反応のコヒーレント制御[2]を例に本解析法の有用性を示す。

2. 解析モデル

解析モデルの概念図を図 1 に示す。文献[2]と同様、3,3'-diethyl-2,2'-thiacyanine iodide 分子 (NK88) を対象として、pump-dump 法による光異性反応を FDTD-Q 法で解析する。まず初期状態でトランス体にある NK88 を pump パルスにより励起状態へと遷移させる。次に遅延時間 τ 後に dump パルスを照射し、励起状態に形成された分子波束をシス体へと遷移させる。断熱ポテンシャルおよび分子パラメータは文献[2]の値を採用する。また pump および dump パルスはそれぞれ中心波長 402 nm、872 nm のガウスパルスとし、Franck-Condon 解析から準位間遷移が効率的におこる波長を選んだ。Pump-dump 間遅延時間 τ を変化させ

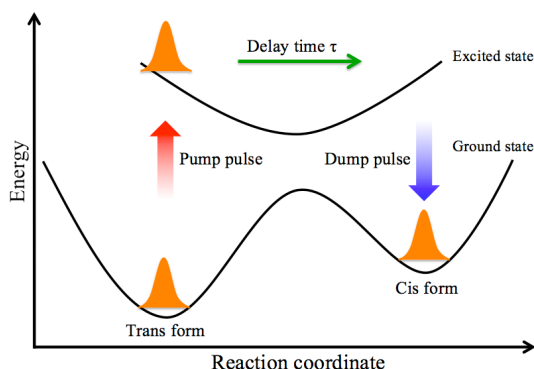


図 1 解析モデル及び Pump-dump 法の概念図

ながら、シス体の準位数を計算し、最も効率良く異性化を誘起する最適遅延時間 τ を求める。また遷移効率はパルス幅にも依存するため、パルス幅を変化させながら同様の解析を行う。

3. 結果

図 2 に解析結果の一例を示す。パルス幅 30、40、50 fs に対するシス体の準位数をそれぞれ遅延時間 τ の関数としてプロットした。ここでパルスの電場振幅はいずれも 10^8 V/m である。遅延時間 τ が約 100 fs、300 fs のときいずれのパルス幅に対しても遷移効率が高くなっていることが分かる。また、パルス幅が長くなると全体的に遷移効率が增加する傾向を示す。この例ではパルス幅 50 fs、遅延時間 95 fs が最適であり 8.5% が異性化するという結果が得られた。

本結果は pump パルス、dump パルスともに同じパルス幅を用いたが、これらを変化させることで遷移効率を上げられる可能性がある。講演では高強度入射による Rabi 振動の影響や更なる高効率化を実現する最適パルス幅について報告する予定である。

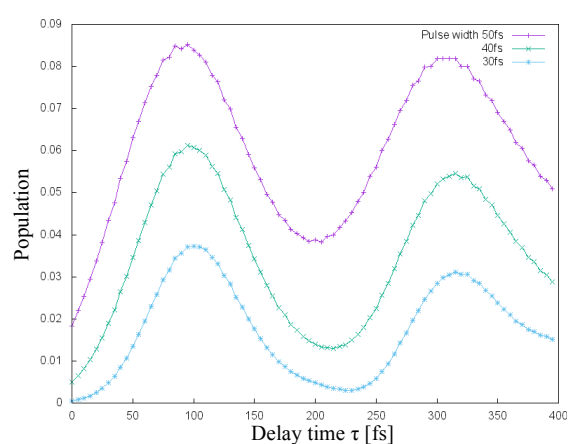


図 2 シス体準位数の遅延時間 τ 依存性

参考文献

- [1] D. Sullivan and D. Citrin, J. Appl. Phys. **91**, 3219 (2002).
- [2] G. Vogt *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 068305 (2005).