

高強度レーザー場中の非断熱ダイナミクスのネットワーク構造

東大院総合文化

○水野雄太, 福島孝治

Network structure of nonadiabatic dynamics in intense laser fields

○Yuta Mizuno, Koji Hukushima

Department of Basic Science, The University of Tokyo, Japan

【Abstract】 Molecular dynamics in intense continuous wave (CW) laser fields can be understood as the dynamics of the nuclear wave packet moving on field-dressed potential energy surfaces (PES) which are obtained by raising or lowering the field-free PESs by an integer multiple of the laser photon energy. Especially in nonadiabatic systems in intense CW laser fields, there are a lot of crossing points of field-dressed PESs, and the nuclear wave packet bifurcates repeatedly as it passes the crossing points. To understand this complex bifurcation dynamics intuitively, we visualized the dynamical structure as a network (= directed graph) the nodes of which represent dynamical events such as bifurcation, turning and dissociation. We call it the directed graph representation (DGR) of nonadiabatic dynamics. In this poster presentation, we will report theoretical and computational results on construction and analysis of DGR using LiF molecule in intense CW laser fields as a model system.

【序】近年の高強度レーザー技術の発展は、高強度光電場による分子のポテンシャル面 (PES) の大きな動的変形を可能とした。これは動的 Stark 効果と呼ばれ、これを適切に利用すれば分子の核波束ダイナミクスを制御できる。特に非断熱相互作用を持つ分子系を高強度レーザー場中に置くことで、非断熱遷移を変調・誘起し、核波束ダイナミクスを大きく変化させることができる[1-3]。例えば、典型的な非断熱系である LiF 分子は電子励起すると大部分の核波束が解離するが、適切な振動数・強度の高強度 CW レーザー場中に置くと励起核波束の解離を抑制できることが理論的に予測されている[3]。一方で、高強度 CW レーザー場中の非断熱ダイナミクスは、場によって誘起された遷移による核波束の分岐と融合を多数回ともなう複雑なものになることも分かっている[4,5]。この複雑な核波束分岐・融合ダイナミクスを理解することは反応動力学制御の観点からも重要であるが、分岐した核波束の個数は分岐を経るごとに増えていくため、単に時系列を見ただけではダイナミクスの直観的理解や長時間挙動の解析は困難である。したがって、時系列以外の観点による解析が必要となる。

そこで本研究では、高強度 CW レーザー場中の LiF 分子の非断熱ダイナミクスを状態空間構造の観点から捉え、その構造をネットワーク (有向グラフ) として表現し、解析を行うことにより、複雑な核波束分岐・融合ダイナミクスの理解を目指した。

【理論・方法】本研究では、高強度レーザー場中の非断熱ダイナミクスを Floquet 描像で捉え、動的に変動しない複数の PES 上の非断熱ダイナミクスとして記述した。さらに、非断熱ダイナミクスの部分は Trajectory Surface Hopping 法的描像で捉えた。

我々は高強度 CW レーザー場中の非断熱ダイナミクスを分岐・転回・解離などの動力学的なイベントの系列として捉え、その構造を Fig.1 に示すようなイベント点をノード「○」、イベント間の移行をエッジ「→」で表したネットワーク構造 (有向グラフ) で表現した。さらに、定量的解析を可能にするために、分岐点を表すノードには非断熱遷移確率を、移行を表すエッジには移行時間を情報として付与した。これを以下で

は非断熱ダイナミクスの有向グラフ表現 (DGR: Directed Graph Representation) と呼ぶことにする. DGR の構築方法に関しては当日, 詳細を発表する.

【結果】 Fig.1 に DGR の一例を示す. 各分岐点における非断熱遷移確率と各エッジにおける移行時間に従って「パケット」がネットワーク上を輸送されるという直観的描像により複雑なダイナミクスの構造を俯瞰的に捉えることができる. ここで輸送されるパケットには, 古典論的な「ポピュレーション」(classical-DGR) と, 量子論的な「確率振幅」(coherent-DGR) の 2 種類が考えられる. この描像に従って DGR から計算された時系列と量子波束計算から得られた時系列を比較した結果が Fig.2 である. ここでは, Fig.1 で黒く縁取られたノードを初期値としたときの, この点におけるポピュレーションの時間変化を計算している. coherent-DGR と量子波束計算の結果はよく一致している. classical-DGR の結果がずれるのは, 一度分岐した核波束が再びコヒーレントに融合した際の強め合い効果を見逃しているからである. この図から, 核波束の分岐・融合が解離抑制に正の量子効果をもたらしていることが分かる.

【結】 以上のように, 有向グラフ表現 (DGR) によって, 高強度 CW レーザー場中の非断熱ダイナミクスの状態空間構造の俯瞰的把握や, ネットワーク上のパケット輸送としてのダイナミクスの直観的把握が可能になる. 我々はさらに, この DGR を用いた主要経路抽出などの解析を行っている. 発表当日は, 様々な振動数や強度の CW レーザーに対する DGR や主要経路抽出の結果等についても報告する予定である.

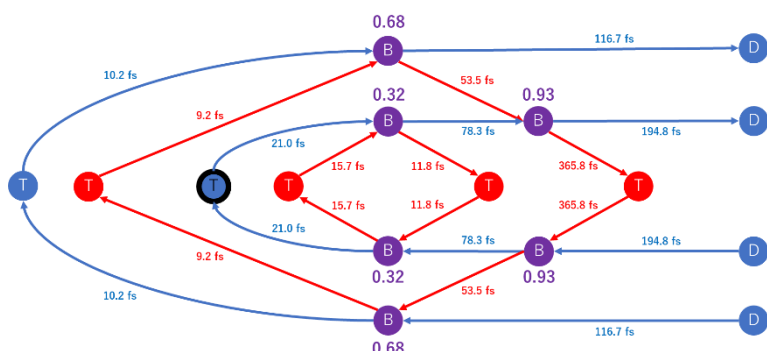


Fig.1. Directed Graph Representation of nonadiabatic dynamics of LiF molecule in intense laser field. The nodes represent dynamical events such as bifurcation(B), turning(T) and dissociation(D). The laser frequency is 5 eV, the laser intensity is 10^{13} Wcm⁻², and the system total energy is 1.15 eV.

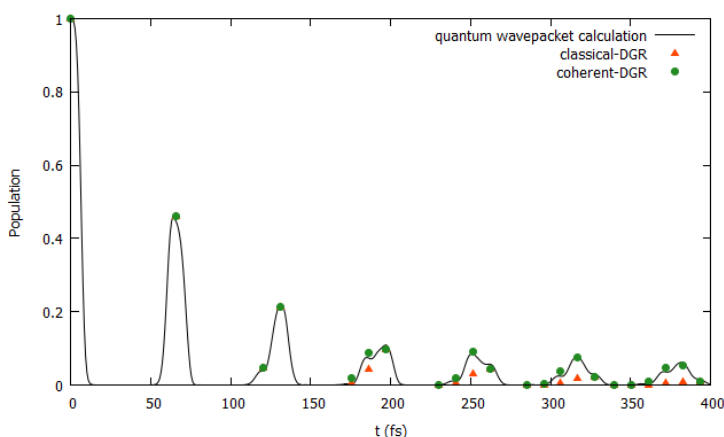


Fig.2. Time series data of the population at the point denoted by black border in Fig.1 obtained from quantum wave packet calculation, classical and coherent packets transportation on the DGR shown in Fig. 1.

【参考文献】

- [1] 中村宏樹, 『朝倉化学大系5 化学反応動力学』, 朝倉書店 (2004).
- [2] S. Scheit, Y. Arasaki, and K. Takatsuka, *J. Phys. Chem. A* **116**, 2644 (2012).
- [3] Y. Arasaki, Y. Mizuno, S. Scheit, and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **144**, 044107 (2016).
- [4] Y. Arasaki, Y. Mizuno, S. Scheit, and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **141**, 234301 (2014).
- [5] Y. Mizuno, Y. Arasaki, and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **145**, 184305 (2016).