

2P070 量子光と相互作用する集合体のエキシトンダイナミクス

(阪大院基礎工) ○中野雅由, 太田 克, 岸 亮平, 高橋英明, 古川信一

【序】古典レーザー場と相互作用する系のエキシトンダイナミクスはこれまで数多く検討されてきた。最近、新田らにより、古典レーザー場中のエキシトン再帰運動に関して、その機構解明と再帰制御の研究が集合体の構造との相関の見地から数値シミュレーションに基づき行われている[1]。本研究では、新たに、量子光と相互作用する原子／分子集合体のエキシトンの振る舞いについて量子ダイナミクスにより検討する。特に、構造・サイズの異なる集合体のエキシトン再帰運動に関して、量子光と古典光による違いや量子光の統計性に対する依存性を解明することを目的とする。

【計算と結果】図1に示す3種類のモデル（2量体(D), 3量体(T), 5量体(P)）に関して考察する。モノマーは2状態からなる点双極子と近似する。モノマー間距離は30 a.u.とする。双極子-双極子相互作用を仮定し、集合体のハミルトニアンは次式で表される。

$$H_{\text{agg}} = \sum_k \sum_{i_k}^2 E_{i_k}^k a_{i_k}^\dagger a_{i_k} + \frac{1}{2} \sum_{k,l} \sum_{\substack{i_k, i'_k, \\ i_l, i'_l}} \mu_{i_k i'_k}^k \mu_{i_l i'_l}^l [(\cos(\theta_{k_l} - \theta_{l_k}) - 3\cos\theta_{k_l} \cos\theta_{l_k}) / R_{kl}^3] a_{i_k}^\dagger a_{i'_k}^\dagger a_{i_l} a_{i'_l}. \quad (1)$$

右辺第一項は、相互作用のない場合の集合体のエネルギー、第二項は双極子-双極子相互作用を表す。これを1、2エキシトン配置基底を用いて対角化することで、集合体の励起状態が求められる。例えば、2量体(D)と3量体(T)に関するエキシトン状態（励起エネルギーと遷移モーメント）を図2に示す。

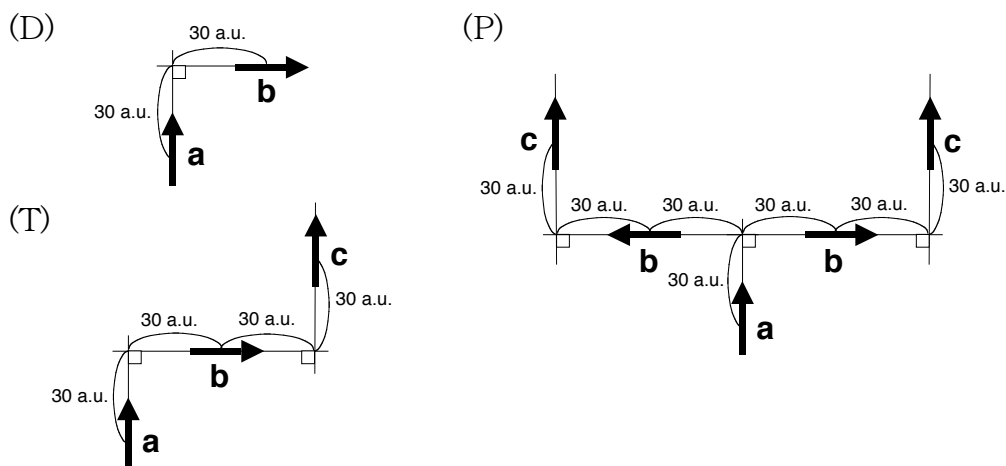


図1. 2量体(D), 3量体(T), 5量体(P)。モノマー（矢印）の励起エネルギー 38000 cm⁻¹, 遷移モーメント 10 D。

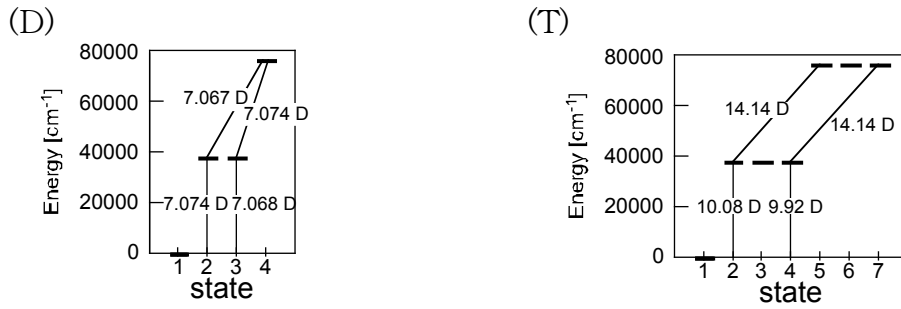


図2. 2量体(D)と3量体(T)のエキソン状態。

量子場（光）との相互作用[2]は、

$$\begin{aligned}
 H &= H_{\text{agg}} + H_{\text{qfield}} + H_{\text{agg-qfield}} \\
 &= \sum_l^M E_l^{\text{agg}} b_l^\dagger b_l + \left(c^\dagger c + \frac{1}{2} \right) \omega + \sum_{l,l'}^M K \mu_{ll'}^{\text{agg}} b_l^\dagger b_{l'} (c + c^\dagger),
 \end{aligned} \tag{2}$$

ここで、右辺第一項は、集合体エキソン、第二項は量子光、第三項はエキソンと量子光の相互作用を表す。 K は、エキソン-量子光の結合定数で、

$$K = \left(\frac{2\pi\omega}{V} \right)^{\frac{1}{2}} \tag{3}$$

量子光は、キャビティー（体積 V ）中の1モードとし、初期平均フォトン数8の3種類の量子統計性をもつ光（コヒーレント光、振幅スクイーズド光、位相スクイーズド光）を考える。量子光の場合、連続的にかけ続けた場合でも、古典レーザー光の場合と異なり、崩壊と復活の間の quiescent 領域 II-III においてエキソン再帰運動が見られることが判明した（図3）。機構の詳細や量子光の量子統計性、集合体の構造による変化等は当日発表する。

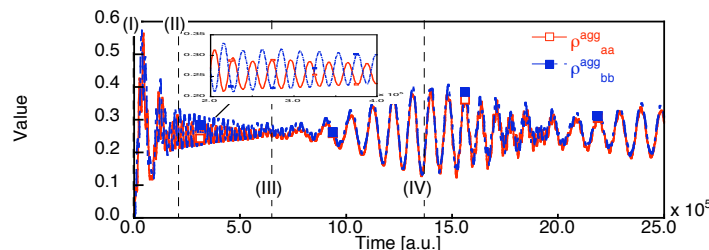


図3. コヒーレント場下での2量体(D)のサイトポピュレーション変化

【参考文献】

- [1] H. Nitta, M. Shoji, M. Takahata, M. Nakano, D. Yamaki, and K. Yamaguchi, J. Photochem. and Photobio. A: Chem., **178**, 264 (2006).
- [2] M. Nakano, and K. Yamaguchi, J. Chem. Phys. **117**, 9671 (2002); **116**, 10069 (2002).