

Sužadintų molekulių kompleksų kvantinė dinamika: stochastiškumas ir negrįžtamumas

Excited state quantum dynamics in molecular complexes: stochasticity and irreversibility

Darius Abramavičius, Mantas Jakučionis

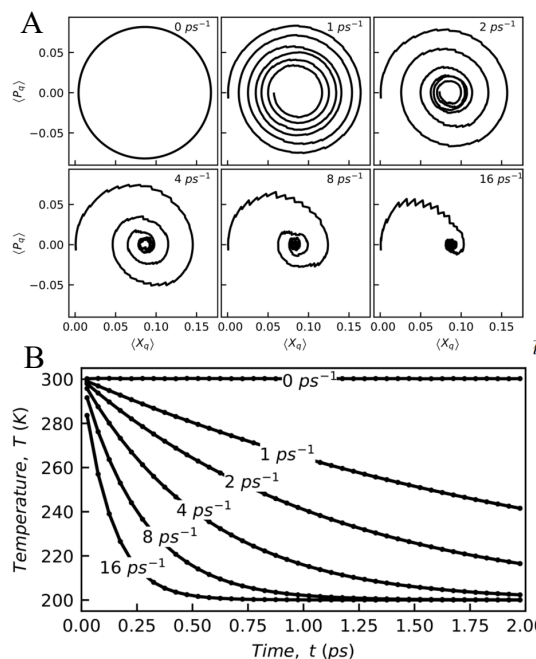
²Cheminės fizikos institutas, Fizikos fakultetas, Vilniaus universitetas, Saulėtekio al. 3, Vilnius
darius.abramavicius@ff.vu.lt

Kvantinių sistemų sužadintų būsenų evoliucijos tyrimai ir jos valdymas, keičiant sistemų parametrus, šiuo metu tampa ypač aktuali tematika dėl pastarojo dešimtmečio kvantinių technologijų vystymosi. Kvantinių sistemų inžinerijoje dažnai nėra lengvai prognozuojama „kvantiškumo“ gyvavimo trukmė, t. y. kvantinio išsifazavimo ir kvantinių būsenų nespindulinės relaksacijos gyvavimo trukmės. Molekulių kompleksai yra ribiniai tokių sistemų modeliai, kur elektroniniai sužadinimai - kvantinės tiriamos sistemos - ir virpesiai - tokių kvantinių tiriamų sistemų parametriniai trikdžiai – tarpusavyje stipriai sąveikauja. Nuo laiko priklausomo variacinio principo (time dependent variational principle - TDVP) metodas leidžia sistemingai aprašyti sužadintos būsenos raidą pasirinktu sudėtingumo lygiu.

Elektroninės kvantinės būsenos TDVP metode įskaitomis absoliučiai tiksliai. Metodas leidžia įtraukti molekulinis virpesius ir gardelės fononus skirtingais būdais, nuo ko priklauso aprašymo tikslumas. Gana paprasta vadinamoji Davydovo D2 variacinė teorija gali būti naudojama J agregatų sugerties ir fluorescencijos spektrinių linijų formoms apibūdinti dideliu tikslumu. Norint apibūdinti H agregatus, reikalingas daug tikslesnis ir tuo pačiu sudėtingesnis teorijos lygis, vadinamas multipletiniu D2 (mD2) metodu.

Visais šiais atvejais sprendžiamos lygtys garantuoja energijos ir judesio kiekio tvermės dėsnius. Kadangi modeliuojama baigtinio dydžio kvantinė sistema, tai reiškia, kad gaunamas judėjimas yra visiškai grįžtamasis. Negrįžtamumas ir tuo pačiu statistinės fizikos temperatūra yra įvedama modeliuojant statistinį ansamblių. Tačiau dėl sistemos baigtinumo visiškai grįžtamumo išvengti tampa neįmanoma. Be to, baigtinėje sistemoje iš principo energijos relaksacija tampa problemine.

Buvo parodyta, kad modeliuojant kvantinę dinamiką po elektroninio sužadinimo, neišvengiamai gaunamas stiprus aplinkos fononų kaitimas. Sukūrėme keletą teorinio modeliavimo metodų, kurie šį kaitimą paverčia valdomu procesu [1]. Taip gali būti įvedama kvantinių sistemų termalizacija, kaip pavaizduota pav. 1. Pavyko sukurti termalizacijos algoritmus suderinamus su TDVP D2 ir mD2 metodais.



1 pav. A. Kvantinio osciliatoriaus dinamika, keičiant elektron-fononinės sklaidos spartą. B. kvantinės aplinkos „aušimo“ priklausomybė nuo elektron-fononinės sklaidos spartos.

Reikšminiai žodžiai: kvantinė dinamika, termalizacija, eksitonų teorija.

Literatūra

- [1] Mantas Jakučionis and Darius Abramavičius, Thermalization of open quantum systems using the multiple-Davydov-D2 variational approach, Phys. Rev. A **107**, 062205, 2023.