

3P054

レーザー光による2原子分子の超閾解離の制御に関する研究

○峠田 篤人¹, 佐野 雅敏¹, 一谷 和弘¹, 高田 裕輔¹, 杉森 公一², 長尾 秀実¹, 西川 清¹
(金沢大院・自然¹, 金城大²)

1、はじめに

近年フェムト秒オーダーの超短パルス高強度レーザーが開発され、このレーザーパルスを用いる事でレーザーの強い光電場により原子のクーロンポテンシャルが歪み、電子がトンネル効果により束縛状態から脱し自由電子となったり、また束縛電子が多数の光子を吸収して連続状態に遷移しイオン化を起こす。光電場イオン化においては、分子に照射するレーザー光の振動数、電場強度、幅、位相などを自由に変化できるためイオン化の制御が可能である。さらに光電場イオン化で電子が束縛状態より解離状態へ遷移したあとも、レーザー光を当て続ける事でイオン化の閾値を超えてもなおさらに光子を吸収、放出し、超閾イオン化 (ATI), 超閾解離 (ATD), 高次高調波発生 (HHG) など興味深い現象が起こる事が知られている。

2、研究目的

本研究では2原子分子である OH ラジカル分子を対象として、ある任意の振動励起状態に高強度パルスレーザーを照射し連続状態に遷移させた上で、その状態に含まれる束縛状態及び連続状態をスペクトル法で解析することを試みるものである。さらに ATD スペクトルの光制御の実現を目的としている。

3、理論、計算方法

(i) OH 分子のポテンシャルと波動関数

OH 分子の電子基底状態における振動状態及び解離状態は Morse ポテンシャルで定義される。

$$V_M(x) = D_e(1 - e^{-\alpha(x-x_e)})^2$$

ここで、 D_e, α, x_e は解離エネルギー、モースパラメータ、平行核間距離である。

(ii) 時間依存のシュレディンガー方程式

一般に、外場の入った Morse 振動子のハミルトニアン H は以下で与えられる。

$$H = T + V_M(x) + W(x, t)$$

ただし、 $T, V_M(x), W(x, t)$ はそれぞれ運動エネルギー、ポテンシャル、外場と分子系の相互作用である。また

$$W(x, t) = -\mu(x) \cdot E(t)$$

であり、 $\mu(x)$ は双極子モーメント関数で x と近似でき、 $E(t)$ は外場である。

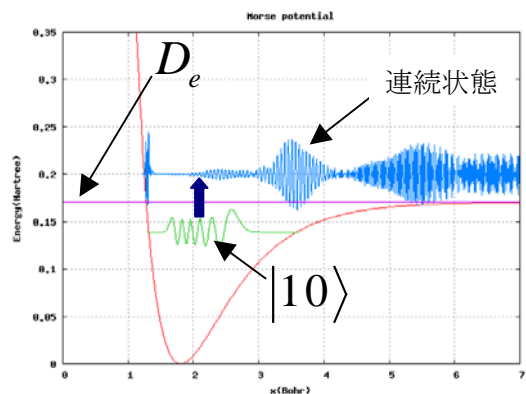


図1 .MORSE ポテンシャル

ここで時間依存シュレディンガー方程式における波動関数 $|\psi(t)\rangle$ は、微小時間発展演算子 $U(\Delta t)$ を用いて解くと以下ようになる。

$$|\psi(\Delta t)\rangle = U(\Delta t)|\psi(0)\rangle \\ \cong e^{-i\frac{V+W}{2\hbar}\Delta t} \cdot e^{-i\frac{T}{\hbar}\Delta t} \cdot e^{-i\frac{V+W}{2\hbar}\Delta t} + O((\Delta t)^3)$$

なお時間発展演算子にはノルムを保存する SOM(Split Operator Method)を用いた。

ここで、 $|\psi(0)\rangle, |\psi(\Delta t)\rangle$ はそれぞれ初期波束、微小時間後の波束である。

(iii) スペクトル法

束縛状態間は離散的なので、任意の時刻での波束におけるそのポピュレーションは容易に計算できる。しかし、連続状態は無限の状態が重ね合わされており、どのエネルギー状態がどれだけ含まれているかの解析は直接に求めることができない。スペクトル法とは、任意の時刻 t での波動関数を自由に時間発展させ、その自己相関関数のフーリエ変換によりその状態のエネルギースペクトルを求める方法である。

$$S(E, t) = \frac{1}{T} \int_0^T e^{iE\tau} \langle \psi(t) | \psi(t+\tau) \rangle d\tau$$

ここで T は発展時間、 E はエネルギーである。なお自己相関関数は、

$$\langle \psi(t) | \psi(t+\tau) \rangle = \sum_n |C_n(t)|^2 + \int_0^\infty dE |C_E(t)|^2$$

ここで $C_n(t)$ 、 $C_E(t)$ は束縛状態 $|n\rangle$ 及び連続状態 $|n\rangle$ の確率振幅である。

4、結果

本研究ではレーザーパラメータを変えながら、以下のようなパルスレーザーを与えた。

$$W(x, t) = x(E_1 \sin \omega t + E_2 \sin(2\omega t + \delta)) e^{-\left(\frac{t-t_0}{\sigma}\right)^2}$$

ここで ω 、 σ 、 E 、 t_0 、 δ は各々レーザー光の振動数、パルス幅、電場強度、パルスの中心、位相である。

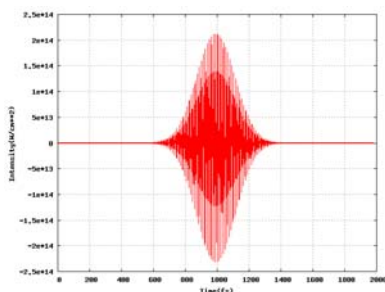


図 2.外場

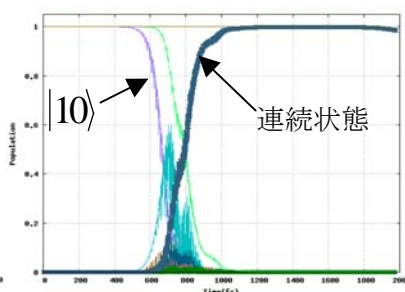


図 3.ポピュレーションの時間発展

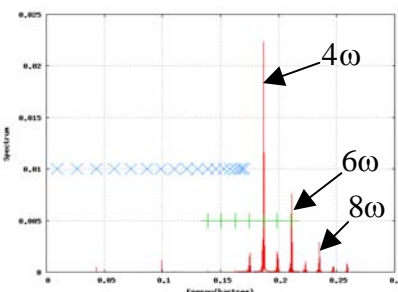


図 4.1500[fs]でのスペクトル

図 4 のスペクトルより ω と 2ω の重ね合わせによる多光子吸収がみられ、同時に ATD の確認がされた。尚、より詳細な研究結果は当日発表する。

Reference

[1] C. Clay Marston and Gabriel G. Balint-Kurti, *J.Chem.Phys.*, **91**, 3571-3576, 1989.