

【序】強レーザー場における C_{60} から発生する高次高調波は、新しい光源として興味もたれているが [1]、その電子ダイナミクスの詳細は十分に理解されていない。そこで本研究では、我々がこれまで開発してきた時間依存密度汎関数理論に基づく実時間・実空間電子ダイナミクス計算手法を用いて、強レーザーパルス光照射下における C_{60} からの高次高調波発生メカニズムの解明を行った。

【実時間・実空間電子ダイナミクス】電子ダイナミクスの計算には、Yabana と Bertsch によって開発されたプログラム [2] を基にして、並列化、Multigrid 法の採用、及び RMM-DIIS 法の採用等の大幅拡張を施したプログラムを用いた。

この計算においては、実空間 3 次元グリッド上の Khon-Sham 軌道 ψ_j を、次式で表される時間依存 Khon-Sham 方程式に従い時間発展させる。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi_j(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + v_{\text{ion}} + \int \frac{\rho(\mathbf{r}', t)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' + v_{\text{xc}}[\rho](\mathbf{r}, t) + v_{\text{laser}}(\mathbf{r}, t) \right] \psi_j(\mathbf{r}, t)$$

ρ は電子密度、 v_{ion} は C_{60} の電子-核間相互作用ポテンシャルであり、ここではノルム保存擬ポテンシャルを使った。右辺第 3 項の相関交換ポテンシャル (v_{xc}) には LDA を用いた。価電子のみを考慮しているため、全系は 240 電子系である。また、 v_{laser} は摂動電場を表す外部ポテンシャルであり、

$$v_{\text{laser}}(\mathbf{r}, t) = ezE \sin(\omega t) \sin^2\left(\frac{\pi t}{T}\right)$$

で与えられる。 e は電荷、 E は電場の強度、 ω はレーザー周波数、 T はパルス幅である。また、電場強度はレーザー強度と $I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E^2$ の関係にある。但し、 ϵ_0 は真空の誘電率、 c は光速である。計算空間の大きさは $16\text{\AA} \times 16\text{\AA} \times 50\text{\AA}$ 、メッシュ間隔は 0.3\AA 、時間発展のステップ幅は 0.00165fs 、レーザーのパルス幅は 38.3fs 、レーザー強度は 10^{10}W/cm^2 とした。今回の計算では原子は動かな

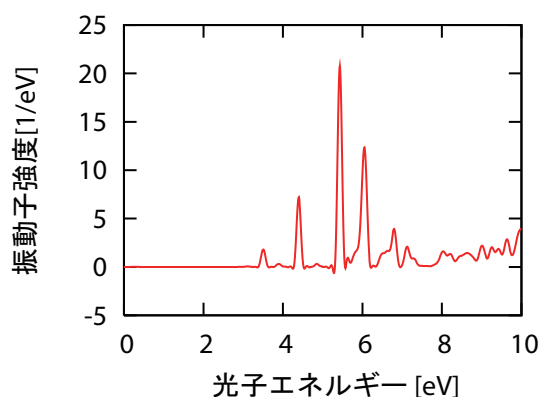
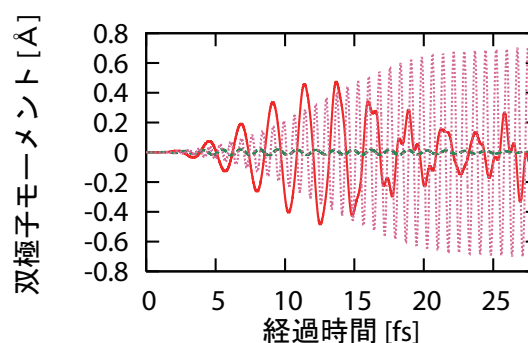


図 1: C_{60} の振動子強度



レーザー周波数:
 1.81eV ————
 3eV - - - - -
 5.43eV ······

図 2: レーザー照射時における双極子モーメントの時間変化

いと仮定し、原子の座標は固定した。

高次高調波の解析は、次式で与えられるパワースペクトル $\mathcal{P}(\omega)$ で評価した。

$$\mathcal{P}(\omega) \propto \{\text{Re}\tilde{\mathcal{D}}(\omega)\}^2$$

$\tilde{\mathcal{D}}$ は双極子モーメントを時間に対してフーリエ変換した量である。

【C₆₀ の高次高調波発生】

C₆₀ の振動子強度の計算結果を図 1 に示す。この結果は過去の計算 [2] をよく再現している。また、この図から 5.43eV に鋭いピークがあることがわかる。この振動数に対応するレーザーを照射すると、強い高次高調波が発生することが期待される。そこで、異なる振動数を持つレーザーを C₆₀ に照射した。そのときの双極子モーメントの時間変化を図 2 に示す。図からわかるように、5.43eV の周波数を持つレーザーを照射すると、双極子モーメントが強く振動しており、共鳴励起が起きていることがわかる。また、3eV の周波数を持つレーザーを照射しても強い振動は見られず、共鳴励起が起きていることがわかる。一方、1.81eV の周波数を持つレーザーを照射した場合には、そのエネルギーに対応する共鳴励起が存在しないにもかかわらず複雑な振動が起きていることがわかる。このエネルギーに対応する双極子遷移可能な励起状態は存在しないが、5.43eV の励起状態が 3 倍波に対応することから、多光子吸収が起きている可能性が考えられる。

次に高次高調波の解析を行うために、パワースペクトルの計算を行った。その結果を図 3 に示す。この図からわかるように、5.43eV の周波数を持つレーザーを照射した場合は、奇数次である 3 次の高調波が現れていることがわかる。一方、1.81eV の周波数を持つレーザーを当てた場合には、双極子モーメントの時間変化が複雑であるにもかかわらず、より高次の奇数次の高調波が現れていることがわかる。

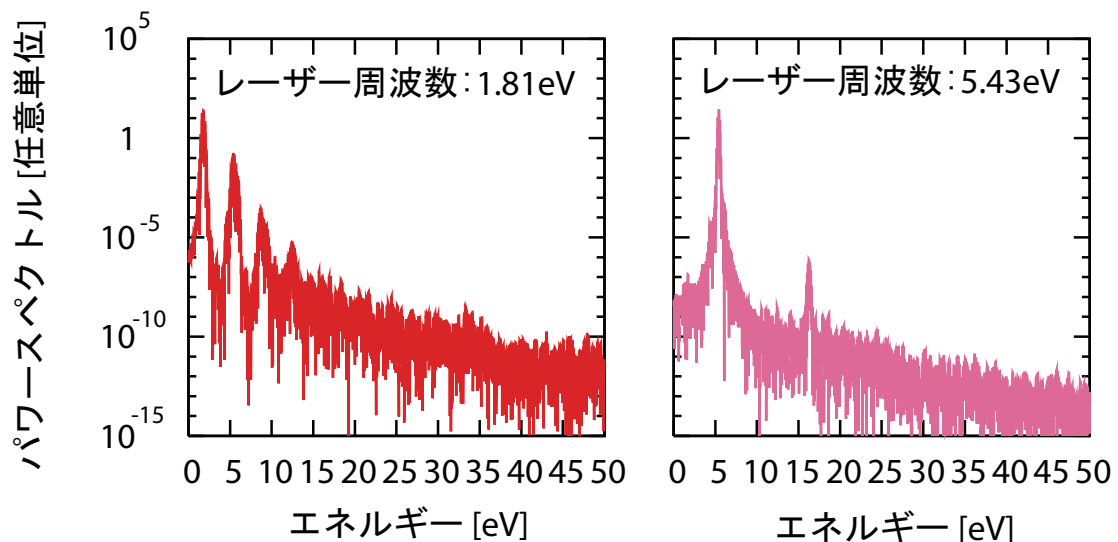


図 3: 異なる周波数を持つレーザーに対するパワースペクトル

【参考文献】 [1] Z.H. Kafafi et al., CPL 188 (1992) 492. [2] K. Yabana and G. F. Bertsch, PRB 54 (1996) 4484.