

## 二原子分子における光会合の理論的研究

(金沢大院・自然) ○佐野 雅敏, 峠田 篤人, 谷口峻一, 長尾 秀実, 西川 清

### 【序】

近年のレーザー技術の発展により, 原子や分子内のクーロン電場と同等か, それ以上の強光子場を発生させることが容易となってきた。すなわち, レーザー光は分子の状態を大きく変える程の高電場領域を持ち, 新しい化学反応の可能性が期待されるようになった。

本研究では, 波束ダイナミクスにより酸素原子と水素原子の衝突過程における光会合のシミュレーションを行う。光会合とは光による分子解離の逆過程を意味し, 光と分子の相互作用により連続状態から安定な分子を生成させることである。連続状態における波束にレーザー光を照射し, 光子の誘導放出を利用することで特定の束縛状態への完全遷移を目指す。

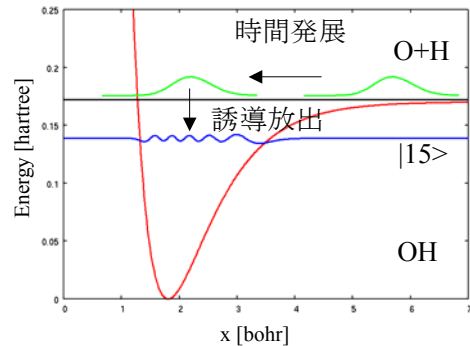
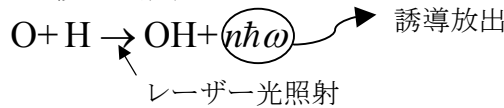


Fig.1 シミュレーション概要

### 【計算方法】

まず, 2原子間の結合距離によるポテンシャルエネルギーにモースポテンシャルを適用し, すべての振動状態のハミルトニアン行列要素をFourier Grid Hamiltonian (FGH) 法で求める。次に, 半古典論の枠組みで時間依存シュレディンガー方程式(TDSE)を数値的に解く。TDSEは

$$i\hbar \frac{d}{dt} \Psi(x,t) = (T + V + W(t)) \Psi(x,t)$$

$$\Psi(x,t + \Delta t) = U(\Delta t) \Psi(x,t)$$

であり,  $T, V$ はそれぞれ, 無摂動の分子系の運動エネルギーとポテンシャルエネルギー,  $W(t) = -\mu(x) \cdot E(t)$ は古典的電場と分子の双極子の相互作用,  $\mu(x) = x$ は遷移双極子モーメント演算子,  $U(\Delta t)$ は時間発展演算子である。なお, 状態ベクトルは無摂動ハミルトニアンの固有状態で展開する。

時間発展演算子は

$$U(\Delta t) \cong e^{-(V+W)\Delta t/2\hbar} e^{-iT\Delta t/\hbar} e^{-i(V+W)\Delta t/2\hbar} + ((\Delta t)^3)$$

と, Split Operator Method(SOM)法によって近似する。この方法は, 時間発展後もノルムを保存する特徴があるため, 波動関数を精度よく取り扱うことができる。

最終的には, 初期波束(ガウス波束)のパラメータを固定した条件下でレーザーパラメータを変化させ, 各固有状態のポピュレーション  $P_n(t) = \langle n | \Psi(t) \rangle^2$  ( $|n\rangle$ は束縛状態の振動固有状態)を計算し, 光子放出過程を解析する。

モースポテンシャル

$$V(x) = D_e \left(1 - e^{-\alpha(x-x_0)}\right)^2$$

$D_e$ : 解離エネルギー

$\alpha$ : モースパラメータ

$x_e$ : 平衡核間距離

Fourier Grid Hamiltonian

$$H_{ij} = \begin{cases} \sum_{l=1}^{(N-1)/2} \frac{2 \cos(l \cdot 2\pi(i-j)/N)}{N} T_l \\ + V(x_i) \delta_{ij} \end{cases} \frac{1}{\Delta x}, \quad T_l = \frac{\hbar^2 (l\Delta p)^2}{2m}$$

ガウス波束

$$\Psi(x,0) = \left(\frac{2}{\pi\sigma_0^2}\right)^{1/4} \exp\left[ipx - \left(\frac{x-x_0}{\sigma_0}\right)^2\right]$$

$x_0$ : 2原子間の初期平均距離

$\sigma_0$ : 波束の幅

$p$ : 運動量

電場(パルスレーザー)

$$E(t) = E \exp\left[-\left(\frac{t-t_0}{\sigma}\right)^2\right] \sin \omega t$$

$E$ : 電場強度

$t_0$ : 電場のピーク時刻

$\sigma$ : パルス幅

$\omega$ : 周波数

**【結果】**

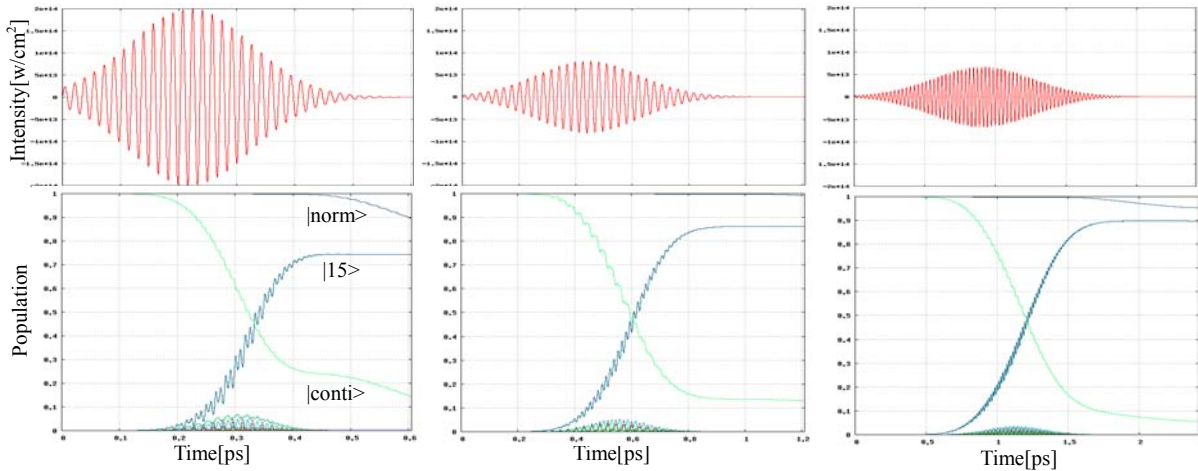
Table.1 初期波束のパラメータ

|     | $p_0$ | $\sigma_0$ | $x_0$ |
|-----|-------|------------|-------|
| 条件① | -4    | 12         | 32    |
| 条件② | -2    | 12         | 32    |
| 条件③ | -2    | 24         | 60    |

上の条件下でレーザーパラメータを変化させ、目的状態 $|15\rangle$ の占有率が最大になる条件を考察する。

ただし  $n$  光子吸収過程のパルス周波数は  $\omega = (\varepsilon_{cont} - \varepsilon_{15}) / n\hbar$  ( $\varepsilon_n$  は各振動状態のエネルギー) とする。以下に各条件における計算結果を示す。

Fig.4 占有率とレーザー光の時間変化(左から順に条件①②③)



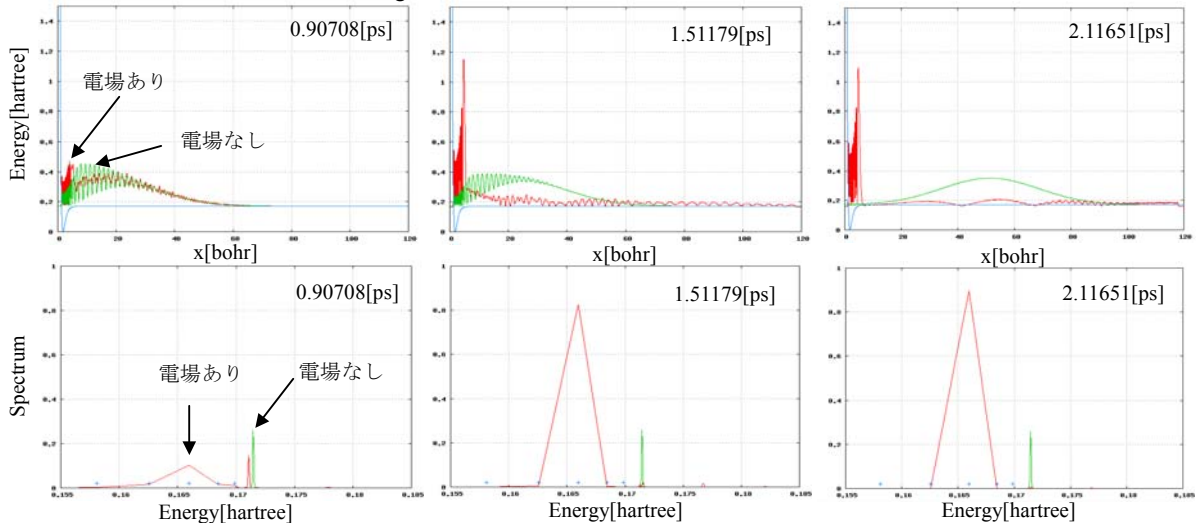
条件①②の結果より運動量を小さくすることにより、より弱い電場にも関わらず目的状態の占有率が増加することがわかる。

これは波束の持つエネルギーが減少したためと考えられる。次に条件②③の結果から、波束のパルス幅を広くすることで占有率が増加することが分かる。これは初期波束のエネルギースペクトルの幅が狭まることの影響していると考えられる。

Table.2 レーザーパラメータ

|   | $E[w/cm^2]$            | $\sigma[ps]$ | $t_0[ps]$ |
|---|------------------------|--------------|-----------|
| ① | $2.001 \times 10^4$    | 0.14775      | 0.23463   |
| ② | $8.073 \times 10^{13}$ | 0.25519      | 0.44265   |
| ③ | $6.669 \times 10^{13}$ | 0.49708      | 0.90950   |

Fig.5 条件③における波束と占有率の時間変化



多光子放出過程における振動状態 $|10\rangle$ への遷移については検討中であり、当日詳細を報告する。

**【参考文献】** C. C. Marston and G. G. Balint-Kurti, *J Chem.Phys.*, 91, 3571-3575(1989).