

レーザー光を用いた高次高調波発生の量子制御

(金沢大院・自然¹, 金城大・社会福祉²)

○谷口 峻一¹, 杉森 公一², 齋藤 大明¹, 長尾 秀実¹, 西川 清¹

[序]

高次高調波(HHG: High-harmonic generation)は、高強度短パルスレーザーを原子や分子に照射したときに発生する超短パルス光で、超短パルス超短波長光源として注目を集めている。また、高次高調波の波長は、照射するレーザー光の波長の、整数分の一の短波長となることが判っており、発生する短波長光の波長の制御が可能となっている。また、原子、分子の運動の時間スケールはピコ秒からフェムト秒(電子運動ではフェムト秒からアト秒)とされているが、これらの運動は高次高調波による短波長光を利用することで捉えることが可能である。

本研究では、モデル化したクーロンポテンシャルに高強度短パルスレーザーを照射し、発生した高次高調波について理論的に解析を行った。さらに、レーザーパラメータを変化させ高次高調波の波長の選択的制御を試みた。

[理論]

系のハミルトニアン H_0 は、運動エネルギー T とポテンシャルエネルギー V の和 $H_0 = T + V$ で表される。今回使用するポテンシャルはソフト化した遮へいクーロンポテンシャルであるが、その固有状態は FGH (Fourier Grid Hamiltonian) 法[1]で求めた。

外場と電子の相互作用 W は、 $W = -\mu E$ として与えられ、 μ は双極子モーメント、 E は外場である。外場を考慮したハミルトニアンを $H = H_0 + W = T + V + W$ とすると、時間依存のシュレディンガー方程式は、

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = H |\Psi(t)\rangle = (T + V + W) |\Psi(t)\rangle$$

と書ける。この方程式の解は、時間発展演算子 $U(\Delta t)$ を用いて、 $|\Psi(\Delta t)\rangle = U(\Delta t) |\Psi(0)\rangle$ と書ける。ここで、 $|\Psi(\Delta t)\rangle, |\Psi(0)\rangle$ はそれぞれ微小時間後の波束と初期波束である。時間発展演算子 $U(\Delta t)$ は、

$$U(\Delta t) \cong e^{-i\frac{H}{\hbar}\Delta t} = e^{-i\frac{V+W}{2\hbar}\Delta t} \cdot e^{-i\frac{T}{\hbar}\Delta t} \cdot e^{-i\frac{V+W}{2\hbar}\Delta t} + O\left((\Delta t)^3\right)$$

と近似する。この近似方法は、SOM (Split Operator Method) [2] と呼ばれ、ノルムを保存する微小時間発展であるため、時間依存する相互作用等の複雑なハミルトニアンを精度よく取り扱うことが出来る。

高次高調波のスペクトル解析は、加速度の期待値の時間変化 $A(t)$ をフーリエ変換した量 $A(\omega)$ で評価した。

$$A(t) = \left\langle \Psi(t) \left| -\frac{\partial V(x)}{\partial x} + E(t) \right| \Psi(t) \right\rangle \quad A(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int e^{-i\omega t} \cdot A(t) dt$$

ここで、 $\Psi(t)$ は波束、 $V(x)$ はポテンシャル、 $E(t)$ は外場である。

[シミュレーション]

本研究では、以下の外場（パルスレーザー）を使用することで高次高調波の制御を行う。

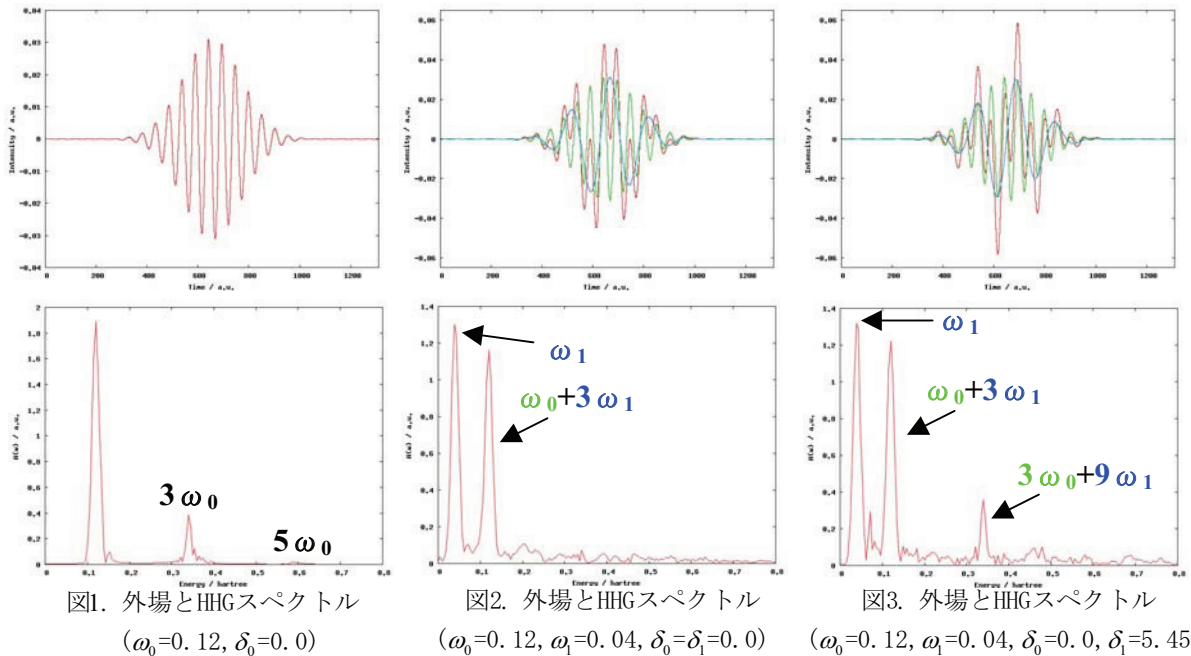
$$(1) E(t) = E_0 \sin(\omega_0 t + \delta_0) \exp\left[-\left(\frac{t-t_0}{\sigma_0}\right)^2\right]$$

E_0 : 電場強度 ω_0 : 振動数 δ_0 : 位相
 t_0 : パルスの中心 σ_0 : パルス幅

高調波の制御において最も注目すべきレーザーパラメータは ω_0 である。発生する高調波の振動数が、照射するパルスレーザーのパラメータである ω_0 の奇数倍となることが判っていることから、 ω_0 を任意の値に設定することで、高調波の振動数をある程度限定することができる。さらに、 E_0, σ_0 の値を大きくすることで、より高い次数の高調波を発生させることができることが分かった。図1は $\omega_0=0.12/a.u.$ で計算した結果である。図1より、 ω_0 の奇数倍の振動数の高調波が発生しているのを確認できる。次に、特定の振動数の高調波を選択的に発生させることを試みるため、2つの外場を使用した。(2)式のように2つの外場を照射することで、同時に2種類の高調波を発生させる経路が存在し、互いの干渉効果による選択的な高次高調波発生シミュレーションを試みた。

$$(2) E(t) = E_0 \sin(\omega_0 t + \delta_0) \exp\left[-\left(\frac{t-t_0}{\sigma_0}\right)^2\right] + E_1 \sin(\omega_1 t + \delta_1) \exp\left[-\left(\frac{t-t_1}{\sigma_1}\right)^2\right]$$

図2,3は2つの外場を照射したときの外場とHHGスペクトルである。図2では ω_1 と $\omega_0, 3\omega_1$ のところでのみ高調波が発生しているのに対し、図3では $3\omega_0, 9\omega_1$ のところでも発生している。これらのピークは、単一レーザー照射によるHHGスペクトルを比較することで、2つの外場を使うことによる選択的な高調波発生制御を解析する。より詳細な研究結果は当日報告する。



[参考文献]

[1] C.Clay Marston and Gabriel G. Balint-Kurti, J.Chem.Phys.,91,3571-3576,(1989)
 [2] M.D.Feit and J.J.A.Felck, J. Chem.Phys., 78,301-308(1983)