

高次高調波発生における電子相関効果

(東大院・理) ○鈴木 真徳, 加藤 毅, 山内 薫

【序】 原子・分子が強いレーザー場 (波長 $\sim 800\text{nm}$ 、強度 $\geq 10^{13}\text{W/cm}^2$) と相互作用すると高次高調波が発生する。この過程については、3段階モデル (Three Step Model; TSM) などの1電子描像 [1,2] で説明されることが多い。ところが、多くの場合、高次高調波の発生には、媒質として希ガスなどの多電子系が用いられるため、電子相関の効果を考慮する必要があると考えられる [3,4]。

本研究では、高次高調波の発生における電子相関の役割を議論するために、1次元2電子モデルを用いて、電子相関を取り入れた場合と取り入れない場合のそれぞれについて、高次高調波のスペクトルを計算し、比較した。

【理論・計算方法】 高次高調波のスペクトル (1) は、(2) の様に電気双極子モーメントの期待値 (3) をフーリエ変換することによって得られる [5]。

$$D(\omega) = |d(\omega)|^2 \quad (1)$$

$$d(\omega) = \int_{t_i}^{t_f} \langle d(t) \rangle \exp(-i\omega t) dt \quad (2)$$

$$\langle d(t) \rangle = \langle \Psi(t) | d | \Psi(t) \rangle \quad (3)$$

本研究では、(3) を求めるための波動関数として、電子相関を考慮した厳密な波動関数と、電子相関を部分的にしか考慮していない Hartree-Fock (HF) 波動関数を、それぞれ外場中で時間発展させたものを用いた。

厳密な波動関数は、原子単位で表した電子ハミルトニアン (4) を用いて、緩和法 [6] により求めた。

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \sum_i \frac{\partial^2}{\partial x_i^2} - \sum_i \frac{Z}{\sqrt{x_i^2 + a}} + \frac{1}{\sqrt{(x_2 - x_1)^2 + a}} \quad (4)$$

ここで、 a はポテンシャルの発散を防ぐためのソフト化パラメーターであり、本研究では $a = 1.0$ とした。 $Z=2$ の場合、厳密な基底状態のエネルギーは $E_{g,\text{exact}} = -2.2385$ a.u.、HF 基底状態のエネルギーは $E_{g,\text{HF}} = -2.2245$ a.u. となる。

強いレーザー場と原子・分子の相互作用は、長波長近似により、電気双極子相互作用として扱うことができるため、外場との相互作用のポテンシャルは、

$$\hat{V}_{\text{ext}} = x_i \cdot E_0(t) \sin(\omega t) \quad (i = 1, 2) \quad (5)$$

のようになる。本研究ではパルスの包絡線 $E_0(t)$ は Gauss 型のものを採用した。

波動関数の時間発展は、(5) の外場ポテンシャルを用いて、4次の Runge-Kutta 法により求めた。時間発展により波束がグリッドの端点で反射されることを防ぐために、mask function を用いた [7]。また、実際に高次高調波スペクトルを求める際には、周波数分解能を上げるために、(2) のフーリエ変換時に Hanning の窓関数を用いている。また、(6) のように領域を分割し、その領域内部で波動関数のノルムを取り、1電子イオン化、2電子イオン化の量を定義した [8]。

束縛状態領域 : $\max(|x_i|) \leq 6$ a.u.

1電子イオン化領域 : $\min(|x_i|) \leq 6$ a.u.; $\max(|x_{j(\neq i)}|) > 6$ a.u.

2電子イオン化領域 : $\min(|x_i|) > 6$ a.u. (6)

【計算結果】 上記の方法で求めた、He 原子 ($Z=2$) の高次高調波のスペクトルを図 1 に示す。

計算時に用いたグリッドの数は 200×200 、グリッド空間は $x \in [-40, 40]$ とした。レーザー場の波長は 800nm 、電場強度は $1.0 \times 10^{14}\text{W/cm}^2$ 、パルスの半値全幅は 28fs 、伝播時間は約 72fs である。図 1 は、横軸に高次高調波の次数を、縦軸に (1) で定義される高次高調波スペクトルの対数を取ったものであり、実線が厳密な基底状態の波動関数を時間発展させて得られたスペクトル (Exact)、

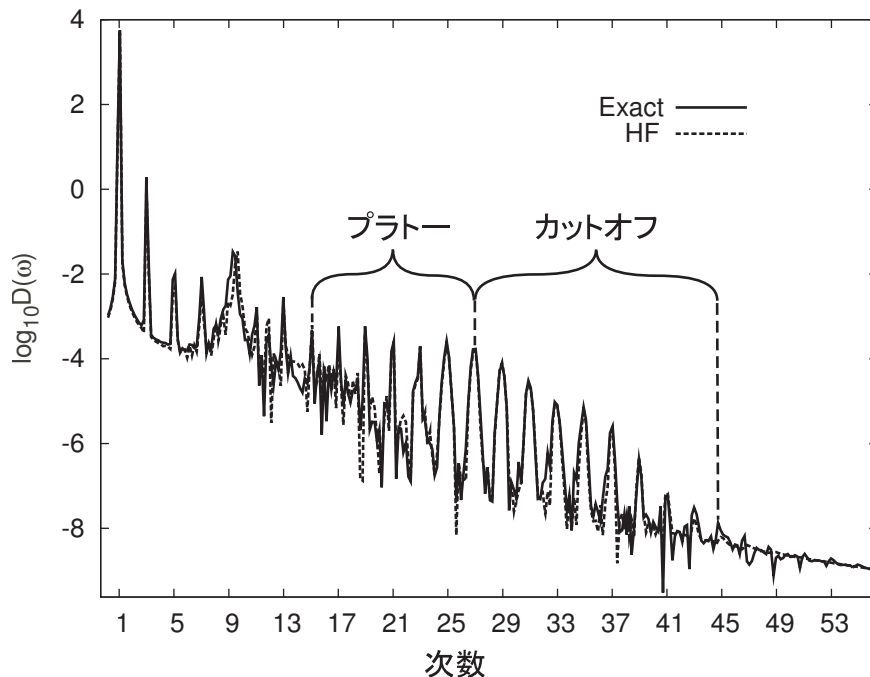


図 1: 高次高調波のスペクトル

破線が HF 波動関数を時間発展させて得られたスペクトル (HF) である。

本計算の結果、カットオフ次数 q は $q_{\text{exact}} = 27$ 、 $q_{\text{HF}} = 27$ となった。3 段階モデルによるカットオフ次数の推定値 q^{TSM} は $q^{\text{TSM}} = (I_p + 3.17U_p)/\omega_{\text{laser}}$ で求めることができる。ここで、 I_p はイオン化ポテンシャル、 U_p はポンデラモーティブエネルギーである。本計算では $I_{p,\text{exact}} = 0.755 \text{ a.u.}$ 、 $I_{p,\text{HF}} = 0.750 \text{ a.u.}$ 、 $U_p = 0.220 \text{ a.u.}$ 、 $\omega_{\text{laser}} = 0.057 \text{ a.u.}$ となったため、 $q_{\text{exact}}^{\text{TSM}} = 25.4$ 、 $q_{\text{HF}}^{\text{TSM}} = 25.4$ となり、本計算とよく一致している。また、(6) に従い、1 電子イオン化と 2 電子イオン化の比を求めたところ、厳密な波動関数、HF 波動関数共に、最大でも 3×10^{-3} であったため、得られた高次高調波スペクトルはほぼ 1 電子イオン化に由来するものと考えられる。

厳密な計算と HF 計算では、低次の項では高次高調波の強度が少し異なっているが、高次の強度やカットオフ次数は一致している。これは、電場強度が $1.0 \times 10^{14}\text{W/cm}^2$ のパルスでは 2 電子イオン化がほとんど誘起されないこと、および Hartree-Fock 法でもイオン化ポテンシャルが精度良く算出されていることから理解される。すなわち、スペクトルは 1 電子イオン化に由来するため、1 電子描像に基づく Hartree-Fock 法でも、厳密な波動関数に基づく高次高調波スペクトルの強度やカットオフ次数をよく記述できることを示している。

【参考文献】

- [1] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [2] K. C. Kulander et al, Proceedings of the SILAP III Workshop(1993)
- [3] R. Santra, A. Gordon, Phys. Rev. Lett. **96**, 073906 (2006)
- [4] S. Sukiasyan, et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 223002 (2009)
- [5] A. D. Bandrauk, et al., Phys. Rev. A **79**, 023403 (2009)
- [6] R. Kosloff, and H. Tal-Ezer, Chem. Phys. Lett. **127**, 223 (1986)
- [7] J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, Phys. Rev. A **45**, 4998 (1992)
- [8] A. D. Bandrauk, and H. Lu, J. Mod. Opt. **53**, 35 (2006)