

3A10 強レーザー場中の H_2^+ 分子イオンにおけるアト秒電子局在と トンネルイオン化ダイナミクス

(コロラド大 JILA¹, コロラド大物理²) ○竹本 典生¹, Becker Andreas^{1,2}

高強度近赤外レーザー光による原子や分子のイオン化過程に関する従来の研究においては、トンネルイオン化描像が広く受け入れられてきた。レーザー電場の振動周期が電子放出に要する時間にくらべて非常に長いとみなすこの準静的描像にもとづくと、電子放出事象は、レーザーの半周期に一度、電場強度が最大となる時点に集中することが予測される。特に、最近の超短パルスレーザー技術の進歩にともない、 Ne^+ の励起状態からのイオン化に関して、このような描像を支持する実験結果が得られている [1]。

これに対し、私たちは、時間依存シュレディンガー方程式 (time-dependent Schrödinger equation: TDSE) の数値解から、 H_2^+ 分子イオンにおいては、レーザーの半周期内に電子放出確率の極大が多数回ありうること、そして、これら多数回の電子放出を引き起こす要因は、電子密度が二つの原子核のうち的一方に、アト秒の時間スケールで動的に局在化するためであることを見出した。さらに、2準位モデルの強電場極限からの摂動解析にもとづいて、電子局在のタイミングをレーザー場のベクトルポテンシャルから予測する関係式を導いた。

図1に、 H_2^+ に関する TDSE のシミュレーション結果と、2準位モデルによる解析結果をまとめる。レーザー光は波長 1064nm、強度 6×10^{13} W/cm² の直線偏光であるとした。また、ベクトルポテンシャルの包絡関数の半値全幅はキャリア振動の 5 周期であるとした。図 1(a)は、レーザー光の電場とベクトルポテンシャルの時間変化を表す。図1(a-d)には、パルスピークを中心とする 1 周期の時間領域のみを示している。

TDSE シミュレーションにおいては、 H_2^+ 分子は二つの陽子を結ぶ分子軸がレーザー電場の偏光方向に平行であり、電子はこの偏光方向にのみ運動できるとする一次元モデルを用いた。図 1(d)は、この1次元モデルにおいて、核間距離 R を 7 a.u. に固定した場合の電子密度の時間変化を常用対数スケールで表している。この図から、レーザーの半周期内に多数回、電子放出のバーストがあることが示唆される。ここに示された結果に加えて、核間距離を変数とするモデルについても TDSE の数値解を求め、 $6.5 \text{ a.u.} \leq R \leq 7.5 \text{ a.u.}$ の条件のもとでの電子密度の時間発展を観察したところ、同様に半周期内に多数回、電子波束が放出される様子が確認された。したがって、このような電子放出の特徴を生み出す本質的な要因は、原子核が運動しているかどうかということ以外にあるといえる。

強レーザー光と原子や分子の相互作用においては、一度放出された電子がレーザー電場の交番にともなって親イオンのもとへ揺り戻され、原子核と再衝突することによって、高次高調波発生や高次超閾イオン化などの特異な現象を引き起こすことが多い。そこで、上述の多数回バーストに対する再衝突の影響を検証するために、原子核付近から放出された電子波束を再衝突が起こる前に吸収しながら、電子密度の時間発展を求めた。この計算においては、二つの原子核の重心から測って 6 a.u. から 10 a.u. の位置にかけて、波動関数に $\cos^{1/2}$ 型のマスク係数を乗じ、波束を吸収した。この結果を図 1(c)に示す。この図から、原子核付近に束縛されている電子密度が、レーザーの半周期に 2回、ポテンシャルエネルギーの低い方の原子核に過渡的に局在化していることがわかる。そして、これらの局在化が図 1(d)中の 1-4 の数字で示されたイオン化バーストを引き起こしていることがわかる。

多数回バースト現象が束縛電子の局在化に起因するならば、束縛電子の運動を解析することによって、バーストの回数やその時刻などを予測することができるはずである。とくに、 H_2^+ 分子イオンの場合には、電荷共鳴によって、電子基底状態 ($|g\rangle$) は第一電子励起状態 ($|u\rangle$) とほぼ排他的に結合す

ることが知られている。そこで、これら2準位からなるモデルを用いて、レーザー場と相互作用する束縛電子の運動を解析した。このモデルの二つの独立な Floquet 解は、レーザー電場による二つの準位間の結合が非常に強い極限からの摂動展開によって求めることができる [2-4]。私たちは、一般解をこれらの Floquet 解の重ね合わせとして表現し、それぞれの原子核上に局在化した状態

$|L\rangle = (|g\rangle + |u\rangle)/\sqrt{2}$, $|R\rangle = (|g\rangle - |u\rangle)/\sqrt{2}$ の占有率 $|\langle L|\psi\rangle|^2$, $|\langle R|\psi\rangle|^2$ の時間変化を表す閉じた表式を導いた。これらの占有率を図 1(b)に示す。さらに、この表式から、一方の原子核上に電子が最も局在化する時刻が、 $A(t_n) = \tilde{A} - (n\pi - \chi)/(2d_{gu})$ という条件をみたす $\{t_n\}$ によって与えられることを見出した。ここで $A(t)$ および \tilde{A} は、それぞれベクトルポテンシャルとその時間平均であり、 n は整数、 χ は二つの Floquet 解の重ね合わせ係数によって決まる角度、 d_{gu} は状態 $|g\rangle$ と $|u\rangle$ の間の遷移双極子行列要素の絶対値である。図 1(a,b)の格子線は、 $\{t_n\}$ と $\{A(t_n)\}$ を表す。図 1(c)にみられた電子局在は、図 1(b)の2準位モデルによってよく再現されており、したがって、イオン化バーストの時刻が簡潔な解析的モデルから予測できると結論づけることができる。

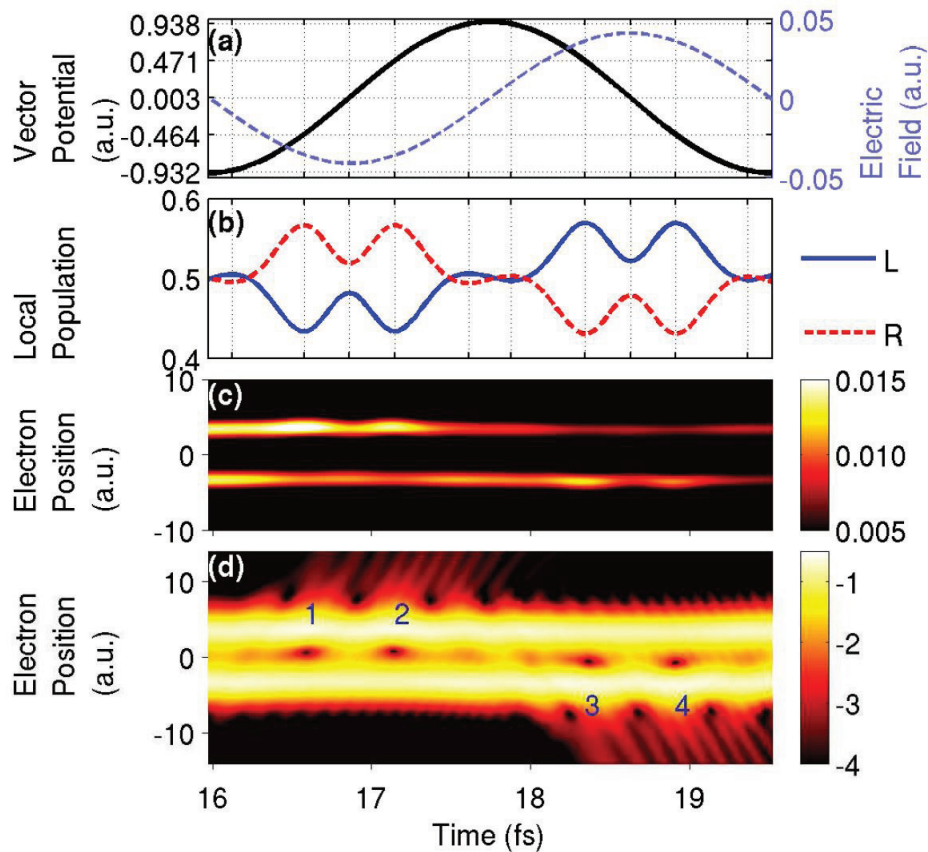


図 1. H_2^+ 分子イオンに対する、1次元モデルと2準位モデルによる計算結果。(a)ベクトルポテンシャルと電場の時間変化。(b)2準位モデルによって計算された局在確率。(c)マスク関数をかけた1次元モデルによって計算された電子密度。(d)1次元モデルによる電子密度。

参考文献

1. M. Uiberacker, *et al.*, Nature **446**, 627 (2007)
2. M.Yu. Ivanov and P.B. Corkum, Phys. Rev. A **48**, 580 (1993)
3. M.Yu. Ivanov, P.B. Corkum, and P. Dietrich, Laser Phys. **3**, 375 (1993)
4. A. Santana, J.M. Gomez Llorente and V. Delgado, J. Phys. B **34**, 2371 (2001)