

## 球対称分子における多光子吸収過程の偏光依存性

(東北大院・理) ○稲田 裕允, 菅野 学, 河野 裕彦

Laser-polarization effects on multiphoton absorption of molecules  
with spherical symmetry

(Graduate School of Science, Tohoku Univ.) ○Nobuyoshi Inada, Manabu Kanno, Hirohiko Kono

**[序]** アト秒からフェムト秒のパルス長を持つ超短レーザーパルスは原子や分子の電子状態を瞬間的に変化させる。超短レーザーパルスを用いて、分子内の価電子の運動や分子振動などの超高速ダイナミクスの制御・観測が試みられている。分子の励起において強度や波長などのレーザー変数はそれぞれ特定の役割を果たす。その中でもレーザーの偏光は分子の回転状態の制御(分子の整列や配向)に利用されてきた。近年、アト秒からフェムト秒の超短レーザーパルスの偏光によって、多原子分子の電子ダイナミクスを制御できるかという問題が注目を集めている。Hertel らは高強度近赤外フェムト秒レーザーパルスによるフラーレン $C_{60}$ の多光子イオン化実験を行った [1]。 $1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  を超える強度のパルスを照射すると、得られたカチオンの収量は飽和し、偏光による違いはほとんど見られなかった。しかし、それ以下の強度では、円偏光パルスで得られる収量が直線偏光パルスの場合と比べておよそ  $2/3$  となった(図 1)。彼らは収量の違いをイオン化の過程で経由する電子励起状態への 2 光子吸収過程の偏光依存性に起因するものと考えた。そして、逆ピラミッド型の 6 準位モデルを立て、摂動論を用いて解析を行った。彼らは全ての電子状態間の遷移モーメントの大きさが等しく、非共鳴を仮定することにより、円偏光と直線偏光の収量比が  $2/3$  になることを説明した。しかし、彼らのモデル解析において導入された仮定の妥当性や摂動論の適用限界など検証すべき点も多い。そこで、本研究では摂動論ではなく時間依存シュレーディンガー方程式を解いて、球対称性を持つ一般の原子や分子の多光子吸収過程を理論的に調べた。

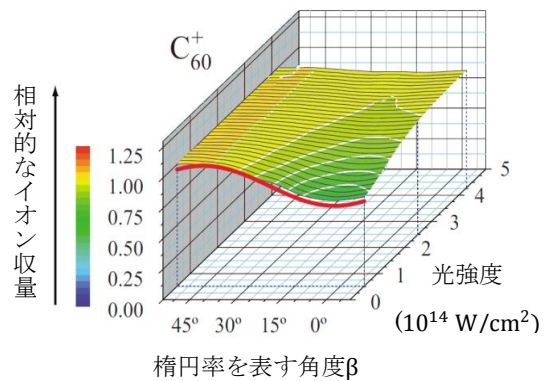


図 1:  $C_{60}^+$  の収量の偏光依存性[1]  
 $\beta = 45^\circ$  が直線偏光、 $\beta = 0^\circ$  が円偏光

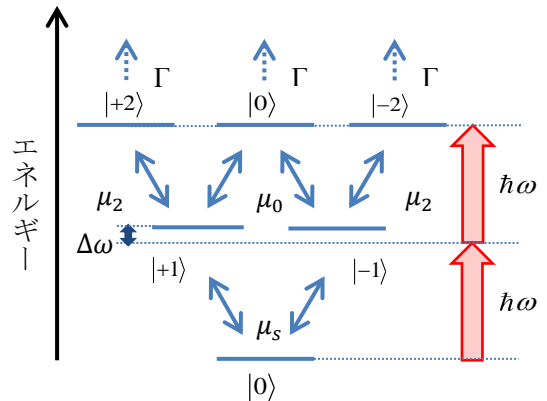


図 2: 6 準位モデルの概略図

$|s\rangle, |0\rangle, |\pm 1\rangle, |\pm 2\rangle$ : 角運動量固有状態

$\mu_s, \mu_2, \mu_0$ : 遷移双極子モーメントの絶対値

$\omega$ : レーザーの中心周波数

$\Delta\omega$ : 1 光子共鳴からのずれ

**[理論]** Hertel らの逆ピラミッド型の 6 準位モデル(図 2)は、角運動量固有状態  $|m\rangle$  ( $m$ : 磁気量子数)を基底とすることで任意の偏光による 2 光子吸収過程を記述できる。このモデルを構成する基底状態  $|s\rangle$ 、2 重縮退状態  $|\pm 1\rangle$ 、3 重縮退状態  $|0\rangle$ 、 $|\pm 2\rangle$  の間の許容遷移は遷移の選択則から図 2 のように表せる。 $|0\rangle$  および  $|\pm 2\rangle$  は基底状態  $|s\rangle$  から 2 光子共鳴している。我々はこのモデルに 1 光子共鳴からのずれを表すパラメーター  $\Delta\omega$  を導入することで、 $|\pm 1\rangle$  のエネルギーを可変とした。また、それぞれの角運動量固有状態間の遷移モーメントの大きさをパラメーター  $\mu_s, \mu_0, \mu_2$  によって定め、遷移モーメントベクトルの方向は球面調和関数から決定した。さらに、3 重縮退状態からより高い励起状態への遷移を考慮するため、現象論的な速度定数  $\Gamma$  を導入した。電子波動関数をこの 6 準位で展開したときの展開係数の運動方程式は次式で与えられる。

$$\dot{c}_i(t) = \frac{i}{\hbar} \sum_j c_j(t) e^{i(\omega_i - \omega_j)t} \boldsymbol{\mu}_{ij} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}(t) - \frac{\Gamma}{2} c_i(t)$$

$\{c_i(t)\}$  は角運動量固有状態の展開係数、 $\{\omega_i\}$  は固有角振動数、 $\boldsymbol{\varepsilon}(t)$  はレーザー電場である。この運動方程式を数値的に解き、各準位の分布の時間変化を求めた。

**[結果と考察]** 非共鳴条件の例として  $|\pm 1\rangle$  が  $|0\rangle$ 、 $|\pm 2\rangle$  と縮退する場合の  $|0\rangle$  と  $|\pm 2\rangle$  の分布の和を図 3 にプロットした。Hertel らの仮定と同じく遷移モーメントの大きさが全て等しい場合、分布の時間変化を直線でフィッティングして円偏光と直線偏光の遷移速度の比を求めるとおよそ 2/3 になった。これは摂動論ではなく時間依存シュレーディンガー方程式に基づく動力学計算においても、Hertel らと同様の仮定を導入すると、直線偏光と円偏光の収量比を説明できることを示している。また、水素原子の遷移モーメントを用いると、遷移速度の比はおよそ 3/2 になった。 $\Delta\omega$  を変化させて、共鳴条件やこの他の非共鳴条件にしてもこれらの結果はほとんど変わらなかった。以上の議論から、球対称な系における 2 光子吸収過程の偏光依存性は  $\Delta\omega$  に依らず、収量比を決定する主要な因子は遷移モーメントの大きさであることがわかった。

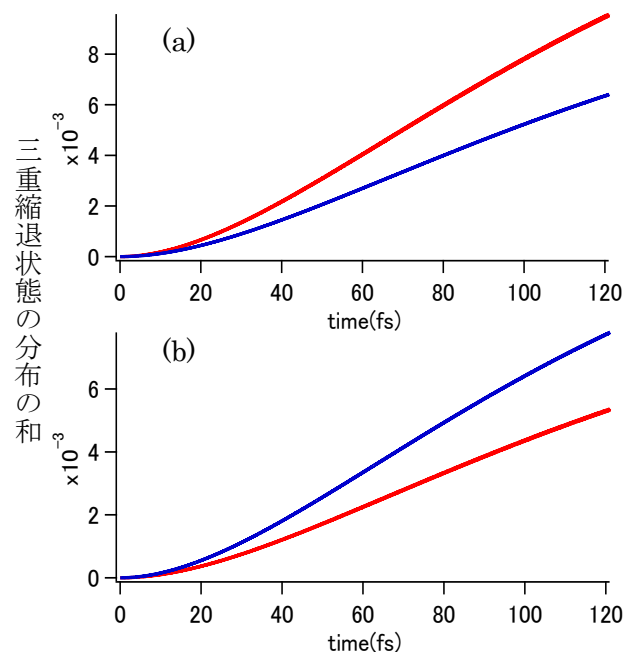


図 3：非共鳴条件における 3 重縮退状態の分布の和。(a) 遷移モーメントの大きさが全て等しい場合、(b) 水素原子の遷移モーメントを用いた場合 ( $\mu_s : \mu_0 : \mu_2 \approx 0.75 : 1.23 : 3.00$ )。光強度:  $8.8 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>、 $\Gamma = 2.07 \times 10^{-2}$  fs<sup>-1</sup>、光子のエネルギー: 12.1 eV、赤: 直線偏光、青: 円偏光

[1] I. V. Hertel et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 023003 (2009); I. Shchatsinin et al., Phys. Rev. A **79**, 053414 (2009).