3A12

原子・分子の多光子吸収過程の偏光依存性
—球対称モデルに基づく動力学的解析—

（東北大院理）　稲田 裕允, 菅野 学, 河野 裕彦

Laser-polarization effects on atomic/molecular multiphoton excitation: Dynamical analysis within a spherical model

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

【序】　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を利用して、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い、1.0×10^{14} W/cm^2 以下の光強度では、円偏光パルスで生成するカチオンの収量が直線偏光パルスの場合と比べておよそ 2/3 となることを見出した[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と考えた。そして、1 つの電子が光からエネルギーを獲得していく単一活性電子モデルに基づき、光の進行方向を量子化軸とした方位量子数 l と磁気量子数 m で指定される角運動量固有状態$|l,m\rangle$を基底とし、任意の偏光における N 光子吸収過程を記述できる逆ピラミッド型$(N+1)(N+2)/2$ 準位モデルを立てた（図 1 参照）。Hertel らは摂動論の枠内で、(i)非共鳴 N 光子吸収、(ii)全ての角運動量固有状態間の遷移モーメントの大きさが等しい、という 2 つの条件を仮定して遷移確率を求め、2 光子吸収（$N = 2$）の場合にイオン収量比が 2/3 になることを再現した。しかし、彼らのモデル解析には、摂動論の適用限界や導入された仮定の妥当性など検証すべき点も多い。

本研究の目的は、非摂動論的な領域や共鳴条件も含めて原子や球対称分子の多光子吸収過程の偏光依存性を調べ、その主要因子を明らかにすることである。そのために Hertel らの逆ピラミッド型モデルを一般化し、時間依存 Schrödinger 方程式を解く動力学的な理論計算を行った。

【モデルの一般化】　2 光子吸収（$N = 2$）の場合、Hertel らの逆ピラミッド型 6 準位モデルでは基底状態$|0,0\rangle$と $l = 2$ の状態（$|2,0\rangle$および$|2,\pm2\rangle$）が 2 光子共鳴する。我々は図 1 で示すように、1 光子共鳴からのずれを表すパラメーター $\Delta\omega$ を導入し、中間状態$|1,\pm1\rangle$のエネルギーを可変とした。また、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として μ_1, μ_2, μ_2' とおいた。更に、$l = 2$ の状態からより高い励起状態への遷移を考慮するために現象論的な速度定数 Γ を導入した。

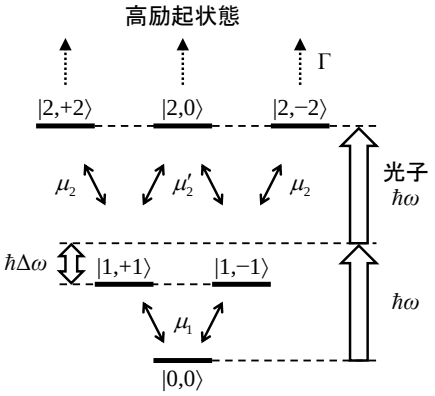

図 1　一般化された逆ピラミッド型 6 準位モデルの概略図。それぞれの記号の意味は本文中に記載。

【イオン化の評価方法と計算条件】　系の電子波動関数を図 1 の 6 準位で展開したときの展開係数の運動方程式を数値的に解いた。全分布の減衰を指数関数でフィッティングしてイオン化速度を求め、その偏光依存性を解析した。レーザー電場としてイオン化速度を定義し易い連続波を仮定し、光子エネルギーは 6.0 eV、光強度は 3.5×10^{10} W/cm^2 と設定した。

【結果と考察】　図 2a は全ての遷移モーメントの大きさが等しい場合（$\mu_1 = \mu_2 = \mu_2' = 1.27$ D）のイオン化速度比（円偏光/直線偏光）を速度定数 Γ に対してプロットしたものである。共鳴（$\Delta\omega = 0$）と非共鳴（$\Delta\omega = 3.0$ eV）のどちらの条件でも図2に示したΓの全領域でイオン化速度比がほぼ 2/3 になった。各準位の分布の時間変化を詳しく解析したところ、l = 2 の状態への遷移速度が小さく、摂動論的に扱えることを見出した。そこで、Fermi の黄金律を適用すると $l = 2$ の状態への遷移速度比（円偏光/直線偏光）は

$$\frac{\mu_2^2}{\mu_2^2/2 + \mu_2'^2} \tag{1}$$

と導かれ、$\mu_2 = \mu_2'$ と仮定すれば 2/3 が得られる。l = 2 の状態への遷移が摂動論的に扱えるとき、その遷移速度とイオン化速度は比例するとみなせる。これらのことから、Hertel らが考えたようにイオン収量比 2/3 を説明するには摂動論の成立が必要であるが、その適用範囲は非共鳴条件に限らず、共鳴条件にも及ぶ（つまり詳細なエネルギー構造に依存しない）ことが明らかになった。更に、(1)式から Hertel らの仮定(ii)に関しても条件を緩和でき、全ての状態間ではなく、l が同じ状態への遷移モーメントの大きさが等しければイオン収量比 2/3 を説明できる。2 光子吸収ならば $\mu_1 = \mu_2 = \mu_2'$ ではなく、$\mu_2 = \mu_2'$ であれば良い。摂動論の枠内では、遷移モーメントの大きさがイオン化速度の偏光依存性を決める主要な因子である。

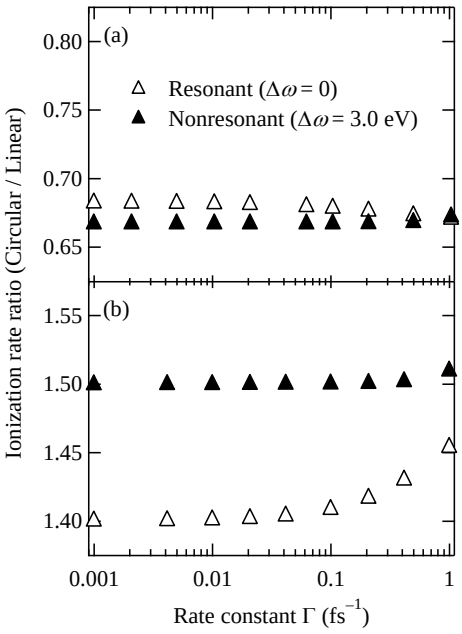

図 2　(a)全ての遷移モーメントの大きさが等しい場合（1.27 D）と(b)水素原子 H の遷移モーメントを用いた場合（$\mu_1 : \mu_2 : \mu_2' = 0.25 : 1 : 0.41$）のイオン化速度比。

図 2b に示したのは水素原子 H の遷移モーメントを用いた場合のイオン化速度比である。これは図 1 の 6 準位と水素原子の 1s, $2p_{\pm1}$, $3d_0$, $3d_{\pm2}$ 軌道を対応させており、遷移モーメントの大きさは相対的に $\mu_1 : \mu_2 : \mu_2' = 0.25 : 1 : 0.41$ となる。共鳴と非共鳴のどちらの条件でもイオン化速度比は 2/3 にならず、(1)式から予測される値 1.5 に近い。実際の水素原子では、遷移の選択則（$\Delta l = \pm1, \Delta m = \pm1$）から 3s 軌道への遷移が許容であり、$2p_{\pm1} \leftrightarrow 3s$ 間の遷移モーメントの大きさを μ_2'' とおくと $\mu_2 : \mu_2' : \mu_2'' = 1 : 0.41 : 0.18$ である。3s 軌道を含めた 7 準位で電子波動関数を展開すると、イオン化速度比は図 2b の値より 0.06 程度減少してわずかながら 2/3 に近付いた。故に、逆ピラミッド型 6 準位モデルにおいて $\mu_2 = \mu_2'$ と仮定することは、$|2,0\rangle$ を $3d_0$ および 3s 軌道に対応させているとみなせる。表 1 より原子の電子数が増えると 2p↔3d 間に対する 2p↔3s 間の振動子強度比も増加する。この事実から、多電子系では $2p_{\pm1} \leftrightarrow 3d_0$ 間と $2p_{\pm1} \leftrightarrow 3s$ 間の遷移を合わせた実効的な遷移モーメントの大きさが $2p_{\pm1} \leftrightarrow 3d_{\pm2}$ 間の遷移モーメントの大きさに近付くと推定され、逆ピラミッド型モデルにおいて l が同じ状態への遷移モーメントの大きさを等しいとする仮定が妥当になると考えられる。

表 1　少数電子原子の振動子強度比 (2p↔3s)/(2p↔3d)の実測値[2]。

原子	振動子強度比
水素 H	0.02
ヘリウム He	0.07
リチウム Li	0.17

[1] I. V. Hertel et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 023003 (2009); I. Shchatsinin et al., Phys. Rev. A **79**, 053414 (2009).
[2] W. L. Wiese et al., *Atomic Transition Probabilities* (U.S. Department of Commerce, 1966), vol. I.