

高強度レーザー中の非断熱電子波束の対称性の破れについて

京大福井センター
○松岡貴英, 高塚和夫

Symmetry Breaking of Non-Adiabatic Electron Wave Packets in Intense-Laser Fields

○Takahide Matsuoka, Kazuo Takatsuka
FIFC, Kyoto University, Japan

【Abstract】 The availability of the extreme ultra-violet laser pulses from the high-order harmonic generations allows measurements and controls of molecular states evolving in atto-second timescale. The high-order harmonic generation, above threshold ionization, and Auger decay in intense laser field have been studied within the framework of non-adiabatic electron dynamics. Non-stationary molecular states may be expanded as superposition of the electronic states driving the nuclei in symmetry-breaking direction due to non-adiabatic Lorentz-like force. The pseudo-force can be attributed to arbitrariness of the direction, on which the force matrix is projected, for degenerate states. With the complex natural orbital based method, the time-evolution of the molecular state can be tracked and thus the method allows to predict the real-time observables of the target system. The signature of the symmetry-breaking force in molecular system driven by intense laser field has been studied.

【序】 高次高調波発生過程による超短パルスの実現によりアト秒スケールの分子状態の観測と制御が可能となった。たとえば X 線パルス照射によって内殻空孔電子配置が寄与する場合には電子相関による自動イオン化カスケードと核のクーロン爆発が発生し、電離及び解離微分断面積の実時間観測から分子状態を知るためには、電子の動的相関と核と外場による非断熱相互作用をあらわに取り入れた動力学計算が必要である。これまで我々は複素自然軌道を用いることで電離過程[1]および高励起状態における電子相関を考慮し、高励起状態における非断熱電子波束の計算を可能とした。本講演では、断熱状態が密集する高励起状態において核と外場の非断熱相互作用が電子波束の対称性へ及ぼす影響に着目し、電子波束の対称性の破れがいかに関測されるか報告する。

【理論】 電子波束 $\Psi(t) = \sum_I^{N_H} C_I(t) \Phi_I$ は核の運動量 P_k と外場のベクトルポテンシャル A_k の非断熱相互作用を含んだ結合方程式によって時間発展する。

$$i\hbar \partial_t C_I = \sum_J \left[H_{IJ}^{(el)} - i\hbar \sum_k^{3N_n} \left(P_k - \frac{Z_k e}{c} A_k \right) X_{IJ}^k - \sum_k^{3N_n} \frac{\hbar^2}{4M_k} (Y_{IJ}^k + Y_{IJ}^{k*}) \right] C_J,$$

X_{IJ} と Y_{IJ} はそれぞれ 1 次と 2 次の核座標微分結合項である。Semiclassical Ehrenfest theory では核は force matrix の期待値の、path-branching 法では force matrix の固有値の運動方程式に従う。

$$F_{IJ}^k = -\partial_{R_k} H_{IJ}^{(el)} - \sum_K^{N_H} \left(X_{IK}^k H_{KJ}^{(el)} - H_{IK}^{(el)} X_{KJ}^k \right) + i\hbar \sum_l^{3N_n} \dot{R}_l (\partial_{R_k} X_{IJ}^l - \partial_{R_l} X_{IJ}^k) + \left[-\frac{Z_k e}{c} \partial_t A_k + \frac{e}{c} \sum_l^{3N_n} \dot{R}_l (Z_l \partial_{R_k} A_l - Z_k \partial_{R_l} A_k) \right] \delta_{IJ}.$$

第 3 項の Lorentz-like force が核の速度と垂直に見かけ上の力として働き、対称性の破

れを誘起する[2]. 特に path へ分岐する際には結合方程式と運動方向の force matrix $\sum_k F_{IJ}^k \dot{R}_k$ の交差項がゼロであることが要請され, 結合方程式の固有状態個々の force 期待値から Lorentz-like force の働き方を調べることができる. 特に縮重している状態は断熱状態の円錐交差と同様に $\mathbf{g} - \mathbf{h}$ 平面を定義できる.

$$g^k = \frac{1}{2} \left(\sum_{IJ}^{N_H} C_I^{(1)*} F_{IJ}^k C_J^{(1)} - \sum_{IJ}^{N_H} C_I^{(2)*} F_{IJ}^k C_J^{(2)} \right), \quad \forall k \in [1, 3N_n],$$

$$h^k = \sum_{IJ}^{N_H} C_I^{(1)*} F_{IJ}^k C_J^{(2)}, \quad \forall k \in [1, 3N_n].$$

核が seam に沿って運動している場合に \mathbf{g} と \mathbf{h} は任意に入れ替えることが可能で対称性が破れる方向を \mathbf{g} に選ぶことが可能である.

【結果】 基底状態の H_2O に波長 $\lambda = 800 \text{ nm}$ 強度 $I = 225 \text{ TW/cm}^2$ の 3-cycle パルスを照射した系を計算した. レーザーの分極方向は C_2 軸に, 核の初期運動は対称伸縮振動モード方向に設定した. 外場によって電子波束は多くの状態へ広く分布し, レーザーのピーク ($t = 5 \text{ fs}$) において 550 eV 程度離れた状態へも分布を示す (図 1a). これは電子と親イオンの再衝突による内殻空孔状態への励起を示している. 図 2 の HF 軌道基底の一電子密度行列の $1a_1$ 軌道対角成分はレーザーピークにおいて減少する.

各状態に働く力は変角振動モード成分 (図 1b) と対称伸縮振動 (図 1c) モード成分が主であるが, レーザーピーク近傍以降は, 反対称伸縮振動モード成分が非ゼロである状態が出現する (図 1d). Lorentz-like force による見かけ上の力は相殺するように対称性が破れる方向に働くことがわかる. これは密集する多くの状態に波束が分布し, それらの状態の Lorentz-like force が反対称伸縮振動モード方向の力としてあらわれていることによる. 対称性の破れの path-branching の詳細は講演にて発表する.

【参考文献】

- [1] T. Matsuoka and K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **146**, 134114 (2017).
 [2] K. Takatsuka, *J. Chem. Phys.* **146**, 084312 (2017).

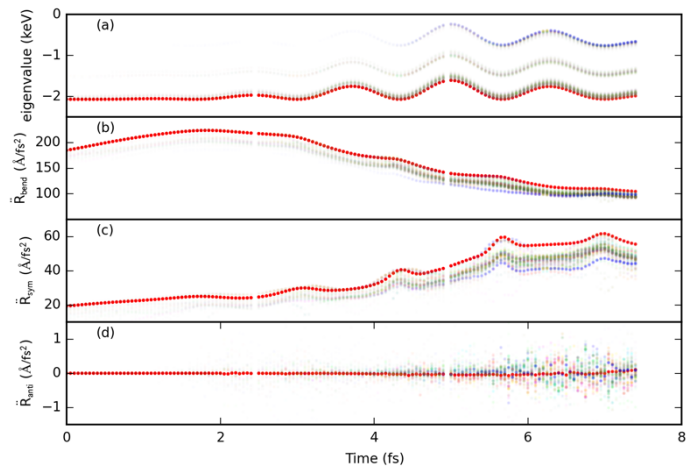


Figure 1. (a)結合方程式の固有値. 各固有状態の(b)変角振動モードと(c)対象伸縮振動モードと(d)反対称伸縮振動モード方向の加速度. 濃淡は各固有状態と電子波束の重なりを表す.

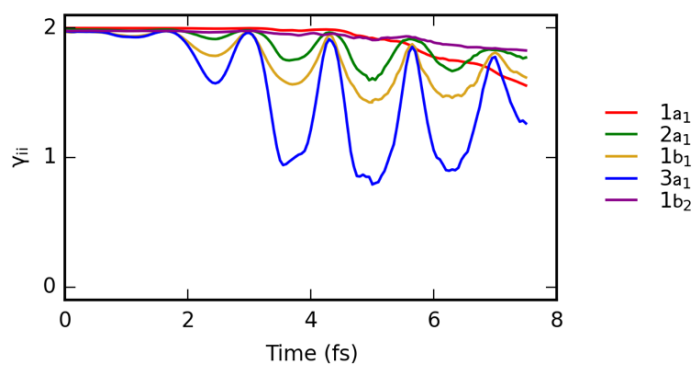


Figure 2. HF 軌道基底の密度行列成分.