

金属クラスターの非線形光学応答と多電子ダイナミクス

(北大院理、筑波大物)○信定克幸、矢花一浩

【序】

摂動論的取り扱いでは記述できない程度の強いレーザー光が、金属クラスターのような多電子系に照射されると、高次高調波発生や多重イオン化等の興味深い現象を引き起こす。このような現象は、基礎理学的な興味だけではなく応用科学上の興味の対象にもなっており、盛んに研究されている。これらの現象は、本質的に多電子ダイナミクスにより引き起こされているものであり、その詳細な解明が必要不可欠である。例えば最近の実験では、原子核に引き付けられている電子を直接揺り動かすような強力なレーザー光が出現し、超高速時間分光の技術と組み合わせることにより、直接的に多電子ダイナミクスを観測する研究が行われるようになってきた。一方、多電子ダイナミクスの理論計算は、1, 2電子系程度の非常に小さな分子を対象とした研究でさえ十分に行われていないのが現状である。これは、多電子ダイナミクスを理論的に解析する場合、多電子系における最大の問題である電子相関を正しく取り込みながら、かつ電子のダイナミクス（時間発展）を解くことが容易ではないことに起因する。最近、この問題を解決するための一つの手段として、時間依存密度汎関数理論(TDDFT)に基づく理論計算が盛んに研究されている。TDDFTは電子相関を一定の近似レベルで記述しながら電子の時間発展を解くことが出来るため、多電子ダイナミクス解明のための方法論開発の基礎を与えうる可能性を備えている。

そこで本研究では、数個程度の原子から構成される金・銀クラスターを研究対象として選び、比較的強いレーザー光($\sim 10^{10}$ W/cm²)を照射したときの非線形電子ダイナミクス(高次高調波発生)の計算をTDDFTに基づいて行った。

【理論計算】

実際の計算方法としては、三次元空間を多数の格子点に区切り、その格子点上において時間依存 Kohn-Sham 方程式を局所密度近似のレベルで時間発展させる方法を採用した。内殻電子は、今回の電子ダイナミクスには全く関与していないので、金・銀原子を最外殻s電子と、その一つ内側の軌道のd電子のみから構成されると系と考え、その他の内殻電子の記述は擬ポテンシャルで代用した。従って、一原子当たり11個の電子を考慮に入れた電子ダイナミクスの問題を解くことに帰着する。照射するレーザー光は振動電場、 $E_0 f(t) \sin(\omega t)$ で記述した。ここで E_0 は電場の最大値、 t は時間、 $f(t)$ はレーザー光の形状を現す関数、 ω はレーザー光の振動数を表す。レーザー光の強度は($\sim 10^{10}$ W/cm²)とし、分子に対して全ての方向から照射することを考慮に入れた。ここでは高次高調波発生の機構解明に重きを置いているので、レーザー誘起によるイオン化の抑制と発生する高調波の強度の兼ね合いを考えた上、レーザー光強度を決定した(脚注参照)。今回の数値計算の時間領域はせいぜい数十フェムト秒以下であり、また金・銀原子の

質量を考慮に入れ、原子核は定常状態の核配置に固定したまま運動しないと近似した。金属クラスターにレーザー光が照射されると電子は激しく振動し、電子密度が時間的に変化する。その結果、時間的に変化する双極子モーメントが発生するが、この双極子モーメントをフーリエ変換（時間→エネルギー）すれば、高次高調波スペクトルを得ることができる。

【結果】

図1は銀二量体に分子軸方向からレーザー光 (1×10^{10} W/cm²、振動数 3.14 eV) を照射したときに発生する高次高調波のスペクトルを表す。線形分子の性質を反映し、入射光振

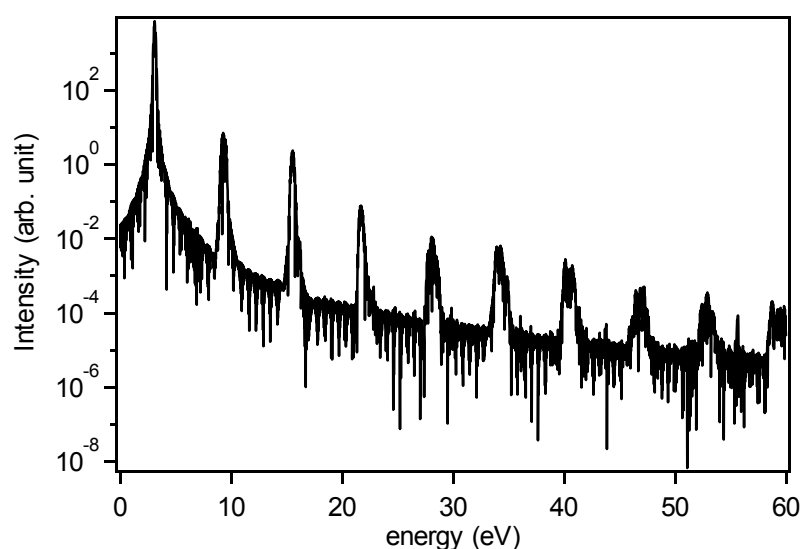


図1 銀二量体の高次高調波スペクトル

動数の奇数倍に対応する高調波が発生していることが分かる。上記したレーザー光の振動数は、銀二量体 $^1\Sigma_u^+$ 励起状態への励起エネルギーに対応しており、励起エネルギーにチューニングされたレーザー光を照射すると効率的に高次高調波が発生することが分かった。これは、古典力学でも見られる振動子の強制振動における共鳴と本質的に同様の現象である。当日の発表では、高次高調波発生レーザー光強度、振動数、照射軸依存性、さらにクラスターのサイズや金・銀原子の相違に対する依存性を明らかにし、レーザー場における多電子ダイナミクスの詳細を議論する予定である。

【注】多重イオン化を起こすほどの強レーザー場中での多電子ダイナミクスについては、白鳥、信定、矢花によるポスターセッションを参照