

レーザー場における金・銀二量体の 多電子ダイナミクス

(北大院理、筑波大物^{*}) ○白鳥和矢、信定克幸、矢花一浩^{*}

【序】

近年、レーザー技術の発展に伴い、強レーザー場 ($\gtrsim 10^{13} \text{ W/cm}^2$) 中における分子の挙動を調べる研究が盛んに行われている。このような強力なレーザー場では、原子核の運動よりも先に電子が激しく揺り動かされるために、多重イオン化や高次高調波発生等の多様な電子ダイナミクスが引き起こされる。従って強力なレーザー場を照射した場合の分子の挙動を解析するためには、多電子ダイナミクスを理解することが必要不可欠である。理論的研究の現状としては水素分子イオン等の小さな分子を対象とした一、二電子系以外の分子の解析はあまり進んでいない。これは多電子系における最も大きな問題である電子相関を正しく取り扱いながら、電子の時間発展を考慮しなければならない事に原因がある。我々はこれらの問題点を克服する一つの手段として時間依存密度汎関数理論に基づく計算機ミュレーションを利用し、強レーザー場中における分子の多電子ダイナミクスを解析した。

計算の対象としては、金及び銀の二量体（二原子分子）を選んだ。金・銀原子は最外殻の s 軌道を 1 個、その内側の d 軌道を 10 個の電子が占有しており、二量体になっても定性的には同じような電子構造をもつ。さらに s 軌道と d 軌道のエネルギー差（固体で言えば s - d バンド間のエネルギー差）が比較的小さいため、強レーザー場における多重イオン化過程では、内側の d 電子も関与し、水素分子イオンなどの一電子系では見られない多電子ダイナミクスの特徴が現れると考えられる。

以上の理由から、我々は多電子ダイナミクスの一例として強レーザー場中における金・銀二量体の多重イオン化現象の解析を行った。

【計算】

近年盛んに研究されている時間依存密度汎関数理論（TDDFT）は、電子相関を一定の近似レベルで記述しながら多電子ダイナミクスを解析することを可能にした非常に有力な方法である。そこで我々は TDDFT に基づいた数値計算法を強レーザー場における金・銀二量体の多重イオン化過程に適用した。実際の計算としては、3 次元計算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（LDA）のレベルで実時間発展させる方法を採用した。金・銀共に最外殻 s 電子と、その 1 つ内側の軌道の d 電子を考慮に入れ、他の内殻電子の記述は擬ポテンシャルで代用した。従って二量体の場合 22 電子系の多電子ダイナミクスの問題に帰着する。今回の数値計算の時

間領域は数十フェムト秒であり、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。

また多重イオン化のような現象では電子が核からかなり離れた領域にも存在するので、計算する空間を十分大きくとらなければならない。これは電子が計算空間の境界に衝突し、非物理的な現象を引き起こす事を避けるためである。しかし実際には十分遠方に飛ばされた電子は原子核近傍には戻って来ず、そのままイオン化すると考えても良い。従って本研究では計算空間を十分広く取り、空間の境界付近まで飛ばされた電子を数値的に消去する方法を用いた。

照射するレーザーは、右上図のような時間に対して振動する電場として記述した。

以上 の方法に基づいて電子波束の時間発展を行い、一定領域（box）の外側に飛び出した電子数を求めた。放出電子数は時間に依存する電子密度 $\rho(\mathbf{r}, t)$ を用いて以下の式により計算される。

$$N_{\text{escape}}(t) = N_{\text{total}} - \int_{\text{box}} \rho(\mathbf{r}, t) d\mathbf{r}$$

ここで定義した放出電子数は電子密度を積分したものであり、一般に整数にはならない。

【結果と考察】

銀二量体に対する多重イオン化のレーザー振動数依存性の結果を右に示す。振動電場を分子軸方向に掛け、そのレーザー強度は 10^{14} W/cm^2 である。放出電子数は照射するレーザーの振動数に対して強い依存性を示していることがわかる。

当日は多重イオン化のレーザー振動数や強度に対する依存性、さらに金と銀での相異について議論する予定である。

