4Pp004 強光子場中における分子のスピン状態が

イオン化に及ぼす影響に関する理論的研究

(東大院理,東大院工) 鈴木 孝宗,河田 功,山下 晃一

【序】

高出力(10¹⁴W/cm²)レーザーパルスは、それによる高精度物質制御の可能性をもたら すものである。高密度パルス光を原子に照射すると、Coulomb ポテンシャルが歪み、電子 がトンネルイオン化する。イオン化した電子は光の電場から多光子分のエネルギーを得て 再び核に戻る。この時、獲得したエネルギーを放出する形で、閾値イオン化 (above-threshold ionization: ATI)や高次高調波発生(high-order harmonic generation: HOHG)といった非線形現象が生じる。

分子の場合は、イオン化確率が平衡核間距離よりも長い核間距離 R_cにおいて最大とな る enhanced ionization という現象が理論、実験双方の研究から見いだされている。この ことは、核の運動に起因する新たな自由度が、分子におけるイオン化ダイナミクスにおい て重要であることを意味している。

しかし、分子におけるスピン状態がイオン化に及ぼす影響に関しては、これまでほとん ど議論されてこなかった。そこで、本研究では核の運動のみならず、スピン状態の違いが 強光子場中におけるイオン化にどのような影響を及ぼすか理論計算によって調べることに した。なお、簡便のため本研究は二電子系において行った。

【計算方法】

本研究は、二電子が分子軸方向(×軸方向と定義)にのみ動き、核は等間隔に固定した 一次元モデルを用いて行った。一次元モデルでは、時間依存 Schrödinger 方程式は原子座 標系(e=h=me=1)において

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(x_1,x_2,t) = \hat{H}\Psi(x_1,x_2,t)$$

と表せる。ここで、Hamiltonian はA · p相互作用を考慮して

$$\hat{H} = \left(\frac{p_1^2}{2} + A(t) \cdot p_1\right) + \left(\frac{p_2^2}{2} + A(t) \cdot p_2\right) + V(x_1, x_2)$$

とした[1]。なおA(t)はベクトルポテンシャルで

$$A(t) = -\int_0^t \varepsilon(t') dt'$$

で与えられる。ここで (t)はレーザー電場である。本研究においては、レーザー電場は 分子軸方向に偏向した直線偏光を想定し、波長 800nm の矩形パルスを用いた。数値計算 は x_1 , x_2 双方向に 512 個のグリッド点を持つ 179.2a.u.のグリッド空間を用いて行った。 時間依存 Schrödinger 方程式は高速 Fourier 変換法により数値的に解いた [2]。核から の Coulomb ポテンシャルが有効である internal zone 中を波動関数が運動し、absorbing zone (この領域では Coulomb ポテンシャルはほぼ 0) に達したら mask function を用い て波動関数を吸収した。このことによりグリッド端における波動関数の反射を防ぐことが できる。時間発展が終了したら internal zone 中に残っている波動関数の絶対値からイオ ン化確率を計算した。

【結果】

H₂および対称型直線状H₃⁺イオンのイ オン化確率の核間距離依存性を図1・2に 示す。H₂と対称型直線状H₃⁺ではイオン 化のスピン依存性が大きく異なる。H₂の 場合、一重項状態では、イオン結合性配置 の形成により平衡核間距離よりも長い核間 距離 5.0a.u.の時にイオン化確率が最大と なるが、三重項状態では、核間距離が伸び るにつれイオン化確率が単調に減少した。 三重項状態では、二電子反発によりイオン 化が進行するので、核間距離増加に伴う基 底状態のエネルギー減少が外部障壁を超え るイオン化を抑制するためである。

一方、対称型直線状H₃⁺イオンの場合は、 スピン状態によらずイオン化確率は似たよ うな挙動を示し、最外核間距離が 9.5a.u. の時にイオン化確率が最大となった。

このように同じ二電子系においても、核 の数の違いによってスピン状態がイオン化 に及ぼす影響が異なるのは非常に興味深い。 これらの結果から、水素分子と対称型直線 状H₃⁺イオンでは enhanced ionization の 機構が異なることがわかり、核およびスピ ンの効果が重要であることが示唆された。 今後は、断熱場状態を用いて、イオン化直 前におけるレベルダイナミクスを調べ、ス ピン状態の影響についてさらなる検討を行 う予定である。



図 1 レーザー強度 1.5×10¹⁴W/cm²の時における H₂のイオン化確率



図 2 レーザー強度 1.0×10¹⁴W/cm²の時における 対称型直線状H₃⁺イオンのイオン化確率

【参考文献】

- [1]R.London: The Quantum Theory of Light 2nd.ed. (clarendon, Oxford, 1983) Chap.5
- [2] M.D.Feit et al, J.Comput.Phys. 47,412(1982)