

3P121 強レーザー場によるイオン化の光電子スペクトルの理論計算

—分子内電子ダイナミクスの効果—

(東北大院理¹・ビーレフェルト大²)

○菅野 学¹, 加藤 毅¹, 河野裕彦¹, F. H. M. Faisal², 藤村勇一¹

【序】 強レーザー場($I > 10^{13} \text{ W/cm}^2$)と相互作用する分子の電子状態は、光の半周期 (~1fs) 以内でも劇的に変化し、それに伴い、トンネルイオン化などの非摂動論的現象が起こる。一般に、トンネルイオン化が起こる前に電子が分子内を移動し、レーザー誘起分子内電子移動の促進と抑制が Enhanced Ionization (平衡核間距離の倍程度の核間距離でトンネルイオン化が促進される現象) を誘起すると考えられている。水素分子の時間依存 Schrödinger 方程式を grid 波束計算法を用いて厳密に解くことにより、分子内電子移動によって Enhanced Ionization が起こることが明らかにされた[1,2]。しかし、一般の多電子系は自由度が多すぎるために、grid 波束計算法を適用することは困難である。これに対し、多電子系のイオン化を容易に扱うことができる理論的手法として、強光子場多体 S 行列理論(IMST)に基づいた Keldysh-Faisal-Reiss (KFR)確率振幅が提案されている[3,4]。しかしながら、従来の IMST による取り扱いでは波束を固定するため、レーザー誘起イオン化において重要な役割を果たす分子内電子移動が考慮されていなかった。我々は、分子内電子ダイナミクスの効果を取り入れるために、電子波束計算法と IMST を融合させた新しい理論的手法を開発した。この手法は多電子系のイオン化確率の評価に有用である。

【理論】 レーザー誘起イオン化の確率振幅の一般式は(1)式で表される。

$$M = -i \int_{-\infty}^{\infty} \langle \psi_f | V_{bind} | \psi(t) \rangle \quad (1)$$

ここで、 ψ_f は終状態、 $\psi(t)$ は時間発展する系の波束 (連続状態と束縛状態から成る)、 V_{bind} は親イオンによる束縛ポテンシャルである。これは、一般的なパルス電場に対しても用いることができる。我々は、正確な波束 $\psi(t)$ を束縛状態のみから成る波束 $\Phi(t)$ で近似し、分子内電子移動の効果を陽に考慮する。 $\Phi(t)$ をガウス関数を基底として表すことにより、多電子系のイオン化の高速かつ定量的な計算が可能になる。分子の電子ダイナミクスは、レーザー電場に追従する時間依存断熱電子状態 $\{|n(t)\rangle\}$ を用いて効率的に解析することができ、例えばイオン化の "doorway state" を同定することができる。時間依存断熱電子状態は、レーザー電場 $\varepsilon(t)$ との相互作用を含んだ場に追従する電子ハミルトニアン $H_{el}(t)$ の固有状態として定義される。波束は時間依存断熱電子状態の線形結合で表され、これにより、強レーザー場中のイオン化における分子内電子ダイナミクスの効果が明確になる。

【検証】 我々はこの新手法を、まず 1 電子系の水素分子イオンに適用し、正確な波束の大部分を占める時間依存断熱電子状態 1 つで $\Phi(t)$ を表してイオン化速度と光電子スペクトルの理論計算を行った。また、grid 電子波束計算法と KFR 確率振幅による計算を行い、これらの結果との比較により、我々の新手法の有用性を検証した。KFR 確率振幅は、(1)式において正確な波束 $\psi(t)$ を位相を除いて始状態 ψ_i に固定するものである。Fig.1 に、振動数

0.06a.u.(760nm)、電場強度 0.1a.u.(3.51×10^{14} W/cm²)の直線偏光定常レーザー光を分子軸方向に照射した場合の、正確な波束 (grid 波束計算法)、基底状態 $|1s\sigma_g\rangle$ と第一励起状態 $|2p\sigma_u\rangle$ の2準位を基底として対角化した時間依存断熱電子状態 $|1\rangle$ (新手法)、基底状態 $|1s\sigma_g\rangle$ (KFR)のイオン化速度を示した。また、Fig2には核間距離 2.0a.u.(1.06 Å)における時間依存断熱電子状態 $|1\rangle$ の光電子スペクトルの角度分布、Fig3にはエネルギー分布を示した。正確な波束と基底状態のイオン化速度には約4桁の差がある。これは、波束を基底状態に固定すると、イオン化の起こり易い励起状態の成分を取り込むことができないためである。これに対し、時間依存断熱電子状態は正確な波束との差を大きく縮めた。これには主に2つの要因が挙げられる。まず、時間依存断熱電子状態は励起状態の成分を正確な波束と同程度含むために波動関数がレーザーの周期に応じて空間的に広がることである。そして、連続状態と時間依存断熱電子状態のエネルギーが共に時間変化してイオン化に要するエネルギーが小さくなる。正確な波束との約2桁の差は、正確な波束が高い時間依存断熱電子状態の成分を含いるためと考えられる。

発表では、この他にパルス電場に対する波束の時間発展などについて議論する。

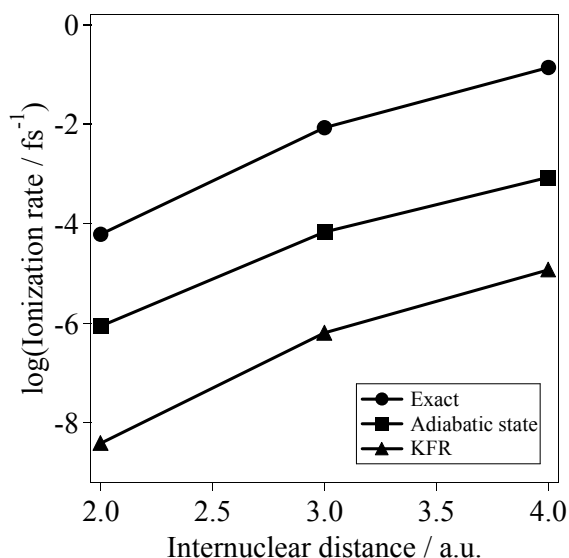


Fig.1 正確な波束、2準位の時間依存断熱電子状態 $|1\rangle$ 、基底状態 $|1s\sigma_g\rangle$ のイオン化速度

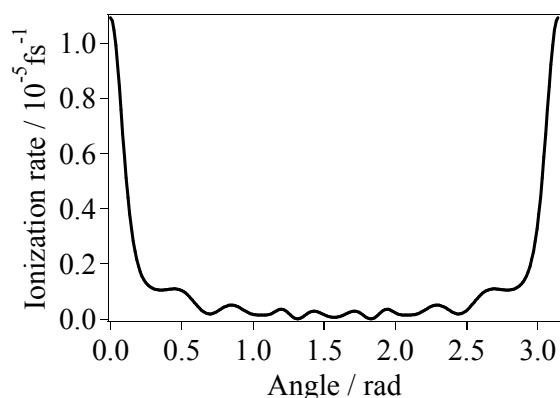


Fig.2 核間距離 2.0a.u.(1.06Å)における2順位の時間依存断熱電子状態 $|1\rangle$ の光電子スペクトル角度分布

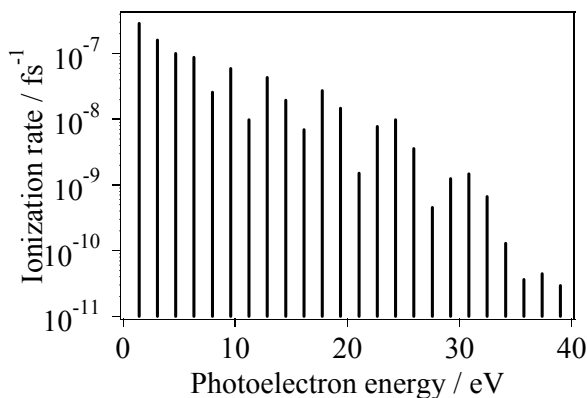


Fig.3 核間距離 2.0a.u.(1.06Å)における2順位の時間依存断熱電子状態 $|1\rangle$ の光電子スペクトルエネルギー分布

- 【参考文献】** [1] I. Kawata and H. Kono, *J. Chem. Phys.* **111**, 9498 (1999).
 [2] K. Harumiya, H. Kono, Y. Fujimura, I. Kawata, and A. D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **66**, 043403 (2002).
 [3] H. R. Reiss, *Phys. Rev. A* **22**, 1786 (1980).
 [4] A. Becker and F. H. M. Faisal, *Optics Express* **8**, 383 (2001).