

## S 行列理論と波束計算法の融合 — 強レーザー場誘起イオン化への適用 —

(東北大院・理<sup>1</sup>, ビーレフェルト大<sup>2</sup>)

○菅野 学<sup>1</sup>, 加藤 毅<sup>1</sup>, 河野裕彦<sup>1</sup>, Faisal Farhad<sup>2</sup>, 藤村勇一<sup>1</sup>

**【序】** S 行列理論は非定常な量子過程における遷移確率を得る理論として、高エネルギー物理・核物理・原子分子散乱などの問題に広く用いられてきた。S 行列理論は強レーザー場（光強度 $>10^{13}$ W/cm<sup>2</sup>, 波長 $\sim 800$ nm）中の原子の非摂動論的イオン化にも適用され、提案された複数の理論はまとめて Keldysh-Faisal-Reiss(KFR)理論[1]と呼ばれる。近年、この理論は強レーザー場中の多体問題へと拡張された（強光子場多体 S 行列理論）[2]。従来の強光子場多体 S 行列理論は系の電子状態を逐次展開し、その主要項のみを用いる摂動論的手法である。

一方、時間依存 Schrödinger 方程式を厳密に解く量子力学的シミュレーション（grid 波束計算法）は少数電子系において成功を収めた。近赤外レーザーによる分子のイオン化が平衡核間距離よりもはるかに長い距離で大きく促進される（増強イオン化）という事実が実験的に確認されている。grid 波束計算法により計算された、水素分子イオン H<sub>2</sub><sup>+</sup>や水素分子 H<sub>2</sub>のイオン化確率はこの増強イオン化の傾向を非常に良く再現した[3]。しかし、grid 波束計算法を自由度の多い一般の多電子系に適用することは困難である。

分子の増強イオン化と化学反応は、共にレーザー誘起分子内電子移動により引き起こされる。分子内電子ダイナミクスは分子のイオン化と化学反応の競合を制御するための主要過程と考えられる。故に、強レーザー場誘起イオン化の理論形式自体に分子内電子ダイナミクスを導入することが不可欠である。我々は、S 行列理論と波束計算法の長所を組み合わせることで、分子の束縛電子状態ダイナミクスを陽に考慮した強レーザー場誘起イオン化の新理論を開発した。この新手法は超短強レーザーパルスによるイオン化にも適用可能である。

**【理論】** 我々が扱うのは、古典的レーザー場と相互作用する原子・分子のイオン化である。S 行列は初期状態  $i$ （束縛状態）から終状態  $f$ （連続状態）への遷移の確率振幅と等価である。分子内電子ダイナミクスを陽に考慮した S 行列の新表式（原子単位）を以下に示す[4]。

$$S_{fi} \simeq \lim_{t_0 \rightarrow -\infty, t \rightarrow \infty} \left[ \langle \phi_f(t_0) | \psi_i(t_0) \rangle - i \int_{t_0}^t d\tau \langle \phi_f(\tau) | \hat{H}'_f(\tau) | \Phi_i(\tau) \rangle - \langle \phi_f(t) | \Phi_i(t) \rangle \right]$$

$|\psi_i(t_0)\rangle$  は全系の初期状態、 $|\phi_f(t)\rangle$  はレーザー場中の自由電子（Volkov 状態）とイオン芯の状態の積、そして  $\hat{H}'_f(t)$  は電子がイオン芯から感じる束縛ポテンシャルである。 $|\Phi_i(t)\rangle$  は全系の時間依存 Schrödinger 方程式に従って時間発展する波束であるが、伝播する空間が束縛状態に限定されている。この時間依存の波束の初期条件は  $|\Phi_i(t_0)\rangle = |\psi_i(t_0)\rangle$  で与えられる。 $|\Phi_i(t)\rangle$  は束縛状態から構成されるため、波束への束縛励起状態の混入を再現することができる。我々が開発した S 行列の新表式は、イオン化に対する分子内電子ダイナミクスの効果を陽に取り込んでいる。また、 $|\Phi_i(t)\rangle$  を Gauss 関数で展開することにより、本手法は多電子系のイオン化にも適用可能になる。

**【計算】** 本手法を一電子系の水素原子 H と水素分子イオン H<sub>2</sub><sup>+</sup>に適用した。図 1 に示した

のは本手法と厳密計算 (grid 波束計算法) から得られた  $H_2^+$  のイオン化確率である。本手法は厳密計算によるイオン化確率の二重ピーク構造を再現した。数十万個という膨大な数の grid 点に比べて、本手法ではわずか数十個の Gauss 基底関数を用いられているだけであることを考えれば驚くべき精度である。この驚異的な一致は、増強イオン化を支配する基底状態と第一励起状態間のレーザー誘起 population 移行が束縛状態のみの波束でも完全に再現されているためである。

強レーザー場による希ガス原子の電場垂直方向光電子運動量分布が、運動量ゼロ周辺に鋭いカuspを持ち、高運動量領域に大きな半値幅を持った低強度の成分を持つことが実験的に報告されている。前者は光電子とイオン芯間に働く長距離 Coulomb 力、後者はレーザー電場の符号が変わってイオン芯に引き戻された光電子の再散乱効果に由来すると考えられている[5]。図 2 は本手法による H の光電子運動量分布である。现阶段では終状態に長距離 Coulomb 力が考慮されておらず、カuspは再現されなかった。しかし、波束に励起状態が混入するとピークの半値幅は狭くなった。これは運動量空間での広がり小さい  $2s$ ,  $2p_z$  状態に電子が励起されるためである。また、波束を構成する状態数の増加に伴い高運動量領域  $p_{\perp} > 0.4\hbar/a_0$  での分布の傾きが緩やかになり、強度が増した。これは、時間依存の波束  $|\Phi_i(t)\rangle$  に電子の再散乱効果が適切に取り込まれていることを意味する。

**【結論】**  $S$  行列に束縛状態ダイナミクスを組み込んだイオン化の新理論を開発した。量子化学的手法を用いることで、多電子系のイオン化の定量的評価が可能になると期待される。

### 【参考文献】

- [1] L. V. Keldysh, Zh. Éksp, Teor. Fiz. **47**, 1945 (1964) [Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965)]; F. H. M. Faisal, J. Phys. B **6**, L89 (1973); H. R. Reiss, Phys. Rev. A **22**, 1786 (1980).
- [2] A. Becker and F. H. M. Faisal, Opt. Express **8**, 383 (2001); J. Phys. B **38**, R1 (2005).
- [3] See, e.g., A. D. Bandrauk and H. Kono, in *Advances in Multi-Photon Processes and Spectroscopy*, edited by S. H. Lin, A. A. Villaeys, and Y. Fujimura (World Scientific, Singapore, 2003), Vol. 15, pp. 147-214.
- [4] M. Kanno, T. Kato, H. Kono, F. H. M. Faisal, and Y. Fujimura, Phys. Rev. A (to be published).
- [5] A. Rudenko, K. Zrost, T. Ergler, V. L. B. de Jesus, B. Feuerstein, C. D. Schröter, R. Moshhammer, and J. Ullrich, J. Phys. B (to be published).

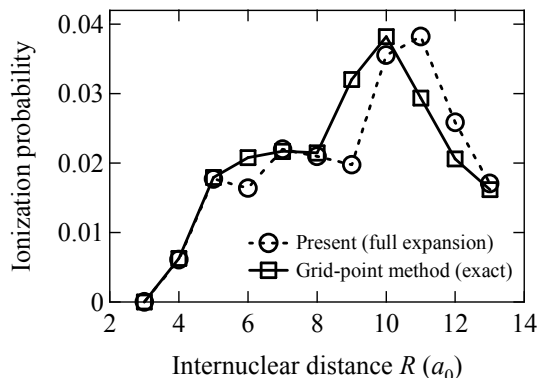


図 1  $H_2^+$  のイオン化確率の核間距離依存性。分子軸はレーザー電場の偏光軸に平行。グラフ中の本手法によるイオン化確率は実際の計算値の 0.063 倍。電場パラメーター：光強度= $8.75 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$ , 波長= $760 \text{nm}$ , パルス長= $13.3 \text{fs}$ 。

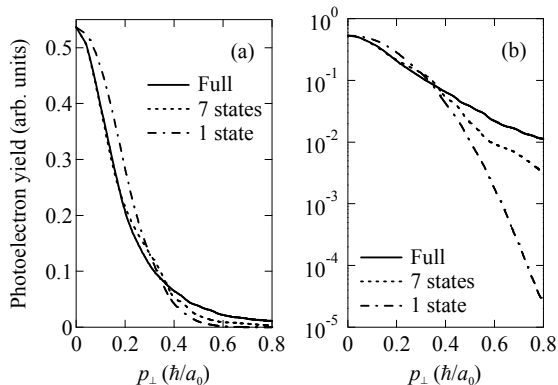


図 2 H の電場垂直方向光電子運動量分布。(a) 線形プロット、(b) 対数プロット。波束を 7 つまたは 1 つの電子状態で展開した場合の分布はそれぞれ実際の計算値の 1.6, 30 倍。電場パラメーター：光強度= $2.0 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ , 波長= $910 \text{nm}$ , パルス長= $12.2 \text{fs}$ 。