

1P075 チャープパルスレーザーによる二原子分子の光解離制御

○高田 裕輔, 一谷 和弘, 伊藤 智哉, 杉森 公一, 長尾 秀実, 西川 清 (金沢大院・自然)

【序】

光解離とは、対象とする分子系に光(電磁波)を照射し、いくつかの原子または分子に分離させることを言う。分子と光の相互作用において、照射する光の強度が大きくなるにつれ、分子系で多光子の吸収・放出を伴う新しい非線形光学過程が起こる。特に、レーザー光は分子の状態を根本的に変えてしまう程の高電場領域を持ち、この強光子場により、新しい化学反応の可能性や、分子を多くのフラグメントに分解するクーロン爆発などが起こる。

近年、レーザー技術の進歩は目覚しく、フェムト秒オーダーの超短パルス高強度レーザーの開発により、化学反応ダイナミクスを直感的に観察することが可能となった。また、光パルス技法の発展により、光吸収の過程の制御や反応経路の位相制御などが可能となった。特に、強い光を原子・分子に照射すると、解離の閾値を超えてもさらに光子を吸収・放出してATI(Above-Threshold-Ionization),ATD(Above-Threshold-Dissociation),HHG(High-Harmonic-Generation)という大変興味深い現象が起こる。

本研究では、二原子分子である OH ラジカル分子を対象として、任意の振動励起状態にチャープパルスレーザーを照射し、その後の状態の占有確率、解離確率や振動状態-解離状態間の遷移の解析を行い、ATD に至る解離過程のメカニズムを明らかにする。更に連続状態を含む光解離の制御を試みる。

【計算方法】

一般に分子系のハミルトニアン H_0 は運動エネルギー T とポテンシャルエネルギー V の和で与えられる。OHラジカル分子の電子基底状態における振動状態及び解離状態はモースポテンシャルで以下のように記述できる。

$$V_M(x) = D_e(1 - e^{-\alpha(x-x_e)})^2 \quad (1)$$

ここで、 D_e , α , x_e はそれぞれ、解離エネルギー、モースパラメータ、平衡核間距離である。この系の固有値及び、固有関数は解析解で与えられる。光と分子系の相互作用のハミルトニアンは半古典近似では

$$H_{int}(x,t) = -\mu(x)E(t) \cong -xEe^{-(t-t_0)^2/\sigma^2} \sin \omega(t)t \quad (2)$$

と与えられ、ここで、 $\mu(x)$ は双極子モーメント関数で、 x と近似した。 $E(t)$ はガウス型波形を持つ外部電場、 t_0 , σ , $\omega(t)$ はそれぞれ、パルス波の中心時間、幅、振動数である。また、チャープパルスでは振動数 $\omega(t)$ は時間とともに変化し、 $\omega(t) = \omega_0 - \omega_1(t/T)$ とした。 $(\omega_0$ は外場の初期振動数、 $\omega_1(\leq \omega_0/2)$ について $\omega_0 - \omega_1$ は時刻 T での振動数、 t は発展時間、 T は外場の照射時間。)

外場を考慮したハミルトニアンを $H = H_0 + H_{int}$ とすると、時間依存シュレディンガー方程式は
$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = H |\Psi(t)\rangle = (T + V_M + H_{int}) |\Psi(t)\rangle$$
と書ける。

系の時間発展はSOM(Split Operator Method)近似を用いて行う。微小時間発展演算子 $U(\Delta t)$ を用いると

$$\begin{aligned}
 |\Psi(\Delta t)\rangle &= U(\Delta t)|\Psi(0)\rangle \\
 U(\Delta t) &= e^{-iH\Delta t/\hbar} \cong e^{-i(V_M+H_{int})\Delta t/2\hbar} e^{-iT\Delta t/\hbar} e^{-i(V_M+H_{int})\Delta t/2\hbar}
 \end{aligned}
 \tag{3}$$

となる．ここで、 $|\Psi(0)\rangle$ は初期波束、 $|\Psi(\Delta t)\rangle$ は微小時間変化後の波束である．

【結果】

1) 振動数一定のパルスレーザーによる ATD

振動数一定のパルスレーザーを、振動励起状態 $|10\rangle$ に照射すると図1のような多光子吸収・放出の過程が確認できた．また、図2に示すスペクトルより ATD 即ち、解離の閾値を越えた後、光子のエネルギーの定数倍相当の光子吸収が確認できた．

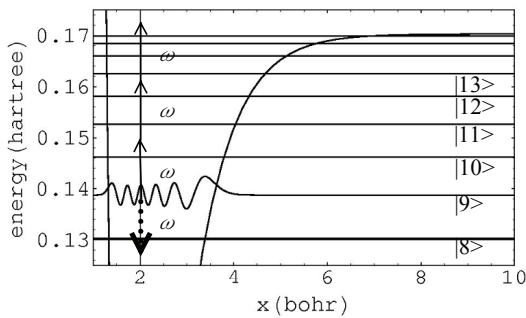


図1. 連続状態への多光子吸収遷移. ω は照射するレーザーパルスの振動数を示す.

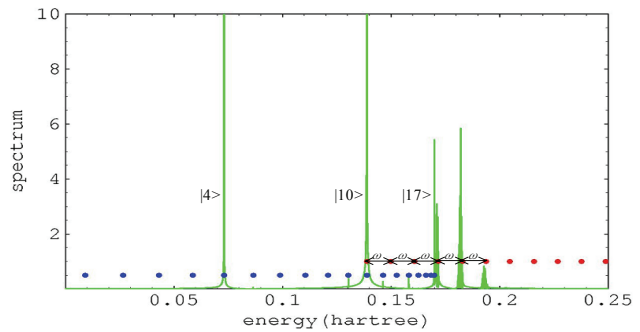


図2. エネルギースペクトル. 青点は離散準位のエネルギー. 赤点は状態 $|10\rangle$ からのレーザー光のエネルギー ω を等間隔で示す.

2) チャープレーザーによる解離過程の解析

高振動励起状態($|10\rangle$)にチャープレーザーを照射すると図3のようなポピュレーション変化を示した．チャープレーザーより段階的に連続状態へと励起していく事がわかった．

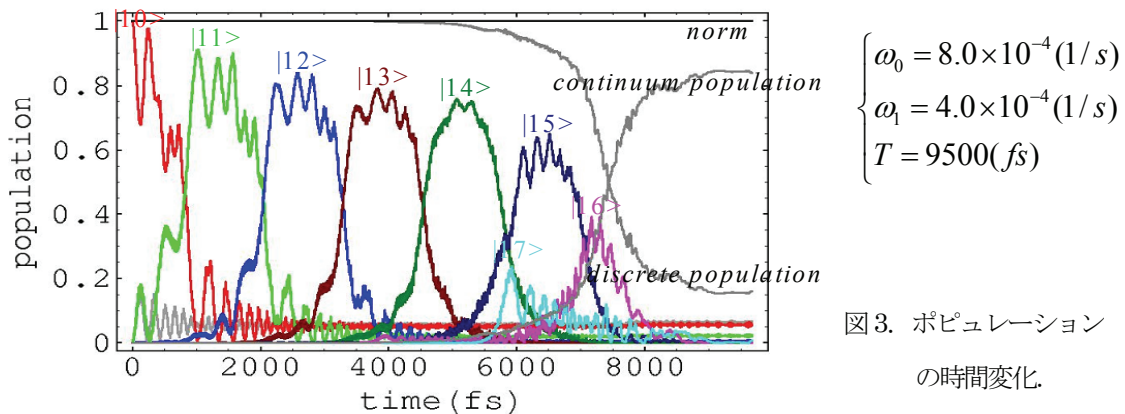


図3. ポピュレーションの時間変化.

尚、詳しい研究結果は当日報告する．

References

- [1] J. A. Fleck, Jr. J. R. Morris, and M. D. Feit, Appl. Phys. **10**, 129 (1976)
- [2] M. D. Feit, J. A. Fleck, Jr., and A. Steiger, J. Comput. Phys. **47**, 412 (1982)
- [3] S. Chelkowski, and G. N. Gibson. Phys. Rev. A. **52**, 3417 (1995)