

強レーザー場中の励起分子からのイオン化過程の非断熱電子動力学

○松岡 貴英[†], 高塚 和夫[†]

東大院総合文化

matsuoka@fukui.kyoto-u.ac.jp

【序】近年のアト秒レーザーの発展により、励起分子中の電子動力学の観測が可能となり、新しい分子科学の発展が続いている。特に、強光子場中の化学反応に伴う電子励起動力学や、X線領域の内殻イオン化による自動電離と電子状態崩壊現象などが興味深い。しかし、電子と外場、電子と核、電子間の動的相互作用を同等に扱って、励起電子波束状態からのイオン化過程を記述する理論は、多原子・多電子分子に関しては、いまだ存在していない。

【理論】分子領域から単位時間あたりに放出される電子は、電子 flux \vec{J} より境界面 S に対する流束として与えられる。電子波束 $\Psi(t)$ の各複素自然軌道 (λ) から放出される電子についても同様に、各々の flux \vec{J}_λ より電子占有数 n_λ の時間あたりの減少量が得られる[1]。

$$\frac{\partial n_\lambda}{\partial t} = \int_S \vec{J}_\lambda \cdot d\vec{S}$$

この方程式に従って自然軌道をスケールリングすることで、分子領域から放出された電子を減じた電子波束を記述できる。すなわち、時々刻々と変化する電子波束 $\Psi(t)$ を、自然軌道を一電子軌道とした Slater 行列式 Φ_I で展開し、その展開係数をスケールリングすることでイオン化過程が記述できる。

$$\Psi(t) = \sum_I C_I \Phi_I \rightarrow \Psi(t') = \sum_I \left(\prod_i \sqrt{\frac{n_{I,i}(t')}{n_{I,i}(t)}} \right) C_I \Phi_I$$

ここで、 $n_{I,i}$ は Slater 行列式 Φ_I に含まれる自然軌道 (i) の電子占有数である。

特に強光子場中では、イオン電子と親イオンの散乱過程が繰り返されることによる high harmonic generation (HHG) が知られている。イオン電子が分子領域に戻らない flux の閾値 J_{thresh} を設ける ($J_\lambda > J_{\text{thresh}}$) ことで、超閾電離過程をあらわに扱うことが可能となる。

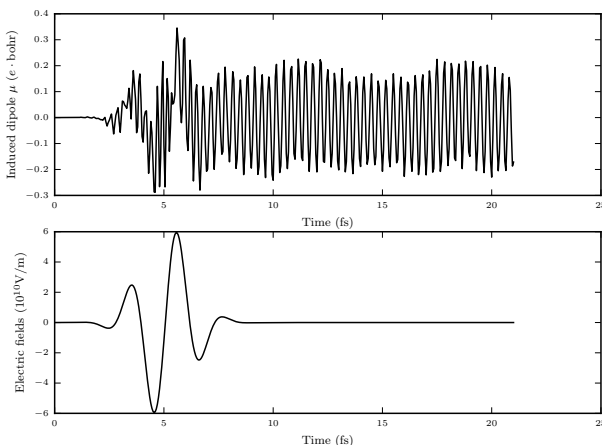


Figure 1. $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ へ波長 760 nm 強度 580 TW/cm^2 の1サイクルパルス照射した時の、誘起双極子。 $1^1\Sigma_u^+$ と $2^1\Sigma_u^+$ 状態へ励起し、 $2^1\Sigma_u^+$ からイオン化する。パルス印加後は、 $X^1\Sigma_g^+$ と $1^1\Sigma_u^+$ の重ね合わせにより、誘起双極子が振動する。

【結果】上の方程式に従ってイオン化過程を含めた非断熱電子動力学による電子波束計算を、最初の例として H_2 について行った。基底状態の H_2 に強光子場を照射することによって、 $1^1\Sigma_u^+$ と $2^1\Sigma_u^+$ 状態へ励起し、一部イオン化せずに $1^1\Sigma_u^+$ に留まるため、誘起双極子が振動することが、左の図から確認できる。このように、本計算方法は分子領域における電子動力学を追跡することを可能とする。この方法は多原子分子に適用可能である。詳細は講演において発表する。

[†]現在の所属：京大福井センター

[1] K. Takatsuka, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47, 124038 (2014)