

高強度円偏光レーザーパルス照射 による水素分子の解離性イオン化

所属：森下研究室

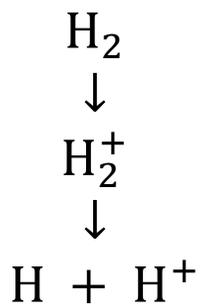
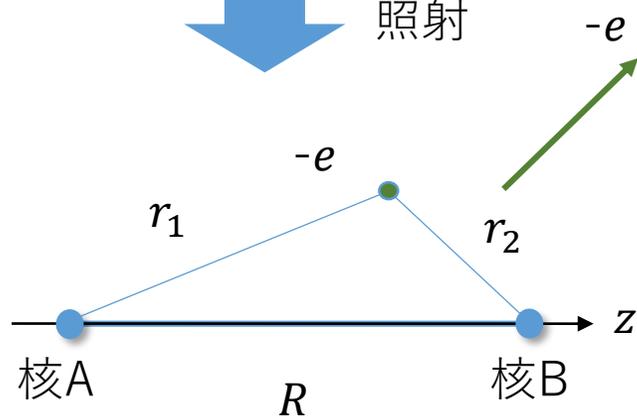
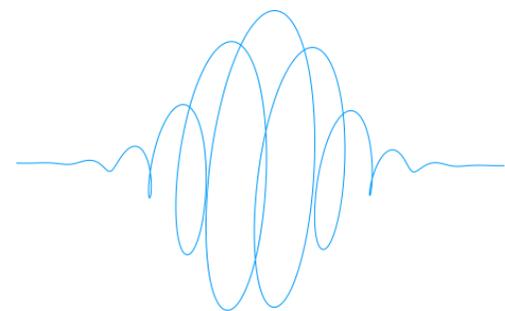
学籍番号：1810521

氏名：播磨貴大

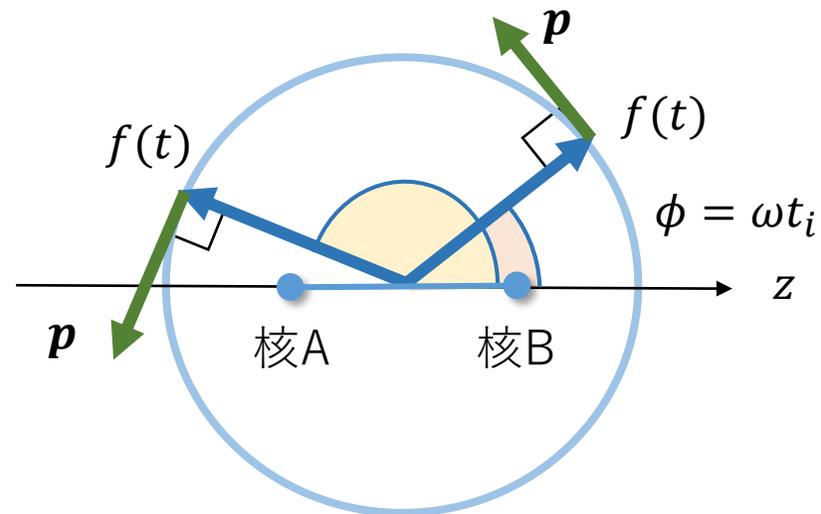
水素分子に高強度
円偏光レーザーパルスを照射

円偏光レーザーパルス $f(t)$

パルス幅 τ :
50 fs
レーザー強度 I_0 :
 $8.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$
角周波数 ω :
 $2.3 \times 10^{15} \text{ rad/s}$



分子軸は電場の平行面内にあるとする.
分子軸と運動量 \mathbf{p} の関係を見ればいつ
イオン化したかがわかる.



電子の放出角はイオン化時刻 t_i の
レーザー場の位相 $\phi = \omega t_i$ に依存

目的：先行研究 [1] における電子の局在化
の電子の放出角と解離エネルギーに対する
依存性を確かめる.

水素分子イオンのTDSE

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, R, t) = \left(-\frac{1}{M} \nabla_R^2 + V_N(R) + h(\mathbf{r}, R) + H_L(t) \right) \Psi(\mathbf{r}, R, t)$$

電子のハミルトニアン $h(\mathbf{r}, R)$

$$h(\mathbf{r}, R) = -\frac{1}{2} \nabla_r^2 + V_e(\mathbf{r}, R)$$

原子核間のCoulomb相互作用による
ポテンシャルエネルギー $V_N(R)$

$$V_N(R) = \frac{1}{R}$$

電子と2核間のCoulomb相互作用による
ポテンシャルエネルギー $V_e(\mathbf{r}, R)$

$$V_e(\mathbf{r}, R) = -\frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2}$$

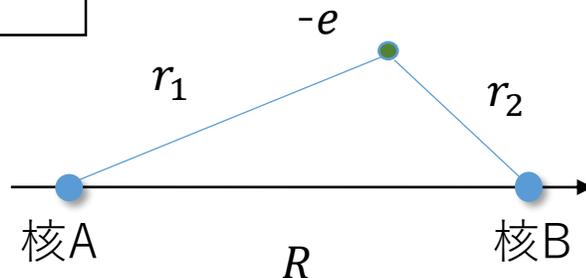
M : 原子核の質量
 H_L : レーザー場による電子
とのcoulomb相互作用

核間距離 R のラプラシアン ∇_R^2

$$\nabla_R^2 = \frac{1}{R} \frac{\partial^2}{\partial R^2} R - \frac{L^2}{R}$$

電子の位置 \mathbf{r} のラプラシアン ∇_r^2

$$\nabla_r^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$$



水素分子イオンのTDSE

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, R, t) = \left(-\frac{1}{M} \nabla_R^2 + V_N(R) + h(\mathbf{r}, R) + H_L(t) \right) \Psi(\mathbf{r}, R, t)$$

- $\Psi(\mathbf{r}, R, t) = \sum_{\mu} \frac{1}{R} \Phi_{\mu}(\mathbf{r}; R) F_{\mu}(R, t)$
- Born-Oppenheimer 近似 $\left(\frac{\partial}{\partial R} \Phi_{\mu}(\mathbf{r}; R) = 0 \right)$
- 2 成分 $\begin{cases} 1s\sigma_g \text{ 状態 } (\nu = 1) \\ 2p\sigma_u \text{ 状態 } (\nu = 2) \end{cases}$
- 電場 $\mathbf{f}(t) = f_y \sin(\omega t) \hat{y} + f_z \cos(\omega t) \hat{z}$

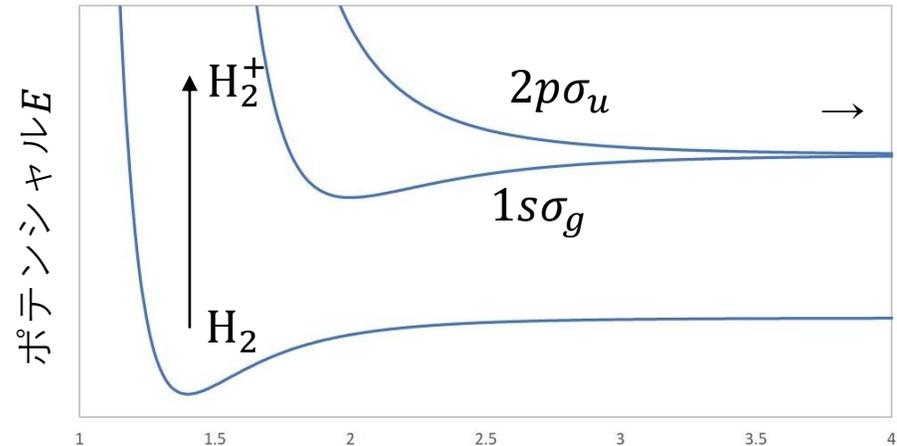
分子軸は z 軸と平行として, $H_L(t) = \mathbf{f}(t) \cdot \mathbf{r} = f_z \cos(\omega t) z$

分子軸 (z 軸) に平行な成分の電場を考えればよい (右図)

核波動関数についての波動方程式

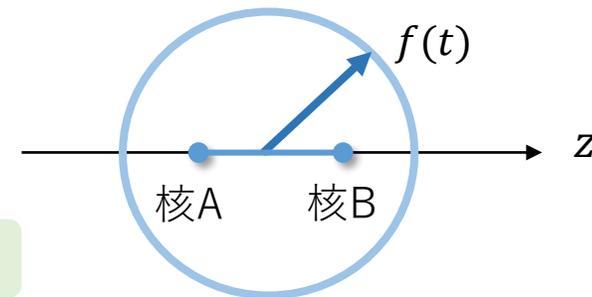
$$i \frac{\partial}{\partial t} F_{\nu}(R, t) = \left[-\frac{1}{M} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_N(R) + U_{\nu}(R) \right] F_{\nu}(R, t) + \sum_{\mu} d_{\nu\mu}(R) f_z \cos(\omega t) F_{\mu}(R, t)$$

$$\text{遷移双極子モーメント } d_{\nu\mu}(R) = \langle \Phi_{\nu}(\mathbf{r}; R) | z | \Phi_{\mu}(\mathbf{r}; R) \rangle$$



核間距離 R [a.u.]

Fig.1 ポテンシャルエネルギー曲線の概形



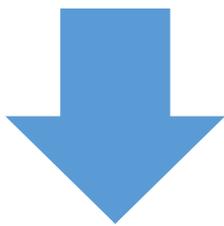
核波動関数
 $F_{\nu=1,2}(R, t)$

フーリエ変換を用いた数値計算
(Split-Operator-Method)で解く.



エネルギー E を持つ
固有関数に射影.

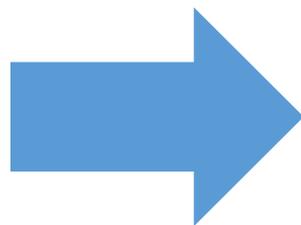
$$\begin{aligned} & \text{遷移振幅 } A_{\nu=1,2}(E) \\ & = \langle F_{\nu}(R, t \rightarrow \infty) | F'_{E,\nu}(R) \rangle \end{aligned}$$



遷移振幅の和と差(Fig.2)により核の左右を
区別し, 左右に局在する確率を導出.

局在の確率

$$\begin{cases} P_l(E) = \frac{1}{2} |A_1(E) + A_2(E)|^2 \\ P_r(E) = \frac{1}{2} |A_1(E) - A_2(E)|^2 \end{cases}$$



局在パラメータ

$$\beta = \frac{P_l(E) - P_r(E)}{P_l(E) + P_r(E)}$$

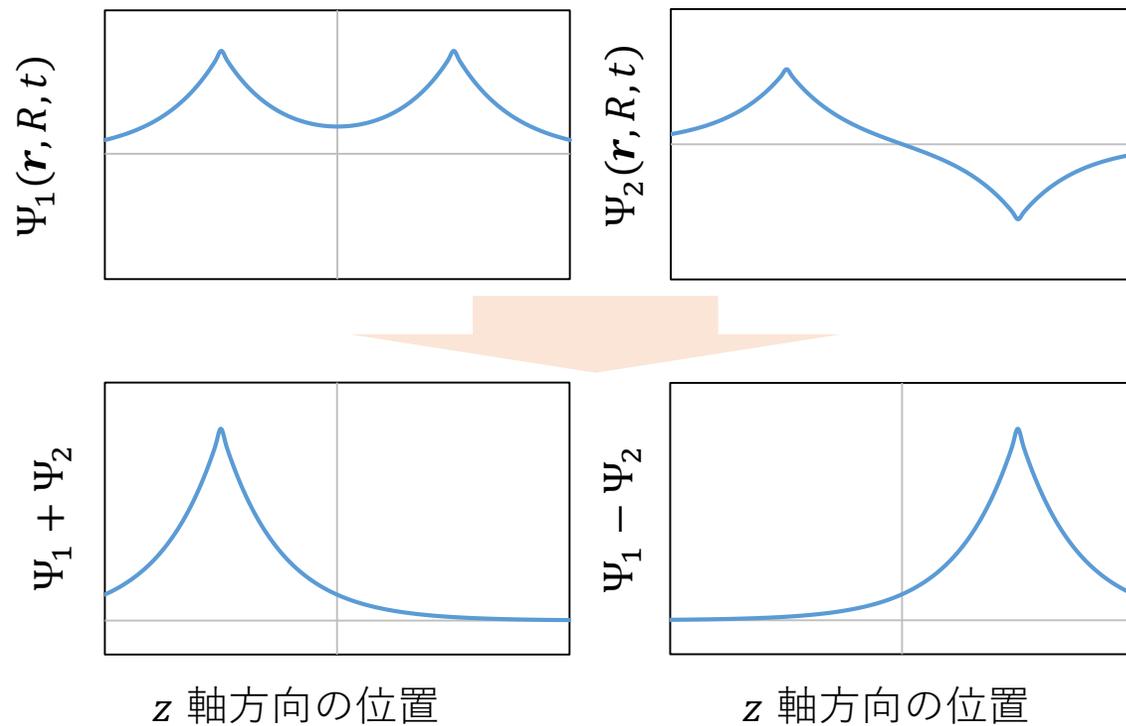


Fig.2 波動関数の概形

$\Psi_1 = \Psi_1(\mathbf{r}, R, t)$, $\Psi_2 = \Psi_2(\mathbf{r}, R, t)$ とする.

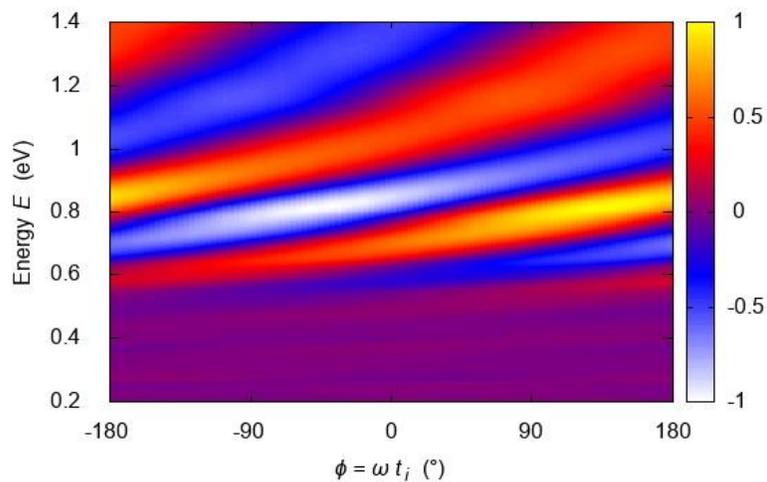


Fig.3 計算した局在パラメータ $\beta = (P_l - P_r) / (P_l + P_r)$
 (パルス幅 50 fs, レーザー強度 $8.77 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)

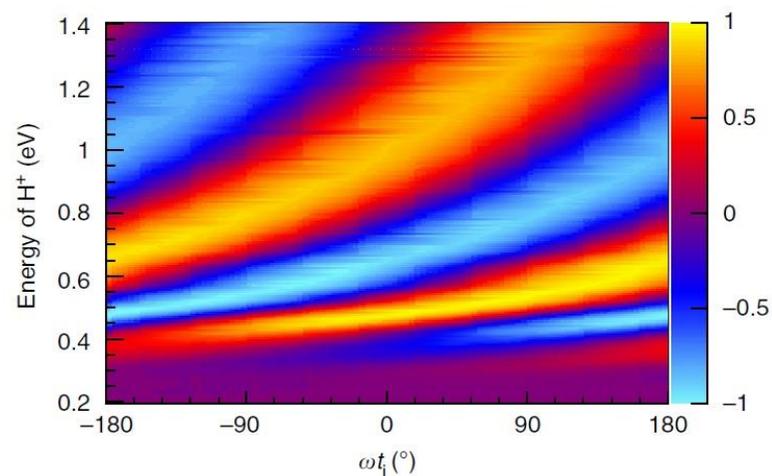


Fig.5 先行研究 [1] における数値計算による
 局在パラメータ β (パルス幅 35 fs,
 レーザー強度 $7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$)

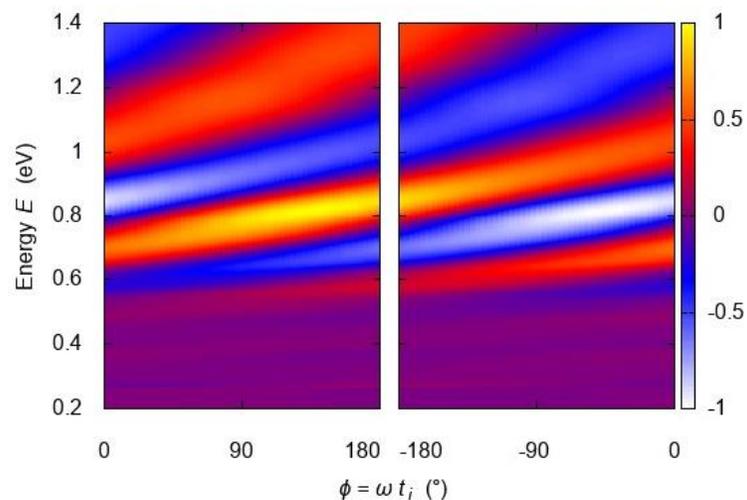


Fig.4 局在パラメータの位相周期性
 (Fig.3の $\phi = 180^\circ$ と $\phi = -180^\circ$ の比較)

- Fig.3とFig.4の比較
 →局在パラメータは位相に対して周期性を持っている.
- Fig.3とFig.5の比較
 →局在パラメータの解離エネルギーと電子の放出角に関する依存性が先行研究の結果を再現.

まとめ

- 水素分子イオンのSchrödinger方程式から核波動関数についての方程式を導出し, Split-Operator-Method によって解いた結果によって遷移振幅を求めた.
- 局在パラメータは位相に対して周期性を持っていることがわかった.
- 先行研究 [1] のように, 水素分子イオンの解離時の電子の局在化パラメータが電子の放出角とエネルギーに依存することを確かめることができた.

参考文献

[1] J. Wu, M. Magrakvelidze, L.P.H. Schmidt, M.Kunitski, T. Pfeifer, M. Schöfer, M.Pitzer, M. Richer, S. Voss, H.Sann, H.Kim, J.Lower, Y.jahnke, A.Czasch, U.Thumm & R. Dörner, “Understanding the role of phase in chemical bond breaking with coincidence angular streaking”, Nat. Commun. 4, 2177 (2013)