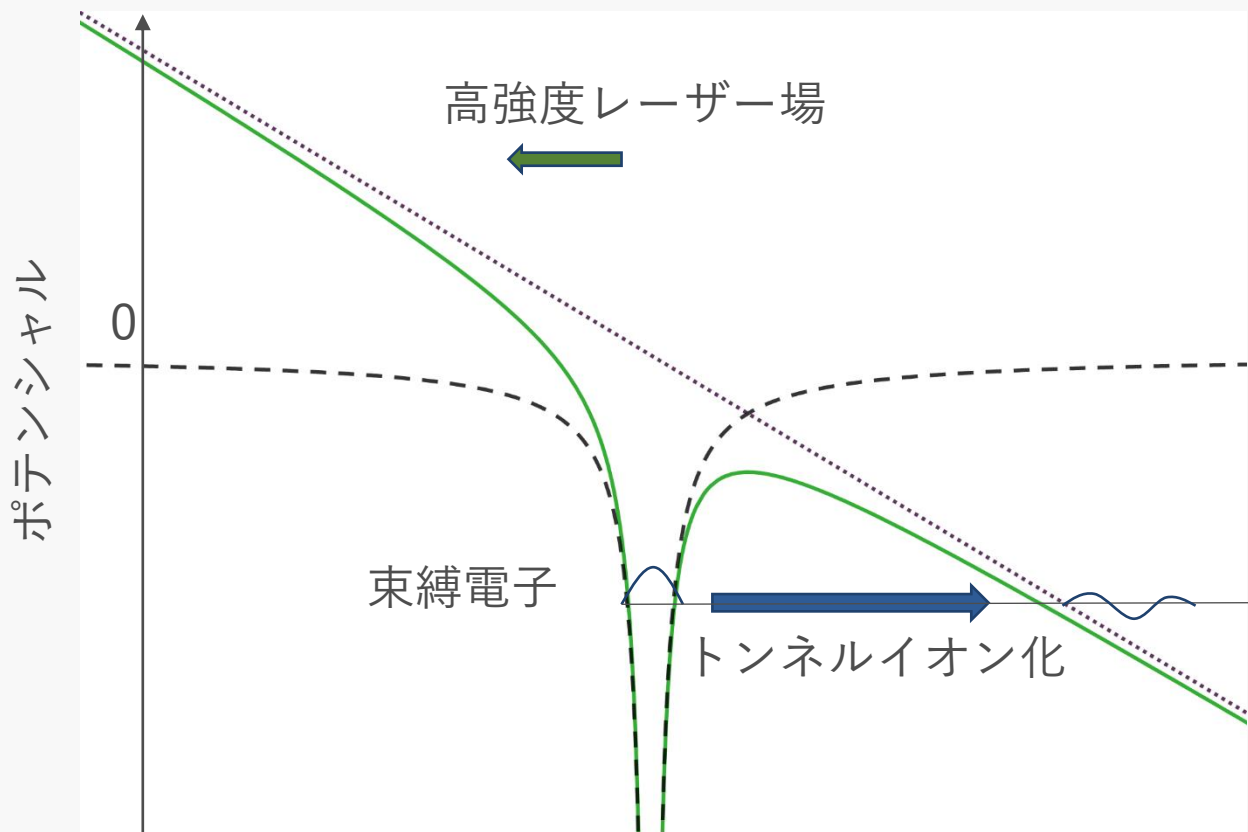


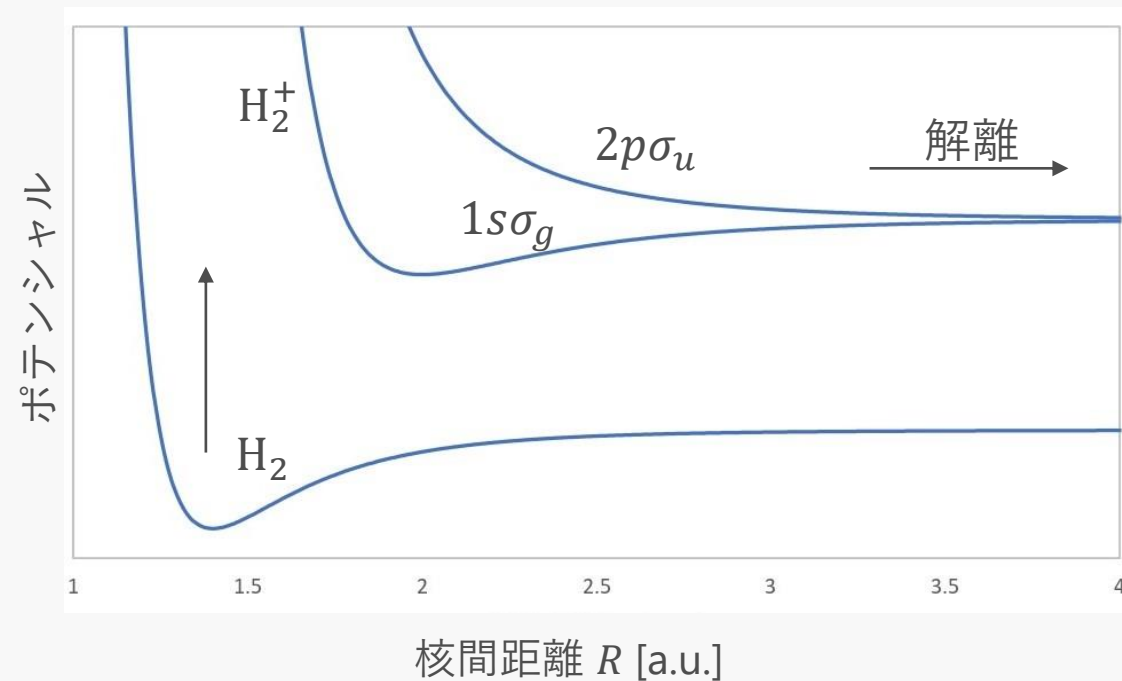
σ 軌道および π 軌道を考慮した 高強度レーザー場中の水素分子イオン 解離の計算

2233078 播磨貴大

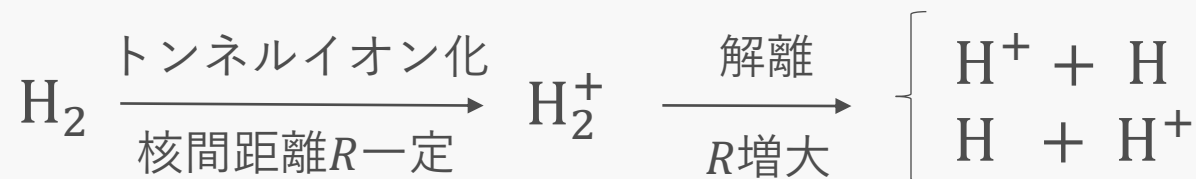
基盤理工学専攻 森下研究室所属



トンネルイオン化の概念図



核間距離 R [a.u.]
ポテンシャルエネルギー曲線の概形



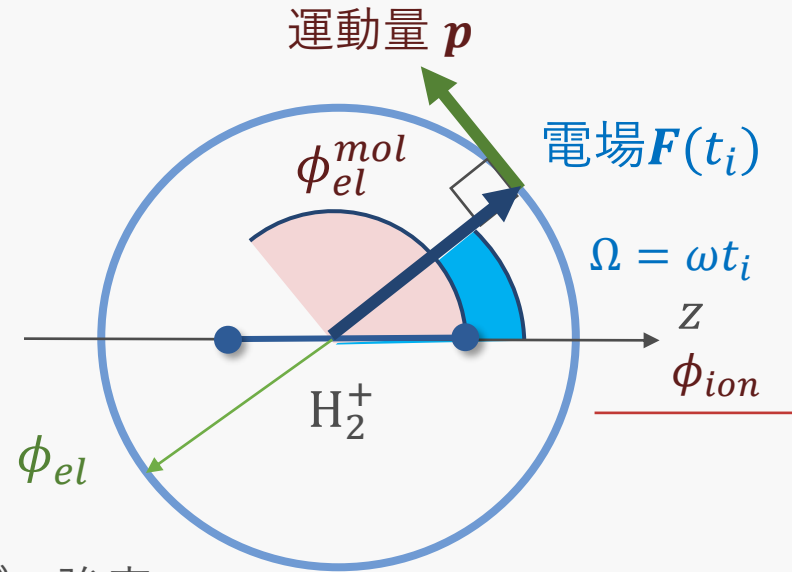
先行研究における実験の流れ

1. レーザーによりH₂を時刻 t_i でイオン化
2. 核間距離を増大させながら水素原子と陽子に解離
3. 陽子は偏光面内で ϕ_{ion} 方向へ放出
4. 放出された電子と陽子を同時に検出
5. 電子は電場偏光面内で ϕ_{el} 方向に検出

$$\phi_{el}^{mol} = \phi_{el} - \phi_{ion}$$

分子軸に対する電子の放出角

分子軸を円偏光レーザー電場の偏光面内にとった概念図



レーザー強度
~ 10¹⁴ W/cm²

$\mathbf{p} = \int \mathbf{F}(t) dt$
より円偏光の回転
方向に沿って電子
が放出



$\mathbf{F}(t_i)$ と \mathbf{p} は直交

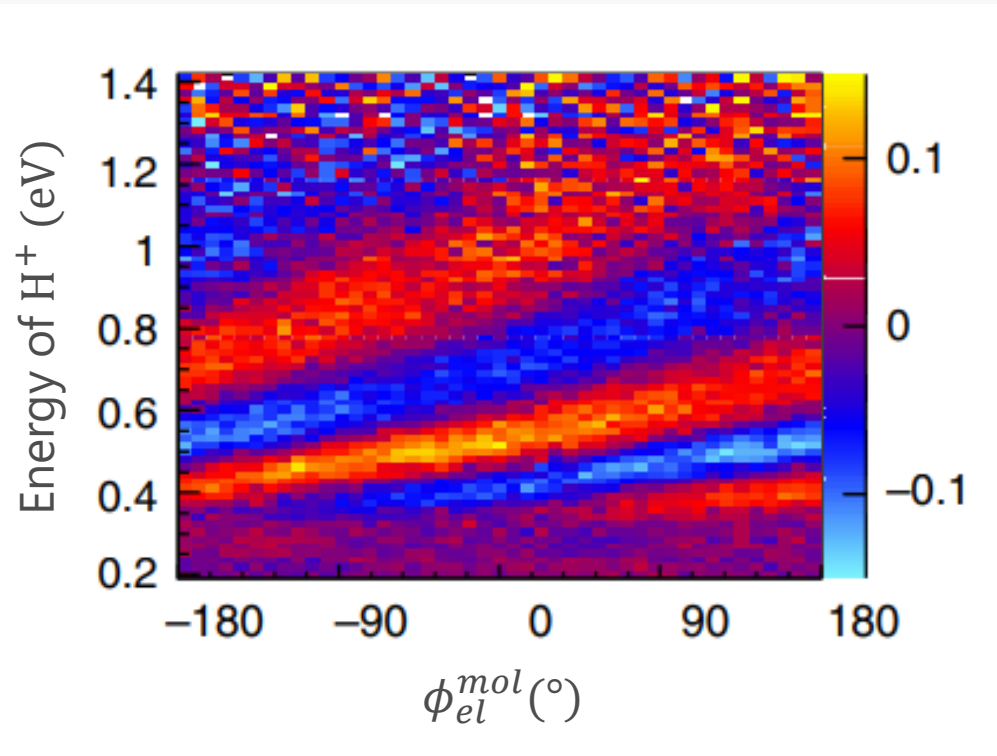
実験における分子軸に対する電子の放出角 ϕ_{el}^{mol}
と数値計算で用いる分子軸に対する電場の位相 $\Omega = \omega t_i$
が対応

実験における結果

電子の左右の陽子への局在の確率を表す
 横軸：分子軸に対する電子の放出角
 縦軸：陽子の放出エネルギー

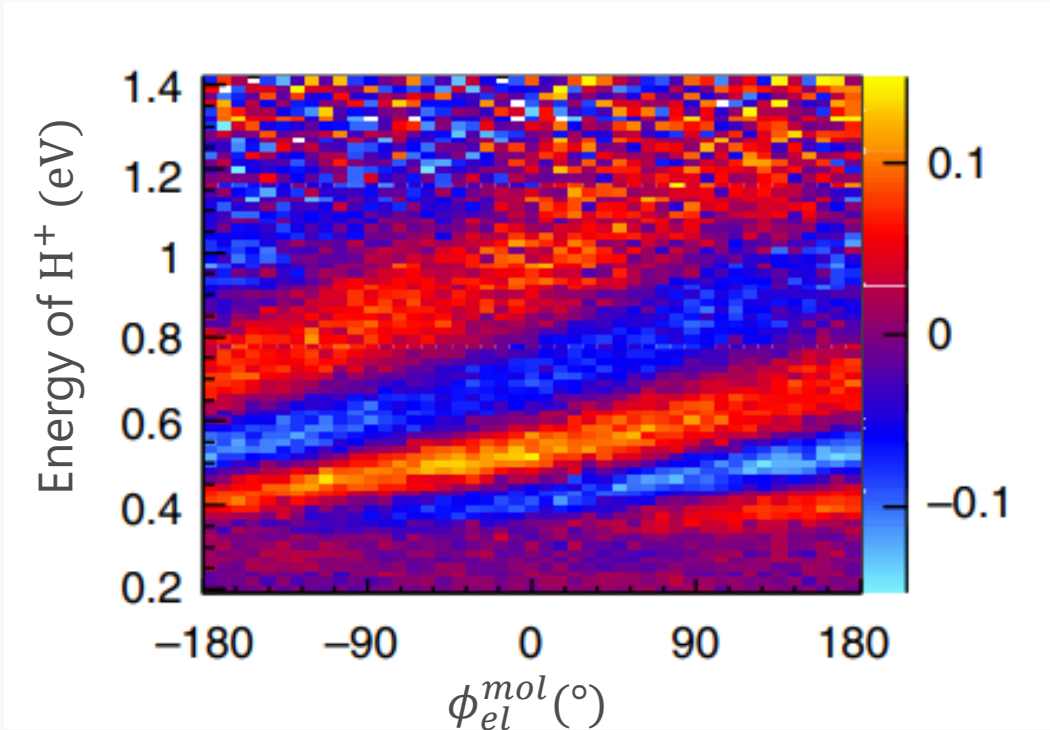
赤：電子が右に局在した割合 ($H^+ + H$)
 青：電子が左に局在した割合 ($H + H^+$)

[先行研究]
 対称な円偏光レーザーにおいても
 解離時の局在には非対称性が
 現れることを明らかにした

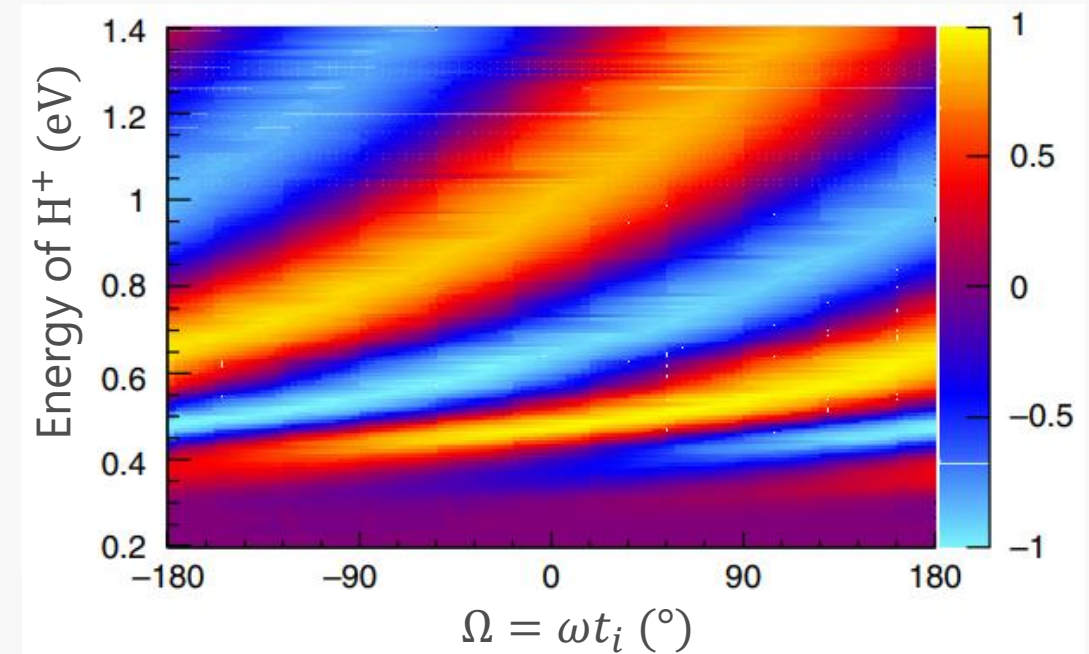


実験による解離の局在
 レーザーのピーク強度 $I_0 = 1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

J. Wu, et al., Nat. commun. 4, 2177 (2013)



実験による解離時の局在
レーザー強度 $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$



$1s\sigma_g \cdot 2p\sigma_u$ の2経路を考慮した数値計算による解離時の局在
レーザー強度 $7.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$

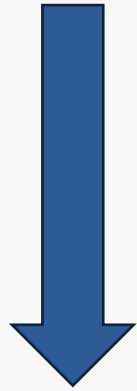
J. Wu, et al., Nat. commun. 4, 2177 (2013)

$1s\sigma_g$ 状態と $2p\sigma_u$ 状態の2準位系の計算により実験の結果と定性的に一致

目的： π_g と π_u の2経路を含めた計算によって
上準位による影響を調べる

水素分子イオン H_2^+ の時間依存Schrödinger方程式

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



波動関数 $\Psi(\mathbf{r}, R, t) = \sum_{j,\mu} c_{\mu}^j(t) F_{\mu}^j(R) \Phi_{\mu}(\mathbf{r}, R)$
 時間発展 $\Psi(\mathbf{r}, R, t + \Delta t) = e^{-iH\Delta t} \Psi(\mathbf{r}, R, t)$

$[k, \nu] \quad k = 1, 2 \quad \nu = 0, 1$

$[1, 0] \Rightarrow \sigma_g \quad [1, 1] \Rightarrow \pi_g$

$[2, 0] \Rightarrow \sigma_u \quad [2, 1] \Rightarrow \pi_u$

$c_{\nu}^k(t + \Delta t)$

$$= \sum_{j,\mu} \left\langle F_{\nu}^k(R) \Phi_{\nu}(\mathbf{r}, R) \left| e^{-iH\Delta t} \right| F_{\mu}^j(R) \Phi_{\mu}(\mathbf{r}, R) \right\rangle c_{\mu}^j(t)$$

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

電子のハミルトニアン

$v(\mathbf{r}, R, t) :$

レーザー場のハミルトニアン

核波動関数
 $c_\mu^j(t)F_\mu^j(R)$

スプリットオペレータ法
 を用いて解いた



$$A_\nu^k(E) = \langle \Psi(\mathbf{r}, R, t \rightarrow \infty) | \varphi_{E,\nu}^k(\mathbf{r}, R) \rangle$$

$$= \langle \sum_k c_\nu^k(t \rightarrow \infty) F_\nu^k(R) | \bar{F}_\nu^E(R) \rangle$$



局在の確率

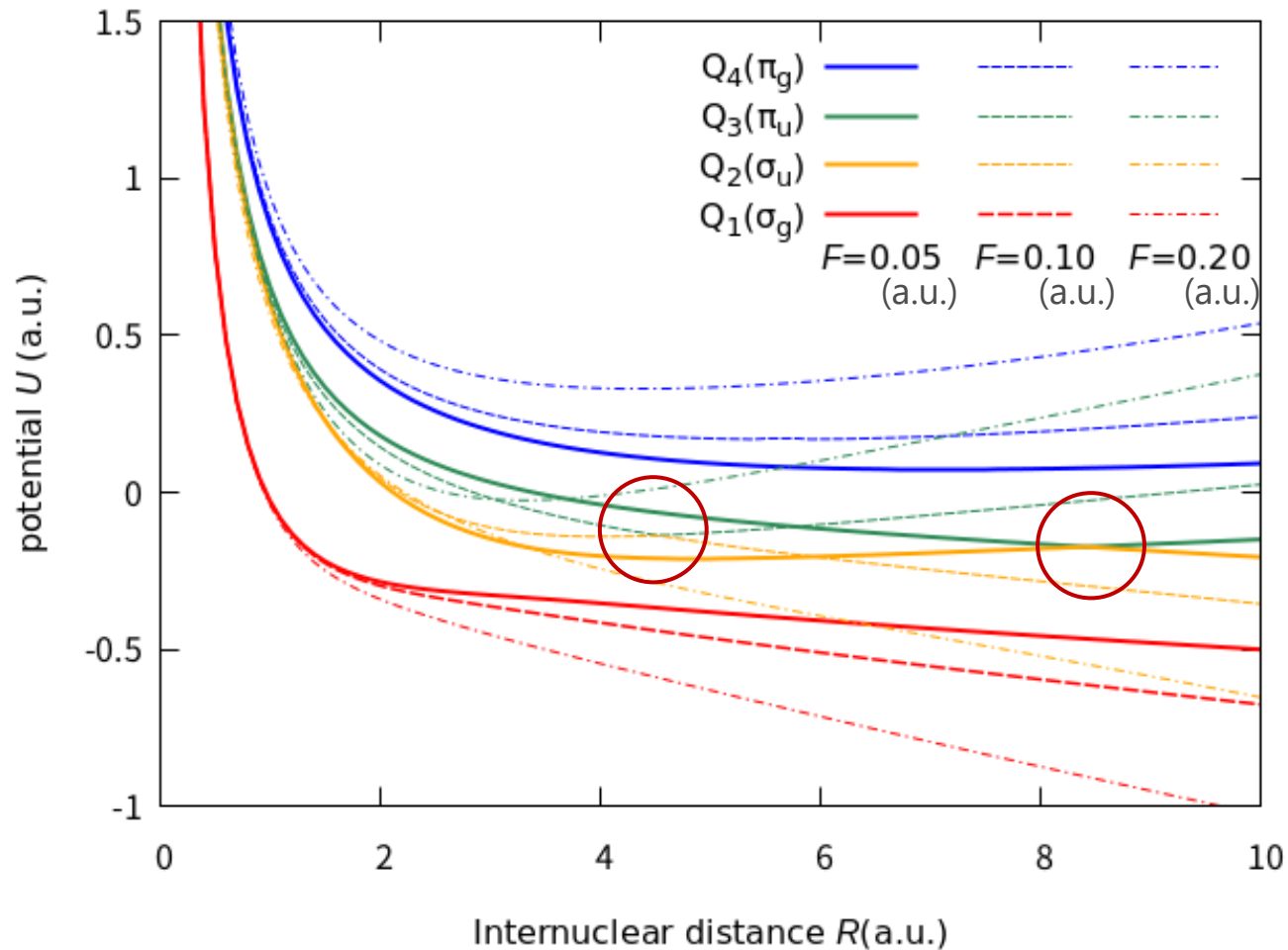
$$\begin{cases} P_{l,\sigma(v=0)} = |A_{\sigma(v=0)}^{k=1}(E) + A_{\sigma(v=0)}^{k=2}(E)|^2 / 2 \\ P_{r,\sigma(v=0)} = |A_{\sigma(v=0)}^{k=1}(E) - A_{\sigma(v=0)}^{k=2}(E)|^2 / 2 \\ P_{l,\pi(v=1)} = |A_{\pi(v=1)}^{k=1}(E) + A_{\pi(v=1)}^{k=2}(E)|^2 / 2 \\ P_{r,\pi(v=1)} = |A_{\pi(v=1)}^{k=1}(E) - A_{\pi(v=1)}^{k=2}(E)|^2 / 2 \end{cases}$$

得られた波動関数をレーザー照射後 $t \rightarrow \infty$ におけるエネルギー E の固有関数 $\varphi_E^\nu(R) = \bar{F}_\nu^k(R)\Phi_\nu(\mathbf{r}; R)$ に射影し遷移振幅を導出

局在パラメータ



$$\begin{cases} \beta_\sigma = \frac{P_{l,\sigma}(E) - P_{r,\sigma}(E)}{P_{l,\sigma}(E) + P_{r,\sigma}(E)} \\ \beta_\pi = \frac{P_{l,\pi}(E) - P_{r,\pi}(E)}{P_{l,\pi}(E) + P_{r,\pi}(E)} \end{cases}$$

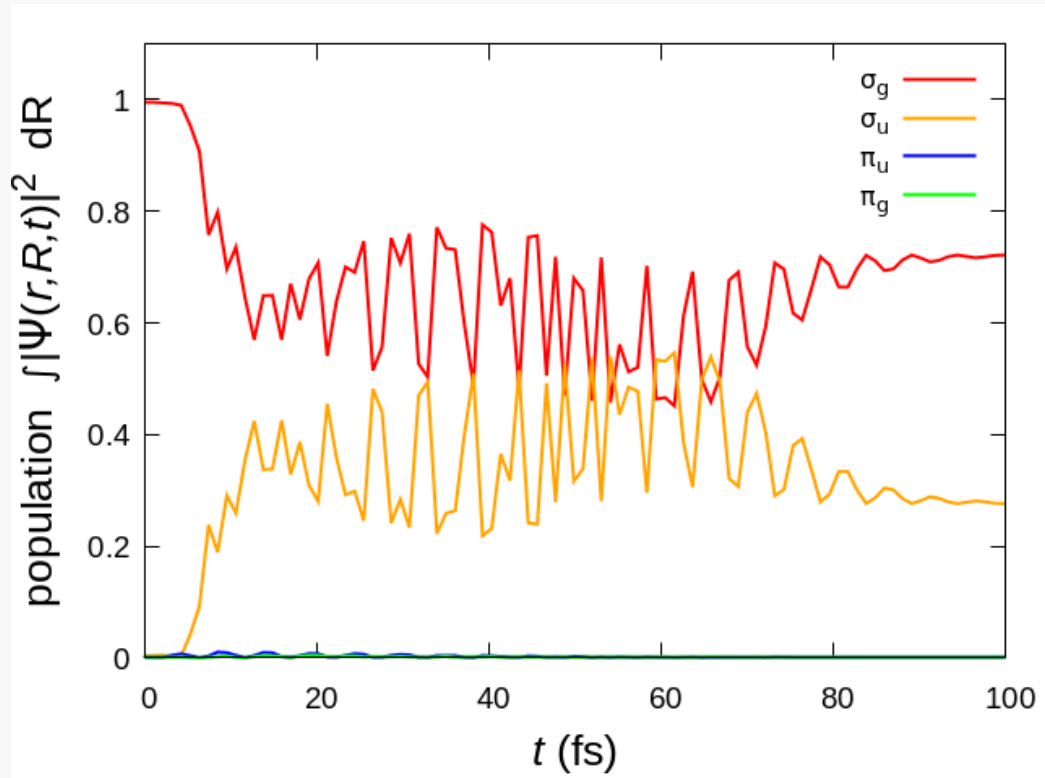


分子軸に平行($\Omega = 0$)な偏光レーザー場照射時の断熱ポテンシャル

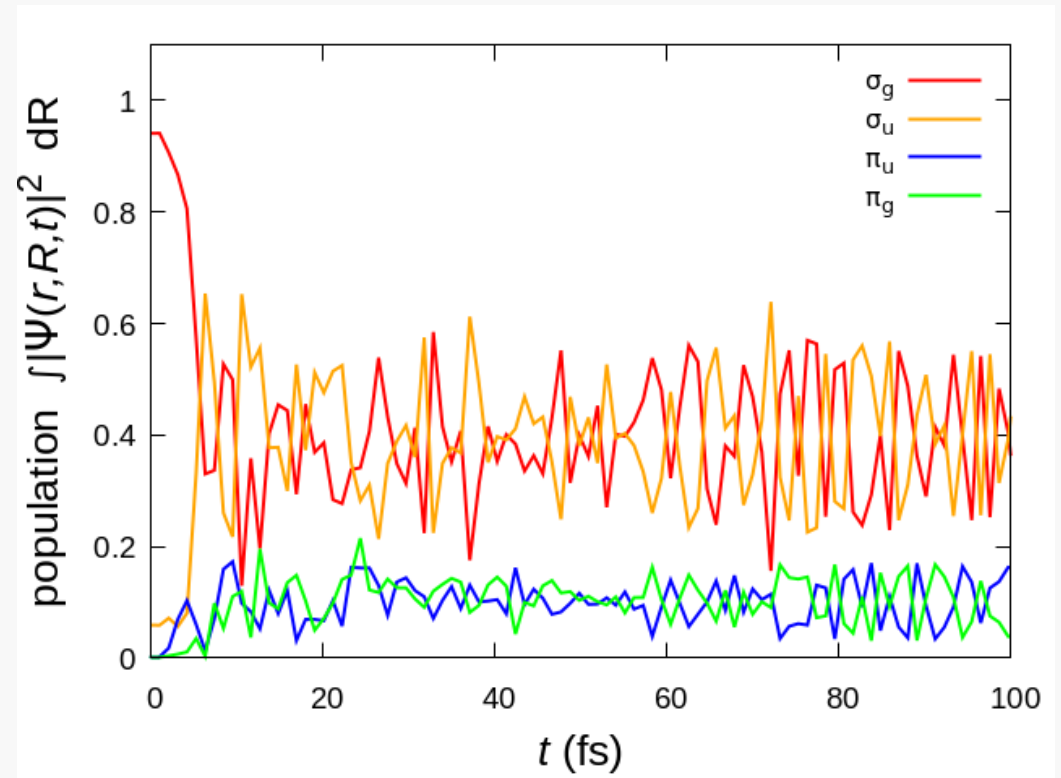
Born-Oppenheimer近似の下で
ポテンシャルの行列を対角化し
断熱ポテンシャルを計算した

レーザー強度 $F \rightarrow$ 大
ポテンシャルの反発交差が
生じる R が小さくなる

レーザー強度が高くなれば
解離過程に対する上準位の影響が
無視できなくなることを示唆

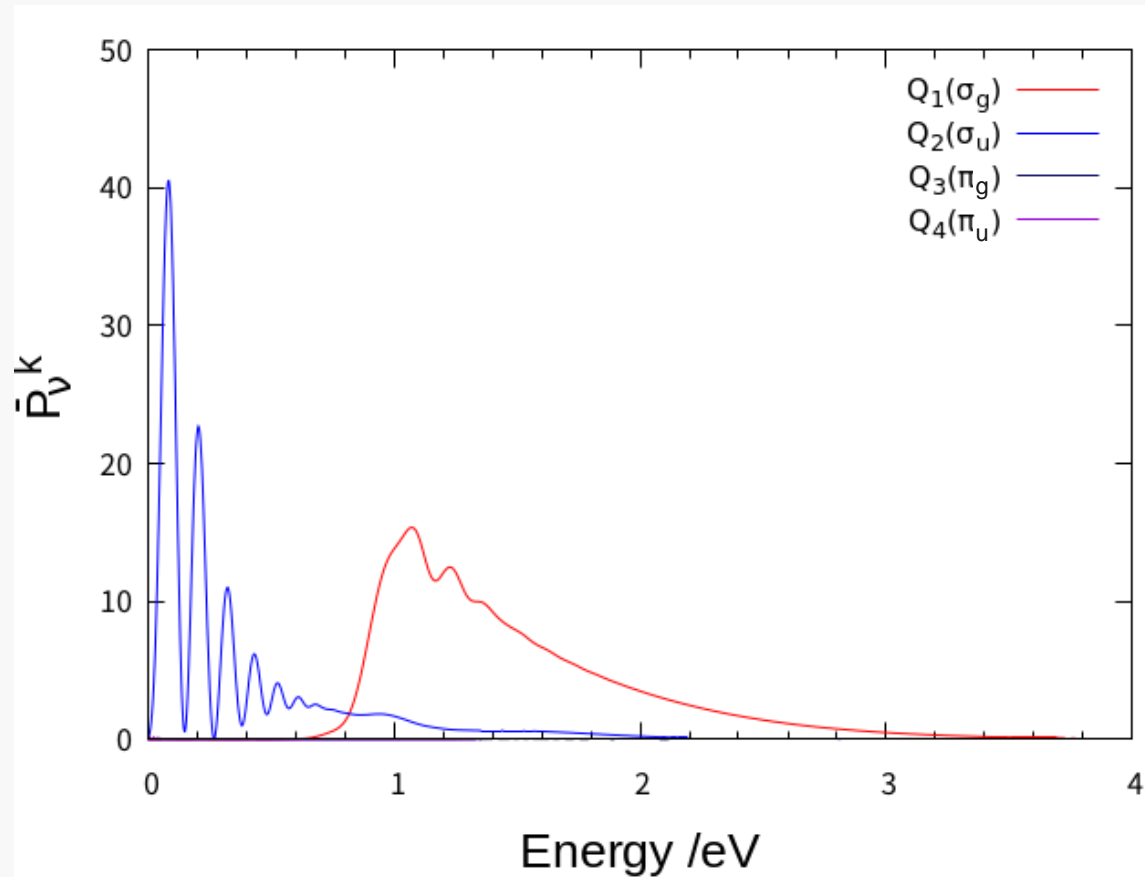


F=0.05 (a.u.)

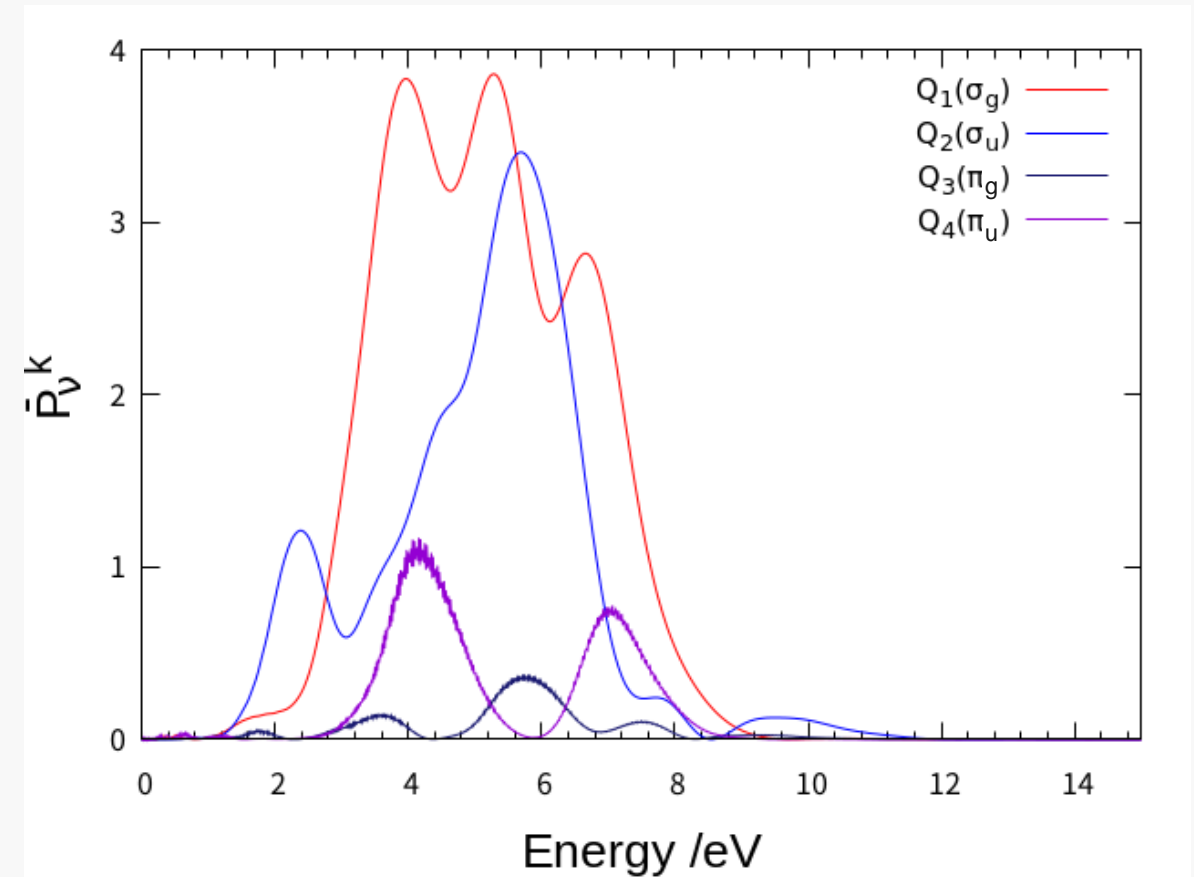


F=0.20 (a.u.)

レーザー強度が高くなると (F=0.20 (a.u.)) σ 軌道の存在確率がそれぞれ0.4程度であるのに対して π 軌道の存在確率がそれぞれ0.1程度になる



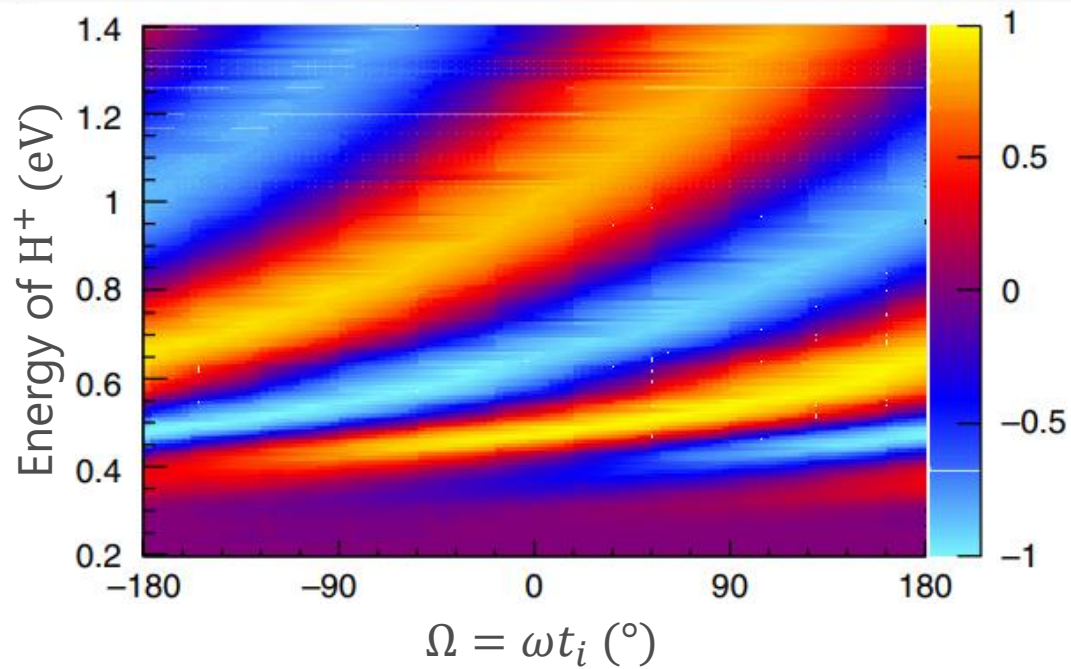
F=0.05 (a.u.)



F=0.20 (a.u.)

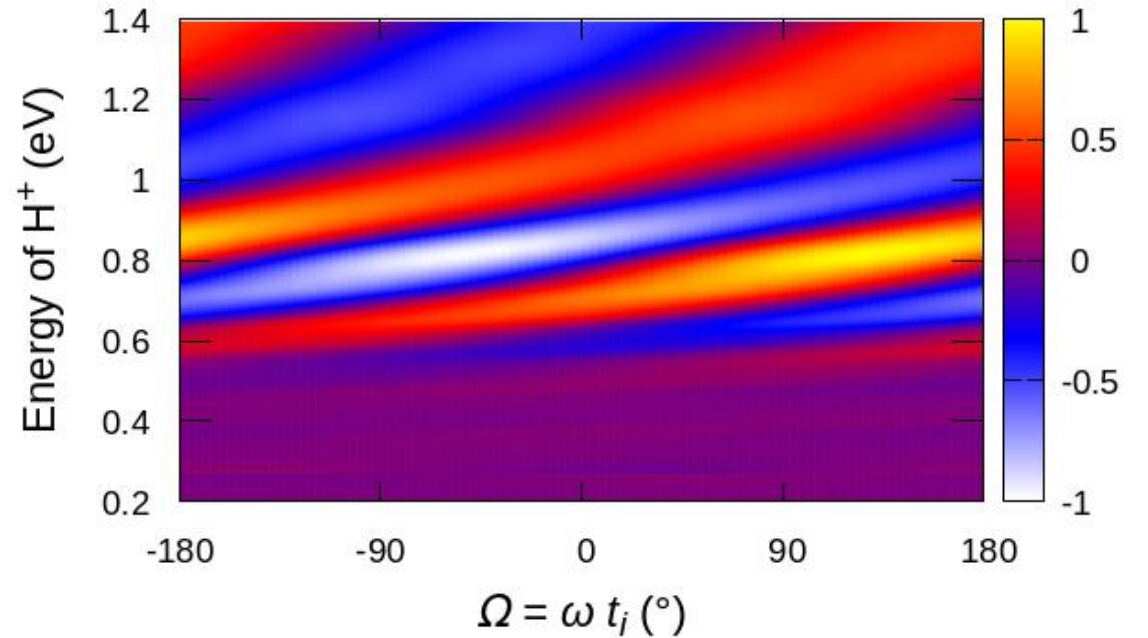
F=0.05 (a.u.)では0.6 eV から $1s\sigma_g(Q_1)$ の立ち上がりが見られる

F=0.20 (a.u.)では1.2 eV からそれぞれのスペクトルが立ち上がっている



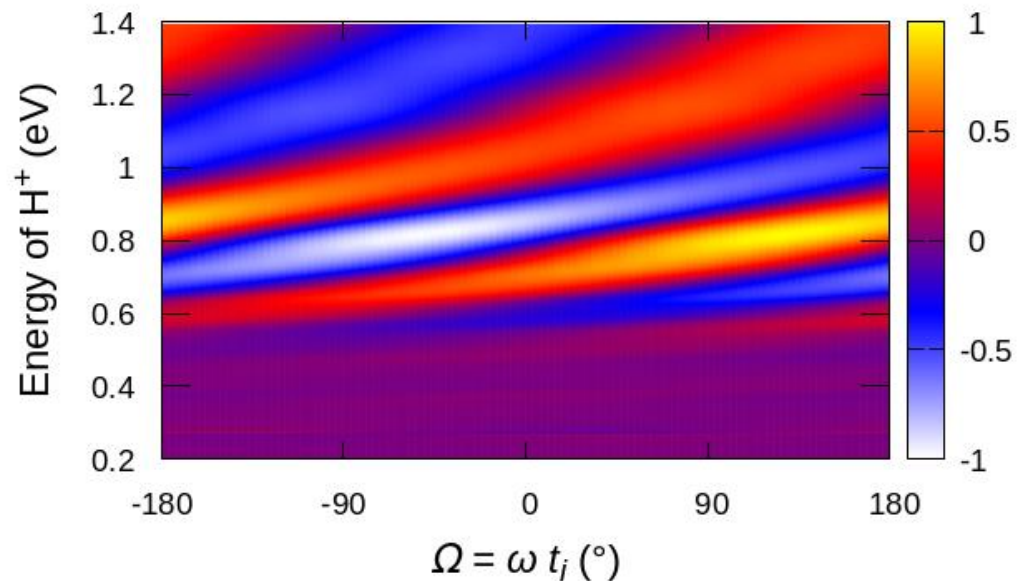
先行研究における数値計算の結果
レーザー強度 $7.0 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$

J. Wu, *et al.*, Nat. commun. 4, 2177 (2013)

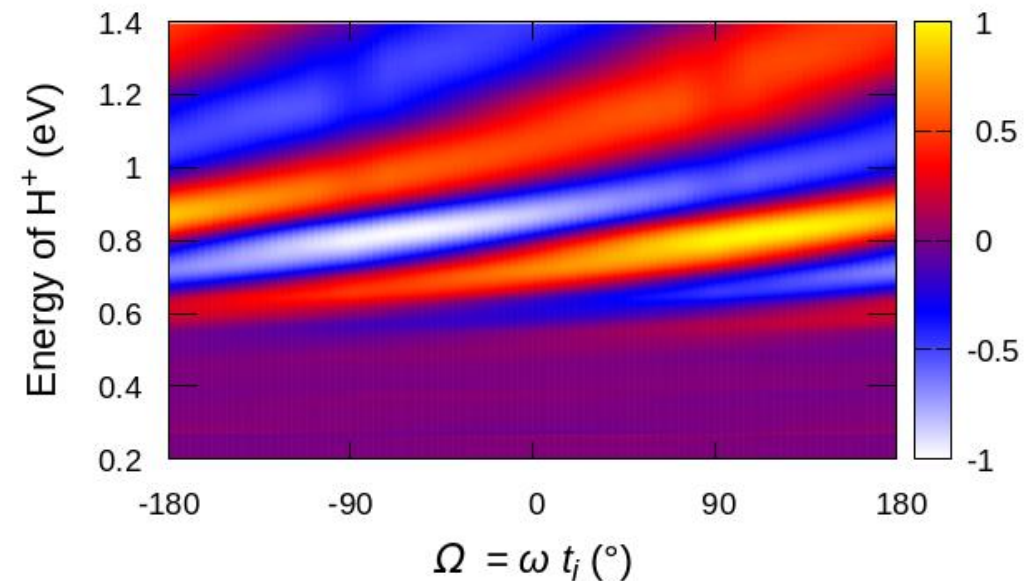


$1\sigma_g, 2p\sigma_u$ を考慮した数値計算の結果
レーザー強度 $8.8 \times 10^{13} \text{W/cm}^2$

σ 状態の2経路を考慮した計算によって先行研究における結果を再現



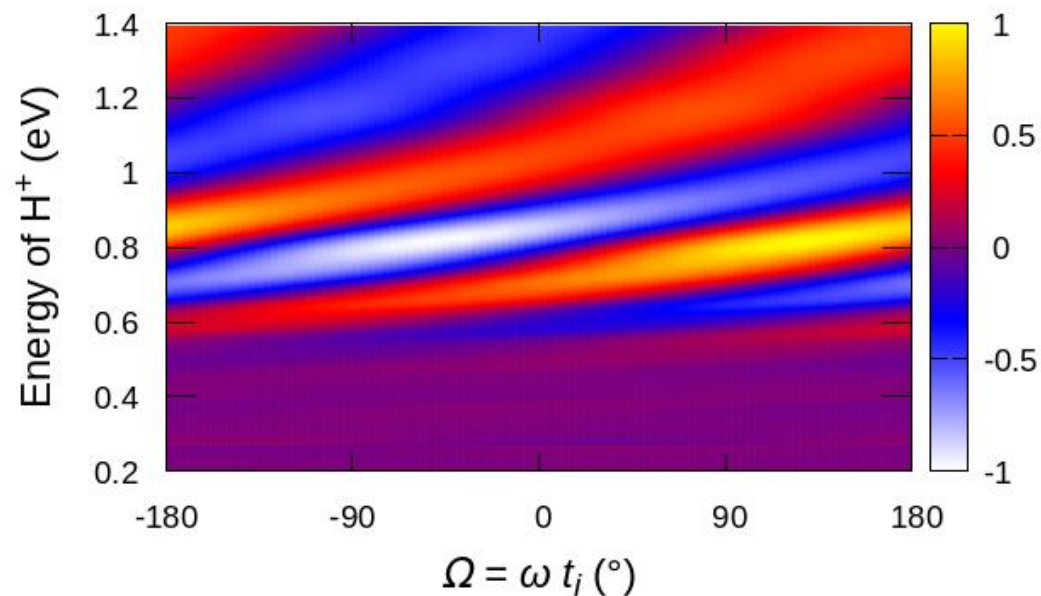
$1s\sigma_g, 2p\sigma_u$ を考慮した数値計算の結果



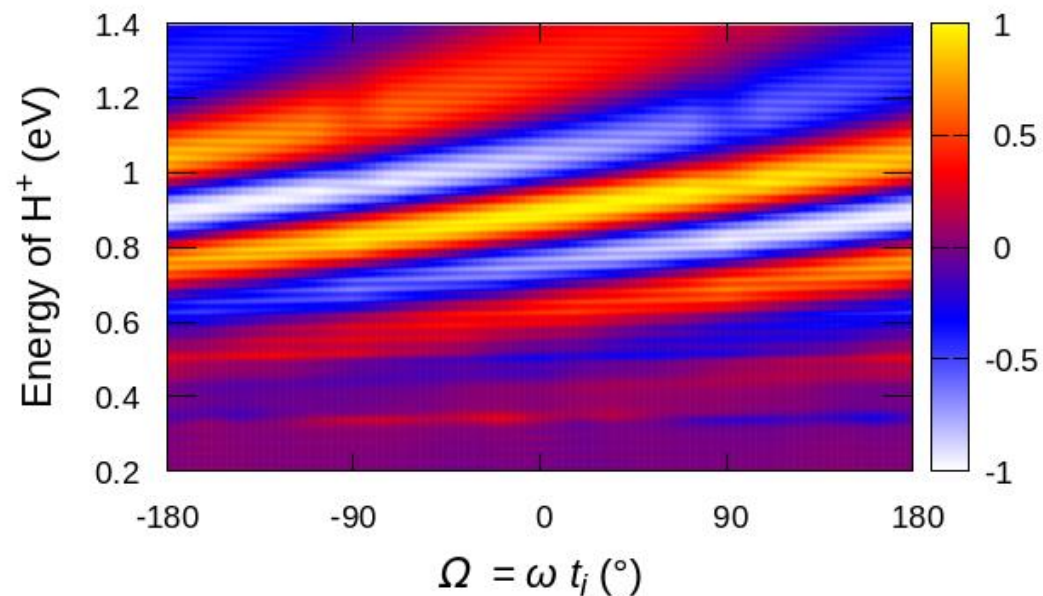
$1s\sigma_g, 2p\sigma_u, 2p\pi_u, 3d\pi_g$ を考慮した数値計算の結果

局在パラメータ $\beta_\sigma = \frac{P_{l,\sigma}(E) - P_{r,\sigma}(E)}{P_{l,\sigma}(E) + P_{r,\sigma}(E)}$
を計算

2準位系と4準位系の計算結果が一致
0.6 eV 付近から非対称性が表れた

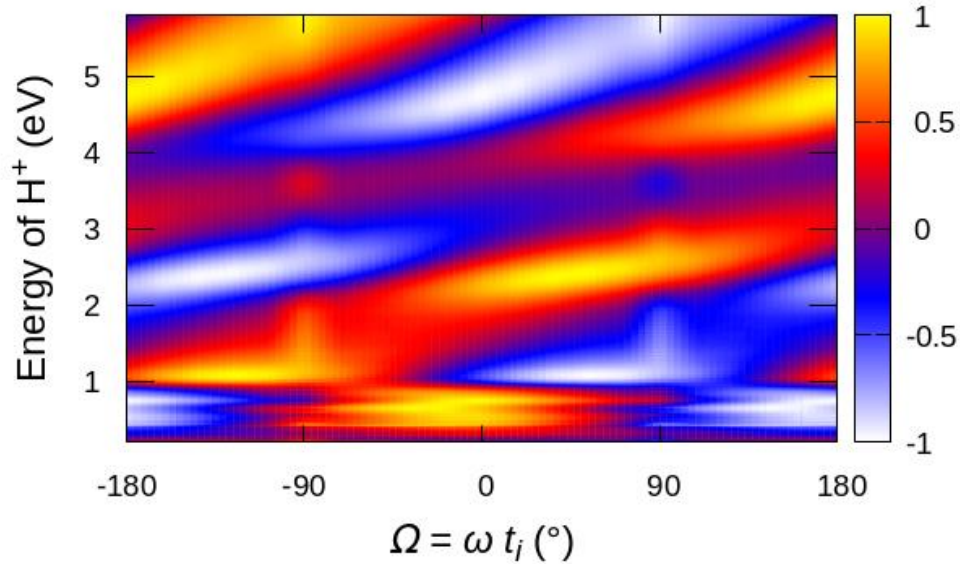


局在パラメータ $\beta_\sigma = \frac{P_{l,\sigma}(E) - P_{r,\sigma}(E)}{P_{l,\sigma}(E) + P_{r,\sigma}(E)}$ を計算

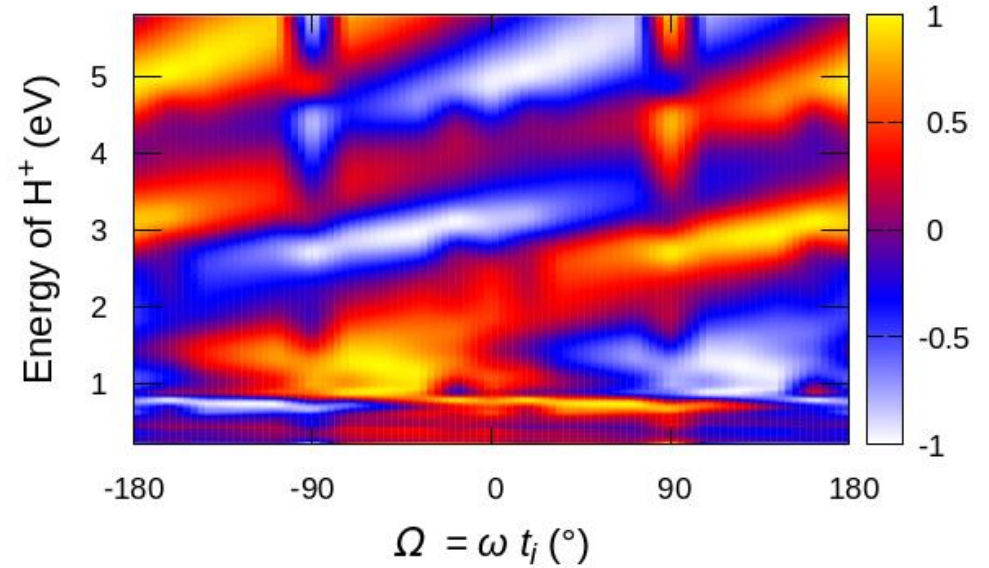


局在パラメータ $\beta_\pi = \frac{P_{l,\pi}(E) - P_{r,\pi}(E)}{P_{l,\pi}(E) + P_{r,\pi}(E)}$ を計算

β_σ と β_π で概形が一致



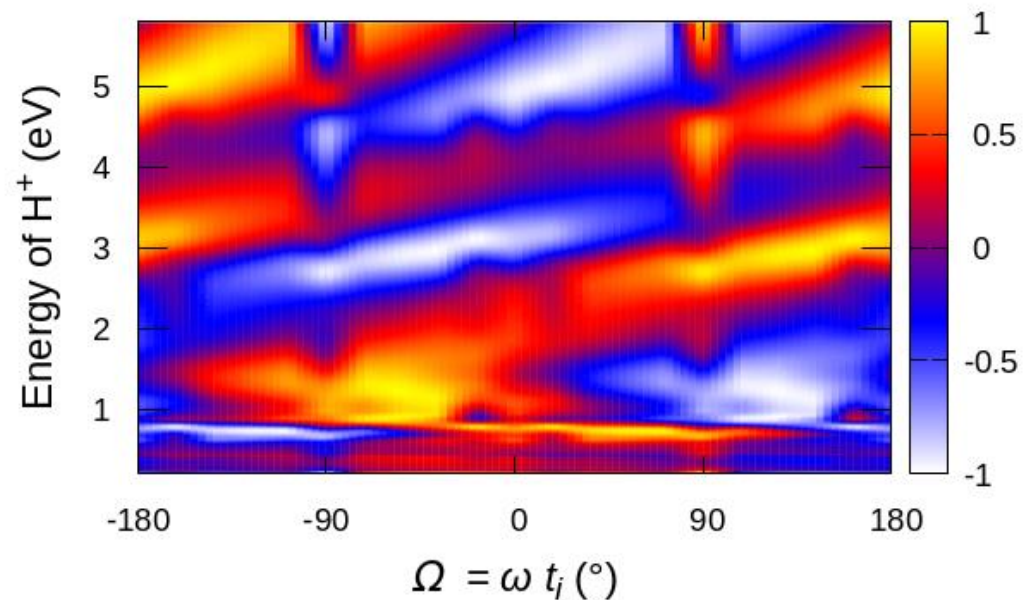
2準位系



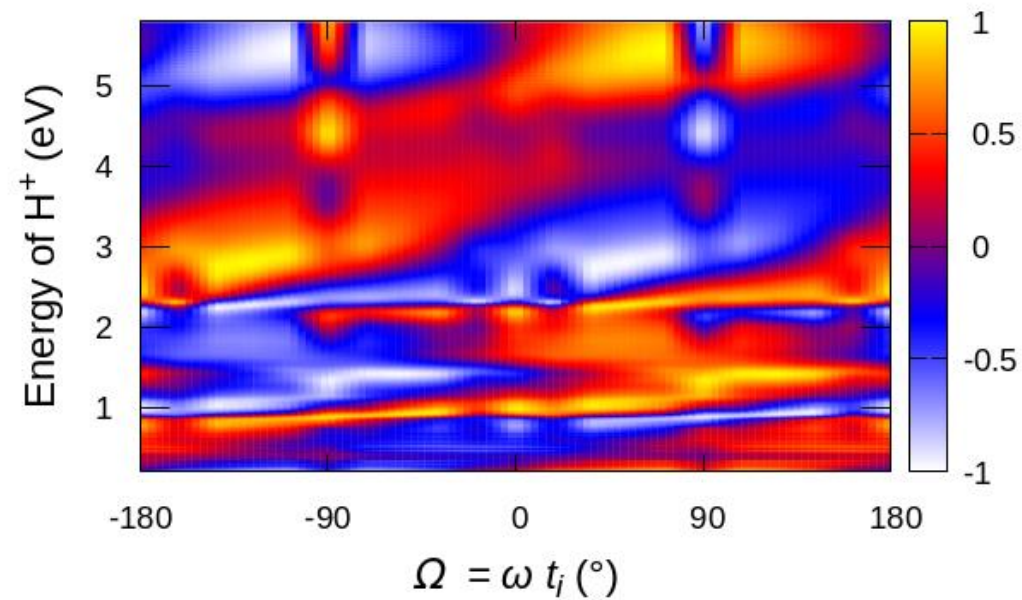
4準位系

横軸を分子軸に対するレーザー場の角度、縦軸を陽子のエネルギーとした
解離時の電子の局在パラメータ β_σ (レーザー強度 $\sim 1.4 \times 10^{15}$ W/cm 2)

2準位系と4準位系の計算結果は $F=0.05$ (a.u.)の時より大きく異なった



局在パラメータ $\beta_\sigma = \frac{P_{l,\sigma}(E) - P_{r,\sigma}(E)}{P_{l,\sigma}(E) + P_{r,\sigma}(E)}$ を計算



局在パラメータ $\beta_\pi = \frac{P_{l,\pi}(E) - P_{r,\pi}(E)}{P_{l,\pi}(E) + P_{r,\pi}(E)}$ を計算

β_σ と β_π でのずれが $F=0.05$ (a.u.) の結果と比べ大きくなった
 π 状態による影響が大きくなったと考える

- 2準位系と4準位系それぞれについて時間依存Schrödinger方程式をBorn-Oppenheimer近似の下でスプリットオペレータ法を使って解き核波動関数を導出した。
- 遷移振幅を求め電子の局在確率から局在パラメータ β を計算した。
- 2準位系と4準位系の β を比較し、上準位の影響を調べた。
- 実験や σ 軌道のみを考慮した数値計算に近いレーザー強度では2準位系の結果と4準位系の結果が一致したが、より高いレーザー強度を用いた場合には2準位系の計算結果とは異なるエネルギー依存性が見いだされた。
- これにより高いレーザー強度における水素分子イオンの解離を記述するためには上準位のポテンシャルを考慮した計算が必要となることを明らかにした。