

氏 名

清野 玲貴

学籍番号

1910359

題 目

強レーザー場中のキセノン原子におけるスピン偏極ダイナミクス

要 旨

指導教員氏名

森下 亨

強レーザー場と原子・分子の相互作用によって生じるトンネルイオン化は、アト秒科学の基礎を成す現象である。近年、HartungらはXe原子の強電場イオン化において、放出電子が特定の条件下で高いスピン偏極度を持つことを実験的に実証し、次世代のスピン偏極電子源としての応用可能性を示した。本研究では、時間依存シュレディンガー方程式 (TDSE) と、準静的極限を記述する Siegert 状態法を用い、トンネル障壁内部での電子状態の変遷とスピン偏極生成のメカニズムを解明することを目的とした。

Xe原子の電子構造を Single-Active Electron (SAE) 近似でモデル化し、数値計算手法として有限要素法と離散変数表示を組み合わせた FEDVR 法を実装した。これにより、大規模な基底系においても高精度な時間発展と固有値計算を可能とした。

解析では、初期状態  $j=m_j=3/2$  (スピンアップ成分のみ) を選択し、TDSEによる動的な光電子運動量分布 (PEMD) の抽出と、Siegert 状態法による非断熱結合行列要素の評価を並行して行った。

TDSE 解析の結果、主成分であるスピンアップ成分の垂直運動量分布  $W(k_{\perp})$  は  $k_{\perp}$  の 2 乗に従った一方で、極めて微量なスピン反転成分 (スピンドアウン) は、PPT 理論が  $m_l=2$  に対して予測する  $k_{\perp}$  の 4 乗のべき乗則に極めて高い精度で一致した。

Siegert 解析の結果、この物理的起源は以下の「三段階の断熱的プロセス」により説明されることが明らかとなった。

- (1) 核近傍での非断熱遷移の抑制: クーロン場が支配的な領域ではパリティ対称性が近似的に保存され、隣接チャンネル間の非断熱結合行列要素が消失する「市松模様」状の構造が現れ、遷移が抑制される。
- (2) 断熱的接続: 電子はこの対称性を保持したまま、初期状態に対応する Stark 状態へと断熱的に接続される。
- (3) 遠心力障壁による選別: スピンドアウン成分が接続された  $m_l=2$  チャンネルは高い遠心力障壁を感じるため、指数関数的にイオン化が抑制される。

本研究により、トンネルイオン化過程は単に電子がランダムに放出される現象ではなく、核近傍の量子情報を保持したまま外部へ取り出す「断熱的スピンフィルター」として機能していることが明らかとなった。この知見は、再散乱干渉縞における高いコヒーレンスの維持を説明するものであり、将来的なアト秒スピン制御技術に対する強固な理論的基盤を与えるものである。

# 強レーザー場中のキセノン原子における スピン偏極ダイナミクス

清野 玲貴

2026年1月29日

## 概要

強レーザー場中における原子・分子のトンネルイオン化は、アト秒科学の基礎であるだけでなく、高次高調波発生 (HHG) や 光電子円二色性 (PECD) など多岐にわたる現象に関わる重要なプロセスである。近年では、この過程が高いスピン選択性を持つ可能性が示唆され、次世代のスピン偏極源としての応用も期待されている。しかし、摂動領域にある 1 光子イオン化とは対照的に、非摂動領域であるトンネルイオン化におけるスピンダイナミクスの理解は遅れている。本研究では、Xe 原子を対象に 時間依存のシュレディンガー方程式 (TDSE) の計算を行い、動的なスピン偏極過程を詳細に解析した。さらに、準静的極限に対応する Siegert 状態法の計算結果と比較することで、トンネル過程における断熱性の役割を定量・定性的に評価した。その結果、トンネルイオン化におけるスピン偏極は、核近傍におけるポテンシャルの近似的対称性による非断熱遷移の抑制、Stark 状態への断熱的な接続、そして遠心力障壁によるスピン反転成分の濾過という三段階のプロセスによって決定されていることを明らかにした。この断熱的なメカニズムは、光電子運動量分布 (PEMD) において微弱なスピン反転成分が明瞭な  $k_{\perp}^4$  依存性を示すことによっても強く支持された。本研究は、強電場下でのスピン偏極生成機構を核近傍から無限遠に至るまでの断熱的接続という観点から統一的に解明し、新たなスピン制御の指針を与えるものである。

## 目次

<b>1</b>	<b>序論</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>理論的背景</b>	<b>4</b>
2.1	全ハミルトニアンと保存則	4
2.2	Single-Active Electron approximation (SAE) とモデルポテンシャル	4
2.3	摂動領域の 1 光子過程におけるスピン偏極の生成機構	5
2.4	非摂動領域でのトンネルイオン化過程における 高強度場近似 (SFA) の限界	8
<b>3</b>	<b>数値計算手法</b>	<b>9</b>
3.1	Finite Element Discrete Variable Representation (FEDVR)	9
3.2	時間依存のシュレディンガー方程式と Split-Operator 法	10
3.3	Siegert 状態法の断熱固有値問題への適用	11
<b>4</b>	<b>計算結果 I: 1 光子イオン化</b>	<b>15</b>
4.1	TDSE によるイオン化確率とスピン偏極	15
4.2	散乱による位相差に起因する干渉メカニズムの検証	17
<b>5</b>	<b>計算結果 II: トンネルイオン化</b>	<b>20</b>
5.1	TDSE による光電子運動量分布 (PEMD) の解析	20
5.2	Siegert 状態法による断熱接続と非断熱相互作用の評価	22
<b>6</b>	<b>考察</b>	<b>25</b>
6.1	1 光子過程とトンネル過程におけるスピンドYNAMIXSの本質的相違	25
6.2	核近傍における近似的対称性の保存	25
6.3	トンネルイオン化における断熱的接続	26
6.4	光電子運動量分布 (PEMD) による断熱的接続の検証	27
<b>7</b>	<b>結論</b>	<b>28</b>

## 1 序論

強レーザー場と原子・分子の相互作用は、電子のふるまいをアト秒オーダーでリアルタイムに観測することを可能にし、化学反応の理解の深化や新たなコヒーレント光源の開発など、多岐にわたる応用を切り拓いてきた。さらに近年では、測定だけに留まらず、レーザーを用いて原子・分子の量子的な状態を超高速で制御する試みが盛んに行われている。その重要な応用の一つが、スピン偏極電子源の開発である。スピン偏極源は、従来の中性子散乱では観測が困難であった固体表面やナノ材料の磁気的な性質を、電子スピンを用いて調べることを可能にし、スピントロニクスや量子情報処理などの分野で重要な役割を果たすと期待されている。その一方で、従来の Gallium Arsenide (GaAs) などの固体スピン偏極源は、デバイスへの組み込みには有利である反面、理論的な偏極度の上限 (50%) や、超高真空環境の必要性、表面劣化による寿命の短さといった課題を抱えている。これに対し、キセノン原子のような希ガス原子を用いたスピン偏極源は、第一に化学的に不活性であるため試料表面を汚染しない清浄なスピン流を得ることができ、また高い偏極度が期待できるなどの利点がある。そのため、強レーザー場中での希ガス原子のイオン化過程におけるスピン偏極生成機構を理解し、制御することは、新たなスピン偏極源の開発に向けた重要な課題となっている。[\[1\]](#) [\[2\]](#) [\[3\]](#)

しかしながら、強レーザー場中での原子・分子のイオン化過程におけるスピンドYNAMIKSの理解は、1光子イオン化などの摂動領域に比べて著しく遅れている。従来の光イオン化で用いることができた摂動論的な手法は、レーザー場の強度がクーロン場に匹敵する非摂動領域では適用できず、事実、Above-Threshold Ionization (ATI) のイオン化レートや HHG スペクトルといった実験的な観測値が、摂動論における多数の光子を吸収してイオン化するといった描像とは一致しないことが知られている。このため、非摂動領域でのイオン化過程を記述するために、SFA や PPT 理論 [\[4\]](#) [\[5\]](#) [\[6\]](#) などが提案されてきた。しかし、SFA では連続状態の電子は原子核のクーロンポテンシャルの影響を受けず、レーザー場のみと相互作用する Volkov 状態として扱われる。SOI は原子核近傍の深いポテンシャル中で作用するため、この近似では無視されてしまい、重原子におけるスピン偏極現象を正しく記述することができない。一方で、近年アイコナル近似を用いてクーロンポテンシャルの効果を SFA に摂動的に導入する方法 [\[7\]](#) [\[8\]](#) [\[9\]](#) [\[10\]](#) や、スピニコヒーレント状態を用いて現象論的に SFA に SOI を導入する方法 [\[11\]](#) などが提案されている。しかし、いずれも強電場下でのスピンドYNAMIKSを厳密に取り扱えていない。また、イオン化レートの計算に広く用いられる手法においても同様に課題が存在する。原子核のクーロンポテンシャルに対して電場が十分弱い場合は、様々な式が導出されているが、これらはあくまでイオン化レートを与える理論であり、どのような経路を経てイオン化に至るのかというダイナミクスを記述するものではない。特に、電子がトンネルする過程では強力な電場によって Stark 混合が生じているはずだが、SOI によってスピン反転が許容される状況下で、なぜ特定のスピン偏極が生じるのかを理解するためには、トンネル障壁内部での電子の振る舞いを詳細に知る必要がある。既存の模型、理論では、束縛状態から Stark 混合を経てトンネル障壁を透過し、連続状態に至る電子の状態の変遷をブラックボックス化してしまっており、それを詳細に記述することはできない。そのため、以上の動的な過程を正確に捉えるためには、厳密な数値計算が必要となる。

本研究の目的は、強レーザー場中の Xe 原子におけるトンネルイオン化過程を解析し、そのスピンドYNAMIKSの物理的起源を解明することである。具体的には、TDSE を数値的に解くことで、パルスレーザー照射下での電子波束の時間発展とスピン偏極生成過程を厳密にシミュレーションする。さらに、本研究の独自のアプローチとして、レーザー場を静電場とみなせる準静的極限に対応する Siegert 状態法の計算を行い、TDSE による動的な結果と定量的に比較・解析する。特に Xe の 5p 準位における  $j = m_j = 3/2$  という初期状態としてス

ピンアップ成分のみを持つ状態に着目することで、トンネル障壁内部での非断熱遷移やスピン反転成分の生成過程を詳細に調査する。また、得られた PEMD を詳細に解析することで、トンネル障壁内部での電子状態の変化を運動量空間から検証するこれにより、既存の理論モデルではブラックボックスとして扱われてきたトンネル障壁内部での電子ダイナミクスに光を当てる。特に、電子が強電場によって Stark 混合を起こし、トンネル障壁を透過して連続状態へと至る一連の過程において、核近傍の対称性や断熱性がスピン状態の保存にどのように寄与し、最終的なスピン偏極を決定づけるのか、その微視的メカニズムを明らかにする。

## 2 理論的背景

### 2.1 全ハミルトニアンと保存則

本研究の計算では  $z$  方向に電場が直線偏光している場合を考え、ハミルトニアンに電場を導入するために長さゲージを用いた。そして、クーロンポテンシャルについては Single-Active Electron approximation (SAE) に基づくモデルポテンシャルを採用した。そして、TDSE, Siegert 状態法共に、SOI を含んだ全ハミルトニアンを以下のように定義した。

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V_{Coulomb}(\mathbf{r}) + V_{SOI}(\mathbf{r}) + \mathcal{F}z \quad (1)$$

ここで、 $V_{Coulomb}(\mathbf{r})$  はクーロンポテンシャル、 $V_{SOI}(\mathbf{r})$  はスピン軌道相互作用項、 $\mathcal{F}$  はレーザー電場である。 $V_{Coulomb}(\mathbf{r})$  と  $V_{SOI}(\mathbf{r})$  は球対称ポテンシャルである。しかし、 $V_{SOI}(\mathbf{r})$  に含まれる  $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$  項は、軌道角運動量  $\mathbf{L}$  とスピン角運動量  $\mathbf{S}$  を結合させるため、個々の量子数  $m_l, m_s$  は保存されない。一方で、全角運動量  $\mathbf{j} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$  の大きさ  $j$  とその量子化軸  $Z$  方向への射影である  $m_j$  は良い量子数となる。そして、そこにレーザー電場が加わると系の球対称性が破れ、全角運動量  $j$  は保存されなくなるが、量子化軸  $Z$  方向への射影である  $m_j$  は保存され続ける。そこで、本研究では初期状態として TDSE では  $j, m_j$  を指定した状態を用い、Siegert state method では  $m_j$  を指定した状態を用いた。

### 2.2 Single-Active Electron approximation (SAE) とモデルポテンシャル

本研究では、Xe 原子の電子構造を記述するために、Single-Active Electron approximation (SAE) を採用した。SAE 近似では、最外殻の 1 つの電子のみがレーザー場と相互作用し、残りの電子は凍結されたものとして扱われる。このとき、電子が感じる有効ポテンシャル  $V_{Coulomb}(r)$  として、次の形式のモデルポテンシャルを用いた。

$$V_{Coulomb}(r) = -\frac{Z_{eff}(r)}{r} \quad (2)$$

ここで、有効核電荷  $Z_{eff}(r)$  は以下のように定義される。

$$Z_{eff}(r) = 1 + (Z_{nuc} - 1) \left[ 1 + \frac{\eta}{\kappa} (e^{\kappa r} - 1) \right]^{-1} \quad (3)$$

本研究は、Xe 原子 ( $Z_{nuc} = 54$ ) に対し、パラメータ  $\eta = 5.197, \kappa = 1.048$  を採用した。このポテンシャルは、原点付近で  $V(r) \sim -Z_{nuc}/r$ 、遠方で  $V(r) \sim -1/r$  となる。

また、重原子である Xe において重要となる Spin-Orbit Interaction (SOI) 項  $V_{SOI}$  は、以下のように導入した。

$$V_{SOI}(\mathbf{r}) = \lambda(r)\mathbf{L} \cdot \mathbf{S} \quad (4)$$

ここで係数  $\lambda(r)$  は, モデルポテンシャル  $V_c(r) = V_{model}(r)$  の動径微分を用いて次のように表される.

$$\lambda(r) = \frac{\alpha^2}{2r} \frac{dV_c}{dr} \quad (5)$$

$\alpha$  は微細構造定数 ( $\alpha \approx 1/137$ ) である. この SOI 項により, 軌道角運動量  $\mathbf{L}$  とスピン角運動量  $\mathbf{S}$  が結合し, 全角運動量  $j$  が保存量の良い量子数となる. 一方で, この状態に電場をかけた際は電場と同じ方向にとった量子化軸  $Z$  への射影である  $m_j$  のみが保存量となる.

## 2.3 摂動領域の 1 光子過程におけるスピン偏極の生成機構

レーザー場の強度が比較的弱く, また周波数が高い場合の 1 光子イオン化過程は摂動論で記述できる. トンネリオン化との比較のため, 1 光子過程では SOI が強い場合にどのようにスピンの混合が起こるかを以下に示す.

### 2.3.1 遷移確率の導出

本研究では, 長さゲージの下でのハミルトニアン  $H$  を以下のように定義する.

$$H = -\frac{\nabla^2}{2} + \frac{Z_{eff}(r)}{r} - \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) = H_0 + V(t) \quad (6)$$

ここで外部電場  $\mathbf{E}(t)$  として, 以下の Gaussian envelope を持つ直線偏光パルスを仮定する.

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}_z E_0 \cos(\omega t + \phi) \exp\left(-\frac{4t^2}{T^2}\right) \quad (7)$$

1 次の時間依存摂動論を用いると, 始状態  $|i\rangle$  から終状態  $|f\rangle$  への遷移係数  $c_f^{(1)}(t)$  は次式で与えられる.

$$c_f^{(1)}(t) = -i \int_{-\infty}^t e^{i\omega_{fi}t'} \langle f|V(t')|i\rangle dt' \quad (8)$$

パルスが入射して十分時間が経過した極限 ( $t \rightarrow \infty$ ) までの積分を実行すると, 遷移振幅  $c_f^{(1)}(\infty)$  は以下のように解析的に求められる.

$$c_f^{(1)}(\infty) = i \frac{\sqrt{\pi} T E_0}{4} M_{fi} \left\{ e^{-i\phi} \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_{fi})^2 T^2}{16}\right) + e^{i\phi} \exp\left(-\frac{(\omega + \omega_{fi})^2 T^2}{16}\right) \right\} \quad (9)$$

この式を用いて遷移確率  $P = |c_f^{(1)}(\infty)|^2$  を計算すると, 以下のようになる.

$$P = \frac{\pi}{16} T^2 E_0^2 \left\{ \exp\left(-\frac{(\omega + \omega_{fi})^2 T^2}{8}\right) + \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_{fi})^2 T^2}{8}\right) + 2 \exp\left(-\frac{\omega^2 + \omega_{fi}^2 T^2}{8}\right) \cos 2\phi \right\} |M_{fi}|^2 \quad (10)$$

以上の式の導出には, 回転波近似を用いていないため, キャリア・エンベロープ位相 (CEP)  $\phi$  に依存する項が現れる. 実際, 回転波近似では  $\omega \approx \omega_{fi}$  のみを考慮し,  $\omega + \omega_{fi}$  に対応する項が無視される. その場合は CEP 依存性が消失し, 遷移確率は上記の式のうち, 2 番目の項のみが残る形となる.

$$P_{RWA} = \frac{\pi}{16} T^2 E_0^2 \exp\left(-\frac{(\omega - \omega_{fi})^2 T^2}{8}\right) |M_{fi}|^2 \quad (11)$$

ここで  $\omega_{fi}$  は遷移エネルギー,  $M_{fi} = \langle \Psi_f | T_0^{(1)} | \Psi_i \rangle$  は遷移双極子モーメントである. スピンのアップとダウン成分の比率は  $|M_{fi}|^2$  に依存するため, 以下ではこの遷移双極子モーメントの計算を詳述する.

### 2.3.2 遷移双極子モーメントと角度因子の分離

Spin-Orbit Interaction (SOI) を含む系において, 遷移双極子モーメント  $M_{fi}$  を計算するために Wigner-Eckart の定理 を適用する. 全角運動量  $j$  の基底を用いると, 行列要素は以下のように記述される.

$$M_{fi} = \langle (l_f s) j_f m_f | T_0^{(1)} | (l_i s) j_i m_i \rangle \quad (12)$$

Wigner-Eckart theorem により, 磁気量子数  $m$  に依存する幾何学的因子 (3j 記号) を分離できる.

$$\langle j_f m_f | T_0^{(1)} | j_i m_i \rangle = (-1)^{j_f - m_f} \begin{pmatrix} j_f & 1 & j_i \\ -m_f & 0 & m_i \end{pmatrix} \langle j_f || T^{(1)} || j_i \rangle \quad (13)$$

さらに, 双極子演算子  $T^{(1)}$  は空間部分にのみ作用しスピンには作用しないため, 6j 記号 を用いた以下の公式により, 軌道部分の既約行列要素を分離できる.

$$\langle (l_f s) j_f || T^{(1)} || (l_i s) j_i \rangle = (-1)^{l_f + s + j_i + 1} \sqrt{(2j_i + 1)(2j_f + 1)} \begin{Bmatrix} l_f & j_f & s \\ j_i & l_i & 1 \end{Bmatrix} \langle l_f || T^{(1)} || l_i \rangle \quad (14)$$

軌道部分の既約行列要素は, 動径波動関数  $R_{nl}(r)$  を用いて以下のように表される.

$$\langle l_f || T^{(1)} || l_i \rangle = (-1)^{l_f} \sqrt{(2l_f + 1)(2l_i + 1)} \begin{pmatrix} l_f & 1 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \int_0^\infty r^3 R_{l_f}(r) R_{l_i}(r) dr \quad (15)$$

以上の式を統合すると, 遷移双極子モーメントは角度成分係数  $C$  と動径積分  $R$  の積として整理される.

$$M_{fi} = C_{l_f, j_f; l_i, j_i} \times R_{l_f, l_i} \quad (16)$$

ここで角度成分係数  $C$  の完全な表式は以下の通りである.

$$C_{l_f, j_f; l_i, j_i} = (-1)^{j_f - m_f} \begin{pmatrix} j_f & 1 & j_i \\ -m_f & 0 & m_i \end{pmatrix} \times (-1)^{l_f + s + j_i + 1} \sqrt{(2j_i + 1)(2j_f + 1)} \begin{Bmatrix} l_f & j_f & s \\ j_i & l_i & 1 \end{Bmatrix} \\ \times (-1)^{l_f} \sqrt{(2l_f + 1)(2l_i + 1)} \begin{pmatrix} l_f & 1 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (17)$$

具体的な遷移経路に対する係数  $C$  の値は以下ようになる.

- $p \rightarrow d, (3/2 \rightarrow 3/2), m = 3/2$ :  $C = -1/\sqrt{5}$
- $p \rightarrow d, (3/2 \rightarrow 5/2), m = 3/2$ :  $C = 2/\sqrt{5}$
- $p \rightarrow d, (3/2 \rightarrow 5/2), m = 1/2$ :  $C = \sqrt{6/5}$
- $p \rightarrow s, (3/2 \rightarrow 1/2), m = 1/2$ :  $C = \sqrt{2/3}$
- $p \rightarrow d, (1/2 \rightarrow 3/2), m = 1/2$ :  $C = \sqrt{2/3}$
- $p \rightarrow s, (1/2 \rightarrow 1/2), m = 1/2$ :  $C = -1/3$

### 2.3.3 干渉効果によるスピン偏極の起源

終状態におけるスピンのアップ・ダウン成分の比率は, 異なる全角運動量  $j_f$  を持つ部分波の干渉によって決定される. [12, 13, 14] SOI を考慮した場合,  $j, m_j$  基底の状態は  $l, m_l, s, m_s$  基底の線形結合として以下のように展開される.

例として初期状態  $(j, m_j) = (3/2, 3/2)$  からの遷移における終状態の展開:

$$|l = 2, j = 3/2, m_j = 3/2\rangle = \sqrt{\frac{4}{5}}|2, 2, -1/2\rangle - \sqrt{\frac{1}{5}}|2, 1, 1/2\rangle \quad (18)$$

$$|l = 2, j = 5/2, m_j = 3/2\rangle = \sqrt{\frac{1}{5}}|2, 2, -1/2\rangle + \sqrt{\frac{4}{5}}|2, 1, 1/2\rangle \quad (19)$$

同様に  $(3/2, 1/2)$  および  $(1/2, 1/2)$  の場合についても展開が可能である。これらの係数と前述の角度係数  $C$ 、動径積分  $R$  (および部分波の位相差  $\delta_{j_f}$ ) を用いると、各スピン成分の生成確率は以下のように導出される。

■Case 1:  $(j, m_j) = (3/2, 3/2)$  この場合、スピンドアウン成分 ( $m_s = -1/2$ ) は2つの経路 ( $j_f = 3/2$  と  $j_f = 5/2$ ) からの寄与の和として表され、干渉項が生じる。

$$P_{up} = \left| -\sqrt{\frac{1}{5}}e^{i\delta_{3/2}}C_{2,3/2}^{3/2}R_{2,1}^{3/2} + \sqrt{\frac{4}{5}}e^{i\delta_{5/2}}C_{2,5/2}^{3/2}R_{2,1}^{5/2} \right|^2 \quad (20)$$

$$P_{down} = \left| \sqrt{\frac{4}{5}}e^{i\delta_{3/2}}C_{2,3/2}^{3/2}R_{2,1}^{3/2} + \sqrt{\frac{1}{5}}e^{i\delta_{5/2}}C_{2,5/2}^{3/2}R_{2,1}^{5/2} \right|^2 \quad (21)$$

■Case 2:  $(j, m_j) = (3/2, 1/2)$

$$P_{up} = \left| -\sqrt{\frac{2}{5}}e^{i\delta_{3/2}}C_{2,3/2}^{1/2}R_{2,1}^{3/2} + \sqrt{\frac{3}{5}}e^{i\delta_{5/2}}C_{2,5/2}^{1/2}R_{2,1}^{5/2} \right|^2 + \left| C_{0,1/2}^{1/2}R_{0,1}^{1/2} \right|^2 \quad (22)$$

$$P_{down} = \left| \sqrt{\frac{3}{5}}e^{i\delta_{3/2}}C_{2,3/2}^{1/2}R_{2,1}^{3/2} + \sqrt{\frac{2}{5}}e^{i\delta_{5/2}}C_{2,5/2}^{1/2}R_{2,1}^{5/2} \right|^2 \quad (23)$$

■Case 3:  $(j, m_j) = (1/2, 1/2)$

$$P_{up} = \left| -\sqrt{\frac{2}{5}}C_{2,3/2}^{1/2}R_{2,1}^{3/2} \right|^2 + \left| C_{0,1/2}^{1/2}R_{0,1}^{1/2} \right|^2 \quad (24)$$

$$P_{down} = \left| \sqrt{\frac{3}{5}}C_{2,3/2}^{1/2}R_{2,1}^{3/2} \right|^2 \quad (25)$$

まず,SOIが無視できる場合、動径方向の波動関数は全角運動量子数  $j_f$  に依存しない。そのため、動径積分  $R$  はすべてのチャンネルで共通の値となる。この場合の初期状態はLS結合で良く記述され、スピン偏極の比率はLS結合状態で展開した際の Clebsch-Gordan 係数によって静的に決定される。つまり、初期状態がスピン偏極の大部分を決定する。これに対し,SOIが強くと作用する場合、状況は本質的に異なる。有効ポテンシャルの相違により動径波動関数が  $j_f$  に依存するため、動径積分  $R$  は経路ごとに異なる大きさを持つことになる。また、 $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$  の影響によってLS結合はもはや系の固有状態とはみなせない。そのため始状態から終状態まで一貫して  $j, m_j$  基底に従った遷移則を考慮する必要がある。特筆すべきは、終状態において同一の磁気量子数  $m_l, m_s$  を持つ成分であっても、それが異なる終状態  $j_f$  を経由して生成される場合、それぞれの経路が異なる位相を持つ点である。したがって、重原子における最終的なスピン偏極は、単なる係数の和ではなく、これら異なる  $j_f$  部分波間の位相差による量子的な干渉によって動的に決定される。

## 2.4 非摂動領域でのトンネルイオン化過程における 高強度場近似 (SFA) の限界

前節では, 摂動領域 (1 光子過程) において, 重原子のイオン化におけるスピン偏極が遷移経路間の量子的な干渉によって決定されることを解析的に示した. これに対し, 本研究が対象とする強レーザー場中のトンネルイオン化過程では, 物理的描写が大きく異なる. レーザー強度が大きく摂動領域から外れる場合でも特に周波数が小さい場合, 準静的な描写が可能となる. この場合, クーロンポテンシャルと短距離ポテンシャルが合わさった原子ポテンシャルがレーザー電場によって傾いたポテンシャル障壁になることで, その障壁をトンネル現象によって電子が脱出するイオン化過程が支配的になる. 水素様原子の場合はこのイオン化レートが  $F \rightarrow 0$  の極限で以下のように求められている.

$$W = \frac{4(2I_p)^{5/2}}{F} \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3F}\right) \quad (26)$$

ここで,  $I_p$  はイオン化ポテンシャル,  $F$  はレーザー電場強度である. さらに, 一般の原子では以下のようにイオン化レートが求められる.

$$W \sim \frac{2l+1}{2^{|m|}|m|!} \left(\frac{2I_p^{3/2}}{F}\right)^{2Z/I_p^{1/2}-|m|-1} \exp\left(-\frac{2I_p^{3/2}}{3F}\right) \quad (27)$$

ここで,  $l$  は軌道角運動量子数,  $m$  は磁気量子数,  $Z$  は有効電荷である. この式で重要な点は, 電場方向に向いた軌道がイオン化に寄与しやすいことを示していることである. これはイオン化レートのみを与えるものであり, 現在研究の対象となっている運動量分布やエネルギースペクトル, スピン偏極などの詳細な情報を与えるものではない. これらを与えるモデルとして, 高強度場近似 (SFA) がある. SFA における重要な近似は以下の 2 点である. まず, イオン化後の電子は原子核のクーロンポテンシャルの影響を受けず, レーザー場のみと相互作用する Volkov 状態として扱うことである. 次に, 束縛状態からの寄与は初期状態のみ考慮し, レーザー場によって励起された他の中間状態への遷移や再衝突過程における束縛状態の影響を無視する. これらの近似の下で, HHG のカットオフ法則や ATI のプラトー構造などを説明することに成功してきた. また, 最近では SFA に摂動的にクーロンポテンシャルの効果を導入する方法なども提案されており, それらの手法は Coulomb-Corrected SFA (CCSFA) や Eikonal-volkov wavefunction などと呼ばれている.

しかしながら, これらの手法を本研究の対象である SOI が強い重原子に適用することには, 本質的な限界がある. 最大の問題は, SFA がイオン化過程を束縛状態から Volkov 状態への直接遷移として定式化しているため, トンネル障壁内部における電子状態の断熱的な変形を無視している点にある. 一般に, 閉殻原子は強電場が印加されると球対称性は破れ, 異なる軌道角運動量  $l$  を持つ状態が混ざり合う Stark 混合が生じる. 特に重原子においては, SOI によって軌道角運動量  $\mathbf{L}$  とスピン角運動量  $\mathbf{S}$  が強く結合しているため, この軌道の混ざり合いは必然的にスピン状態の混ざり合いを引き起こす. ところが, SFA の枠組みでは, 遷移後の状態をスピンや原子核ポテンシャルに依存しない Volkov 状態として扱ってしまう. これは, 本来トンネル障壁内部で起こるはずの SOI の下での Stark 混合という電子のダイナミクスを欠落させてしまっている. SOI は  $r^{-3}$  に比例する短距離ポテンシャルであり, その効果は原子核近傍の障壁内部でのみ顕著となる. クーロンポテンシャルのように遠距離まで及ぶ相互作用であれば, CCSFA のように位相補正として摂動的に導入することも有効であるが核近傍でのみ強く作用し, 波動関数の成分そのものを変容させる SOI を, 単なる摂動として扱うことは困難である. また, SFA の枠組みで SOI を取り扱おうと, スピンコヒーレント状態を Volkov 状態の作用に導入する現象論的な試みもあるが, SFA の基本的な近似がトンネル障壁内部でのダイナミクスを欠落させている以上, 根

本的な解決にはなり得ない。したがって、重原子におけるスピン偏極現象を正しく記述するためには、電場と原子核ポテンシャル（クーロン項および SOI 項）を対等に扱い、トンネル障壁内部での電子の振る舞いを記述できる第一原理的なアプローチが必要不可欠となる。本研究で採用する TDSE および Siegert 状態法は、この要請を満たすものである。

### 3 数値計算手法

#### 3.1 Finite Element Discrete Variable Representation (FEDVR)

本研究では準静的極限でのシュレディンガー方程式で Finite Element Method (FEM) の柔軟性と Discrete Variable Representation (DVR) の高精度を兼ね備えた Finite Element Discrete Variable Representation (FEDVR) を採用した。この手法は、一次元座標を複数の有限要素に分割し、各要素内部において局所的な DVR 基底を用いて波動関数を展開する方法である。[\[15\]](#), [\[16\]](#), [\[17\]](#)

##### 3.1.1 ラグランジュ多項式と基底関数の構築

全領域  $r \in [0, R_{max}]$  を  $N_e$  個の有限区間  $[r_i, r_{i+1}]$  ( $i = 1, \dots, N_e$ ) に分割する。ここで  $r_1 = 0, r_{N_e+1} = R_{max}$  である。各区間内において、 $M$  次の Gauss-Lobatto 求積法の分点  $\{x_m\}_{m=1}^M$  を用いて、以下のラグランジュ多項式  $f_m(x)$  を基底関数として導入する。

$$f_m(x) = \prod_{\substack{k=1 \\ k \neq m}}^M \frac{x - x_k}{x_m - x_k} \quad (28)$$

この関数は、分点上において  $f_m(x_n) = \delta_{mn}$  という基本的な性質を満たす。各区間  $i$  における物理座標  $r$  は、局所座標  $x \in [-1, 1]$  と以下の線形写像によって結ばれる。

$$r^{(i)}(x) = \frac{r_{i+1} - r_i}{2}x + \frac{r_{i+1} + r_i}{2} \quad (29)$$

FEDVR の全空間における基底関数  $f_\alpha(r)$  は、これら局所的なラグランジュ多項式で補間することで構成される。すなわち、第  $e$  区間の右端点 ( $x_M = 1$ ) と第  $e+1$  区間の左端点 ( $x_1 = -1$ ) は同一の物理座標を持つグリッド点として扱われ、区間の境界で基底関数が連続するように定義される。

##### 3.1.2 Gauss-Lobatto 求積法と Golub-Welsch method

各区間内での積分や基底関数の構築には、 $M$  点の Gauss-Lobatto 求積法を用いた。Lobatto 求積法は区間の両端  $(-1, 1)$  を分点に含むため、境界条件の取り扱いが容易であるという利点がある。分点  $x_m$  と重み  $w_m$  の導出には、数値的に安定な Golub-Welsch method [\[18\]](#) を採用した。 $M$  点の Lobatto 求積の内部  $M-2$  点は、重み関数  $(1-x^2)$  に対する直交多項式、すなわち ヤコビ多項式  $P_n^{(1,1)}(x)$  ( $n = 0, \dots, M-3$ ) の根として与えられる。本計算では、以下の 3 項間漸化式を利用して対称三重対角行列を構築した。

$$xp_n(x) = a_n p_{n+1}(x) + b_n p_n(x) + c_n p_{n-1}(x) \quad (30)$$

ここで、具体的には以下のパラメータを用いた。

$$a_n = 1, \quad b_n = 0, \quad c_n = \frac{(2n+3)(2n+4)}{2(n+1)(n+3)}, \quad d_n = \frac{n+2}{n+3} \quad (31)$$

この漸化式から  $M-2$  次対称三重対角行列を構成し, LAPACK の DSTEV ルーチンを用いてその固有値を求めることで Lobatto 点と重みを計算した.

### 3.1.3 ハミルトニアン行列の構築

FEDVR 基底を用いたハミルトニアン行列  $H_{\alpha\beta}$  の構築手順について述べる. まず, 各区間  $e$  内部において局所的な行列要素を計算する. 区間ごとの質量行列  $M^{(e)}$  の成分は, ラグランジュ多項式の直交性を利用して以下のように対角行列として得られる.

$$M_{ij}^{(e)} = \int_{x_i}^{x_{i+1}} f_i^{(e)}(x) f_j^{(e)}(x) dx \approx j_e w_i \delta_{ij} \quad (32)$$

ここで  $j_e$  は区間のヤコビアン,  $w_i$  は求積法の重みである. また, 運動エネルギーに対応する行列  $K^{(e)}$  は, 基底関数の微分を用いて以下のように計算される.

$$K_{ij}^{(e)} = \int_{x_i}^{x_{i+1}} \frac{df_i}{dx} \frac{df_j}{dx} dx = \frac{1}{j_e} \sum_{k=1}^M w_k \frac{df_i}{dx}(x_k) \frac{df_j}{dx}(x_k) \quad (33)$$

次に, 全領域での行列  $M_{global}$  と  $K_{global}$  を構築する. 区間の境界点における行列要素は, その点を共有する隣接した2つの区間からの寄与を足し合わせることで決定される. 最終的なハミルトニアン行列  $H$  は, 正規化された基底関数に対応させるため, 全体の質量行列  $M_{global}$  の要素を用いて運動エネルギー項をスケールリングし, そこに対角化されたポテンシャル項を加えることで得られる.

$$H_{ij} = \frac{1}{2} \frac{K_{global,ij}}{\sqrt{M_{global,i} M_{global,j}}} + V(x_i) \delta_{ij} \quad (34)$$

ここで  $V(x_i)$  は各グリッド点におけるポテンシャルエネルギーの値である. このように構築されたハミルトニアンは疎行列となるため, 大規模な数値計算においても効率的な対角化や時間発展が可能となる場合がある.

## 3.2 時間依存のシュレディンガー方程式と Split-Operator 法

TDSE の時間発展には, スプリットオペレーター法 (Split-Operator method) を採用した. 微小時間  $\Delta t$  における時間発展演算子  $\hat{U}(t+\Delta t, t)$  は, 全ハミルトニアンをレーザー場を含まないもの  $\hat{H}_0$  とレーザー場との相互作用項  $\hat{V}_{int}(t)$  に分割することで, 以下のように近似される.

$$\Psi(t+\Delta t) \approx e^{-i\hat{H}_0\Delta t/2} e^{-i\hat{V}_{int}(t+\Delta t/2)\Delta t} e^{-i\hat{H}_0\Delta t/2} \Psi(t) + O(\Delta t^3) \quad (35)$$

レーザー場との相互作用ポテンシャルを表す演算子  $\hat{V}_{int}$  は DVR グリッド上で対角行列となるため, 指数関数演算子  $e^{-i\hat{V}_{int}\Delta t}$  の作用は単純な計算になる. これにより, 大規模な基底系であっても高速かつ高精度な時間発展が可能となっている.

### 3.3 Siegert 状態法の断熱固有値問題への適用

放物線座標系  $(\xi, \eta, \phi)$  を導入して, この座標系で数値的にトンネルイオン化を解析する. 実験でトンネルイオン化を考える場合は高強度のパルスレーザーが用いられるが, そのレーザーの周波数が非常に小さい極限の準静的の場合には, 静電場の場合と同様の理論が適用可能だと考えられる. パルスの影響が無視できない TDSE の結果と, この Siegert 状態法による準静的極限の結果を比較することで, トンネルイオン化過程におけるスピン偏極のメカニズムを明らかにすることが本研究の目的である. Siegert 状態法については [19] を参考にした.

#### 3.3.1 放物線座標系における定式化

本研究では, スピン軌道相互作用を含む Siegert 状態を計算するために, 放物線座標系  $\xi = r + z, \eta = r - z, \phi = \tan^{-1}(y/x)$  を用いた定式化を採用する. 全ハミルトニアン (原子単位系) は以下のように表される.

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(r) + V_{SOI}(r) \quad (36)$$

ここで  $V(r) = V_{Coulomb}(r) + \mathcal{F}z$  はクーロンポテンシャルと外部電場を含むポテンシャル項である. 放物線座標系におけるシュレーディンガー方程式  $(H - E)\Psi = 0$  に  $\frac{1}{4}(\xi + \eta)$  を乗じると, スピン軌道相互作用項  $H_{SO} = \lambda(r)\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$  を含めて以下の形式が得られる.

$$\left[ -\frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right) - \frac{\partial}{\partial \eta} \left( \eta \frac{\partial}{\partial \eta} \right) - \frac{1}{4} \left( \frac{1}{\xi} + \frac{1}{\eta} \right) \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{\xi + \eta}{4} (2V(\xi, \eta) - 2E) + \frac{\xi + \eta}{4} (2V_{SOI}) \right] \Psi(\xi, \eta, \phi) = 0 \quad (37)$$

ここで波動関数を,  $\xi$  に依存する断熱固有関数  $\Phi_\nu(\eta; \xi, \phi, \sigma)$  と  $\eta$  に依存するチャンネル関数  $\chi_\nu(\eta)$  の積で展開する.

$$\Psi(\eta, \xi, \phi, \sigma) = \sum_\nu \frac{\chi_\nu(\eta)}{\sqrt{\eta}} \Phi_\nu(\eta; \xi, \phi, \sigma) = \sum_\nu \frac{\chi_\nu(\eta)}{\sqrt{2\pi\eta}} \begin{pmatrix} \phi_{\nu\uparrow}(\xi; \eta) e^{i(m_j - 1/2)\phi} \\ \phi_{\nu\downarrow}(\xi; \eta) e^{i(m_j + 1/2)\phi} \end{pmatrix} \quad (38)$$

これを元のシュレーディンガー方程式に代入し,  $\eta$  の微分を含まない断熱固有値方程式と,  $\eta$  の微分を含む Close-Coupling 方程式に分離する.

#### 3.3.2 断熱固有値方程式と行列要素

断熱固有関数  $\Phi_\nu$  が満たすべき断熱固有値方程式は,  $\eta$  をパラメータとして以下のように記述される.

$$\hat{B}(\eta)\Phi_\nu = \beta_\nu(\eta)\Phi_\nu \quad (39)$$

ここで演算子  $\hat{B}(\eta)$  の具体的な表式は以下の通りである.

$$\begin{aligned}
\hat{B}(\eta)\Phi &= \frac{\partial}{\partial\xi} \left( \xi \frac{\partial\Phi}{\partial\xi} \right) + \frac{\xi + \eta}{4\xi\eta} \frac{\partial^2\Phi}{\partial\phi^2} \\
&\quad - \frac{1}{2}\lambda(\xi, \eta)\sqrt{\xi\eta} \frac{\xi + \eta}{2} (S_+ e^{-i\phi} - S_- e^{i\phi}) \frac{\partial\Phi}{\partial\xi} \\
&\quad + \frac{i}{2}\lambda(\xi, \eta) \frac{\xi + \eta}{2} \left( \frac{\xi - \eta}{2\sqrt{\xi\eta}} (S_+ e^{-i\phi} + S_- e^{i\phi}) + 2S_z \right) \frac{\partial\Phi}{\partial\phi} \\
&\quad + \left[ -\frac{\xi + \eta}{2} V_c + \frac{E\xi}{2} - \frac{F\xi^2}{4} \right] \Phi
\end{aligned} \tag{40}$$

$m_j$  を固定した場合, 断熱方程式はスピノル成分に対する  $2 \times 2$  行列方程式となる.

$$\begin{pmatrix} \hat{B}_{\uparrow\uparrow} & \hat{B}_{\uparrow\downarrow} \\ \hat{B}_{\downarrow\uparrow} & \hat{B}_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_{\nu\uparrow} \\ \phi_{\nu\downarrow} \end{pmatrix} = \beta_\nu(\eta) \begin{pmatrix} \phi_{\nu\uparrow} \\ \phi_{\nu\downarrow} \end{pmatrix} \tag{41}$$

対角項 ( $\hat{B}_{\uparrow\uparrow}, \hat{B}_{\downarrow\downarrow}$ ) は運動エネルギー項, ポテンシャル項, および  $L_z S_z$  項を含み, 非対角項 ( $\hat{B}_{\uparrow\downarrow}, \hat{B}_{\downarrow\uparrow}$ ) はスピン反転を引き起こす  $L_\pm S_\mp$  項に対応する. 具体的な行列要素は以下のように書き下される.

$$\hat{B}_{\uparrow\uparrow} = \frac{\partial}{\partial\xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial\xi} \right) - \frac{(m_j - 1/2)^2(\xi + \eta)}{4\xi\eta} + \frac{\xi + \eta}{2}(V_c - E) + \frac{1}{2}(m_j - 1/2)\lambda \frac{\xi + \eta}{2} \tag{42}$$

$$\hat{B}_{\downarrow\downarrow} = \frac{\partial}{\partial\xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial\xi} \right) - \frac{(m_j + 1/2)^2(\xi + \eta)}{4\xi\eta} + \frac{\xi + \eta}{2}(V_c - E) - \frac{1}{2}(m_j + 1/2)\lambda \frac{\xi + \eta}{2} \tag{43}$$

$$\hat{B}_{\uparrow\downarrow} = -\frac{1}{2}C_1\lambda \frac{\partial}{\partial\xi} - \frac{1}{2}(m_j + 1/2)C_2\lambda \tag{44}$$

$$\hat{B}_{\downarrow\uparrow} = +\frac{1}{2}C_1\lambda \frac{\partial}{\partial\xi} - \frac{1}{2}(m_j - 1/2)C_2\lambda \tag{45}$$

ここで  $C_1, C_2$  は放物線座標系の採用に伴う係数であり, 以下のように与えられる.

$$C_1(\xi, \eta) = \sqrt{\xi\eta} \frac{\xi + \eta}{2}, \quad C_2(\xi, \eta) = \frac{\xi^2 - \eta^2}{4\sqrt{\xi\eta}} \tag{46}$$

この演算子  $\hat{B}$  の行列要素を FEDVR 基底を用いて計算し対角化することで, 断熱固有値  $\beta_\nu(\eta)$  と断熱固有関数  $\Phi_\nu$  を求めた. さらに, このようにして得られた高精度な固有ベクトルを用いることで, ヘルマン-ファインマンの定理に基づいた非断熱結合項の計算を極めて高い精度で行うことが可能となっている.

### 3.3.3 Close-Coupling 方程式と境界条件

チャンネル関数  $\chi_\nu(\eta)$  が満たす Close-Coupling 方程式は, 以下ようになる.

$$\begin{aligned}
& \frac{d^2 \chi_\nu}{d\eta^2} + \left[ \frac{E}{2} + \frac{F\eta}{4} + \frac{\beta_\nu(\eta)}{\eta} + \frac{1}{4\eta^2} \right] \chi_\nu \\
& + \sum_\mu \left[ 2 \langle \Phi_\nu | \frac{d\Phi_\mu}{d\eta} \rangle \frac{d\chi_\mu}{d\eta} + \langle \Phi_\nu | \frac{d^2 \Phi_\mu}{d\eta^2} \rangle \chi_\mu \right] \\
& + \frac{1}{2\eta} \sum_\mu \langle \alpha_\nu | S_- | \alpha_\mu \rangle \left[ \langle \Phi_\nu | \lambda \sqrt{\xi\eta} e^{i\phi} | \Phi_\mu \rangle \left( -\frac{1}{2\eta} + \frac{d}{d\eta} \right) \chi_\mu + \langle \Phi_\nu | \lambda \sqrt{\xi\eta} e^{i\phi} | \frac{d\Phi_\mu}{d\eta} \rangle \chi_\mu \right] \\
& - \frac{1}{2\eta} \sum_\mu \langle \alpha_\nu | S_+ | \alpha_\mu \rangle \left[ \langle \Phi_\nu | \lambda \sqrt{\xi\eta} e^{-i\phi} | \Phi_\mu \rangle \left( -\frac{1}{2\eta} + \frac{d}{d\eta} \right) \chi_\mu + \langle \Phi_\nu | \lambda \sqrt{\xi\eta} e^{-i\phi} | \frac{d\Phi_\mu}{d\eta} \rangle \chi_\mu \right] \\
& = 0
\end{aligned} \tag{47}$$

ここで  $\alpha_\nu$  はチャンネル  $\nu$  に対応するスピン状態である。今回は  $\Phi_\nu$  のみをスピノルとして扱い、 $S_-$ ,  $S_+$  というのは各チャンネルの  $\phi_\uparrow, \phi_\downarrow$  成分で  $\langle \phi_{\nu\uparrow} | \lambda \frac{d\phi_{\mu\pm}}{d\eta} \rangle$  のように計算される。

### 3.3.4 R 行列伝搬法

各区間  $[\eta_i, \eta_{i+1}]$  における動径方向の波動関数  $\chi(\eta)$  は、以下の連立微分方程式に従う。

$$(\hat{H} - E)\chi(\eta) = -\frac{1}{2} \left[ \frac{d^2}{d\eta^2} + \mathbf{P}(\eta) \frac{d}{d\eta} + \mathbf{W}(\eta) \right] \chi(\eta) = 0 \tag{48}$$

ここで  $\mathbf{P}$  は 1 階微分項の係数行列であり、非断熱結合に由来する反エルミート行列。  $\mathbf{W}$  はポテンシャル項などを含むエルミート行列である。有限区間でのハミルトニアン  $\hat{H}$  のエルミート性を保証し、R 行列を定義するために、以下の 2 つの Bloch 演算子  $\hat{L}_1, \hat{L}_2$  を導入する。  $\hat{L}_1$  は通常の 2 階微分項に対する区間ごとにエルミートを保つための演算子であり、 $\hat{L}_2$  は 1 階微分項  $\mathbf{P}$  に起因する演算子である。

$$\hat{L}_1 = \frac{1}{2} \left[ \delta(\eta - \eta_{i+1}) \frac{d}{d\eta} - \delta(\eta - \eta_i) \frac{d}{d\eta} \right] \tag{49}$$

$$\hat{L}_2 = \frac{1}{4} \mathbf{P}(\eta) [\delta(\eta - \eta_{i+1}) - \delta(\eta - \eta_i)] \tag{50}$$

各区間において、演算子  $\hat{H} + \hat{L}_1 + \hat{L}_2$  を DVR 基底を用いて行列化し、対角化を行う。得られた区間固有値  $E_k^{(sec)}$  と区間境界での幅値  $\mathbf{u}_k$  を用いて、区間の両端点  $\eta_a (= \eta_i), \eta_b (= \eta_{i+1})$  における局所 R 行列  $\mathbf{r}$  の各ブロック成分は次のように構成される。

$$\mathbf{r}_{\alpha\beta}(E) = \frac{1}{2} \sum_k \frac{\mathbf{u}_k(\eta_\alpha) \mathbf{u}_k^\dagger(\eta_\beta)}{E_k^{(sec)} - E} \quad (\alpha, \beta \in \{a, b\}) \tag{51}$$

ここで、左辺の  $\mathbf{r}_{\alpha\beta}$  はチャンネル数  $\times$  チャンネル数の行列であり、右辺の和はセクター内の全固有状態  $k$  について取られる。この局所 R 行列  $\mathbf{r}$  を用いた全体の R 行列の伝搬は、伝搬方向に応じて以下の漸化式により行われる。

まず、原点から接続点  $\eta_{match}$  へ向かう外向き伝搬では、各セクター  $[\eta_i, \eta_{i+1}]$  において、内側の境界  $\eta_i$  での R 行列  $\mathbf{R}_i$  から 外側の境界  $\eta_{i+1}$  での R 行列  $\mathbf{R}_{i+1}$  を求める。

$$\mathbf{R}_{i+1} = \mathbf{r}_{bb} - \mathbf{r}_{ba}(\mathbf{r}_{aa} + \mathbf{R}_i)^{-1} \mathbf{r}_{ab} \tag{52}$$

この漸化式を原点（初期条件  $\mathbf{R}_0 = \mathbf{0}$ ）から適用し、接続点での外向き R 行列  $\mathbf{R}_{in} \equiv \mathbf{R}(\eta_{match})$  を得る。  
一方、外部境界  $\eta_{max}$  から接続点へ向かう内向き伝搬では、 $\eta_{i+1}$  での R 行列  $\mathbf{R}_{i+1}$  から  $\eta_i$  での R 行列  $\mathbf{R}_i$  を求める以下の漸化式を用いる。

$$\mathbf{R}_i = \mathbf{r}_{aa} - \mathbf{r}_{ab}(\mathbf{r}_{bb} + \mathbf{R}_{i+1})^{-1}\mathbf{r}_{ba} \quad (53)$$

内向き伝搬の初期値となる外部境界  $\eta_{max}$  での R 行列  $\mathbf{R}_{max}$  は、外向きの波のみが存在するという Siegert 境界条件より解析的に与えられる。

$$[\mathbf{R}_{max}(E)]_{\mu\nu} = \delta_{\mu\nu} \left[ \frac{\chi'_\nu}{\chi_\nu} \Big|_{\eta=\eta_{max}} \right]^{-1} \quad (54)$$

ここで、無限遠においてクーロンポテンシャルと電場のみが残った際のチャンネル関数の解  $\chi_\nu(\eta)$  は以下のよう  
に与えられる。

$$\chi_\nu(\eta) = \frac{\sqrt{2}}{(F\eta)^{1/4}} \exp \left[ i \left( \frac{\sqrt{F}\eta^3}{3} + E\sqrt{\frac{\eta}{F}} \right) \right] \quad (55)$$

したがって、その対数微分は以下の通りである。

$$\frac{\chi'_\nu}{\chi_\nu} = \frac{i}{2}\sqrt{F\eta} + \frac{iE}{2\sqrt{F\eta}} - \frac{1}{4\eta} \quad (56)$$

この初期値から内向きに伝搬を行い、接続点での内向き R 行列  $\mathbf{R}_{out} \equiv \mathbf{R}(\eta_{match})$  を得る。最終的な Siegert 状態の決定条件は、接続点におけるこれら 2 つの R 行列の一致条件となる。

$$\det[\mathbf{R}_{in}(\eta_{match}; E) - \mathbf{R}_{out}(\eta_{match}; E)] = 0 \quad (57)$$

この条件を満たす複素エネルギー  $E$  を割線法を用いて探索することで、Siegert 状態のエネルギーと崩壊率 ( $\Gamma = -2\text{Im}[E]$ ) を決定することができる。

## 4 計算結果 I: 1 光子イオン化

### 4.1 TDSE によるイオン化確率とスピン偏極

1 光子過程については、まず TDSE を用いて光電子の運動量分布とエネルギースペクトルを計算した。図 1 に光電子運動量分布を、図 2 にエネルギースペクトルを示す。初期状態  $j = 3/2, m_j = 3/2$  からのイオン化において、エネルギースペクトルは理論的な予測と一致するガウス分布形状を示している。スピン偏極に関しては、スピニアップ成分の収量がスピンドアウン成分に対して約 40 倍程度大きく、明確なスピン偏極が確認された。

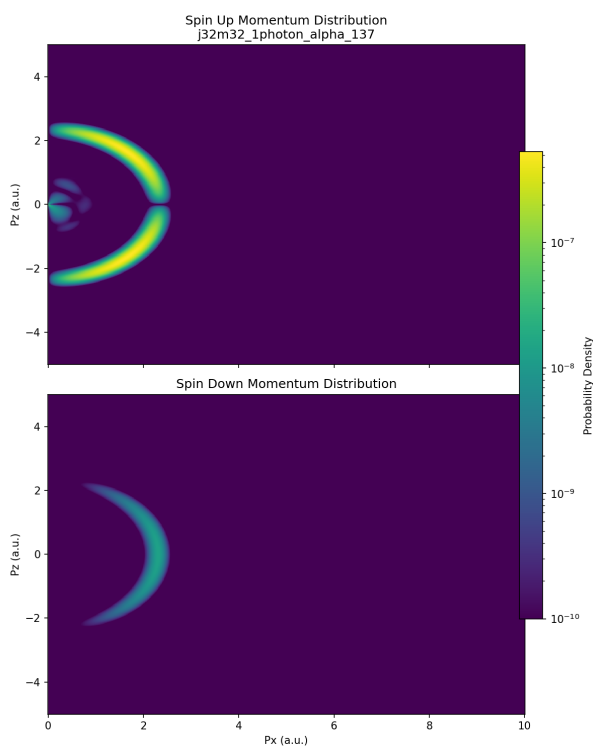


図 1: 1 光子イオン化過程における光電子運動量分布 (TDSE). (上) スピニアップ (下) スピンドアウン. 初期状態  $j = 3/2, m_j = 3/2$ .

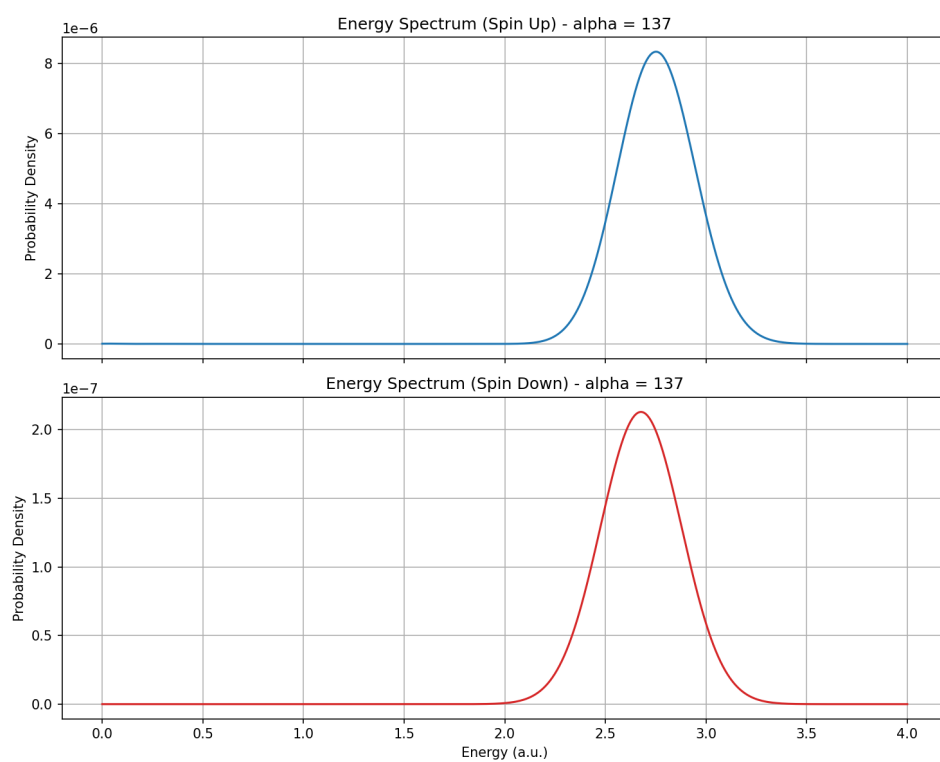


図 2: 1 光子イオン化過程における光電子エネルギースペクトル.

## 4.2 散乱による位相差に起因する干渉メカニズムの検証

TDSE 計算で得られたスピン偏極の起源が、部分波間の位相差による干渉効果であることを確認するため、摂動論に基づく解析を行った。具体的には、初期状態  $j = m_j = 3/2$  から双極子遷移によって生成された連続状態が、クーロンポテンシャルとスピン軌道相互作用の影響下で散乱される過程を記述する積分方程式を数値的に解き、各散乱チャンネルの位相差と動径積分を評価した。[\[20\]](#) [\[21\]](#)

初期状態  $j = m_j = 3/2$  からの 1 光子イオン化では、遷移選択則により最終状態の軌道角運動量は  $l = 2$  ( $d$  波) のみが寄与する。さらにスピン軌道相互作用により、最終状態は  $j = 5/2$  と  $j = 3/2$  の 2 つの散乱チャンネルに分裂する。これら 2 つのチャンネルは有効ポテンシャルが異なるため、それぞれのチャンネルで異なる散乱位相のずれ  $\delta_{l,j}$  が生じる。この位相差が、スピニアップ成分とスピンドアウン成分の間で異なる干渉条件をもたらし、結果としてスピン偏極が発生する。

[図 4](#) に、この理論モデルに基づいて計算されたスピン成分の比率を示す。また、[図 3](#) に各散乱チャンネルの位相を示す。これらの結果から、摂動的な解析に基づく理論モデルにおいても  $10^1 \sim 10^2$  倍程度のスピン偏極比が生じることが示され、TDSE 計算で得られた結果と定量的に良い一致を示した。これは、1 光子過程におけるスピン偏極が、波動関数の動的な干渉効果に支配されていることを裏付けている。

1 枚目のグラフでは横軸は連続状態になった光電子の運動エネルギー (a.u.) であり、破線は干渉がない場合の各スピン成分の大きさを示す。位相のずれによって、干渉が起こった実際のスピン成分の大きさは実線で示されている。2 枚目のグラフでは、横軸は連続状態の光電子エネルギー (a.u.) であり、スピンの比率が緑色の実線で示されている。

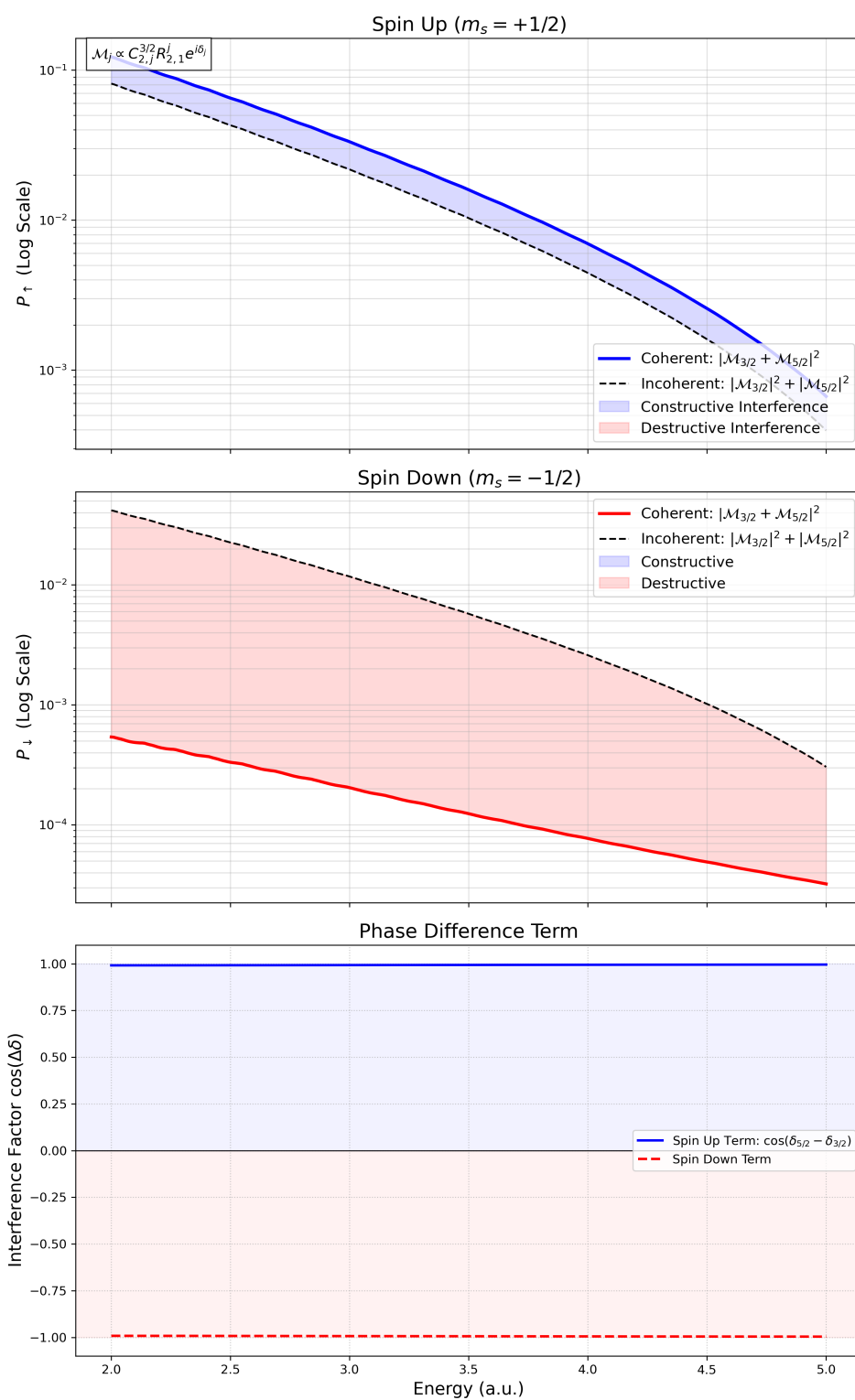


図 3: 干渉項とスピン成分の大きさ

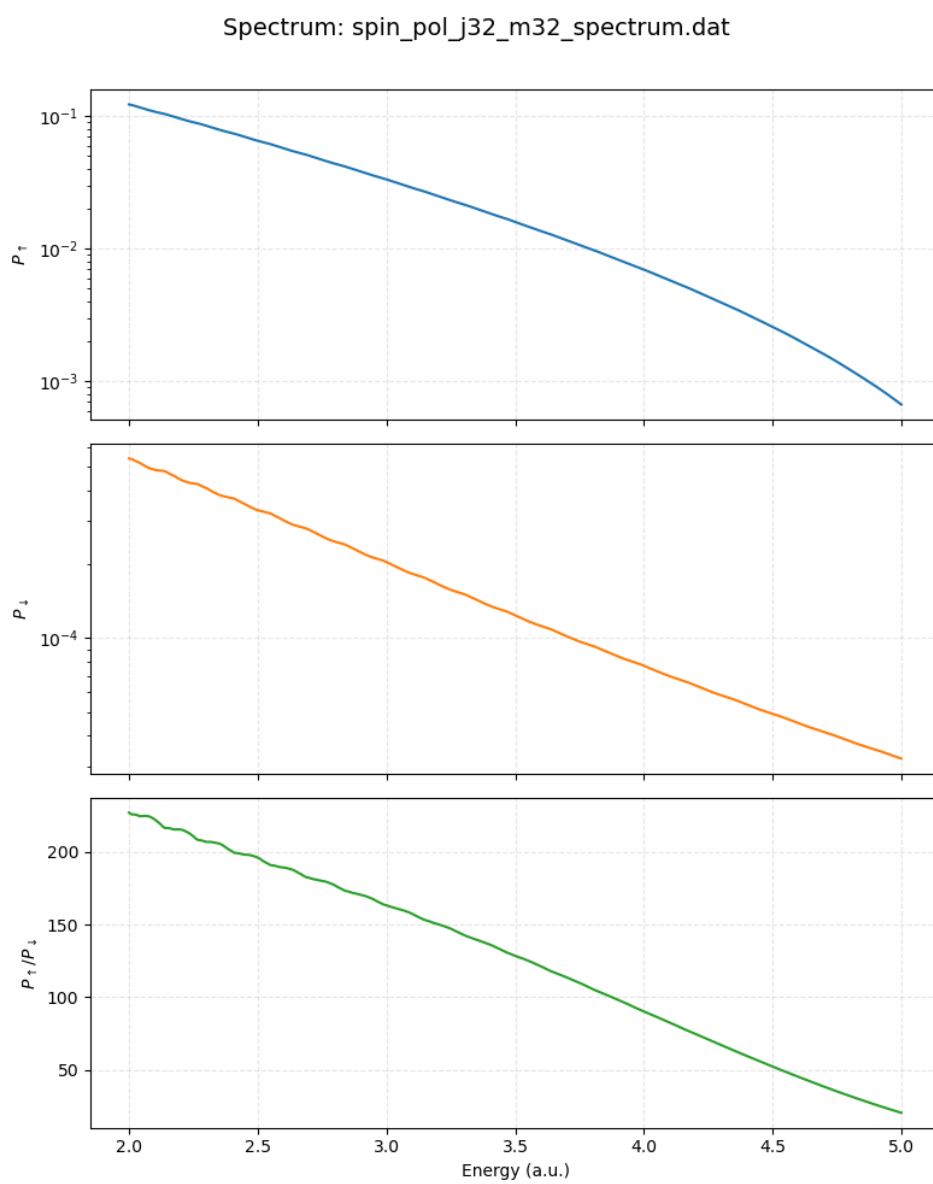


図 4: 部分波の干渉効果として計算されたスピン偏極とその比率.

## 5 計算結果 II: トンネルイオン化

### 5.1 TDSE による光電子運動量分布 (PEMD) の解析

TDSE 計算により得られた、トンネルイオン化後の電子波束の運動量分布を解析した。図 5 に、初期状態  $j = 3/2, m_j = 3/2$  からハーフサイクルパルスによってイオン化された光電子の 2 次元運動量分布を示す。両成分の分布形状の違いを定量的に検証するため、トンネル出口付近のダイナミクスを反映する垂直運動量分布  $W(k_\perp)$  を  $k_z = 2.0$  において抽出した。その両対数グラフを図 6 に示す。分布の裾について  $W(k_\perp) \propto k_\perp^\alpha$  の両対数グラフで直線  $y = ax + b$  でのフィッティングを行った結果、以下のべき指数が得られた。

- スピンアップ成分:  $\alpha \approx 1.99$  ( $R^2 = 0.99999$ )
- スピンドアウン成分:  $\alpha \approx 3.98$  ( $R^2 = 0.99999$ )

この結果は、トンネル理論において予測される  $k_\perp^{2|m_l|}$  の依存性と比較すると、 $|m_l| = 1$  の場合のべき指数 2、および  $|m_l| = 2$  の場合のべき指数 4 に極めて高い精度で一致している。これは、スピンアップ成分が  $m_l = 1$ 、スピンドアウン成分が  $m_l = 2$  という特定の角運動量状態として選択的にトンネルしていることを示している。

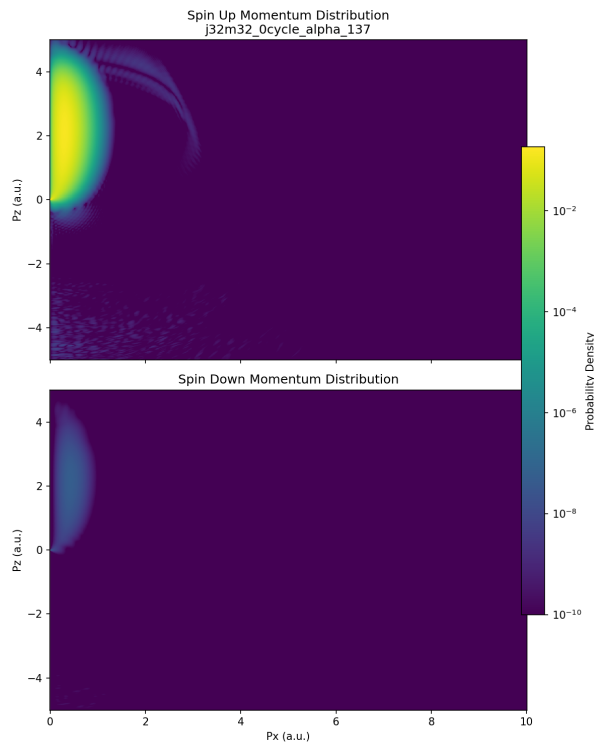


図 5: TDSE 計算による光電子運動量分布。(上) スピンアップ成分、(下) スピンドアウン成分。初期状態  $Xe(5p, j = 3/2, m_j = 3/2)$ 。

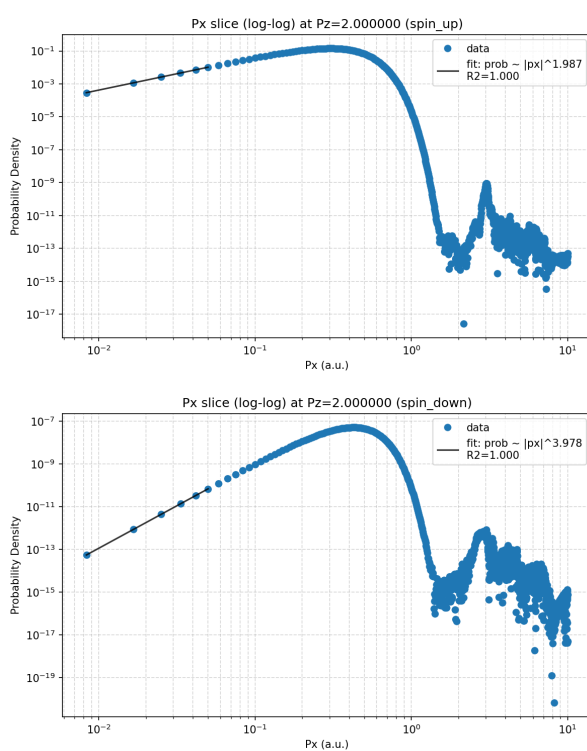


図 6: 垂直運動量分布  $W(k_{\perp})$  の両対数プロット ( $k_z = 2.0$  a.u.). フィッティングによるべき指数が示されている. (上) スピンアップ成分, (下) スピンドアウン成分.

## 5.2 Siegert 状態法による断熱接続と非断熱相互作用の評価

前節で示唆された断熱性を定量的に裏付けるため, Siegert 状態法を用いて, 電子がトンネル障壁内を進行する過程での状態遷移を解析した. 断熱固有値方程式を解いたのち,  $\eta$  についての端点での断熱ポテンシャルの値が 0 に近いものから順に 10 チャンネルを選択し, Close-Coupling 方程式を R 行列伝搬法で解いた. 表 1 に, 最終的に得られた全 10 チャンネルの占有確率を示す. この表から明らかなように, 初期状態 ( $j = 3/2$ ) は 99.9999% 以上の確率でチャンネル 9 (Channel 9) と呼ばれる単一の Stark 状態へと断熱的に接続されている. 他のチャンネルへの遷移確率は最大でも  $10^{-7}$  オーダーであり, トンネル過程における非断熱遷移は極めて抑制されていることがわかる.

表 1: Siegert 状態法により算出された全イオン化チャンネルの占有確率と含まれるスピン成分.

断熱チャンネル	イオン化振幅 ( $ \chi_\nu ^2$ )	スピニアップ	スピンドアウン
1	$1.8295 \times 10^{-7}$	1.0000	$1.5877 \times 10^{-15}$
2	$1.2716 \times 10^{-10}$	$4.0202 \times 10^{-14}$	1.0000
3	$1.2096 \times 10^{-9}$	1.0000	$1.8915 \times 10^{-14}$
4	$8.4151 \times 10^{-9}$	$2.9166 \times 10^{-14}$	1.0000
5	$2.6221 \times 10^{-8}$	1.0000	$3.5917 \times 10^{-14}$
6	$1.4749 \times 10^{-12}$	$3.2692 \times 10^{-14}$	1.0000
7	$1.0327 \times 10^{-8}$	1.0000	$5.1248 \times 10^{-14}$
8	$8.8005 \times 10^{-14}$	$4.0378 \times 10^{-14}$	1.0000
9	0.9999	1.0000	$6.5060 \times 10^{-14}$
10	$6.2552 \times 10^{-14}$	$4.9116 \times 10^{-14}$	1.0000

さらに, この高い断熱性の起源を理解するために, 方程式に含まれる非断熱結合項の大きさを領域ごとに詳細に評価した. Siegert 状態法では計算領域を複数の区間に分割して波動関数を接続している. 図 7 に, 核近傍から遠方への代表的な区間における非断熱結合行列要素の絶対値を示す. ここで  $P_{\text{nac}}$  は座標系の変化に伴う有効磁場項,  $W_{\text{mat}}$  はスピン軌道相互作用に由来する非断熱遷移項を表す.

図から明らかなように, 核近傍からトンネル領域出口付近に至るまで, 非断熱結合行列には隣接するチャンネル間の遷移が消失し, 1 つ飛ばしのチャンネル間で結合が生じる特徴的な市松模様状の構造が観察される. これは考察で後述するように, 核近傍におけるポテンシャルのパリティ対称性が保存されているため, パリティの異なる隣接チャンネル ( $p \leftrightarrow d$  等) 間の遷移が強く抑制されていることを直接的に示している. 特に, スピン反転にはパリティの異なる軌道への遷移が必要となるが, この選択則により  $P$  および  $W$  の項によるスピン混合が効果的に抑制されている様子が見て取れる.

各  $\eta$  における断熱ポテンシャル  $\beta_\nu(\eta)$  の様子を図 8 に示す.

核近傍では準位の交差が起こるが, 十分に遠方では各チャンネルは平行になり, 非断熱遷移が起きにくい形をとる.

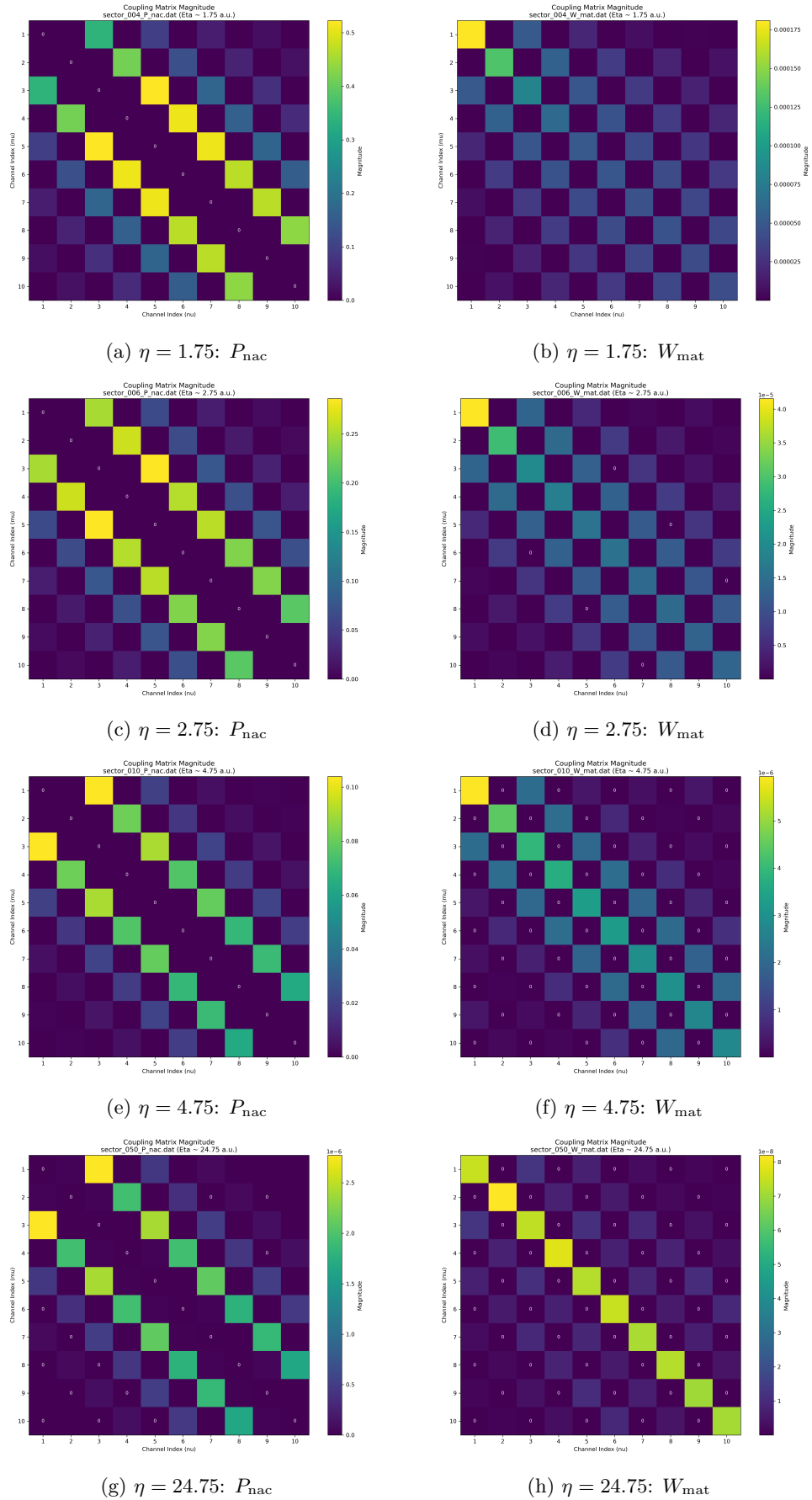


図 7: 各区間における非断熱結合行列要素の絶対値. 左列は有効磁場による非断熱遷移の項  $P_{\text{nac}}$ , 右列はスピン軌道相互作用による非断熱遷移項  $W_{\text{mat}}$  を示す.

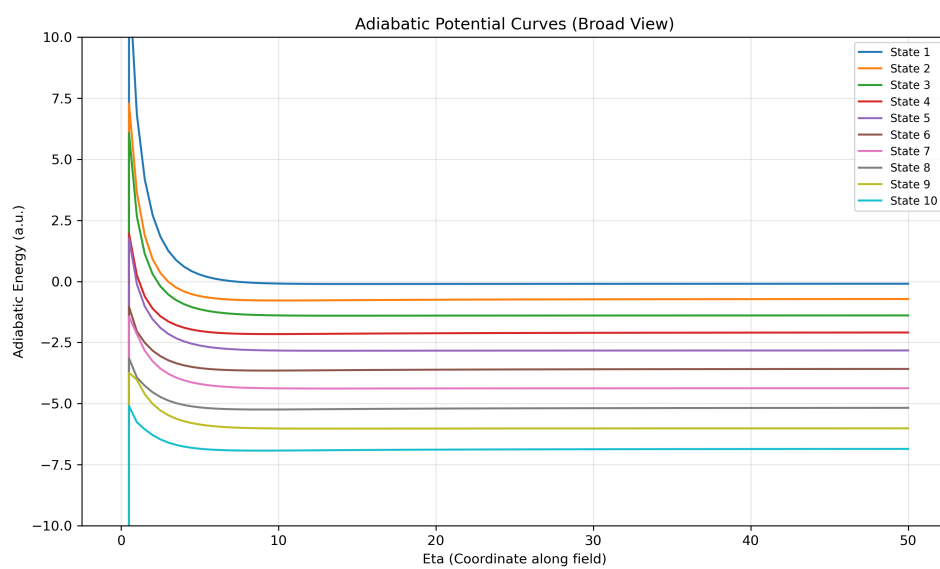


図 8: Siegert 状態法により得られた断熱ポテンシャル曲線  $\beta_\nu(\eta)$

## 6 考察

### 6.1 1光子過程とトンネル過程におけるスピンダイナミクスの本質的相違

1光子イオン化過程におけるスピン反転は、遷移後の連続状態において異なる部分波が干渉することによって生じる散乱現象であった。この過程では、電子はポテンシャル障壁の上を飛び越えるため、選択則によって許される全てのチャンネルが同時に開いている。したがって、原理的に複数の経路の混合は避けられない。そのため初期状態の純粋性は動的な散乱プロセスによって失われることになる。

これに対し、本研究で明らかにしたトンネルイオン化の物理的描像はこれとは対照的である。トンネル過程では、次節で詳述するエネルギーギャップと対称性の保存によって選別された単一の断熱チャンネルが支配的となる。この静的な選別効果により、電子はポテンシャル障壁自体がフィルターとして機能することで初期状態のスピン純度を保ったままイオン化する。結論として、遷移過程のエネルギー領域の違いが、支配的なメカニズムの違いを生み、それが最終的なスピン偏極度の劇的な差を決定づけていると考えられる。

### 6.2 核近傍における近似的対称性の保存

一般にクーロンポテンシャルのような  $l$  についての縮退がある系では、微弱な電場であっても縮退した状態間で1次の Stark 効果によって Stark 混合が生じる。しかし、本研究で対象とする Xe 原子のような多電子系の1電子状態においては、異なる角運動量をもつ状態間の縮退は解けている。このエネルギーギャップが存在するため、核近傍における Stark 混合は、電場との相互作用がギャップよりも小さい限りにおいて摂動的な寄与(二次の Stark 効果)に留まると考えられる。従って、核近傍においては近似的に軌道角運動量  $l$  が良い量子数として振る舞い、パリティ保存則などの選択則が有効に機能する。

パリティ演算子  $\hat{P}$  は電場が存在する場合ハミルトニアンに対して非可換である ( $[\hat{H}, \hat{P}] \neq 0$ )。したがって、一般にはパリティは保存されない。しかし、核近傍においてはクーロンポテンシャルが電場に対して支配的 ( $|V_{Coulomb}| \gg |V_{Field}|$ )、加えて状態間のエネルギーギャップが存在するため、パリティは近似的に保存される。同様のことが軌道角運動量演算子  $\hat{L}^2$  についても言え、この領域では、 $[\hat{H}, \hat{L}^2] \approx 0$  が成立する。これにより、核近傍では Stark 混合などの相互作用は極めて小さい。よって、核近傍では、波動関数の形状は支配的なクーロンポテンシャルによって決定され、確定したパリティを持つ原子軌道に漸近する。この領域においてパラメータ  $\eta$  を変化させても、ポテンシャルの対称性が維持されている限り、波動関数の特性は保存されたまま断熱的に変形する。それにより、今回の Xe の場合は非断熱遷移  $\langle \Phi_f | \frac{d}{d\eta} | \Phi_i \rangle$  は等しいパリティ間でのみ有意な値を持ち、異なるパリティ間の影響は高次の補正となり、強く抑制される。

この対称性の保存則は、交換関係を用いて記述することができる。遷移の強さを決定する演算子(相互作用ハミルトニアンや非断熱結合項など)を  $\hat{O}$  とし、対称性を表す演算子(パリティや回転対称性)を  $\hat{S}$  とする。この領域では  $[\hat{O}, \hat{S}] \approx 0$  が成立するため、始状態  $|i\rangle$  と終状態  $|f\rangle$  の間の行列要素  $M_{fi}$  について以下の関係が成り立つ。

$$\langle f | [\hat{O}, \hat{S}] | i \rangle = (s_i - s_f) \langle f | \hat{O} | i \rangle = (s_i - s_f) M_{fi} \approx 0 \quad (58)$$

ここで  $s_i, s_f$  はそれぞれの状態側の対称性に対応する固有値である。この式は、つまり  $S$  が近似的に、良い量子数として扱える範囲で  $s_i \neq s_f$  の場合、遷移振幅  $M_{fi} = \langle f | \hat{O} | i \rangle$  が強く抑制されて、高次の補正となることを意味する。つまり、ポテンシャル曲線が接近して非断熱遷移が起こり得る状況であっても、系自体が対称性を保持する限り、異なる対称性を持つ状態への遷移は強く抑制される。

スピン反転もこの選択則によって説明される．例として  $j = m_j = 3/2$  の初期状態 (p 軌道, 奇パリティ) を考える．電場方向の全角運動量保存 ( $m_j = 3/2$ ) により, スピンが反転するためには, 軌道角運動量成分が  $m_l = 2$  となる状態へ遷移しなければならない． $m_l = 2$  を持つには少なくとも  $l \geq 2$  が必要であり, 候補としては d 軌道 (偶), f 軌道 (奇) などが挙げられる．ここで前述の核近傍での近似的なパリティ保存則を適用すると, 非断熱結合による遷移は同パリティ間でのみ許容されるため, 奇パリティを持つ初期状態 (p) から偶パリティの状態 (d) への遷移は強く抑制される．したがって, スピン反転に寄与できるのは f 軌道のような高次の奇パリティ状態への遷移だけとなる．しかしそのような高角運動量状態への遷移はエネルギーギャップと遠心力ポテンシャルによって物理的に強く抑制される．結果として, 電子は初期状態のスピンを保ったままトンネルする．

この物理的状況は, 数値計算された断熱ポテンシャル曲線の振る舞い, そして非断熱遷移の大きさからも確認できる．核近傍 ( $\eta \sim 0$ ) においては, 複数のポテンシャル曲線が接近し, 一見すると非断熱遷移が起りやすい状況にあるが, 非断熱遷移の強度からは異なるパリティ間の遷移が 0 に非常に近づき, 市松模様のような構造が現れることが確認できる．結果として, ポテンシャル曲線上で接近している領域においても, 実際に電子が遷移できる経路は制限されており, 電子は初期状態に対応する単一のチャンネルに留まらざるを得ない．

強調すべきは, この対称性保存則はあくまで核近傍における近似的なものであるということである．束縛状態から無限遠までの過程において, 核近傍で保存される近似的な対称性が, 最終的な連続状態におけるスピン成分の保存を保証する重要な役割を果たしている．

### 6.3 トンネルイオン化における断熱的接続

全体として系は電場の方向に対する角運動量の射影  $m_j$  を保存する．核近傍ではクーロンポテンシャルが支配的だったが, 障壁内を進むにつれて電場ポテンシャルの影響が強くなり, 最終的には SFA のように電場のみと相互作用しているとみなすことができる領域に到達する．この過程で, 電子は準静的近似が成立する場合,  $\Phi$  は断熱的に変化し, 初期状態から連続状態へと滑らかに接続される．この際に, 核近傍では原子軌道の形を残していた  $\Phi$  は Stark 混合の影響を受けて, 複数の  $l$  が混合した状態へと変化する．しかし, この過程はスピン反転を起こす非断熱遷移によって生じるのではなく, 初期状態の  $m_j$ , 特にスピンのアップとダウンが決まった際は  $m_l$  を保持した Stark 状態への断熱的な変化によって起こる．そして十分遠方に達した場合はスピンの反転を引き起こす SOI は非常に弱くなるため, スピン成分はほとんど変化しないまま連続状態に到達する．つまり

$$|l, s, j, m_j\rangle \xrightarrow{\text{断熱的}} |\Psi(m_j)_{\text{Stark}}\rangle \quad (59)$$

のように, 球座標での角運動量表示から, 電場によって歪んだ放物線座標での初期状態の  $m_j$  に対応する Stark 混合状態への断熱的な接続が起こる．つまり, 核近傍での元の軌道の情報を保持した状態と, 遠方で出てくる Stark 混合された状態は一対一に対応している．この断熱的接続こそが, スピン状態の保存を保証する．スピン反転を引き起こすためには, 軌道角運動量の変化 ( $\Delta l \neq 0$ ) を伴う非断熱的な遷移が必要となる．しかし, 前述のパリティ保存や遠心力ポテンシャルによって, そのような遷移は強く抑制される．その結果, 電子は初期状態のスピン配向を維持したままトンネルし, トンネル出口においても極めて高いスピン純度 (スピン偏極度) が保存されることになる．したがって,  $j = m_j = 3/2$  の初期状態から, 1 光子イオン化とは対照的にスピンダウン成分が極端に抑制される現象や,  $m_j = 1/2$  における弱電場近似から期待される  $m_l \neq 0$  が抑制される振る舞いも, すべてこの断熱的な情報保存則によって統一的に説明される．

一般に, トンネルイオン化によって原子や分子の軌道の情報を得る際は再散乱過程 (rescattered trajectory)

と直接過程 (direct trajectory) の干渉縞を解析することになる。[\[22\]](#) 鮮明な干渉縞を得るための条件は、参照波となる直接過程の電子が、確定した位相関係を持つコヒーレントな状態である必要がある。もし、トンネル過程で電子が複数の Stark 混合した状態へランダムに遷移してしまうと、電子は混合状態となり、コヒーレンスは失われる。しかし本研究の結果は、近似的な対称性の保存と断熱的な接続により、電子が初期状態と断熱的につながった単一のチャンネルを選択的に通ってイオン化することを示している。単一の経路を経由した状態は純粋状態そのものであり、したがって高いコヒーレンスが期待される。逆に、インコヒーレントな混合状態となった場合は干渉縞の可視度 (visibility) が著しく低下し、軌道の構造についての情報は失われてしまう。つまり、本研究が示した断熱接続による純粋状態の維持というメカニズムは、これまで暗黙の前提とされてきたゼトンネルイオン化電子は明確な干渉縞を作ることができるかという問いに対し、明快な理由を与えるものである。

ここで明確にしておくべき点として、本研究で示した近似的対称性の保存と断熱的な接続は、あくまで  $\gamma \ll 1$  の準静的極限において成り立つものである。したがって、現実の強レーザー場下においては、パルスの立ち上がり・立ち下がり、時間変化など動的な効果が無視できない。実際に、本研究で TDSE を用いて計算した結果では、パルス幅が短くなるほどスピンドアウン成分が増加し、スピン偏極度が低下する傾向が  $m_j = 1/2$  で見られた。また、複数のピークを持つ場合は電子が瞬間的に電場に追従するというふるまいがどこまで成り立つのか、その限界も明確にする必要がある。しかし、本研究で明らかにした静的な Siegert 状態に基づく断熱的な描像は、トンネルイオン化現象の最も基礎的な構造を記述するものである。TDSE によって記述される、より複雑なダイナミクスや非断熱的な効果も、この堅牢な断熱的な構造を出発点とし、そこからの動的な補正の積み重なりとして理解することが可能となる。

#### 6.4 光電子運動量分布 (PEMD) による断熱的な接続の検証

本研究で提唱した各スピン成分が Stark 状態の特定のチャンネルへ断熱的に接続されるというモデルは、TDSE 計算から得られたトンネル電子の光電子運動量分布 (PEMD) の解析からも強く支持される。一般に、トンネル出口における電子の偏光と垂直な方向の運動量分布  $W(k_{\perp})$  は、 $k_{\perp} \rightarrow 0$  近傍において、トンネルする軌道の磁気量子数  $m_l$  に依存した  $W(k_{\perp}) \propto k_{\perp}^{2|m_l|}$  のべき乗則に従うことが知られている。[\[5\]](#) 初期状態  $j = m_j = 3/2$  の場合、全角運動量保存則 ( $m_j = m_l + m_s$ ) から、各スピン成分が取り得る軌道角運動量成分は一意に定まる。

- スピンアップ成分 ( $m_s = +1/2$ ):  $m_l = 3/2 - 1/2 = 1$
- スピンドアウン成分 ( $m_s = -1/2$ ):  $m_l = 3/2 - (-1/2) = 2$

もし本研究のモデル通り、電子が核近傍で形成された状態から断熱的に各 Stark 状態へと接続され、量子数  $m_l$  を保持したままトンネル障壁を抜けてくるのであれば、観測される PEMD はこの  $m_l$  依存性を明確に反映しているはずである。実際に TDSE 計算の結果から、スピンアップ成分は理論通り  $k_{\perp}^2$  ( $|m_l| = 1$ ) に比例する分布を示した。さらに特筆すべきは、極めて微量なスピンドアウン成分についてである。この成分はノイズに埋もれることなく、明瞭に  $k_{\perp}^4$  ( $|m_l| = 2$ ) に比例する分布構造を持つことが確認された。

この事実は、本研究の断熱的な接続モデルの正当性を決定的に裏付けるものである。なぜなら、もしスピンドアウン成分が 1 光子過程のような散乱とそれに伴う干渉、または数値計算上のランダムなノイズによって生成されたものであれば、このような整然とした特徴を持つ理由はどこにもないためである。スピンドアウン成分が  $k_{\perp}^4$  に従うという事実は、その成分が核近傍で  $m_l = 2$  の特性を持つ Stark 状態へと断熱的に接続され、その量子数を持ったままトンネル障壁を透過してきたことの直接的な証拠である。

さらに、この結果はスピン反転確率が極めて低い理由も同時に説明する。  $m_l = 2$  を持つ状態は、トンネル過程において  $l \geq 2$  に由来する高い遠心力障壁  $\frac{l(l+1)}{2r^2}$  を感じる。この高い障壁がトンネル確率を指数関数的に抑制するため、スピン反転成分 ( $m_l = 2$ ) は、主成分であるスピニアップ成分 ( $m_l = 1$ ) に比べて圧倒的に生成されにくくなる。つまり、観測された低いスピン反転率と  $k_{\perp}^4$  の分布は、以下のメカニズムを支持している。すなわち、核近傍におけるポテンシャルの対称性と遠心力障壁による非断熱遷移の抑制、そして特定された  $m_l$  を持つ状態が対応する Stark 状態へと断熱的に接続されるという一連のプロセスである。核近傍におけるエネルギーギャップによる選択則からトンネル出口の運動量分布に至るまで、電子は強電場によって構造が破壊されるのではなく、その構造の情報を持ったまま断熱接続を経て外界へと取り出されているといえる。

## 7 結論

本研究では、重原子である Xe 原子を対象に、強レーザー場中におけるトンネルイオン化過程に伴うスピン偏極ダイナミクスについて解析を行った。解析手法として、TDSE と、 $\gamma \ll 1$  の準静的極限に対応する Siegert 状態法という、動的および静的双方の第一原理計算アプローチを採用した。特に 5p 軌道における  $j = m_j = 3/2$  というスピニアップ成分のみを着目し、従来の研究ではブラックボックスとして扱われることの多かったトンネル障壁内部での電子状態の変遷と、スピン偏極が生成される微視的機構を解明した。

本研究により得られた最も重要な知見は、非摂動領域であるトンネルイオン化過程における電子のスピンダイナミクスが非断熱混合には支配されず、断熱接続によって記述されるという事実である。解析の結果、重原子のトンネルイオン化において高いスピン偏極度が維持される物理的機構として、以下の三段階のプロセスが明らかとなった。

第一に、核近傍におけるポテンシャルの近似的対称性による非断熱遷移の抑制である。重原子の核近傍ではスピン軌道相互作用が強く働くため、通常であればスピン状態の混合が生じやすい。しかし、本研究の解析により、核近傍の深いポテンシャル領域ではクーロン場が外部電場に対して支配的であるため、パリティ対称性が近似的に保存されていることが確認された。全角運動量射影  $m_j$  が保存される条件下でスピン反転が生じるためには、軌道角運動量の変化 (例えば  $p$  軌道から  $d$  軌道への遷移など) が必然的に要求される。しかし、前述の近似的なパリティ保存則が選択則として機能するため、このようなパリティの変化を伴う非断熱遷移は強く制限される。その結果、電子は強力なスピン軌道相互作用の下にありながらも、初期のスピン状態と軌道の対称性を保持したまま断熱的に遷移することが明らかとなった。

第二に、Stark 状態への断熱的な接続である。外部電場の印加に伴い、原子系は球対称な固有状態から放物線座標系で記述される Stark 状態へと移行する。この際、電子状態はランダムに混合するのではなく、核近傍で定義された磁気量子数  $m_l$  などの性質を保存したまま、対応する Stark 状態へと断熱接続されていくことが明らかとなった。具体的には、初期状態  $j = 3/2, m_j = 3/2$  から出発した場合、スピニアップ成分は  $m_l = 1$  の特性を持つチャンネルへ、スピンドウン成分は  $m_l = 2$  の特性を持つ状態へと、初期状態の情報に基づいて 1 対 1 で接続されていく。これが、トンネル過程における高いコヒーレンスと純粋状態の維持を保証し、再散乱による干渉縞で原子、分子内の情報を得られる前提条件になる。

第三に、遠心力障壁によるスピンドウン成分の抑制である。上記の断熱接続の結果、 $j = m_j = 3/2$  からトンネルイオン化をした場合、スピン反転に対応する成分は必然的に  $m_l = 2$  という高い角運動量成分を持つ Stark 状態に割り当てられる。トンネルイオン化過程において、この  $m_l = 2$  の成分は  $l \geq 2$  に由来する高い遠心力障壁  $\frac{l(l+1)}{2r^2}$  をトンネルする必要がある。トンネル確率は障壁の厚さと高さに対して指数関数的に減衰するため、この遠心力障壁の存在がスピンドウン成分の放出を極限まで抑制する。一方、スピニアップ成分

( $m_l = 1$ ) は相対的に低い障壁を感じるため優先的にイオン化し、結果として放出電子において極めて高いスピ  
ン偏極度が実現される。

この理論モデルの正当性は、TDSE 計算から得られたトンネル電子の光電子運動量分布の解析によって決定  
的に裏付けられた。偏光に垂直な方向の運動量分布において、主成分であるスピニアップ成分は  $k_{\perp}^2$  に、微弱な  
スピンドウン成分は  $k_{\perp}^4$  に比例する分布形状を示した。既存の理論が予測する  $k_{\perp}^{2|m_l|}$  というべき乗則への完  
全な一致は、観測されたスピンドウン成分が計算誤差や 1 光子過程のような散乱によるものではなく、確かに  
 $m_l = 2$  という量子数を持って障壁を透過してきたことを支持している。すなわち、スピン反転率が低いとい  
うこと、分布が  $k_{\perp}^4$  に従うということは、断熱的接続によって  $m_l = 2$  をもったスピンドウン成分が遠心力障壁に  
よって強く抑制されたということを表している。

結論として、トンネルイオン化過程は単にポテンシャルが傾いたことで電子がランダムにトンネル現象を通  
じて連続状態になるのではなく、1 光子吸収のような選択則とは異なるメカニズムで、核近傍の量子状態  $m_l, m_s$   
をポテンシャル障壁で選別し、外界へと断熱的に取り出すフィルターとして機能しているといえる。本研究で  
確立されたこの物理像は、前述したように厳密には  $\gamma \ll 1$  で成り立つ描像である。しかし、既存の近似理論で  
は見落とされていたトンネル過程の微視的構造を明らかにするものであり、アト秒科学におけるトンネルイオ  
ン化を用いた電子波束の精密操作や、次世代のスピ  
ン偏極電子源開発に対する強固な理論的基盤を与えるもの  
である。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり、終始熱心なご指導とご鞭撻を賜りました、指導教官の森下亨教授に深く感謝い  
たします。森下教授には、本研究の基盤となる時間依存シュレディンガー方程式の数値計算プログラムをご提  
供いただくとともに、物理的な議論から論文の執筆に至るまで、多大なるご助言と丁寧なご指導をいただきま  
した。ここに心より感謝の意を表します。

## 参考文献

- [1] Pei-Lun He, Zhao-Han Zhang, Karen Z Hatsagortsyan, and Christoph H Keitel. Photoelectron spin texture in tunneling ionization induced by a linearly polarized laser pulse. *Physical Review Letters*, 134(16):163201, 2025.
- [2] Yibo Hu, Kunlong Liu, Klaus Renziehausen, Yidian Tian, Qingbin Zhang, Min Li, Yueming Zhou, and Peixiang Lu. Effect of spin-orbit coupling in laser-induced ionization of atoms. *Physical Review A*, 108(2):023113, 2023.
- [3] Alexander Hartung, Felipe Morales, Maksim Kunitski, Kevin Henrichs, Alina Laucke, Martin Richter, Till Jahnke, Anton Kalinin, Markus Schöffler, Schmidt, and Lothar Ph H. Electron spin polarization in strong-field ionization of xenon atoms. *Nature Photonics*, 10(8):526–528, 2016.
- [4] L V Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. pages 56–63, 2024.
- [5] AM Perelomov, VS Popov, and MV Terent' Ev. Ionization of atoms in an alternating electric field. *Sov. Phys. JETP*, 23(5):924–934, 1966.
- [6] Maciej Lewenstein, Ph Balcou, M Yu Ivanov, Anne L' huillier, and Paul B Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3):2117, 1994.

- [7] Michael Klaiber, Enderalp Yakaboylu, and Karen Z Hatsagortsyan. Above-threshold ionization with highly charged ions in superstrong laser fields. i. coulomb-corrected strong-field approximation. *Physical Review A*, 87(2):023417, 2013.
- [8] Michael Klaiber, Enderalp Yakaboylu, and Karen Z Hatsagortsyan. Above-threshold ionization with highly charged ions in superstrong laser fields. ii. relativistic coulomb-corrected strong-field approximation. *Physical Review A*, 87(2):023418, 2013.
- [9] Enderalp Yakaboylu, Michael Klaiber, and Karen Z Hatsagortsyan. Above-threshold ionization with highly charged ions in superstrong laser fields. iii. spin effects and their dependence on laser polarization. *Physical Review A*, 91(6):063407, 2015.
- [10] X-Y Lai, C Poli, H Schomerus, and C Figueira De Morisson Faria. Influence of the coulomb potential on above-threshold ionization: A quantum-orbit analysis beyond the strong-field approximation. *Physical Review A*, 92(4):043407, 2015.
- [11] Andrew S Maxwell and Lars Bojer Madsen. Relativistic and spin-orbit dynamics at nonrelativistic intensities in strong-field ionization. *Physical Review A*, 110(3):033108, 2024.
- [12] U Fano. Spin orientation of photoelectrons ejected by circularly polarized light. *Physical Review*, 178(1):131, 1969.
- [13] U Fano and Dan Dill. Angular momentum transfer in the theory of angular distributions. *Physical Review A*, 6(1):185, 1972.
- [14] NA Cherepkov. Angular distribution and spin orientation of photoelectrons ejected by circularly polarized light. *Physics Letters A*, 40(2):119–121, 1972.
- [15] Thomas N Rescigno and C William McCurdy. Numerical grid methods for quantum-mechanical scattering problems. *Physical review A*, 62(3):032706, 2000.
- [16] Barry I Schneider, Lee A Collins, and SX Hu. Parallel solver for the time-dependent linear and nonlinear schrödinger equation. *Physical Review E*, 73(3):036708, 2006.
- [17] Joseph Power and George Rawitscher. Accuracy of a hybrid finite-element method for solving a scattering schrödinger equation. *Physical Review E*, 86(6):066707, 2012.
- [18] Gene H Golub and John H Welsch. Calculation of gauss quadrature rules. *Mathematics of computation*, 23(106):221–230, 1969.
- [19] Oleg I Tolstikhin, Valentin N Ostrovsky, and Hiroki Nakamura. Siegert pseudo-states as a universal tool: Resonances, s matrix, green function. *Physical Review Letters*, 79(11):2026, 1997.
- [20] Reo A Gonzales, J Eisert, I Koltracht, M Neumann, and G Rawitscher. Integral equation method for the continuous spectrum radial schrödinger equation. *Journal of computational physics*, 134(1):134–149, 1997.
- [21] RA Gonzales, S-Y Kang, I Koltracht, and G Rawitscher. Integral equation method for coupled schrödinger equations. *Journal of Computational Physics*, 153(1):160–202, 1999.
- [22] Ymkje Huismans, Arnaud Rouzée, Arjan Gijsbertsen, JH Jungmann, AS Smolkowska, PSWM Logman, Franck Lepine, Cécile Cauchy, Sébastien Zamith, and Tatiana Marchenko. Time-resolved holography with photoelectrons. *Science*, 331(6013):61–64, 2011.

## Appendix A 数値計算プログラムの全体構成

本研究で用いた数値計算プログラムは、時間依存シュレーディンガー方程式 (TDSE) を除き、全て有限要素離散表示法 (FEDVR 法) を基盤として構築されている。それらを積分方程式法、Siegert 状態法に適用し、1 光子過程とトンネルイオン化過程の解析を行った。今回作成したプログラムは Github 上で公開されており (<https://github.com/psybababa/AM0-toolbox>)、開発には AI アシスタントツール Github Copilot も活用した。以下、本付録ではプログラムの理論的な背景から実装上の工夫、テストの結果に至るまでを解説する。

## Appendix B 有限要素離散表示法 (FEDVR 法)

有限要素離散表示法 (Finite Element Discrete Variable Representation; FEDVR 法) は、有限要素法と離散変数表示法 (DVR 法) を組み合わせた数値計算手法である。

本研究では主に動径方向の区間  $r \in [0, R_{\max}]$  を  $N_e$  個の有限要素に分割し、各要素内で  $n$  個の Gauss-Lobatto 点を用いた Lagrange 多項式を基底関数として波動関数を展開した。

### B.1 Golub-Welsch 法による Lobatto 点と重みの計算

FEDVR 法において基底関数の定義および数値積分に用いる分点 (ノード) と重みは、Gauss-Lobatto 求積法に基づき決定される。 $n$  次の Gauss-Lobatto 求積法では、区間の両端点  $x_1 = -1, x_n = 1$  を分点として固定し、内部の  $n - 2$  個の分点を Jacobi 多項式  $P_{n-2}^{(1,1)}(x)$  の零点として定める。本プログラムでは、これら高次の直交多項式の零点および対応する重みを安定的かつ高速に求めるために、Golub-Welsch 法を採用し実装した。

#### B.1.1 直交多項式の三項間漸化式

一般に、直交多項式系  $\{p_k(x)\}$  は以下の三項間漸化式を満たす。

$$a_k p_{k+1}(x) = (b_k + c_k x) p_k(x) - d_k p_{k-1}(x) \quad (\text{B.1})$$

Gauss-Lobatto 点 (内部点) は、パラメータ  $\alpha = 1, \beta = 1$  を持つ Jacobi 多項式の零点に対応する。本実装では、内部の分点数  $N = n - 2$  に対して、デジタルライブラリ DLMF の定義に基づき以下の係数を用いた。

$$a_k = 1 \quad (\text{B.2})$$

$$b_k = 0 \quad (\text{B.3})$$

$$c_k = \frac{(2k+3)(2k+4)}{2(k+1)(k+3)} \quad (\text{B.4})$$

$$d_k = \frac{k+2}{k+3} \quad (\text{B.5})$$

#### B.1.2 実対称三重対角行列への変換

Golub-Welsch 法では、直交多項式の三項間漸化式を行列形式に書き直すことで、多項式の零点を求める問題を実対称三重対角行列 (Jacobi 行列) の固有値問題に帰着させる。

まず、正規化された直交多項式系  $\{\tilde{p}_k(x)\}$  を導入すると、前述の漸化式は次のような対称な形式に変形できる。

$$x\tilde{p}_k(x) = \beta_{k-1}\tilde{p}_{k-1}(x) + \alpha_k\tilde{p}_k(x) + \beta_k\tilde{p}_{k+1}(x) \quad (\text{B.6})$$

ここで、 $\alpha_k$  は対角要素、 $\beta_k$  は非対角要素に対応する係数であり、元の漸化式の係数  $\{a_k, b_k, c_k, d_k\}$  を用いて以下のように算出される。

$$\alpha_k = -\frac{b_k}{c_k} \quad (\text{今回は } b_k = 0 \text{ のため } \alpha_k = 0) \quad (\text{B.7})$$

$$\beta_k = \sqrt{\frac{a_k d_{k+1}}{c_k c_{k+1}}} \quad (\text{B.8})$$

この関係式を  $k = 1, \dots, N$  について並べ、 $x = x_i$  が多項式の零点（すなわち  $\tilde{p}_{N+1}(x_i) = 0$ ）である条件を課すと、以下の固有値方程式が得られる。

$$x_i \tilde{\mathbf{p}}(x_i) = \mathbf{J} \tilde{\mathbf{p}}(x_i) \quad (\text{B.9})$$

ここで  $\tilde{\mathbf{p}}(x)$  は多項式の値を成分とするベクトル、 $\mathbf{J}$  は以下で定義される  $N \times N$  の実対称三重対角行列である。

$$\mathbf{J} = \begin{pmatrix} \alpha_1 & \beta_1 & & 0 \\ \beta_1 & \alpha_2 & \ddots & \\ & \ddots & \ddots & \beta_{N-1} \\ 0 & & \beta_{N-1} & \alpha_N \end{pmatrix} \quad (\text{B.10})$$

したがって、この行列  $\mathbf{J}$  を対角化して得られる固有値が、求める Gauss-Lobatto 求積の分点  $x_i$  となる。

### B.1.3 固有値問題の解法と重みの決定

構築した行列  $\mathbf{J}$  の固有値  $\lambda_i$  が求める内部の分点  $x_i$  ( $i = 2, \dots, n-1$ ) となり、対応する重み  $w_i$  は正規化された固有ベクトル  $\mathbf{v}^{(i)}$  の第 1 成分を用いて算出される。本プログラムでは、実対称三重対角行列の対角化ルーチンとして LAPACK の DSTEV を使用し、固有値および固有ベクトルを計算した。

内部点の重みは、Jacobi 多項式 ( $\alpha = 1, \beta = 1$ ) の 0 次モーメント  $\mu_0 = \int_{-1}^1 (1-x^2) dx = 4/3$  を用いて、まず一時的な重み  $w'_i = \mu_0 (v_1^{(i)})^2$  として求められた。最終的な Lobatto 求積の重み  $w_i$  は、これを  $(1-x_i^2)$  で除算することで得られる。

最後に、固定された両端点 ( $x_1 = -1, x_n = 1$ ) の重みは以下のように解析的に与えられる。

$$w_1 = w_n = \frac{2}{n(n-1)} \quad (\text{B.11})$$

以上の手順により、任意の次数  $n$  に対して区間  $[-1, 1]$  の Gauss-Lobatto 求積の分点と重みを効率的に計算できる。

## B.2 全体の区間の構築

FEDVR 法では前節で述べたように、系の定義域（本研究では  $r \in [0, R_{\max}]$ ）を  $N_e$  個の有限区間に分割し、各区間ごとに Lagrange 多項式を基底として波動関数を展開する。第  $e$  番目の区間を  $[r_a^{(e)}, r_b^{(e)}]$  とし、区間  $\xi \in [-1, 1]$  を用いると、区間内の任意の点  $r(\xi)$  は以下のように表される。

$$r(\xi) = \frac{r_b^{(e)} - r_a^{(e)}}{2} \xi + \frac{r_b^{(e)} + r_a^{(e)}}{2} \quad (\text{B.12})$$

この際、各区間内での行列表示の際の積分に現れるヤコビアンは一定値となり、

$$J_e = \frac{dr}{d\xi} = \frac{r_b^{(e)} - r_a^{(e)}}{2} \quad (\text{B.13})$$

で与えられる。このヤコビアンを用いることで、 $[-1, 1]$  で Golub-Welsch 法により求められた分点の重み  $w_k^{\text{ref}}$  は、任意の要素の重み

$$w_k^{(e)} = J_e w_k^{\text{ref}} \quad (\text{B.14})$$

へと変換される。

各有限区間の境界では連続条件を満たすために端点での処理が必要となる。今回の実装では隣接する区間  $e$  と  $e+1$  は、端点  $r_b^{(e)} = r_a^{(e+1)}$  を共有しており、この点に対応する基底関数は両方の区間に共通なものとして扱われる。

数値的には、この共有された端点において、隣接する二つの区間から得られる寄与の和を取ることで、波動関数が区間をまたいで連続になるようにしている。具体的には、区間  $e$  の終端に対応する成分と、次の区間  $e+1$  の始端に対応する成分を同一視し、それぞれからの行列要素を加え合わせることで、接続点における運動エネルギーおよびポテンシャルの寄与を反映させている。一方で、物理的な定義域の両端である  $r=0$  および  $r=R_{\text{max}}$  では、物理的な境界条件を明示的に課す必要がある。本研究では、束縛状態を扱う際は原点での正則性と、遠方で波動関数が消失することを考慮し、

$$\Psi(0) = \Psi(R_{\text{max}}) = 0 \quad (\text{B.15})$$

というディリクレ境界条件を採用した。

### B.3 ハミルトニアン行列要素の構築

#### B.3.1 Lagrange 多項式の重心形式による微分

FEDVR 法で用いられる Lagrange 多項式  $L_j(\xi)$  は、区間  $[-1, 1]$  上の分点  $\{\xi_i\}$  において

$$L_j(\xi_i) = \delta_{ji} \quad (\text{B.16})$$

を満たすように定義される。この多項式は通常、以下の積の形で表される。

$$L_j(\xi) = \prod_{\substack{k=1 \\ k \neq j}}^n \frac{\xi - \xi_k}{\xi_j - \xi_k} \quad (\text{B.17})$$

しかし、この積形式をそのまま数値計算に用いると、分点数  $n$  が大きくなるにつれて丸め誤差が蓄積し、不安定になる。

そこで本研究では、数値的に安定かつ高精度な評価が可能な重心形式を採用した。まず、各分点  $\xi_j$  に対して重心重み  $v_j$  を

$$v_j = \frac{1}{\prod_{k \neq j} (\xi_j - \xi_k)} \quad (\text{B.18})$$

として定義する。この重心重みを用いると、Lagrange 多項式は次のように書き換えられる。

$$L_j(\xi) = \frac{v_j}{\xi - \xi_j} \bigg/ \sum_{k=1}^n \frac{v_k}{\xi - \xi_k} \quad (\text{B.19})$$

この重心形式は、分点  $\xi_i$  における評価も安定に行うことができ、また Lagrange 多項式の微分を導出する際にも見通しが良い。

次に、運動エネルギー行列の構築において必要となるのは、分点上での Lagrange 多項式の微分

$$D_{ij} = L'_j(\xi_i) \quad (\text{B.20})$$

である。重心形式で与えられた  $L_j(\xi)$  を微分し、 $\xi \rightarrow \xi_i$  の極限をとることで、微分行列  $\mathbf{D}$  の各成分は以下の解析的な式で与えられる。まず、非対角成分 ( $i \neq j$ ) は

$$D_{ij} = \frac{v_j}{v_i} \frac{1}{\xi_i - \xi_j} \quad (\text{B.21})$$

となる。一方、対角成分については、Lagrange 多項式が満たす恒等式

$$\sum_{k=1}^n L_k(\xi) = 1 \quad (\text{B.22})$$

を微分することで  $\sum_{k=1}^n L'_k(\xi) = 0$  が成り立つことを用いると、

$$D_{ii} = - \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq i}}^n D_{ik} = \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq i}}^n \frac{1}{\xi_i - \xi_k} \quad (\text{B.23})$$

と求められる。

本プログラムでは、まず重心重み  $v_j$  を計算し、続いて上記の解析式に基づいて  $[-1, 1]$  上の微分行列  $\mathbf{D}$  を構築している。

### B.3.2 運動エネルギー

運動エネルギー演算子は

$$\hat{T} = -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} \quad (\text{B.24})$$

で与えられる。要素  $e$  に対応する区間  $[r_a^{(e)}, r_b^{(e)}]$  における行列要素  $T_{mn}^{(e)}$  は

$$T_{mn}^{(e)} = \int_{r_a^{(e)}}^{r_b^{(e)}} f_m(r) \left( -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} \right) f_n(r) dr \quad (\text{B.25})$$

として定義される。ここで部分積分を行い、境界項が消失することを利用すると、

$$T_{mn}^{(e)} = \frac{1}{2} \int_{r_a^{(e)}}^{r_b^{(e)}} \frac{df_m}{dr} \frac{df_n}{dr} dr \quad (\text{B.26})$$

と Lagrange 基底関数の微分を用いて書くことができる。

次に、区間  $\xi \in [-1, 1]$  から区間  $r \in [r_a^{(e)}, r_b^{(e)}]$  への線型写像を用いる。このとき、ヤコビアンを用いて

$$\frac{d}{dr} = \frac{d\xi}{dr} \frac{d}{d\xi} = \frac{1}{J_e} \frac{d}{d\xi}, \quad dr = J_e d\xi \quad (\text{B.27})$$

が成り立つため、積分は次のように変換される。

$$T_{mn}^{(e)} = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 \left( \frac{1}{J_e} \frac{df_m}{d\xi} \right) \left( \frac{1}{J_e} \frac{df_n}{d\xi} \right) J_e d\xi = \frac{1}{2J_e} \int_{-1}^1 \frac{df_m}{d\xi} \frac{df_n}{d\xi} d\xi \quad (\text{B.28})$$

この積分に対して Gauss-Lobatto 求積法を適用することで、数値計算に落とし込むことができる。FEDVR 基底関数  $f_m(\xi)$  は Lagrange 多項式であるため、その微分値は前節で導入した微分行列

$$D_{km} = \left. \frac{df_m}{d\xi} \right|_{\xi=\xi_k} \quad (\text{B.29})$$

を用いて評価できる。求積の重みを  $w_k$  とすると、運動エネルギー行列要素は次の離散和として計算される。

$$T_{mn}^{(e)} \approx \frac{1}{2J_e} \sum_{k=1}^n w_k D_{km} D_{kn} \quad (\text{B.30})$$

この表式は、 $[-1, 1]$  で一度だけ構築された微分行列  $\mathbf{D}$  と重み  $\mathbf{w}$  を用い、それらを写像することで全ての有限要素における運動エネルギー項を効率的に計算できることを示している。

### B.3.3 ポテンシャルエネルギー項

ポテンシャルエネルギー行列要素  $V_{mn}^{(e)}$  は

$$V_{mn}^{(e)} = \int_{r_a^{(e)}}^{r_b^{(e)}} f_m(r) V(r) f_n(r) dr \quad (\text{B.31})$$

で与えられる。区間  $[-1, 1]$  への変換を用いると

$$V_{mn}^{(e)} = J_e \int_{-1}^1 f_m(\xi) V(r(\xi)) f_n(\xi) d\xi \quad (\text{B.32})$$

となる。

ここでも Gauss-Lobatto 求積法を適用する。Lagrange 基底関数が分点において

$$f_m(\xi_k) = \delta_{mk} \quad (\text{B.33})$$

を満たす性質を用いると、行列要素は次のように簡略化される。

$$V_{mn}^{(e)} \approx J_e \sum_{k=1}^n w_k f_m(\xi_k) V(r(\xi_k)) f_n(\xi_k) \quad (\text{B.34})$$

$$= J_e w_m V(r_m) \delta_{mn} \quad (\text{B.35})$$

ここで  $w_m^{(e)} = J_e w_m$  は要素  $e$  での重み、 $r_m = r(\xi_m)$  は分点の座標である。この結果、ポテンシャルエネルギーの行列要素は対角行列となる。

### B.3.4 固有値問題の解法

以上の手続きにより、各要素ごとに得られた運動エネルギー行列とポテンシャルエネルギー行列を組み合わせることで、全体のハミルトニアン行列が構成される。この行列は疎な帯行列構造を持つ実対称行列である。この性質を利用し、既存の LAPACK のルーチン等を用いて対角化や線型方程式を効率的に解くことができる。

## B.4 水素原子による検証

有限要素離散表示法 (FEDVR 法) の実装検証として、水素原子 (クーロンポテンシャル  $V(r) = -1/r$ ) の基底状態から第 10 励起状態までのエネルギー準位と波動関数を計算した。FEDVR 基底は  $r \in [0, 350]$  の範

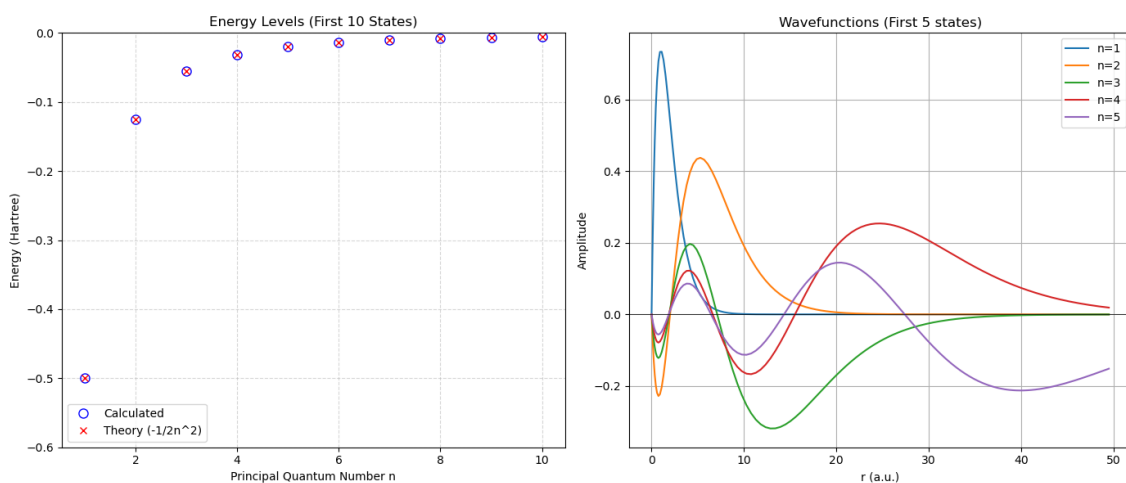


図 1: 左: 水素原子のエネルギー準位 (1s 10s), 青丸: 数値計算, 赤  $\times$ : 理論値  $E_n = -1/2n^2$ . 右: s 軌道の波動関数 (1s 5s).

表 1: 水素原子のエネルギー準位の計算値と理論値の比較

$n$	$E_{\text{calc}}$	$E_{\text{theory}}$	差分 $ E_{\text{calc}} - E_{\text{theory}} $
1	-0.500	-0.500	$2.72 \times 10^{-14}$
2	-0.125	-0.125	$3.80 \times 10^{-15}$
3	-0.0556	-0.0556	$1.99 \times 10^{-15}$
4	-0.0313	-0.0313	$8.40 \times 10^{-15}$
5	-0.0200	-0.0200	$9.73 \times 10^{-15}$
6	-0.0139	-0.0139	$3.99 \times 10^{-15}$
7	-0.0102	-0.0102	$2.79 \times 10^{-15}$
8	-0.00781	-0.00781	$1.76 \times 10^{-15}$
9	-0.00617	-0.00617	$1.45 \times 10^{-14}$
10	-0.00500	-0.00500	$7.87 \times 10^{-11}$

圏を 10 区間に分割し, 各区間に 100 点の Gauss-Lobatto 点を配置して構築した. 対角化には LAPACK の実対称行列の対角化用ルーチンである DSPEV を用いた.

水素原子のクーロンポテンシャルに対する FEDVR 法を用いた対角化により, 基底状態から  $n = 10$  までのエネルギー準位を 10 桁以上の精度で再現できることが確認された. 有限差分法を用いた場合が  $10^{-6}$  程度の精度に, 現実的に計算可能な時間で留まるのに対し, FEDVR 法はそれより早い計算時間で高精度な結果を得られることが示された.

## Appendix C 積分方程式法による 1 光子過程の解析

1 光子過程の場合の解析には、動径方向の双極子モーメントに対する積分と、連続状態になった後にスピン軌道相互作用 (SOI) とクーロンポテンシャルによって散乱された際に生じる位相のずれの計算が必要である。散乱状態 (連続状態) の波動関数を計算するために、本研究では Gonzales らによって提案された積分方程式法 (Integral Equation Method; IEM) を採用し、これを FEDVR 基底上で実装した。この手法は、全領域を有限要素に分割し、各要素ごとに局所的な積分方程式を解いた後、それらを全領域で接続することで、高精度かつ数値的に安定な連続状態の波動関数と位相のずれを得ることができる。

### C.1 シュレディンガー方程式の積分方程式への変換

運動エネルギー  $E = k^2/2$  における動径方向のシュレディンガー方程式

$$\left[ \frac{d^2}{dr^2} + k^2 - V(r) \right] \psi(r) = 0 \quad (\text{C.36})$$

は、自由粒子のグリーン関数  $G(r, r')$  を用いることで、以下の積分方程式に書き換えることができる。

$$\psi(r) = \sin(kr) + \int_0^{R_{\max}} G(r, r') V(r') \psi(r') dr' \quad (\text{C.37})$$

ここで  $V(r)$  は遠心力項を含む有効ポテンシャルである。グリーン関数  $G(r, r')$  は  $r$  と  $r'$  の大小関係によって条件分けされ、以下のように与えられる。

$$G(r, r') = -\frac{1}{k} \begin{cases} \sin(kr) \cos(kr') & (r < r') \\ \cos(kr) \sin(kr') & (r > r') \end{cases} \quad (\text{C.38})$$

これにより、以下では  $\sin(kr)$  に比例する成分と  $\cos(kr)$  に比例する成分に分解して扱うことができる。

### C.2 要素ごとの局所解の計算

全積分領域  $[0, R_{\max}]$  を  $N_e$  個の有限要素に分割する。各要素  $e$  の内部において、 $\sin$  成分および  $\cos$  成分に対応する以下の 2 つの積分方程式の局所解  $y_e(r)$  および  $z_e(r)$  を定義する。

$$y_e(r) - \int_{\text{elem}} G(r, r') V(r') y_e(r') dr' = \sin(kr), \quad (\text{C.39})$$

$$z_e(r) - \int_{\text{elem}} G(r, r') V(r') z_e(r') dr' = \cos(kr). \quad (\text{C.40})$$

ここで  $\int_{\text{elem}}$  は要素内での積分を意味し、要素内で波動関数  $\psi_e(r)$  は、これらの局所解の線型結合として表される。これらの積分方程式を数値的に解くために、FEDVR の分点と重みを用いて積分を和に置き換え、以下のように離散化する。要素内の分点の数を  $n$  とすると、上記の式はそれぞれ以下の  $n$  元連立一次方程式となる。

$$\sum_{j=1}^n (\delta_{ij} - K_{ij}) y_e(r_j) = \sin(kr_i), \quad \sum_{j=1}^n (\delta_{ij} - K_{ij}) z_e(r_j) = \cos(kr_i). \quad (\text{C.41})$$

ここで  $\mathbf{K}$  はグリーン関数と有効ポテンシャルから構成される行列であり、その要素  $K_{ij}$  は以下のように具体的に計算される。

$$K_{ij} = w_j V(r_j) G(r_i, r_j) = -\frac{w_j V(r_j)}{k} \times \begin{cases} \sin(kr_i) \cos(kr_j) & (j > i : r_j > r_i) \\ \cos(kr_i) \sin(kr_j) & (j < i : r_j < r_i) \end{cases} \quad (\text{C.42})$$

本実装では、このようにグリーン関数から  $\mathbf{K}$  を構築し、得られた係数行列  $(\mathbf{I} - \mathbf{K})$  を持つ方程式を LAPACK の DGESV ルーチンを用いて解くことで、局所解ベクトル  $\mathbf{y}, \mathbf{z}$  を求めた。

### C.3 全体的な解の構築と端点での接続条件

#### C.3.1 要素ごとの係数 $A_e, B_e$ の定義

各有限要素  $e$  における散乱波動関数  $\psi_e(r)$  は、前節で求めた 2 つの局所解  $y_e(r)$  および  $z_e(r)$  の線型結合として

$$\psi_e(r) = A_e y_e(r) + B_e z_e(r) \quad (\text{C.43})$$

と表される。ここで  $A_e$  および  $B_e$  は各要素に対応する係数であり、元の全区間で定義された積分方程式を要素区間  $[r_a^{(e)}, r_b^{(e)}]$  に分解した際の積分項の寄与（境界条件）を反映した量である。

グリーン関数の構造から、これらの係数は次のような積分によって定義される。

$$A_e = 1 - \frac{1}{k} \int_{r_b^{(e)}}^{R_{\max}} \cos(kr') V(r') \psi(r') dr', \quad (\text{C.44})$$

$$B_e = -\frac{1}{k} \int_0^{r_a^{(e)}} \sin(kr') V(r') \psi(r') dr'. \quad (\text{C.45})$$

式 (C.44) は要素  $e$  より外側の領域からの寄与を、式 (C.45) は要素  $e$  より内側の領域からの寄与を表している。

#### C.3.2 要素内部で計算される積分の定義

式 (C.44) および (C.45) に含まれる波動関数  $\psi(r')$  に、各要素  $p$  における展開  $\psi_p(r') = A_p y_p(r') + B_p z_p(r')$  を代入すると、積分は要素ごとの寄与の和として書き直すことができる。そこで、各要素の内部で以下の積分量をあらかじめ計算しておく。

$$c y_p = \frac{1}{k} \int_{r_a^{(p)}}^{r_b^{(p)}} \cos(kr') V(r') y_p(r') dr', \quad c z_p = \frac{1}{k} \int_{r_a^{(p)}}^{r_b^{(p)}} \cos(kr') V(r') z_p(r') dr', \quad (\text{C.46})$$

$$s y_p = \frac{1}{k} \int_{r_a^{(p)}}^{r_b^{(p)}} \sin(kr') V(r') y_p(r') dr', \quad s z_p = \frac{1}{k} \int_{r_a^{(p)}}^{r_b^{(p)}} \sin(kr') V(r') z_p(r') dr'. \quad (\text{C.47})$$

これらの積分は、ポテンシャルの形が既知であれば、各要素内で FEDVR の分点と重みを用いて評価することができる。

### C.3.3 係数に対する線型方程式系

上で定義した積分を用いると、係数  $A_e$  および  $B_e$  の定義式は、全要素にわたる係数  $\{A_p, B_p\}$  を未知数とする連立一次方程式に書き換えられる。

$$A_e = 1 - \sum_{p=e+1}^{N_e} (cy_p A_p + cz_p B_p), \quad (\text{C.48})$$

$$B_e = - \sum_{p=1}^{e-1} (sy_p A_p + sz_p B_p). \quad (\text{C.49})$$

これらの式を全要素についてまとめることで、以下の  $2N_e \times 2N_e$  の線型方程式が得られる。

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 & cy_2 & cz_2 & \dots & cy_{N_e} & cz_{N_e} \\ 0 & 1 & 0 & 0 & \dots & 0 & 0 \\ sy_1 & sz_1 & 1 & 0 & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & sy_2 & sz_2 & 1 & 0 & \dots \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \dots & 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_1 \\ B_1 \\ A_2 \\ B_2 \\ \vdots \\ A_{N_e} \\ B_{N_e} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ \vdots \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{C.50})$$

本実装では、この線型方程式系を LAPACK の DGESV ルーチンを用いて数値的に解くことで全領域での  $A_e, B_e$  を決定し、外側の端点での境界条件を満たす波動関数を構築した。

### C.4 位相のずれの計算と境界条件

1 光子過程におけるスピン偏極ダイナミクスの解析には、双極子遷移モーメントの計算に加え、SOI とクーロンポテンシャルによる散乱位相のずれが必要になる。散乱問題における位相のずれは、短距離ポテンシャルの影響が無視できる十分遠方 ( $r = R_{\max}$ ) における波動関数の漸近形から決定される。本研究で扱う系のようにクーロンポテンシャルが存在する場合、自由粒子の球ベッセル関数ではなく Coulomb 関数を漸近解として用いる必要がある。したがって、観測される全位相のずれは、短距離ポテンシャルによる位相のずれ  $\delta_l$  にクーロン位相  $\sigma_l$  を加えた  $\delta_l + \sigma_l$  となる。

十分大きな  $R_{\max}$  において、数値的に得られた波動関数  $\psi(R_{\max})$  は、正則 Coulomb 関数  $F_l$  と非正則 Coulomb 関数  $G_l$  の線形結合と接続される。

$$\psi(R_{\max}) \propto F_l(kR_{\max}) + \tan \delta_l G_l(kR_{\max}) \quad (\text{C.51})$$

本研究では、IEM により求めた区間の右端  $R_{\max}$  での  $\psi(R_{\max})$  およびその微分  $\psi'(R_{\max})$  を用い、Coulomb 関数とのロンスキアンの関係から位相のずれ  $\delta_l$  を抽出した。

$$\tan \delta_l = \frac{\psi(T)F_l'(kT) - \psi'(T)F_l(kT)}{\psi'(T)G_l(kT) - \psi(T)G_l'(kT)} \quad (\text{C.52})$$

ここで、Coulomb 関数  $F_l, G_l$  およびその微分、ならびにクーロン位相  $\sigma_l$  の計算には、FRESCO プロジェクト (<https://www.fresco.org.uk/>) から提供されている COUL90 ルーチンを用いた。本ルーチンは Lentz-Thompson アルゴリズムによる連分数展開を用いて  $F_l'/F_l$  の比を計算し、高精度かつ安定に Coulomb 関数を評価している。

## Appendix D シーガート状態法によるトンネルイオン化過程の解析

トンネルイオン化過程の場合の解析には、放物線座標でクーロンポテンシャルと電場を考慮してシュレーディンガー方程式を解いた。その際に解の形として Siegert 状態を用いた。この方法では断熱固有値方程式、そして close-coupling 方程式の二つを解く必要がある。前者は対角化によって解くことができる一方で、後者では、無限遠における外向き波の境界条件を満たすように関数を伝搬する必要がある。本研究ではスピノル成分は断熱固有関数  $\Phi$  にのみ含み、チャンネル関数  $\chi$  は 1 成分で計算を行った。

### D.1 断熱ハミルトニアン of 構築と対角化の実装

断熱固有値方程式を解く際は断熱パラメータ  $\eta$  を固定することに、演算子  $\hat{B}(\eta)$  を FEDVR 法を用いて離散化し、固有値問題として解いている。以下に、行列の具体的な構成法、微分演算子の数値的处理、および対角化の手順について詳述する。

#### D.1.1 全行列の構造と基底展開

断熱固有関数  $\Phi_\nu(\eta; \xi, \phi, \sigma)$  は、各要素  $e$  ごと、更に要素の中でスピノル成分ごとに Lagrange 多項式  $\{f_k(\xi)\}$  で展開される。

$$\Phi_\nu^e \approx \sum_{k=1}^n c_{k,\uparrow}^{(\nu,e)} f_k(\xi) |\uparrow\rangle + \sum_{k=1}^n c_{k,\downarrow}^{(\nu,e)} f_k(\xi) |\downarrow\rangle \quad (\text{D.53})$$

ここで  $n$  は各要素内の分点数、 $|\uparrow\rangle, |\downarrow\rangle$  はスピン成分である。この展開に基づき、離散化された全体の行列要素  $\mathbf{B}$  は、要素数と分点数によって決まる全体の自由度  $N$  とスピン自由度 2 を合わせた  $2N \times 2N$  の大きさを持つ行列として構成される。

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} \mathbf{B}_{\uparrow\uparrow} & \mathbf{B}_{\uparrow\downarrow} \\ \mathbf{B}_{\downarrow\uparrow} & \mathbf{B}_{\downarrow\downarrow} \end{pmatrix} \quad (\text{D.54})$$

ここで対角ブロック  $\mathbf{B}_{\sigma\sigma}$  ( $\sigma \in \{\uparrow, \downarrow\}$ ) は運動エネルギーおよびスピンを保存するポテンシャル項を含み、非対角ブロック  $\mathbf{B}_{\sigma\sigma'}$  はスピン軌道相互作用によるスピン反転項を表す。それぞれの大きさは  $N \times N$  である。

#### D.1.2 微分演算子の離散化と境界条件

演算子  $\hat{B}$  の運動エネルギー項  $\frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right)$  は次のように数値計算に落とし込んだ。基底関数  $f_i, f_j$  に対する行列要素  $T_{ij}$  は以下のように変形される。

$$\begin{aligned} T_{ij} &= \left\langle f_i \left| \frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi \frac{\partial}{\partial \xi} \right) \right| f_j \right\rangle \\ &= \left[ f_i(\xi) \xi \frac{df_j}{d\xi} \right]_{\xi_{\min}}^{\xi_{\max}} - \int_{\xi_{\min}}^{\xi_{\max}} \frac{df_i}{d\xi} \xi \frac{df_j}{d\xi} d\xi \end{aligned} \quad (\text{D.55})$$

ここで、区間の両端で波動関数がゼロになり、第一項が無視できると仮定した。残った積分項は、FEDVR の求積重み  $w_k$  と微分行列  $D_{ki} = f'_i(\xi_k)$  を用いて以下の和として計算される。

$$T_{ij} \approx - \sum_k w_k \xi_k D_{ki} D_{kj} \quad (\text{D.56})$$

### D.1.3 B を構成する各ブロック行列の要素

各ブロック行列の要素は, Lagrange 多項式の性質 ( $f_i(\xi_k) = \delta_{ik}$ ) を利用して以下のように構築される.

■1. 対角ブロック ( $\mathbf{B}_{\uparrow\uparrow}, \mathbf{B}_{\downarrow\downarrow}$ ) 運動エネルギー項  $T_{ij}$  に加え, クーロンポテンシャルと遠心力ポテンシャル, 電場項, そしてスピン軌道相互作用のうち  $L_z S_z$  に由来する項が含まれる. 運動エネルギー項を除いたものは対角要素としてのみ寄与するため, このブロック行列は以下のように与えられる.

$$(B_{\sigma\sigma})_{ij} = T_{ij} + \delta_{ij} \left[ V_{\text{eff}}(\xi_i, \eta) + V_{\text{SOI}}^{\text{diag}}(\xi_i, \eta, \sigma) \right] \quad (\text{D.57})$$

ここで  $V_{\text{eff}}$  にはクーロン項, 電場項, 遠心力項が含まれ,  $V_{\text{SOI}}^{\text{diag}}$  は  $L_z S_z$  に由来する.

■2. 結合ブロック ( $\mathbf{B}_{\uparrow\downarrow}, \mathbf{B}_{\downarrow\uparrow}$ ) スピン反転を引き起こす項は, スピン軌道相互作用の  $\mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$  から現れる  $L_x S_x, L_y S_y$  を昇降演算子で書き直した  $L_+ S_-$  および  $L_- S_+$  に由来する. 一階微分を含む項と  $\phi$  に対する微分から現れる項があり, 前者によって非対角成分が現れる.

最終的に, この要素ごとに組み立てられた4つのブロック行列を組み合わせて全区間における一つの  $\mathbf{B}$  行列を構築する.

### D.1.4 断熱固有値と断熱固有関数の利用

以上の手順により, 固定された断熱パラメータ  $\eta$  に対して, 断熱固有値  $\beta_\nu(\eta)$  と対応する断熱固有関数  $\Phi_\nu(\eta; \xi, \phi, \sigma)$  が対角化を行うことで数値的に得られる. これらの断熱固有値は, 放物線座標における断熱ポテンシャルを与え, close-coupling 方程式を解く際に必要となる. また, 本研究では断熱固有関数を FEDVR 基底上で表現しているため, 分点  $\xi_k$  および対応する重み  $w_k$  が既知である. この性質により, close-coupling 方程式に現れる非断熱遷移項の計算がヘルマン-ファインマンの定理を用いて効率的に評価することができる. つまり, 定理から

$$\left\langle \Phi_\mu \left| \frac{\partial}{\partial \eta} \right| \Phi_\nu \right\rangle = \frac{\left\langle \Phi_\mu \left| \frac{\partial \hat{B}(\eta)}{\partial \eta} \right| \Phi_\nu \right\rangle}{\beta_\mu(\eta) - \beta_\nu(\eta)} \quad (\text{D.58})$$

が成り立ち,  $\frac{\partial \hat{B}(\eta)}{\partial \eta}$  は解析的に求めることができるので非断熱遷移の大きさについて分点と重みを用いて計算することができる. このように, FEDVR 法を用いることで, 非断熱遷移項の計算が容易になるという利点がある.

## D.2 close-coupling 方程式の実装と Siegert 状態法

最終的にトンネルイオン化レートや各断熱チャネルへのイオン化振幅を求めるためには, 放物線座標での close-coupling 方程式を解く必要がある. 本プログラムでは, 原点ではディリクレ条件を満たし, 無限遠では外向き波の境界条件を与え, そして接続点での内側と外側から伝搬してきた R 行列の一致条件を満たす複素エネルギー  $E$  を探索するアルゴリズムを実装した.

端点  $\eta_{\text{max}}$  においては, クーロンポテンシャルと外部電場  $F$  が支配的となる. ここで, 無限遠においてクーロンポテンシャルと電場のみが残った際のチャネル関数の解  $\chi_\nu(\eta)$  は以下のように与えられる.

$$\chi_\nu(\eta) = \frac{\sqrt{2}}{(F\eta)^{1/4}} \exp \left[ i \left( \frac{\sqrt{F\eta^3}}{3} + E \sqrt{\frac{\eta}{F}} \right) \right] \quad (\text{D.59})$$

この解の対数微分を計算すると、以下ようになる。

$$\frac{1}{\chi_\nu} \frac{d\chi_\nu}{d\eta} \Big|_{\eta_{\max}} = -\frac{1}{4\eta} + i \left( \frac{\sqrt{F}}{2} \sqrt{\eta} + \frac{E}{2\sqrt{F}\sqrt{\eta}} \right) \quad (\text{D.60})$$

全体の端点での R 行列は、この対数微分の逆数を持つ対角行列として構成される。

$$[\mathbf{R}_{\text{out}}(\eta_{\max})]_{\mu\nu} = \delta_{\mu\nu} \left[ \frac{\chi'_\nu}{\chi_\nu} \right]^{-1} \quad (\text{D.61})$$

### D.2.1 接続条件と複素エネルギーの探索

Siegert 状態の複素エネルギー  $E$  は、原点から伝搬した R 行列  $\mathbf{R}_{\text{in}}$  と、無限遠から伝搬した R 行列  $\mathbf{R}_{\text{out}}$  が、任意の接続点  $\eta_{\text{match}}$  において一致する条件から決定される。

$$\det [\mathbf{R}_{\text{in}}(\eta_{\text{match}}; E) - \mathbf{R}_{\text{out}}(\eta_{\text{match}}; E)] = 0 \quad (\text{D.62})$$

今回の実装では初期条件として与えたエネルギー  $E$  に対して内側と外側から R 行列伝搬を行い、接続点での行列式の値を計算した。この行列式がゼロとなる根（エネルギーとイオン化レート）を求めるために、割線法を用いた。

### D.2.2 イオン化振幅の決定

エネルギー  $E$  が収束した後、各断熱チャネルへのイオン化振幅を決定する。接続点  $\eta_{\text{match}}$  において、全断熱チャネルについての関数  $\chi$  およびその微分  $\chi'$  が連続である条件は以下のように書ける。

$$\chi_{\text{in}} = \chi_{\text{out}}, \quad \chi'_{\text{in}} = \chi'_{\text{out}} \equiv \mathbf{C} \quad (\text{D.63})$$

ここで  $\mathbf{C}$  は接続点における共通の微分ベクトルである。R 行列の定義式  $\chi = \mathbf{R}\chi'$  を用いると、この連続条件は以下のように変形される。

$$\mathbf{R}_{\text{in}}\mathbf{C} = \mathbf{R}_{\text{out}}\mathbf{C} \quad \Rightarrow \quad (\mathbf{R}_{\text{in}} - \mathbf{R}_{\text{out}})\mathbf{C} = \mathbf{0} \quad (\text{D.64})$$

求める必要がある  $\mathbf{C}$  は、行列  $(\mathbf{R}_{\text{in}} - \mathbf{R}_{\text{out}})\mathbf{C} = \mathbf{0}$  の非自明な解である。各チャネル関数の微分  $\mathbf{C}$  が定めれば、関係式  $\chi = \mathbf{R}_{\text{in}}\mathbf{C}$  により波動関数の値も一意に定まる。理論上は  $\det(\mathbf{R}_{\text{in}} - \mathbf{R}_{\text{out}}) = 0$  であるため、この行列は非自明な解を持つ。しかし、今回は数値計算によってそれを安定して得ることが難しく、収束が不安定になったため、特異値分解を用いて近似的に解を求めた。具体的には、行列  $\mathbf{R}_{\text{diff}} = \mathbf{R}_{\text{in}} - \mathbf{R}_{\text{out}}$  に対して SVD を行い、以下のように分解した。

$$\mathbf{R}_{\text{diff}} = (\mathbf{R}_{\text{in}} - \mathbf{R}_{\text{out}}) = \mathbf{U}\Sigma\mathbf{V}^\dagger \quad (\text{D.65})$$

ここで最小の特異値（理論上はゼロ）に対応する  $\mathbf{V}$  の列ベクトル（右特異ベクトル）を解  $\mathbf{C}$  として採用した。こうすることで、 $\mathbf{R}_{\text{diff}}$  を左から掛けたときにできる限りゼロに近くなるベクトルを安定的に得た。得られたベクトルは全断熱チャネルについてノルムが 1 になるように規格化され、これを各断熱チャネルへのイオン化振幅の計算に用いた。

令和7年度 輪講B 輪講学習リスト

2026年 1月 20日

学籍番号	1910359
氏名	清野 玲貴
指導教員氏名	森下 亨
<p>関連論文及び図書</p> <p>1 U Fano. Spin orientation of photoelectrons ejected by circularly polarized light. <i>Physical Review</i>, 178(1):131, 1969.</p> <p>2 Fano and Dan Dill. Angular momentum transfer in the theory of angular distributions. <i>Physical Review A</i>, 6(1):185, 1972.</p> <p>3 NA Cherepkov. Angular distribution and spin orientation of photoelectrons ejected by circularly polarized light. <i>Physics Letters A</i>, 40(2):119–121, 1972.</p> <p>4 Pei-Lun He, Zhao-Han Zhang, Karen Z Hatsagortsyan, and Christoph H Keitel. Photoelectron spintexture in tunneling ionization induced by a linearly polarized laser pulse. <i>Physical Review Letters</i>, 134(16):163201, 2025.</p> <p>5 Oleg I Tolstikhin, Valentin N Ostrovsky, and Hiroki Nakamura. Siegert pseudo-states as a universal tool: Resonances, s matrix, green function. <i>Physical Review Letters</i>, 79(11):2026, 1997.</p> <p>6 Zhou, Y., Tolstikhin, O. I., and Morishita, T. (2016). Near-forward rescattering photoelectron holography in strong-field ionization: extraction of the phase of the scattering amplitude. <i>Physical Review Letters</i>, 116(17), 173001.</p> <p>7 Tolstikhin, O. I., and Morishita, T. (2012). Adiabatic theory of ionization by intense laser pulses: Finite-range potentials. <i>Physical Review A</i>, 86(4), 043417.</p> <p>8 Joachain, C. J., Kylstra, N. J., and Potvliege, R. M. (2012). <i>Atoms in intense laser fields</i>. Cambridge University Press.</p>	