

強レーザー場中における二原子分子の  
トンネルイオン化と高次高調波発生 of 搬送波位相制御

○大村 周<sup>1</sup>, 河野 裕彦<sup>1</sup>, 小山田 隆行<sup>2</sup>, 加藤 毅<sup>3</sup>, 中井 克典<sup>3</sup>, 小関 史朗<sup>4</sup>

<sup>1</sup>東北大院理, <sup>2</sup>横浜市大院生命ナノ, <sup>3</sup>東大院理, <sup>4</sup>大阪府大院理

shu.ohmura.s6@dc.tohoku.ac.jp

**序論** 高強度 ( $>10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) 近赤外レーザーパルスによってトンネルイオン化した電子が親イオンに再結合すると、軟 X 線領域の高次高調波が発生する (高次高調波発生)。トンネルイオン化はパルスのピークで最も起こりやすく、入射パルスの搬送波位相を変化させて高次高調波発生過程を制御する試みも行われている[1]。近年、複数軌道からの高次高調波スペクトルが観測され[2]注目を集めている。分子軌道ごとの高調波スペクトルへの寄与を制御できれば、より洗練された分子軌道イメージング[3]が可能になると考えられる。そこで本研究では、軌道の高次高調波スペクトルの搬送波位相制御を目指した。二原子分子を対象に、多配置時間依存 Hartree-Fock (MCTDHF) 法[4]を用いて電子相関を考慮したイオン化シミュレーションを行い、得られた結果から軌道ごとの高次高調波スペクトルを求めて解析を行った。

**手法** MCTDHF 法では電子波動関数をスレーター行列式で展開して、展開係数  $\{C_i(t)\}$  と行列式を構成する分子軌道  $\{\phi_j(t)\}$  の両方を時間発展させる。高次高調波スペクトル強度  $S(\omega)$  はシミュレーションで得られた双極子モーメント  $\mathbf{d}(t)$  のパワースペクトルから求められる。各時刻で  $\{\phi_j(t)\}$  を自然軌道に変換して  $\mathbf{d}(t)$  を各軌道からの寄与の和として表現すれば、軌道の高次高調波スペクトルが得られる[5]。これを搬送波位相を変化させて計算し比較した。さらに、wavelet 変換によりスペクトルの時間プロファイルを求めて、高次高調波発生の機構を調べた。

**結果と考察** CO 分子に MCTDHF 法を適用した結果を示す。レーザー電場は分子軸偏光の 2 サイクルパルス  $\varepsilon(t) = \varepsilon_0 f(t) \sin(\omega_0 t - \varphi)$  を仮定した。ここで  $\varepsilon_0$  はピーク電場強度、 $f(t)$  は包絡線関数、 $\omega_0$  は搬送波の振動数、 $\varphi$  は搬送波位相である。HOMO である  $5\sigma$  軌道は C 側に大きく広がっており、O 側に比べてイオン化しやすいと考えられる。そこで  $\varphi = 0, \pi$  の場合についての結果を比較した。これらの位相は、 $t \approx 2$  fs のピーク時にそれぞれ O 原子核側、C 原子核側でイオン化し、 $t \approx 3$  fs のピーク付近で再結合する条件であり (図 1 枠内参照)、後者の  $S(\omega)$  の方が大きいと予想される。 $\varepsilon_0 = 2.0 \times 10^{10}$  V/m、 $\lambda = 2\pi/\omega_0 = 760$  nm とし、平衡核間距離 (2.1 bohr)、10 軌道 ( $1\sigma, 2\sigma, 3\sigma, 4\sigma, 1\pi^2, 5\sigma, 2\pi^2, 6\sigma$ ) を使って計算した。4 電子 6 軌道 ( $1\pi^2, 5\sigma, 2\pi^2, 6\sigma$ ) の 400 配置を考慮している。図 1 に HOMO ( $5\sigma$  軌道) のスペクトルを示した。図を見ると、高調波次数  $\omega/\omega_0$  が  $5 \leq \omega/\omega_0 \leq 8$  のところで、 $\varphi = 0$  に比べて  $\varphi = \pi$  の  $S(\omega)$  が増大している。 $S(\omega)$  の時間プロファイルから、この増大は主に 3 fs の電場ピークで起こっており、イオン化の異方性に起因していることがわかった。他の軌道でも同様の結論が得られた。この結果は、予想された機構通りに、各軌道の高次高調波スペクトルの搬送波位相制御ができることを示している。

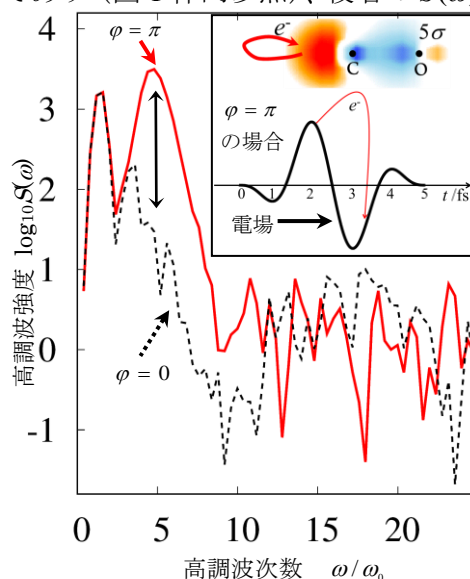


図 1  $5\sigma$  軌道の高調波スペクトル。 $5 \leq \omega/\omega_0 \leq 8$  において  $\varphi = \pi$  の強度が増大している。

[1] N. Ishii et al., Nat. Commun. **5**, 3331 (2014) [2] B. K. McFarland et al., Science **322**, 1232 (2008) [3] J. Itatani et al., Nature **432**, 867 (2004) [4] T. Kato and H. Kono, Chem. Phys. Lett. **392**, 533 (2004) [5] S. Ohmura and H. Kono et al., JPS Conf. Proc. **1**, 013087 (2014)