

# 多光子イオン化領域におけるキャリアエンベロープ位相の効果

中 嶋 隆

## Effects of the Carrier-Envelope Phase in the Multiphoton Ionization Regime

Takashi NAKAJIMA

Under the strong intensity regime it is well known that the carrier-envelope phase of few-cycle pulses plays an important role, and its effects can be well understood using the tunneling ionization picture. The question we address here is whether and how much effects of the carrier-envelope phase can be seen in the lower intensity range where multiphoton ionization takes place. Together with some theoretical results based on the solution of time-dependent Schrödinger equation, we explain that the physical origin of the phase-dependence in the multiphoton ionization regime is completely different from that in the tunneling ionization regime.

**Key words:** carrier-envelope phase, few-cycle pulses, tunneling ionization, multiphoton ionization

超短レーザーパルスの技術の進展とともに、キャリアエンベロープ位相まで制御安定化された光パルスが実験室で生成可能となりつつある。パルス時間幅がサイクル数にしてわずか数サイクルの場合には、高次高調波や超閾イオン化などに顕著な位相依存性が現れる。これまで報告されたキャリアエンベロープ位相の効果は、きわめて光強度の強い領域（トンネルイオン化領域）においてであり<sup>1,2)</sup>、トンネルイオン化という概念を使って物理現象をよく説明することができた。近年、モノサイクルパルス発生<sup>3,4)</sup>の報告もなされてはいるが<sup>3,4)</sup>、数サイクルパルスを発生させ、さらにはキャリアエンベロープ位相まで安定化するということは今なお容易ではない技術であり、これに加えてきわめて高いパルスエネルギーまで求めるとなればパルス発生はきわめて困難な技術となる。もしパルスエネルギーが必要とされない低光強度領域（多光子イオン化領域）で何らかのキャリアエンベロープ位相効果が発見されれば、さまざまな意味で応用範囲が格段に増大するであろう。これらの事実を踏まえ、筆者らが当初抱いた疑問は、(1) 低光強度領域でキャリアエンベロープ位相の効果は果たして存在するのか、また、(2) もし存在するのなら、その物理的メカニズムは何なのか、ということである。この2つの疑問に明確な答えを出すのが本稿の目的である。

### 1. 時間依存シュレーディンガー方程式

高強度レーザー場が原子・分子と相互作用する場合に、トンネルイオン化の起こりやすさを示すパラメーターとして Keldysh パラメーター  $\gamma$  がある。光子エネルギーを  $E_{ph}$  (eV)、原子あるいは分子のイオン化ポテンシャルを  $I_p$  (eV)、光強度を  $I$  (W/cm<sup>2</sup>) とすると、Keldysh パラメーターは  $\gamma = \sqrt{3.48 \times 10^{12} \times (E_{ph})^2 \times I_p / I}$  と定義され、 $\gamma \gg 1$  を多光子イオン化領域、 $\gamma \ll 1$  をトンネルイオン化領域とよぶ。中性原子に対しては、大体  $I < 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> であれば多光子イオン化領域と考えて差し支えない。Keldysh パラメーターはそもそも断熱領域で定義されたパラメーターであるが、パルス時間幅が短い数サイクルの極限でも慣習的に使われており、定性的には物理現象をよく表現していると考えられている。本稿で考えているのは、大体  $10^{11} \sim 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> 程度の数サイクルレーザー場と原子の相互作用であり、高強度レーザー場中で起こるようないわゆる非摂動的現象は起こらない。したがって、原則としては時間依存摂動論を使えばよいのであるが、では、どの程度のレーザー波長、パルス時間幅（サイクル数）および光強度である場合にターゲット原子のどの準位を理論に取り込めば十分であるかは自明ではない。それに対し時間依存シュレーディンガー方程式を使えば、何の近似もなく「すべて」

京都大学エネルギー理工学研究所（〒611-0011 宇治市五ヶ庄） E-mail: t-nakajima@iae.kyoto-u.ac.jp

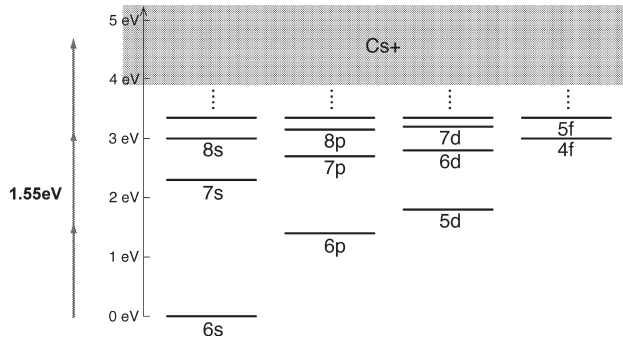


図1 Cs原子のエネルギー準位図.

を取り込んだ計算をすることができる。系の全波動関数を  $\Psi(t)$  とすると、時間依存シュレーディンガー方程式は

$$i \frac{\partial \Psi(t)}{\partial t} = [H_0 + V(t)] \Psi(t) \quad (1)$$

で与えられる。ここで  $H_0$  は外場のない場合の原子のハミルトニアン、 $V(t)$  は時間依存相互作用項であり、 $V(t)$  は双極子モーメント  $\boldsymbol{\mu}$  およびレーザー電場  $\mathbf{E}(t)$  を使って  $V(t) = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t)$  と書くことができる。また、 $\mathbf{E}(t)$  はベクトルポテンシャル  $\mathbf{A}(t)$  を使って  $\mathbf{E}(t) = -\partial \mathbf{A}(t) / \partial t$  の関係から導くことができる。本稿では、ベクトルポテンシャルは

$$\mathbf{A}(t) = \hat{\boldsymbol{\epsilon}} A_0 \exp[-4 \ln 2 \left( \frac{\omega t}{2\pi N} \right)^2] \sin(\omega t + \phi) \quad (2)$$

で与えられるようなガウス型時間波形を仮定した。ここで  $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$  は偏光ベクトル、 $A_0$  はパルスのピークにおけるベクトルポテンシャルの値、 $\omega$  は光子エネルギー、 $N$  はパルスのサイクル数（半値全幅）、 $\phi$  はキャリアエンベロープ位相である。価電子を1つもつ原子については、3つの量子数  $(n, l, m)$  を使えば価電子の位置ベクトル  $\mathbf{r}$  について任意の定常状態  $\phi_{nlm}(\mathbf{r})$  を定義することができる。H原子の場合にはクーロンポテンシャル、Cs原子の場合には擬ポテンシャルを使うことによって200~500原子単位の球形ボックス内で原子基底を構築した。こうして得られた原子基底の組  $\{\phi_{nlm}(\mathbf{r})\}$  を用いると、全波動関数  $\Psi(t)$  は時間に依存した係数  $b_{nlm}(t)$  を使って

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{n,l,m} b_{nlm}(t) \phi_{nlm}(\mathbf{r}) \quad (3)$$

のように展開することができる。式(3)を式(1)に代入して解くことにより、任意の光強度およびサイクル数をもつレーザー場中での原子の時間依存ダイナミクスを記述できる。

## 2. Cs原子の位相依存性

本章では、前章で概説した時間依存シュレーディンガー方程式を実際に解くことによって得られた結果を示す。Cs原子は価電子を1つもつアルカリ金属原子であるが、

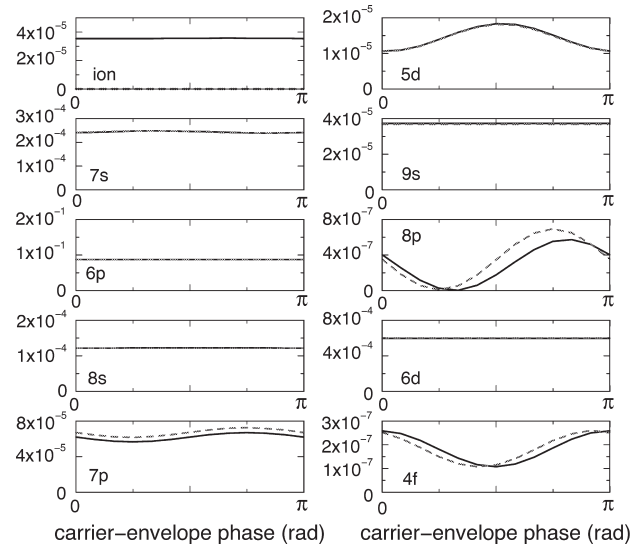


図2 Cs原子の位相依存性。パルスパラメーターは  $\omega = 1.55$  eV,  $I = 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>,  $N = 1$ .

イオン化閾値は3.89 eVとH原子の約4分の1であり、また図1に示すように、H原子に比べはるかに密なエネルギー準位構造をもつことから低強度の光で励起およびイオン化が可能である。高い蒸気圧を得やすいという点でも実験上は好都合である。ここでは例として、レーザー場（ベクトルポテンシャル）の振幅に関して半値全幅1サイクル、ピーク光強度  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>、中心波長800 nm（光子エネルギー1.55 eV）のパルスが基底状態6sにあるCs原子と相互作用した場合の全イオン化量およびいくつかの束縛状態の占有密度の位相依存性を図2に示す<sup>5)</sup>。全イオン化量および多くの束縛状態はほとんど位相依存性を示さない。これは、Csの励起およびイオン化は次数の低い非線形光学過程であることからもある程度予測できた結果である。しかしながら、5d, 8p, 4fなどの状態は強い位相依存性を示す。面白いのは、これら強い位相依存性を示す束縛状態は、共鳴エネルギーから大きく離れているということである。イオン化過程がどの程度位相依存性に影響を及ぼすかを調べるため、イオン化が全く起こらないとして同様の計算をした結果を図2に点線で示す。イオン化過程の有無により位相依存性に若干の違いがみられるものの、本質的にイオン化過程が位相依存性を引き起こしているわけではない、ということがわかる。つまり、トンネルイオン化領域ではイオン化過程が「エネルギーおよび角度分解した光電子信号」<sup>1,2)</sup>にみられる位相依存性の起源であったのに対し、多光子イオン化領域ではイオン化過程は位相依存性に本質的な影響を及ぼさない。このように、位相依存性に関して2つの異なる光強度領域では本質的な違いがある。筆者らはH原子についても同様の計算を行った<sup>6)</sup>。そ

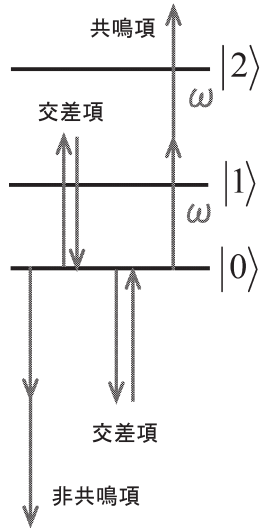


図3 三準位系.

の結果, H 原子の場合には, 束縛状態の占有密度のみならず, 全イオン化量にも顕著な位相依存性がみられるということを見いだした. しかしながら, その物理的起源はやはりトンネルイオン化領域とは全く異なるものであって, 次章で述べるような描像でよく説明できる.

### 3. 位相依存性の物理的起源

位相依存性の物理的起源を調べるため, 筆者らは三準位系に戻って考察を行う<sup>5)</sup>. 三準位系の各準位を  $|j\rangle$  ( $j=0, 1, 2$ ), 対応するエネルギーを  $E_j$  とすると, 各準位の確率振幅  $c_j(t)$  は以下のような方程式に従う.

$$\dot{c}_0(t) = i\mu_{01}\epsilon_0(t) \cos(\omega t + \phi) e^{-iE_{10}t} c_1(t) \quad (4)$$

$$\dot{c}_1(t) = i\mu_{10}\epsilon_0(t) \cos(\omega t + \phi) e^{iE_{10}t} c_0(t) + i\mu_{12}\epsilon_0(t) \cos(\omega t + \phi) e^{-iE_{21}t} c_2(t) \quad (5)$$

$$\dot{c}_2(t) = i\mu_{21}\epsilon_0(t) \cos(\omega t + \phi) e^{iE_{21}t} c_1(t) \quad (6)$$

ここで  $E_{jk} \equiv E_j - E_k$  であり,  $\mu_{jk}$  ( $j, k=0, 2, 1, j \neq k$ ) は  $|j\rangle$  と  $|k\rangle$  の間の双極子モーメントを表す. 弱励起を仮定すると  $c_0(t) \sim 1$  であり,  $c_1(t)$  と  $c_2(t)$  はそれぞれ 1 次および 2 次の時間依存摂動論から求めることができ,

$$c_1(t) = i\mu_{10} \left[ e^{i\phi} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \epsilon_0(t_1) e^{i(\omega + E_{10})t_1} + e^{-i\phi} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \epsilon_0(t_1) e^{-i(\omega - E_{10})t_1} \right] \quad (7)$$

$$c_2(t) = -\frac{\mu_{21}\mu_{10}}{4} \left[ e^{i2\phi} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \epsilon_0(t_1) \epsilon_0(t_2) e^{i(\omega + E_{21})t_1} e^{i(\omega + E_{10})t_2} + \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \epsilon_0(t_1) \epsilon_0(t_2) e^{i(\omega + E_{21})t_1} e^{-i(\omega - E_{10})t_2} + \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \epsilon_0(t_1) \epsilon_0(t_2) e^{-i(\omega - E_{21})t_1} e^{i(\omega + E_{10})t_2} + e^{-i2\phi} \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \epsilon_0(t_1) \epsilon_0(t_2) e^{-i(\omega - E_{21})t_1} e^{-i(\omega - E_{10})t_2} \right] \quad (8)$$

が導ける. 式 (7), (8) からわかるように,  $c_1(t)$  については非共鳴項および共鳴項の 2 つの項,  $c_2(t)$  については非共鳴項, 2 つの交差項および共鳴項の 4 つの項からなる (図 3 参照). パルスのサイクル数が多い場合には, たとえ光子エネルギーが遷移エネルギーからかなり離れていようとも, 共鳴項が他の項よりもはるかに大きくなるため, 占有密度の位相依存性は確率振幅の 2 乗をとることによって消えてしまうが, パルスのサイクル数がきわめて少ない場合には, 共鳴から大きく離れた準位については他の項の寄与も無視できなくなり, 異なる位相因子をもつ数項の和となるために位相依存性が発現する. つまり, 極論すれば式 (7) から明らかなように, 位相依存性は三準位系でなくとも二準位系においてさえ存在する. ただし, 二準位系における位相依存性はきわめて小さく, いかなる実験条件下であっても現実的には無視して差し支えない. 三準位系の場合には, パルスが 2 サイクル程度以下で, かつ, 共鳴エネルギーから大きく離れた準位に注目するという条件さえ整えば, その準位の占有密度に位相依存性が発現する. 実際, Cs 原子のさまざまな準位を 3 つ取り出して時間依存シュレーディンガー方程式を繰り返し解くことにより, 上の議論が正しいことを確認した. 以上の議論は準位数が無限の系に拡張できることは明らかであり, 図 2 の結果をよく説明することができる. こうして, 多光子イオン化領域においてもキャリアエンベロープ位相の効果は顕著に現れるが, 位相依存性は基本的にイオン化過程とは無関係であり, 「異なる励起経路間の量子干渉」がその物理的起源であることが明らかになった. つまり, 多光子イオン化領域とトンネルイオン化領域では位相効果の物理的起源が全く異なる<sup>5,6)</sup>.

本研究は渡部俊太郎教授 (東大物性研) との共同研究である. ここに謝意を表す. この研究は科学研究費補充金特定領域研究「強光子場中の分子制御」の支援を受けて行われた. さまざまな形でご支援いただいた領域代表者の山内薫教授 (東大理) に深く感謝する.

### 文 献

- 1) G. G. Paulus *et al.*: Nature, **414** (2003) 182-184.
- 2) G. G. Paulus *et al.*: Phys. Rev. Lett., **91** (2003) 253004.
- 3) K. Yamane *et al.*: Opt. Lett., **28** (2003) 2258-2260.
- 4) S. Adachi *et al.*: Opt. Lett., **29** (2004) 1150-1152.
- 5) T. Nakajima *et al.*: Phys. Rev. Lett., **96** (2006) 213001.
- 6) T. Nakajima *et al.*: Opt. Lett., **31** (2006) 1920-1922.

(2006 年 8 月 18 日受理)