強光子場下におけるクラスターのイオン化のシミュレーション

水谷由宏・岡村秀樹^{*†}

上智大学理工学部物理学科 東京都千代田区紀尾井町 7-1 (〒102-8554)

^{*}理化学研究所[†] 埼玉県和光市広沢 2-1 (〒351-0198)

(2001年 6 月 21 日 受理)

Simulation of Ionizing Clusters by An Intense Optical Field

Yoshihiro MIZUGAI and Hideki OKAMURA^{*†}

Department of Physics, Faculty of Science and Technology, Sophia University
7-1 Kioi-cho, Chiyoda-ku, Tokyo 102-8554

^{*}RIKEN (Institute of Physical and Chemical Research) 2-1, Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198

(Received June, 21, 2001)

The ionization of argon clusters by an intense, femtosecond laser pulse has been studied using classical particle dynamics simulations. The time evolution of electrons and ions in a high power electro-magnetic field is described. These simulations show that it takes only a few tens of femtoseconds until many electrons leave from the clusters.

Keywords: Ionization, Clusters, Intense femtosecond laser

1. はじめに

超短パルス高出力レーザーと原子・分子の相互作用を取り扱う研究は超高光電場下の物理として最近急速に発達している^{1,2)}. このときのレーザー電場は原子内クーロン電場と同じくらいかあるいはそれ以上にもなる. 水素原子を例にとるとボーア半径における電場は 5.14×10^{11} V/m であり, これに相当するレーザー強度 I は $I = \epsilon_0 c E^2 / 2$ より約 4×10^{16} W/cm² である.

一般に, 10^{15} W/cm² 程度の強光子場中では, 分子・クラスターから多数の電子が放出される. その結果として, 多価イオン同士のクーロン反発による解離, いわゆる「クーロン爆発」が観測されることが実験によって確かめられている³⁾.

この程度のパワー密度は, すでに現在のレーザー技術では比較的容易に得ることができる. そして, この強いレーザー光を用いた分子の配向, イオンや電子分光の実験も急速に進歩している.

超高光電場における原子・分子のイオン化過程は, Kel-

dysh のパラメーター⁴⁾を用いて多光子イオン化過程とトンネルイオン化過程の2つに大別される. そして, 多光子吸収が支配的な場合と, トンネルイオン化が支配的な場合について各種の理論が展開され, さまざまな実験が行なわれている⁵⁾.

本論文では現在の技術で充分可能なパワーと短パルス幅のレーザー光をファン・デル・ワールス Ar クラスターに照射したとき, トンネルイオン化によって起こるイオンおよび電子の運動の時間変化をシミュレーションした. 高強度の交番電磁場が加わることで電子が飛び出し, クラスター核と電子の間にはクーロン引力が生じ, またイオン核同士がクーロン斥力により互いに反発する. 従って, 時間経過とともに電子は飛散し, イオンコアは膨張を始める.

Ar クラスターについてのこの種のシミュレーションは既に Ditmire⁶⁾による論文があり, クラスターサイズを変化させてイオン同士のクーロン反発による「クーロン爆発」を報告している. 我々はレーザー光の波長, ピーク強度, パルス幅, などを系統的に変化させ, それによりクラスターのイオン化にどのような傾向があるのかを調べるためシミュレーション実験を開始した. すなわち高強度の交番電磁場が存在するとき, 電子が原子内ポテンシャルバリ

[†] Present Address: National Research Council of Canada, 100 Sussex Drive, Ottawa, Ontario K1A 0R6 Canada

アーを超える確率を計算し、それに応じて電子を発生させ、その後のクラスター近傍での電子の運動、および電子が十分遠くに飛散した状態、即ちイオン化に至るまでを実時間で追跡するシミュレーションをおこなった。

2. Ammosov-Delone-Krainov (ADK) 理論とシミュレーションの条件)

ADK 理論⁷⁾は 3 次元準古典的 dc-トンネリング理論に基づき、原子またはイオンのトンネルイオン化の確率を与える理論である。初期状態が s 殻である He⁸⁾と対照的に、p 軌道の電子が初期状態である 4 つの希ガス (Ne, Ar, Kr, Xe) のイオン発生量をよく説明できることが知られている⁵⁾。

ADK 理論によれば、原子やイオンのトンネルイオン化の確率は、入射レーザー光が直線偏光とすれば、方位量子数を l 、磁気量子数を m として

$$W = \left(\frac{3\epsilon n^{*3}}{\pi Z^3} \right)^{1/2} \frac{Z^2}{2n^{*2}} \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{2n^*} \times \frac{1}{2\pi n^*} \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \times \left(\frac{2Z^3}{\epsilon n^{*3}} \right)^{2n^*-|m|-1} \exp \left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}\epsilon} \right) \quad (1)$$

と表される。ここで、 ϵ は原子単位系でのレーザー場の強度、即ち

$$\epsilon = E_{\text{laser}}/E_{\text{atom}} \quad (2)$$

E_{laser} はレーザー場強度、 $E_{\text{atom}} = 5.14 \times 10^{11}$ V/m であり、 e は自然対数の底、 n^* は実効の主量子数で、次のように与えられる。

$$n^* = z(I_H/I_p)^{1/2} \quad (3)$$

ただし z は作られるイオンの価数、 I_H は水素原子のイオン化ポテンシャル、 I_p は注目している原子あるいはイオンのイオン化ポテンシャルである。

いま Ar 原子について考察を行なうので、方位量子数 $l=1$ として (1) 式を書きなおすと

$$W_{m=0} = \left(\frac{3e}{\pi} \right)^{3/2} \frac{Z^2}{n^{*4.5}} \left(\frac{4eZ}{\epsilon n^{*4}} \right)^{2n^*-1.5} \exp \left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}\epsilon} \right) \quad (4)$$

となる。シミュレーションに用いた典型的な光電場の強度では、 $W_{m=0}$ に比べて $W_{m=\pm 1}$ は約 2 桁小さくなるので無視した。

我々は (4) 式を光電場誘起イオン化確率の式 (Optical Field Induced Ionization Probability; OFIP) として採用し、加える光電場の強さやパルス幅、入射光の波長を変化させて電子の発生、イオン化を実時間で追いかけるシミュレーションを行なった。

一方、発生した電子は光電場に連れ運動を始めるが、レーザー光を正弦波とすると位相が $90 \sim 180^\circ$ の間で生成された電子は 1 サイクル中に加速され再びイオン核に戻り、電子-イオン衝突を起こす。この衝突によるイオン化は、戻り電子の衝突イオン化 (Returning Electron Model) として Corkum らにより議論されてきた⁹⁾。

戻り電子による衝突イオン化レートは、イオン化断面積の形状を Lotz の関係式¹⁰⁾より推測し、衝突エネルギーをパラメータとして、すべての電子とイオンの間の距離をチェックして、これが一定範囲内なら衝突を起こし、イオン化するように処理するプログラムを組んだ。このようにして再衝突イオン化を考慮に入れ、電子発生の様子を数値計算した。

ターゲットとしては ADK 理論が実験結果を良く説明できることが知られている Ar クラスターを考え、クラスターの原子数は変化させることができるようにした。またレーザーパワーによっては Ar 原子は多価イオン化するが、必ず段階的にイオン化する逐次イオン化 (Sequential Ionization) と、戻り電子の再衝突による非逐次イオン化 (Nonsequential Ionization) の場合について考察を行なった。

計算のダイアグラムを図 1 に示す。計算のプログラムはフォートラン 77 を使い、電子の光電場による振動や飛散、それにイオンの運動など、結果のビジュアル化には Mathematica¹¹⁾ を用いて 3 次元表示を行なった。電子やイオンの運動を 10^{-3} fs ごとに計算を行なって、位置および速度のデータを 1 つのファイルとした。そして典型的には 1 fs ごとのスナップショットを連続的にモニター表示させた。

シミュレーションに用いた典型的なレーザーの条件は、波長 800 nm、ピーク強度 1×10^{15} W/cm² とし、パルス形状はパルス幅 (FWHM) が 100 fs のガウス関数、または双曲線正割関数とした。

一方、ターゲットとなる Ar はパルスノズルから噴出させるなどとし、ファン・デル・ワールス力によりクラスターを形成していると仮定した。Ar クラスターを形成する原子の数は変数として扱ったが、正多面体構造を持つとして計算した。原子同士の間隔は 3.7×10^{-10} m とおいた。以下、主に原子数が 6 個の正八面体のシミュレーション結果を述べる。以下、図 1 に示したフローチャートにしたがって計算の手順を示す。

- (4) 式に示した ADK 理論によるイオン化確率の式 (OFIP) を使い、光電場の瞬時値において、その確率に応じて電子を発生させ、光電場およびクーロン相互作用によって電子とイオンの運動を計算する。発生した電子と、すべてのイオンについて行ない、それらの位置と速度を算出する。
- 電子がクラスターから十分離れて、クラスターがイ

Fig. 1 Flowchart of the numerical simulation.

オン化するとその電子は計算から取り除く。(ここでは 10^{-7} m 以上離れた電子を取り除いた)

3. OFIP の式を用いて、第 2 イオン化、第 3 イオン化の確率も計算、検討する。
4. 衝突イオン化過程の確率については、戻り電子による衝突イオン化レートを求めるため、衝突エネルギーをパラメータにとり電子-イオン衝突確率を計算する。
5. 上記の過程を繰り返し、各時刻における原子、電子の位置、および速度をファイルに収納する。
6. Mathematica プログラムを使って 5. のファイルを 3 次元、時間表示させる。

出力ファイルには、時刻、その時加えられている光電場の大きさ、各イオン、および電子の位置を書きこみ、Mathematica を使って電子の正弦運動の様子、イオン核

Table 1 Laser intensity dependence of Ar ionization

レーザー光強度 (W/cm ²)	最初の電子放出 (fs)	最後の電子放出
1×10^{14}	-65	-30
5×10^{14}	-72	-51
1×10^{15}	-77	-68
5×10^{15}	-83	-79
1×10^{16}	-87	-85
5×10^{16}	-90	-89

の振る舞いをビジュアル化した。

3. 結果と考察

ADK 理論によるトンネルイオン化の極端な例である Barrier Suppression Ionization (BSI) モデル⁵⁾を使って、Ar の第 1 イオン化に要する光強度を計算すると 2.5×10^{14} W/cm² という結果が得られる。シミュレーションの典型的な条件では、入射光パワーが最大るとき 10^{15} W/cm² であるから約 4 倍の光強度になる。したがって早い段階でイオン化による電子の飛散が起こりはじめることが予想される。

まず、純粋に入射光電場によるイオン化の振る舞いを調べるため、プログラム中の衝突イオン化の部分はスキップさせて、トンネルイオン化によって飛び出す電子の入射光強度依存性の計算を行った。その結果、1 つのクラスターを形成する 6 個の Ar 原子がすべて一価にイオン化する際の入射光強度依存性を表 1 に示す。表 1 は、さまざまに入射光強度を変えた場合の最初の電子が放出される時刻と、最後の Ar 原子が電子を一個放出してすべて一価イオンになる場合の時刻をまとめた。数字は光電場がピークになる時刻を基準に表している。入射光強度が強くなると、トンネルイオン化確率は $W_{m=\pm 1}$ が $W_{m=0}$ に対して無視できなくなるので考慮にいれ、平均の値を用いた。表は各パワーに対して 10 回の平均、すなわち 10 個の乱数の組に対する平均を取った値である。電子放出時刻の入射光強度依存性は当然の結果が得られた。また、 5×10^{16} W/cm² 以上のレーザー強度では 6 個の Ar 原子の一価イオン化は瞬時に終了した。

次に、衝突イオン化の影響を入れた電子放出について述べる。入射光強度を 1×10^{15} W/cm²、波長を 800 nm、パルス波形を双曲線正割関数としてシミュレーションを行なった。

光電場による第 2 イオン化の場合、そのトンネルイオン化の確率は (3) 式において I_p に第 2 イオン化に相当する値 (Ar²⁺ の場合 27.63 eV) を入れて (4) 式より求まるが、それは第 1 イオン化の確率よりはるかに小さい。従って、光電場による逐次第 2 イオン化の確率は非常に小さく無視してよいと結論した。すなわち、光電場による多価

イオン化の確率は非常に小さいが、実際には以下に述べるように衝突イオン化過程を考慮に入れることにより電子がたくさん発生した。

衝突イオン化のシミュレーションにおいては、Lotzの関係式を利用して計算したが、簡単化のため、この式をプログラムの外で使って、 Ar^{n+} ($n=2\sim4$) の衝突イオン化断面積をプロットしたグラフを簡単な多項式で近似して使用した。時間的な振る舞いを述べると光電場がピークとなる77 fs 以前 (-77 fs と表わす) に、1 個の電子が Ar 核を十分離れ、かつ光電場に従った振動運動を始めることが分かった。その後、他の電子も数 fs で次々と核を離れ、光電場中で正弦振動を行なうことが計算された。図2に、 -71 および -70 fs の時刻におけるスナップショットを示す。既に5 個の電子が核を十分離れ、各電子ともレーザー電場に従った正弦振動を行っている。この1 fsの間では次の電子は発生せず、各電子が電場中をどのように運動したか見て取ることができる。 -50 fs から電子は次第に飛散してしまい、 -20 fs では Ar 原子から放出されたすべての電子が図2の空間から無くなってしまうというシミュレーション結果が得られた。10回の計算の平均で約20個の電子が光電場中に放出され、飛散していくことが計算された。

この時点ではまだイオンコアの位置に大きな変化は認められないが、ワンパルスの最後にはイオンコアの直径は数十 nm にも達した。

現在、レーザーの入射波長依存性、ピーク強度依存性などについて系統的なシミュレーションを行ない予備的な結果を得、検討を行なっているところである。またクラスターサイズを100から1000にして、クラスターサイズの依存性による電子の飛散の様子、クラスター自身の膨張を計算し、ビジュアル化しているところである¹²⁾。

4. ま と め

我々は数値計算により、高出力超短パルスレーザーを Ar クラスターに照射したときの電子の発生、原子のイオン化を実時間で追跡し、ビジュアル化した。その結果、1 fs ごとのスナップショットを連続的にプロットして、クラスターから電子が運動して出てくる様子をシミュレーションした。

イオン化、および電子の飛散はかなり早い段階から始まることが分かった。光電場によるトンネルイオン化の影響だけの場合の入射光強度依存性を計算して示した。また、衝突イオン化も考慮に入れた場合、10 fs 程度ですべての Ar 原子が一価イオンになり、かなり速い段階 ($t \leq -20$ fs) で電子が約20個放出されるという結果が得られた。また、クラスターを形成するイオン同士のクーロン反発によるイオンコアのクーロン爆発の時間発展についてもビジュアル化することができた。

Fig. 2 Snapshots of a 6-atom argon cluster at $t = -71$ (upper) and -70 fs (lower) in the laser field with a peak intensity of 1×10^{15} W/cm². Five electrons are shown as the small particles. (See text).

文 献

- 1) B. Sheehy and L. F. DiMauro: Annu. Rev. Phys. Chem. **47**, 463 (1996).
- 2) 菱川明栄, 山内 薫: 分光研究 **49**, 62 (2000).
- 3) L. J. Frasinski, K. Codling, and P. Hatherly: Phys. Rev. Lett. **58**, 2424 (1987).
- 4) L. V. Keldysh: Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965).
- 5) S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chin: J. Opt. Soc. Am. **B8**, 858 (1991), and references there in.
- 6) T. Ditmire: Phys. Rev. **A57**, R4094 (1998).
- 7) M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov: Sov. Phys. JETP **64**, 1191 (1986).
- 8) He のイオン化については Keldish-Faisal-Reiss (KFR) 理論が比較的良く一致する。H. R. Reiss: Phys. Rev. **A22**, 1786 (1980).
- 9) P. B. Corkum: Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
- 10) W. Lotz: Z. phys. **216**, 241 (1968).
- 11) S. Wolfram: The Mathematica Book, 4th ed. (Wolfram Media/Cambridge University Press, 1999), (第4版日本語版, 東京書籍刊, 2000).
- 12) H. Okamura and Y. Mizugai: in preparation.