

強光子場中に現れる新しい電子状態 —カオスの散乱の観点から—

東大院総合 安池 智一*

1. はじめに

近年のレーザー技術の進歩は、電子が原子分子内で感じる電場に相当する強い光子場を分子に課すことを可能にした。このことは、原子分子に固有な電子状態の制約を受けずに原子分子過程を制御できることを意味するため、多くの化学者が強光子場中の原子分子の挙動に興味を持ちつつある。強光子場中では、化学者が原子分子の電子状態に持つ直感は無効となり、新たな描像の確立が強く望まれている。本研究では、光子場を課すことで新たな電子状態が生じる現象を軸に、強光子場中の原子分子をどう捉えるべきかを論じたい。

2. モデル

原子分子のモデルとして、 $E_0 = -0.5$ (原子単位) に束縛状態をただ一つ持つような1次元ポテンシャルの中に電子を置き、そこに光子場を印可した系を考えた。具体的なハミルトニアンは

$$H(p, x, t) = \frac{1}{2} \left(p + \frac{F}{\omega} \cos \omega t \right)^2 - \frac{1}{\cosh^2 x} \quad (1)$$

である (F は電場の振幅、 ω は光子場の角振動数)。ここで、座標変換 $x' = x - \alpha \sin \omega t$ を行うと、

$$H(p', x', t) = \frac{1}{2} p'^2 - \frac{1}{\cosh^2(x' + \alpha \sin \omega t)} \quad (2)$$

となる[†]。この座標系では、スカラーポテンシャルが十分に弱い漸近領域で、電子は自由電子の如く振る舞う。 ω が十分に大きいとき、光子場の振動周期 T で平均した有効ハミルトニアン H_{KH} によって電子の挙動を記述できるであろう (Kramers-Henneberger 近似)。

$$H_{KH}(p', x') = \frac{p'^2}{2} + \frac{1}{T} \int_0^T V(x' + \alpha \sin \omega t) dt \equiv \frac{p'^2}{2} + V_{KH}(x') \quad (3)$$

光子場強度を強くしたとき、有効ポテンシャル V_{KH} には新たな束縛状態が生じることが示されている [1]。光がある事で初めて生じる新しい電子状態、光誘起状態の形成である。

3. 量子散乱理論から見た光誘起状態

[1] で示された光誘起状態の形成は、高振動数極限での議論であった。我々は、より実際的な条件下での光誘起状態の形成を数値計算によって調べた [2]。

周期外場を持つハミルトニアン (2) の時間依存 Schrödinger 方程式の解 $\Psi(x, t)$ は、Floquet 理論によって、

$$\Psi(x, t) = e^{iEt} \sum_n \phi_n(x) e^{in\omega t}$$

*yasuike@kundry.c.u-tokyo.ac.jp

[†] $\alpha \equiv F/\omega^2$ は古典的な電子が光子場によって揺り動かされる半径に対応し、光子場と電子の相互作用の強さを示すのに有用な量である。

の形（擬エネルギー状態）に書くことができる。時間依存 Schrödinger 方程式はこの Fourier 成分 ϕ_n に対する連立方程式に帰着し、 ϕ_n は光子数の確定した数状態であると解釈される。つまり、時間依存 Schrödinger 方程式は定常多チャンネル問題へと帰着する。

系の準安定状態は、複素エネルギーリーマン面における Floquet Hamiltonian \mathcal{H}_F のグリーン関数の極として表現される。極のエネルギーを $E = E_r - i\Gamma/2$ と書くと、 E_r は共鳴エネルギー、 Γ は寿命の逆数を与える。本研究では、 \mathcal{H}_F に複素スケールリングの手法を適用して極を求めた。

$\omega = 0.45$ で、光子場強度を変化させた際の極の軌跡を図 1 に示した。軌跡の傍らに示した数字は α の値である。 Φ_0 は、 $\alpha = 0$ で原子分子固有の束縛状態に相関する。一方、 Φ_{+1} は $\alpha \geq 0.8$ の条件下でのみ存在する。すなわち光誘起状態である。 α が十分に大きいとき、 Φ_{+1} 、 Φ_0 の固有関数はそれぞれ、 H_{KH} の基底状態、第一励起状態にほぼ等しい。故に、光誘起状態の成因を H_{KH} の束縛状態に求めたくなるが、これは間違っている。 $\alpha \rightarrow 0$ で Φ_0 に対応するのは、 H_{KH} の基底状態ではなくてはならないからである。さらに光の角振動数を下げたとき ($\omega = 0.35$) の極の軌跡を、図 2 に示した。新たに、光誘起状態 Φ_{-1} が生じるが、図に示した α の範囲で、 H_{KH} の束縛状態は 2 つしかなく、この状態には、もはや H_{KH} の束縛状態との対応はない。このように、低振動数領域では、「光子場によって変形を受けたポテンシャルを感じる電子」という描像は崩れていく。しかし、それでもなお、光誘起状態は存在する。

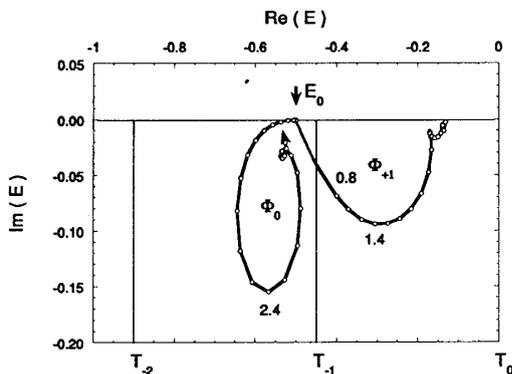


図 1. 極の軌跡 ($\omega = 0.45$)

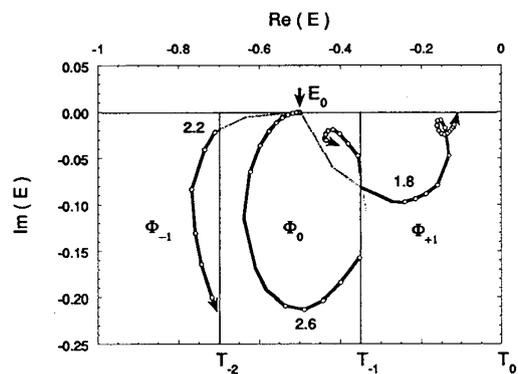


図 2. 極の軌跡 ($\omega = 0.35$)

図 1、2 中のいずれの光誘起状態についても、その軌跡を $\alpha = 0$ の方向へ辿ると、場のない時の束縛状態のエネルギーへと漸近している。これは、これらの極が、 Φ_0 の影極[†]に由来することを意味している。以上のことから、当初高振動数極限でその存在が議論された光誘起状態は、幅広い振動数領域に遍在し、また、低振動数 ($\omega < |E_0|$) の場合、その起源は、原子分子固有の状態の影極であることが示された。

4. 対応する古典力学

さて、低振動数領域での光誘起状態は複素エネルギーリーマン面上の影極の運動に帰着された。確かに、背景に在る数理は分かった。しかし、まだ何かもやもやしたものが残るという感を抱くのは筆者だけであろうか。もう少し、共鳴状態波動関数もしくは動力学に基づいて光誘起状態の形成を理解することはできないであろうか。

通常、量子力学での波動関数の解析は、素性の知れたある演算子の固有関数系への射影を行い、その際の展開係数に基づいて行う。展開係数の分布がコンパクトであれば、表現として良く、そ

[†] N チャンネル問題に於いて、複素エネルギーのリーマン面は 2^N の葉を持つ。あるチャンネルに極がある時、チャンネル間のカップリングが弱ければ、他の葉上のほぼ同じエネルギーのところに極が生じる。これが影極である。

の「描像」がよい、ということになる。しかし、究極的によい表現は、当該ハミルトニアン固有関数なのだから、物理的な描像が伴う場合[§]を除いては、系をよく記述し、かつ我々の理解を助ける「演算子、固有関数系の組」が在るとも限らない。

そこで、対応する古典力学系の動力学を調べることにした。今回我々が用いているモデルは1.5自由度系であり、Poincare断面をとることで相空間の様子を一望できる。 ω が大きくKH近似が良い場合、regularな領域が相空間を支配し、その領域の「構造」は V_{KH} の形を反映する。一方、前節で議論した小さな ω の場合には、光子場強度を大きくするにつれて急速に相空間はirregularになってゆく。図3は光子場がない場合、図4は $\omega = 0.45$ 、 $\alpha = 0.4$ でのPoincare断面である。

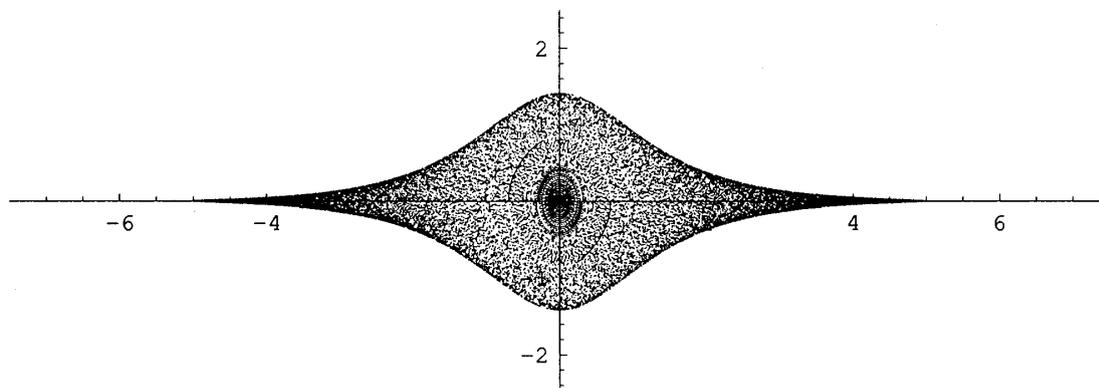


図3. Poincare断面 ($\alpha = 0$)

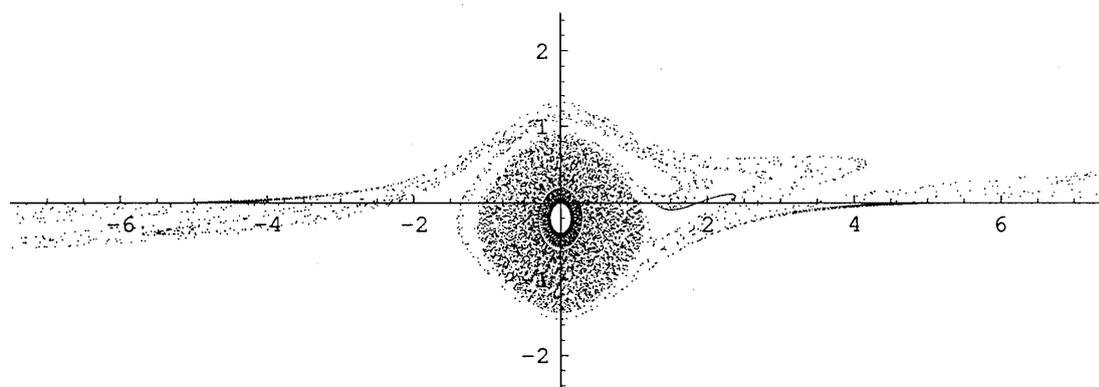


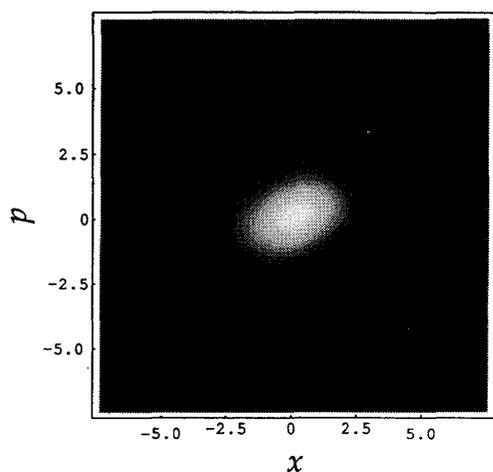
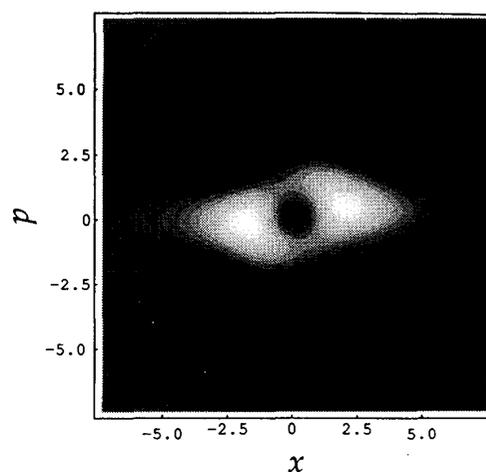
図4. Poincare断面 ($\omega = 0.45$, $\alpha = 0.4$)

図4を見ると、原点近傍にregularな領域を残しつつも、外側に複雑に折り畳まれた構造が発生していることが分かる。 α を大きくしていくと、この構造はさらに発達し、それが占める領域の面積は n 程度の大きさを持つようになる。この構造を支える不変多様体こそが光誘起状態の起源なのではないだろうか。

5. 共鳴状態波動関数の伏見表示

前節最後の推測を確かめるには、共鳴状態波動関数の相空間表示を見ればよい。先に述べたように、Floquet固有関数は異なる光子数状態の重ね合わせである。図4の条件、 $\omega = 0.45$ 、 $\alpha = 0.4$ での Φ_0 に対応する固有関数は、 ϕ_0 と ϕ_{-1} の重ね合わせであった。それぞれの伏見表示を図5および6に示した。

[§]近似保存量がある場合や、自由度間の運動のタイムスケールが分離している場合など。

図 5. ϕ_0 の伏見表示図 6. ϕ_{-1} の伏見表示

ϕ_0 は光子場がないときの唯一存在する束縛状態とほぼ同一である。一方、 ϕ_1 は図 4 に見られた複雑な折り畳み構造の領域に集中的に分布しているように見える。 $\alpha = 0.4$ という条件ではまだ光誘起状態が現れていないが、 α を大きくしてゆくと、固有関数に占める ϕ_{-1} の寄与は増加し、それと同時に、 Φ_0 とは符号が反対の重ね合わせとして、光誘起状態 Φ_{+1} が生じることが分かった。

以上をまとめると、影極として生じる光誘起状態を次のように理解することが可能である。 α を少しずつ大きくしていくと、相空間に複雑な折り畳みを持つ構造が生じ、その構造が十分に育つと、対応する量子論的な状態が生じる。このとき、新たに生じた状態は、もともとあった束縛状態と近共鳴にあり、これらの正負の重ね合わせによって状態の対が形成する。そのうちの片方が光誘起状態ということになる。これらの状態対による説明は影極による説明と符合し、対同志がお互いに似通った性質を持つことも自然に理解される。この事実から、光電子スペクトルによる観測が可能であることを導くこともできる [2]。

6. 付記

3 節までの結果は、東大院総合染田清彦助教授との共同研究による。また、本研究は日本学術振興会の援助の下に行われた。化学出身で、量子化学、量子散乱理論の若干の知識しか持たない筆者にとって、4 節以降の話は無謀な無免許運転である。その点留意して読まれたい。それはおかしい、もっとこのようにすべきだ、など、各種御意見を歓迎いたします。

7. 参考文献

- [1] M. Gavrilă, J. Z. Kaminski, *Phys. Rev. Lett.* 52 (1984) 613.
- [2] T. Yasuike, K. Someda, submitted to *Phys. Rev. A*.