

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05597

研究課題名(和文) 高強度楕円偏光レーザーパルスを用いた原子・分子の超高速イメージング法

研究課題名(英文) Ultrafast atomic and molecular imaging with intense elliptic polarized laser pulses

研究代表者

森下 亨 (Morishita, Toru)

電気通信大学・量子科学研究センター・教授

研究者番号：20313405

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：高強度レーザーパルス照射によって誘起される再衝突過程を利用した原子・分子の超高速イメージングに関して理論的研究を行った。直線、楕円、円偏光レーザーパルスによるイオン化の光電子運動量分布について高精度数値計算および解析理論により定量的な分析を行った。これにより、高強度レーザーと物質の相互作用に関する深い知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子・分子内電子の運動スケールであるアト秒領域の超高速物質ダイナミクスに関する理論的研究を行った。レーザーの偏光などを調整して原子・分子のイオン化過程を制御することにより、多様な反応ダイナミクスを調べた。レーザー照射による光電子から標的原子・分子の構造の情報が精度よく得られることを示した。これにより、実時間原子分子ダイナミクスの研究に新しい道が拓けた。

研究成果の概要(英文)：We have studied ultrafast atomic and molecular imaging utilizing recollision processes induced by intense laser pulse radiation. We have quantitatively analyzed the photoelectron momentum distributions generated under linear, elliptic, and circular polarized laser pulses. Thus we obtain deeper understanding of the intense laser-matter interactions.

研究分野：原子・分子・光物理学

キーワード：アト秒

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高強度レーザー技術と関連する測定装置の進歩に伴い、高強度超短レーザーパルスを利用したアト秒スケールの超高速原子分子イメージングに関する研究が活発に行われるようになった。そして、高強度レーザーパルスを分子に照射することによって生じる光電子スペクトルや高次高調波スペクトルが精密に計測できるようになった。高強度レーザーパルスを分子に照射すると、レーザー電場がピークに達した極短時間でトンネルイオン化によって極短電子パルスが生成される。電子パルスはレーザー電場によって加速された後、レーザー電場の位相の反転に伴い、レーザーの1サイクル以内に再びもとに戻ってきて分子と再衝突を引き起こす。こうした再衝突過程は標的分子の量子状態に強く依存することが見出され、光電子スペクトルや高次高調波スペクトルから分子構造を調べるといった研究が行われるようになった。これまでの研究では、直線偏光レーザーによってトンネルイオン化から再衝突まで直線軌道を描く再衝突過程を扱うものが大多数であったが、楕円偏光や2色レーザーを組み合わせたレーザーパルスを用いた2次元的な軌道を描く再衝突過程に関する実験研究が行われ始めており、対応する理論解析手法の発展が望まれていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、高強度レーザー照射によって誘起される分子の再衝突過程を利用した超高速イメージングについて、楕円偏光などの波形整形されたレーザー場中での多様な電子の運動を考慮した理論的手法を構築することである。これまでに蓄積してきた、直線偏光レーザーパルスに対する手法を楕円偏光や円偏光などのレーザーパルスについて拡張する。そして、再衝突過程における電子軌道を制御することによって、直線偏光では困難であった多様な分子ダイナミクスを取り扱う。これにより、核の運動を含めた複雑な分子のダイナミカルな状態遷移を追跡するイメージング法を構築してアト秒領域の超高速ダイナミクスを探索し、「アト秒科学」という、新しい光科学の分野における深い知見の獲得を目指す。

3. 研究の方法

本研究を進めるにあたり、精密数値計算、解析的理論、構造決定アルゴリズム構築という3つの観点から高強度レーザーを利用した分子イメージングについての研究を行った。

精密数値計算においては、楕円偏光レーザー場に対する時間依存シュレーディンガー方程式の精密数値解法の計算コードと解析手法の開発を行った。これまでの計算コードは、直線偏光レーザー場中の原子(1中心)に対するもので、全系の円筒対称性を仮定し、これに特化したものであった。これを楕円偏光レーザーに対応できるものに拡張した。取り扱う空間の自由度が増えるため、計算量の大幅な増加が予想された。基底関数を適切に選び高効率の並列化を行うことによって高速化した。

解析的理論については、外場であるレーザー電場の時間変化が分子内の電子の運動の時間スケールよりもずっと遅いという事実に基づいた断熱理論を基礎にして、理論および計算手法の開発を行った。再衝突のメカニズムにおいて、トンネルイオン化電子の運動量分布(レーザー電場と垂直な成分)の役割が重要である。そこで、トンネルイオン化過程を「シーガート状態」と呼ばれる強静電場中の解を精査し、断熱理論に導入することによってレーザー場中の分子ダイナミクスを吟味した。

構造決定アルゴリズム構築については、高強度レーザー照射によって得られる分子の光電子運動量分布から分子の構造の情報を効率よく抽出するアルゴリズムを構築した。光電子スペクトルに高エネルギー成分から得られる電子と分子イオンとの弾性散乱微分断面積を分析するための計算コードの開発を行った。分子の種類の違い、それぞれの分子の量子状態の違いといった詳細を調べた。

4. 研究成果

高強度レーザーパルスを用いた分子イメージングの基礎となる直線偏光パルスによる理論を整備した。断熱理論に基づいて光電子運動量分布の再衝突過程について調べた。再衝突する電子の2つの古典軌道が一致する焦線上での運動量分布が、再衝突電子波束と弾性散乱断面積の積で表される「分離公式」を導出し、再衝突電子波束の物理的内容を吟味した。また、分子についてのレーザー場中のイオン化に対する時間依存シュレーディンガー方程式の直接数値計算コードを開発し、断熱理論と比較することによって分離公式の妥当性、適用範囲について吟味した。また、実験グループと協力して、2原子、3原子分子に対する実験結果の分析を行った。

続いて、楕円偏光など波形成型したレーザーパルス照射によるイオン化についての研究を行った。楕円偏光レーザーに対する時間依存シュレーディンガー方程式の精密数値解法の計算コードを開発し、いくつかの典型的な系について調べた。超短円偏光レーザーパルス照射による原子の光電子運動量分布を計算し、断熱理論と比較することによって再衝突過程の第1ステップであるトンネルイオン化について調べた。異なる波長、異なるサイクル数のパルスに対する光電子運動量分布を調べ、異なる時刻に分子から飛び出した電子波束の干渉に関する分析を行った。また、分子標的に対して、光電子運動量分布が分子の配向角に強く依存性することを見出した。さらに、トンネルイオン化について、実験グループと協力して、2色レーザーを用いた双極性分子のトンネルイオン化における配向依存性について分析を行った。

楕円偏光パルスに対する再衝突過程については、まず、任意の偏光に対して再衝突する電子の2つの古典軌道が一致する焦線を求める計算コードの開発を行った。そして、時間依存シュレーディンガー方程式の数値解によって得られた光電子運動量から焦線近傍での値を抽出し分析を行った。

さらに、非弾性散乱を伴う再衝突過程や核の運動を厳密に取り入れた断熱理論の開発といった関連する研究を行った。

以上により、高強度レーザー場中の物質について、アト秒領域の超高速ダイナミクスに関する新しい知見を得た。得られた結果のいくつかを学術論文として発表した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 12件／うち国際共著 12件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Svensmark Jens, Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru	4. 巻 101
2. 論文標題 Adiabatic theory of strong-field ionization of molecules including nuclear motion	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 53422
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.101.053422	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Chen Zhangjin, Wen Hua, Liu Fang, Morishita Toru, Zatsarinny Oleg, Bartschat Klaus	4. 巻 28
2. 論文標題 Intensity dependence in nonsequential double ionization of helium	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 6490 ~ 6504
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.386971	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Endo Tomoyuki, Fujise Hikaru, Hasegawa Hiroka, Matsuda Akitaka, Fushitani Mizuho, Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru, Hishikawa Akiyoshi	4. 巻 100
2. 論文標題 Angle dependence of dissociative tunneling ionization of NO in asymmetric two-color intense laser fields	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 53422
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.100.053422	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Okunishi Misaki, Ito Yuta, Sharma Vandana, Aktar Shejuty, Ueda Kiyoshi, Lucchese Robert R., Dnestryan Andrey I., Tolstikhin Oleg I., Inoue Shunsuke, Matsui Hirokazu, Morishita Toru	4. 巻 100
2. 論文標題 Rescattering photoelectron spectroscopy of the CO2 molecule: Progress towards experimental discrimination between theoretical target-structure models	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 53404
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.100.053404	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Chen Zhangjin, Wang Yali, Morishita Toru, Hao Xiaolei, Chen Jing, Zatsarinny Oleg, Bartschat Klaus	4. 巻 100
2. 論文標題 Revisiting the recollisional excitation-tunneling process in strong-field nonsequential double ionization of helium	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 23405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.100.023405	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru	4. 巻 99
2. 論文標題 Strong-field ionization, rescattering, and target structure imaging with vortex electrons	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 63415
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.99.063415	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Chen Zhangjin, Zhang Lina, Wang Yali, Zatsarinny Oleg, Bartschat Klaus, Morishita Toru, Lin C. D.	4. 巻 99
2. 論文標題 Pulse-duration dependence of the double-to-single ionization ratio of Ne by intense 780-nm and 800-nm laser fields: Comparison of simulations with experiments	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 43408
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.99.043408	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Pham Vinh N. T., Tolstikhin Oleg I., Morishita Toru	4. 巻 99
2. 論文標題 Images of molecular orbitals in strong-field photoelectron momentum distributions generated by circularly polarized pulses	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 13428
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.99.013428	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Samygin Pavel K., Morishita Toru, Tolstikhin Oleg I.	4. 巻 98
2. 論文標題 Weak-field asymptotic theory of tunneling ionization from nearly degenerate states	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 33401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.98.033401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ito Yuta, Okunishi Misaki, Morishita Toru, Tolstikhin Oleg I., Ueda Kiyoshi	4. 巻 97
2. 論文標題 Rescattering photoelectron spectroscopy of heterodiatom molecules with an analytical returning photoelectron wave packet	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 53411
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.97.053411	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Morishita and O. I. Tolstikhin	4. 巻 96
2. 論文標題 Adiabatic theory of strong-field photoelectron momentum distributions near a backward rescattering caustic	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 53416
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.96.053416	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 S. Ohgoda, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita	4. 巻 95
2. 論文標題 Photoionization of hydrogen in a strong static electric field	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 43417
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.95.043417	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 C. Huang, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita	4. 巻 95
2. 論文標題 Strong-field subcycle control of dissociation dynamics via exceptional points of molecules in an electric field	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 63416
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.95.063416	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----