

平成 24 年 6 月 1 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2010

課題番号：19540416

研究課題名 (和文) アト秒レーザーパルスを用いた超高速原子過程の実時間分析と制御

研究課題名 (英文) Real time analysis and control of ultrafast atomic processes with attosecond laser pulses

研究代表者

森下 亨 (MORISHITA TORU)

電気通信大学・電気通信学部・助教

研究者番号：20313405

研究成果の概要 (和文)：近年のレーザー技術に進展に伴い、XUV 領域のアト秒領域のレーザーパルスの発生が可能となった。アト秒は、原子や分子内電子の運動の時間スケールであり、原子内の電子状態の実時間領域での分析の可能性が開けた。本研究では、アト秒領域の超高速過程のうち、超短パルスを用いた多電子励起状態の実時間分析、および関連する高強度レーザー場中の原子分子ダイナミクスについての研究を行った。

研究成果の概要 (英文)：Following the recent developments in laser technology, ultrashort xuv (extreme ultraviolet) light pulses with duration of several hundred attoseconds have been reported. Such pulse durations are comparable to the time scale of the electronic motion in atoms and molecules, thus opening up a route to the time-resolved study of electron dynamics in matter. In this work, we studied real time analysis of correlated multiply excited states of atoms using such ultrashort laser pulses and related atomic and molecular dynamics under intense laser fields.

交付決定額

(金額単位：円)

|        | 直接経費      | 間接経費      | 合計        |
|--------|-----------|-----------|-----------|
| 2007年度 | 2,000,000 | 600,000   | 2,600,000 |
| 2008年度 | 500,000   | 150,000   | 650,000   |
| 2009年度 | 500,000   | 150,000   | 650,000   |
| 2010年度 | 500,000   | 150,000   | 650,000   |
| 年度     |           |           |           |
| 総計     | 3,500,000 | 1,050,000 | 4,550,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス・プラズマ

キーワード：高強度レーザー、アト秒、電子相関、イメージング

## 1. 研究開始当初の背景

“より速い自然現象の理解と制御”を目指して、超短パルスレーザーの開発とそれに関連する様々な研究が盛んに行われている。今世紀に入り、パルス幅はフェムト ( $10^{-15}$ ) 秒領域を超え、アト ( $10^{-18}$ ) 秒領域へ突入した。アト秒は原子内電子の軌道周期の典型的な時間スケールであり、ア

ト秒パルスの登場によって、原子内の電子状態の実時間領域での観測、さらには電子状態の制御への可能性が開けたことを意味する。

2001年にウィーン工科大のグループは、フェムト秒の大強度チタン・サファイアレーザー (750 nm) の高次高調波を用いて数百アト秒のXUV単一パルスの発生に成

功した[M. Hentschel et al. Nature 414, 509 (2001)]. 2002年には、このアト秒パルスでKrの内殻励起状態をポンプし、遅延時間を制御したもう一つのフェムト秒パルスで内殻励起状態の崩壊に伴うオージェ電子をプローブする事で多電子励起状態の緩和過程を実時間で観測した [M. Drescher et al., Nature 419, 803 (2002)]. さらに、最近では日本、ドイツ、米国において、加速器を利用した自由電子レーザー(FEL)によるフェムト秒領域の高強度レーザーが発振され、タンパク質のシングルショット測定を始めとする新しい研究結果が次々発表されている。このようなフェムト秒～アト秒レーザーパルスを用いた超高速科学は世界中の注目を集めており、フェムト秒パルスによって開拓された化学反応等の実時間測定やコヒーレント制御に関する研究以上の爆発的な広がりが見込まれる。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究では、アト秒領域の超高速過程のうち、超短パルスを用いた多電子励起状態の実時間分析と制御についての理論的研究を行う。多電子励起状態の関与する過程は強い電子相関に支配されるので、その本質的な理解を得るには、従来型の独立粒子モデルでは困難であり、電子を集団として捉えた方が見通しがよい。つまり原子内電子は核のまわりの平衡位置に配置し、その近傍で電子同士が相関を持って互いに近づいたり退けたりするという捉え方である。例えば、He様の2電子原子では、2つの電子(X)は原子核(Y)を中心としたX-Y-X型の線形3原子分子のようにアト秒オーダーの周期で振動・回転、その周期はアト秒オーダーである。そこで本研究では、アト秒パルスを用いて集団運動の観点から実時間での電子相関の解明を目指す。さらに、特定の集団運動モードのみを選択的に励起するといった多電子励起状態の制御について研究を進める。

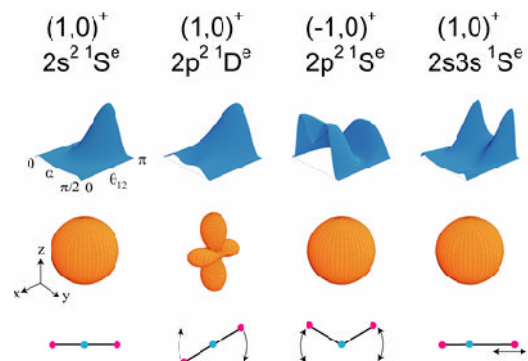
(2) アト秒領域のダイナミクスの理解を深めるため、高強度レーザー場中の多体ダイナミクス等の関連する研究を進める。

## 3. 研究の方法

多電子原子は、電子が互いに強く相互作用して複雑に絡み合う量子多体系であり、解析解は存在しない。そこで、相関の強い多電子原子のレーザー場中での実時間ダイナミクスを見通しよく記述するために、“時間依存超球座標緊密結合(TDHSCC)法”という新しい計算手法の開発を行った。

この方法では、超球座標、すなわち、系のサイズを表す“遅く変化する”超球半径と、系の相対的な位置関係を表す“速く変化する”超球角を用いる。まず“遅く変化する”超球半径を断熱変数とした断熱展開法によってレーザー場のない原子の固有関数を構築する。次にこの固有関数を基底関数として、レーザー場中の原子についての時間に依存するシュレーディンガー方程式を数値的に厳密に解く。そして、超短レーザーパルス照射による多電子遷移確率等の物理量を精密に計算すると共に、時々刻々変化する多電子の運動を超球座標空間で調べた。多電子励起状態の生成メカニズムおよび多電子相関の実時間イメージングについて、原子内電子の集団運動の固有モードとの対応による分析を行った。(図1) レーザーのパルス幅、波形、強度、位相などの様々なパラメータに対して得られたデータの解析を行った。

数値計算技術としては、離散変数表示(DVR)基底・SVD(Slow/Smooth Variable Discretization)法・R-行列伝搬法といった高精度アルゴリズムを応用することにより、高効率で高精度の計算結果に基づく分析が可能となった。



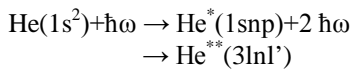
(図1) 上段：2重励起状態の電子の存在確率の超球座標（振動モードに対応）でのプロット。中段：2重励起状態の電子の存在確率の超球座標（回転モードに対応）での極座標プロット。下段：対応する分子振動。左から、基底状態、回転励起、折れ曲がり振動励起、これらのような原子内多電子の集団運動モードを超短パルスで実時間分析・制御する。

## 4. 研究成果

(1) 本研究では、“時間依存超球座標緊密結合(TDHSCC)法”という新しい計算手法を開発し、電子相関を十分に取入れた非常に高精度かつ高速の計算コードが完成した。これを用いて、

強レーザー場中での He 内の電子対の振舞を調べ、集団運動の固有モードとの対応を分析した。

- (2) 自由電子レーザー (Free Electron Laser, FEL) 光源による高強度フェムト秒超短 EUV レーザーパルスによって He の 2 つの電子を共に励起する 2 電子励起の実験が行われるようになった。本研究では、Spring 8 に隣接する FEL の高強度 EUV フェムト秒超短パルス照射によって生じる He 原子の多光子吸収の光電子スペクトルの実験結果と比較し、よい一致を得た。この実験では、EUV レーザーの 1 光子エネルギーが He 原子の基底状態  $1s^2$  と 1 電子励起状態  $1snp$  への遷移エネルギーとほぼ等しく、



という 2 段階で 2 電子励起状態  $\text{He}^{**}(3lnl')$  が高効率で生成されていることを示し、これまでに知られていない新しい多光子遷移のメカニズムを明らかにした。また、レーザーのパルス幅が数フェムト秒の場合、この過程によって複数の 2 電子励起状態がコヒーレントに励起され、高効率で集団運動する 2 電子励起状態が生成されることが判明した。2 電子励起の確率が最適となるレーザーパラメータを探索し、その場合の振動や回転といった集団運動の様子を可視化して分析するとともに (図 1)、オーグジュ過程として減衰していく様子も調べた。また、より短波長高次高調波アト秒パルスを用いた 2 光子 2 電子励起過程の効率を吟味するとともに、集団運動のプロブ法について、2 重イオン化および 1 電子イオン化後の蛍光測定による方法の可能性を吟味した。

- (3) 実時間イメージングの深い理解と新たな知見を獲得するため、高強度のアト秒パルスの照射によって複数の光子を吸収して He の 2 つの電子が共にイオン化する「多光子 2 重イオン化過程」や、高強度赤外レーザーによって誘起され、レーザー電場の位相の反転に伴って再起的に親イオンと衝突する「再衝突電子による非線形ダイナミクス」といった、アト秒領域の超高速ダイナミクスに関する理論的研究を行った。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 24 件)

- ① “Enhanced Nonlinear Double Excitation of He in Intense Extreme Ultraviolet Laser Fields”, A. Hishikawa, M. Fushitani, Y. Hikosaka, A. Matsuda, C.-N. Liu, T. Morishita, E. Shigemasa, M. Nagasono, K. Tono, T. Togashi, H. Ohashi, H. Kimura, Y. Senba, M. Yabashi, and T. Ishikawa, Phys. Rev. Lett. 107, 243003 (2011) [5 pages], 査読有
- ② “Two-photon double ionization of helium: Evolution of the joint angular distribution with photon energy and two-electron energy sharing”, Z. Zhang, L.-Y. Peng, M.-H. Xu, A. F. Starace, T. Morishita, and Q. Gong, Phys. Rev. A 84, 043409 (2011) [11 pages] 査読有
- ③ “Extracting Electron-Ion Differential Scattering Cross Sections for Partially Aligned Molecules by Laser-Induced Rescattering Photoelectron Spectroscopy”, M. Okunishi, H. Niikura, R. R. Lucchese, T. Morishita, and K. Ueda, Phys. Rev. Lett. 106, 063001 (2011) [4 pages], 査読有
- ④ “Atomic Siegert states in an electric field: Transverse momentum distribution of the ionized electrons”, P. A. Batishchev, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita, Phys. Rev. A 82, 023416 (2010) [14 pages]
- ⑤ “Momentum space analysis of multiphoton double ionization of helium by intense attosecond xuv pulses”, Z. Zhang, L.-Y. Peng, Q. Gong, and T. Morishita, Opt. Express 18, 8976-8989 (2010), 査読有
- ⑥ “Retrieval of experimental differential electron-ion elastic scattering cross sections from high-energy ATI spectra of rare gas atoms by infrared lasers”, T. Morishita, M. Okunishi, K. Shimada, G. Prümper, K. Shimada, Z. Chen, S. Watanabe, K. Ueda, and C. D. Lin, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 42, 105205 (2009) [6 pages], 査読有

[学会発表] (計 35 件)

- ① “Accurate retrieval of structural information of atoms and molecules by laser-induced rescattering electron

spectroscopy”, T. Morishita, 2011 International Workshop on Photoionization (IWP), May 22-25, 2011, Las Vegas (USA)

- ② “Laser induced rescattering electron spectroscopy of ultrafast atomic and molecular imaging”, T. Morishita, Attosecond Science - Exploring and Controlling Matter on Its Natural Time Scale, May 9-27, 2011, Kavli Institute for Theoretical Physics Chiana (KITPC), Beijing (Chiana)
- ③ “Ultra high-resolution imaging of atoms and molecules using intense laser pulses”, T. Morishita, 4 th Asian Workshop on Generation and Applications of Coheret XUV and X-ray Radiation (Jan 20-21, 2011), Pohang (Korea)
- ④ “Ultra High-Resolution Imaging of Atoms and Molecules Using Intense Laser Pulses”, T. Morishita, Kavil Institute of Theoretical Physics (KITP) Conference: X-ray Science in the 21st Century (August 2-6, 2010), Santa Barbara (USA)
- ⑤ “Accurate retrieval of structural information from laser-induced photoelectron and high-order hamonic spectra by few-cycle intense laser”, T. Morishita, C. D. Lin, S. Watanabe, 11 th International Conference on Multiphoton Processes (ICOMP), September 18 - 23, 2008, Heidelberg, Germany

[図書] (計3件)

- ① 森下亨, 「光科学の未来を拓く. 量子ダイナミクスを撮影する超高速ビデオカメラ」, 独立行政法人 科学技術振興機構(JST) 戦略事業本部 研究推進部, 2009年
- ② 森下亨, 「新物理学辞典」, 大槻義彦, 大場一郎編, 講談社,2009年

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

森下亨 (MORISHITA TORU)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・助教

研究者番号 : 20313405

### (2) 研究分担者

渡辺信一 (WATANABE SHINICHI)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・

教授

研究者番号 : 60210902