

令和 4 年 6 月 27 日現在

機関番号：82108  
研究種目：若手研究  
研究期間：2019～2021  
課題番号：19K15498  
研究課題名(和文) レーザーアシステッド電子衝撃イオン化による電子軌道選択的な光ドレスト効果の解明  
  
研究課題名(英文) Electronic wavefunction-selective light-dressing effect in laser-assisted elastic impact ionization  
  
研究代表者  
廣井 卓思 (HIROI, Takashi)  
  
国立研究開発法人物質・材料研究機構・若手国際研究センター・ICYS研究員  
  
研究者番号：20754964  
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：電子軌道選択的な光ドレスト状態を観測するために、2台の角度分解飛行時間型電子分析器を用いて、強光子場中で起こる電子衝撃イオン化過程であるレーザーアシステッド電子衝撃イオン化過程(LA(e, 2e))を観測する装置を開発し、Arの1光子吸収LA(e, 2e)過程を実験的に観測した。得られたLA(e, 2e)の散乱断面積は、Arと光の相互作用を無視して計算されたLA(e, 2e)信号の強度と比較して約2倍大きくなっていた。これはArの3p軌道が、強光子場による光ドレスト効果によってより高い電子励起状態と混合していることを示唆している。

#### 研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって、電子密度分布の歪みとして捉えられてきた光ドレスト状態を、電子密度分布を構成する個々の電子波動関数の歪みとして実験的に観測できることが示された。電子衝撃イオン化は原子や分子の電子波動関数を実験的に観測する手法としても知られているため、本手法を用いることによって、高強度レーザー場中における原子や分子の波動関数の観測が可能になると考えられる。さらに発展させ、強光子場中における分子や光誘起化学反応中の系の複数の電子波動関数を決定することによって、イオン化や化学反応の高精度な設計・制御につながることを期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, in order to observe the light-dressing effect on electronic wavefunctions, we developed an apparatus consisting of two sets of angle-resolved time-of-flight analyzers to observe electron impact ionization occurring in a laser field, known as laser-assisted electron impact ionization (LA(e, 2e)). Using the developed apparatus, LA(e, 2e) process of Ar with one-photon energy absorption has been observed. The signal intensity of the observed LA(e,2e) process was about twice as large as that estimated by the theoretical calculations in which the interaction between a target Ar and the light field is neglected. We ascribed this discrepancy to the mixing of the electronic ground state of Ar with the electronically excited states through the formation of the light-dressed states.

研究分野：物理化学

キーワード：電子衝撃イオン化 電子状態 強光子場科学 光ドレスト効果

### 1. 研究開始当初の背景

原子や分子が高強度レーザー場中に置かれると、光の場によって原子や分子の電子波動関数が歪められる、光ドレスト状態が形成される。光ドレスト状態における電子波動関数の歪みを観測する手法として期待されていたのが、高強度レーザー場中における電子衝撃イオン化現象であるレーザーアシステッド電子衝撃イオン化 (laser-assisted (e, 2e)、以後 LA(e, 2e)と表記する) である。通常の電子衝撃イオン化では、散乱電子( $E_s$ )と放出電子( $E_e$ )のエネルギーの和は一定である。それに対して LA(e, 2e)の場合は、このエネルギーの和が光子エネルギー分シフトする。

$$E_i (\text{入射電子のエネルギー}) = E_s + E_e + \text{IP} (\text{イオン化ポテンシャル}) + nh\nu (\text{光子エネルギー})$$

つまり、エネルギーシフトを起こしたイベントのみを抽出することによって、レーザー場下で起きた電子衝撃イオン化のみを観測することが実験的に可能になる。Joachain らによる理論研究 [Phys. Rev. Lett. 61, 165 (1988)]では、高強度レーザー場中の水素原子に対する LA(e, 2e)の1光子吸収の微分散乱断面積が小角領域 (散乱角  $< 0.5^\circ$ ) において増大し、この増大は光ドレスト効果によって説明できることが示された。しかし、1光子吸収過程を区別した LA(e, 2e)の散乱断面積の観測は実験的に困難であり、理論予測から30年以上もの間、観測には至っていなかった。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、高強度レーザー場中の希ガス原子に対する電子衝撃イオン化実験によって、光ドレスト効果を各電子軌道について観測することを目的とする。この目的を達成するために、2台の角度分解飛行時間型分析器を用いた捕集効率の高い電子衝撃イオン化観測装置を開発する。光ドレスト効果による LA(e, 2e)の微分散乱断面積の上昇は吸収/放出される光子数によって大きく異なることから、本研究では1光子吸収過程を区別できる程度の高いエネルギー分解能を有する装置を開発する。そして、観測された LA(e, 2e)の1光子吸収の微分散乱断面積を、既報の理論を用いた数値シミュレーション結果と比較することによって、光ドレスト効果による微分散乱断面積の上昇を定量的に評価する。

### 3. 研究の方法

製作した装置の概略を図1に示す。高繰り返し周波数の超短パルスレーザー (繰り返し周波数: 100 kHz, 中心波長: 1030 nm, パルス幅: 1.2 ps, 1パルス当たりのエネルギー: 2.5 mJ) の出力を二つに分け、一つは LA(e, 2e)を起こすために散乱点に集光し (1030 nm, 0.6 mJ,  $2 \times 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>) もう一つは4倍波を取った上で自作の電子銃内に設置した金薄膜に集光した (258 nm, 0.1 pJ)。

そして、光電効果によって発生した電子パルスを1000 eVまで加速し、散乱点に集光した。試料ガスとしては Ar 原子を用いた。散乱点では入射電子、レーザーパルス、Ar ガスが時空間的に重なるように調整を行った。空間的同期は、散乱点に金ワイヤー (0.1 mmφ) を設置し、レーザーパルスおよび電子線の影を観測することによって行った。時間的同期は、後述する電子衝撃励起された Ar の多光子イオン化によって発生する光電子の収率によって決定した。

電子衝撃イオン化によって発生した散乱電子 (960 ~ 1000 eV) と放出電子 (< 10 eV) をコインシデンス計測するために、2台の角度分解飛行時間型分析器を非対称に配置した。1台は散乱電子用に前方に設置し、散乱角にして  $\pm 4^\circ$  の領域を捕集した。散乱電子の電子衝撃イオン化によって発生する散乱電子はほとんどが小角領域に散乱されることが知られており、本分析器で約 90% の散乱電子が捕集されると見積もられた。もう1台の分析器は放出電子用に上方に設置し、散乱角にして  $\pm 40^\circ$  の領域を捕集した。放出電子の散乱角は異方性が少なく、本分析器で約 10% の放出電子が捕集されると見積もられた。分析器を通った電子は、位置敏感型検出器によって位置と飛行時間が記録され、散乱電子および放出電子の散乱角およびエネルギーを計算することができる。エネルギー分解能は散乱電子が 0.6 eV, 放出電子が 0.3 eV と見積もられ、ここから電子衝撃イオン化のエネルギー分解能が 0.7 eV と見積もられた。これは用いたレーザーパルスの1光子エネルギーである 1.2 eV と比較して十分小さく、1光子吸収過程を判別することが可能であると推定された。測定は、レーザーパルスと電子パルスが時間的に重なった状態 ( $\Delta t = 0$ ) に加えて、背景信号としてレーザーパルスが電子パルスよりも 67 ps 先に散乱点に到達している状態 ( $\Delta t = +67$  ps) および 67 ps 後に散乱点に到達している状態 ( $\Delta t = -67$  ps) においても行った。積算時間は  $\Delta t = 0$  において 20 時間、 $\Delta t = \pm 67$  ps においてそれぞれ 10 時間とした。

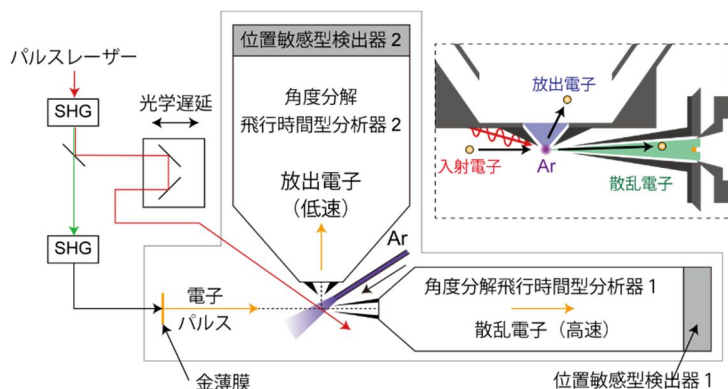


図1. 製作した LA(e, 2e)観測装置の概略

## 4. 研究成果

### (1) 散乱電子と放出電子のエネルギー相関

図 2 に、異なる遅延時間で観測された散乱電子と放出電子の内、コインシデンス検出された信号のエネルギー相関図を示している。レーザーパルスが電子パルスよりも先に来ている場合(a)は、傾きが-1である直線が観測された。これは、光電場フリーにおける Ar 3p 軌道 (イオン化ポテンシャル: 15.8 eV) の電子衝撃イオン化に帰属される信号である。これに対し、電子パルスがレーザーパルスよりも先に来ている場合(c)は  $E_s > 984.2$  eV および  $E_e < 1$  eV のエネルギー領域においていくつかのスポット上の信号が観測された。これらは、Ar の電子衝撃励起に続く多光子イオン化過程に帰属される信号である。この過程において観測される光電子の収量は、レーザーパルスと電子パルスとの遅延時間によって鋭敏に変化する。このことを利用して、レーザーパルスと電子パルスとの間の時間遅延の原点を 3 ps の時間分解能で決定することに成功した。

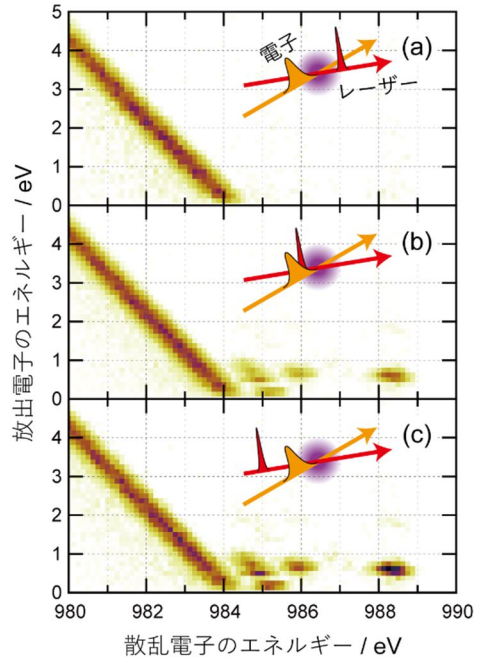


図 2. 異なる遅延時間で観測された散乱電子と放出電子のエネルギー相関図 (a)  $\Delta t = +67$  ps (b)  $\Delta t = 0$  (c)  $\Delta t = -67$  ps

### (2) LA(e, 2e)の1光子吸収過程の観測

図 3(a)に、コインシデンス検出された散乱電子と放出電子のエネルギーの和を取ることによって求めたエネルギー和スペクトルを示した。赤の実線が  $\Delta t = 0$  における測定結果を、黒の破線が  $\Delta t = \pm 67$  ps における測定結果の和を表す。どちらのスペクトルも 2 つのピークを示し、大きいピークが Ar 3p 軌道からの、小さいピークが Ar 3s 軌道 (イオン化ポテンシャル: 29.2 eV) からの電子衝撃イオン化に帰属される。同スペクトルの 985.0 – 987.2 eV の領域を拡大した図を図 3(b)に示した。  $\Delta t = 0$  における測定結果について、エネルギー和が 985.4 eV 付近において信号強度の増大が認められた。これは、光電場フリーにおける Ar 3p 軌道からの電子衝撃イオン化(984.2 eV)から 1 光子エネルギー(1.2 eV)吸収が起こる領域に対応し、 $n = +1$  の LA(e, 2e)信号に帰属される。ここから、製作した装置を用いて LA(e, 2e)の 1 光子吸収過程の観測に成功したことが分かる。

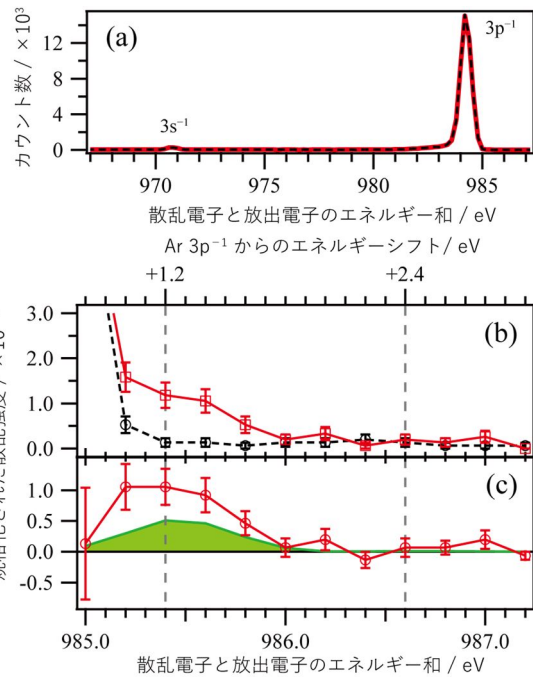


図 3. コインシデンス検出された散乱電子と放出電子のエネルギー和スペクトル (a) 赤実線:  $\Delta t = 0$  における測定結果、黒破線:  $\Delta t = +67$  ps と  $-67$  ps における測定結果の和 (b) 1 光子吸収領域付近の拡大図 (c) 赤実線: LA(e, 2e)スペクトルの実験値、緑領域: 光ドレスト効果を見逃して計算された LA(e, 2e)スペクトルのシミュレーション結果

### (3) 数値シミュレーション結果との比較による電子軌道選択的光ドレスト効果の証明

図 3(b)の  $\Delta t = 0$  における測定結果から、背景信号である  $\Delta t = \pm 67$  ps における測定結果を差し引くことによって得られた LA(e, 2e)スペクトルを図 3(c)に赤の実線で示した。得られた信号強度を定量的に評価するために、電子・光・Ar 原子間の相互作用を全て無視したモデルである、Cavaliere らによって導出された LA(e, 2e)の微分散乱断面積の理論式[J. Phys. B **13**, 4495 (1980)]を用いて、本実験装置の条件下における LA(e, 2e)の信号強度を数値シミュレーションによって求めた。数値シミュレーションにおいては、背景信号である  $\Delta t = \pm 67$  ps における電子衝撃イオン化強度に時空間変化をする係数をかけ合わせた上で数値積分を行うことによって、検出器の検出効率の不均一性の効果まで取り込んでいる。計算結果を図 3(c)に緑の実線で示した。計算結果と比較して、観測された強度は約 2 倍ほど大きくなっていることが分かる。この強度の増加は、数値シミュレーションにおいて無視された相互作用の中でもっとも寄与が大きいと推定される、光 - Ar 原子間の相互作用に依るものと考えられる。この相互作用は、強い光によって Ar 原子の 3p 軌道がより高い電子励起状態と混合することによるものであり、Ar 3p 軌道に対する電子軌道選択的な光ドレスト効果として理解することができる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanoouchi	4. 巻 104
2. 論文標題 Observation of laser-assisted electron-impact ionization in ultrashort intense laser fields	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 062812-1-10
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevA.104.062812	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 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanoouchi
2. 発表標題 Observation of laser-assisted (e, 2e) process of Ar in intense laser fields
3. 学会等名 (virtual) International Symposium on Correlation, Polarization and Ionization in Atomic and Molecular Collisions (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanoouchi
2. 発表標題 Observation of laser-assisted (e, 2e) process of Ar in ultrashort intense laser fields
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanoouchi
2. 発表標題 Observation of laser-assisted (e,2e) of Ar in ultrashort intense laser fields
3. 学会等名 Pacifichem2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Observation of Laser-Assisted (e,2e) in Ultrashort Intense Laser Fields
3. 学会等名 The 22nd International Conference on Ultrafast Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Electron impact excitation spectroscopy of highly excited H <sub>2</sub> molecule
3. 学会等名 The 10th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science (STAR10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Electron impact excitation spectroscopy of excited H <sub>2</sub> molecule
3. 学会等名 第35回化学反応討論会 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Electron impact excitation spectroscopy of electronically excited H <sub>2</sub>
3. 学会等名 第16回AMO討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Hiroi, Yuya Morimoto, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Electron impact excitation spectroscopy of electronically excited H2
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 山内 薫	4. 発行年 2022年
2. 出版社 朝倉書店	5. 総ページ数 472
3. 書名 強光子場分子科学	

〔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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関