

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 16日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21550003

研究課題名（和文） レーザー励起再散乱電子を用いた分子イメージング

研究課題名（英文） Molecular imaging using laser induced rescattering electrons

研究代表者

奥西 みさき (OKUNISHI MISAKI)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：80224161

研究成果の概要（和文）：強光子場中での分子の角度分解光電子再散乱運動量スペクトルを測定し、スペクトルの定量的解析から、電子・分子イオン微分散断面積を抽出し、理論計算との比較を行い、非常によい一致を見た。このことは、本研究で用いた手法がフェムト秒レーザーを用いた分子の構造決定に利用できることと示唆している。

研究成果の概要（英文）：We have measured angle-resolved high-energy rescattering electron spectra of simple molecules induced by intense femtosecond laser pulses. Differential cross sections of electron-parent ion elastic scatterings are extracted from the electron momentum distributions of rescattering electrons and compared with theoretical calculations. The good agreement between the experimental and theoretical calculations indicates that the present procedure can be used to obtain the structural information of the molecules using femtosecond laser light.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：強光子場、原子分子、再散乱電子、角度分解光電子分光

1. 研究開始当初の背景

物質の構造を決定するために、単色X線を用いたX線回折や高エネルギー電子の散乱過程を用いた電子線回折などの方法がこれまで用いられてきた。これらの方法では、測定された回折パターンから物質の内部構造の3次元イメージを再構築することが出来る。しかしながら、従来の時間分解回折実験では、化学反応過程のような非常に短時間(フェム

ト秒の時間スケール)で起こる構造変化の過程を実験的に追跡することは極めて困難である。

気相分子に直線偏光した高強度フェムト秒レーザー光を照射した時にイオン化によって生成する電子の一部はレーザー電場によりその方向を変えて親分子イオンと再衝突を起こす。この再衝突過程に着目し、再衝突電子と親イオンとの弾性散乱によって得られる再散乱電子の空間運動量分布を測定

することにより、分子の内部構造の情報を得ることが可能となる。ただし、一般に強光子場中で誘起された電子が親イオンに再衝突する際の衝突エネルギーは様々な値を取り得るために、その結果得られる再散乱電子の空間運動量分布の測定から分子の構造解析を行うのは困難である。しかしながら、最も高いエネルギーを持つ再散乱電子のみに着目すれば、これはレーザー強度の制限の範囲で取り得る最大の衝突エネルギーで衝突し、弾性散乱により放出される電子である。この最も高いエネルギーを持つ再散乱電子の空間運動量分布の測定は、レーザー光子場強度で決まるある一定の衝突エネルギーを持つ電子と親イオンの弾性散乱に伴う微分散乱断面積の測定と見做すことができる。従って様々な衝突エネルギーでの再衝突過程全体に深入りすることなく、逆散乱問題を解くことで、分子の内部構造の情報を得ることが可能となる

強レーザー場中での原子・分子の光イオン化に伴う光電子の再衝突・再散乱現象が十数年前に発見されてから、これを用いた原子・分子の自己イメージングの可能性が理論的に提案されてきた。更に、ここ数年、十フェムト秒以下のパルス幅を持った数サイクル赤外レーザー光が比較的容易に生成できるようになり、原子・分子をターゲットとした光イオン化や高調波発生などの実験が報告されるようになった。この状況下で、最近、数サイクル赤外レーザーパルスを用いて、レーザー誘起イオン化により生成した電子の分子への再衝突過程に伴う高エネルギー再散乱電子の微分散乱断面積の測定により、分子のフェムト秒またはサブフェムト秒時間分解イメージングが、実験室レベルの装置で可能なのではないかとの理論的提案が行われ、いくつかの計算例が報告された。

このような背景の元で、我々は最近、幅 100fsec 波長 800nm の高強度レーザーパルスを用いて希ガス原子(Ne, Ar, Xe)の最も高いエネルギーを持つ再散乱電子の2次元運動量分布を精密測定し、これが一定のエネルギーを持つ電子と親イオンとの弾性散乱による微分散乱断面積と同等なものであることを実験的に初めて証明した。従って、今後の焦点はこの手法を分子に応用することにより、分子の内部構造の情報が得られるかを調べる点に移ってきている。

2. 研究の目的

簡単な分子の角度分解再散乱電子スペクトルを、レーザー強度を変えながら(=衝突エネルギーを変えながら)測定し、得られた電子運動量分布から電子・イオン弾性衝突による微分散乱断面積を抽出し、パルス幅 100fs のレーザーを用いた場合でも、

分子の構造や電子状態に特有な回折パターンが観測されるか探索する。また、この微分散乱断面積の計算結果との比較も行い、本研究の手法から、分子構造を反映した微分散乱断面積を精度よく抽出することが本当に可能か確かめ、過渡分子のダイナミックイメージングの研究に利用できるような手法であるか確かめる。

3. 研究の方法

実験は再生増幅型チタンサファイアレーザーシステム(波長:800 nm パルス幅:100fs 繰り返し周波数:1kHz: 現有設備)からの出力(直線偏光)を $\lambda/2$ 波長板で偏光方向を回転させてから、真空槽内で試料分子に集光する。イオン化により生成した電子をレーザーの進行方向に対し垂直方向に設置した飛行時間型電子エネルギー分析器(現有設備)で飛行時間選別した後、マルチチャンネルプレート(MCP)で検出する。MCPからの信号に、レーザー光と同期したゲート信号をかけた後、タイムデジタル化に入力し、高い運動エネルギーを持つ再散乱電子からの信号だけを抽出して観測する。電子の飛行時間測定を行いながら $\lambda/2$ 波長板を回転させることでレーザー光の偏光方向に対する放出電子の角度分布(微分散乱断面積)を求める。強光子場中でのイオン化過程は高次の非線型過程であるため、レーザー光強度の微少な変化に対して信号強度が極めて敏感に反応する。そこで $\lambda/2$ 波長板に取り付けた回転ステージを比較的高速で回転させ、角分布の測定を多数回行い足しあわせることで、これによるデータのばらつきを最小限に抑える。

4. 研究成果

(1) N_2 および O_2 分子のスペクトルの比較
強レーザー場中での2原子分子(N_2 および O_2 分子)の再散乱電子の2次元電子運動量分布スペクトルを測定し、理論計算やモデル計算と比較することでスペクトルに分子構造に関する情報が含まれていることを確かめた。 O_2 分子では光子場強度が $7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 付近の時、後方散乱方向に強い電子強度の窪みが観測された。一方、 N_2 分子にはそのような明確な干渉パターンは観測されなかった。この違いは、強レーザー場中での光イオン化の確率の分子軸方向に対する依存性を考慮に入れることで説明づけることが出来る。気相分子はレーザーの偏光方向に対して様々な方向を向いており、実験結果は、様々な方向を向いた分子からの角度分解電子スペクトルの平均として与えられるものであるが、 O_2 分子の場合、レーザーの偏光方向と分子軸とのなす角がほぼ45度方向を向いたときにイオン

化の確率が最大となり 0 および 90 度方向に近づくときイオン化確率は 0 に急速に収束する。従って観測される再散乱電子強度の窪みは、電子が分子軸がほぼ 45 度方向から再衝突し、その後、各々の 0 原子から散乱された電子波が相殺的干渉を起こしたために起こった現象と見なすことが出来る。一方 N_2 分子ではそのような特別な方向性は無く、立体角が最も大きくなる 90 度方向を向いた時にも強くイオン化されるので目立った干渉パターンは観測されない。すなわち、 N_2 と O_2 分子のスペクトルの違いは分子のイオン化確率の配向依存性の違いに帰結することが出来ることが判った。

(2) O_2 および CO_2 分子の微分断面積

強光子場中でのトンネルイオン化の確率はレーザーの偏光方向に強く依存し、(1)の O_2 分子が示すように、一般に最外殻の分子軌道の向きに平行な方向で確率が極大値を持つ。従って、分子のイオン化により生じた電子の再散乱運動量分布はある特定の分子配向を持つものからの寄与が強く表れる。すなわち部分的に配向した分子からの再散乱電子スペクトルを測定することで、(部分的に)アラインした分子イオンと電子の衝突断面積を得ることが出来る。本研究では、 O_2 および CO_2 分子で異なる 3 種類のレーザーパルスを用いて様々なレーザー強度で再散乱電子の 2 次元運動量分布を測定した。得られた運動量スペクトルから実験的に抽出した電子・分子イオン弾性衝突による微分散乱断面積の衝突運動量依存とその理論計算値を比較した。計算では、高強度レーザーによる分子のイオン化確率の配向方向依存性の計算値を用いて、それぞれの分子配向に重みを付けて平均化を行っている。理論計算と広範囲で比較的良好一致を示すことから、これらの直線分子においても強光子場中での再散乱電子の 2 次元運動量分布の測定から電子・イオン衝突微分断面積を見積もることが可能であることを示した。このことは、分子構造に関する知見を本実験手法で得ることが原理的に可能であることを示している

(3) C_2H_4 および C_2H_6 分子の微分断面積

C_2H_4 および C_2H_6 分子をターゲットとし様々なレーザー強度で再散乱電子の 2 次元運動量分布を測定した。得られた運動量スペクトルから実験的に抽出した。 C_2H_4 分子について電子・分子イオン弾性衝突による微分散乱断面積の衝突運動量依存とその理論計算値を比較した。計算では、高強度レーザーによる分子のイオン化確率の配向方向依存性の計算値を用いて、それぞれの分子配向に重みを付けて平均化を行っている。この分子は HOMO 軌道が分子面に対して垂直方向を向

いていることから、レーザーの偏光方向が分子面に対して垂直方向を向いたときにイオン化確率が最大値を持つことから、アラインした分子からの再衝突した電子のスペクトルを観測することが出来る。理論計算と広範囲で比較的良好一致を示すことから、非直線多原子分子においても強光子場中での再散乱電子の 2 次元運動量分布の測定から電子・イオン衝突微分断面積を見積もることが可能であることを示した。このことは、非直線多原子においても、分子構造に関する知見を本実験手法で得ることが原理的に可能であることを示している。

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 5 件)

1. M. Okunishi, H. Niikura, R. R. Lucchese, T. Morishita, and K. Ueda, “Extracting Electron-Ion Differential Scattering Cross Sections for Partially Aligned Molecules by Laser-Induced Rescattering Photoelectron Spectroscopy” *Physical Review Letters*, **106**, 63001-1-4 (2011). (査読有り)
2. C. Wang, D. Ding, M. Okunishi, Z-G Wang, S-J Liu, G. Pruemper, K. Ueda, “Dissociative double ionization of formic acid in intense laser fields”, *Chemical Physics Letters*, **497** 217-222 (2010). (査読有り)
3. T. Morishita, M. Okunishi, K. Shimada, G. Pruemper, Z. Chen, S. Watanabe, K. Ueda, C. D. Lin, “Retrieval of experimental differential electron-ion elastic scattering cross sections from high-energy ATI spectra of rare gas atoms by infrared lasers”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **42**, 105205-1-6 (2009). (査読有り)
4. D. B. Milosevic, W. Becker, M. Okunishi, G. Pruemper, K. Shimada, K. Ueda, “Strong-field electron spectra of rare-gas atoms in the rescattering regime: enhanced spectral regions and a simulation of the experiment”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **43**, 015401-1-10 (2009). (査読有り)
5. M. Okunishi, R. Itaya, K. Shimada, G. Pruemper, K. Ueda, M. Busuladzic, A. Gazibegovic-Busuladzic, D.

B. Milosevic, W. Becker, “Two-source double-slit interference in angle-resolved high-energy above-threshold ionization spectra of diatoms”, *Physical Review Letters*, 103, 043001-1-4 (2009). (査読有り)

[学会発表] (計 14 件)

1. Misaki Okunishi, “Rescattering Photoelectron Spectra of Molecules induced by intense ultrafast laser pulses” International workshop on theory for attosecond quantum dynamics 4, 2012.2.3 Tokyo, Japan.
2. Misaki Okunishi, “Extracting Electron-Ion Differential Scattering Cross Sections for Partially Aligned Molecules by Laser-induced Rescattering Photoelectron Spectroscopy”, XXVII International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions, 2011.7/27-2011.8.1, Belfast, Northern Ireland, UK
3. M. Okunishi, “Extracting Electron-Ion Differential Scattering Cross Sections for Partially Aligned Molecules by Laser-induced Rescattering Photoelectron Spectroscopy”, 12th International Conference on Multiphoton Processes, 2011.7.3-7.6, Sapporo, Japan
4. C. Wang, “Electron-Ion Differential Cross Section extracting from the rescattering photoelectron spectroscopy of C_2H_4 and C_2H_6 ”, 12th International Conference on Multiphoton Processes, 2011.7.3-7.6, Sapporo, Japan
5. Misaki Okunishi, “Angle resolved rescattering electron spectra of O_2 and CO_2 molecules induced by ultra-short intense laser pulses” 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin, 2010.12.15-2010.12.20, Societies, USA, Honolulu,
6. 奥西みさき “強光子場中での O_2 および CO_2 分子の角度分解再散乱電子スペクトル”, 第4回分子科学討論会, 大阪, (2010.9.14-2010.9.17)
7. M. Okunishi, “Angle resolved rescattering electron spectra of O_2 and CO_2 molecules induced by ultra-short intense laser pulses”, International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters, and Surfaces, Japan, Sendai, (2010.9.4-2010.9.7)
8. Misaki Okunishi, “Angle-resolved rescattering-electron spectra of atoms, molecules induced by ultra-short intense laser pulses”, G-COE International Symposium on Physical Chemistry - Structures, Reactions, and Other Chemical Properties of Molecular Systems, Japan, Sendai, (2010.9.2-2010.9.3)
9. Misaki Okunishi, “Angle-resolved rescattering-electron spectra of O_2 and CO_2 molecules induced by ultra-short intense laser pulses”, International conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics, Canada, Vancouver, (2010.7.11-2010.7.16)
10. M. Okunishi, “Two-source double-slit interference in angle-resolved high-energy above-threshold ionization spectra of diatoms”, International Workshop on Electronic Spectroscopy for Gas-phase molecules and Solid Surfaces, Japan, Matsushima, (2009.10.12-2009.10.15)
11. 奥西みさき, “強光子場中での希ガス原子の角度分解高エネルギーATI スペクトルの測定と電子-イオン微分散乱断面積の決定”, 第3回分子科学討論会, 名古屋, (2009.9.21-2009.9.24)
12. D. B. Milosevic, “Two-source double-slit interference in angle-resolved high-energy above-threshold ionization spectra of diatoms”, Attosecond Physics 2009, USA, Manhattan, Kansas, (2009.7.28-2009.8.1)
13. M. Okunishi, “Angle-resolved high-energy ATI spectra of rare gas atoms and diatomic molecules”, Symposium on Dynamics of Molecules and Clusters, Sendai, (2009.7.3)
14. M. Okunishi, “Two-source double-slit interference in angle-resolved high-energy above-threshold ionization spectra of diatoms”, 第25回化学反応討論会, さいたま, (2009.6.1-2009.6.3)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

奥西 みさき (OKUNIHSI MISAKI)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号: 80224161

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者