

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：12612

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03417

研究課題名（和文）強レーザーによって生成される電子ボルテックスビームを用いた超高速分子イメージング

研究課題名（英文）Ultrafast molecular imaging with vortex electrons generated under intense laser fields

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） 3,200,000 円

研究成果の概要（和文）：高強度レーザーパルスを原子・分子に照射することによって生成されるボルテックス電子を用いた超高速原子・分子イメージングに関する理論的研究を行った。様々な偏光を持ったレーザー照射による原子・分子の光電子スペクトルを高精度で高効率に求める計算コードを開発した。また、断熱理論に基づく解析理論を構築し、ボルテックス電子の再衝突過程に起因する光電子スペクトルの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。ボルテックス電子というらせん状の波面を持つこれまでない状態の電子を用いた新しい原子・分子の反応ダイナミクスを調べた。そして高強度レーザー照射による光電子運動量スペクトルから標的原子・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 vortex electrons generated from atoms and molecules irradiated by intense laser pulses. We developed accurate and efficient computer codes for photoelectron momentum distributions of atoms and molecules irradiated by intense laser pulses with various polarizations. We also developed an analytical theory based on the adiabatic theory and performed quantitative analysis of photoelectron momentum distributions resulting from vortex electron recollision processes. This has provided us with a deep insight into the interaction between intense lasers and matters.

研究分野：原子・分子・光物理

キーワード：ボルテックス電子 アト秒 再衝突

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

ボルテックス電子とは、磁気量子数  $m = 0$  のらせん状の波面を持った状態の電子である。2010年に電子顕微鏡装置を用いた最初のボルテックス電子の生成と干渉実験が行われた。これを機に通常の  $m=0$  の平面波には存在しない新しいボルテックス電子ビームの物理的性質の解明、およびボルテックス電子を照射することによって基板上的のナノ粒子を回転させるといった応用を目指した研究が多数進められるようになった。

ボルテックス電子に関する研究は、高強度レーザーの分野においても行われるようになった。先駆的な研究が2017年、2018年に相次いで欧州の2つのグループにおいてなされ、高強度レーザーパルスに分子を照射することによって引き起こされるボルテックス電子の再衝突による超閾イオン化といった高次非線形過程が観測された。これらの研究においては、ボルテックス電子の再衝突過程にも関わらず、磁気量子数  $m = 0$  の散乱の取り扱いが曖昧であり、ボルテックス電子に対する再衝突過程の理解は不十分なものであった。

### 2. 研究の目的

本研究では、高強度レーザー照射による原子・分子のトンネルイオン化・再衝突過程を利用して原子・分子の構造を抽出する新しいイメージング法の理論を開発する。そして、空間的には原子・分子の大きさであるオングストローム領域、時間的には原子・分子内電子の運動周期であるアト秒領域の分解能を持った超高分解能を有するイメージング法の構築に向けた基礎理論の確立を目指す。

最近のレーザー技術の進歩によって、気体分子の配向の制御が容易になった。配向分子の電子波動関数の節(例えば  $m=1$  の軌道の節)の方向に偏光方向を合わせて高強度レーザーを照射すると、ボルテックス電子がトンネルイオン化によって効率よく生成される。そして、ボルテックス電子は、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の分子に戻ってきて再衝突を引き起こす。衝突後、電子は無限遠方に飛び去り観測器によって観測され、光電子運動量スペクトルが得られる。申請者は、 $m=0$  の平面波について、断熱理論という理論に基づいて、強い非線形性を呈する高強度レーザーによる光電子運動量スペクトルから、標的親イオンの構造に関する情報を精度よく抽出することができることを示した。そしてこの理論を用いて数々の実験データに適用し、有益な情報を得た。本研究では断熱理論の基づく方法をボルテックス電子のものに拡張し、平面波では得られない新しい情報を得る。

### 3. 研究の方法

ボルテックス電子の再衝突過程についての高精度数値計算、解析的理論を用いて研究を進める。高精度数値計算においては、高強度レーザー場中の原子・分子から生成されるボルテックス電子に対応した計算コードの開発および高速化を行い、それらをもとに原子・分子ダイナミクスの分析を行う。解析的理論研究においては、分子内の電子の運動の時間スケールに比べて外場であるレーザー電場の時間変化が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う。断熱理論では、レーザー場中を時々刻々変化する分子の電子状態を、静電場中の分子の固有状態であるシーガート状態を用いて記述する。これにより、再衝突過程を正確に記述することが可能となる。本研究ではこの断熱理論をもとに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新しい知見を獲得するとともに、ボルテックス電子を用いた分子イメージング手法を開拓する。

### 4. 研究成果

1 電子系の時間依存を分析するための計算コードの開発および高速化を行い、強レーザー場中のボルテックス電子ダイナミクスの研究を行った。直線偏光のレーザー場に対する計算コードを拡張し、楕円偏光のレーザー場に対応する計算コードを開発した。これにより、様々な偏光に対するボルテックス電子の再衝突過程についての詳細な分析を行うことが可能となった。

解析的理論研究について、断熱理論においてボルテックス電子の生成過程の理解に重要な静電場中のシーガート状態についての研究を行った。既存の計算コードを並列化によって高速化し、ボルテックス電子の生成確率であるイオン化レートを効率よく求めることができるようになった。そして、 $m=1$  の状態の2原子分子について様々な電場強度と核間距離に対するイオン化レートを求め、電場強度と核間距離をパラメータとする例外点と呼ばれる特異な点が存在することを確かめた。これにより、例外点近傍におけるボルテックス電子の生成過程という興味深い現象を詳細に調べるためのツールが整った。また、平面波についての再衝突過程を利用した断熱理論に基づく構造抽出の方法をボルテックス電子についてのものへ拡張した。そして再衝突過程に対応する光電子運動量スペクトルから物質固有の量である散乱振幅が高精度で抽出できることを示した。これまでの散乱理論は平面波についてのみであり、ボルテックス電子の散乱に対する散乱振幅はこれまでにない新しい物理量である。ボルテックス電子と平面波に対する散乱振幅とを併せて分子構造の詳細な情報が得られることを明らかにした。

以上の結果の一部を学会等で発表した。結果をさらに精査して学術論文として発表する予定

である。また、高強度楕円偏光レーザーパルスによる再衝突過程について等、関連する研究をまとめて学術論文として発表した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12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 2件）

1. 著者名 Chen Zhangjin, Ding Qiongmin, Chen Qinghua, Li Shuqi, Liu Fang, Kang Huipeng, Morishita Toru, Chen Jing	4. 巻 107
2. 論文標題 High-order above-threshold ionization in elliptically polarized laser fields: Identifying the recollision time	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 053107 [7pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.107.053107	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, Chen Qinghua, Kang Huipeng, Morishita Toru	4. 巻 57
2. 論文標題 Simulations of the correlated momentum distributions for nonsequential double ionization of neon in elliptically polarized laser fields	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 055401 [11pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ad285d	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 H. Hasegawa, T. Walmsley, A. Matsuda, T. Morishita, L. B. Madsen, F. Jensen, O. I. Tolstikhin, and A. Hishikawa	4. 巻 10
2. 論文標題 Asymmetric Dissociative Tunneling Ionization of Tetrafluoromethane in $\pi$ -2 Intense Laser Fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Front. Chem.	6. 最初と最後の頁 857863 [11pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3389/fchem.2022.857863	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 H. Fujise, M. Uemura, H. Hasegawa, D. Ikeya, A. Matsuda, T. Morishita, L. B. Madsen, F. Jensen, O. I. Tolstikhin and A. Hishikawa	4. 巻 24
2. 論文標題 Helicity-dependent dissociative tunneling ionization of CF <sub>4</sub> in multicycle circularly polarized intense laser fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 8962-8969
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP05858D	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 X. Yu, N. Wang, J.-T. Lei, J.-X. Shao, T. Morishita, S.-F. Zhao, B. Najjari, X.-W. Ma, and S.-F. Zhang	4. 巻 106
2. 論文標題 Pushing multiphoton resonant ionization of the argon atom to the low-intensity regime	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 023114[6pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.106.023114	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 Z. Chen, S. Li, H. Kang, T. Morishita, and K. Bartschat	4. 巻 24
2. 論文標題 Ellipticity dependence of anticorrelation in the nonsequential double ionization of Ar	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Opt. Express	6. 最初と最後の頁 44309-44054
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.475497	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 T. Mizuno, T. Yang, T. Kurihara, N. Ishii, T. Kanai, O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and J. Itatani	4. 巻 107
2. 論文標題 Comparative study of photoelectron momentum distributions from Kr and CO <sub>2</sub> near a backward rescattering caustic by carrier-envelope-phase mapping	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 033101[15pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.107.033101	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. Mizuno, N. Ishii, T. Kanai, P. Rosenberger, D. Zietlow, M. F. Kling, O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and J. Itatani	4. 巻 103
2. 論文標題 Observation of the quantum shift of a backward rescattering caustic by carrier-envelope phase mapping	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 043121[12pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.103.043121	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 Z. Chen, A. Zhou, T. Morishita, Y. Bai, X. Hao, O. Zatsarinny, and K. Bartschat	4. 巻 103
2. 論文標題 Anticorrelation in nonsequential double ionization of helium	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 053102[10pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.103.053102	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 F. Liu, Z. Chen, T. Morishita, K. Bartschat, B. Boning, and S. Fritzsche	4. 巻 104
2. 論文標題 Single-cycle versus multicycle nonsequential double ionization of argon	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 013105[10pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.104.013105	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. Kjellsson Lindblom, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita	4. 巻 104
2. 論文標題 Atomic Siegert states in a rotating electric field	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 023110[21pages]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.104.023110	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 J. Svensmark, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita	4. 巻 104
2. 論文標題 Adiabatic theory of strong-field ionization of molecules including nuclear motion: Rescattering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. A	6. 最初と最後の頁 063115[1-24]
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.104.063115	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

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 森下亨, 古畑翔, オレグトルスチヒン
2. 発表標題 高強度レーザー場中のバルテックス電子の再衝突を用いた原子・分子イメージング
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

〔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
---------	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------