

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 20 日現在

機関番号：12612  
研究種目：基盤研究(C)  
研究期間：2011～2013  
課題番号：23540465  
研究課題名(和文) 高強度レーザーによる超高速実時間イメージング法

研究課題名(英文) Ultrafast imaging with intense lasers

研究代表者

森下 亨 (Morishita, Toru)

電気通信大学・情報理工学(系)研究科・准教授

研究者番号：20313405

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円、(間接経費) 1,170,000円

研究成果の概要(和文)：高強度レーザーを利用した、原子・分子の超高速実時間イメージングの理論および計算手法を開発した。高強度レーザー電場に誘起される再衝突電子過程を利用することによって、空間的には原子の内部構造(サブ)、時間的には電子の運動(数フェムト秒からアト秒領域)の超高分解能を達成することが可能であり、これによって物質の繊維における時間分解電子ダイナミクスの研究に新しい道が開け、またレーザーと物質の相互作用に関する深い理解を獲得した。

研究成果の概要(英文)：We have developed theoretical and computational methods for high resolution ultrafast imaging of atoms and molecules using intense ultrashort infrared laser pulses. Spatial resolution of the atomic scale (Angstroms) and temporal resolution of the order of the electron orbital period in molecules (femto to atto seconds) can be achieved using rescattering electrons produced from molecules exposed to intense laser pulses open up a new route to the time-resolved study of electron dynamics in matter transition and obtain deeper understanding of the laser-matter interaction.

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：原子・分子・量子エレクトロニクス・プラズマ

キーワード：強レーザー アト秒 イメージング 再衝突過程 断熱理論 シーガート法

### 1. 研究開始当初の背景

X線回折や電子顕微鏡の実用化によって原子サイズ(数Å)の分解能での物質の構造解析が容易に行われるようになって久しい。近年、空間的情報に加えて、物質の遷移を分析するため時間軸についても高分解能を持った方法が数多く考案されている。高強度レーザー技術の発展により、高次高調波発生過程などの高強度レーザーによって誘起される再衝突過程を利用して、アト秒( $10^{-18}$  sec)オーダーの時間分解能を有する分子イメージングの方法が議論されるようになってきている。ここ数年の間、簡単な分子に関して、ポンプ・プローブ法によって、配向した分子からのイオン化、解離、高次高調波発生過程が分子の構造に強く依存することが見出された。そして、 $D_2$ 分子の核間距離の動的変化や高調波スペクトルからの $N_2$ 分子軌道の復元といった超高速分子イメージングについての先駆的研究が行われた。

### 2. 研究の目的

高強度レーザーを利用した、空間的には原子の内部構造(サブÅ)、時間的には電子の運動(数フェムト秒からアト秒領域)の超高分解能を持つ分子の反応イメージングについての理論的研究を行う。レーザー誘起電子顕微鏡法という新しい解析手法を提案し、実験データと理論とデータを比較しながら理論手法の開発を行う。これまでの研究では、標的物質に関して多くの物理量が仮定されていたが、本研究では、可能な限り仮定を排除し、自由電子の散乱断面積や1光子吸収確率(遷移双極子)等の既存の実験データなどの容易に得られる物理量を用いて、分子の実時間イメージを抽出する理論的手法と計算技術を発展させる。原子・分子の散乱理論を基礎として、理論体系の精密化と拡張を行い、電子状態まで含めたより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方法の確立を目指す。

### 3. 研究の方法

本研究では、

- (1) 厳密数値計算に基づく分析
  - (2) 解析的手法に基づく簡便な解析手法の開発
  - (3) 構造決定のアルゴリズム開発
- という3つのサブテーマを構成し、これらをまとめて超高速実時間イメージング法の確立を目指す。それぞれのサブテーマにおいて、コンピュータコードを開発し、それらのテストを行い、既存の実験データと比較しながら検討を進める。

### 4. 研究成果

上述の3つのサブテーマそれぞれについての研究成果を述べる。

- (1) 最も基礎的で物理的に重要な1電子系2原子分子である $H_2^+$ ,  $HeH^{2+}$ , について、原子

核を固定した場合の散乱断面積の厳密数値解を高効率で求めるコンピュータコードを開発し、2中心干渉について分析した。また、核の運動を記述するため、超球楕円座標法の漸近関数に改良を加え、新しい計算コード開発を行った。また、原子系について、高強度レーザー照射による光電子スペクトルを計算するコードを並列化し、高効率化した。

(2) 分子内電子運動の時間スケールとレーザー電場の変化の時間スケールを断熱パラメータとした漸近展開によってシュレーディンガー方程式の解を構築する、断熱理論という新しい理論体系を構築した。これに基づいて、光電子スペクトルに現れる多様な干渉構造の分析を行った。

(3) 構造決定に用いる、強静電場中の分子のトンネルイオン化についての理論体系を構築した。正しい漸近境界条件を課したシーガート法の理論を開発し、超障壁強電場領域での厳密数値解の計算コード開発、トンネルイオン化領域での弱電場漸近理論の開発を行った。そしてトンネルイオン化レートに対する核の運動の影響を調べ、 $H_2$  および  $D_2$  分子の同位体効果を調べた。また、実験で得られた光電子スペクトルから断面積を求め、さらに断面積から分子構造を推定するアルゴリズムを構築した。また、再衝突電子を用いて核振動のダイナミクスを追跡するモデルを構築した。

これらによって物質の遷移における時間分解電子ダイナミクスの研究に新しい道が開け、またレーザーと物質の相互作用に関する深い理解を獲得した。

### 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23件)

1. "Molecular Siegert states in an electric field. II. Transverse momentum distribution of the ionized electrons", V. N. T. Pham, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita, Phys. Rev. A 89, 033426 (2014). 査読有, 10.1103/PhysRevA.89.033426
2. "Application of the weak-field asymptotic theory to tunneling ionization of  $H_2O$ ", L. B. Madsen, Frank Jensen, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita, Phys. Rev. A 89, 033412 (2014). 査読有, 10.1103/PhysRevA.89.033412
3. "Weak-field asymptotic theory of tunneling ionization in many-electron atomic and molecular systems", O. I. Tolstikhin, L. B. Madsen, and T. Morishita, Phys. Rev. A 89, 013421

- (2014). 査読有, 10.1103/PhysRevA.89.013421
4. "First-order correction terms in the weak-field asymptotic theory of tunneling ionization", V. H. Trinh, O. I. Tolstikhin, L. B. Madsen, and T. Morishita, Phys. Rev. A 87, 043426 (2013). 査読有, 10.1103/PhysRevA.87.043426
  5. "Effect of nuclear motion on tunneling ionization rates of molecules", O. I. Tolstikhin, H. J. Wörner, and T. Morishita, Phys. Rev. A 87, 041401(R) (2013). 査読有, 10.1103/PhysRevA.87.041401
  6. "Structure factors for tunneling ionization rates of molecules", L. B. Madsen, F. Jensen, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita, Phys. Rev. A 87, 013406 (2013). 査読有, 10.1103/PhysRevA.87.013406
  7. "Laser-Induced Electron Diffraction for Probing Rare Gas Atoms", J. Xu, C. I. Blaga, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, K. Zhang, Z. Chen, A.-T. Le, T. Morishita, C. D. Lin, P. Agostini, and L. F. DiMauro, Phys. Rev. Lett. 109, 233002 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevLett.109.233002
  8. "Theory of High Harmonic Generation for Probing Time-Resolved Large-Amplitude Molecular Vibrations with Ultrashort Intense Lasers", A.-T. Le, T. Morishita, R. R. Lucchese, and C. D. Lin, Phys. Rev. Lett. 109, 203004 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevLett.109.203004
  9. "Adiabatic theory of ionization by intense laser pulses: Finite-range potentials", O. I. Tolstikhin and T. Morishita, Phys. Rev. A 86, 043107 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevA.86.043417
  10. "Molecular Siegert states in an electric field", L. Hamonou, T. Morishita, and O. I. Tolstikhin, Phys. Rev. A 86, 013412 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevA.86.013412
  11. "Extraction of electron-ion differential scattering cross sections for  $C_2H_4$  by laser-induced rescattering spectroscopy", C. Wang, M. Okunishi, R. R. Lucchese, T. Morishita, O. I. Tolstikhin, L. B. Madsen, K. Shimada, D. Ding and K. Ueda, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 45 131001 (2012). 査読有, 10.1088/0953-4075/45/13/131001
  12. "Adiabatic theory of high-order harmonic generation: One-dimensional zero-range-potential model", Y. Okajima, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita, Phys. Rev. A 85, 063406 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevA.85.063406
  13. "Application of the weak-field asymptotic theory to the analysis of tunneling ionization of linear molecules", L. B. Madsen, O. I. Tolstikhin, and T. Morishita, Phys. Rev. A 85, 053404 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevA.85.053404
  14. "Electron scattering and photoionization of one-electron diatomic molecules", H. Miyagi, T. Morishita, S. Watanabe, Phys. Rev. A 85, 022708 (2012). 査読有, 10.1103/PhysRevA.85.022708
  15. "Theory of tunneling ionization of molecules: Weak-field asymptotics including dipole effects", O. I. Tolstikhin, T. Morishita, and L. B. Madsen, Phys. Rev. A 84, 053423 (2011). 査読有, 10.1103/PhysRevA.84.053423
- [学会発表](計45件)
1. "Atomic and Molecular Ionization by Intense Laser Fields: From Tunneling to Over-the-Barrier Regimes", T. Morishita, Gordon Research Conference, Photoionization & Photodetachment, Probing Electronic and Nuclear Dynamics, February 23-28, 2014, Hotel Galvez, Galveston, TX, USA.
  2. "Atomic and molecular ionization in a static electric field: From tunneling to over-the-barrier regimes", T. Morishita, The workshop on Strong Laser Physics, Shang-tou university, May 5, 2013, Shang-tou, China.
  3. "Ultra High-Resolution Imaging of Atoms and Molecules with Laser Induced Rescattering Electron Spectroscopy", T. Morishita, 10th Asian International Seminar on Atomic and

Molecular Physics, Oct 23-30, 2012, Taipei, Taiwan.

4. "Laser induced rescattering electron spectroscopy for ultrafast atomic and molecular imaging", T. Morishita, 5th Asian Workshop on Generation and Application of Coherent XUV and X-ray Radiation (5th AWCXR) and the ISSP International Workshop on Coherent Soft X-ray Sciences, June 27-29, 2012, Kasihwa, ISSP, Japan.
5. "Accurate retrieval of structural information of atoms and molecules by laser-induced rescattering electron spectroscopy", T. Morishita, International Workshop on Photoionization (IWP), May 22-25, 2011, Las Vegas, USA.
6. "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.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

森下 亨 (MORISHITA TORU)  
電気通信大学・情報理工学研究科・準教授

研究者番号：20313405

### (2) 研究分担者

渡辺 信一 (WATANABE SHINICHI)  
電気通信大学・情報理工学研究科・教授  
研究者番号：60210902