

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24750011

研究課題名(和文) レーザーアシステッド電子散乱による原子・分子の光ドレスト状態の解明

研究課題名(英文) Investigation of light-dressed states of atoms and molecules by laser-assisted electron scattering

研究代表者

歸家 令果 (Kanya, Reika)

東京大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：10401168

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：フェムト秒レーザーアシステッド電子散乱(LAES)観測装置を改修して、検出感度を大幅な向上と、 >0.1 度の散乱角度までの検出感度の獲得に成功した。この装置を用いて、Xe原子を試料としてLAES散乱角度分布の測定を行った結果、散乱角度 $0.1\sim 0.5$ 度の領域に光ドレスト状態形成を示す明らかなピーク構造を観測し、LAES過程に現れる光ドレスト状態の効果を初めて実験的に見出した。さらに、散乱角度 $2\sim 4$ 度の領域においても予期しない光ドレスト状態の効果が現れ、レーザー電場による原子・分子の電子雲のゆがみが複雑な内部構造を持っている可能性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：Significant improvement in the detection efficiency and expansion of the detectable range up to >0.1 degree were achieved for measurements of laser-assisted electron scattering (LAES) signals by upgrading of a femtosecond-LAES apparatus. By using the upgraded apparatus, a clear peak structure indicating the formation of light-dressed states was observed around the angular range of $0.1\text{--}0.5$ degree in an angular distribution of LAES process by Xe atoms. This is the first observation of the signature of the formation of light-dressed states appearing in LAES processes. Furthermore, another signature of light-dressed states was unexpectedly observed around the scattering angle range of $2\text{--}4$ degree, which implies that laser-induced deformation of electronic clouds of atoms and molecules would have complex inner structures.

研究分野：化学

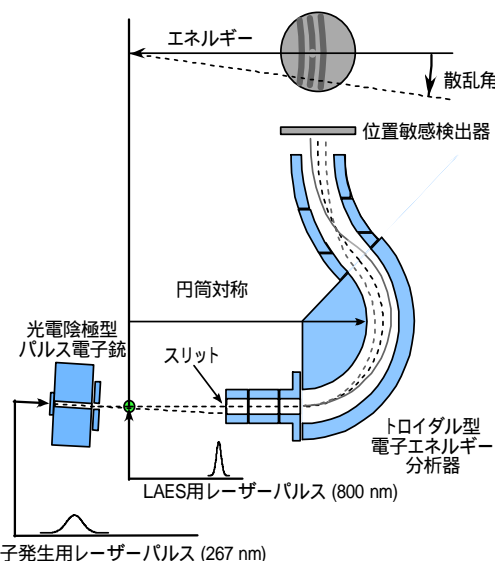
科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：反応動力学 強光子場科学

1. 研究開始当初の背景

強光子場中分子のドレスト状態は、光との強い相互作用による電子状態（および光子数状態）のコヒーレントな重ね合わせにより形成される。分子の電子状態間の共鳴波長はその核配置によって大きく変化するため、ドレスト状態における電子状態の構成比率は分子構造に強く依存する。特に、レーザー場強度が $10^{12} \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$ の領域では、共鳴的な電子状態の結合が支配的であるため、特定の核配置におけるドレストポテンシャルの偽交差が分子ダイナミクスを決定する。また、この偽交差をレーザーによって制御することが強光子場による反応制御のための有力な手段と考えられており、これを実験的に測定することは反応制御の観点からも重要である。しかし、強光子場中のドレスト状態はフェムト秒レーザーパルス内でのみ存在し、核ダイナミクスを決定づけている電子状態の共鳴的結合は、核波束がポテンシャル偽交差を通過する僅かな時間帯で起こるため、これをプローブすることは非常に困難であり、解離生成物イオンの運動量分布からドレスト状態生成や偽交差の存在を類推するに留まっていた。

一方、レーザー場中で電子が原子によって散乱される際、散乱電子が光子エネルギーの整数倍のエネルギーを獲得あるいは損失する、Laser-Assisted Electron Scattering (LAES) と呼ばれる現象が存在する。これまでに、高強度 CO_2 レーザーによる中赤外域レーザー場中の LAES 過程の観測が報告されているが、過去の実験のレーザー場条件（波長： $10.6 \mu\text{m}$ 、強度： $\sim 10^9 \text{ W/cm}^2$ ）では、標的原子はドレスト状態を形成していなかった [Phys. Rev. Lett., **39**, 269-270 (1977)]。一方、理論研究によって、(a) 標的原子がドレスト状態にあるとき、その LAES 散乱角度分布の小角散乱成分に特異的なピークが現れること、そして、(b) 共鳴的ドレスト状態にある場合、そのピーク強度が 10^2 倍以上増大すること、が予測されていた [Phys. Rev. A, **49**, 4852-4863 (1994)]。これは、光ドレスト状態の電子特性が LAES 散乱角度分布の変化として鋭敏に現れることを示しており、高強度フェムト秒レーザーを用いた LAES 実験によって、光ドレスト状態をフェムト秒の時間分解能で直接観測することができると考えられる。2010 年に我々は高強度超短パルスレーザー場中（波長： 800 nm 、強度： $1.8 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、パルス幅： 200 fs ）での電子の Xe 原子による散乱実験を実施し、LAES 過程の観測に世界で初めて成功している [Phys. Rev. Lett., **105**, 123202-1-4 (2010)]。これは従来の LAES 実験でのレーザー場条件と比較して、光子エネルギーが 10 倍以上、レーザー場強度が 10^3 倍以上、そして、レーザーパルス幅が 10^7 分の 1 以下となっており、標的原子が光ドレスト状態を形成するには十分なレーザー場強度である。



電子発生用レーザーパルス (267 nm)

図 1. フェムト秒 LAES 観測装置の概略図.

2. 研究の目的

本研究では、原子や分子の光ドレスト状態の性質を直接プローブすることを目的として、Laser-assisted Electron Scattering (LAES) 法という実験手法を開発する。そして、高強度フェムト秒レーザー光によって形成される光ドレスト原子からの LAES 過程、特に、小角散乱領域に現れるピーク構造を初めて観測する。さらに、小角散乱分布の解析から光ドレスト原子・分子の電子状態の特性を導き出すことによって、光ドレスト状態の特性から強光子場下における原子分子ダイナミクスのメカニズムを明らかにする。

3. 研究の方法

フェムト秒 LAES 観測装置の全体構成を図 1 に示す。光陰極型パルス電子銃から放出された電子線パルスは 1 keV に加速され、電磁レンズでコリメートされた後、ガス試料に照射される。試料は CW ノズルから図 1 で紙面垂直方向に噴出される。ここで、電子線の進行方向とガスの噴出方向、および、レーザー光の進行方向は互いに直行する。レーザーの偏光は、図 1 で紙面と垂直方向である。レーザーの進行方向と偏光方向で張られる面内に散乱された電子のみをスリットで切り出し、トロイダル型電子エネルギー分析器に入射させる。図 1 に示すように、エネルギー分析器によって散乱電子は、エネルギー方向と散乱角度方向に同時に分散され、ディレイライン型位置敏感検出器によって二次元検出される。装置全体は超高真空チャンバー内に設置され、高透磁率材料によって二重に磁場遮蔽されている。本研究課題では、ガス試料として、Xe 原子と CCl_4 分子を用いた。

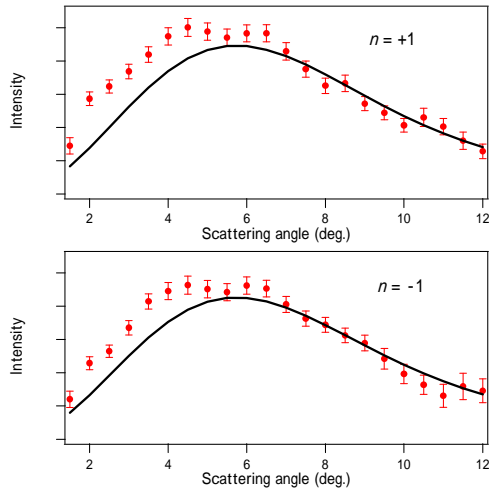


図 2. Xe 原子を試料とした LAES 角度分布. 赤丸：実験値，黒実線：数値シミュレーション.

4. 研究成果

- (1) フェムト秒 LAES 観測装置の高感度化
電子パルス発生用紫外レーザー光のパルス幅を伸長することによって電子パルス時間幅の最適化を行った。その結果、LAES 信号の強度変化を指標にして、電子パルスとレーザーパルスとの時間差調整を行うことが可能となり、LAES 観測のために最適な実験条件を精密に決定できるようになった。これらの改良によって、LAES 信号の検出効率が 10 倍程度向上した。
- (2) LAES 散乱によるドレスト状態観測
改良されたフェムト秒 LAES 観測装置を用いて、Xe 原子を試料として散乱角度 2 ~ 12 度の範囲における LAES 散乱角度分布の測定を行った。従来の理論的予測では、光ドレスト状態形成の効果は、散乱角度 0 ~ 1 度の領域に現れると考えられていたが、散乱角度 2 ~ 4 度の領域においても光ドレスト状態の効果を検討しない理論予測との不一致が見られた(図 2)。同様の効果は、 CCl_4 分子を試料とした LAES 散乱角度分布の測定でも観測された(図 3)。この実験結果は、強レーザー場中での原子・分子の光ドレスト状態が従来の理論モデルでは十分に記述出来ておらず、レーザー電場による電子雲のゆがみが複雑な内部構造を持っている可能性を示唆している。
- (3) 高強度レーザー場による高次非線形 LAES 遷移の観測
高強度フェムト秒近赤外レーザー場における Xe 試料による電子散乱実験を行い、散乱電子のエネルギー分布と角度分布を測定した。その結果、近赤外域のレーザー場によって誘起される高次の多光子遷移を伴うレーザーアシステッド電子散乱信号の観測に初めて成功した。散乱電子のエネルギースペクトルには、

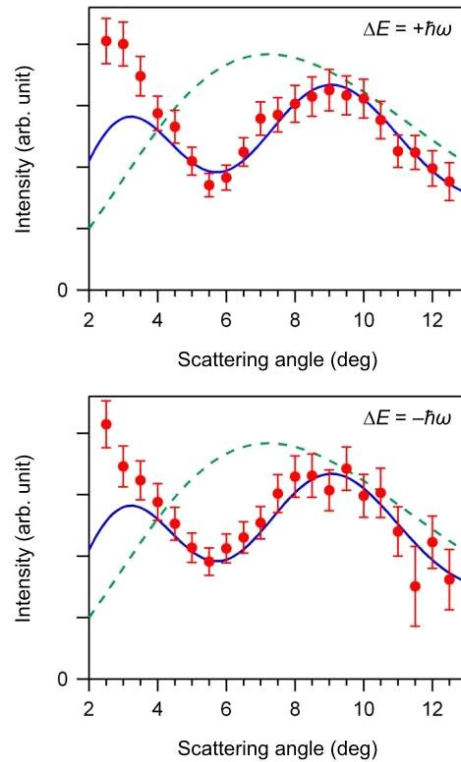


図 3. CCl_4 分子を試料とした LAES 角度分布. 赤丸：実験値，青実線：数値シミュレーション.

通常の弾性散乱信号に加え、 n 光子分エネルギー増加した信号が現れ($n = +1, +2, +3, +4, +5, +6$)、それらの強度は理論シミュレーションの結果と良い一致を示した。

- (4) LAES 小角信号の観測のためのフェムト秒 LAES 観測装置の改修
LAES 小角信号の観測をめざしてフェムト秒 LAES 観測装置をさらに改良し、検出可能な散乱角度領域を 2.3 ~ 12.0 度から 0.1 ~ 12.0 度に拡大した。改良された装置を用いて、Xe 原子を試料とした LAES 信号の散乱角度分布の測定を行った結果、散乱角度 0.1 ~ 0.5 度の領域に明らかなピーク構造を観測した。この観測結果は、光ドレスト状態形成の効果が散乱角度 0 ~ 1 度の領域にピーク構造として現れると予測された従来の理論的研究と良く一致しており、LAES 過程に現れる光ドレスト状態の効果が初めて観測されたことを示している。また、予期していなかった散乱角度 2 ~ 4 度の領域における理論予測との不一致は、この測定でも再現されており、新たな理論的枠組みが必要であることが示された。

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 6 件)

- (1) Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Laser-assisted electron diffraction for femtosecond molecular imaging," *Journal of Chemical Physics*, 査読有, **140**, (2014), 064201-1-8.
DOI: 10.1063/1.4863985
- (2) R. Kanya, Y. Morimoto, K. Yamanouchi, "Laser-assisted electron scattering and diffraction in ultrashort intense laser fields," *Progress in Ultrashort Intense Laser Science*, 査読有, **10**, (2014), 1-16.
DOI: 10.1007/978-3-319-00521-8_1
- (3) R. Kanya, T. Kudou, N. Schirmel, S. Miura, K.-M. Weitzel, K. Hoshina, K. Yamanouchi, "Hydrogen scrambling in H₃⁺ generation from ethane induced by ultrashort intense laser fields," *EPJ Web of Conferences*, 査読無, **41**, (2013), 02034-1-3.
DOI: 10.1051/epjconf/20134102034
- (4) R. Kanya, A. Iwasaki, T. Teramoto, K. Yamanouchi, "Numerical simulations of time-domain interferometric soft X-ray microscope with broadband high-order harmonic light sources," *Applied Physics Letters*, 査読有, **106**, (2013), 071102-1-3.
DOI: 10.1063/1.4793301
- (5) R. Kanya, Y. Morimoto, K. Yamanouchi, "Laser-assisted electron scattering and its application to laser-assisted electron diffraction of molecules in femtosecond intense laser fields," *Multiphoton Processes and Attosecond Physics, Springer Proceedings in Physics*, 査読無, **125**, (2012), 351-356.
DOI: 10.1007/978-3-642-28948-4_58
- (6) R. Kanya, T. Kudou, N. Schirmel, S. Miura, K.-M. Weitzel, K. Hoshina, K. Yamanouchi, "Hydrogen scrambling in ethane induced by intense laser fields: Statistical analysis of coincidence events," *Journal of Chemical Physics*, 査読有, **136**, (2012), 204309-1-9.
DOI: 10.1063/1.4720503

〔学会発表〕(計 2 9 件)

- (1) Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Laser-assisted electron diffraction for probing femtosecond molecular dynamics of gas-phase molecules," *19th International Conference on Ultrafast Phenomena*, 2014 年 7 月 7 日 ~ 2014 年 7 月 11 日, Okinawa Convention Center (Okinawa, Japan)
- (2) K. Ishida, Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Observation of

multiphoton absorptions in laser-assisted electron scattering in a femtosecond intense laser field," *19th International Conference on Ultrafast Phenomena*, 2014 年 7 月 7 日 ~ 2014 年 7 月 11 日, Okinawa Convention Center (Okinawa, Japan)

- (3) T. Yamazaki, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Decomposition of cyclohexane ion induced by intense femtosecond laser fields," *19th International Conference on Ultrafast Phenomena*, 2014 年 7 月 7 日 ~ 2014 年 7 月 11 日, Okinawa Convention Center (Okinawa, Japan)
- (4) 石田角太, 森本裕也, 歸家令果, 山内 薫, "高強度フェムト秒レーザーによる高次非線形レーザーアシステッド電子散乱過程の観測," *第 11 回 A M O 討論会*, 2014 年 6 月 6 日 ~ 2014 年 6 月 7 日, 大阪大学 (豊中市, 大阪府)
- (5) R. Kanya, "Ultrafast molecular imaging by laser-assisted electron scattering," *The 5th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, 2014 年 5 月 21 日 ~ 2014 年 5 月 24 日, Seagaia Convention Center (Miyazaki, Japan)
- (6) K. Ishida, Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Observation of multiphoton absorptions in laser-assisted electron scattering induced by a near-infrared femtosecond intense laser field," *The 5th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, 2014 年 5 月 21 日 ~ 2014 年 5 月 24 日, Seagaia Convention Center (Miyazaki, Japan)
- (7) Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Laser-assisted electron diffraction for femtosecond molecular imaging," *超高速分光の最前線(The Forefront of Ultrafast Spectroscopy)*, 2014 年 5 月 26 日 ~ 2014 年 5 月 28 日, 理化学研究所 (和光市, 埼玉県)
- (8) 歸家令果, "レーザーアシステッド電子回折法による超高速分子イメージング," *第 2 回先進的観測技術研究会 時間分解計測の最前線*, 2014 年 2 月 21 日, K E K (つくば市, 茨城県)
- (9) Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, "Observation of femtosecond laser-assisted electron diffraction of CCl₄," *The 12th International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, 2013 年 10 月 6 日 ~ 2013 年 10 月 11 日, Colegio Arzobispo Fonseca (Salamanca, Spain)
- (10) 森本裕也, 歸家令果, 山内 薫, "CCl₄ のフェムト秒レーザーアシステッド電

- 子回折像の観測と瞬時的分子構造の決定,” 第7回分子科学討論会, 2013年9月24日~2013年9月27日, 京都テルサ(京都市, 京都府)
- (11) R. Kanya, “Laser-assisted electron diffraction for ultrafast molecular imaging,” *The 4th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, 2013年5月8日~2013年5月10日, SIOM (Shanghai, China)
- (12) R. Kanya, K. Ishida, Y. Yamanouchi, “Angular-resolved time-of-flight electron analyzer for laser-assisted electron diffraction,” *The 4th Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, 2013年5月8日~2013年5月10日, SIOM (Shanghai, China)
- (13) 石田角太, 森本裕也, 歸家令果, 山内 薫, “高強度フェムト秒レーザー場におけるレーザーアシステッド電子散乱多光子過程の観測,” 日本化学会第93回春季年会, 2013年3月22日~2013年3月25日, 立命館大学(草津市, 滋賀県)
- (14) 歸家令果, “レーザーアシステッド電子散乱による超高速分子イメージング,” 第5回超高速時間分解光計測研究会, 2013年2月21日, ホテルクラウンパレス浜松(浜松市, 静岡県)
- (15) 歸家令果, 森本裕也, 石田角太, 山内 薫, “高強度超短パルスレーザー場でのレーザーアシステッド電子散乱過程の観測,” レーザー学会学術講演会第33回年次大会, 2013年1月28日~2013年1月30日, 姫路商工会議所(姫路市, 兵庫県)
- (16) R. Kanya, “Observation of laser-assisted electron scattering and diffraction in femtosecond intense laser fields,” *The 72nd Okazaki Conference on “Ultimate Control of Coherence”*, 2013年1月8日~2013年1月10日, Okazaki Conference Center (Okazaki, Japan)
- (17) R. Kanya, “Observation of laser-assisted electron scattering in ultrashort intense laser fields and its applications,” *The 7th Asian Symposium on Intense Laser Science*, 2012年11月8日~2012年11月9日, The University of Tokyo (Tokyo, Japan)
- (18) T. Yamazaki, R. Kanya, K. Yamanouchi, “Decomposition of trapped $C_6H_{12}^+$ induced by intense laser fields,” *The 7th Asian Symposium on Intense Laser Science*, 2012年11月8日~2012年11月9日, The University of Tokyo (Tokyo, Japan)
- (19) Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, “Observation of laser-assisted electron diffraction of CCl_4 in femtosecond near-infrared laser fields,” *The 7th Asian Symposium on Intense Laser Science*, 2012年11月8日~2012年11月9日, The University of Tokyo (Tokyo, Japan)
- (20) R. Kanya, “Observation of laser-assisted electron diffraction in a femtosecond laser field,” *The 11th International Symposium on Ultrashort Intense Laser Science*, 2012年10月21日~2012年10月25日, Shilla Hotel (Jeju, Korea)
- (21) K. Ishida, Y. Morimoto, R. Kanya, K. Yamanouchi, “Observation of multiphoton transitions in laser-assisted electron scattering in a femtosecond intense laser field,” *The 11th International Symposium on Ultrashort Intense Laser Science*, 2012年10月21日~2012年10月25日, Shilla Hotel (Jeju, Korea)
- (22) 森本裕也, 歸家令果, 山内 薫, “フェムト秒レーザー場中でのレーザーアシステッド電子回折の観測,” 第6回分子科学討論会, 2012年9月18日~2012年9月21日, 東京大学(東京都)
- (23) 石田角太, 森本裕也, 歸家令果, 山内 薫, “高強度フェムト秒レーザー場における多光子遷移レーザーアシステッド電子散乱の観測,” 第6回分子科学討論会, 2012年9月18日~2012年9月21日, 東京大学(東京都)
- (24) 山崎嵩雄, 歸家令果, 山内 薫, “イオントラップされた $C_6H_{12}^+$ の強光子場誘起分解反応,” 第6回分子科学討論会, 2012年9月18日~2012年9月21日, 東京大学(東京都)
- (25) R. Kanya, T. Kudou, N. Schirmel, S. Miura, K.-M. Weitzel, K. Hoshina, K. Yamanouchi, “Hydrogen scrambling in H_3^+ generation from ethane molecules induced by ultrashort intense laser fields,” *18th International Conference on Ultrafast Phenomena*, 2012年7月8日~2012年7月13日, UNIL (Lausanne, Switzerland)
- (26) 山崎嵩雄, 歸家令果, 山内 薫, “イオントラップ飛行時間型質量分析法による $C_6H_{12}^+$ の強光子場誘起分解反応,” 第9回AMO討論会, 2012年6月15日~2012年6月16日, 理化学研究所(和光市, 埼玉県)
- (27) 歸家令果, “高強度超短パルスレーザー場中でのレーザーアシステッド電子散乱,” 第9回AMO討論会, 2012年6月15日~2012年6月16日, 理化学研究所(和光市, 埼玉県)
- (28) R. Kanya, T. Kudou, N. Schirmel, S.

Miura, K.-M. Weitzel, K. Hoshina, K. Yamanouchi, "Hydrogen scrambling in ethane induced by ultrashort intense laser fields," *The 28th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics*, 2012年6月6日~2012年6月8日, Kyushu University (Fukuoka, Japan)

- (29) R. Kanya, T. Kudou, N. Schirmel, S. Miura, K.-M. Weitzel, K. Hoshina, K. Yamanouchi, "Hydrogen scrambling in ethane induced by ultrashort intense laser fields," *The 3rd Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, 2012年5月16日~2012年5月18日, Hilton Odawara Resort & Spa (Odawara, Japan)

〔図書〕（計 0件）

〔産業財産権〕

出願状況（計 0件）

取得状況（計 0件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

歸家 令果 (KANYA, Reika)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：10401168

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者