

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25286064

研究課題名(和文) アト秒パルスによるヘリウム原子のイオン化に関する理論研究

研究課題名(英文) Theoretical study on attosecond and femtosecond atomic photoionization

研究代表者

石川 顕一 (Ishikawa, Kenichi)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：70344025

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 6,600,000円

研究成果の概要(和文)：光による原子のイオン化を対象とし、アト秒レーザーやフェムト秒極紫外自由電子レーザーの出現で注目を集めている、電子が出てくるまでの過程や電子がイオン化するのにたどる経路について、量子力学の基礎方程式に基づいた第一原理計算によって調べた。その結果、内殻イオン化においては「内側から出ていく電子」が「イオンに残る電子」に衝突することで量子状態遷移を誘起する「ノックアップ」がパルスの偏光に依存して変わること、2色ダブルパルスによる2光子イオン化においてはイオン化経路の競合によって光電子角度分布がパルス間遅延時間に依存することなど、様々な制御可能性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Using direct simulation of the time-dependent Schrodinger equation, we have studied the progress of photoionization and the interplay between different ionization paths. Upon inner-shell ionization, "Attosecond knock-up", where the outgoing continuum electron collides with the remaining outer electron, depends on pulse polarization. Upon near-threshold EUV+IR two-photon ionization, the competition between resonant and nonresonant paths leads to striking pulse-delay dependence of photoelectron angular distribution. Thus, our study has revealed various possibilities to control photoionization processes.

研究分野：光量子科学

キーワード：アト秒科学 極紫外自由電子レーザー 第一原理計算

1. 研究開始当初の背景

近年のレーザー技術の進歩により、高次高調波発生を用いてアト秒 (10^{-18} 秒) の時間幅を持った極紫外領域の超短光パルスを発生することが可能になった。また、SCSS 試験加速器 (日本)、FLASH (独)、FERMI (伊) といったフェムト秒極紫外自由電子レーザーも建設されている。光による原子のイオン化 (光電効果) は、これまで一瞬ととらえられてきたが、これらの超短パルス光源が出現したことで、また、アト秒パルスによるイオン化における電子放出のタイミングが軌道によって数十～数百アト秒異なることが観測されたことで [1]、電子が出てくるまでの過程がどのように進行しているのかに興味を持たれている。

2. 研究の目的

(1) 我々は、励起状態のヘリウム原子の内殻イオン化を時間依存第一原理計算することで、「内殻から出て行く電子」が「イオンに残る電子」に衝突して量子状態間遷移を引き起こすノックアップが、カスケード的に起こることを明らかにした [2]。本研究では、ノックアップ現象が、照射するアト秒パルスの偏光にどう依存するかを調べる。

(2) フェムト秒極紫外自由電子レーザーによるヘリウム原子の 2 光子イオン化を対象としてとりあげ、量子力学の基礎方程式に基づいた第一原理計算によって、イオン化の際に電子がたどる経路やその干渉を調べる。

3. 研究の方法

(1) レーザー場中のヘリウム原子に対する時間依存シュレディンガー方程式 (TDSE) を、時間依存緊密結合法で厳密に解く。時間依存緊密結合法では、2 電子波動関数の角度成分を、合成軌道角運動量 (L, M)、各電子の角運動量 l_1, l_2 の固有状態 (結合された球面調和関数) で展開する。動径波動関数を (r_1, r_2) グリッド上で離散化しその時間発展を数値的に解くことで、波動関数の時間発展を求める。

(2) 光電子の放出角度分布 $I(\theta)$ は、極紫外光の偏光と電子が放出される方向のなす角度を θ とすると、

$$I(\theta) = \frac{\sigma}{4\pi} [1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta)]$$

と表される。異方性パラメーター β_2 と β_4 は、S 波束と D 波束の振幅の比 W 、相対位相 δ と、

$$\beta_2 = \frac{10}{W^2+1} \left[\frac{1}{7} - \frac{W \cos \delta}{\sqrt{5}} \right], \beta_4 = \frac{18}{7(W^2+1)}$$

と関係づけられている。これらのパラメーターを 2 次の時間依存摂動論を用いて解析するとともに、上記シミュレーションで得られた波動関数から求める。

4. 研究成果

(1) 光子エネルギー 72.9 eV の 5 サイクルパルスによる $1s2p_z^1P$ 励起状態の 1 光子電離でできるヘリウムイオンの、各準位のポピュレーションの時間変化を図 1 に示す [2]。イオン化のほとんどは、 $1s$ 電子 (内殻電子) による光子吸収で始まる。図 1 を見ると、いくつかの時間スケールがあることが分かる。まず、200 アト秒までは $2p$ と $3p$ 状態が同程度できる。これは内殻電子が突然になくなったことによる瞬間的なポテンシャル変化の効果、すなわちシェイクアップである。それ以降は、パルスは終わっているため結果はゲージに依存せず、またダイナミクスは純粋に電子相関によるものである。200～400 アト秒では準位間のポピュレーション移動が起こる。具体的には、 $2p$ と $3p$ 状態のポピュレーションが減り、 $2s, 3d, 4f$ といったシェイクアップでは励起されることのない準位のポピュレーションが増えている。これは、「内側から出ていく電子」が「イオンに残る電子」に衝突する (図 2) ことで量子状態遷移を誘起しているためで、我々はこれを「ノックアップ」と名付けた [2]。

この描像が正しいことを確認するため、 $1s2p_x^1P$ 励起状態の 1 光子電離のシミュレーションも行った。初期状態では、 $2p_x$ 電子は x 軸に沿って局在しているのに対して、内殻電子は z 方向に選択的に放出されるため、ノックアップは抑制されると予想される。各準位のポピュレーションの時間変化を図 3 に示す。シェイクアップは $1s2p_z^1P$ 励起状態の場合とほぼ同様に進行するのに対して、200 アト秒以降のポピュレーション移動は図 1 に比べて、予想通り明確に少なくなっている。この結果は、パルスが終わった後のポピュレーション移動のメカニズムが、実際、図 2 に示したようなノックアップ現象であることを支持していると言える。

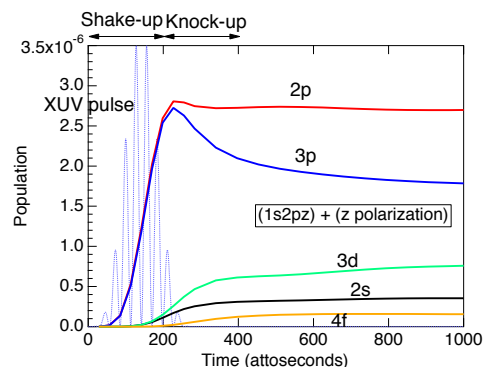


図 1 光子エネルギー 72.9 eV の 5 サイクルパルスによる $1s2p_z^1P$ 励起状態の 1 光子電離でできるヘリウムイオンの、各準位のポピュレーションの時間変化

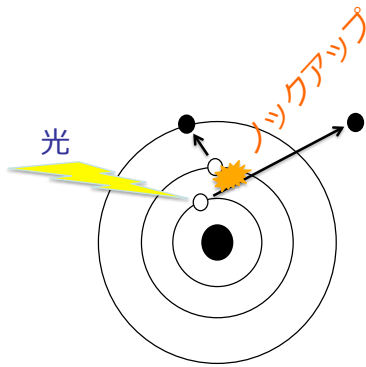


図2 内殻電離とノックアップによる外殻電子の遷移のイメージ

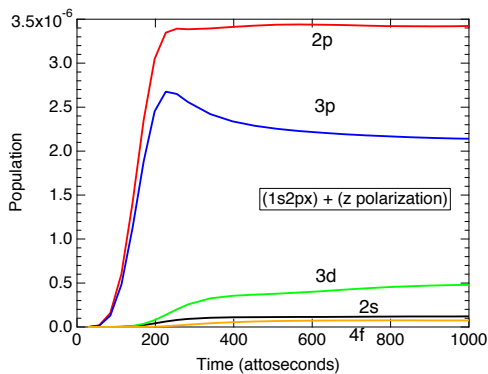


図3 光子エネルギー72.9 eVの5サイクルパルスによる $1s2p_x^1P$ 励起状態の1光子電離でできるヘリウムイオンの、各準位のポピュレーションの時間変化

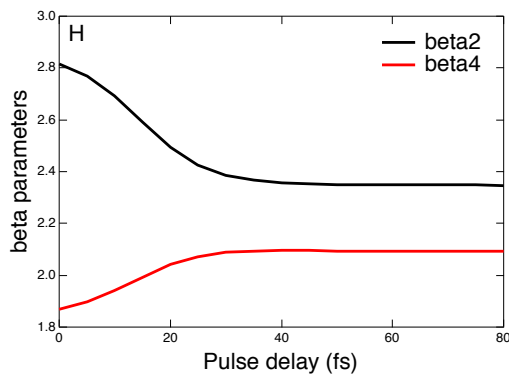


図4 光子エネルギー13.3 eVのEUVパルス(パルス幅7 fs)と波長800 nmの近赤外パルス(30 fs)による、水素原子の2色2光子電離で得られる光電子角度分布の異方性パラメーターが、遅延時間にどのように依存するか、TDSE計算結果。

(2) 2次の時間依存摂動論を用いて、フェムト秒極紫外自由電子レーザーによる2光子イオン化における光電子角度分布を考察した。2光子電離の終状態 f が持つ複素振幅 c_f を導出し、電場波形が $E(t) = E_{EUV}(t) + E_{IR}(t - \tau)$ の形を持つ2色ダブルパルスの場合について解析した。光電子波束は、複数の部分の重ね合わせであるが、それらの振幅比と相対位相が遅延時間 τ に依存して変化し、その結果

として、光電子角度分布も遅延時間によって制御できることを明らかにした。

この予言を確かめるため、次に、水素原子に対する数値シミュレーションを行った。異方性パラメーターの遅延時間依存性を図4に示す。実際、 β_2 と β_4 が遅延時間に依存して変化することが見て取れる。

(3) さらに、SCSS試験加速器極紫外自由電子レーザーでNeを用いて行われた実験と比較を行った。光電子角度分布の比較を図5に示す。(a)は極紫外光と近赤外光の遅延が大きい場合、(b)は遅延時間がゼロの場合である。理論の予測通り、光電子角度分布は遅延時間によって変化しており、シミュレーションの結果(実線)は実測値(破線)とよく一致していることが分かる。

本研究の結果は、フェムト秒時間スケールのイオン化ダイナミクスを、光パルスのパルス幅やダブルパルスの遅延時間によってコヒーレント制御できることを示す、画期的な成果である。

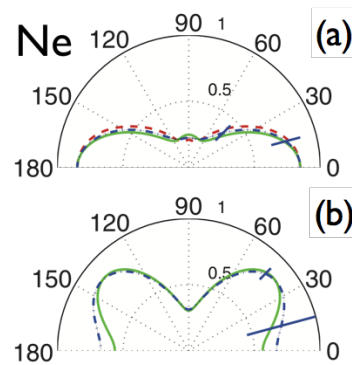


図5 Neの場合における(a)遅延時間が大きい場合と(b)遅延時間がない場合の光電子角度分布。実線はシミュレーションの結果で、破線はSCSSでの測定結果。

(4) また、ヘリウムの2電子波動関数の時間発展をシミュレーションした。ところが、Heは、極紫外パルス(24.3 eV)と近赤外パルス(1.55 eV, 800nmに対応)の組み合わせの場合、光電子角度分布が遅延時間にほとんど依存しない特殊なケースであることが分かった(図6)。実際、相対位相 δ は、遅延時間なしの場合には2.76、遅延時間無限大では2.72とほとんど変わらない。このことによって、Haber *et al.*のHeを用いた実験[3]において、なぜ遅延時間によらない結果が得られたかを説明できる。

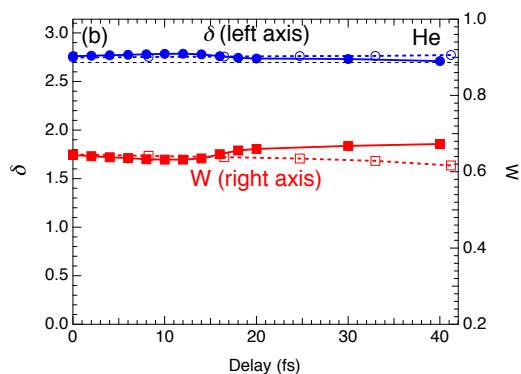


図 6 ヘリウム原子の 2 色 2 光子電離における W と δ のパルス間遅延時間依存性

(5) 次に、光電子のエネルギーについて分解した解析を目的に、水素原子に対するシミュレーションを行った。極紫外パルスの光子エネルギーが 13.4 eV、パルス幅が 8 fs、近赤外パルスの波長が 800 nm、パルス幅が 30 fs の場合の、2 色 2 光子電離による光電子エネルギースペクトルがパルス間の遅延にどのように依存するかを計算した結果を図 7 に示す。2 つのパルスが重なって共鳴過程と非共鳴過程の競合がある領域と、重なりがなく極紫外パルスによって励起準位に遷移した電子が、近赤外パルスによってさらに連続状態に遷移する過程（共鳴過程）が支配的な領域では、光電子スペクトルの様相が定性的に異なることが分かる。これにともなって、異方性パラメータ β_2 と β_4 は遅延時間に依存して変化する様子が見られた。また、遅延時間の大きい領域では、異なる励起状態からの寄与が干渉している様子が見られ、興味深い。

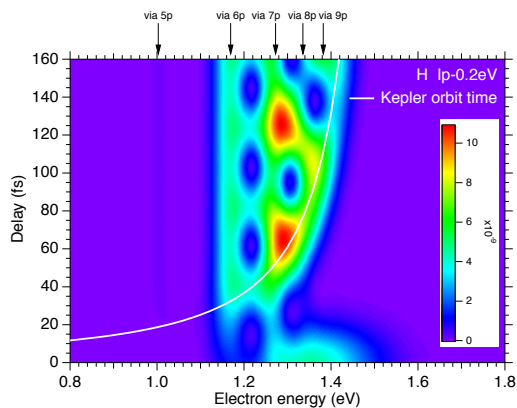


図 7 水素原子の 2 色 2 光子電離で得られる光電子エネルギースペクトルの、パルス間遅延時間依存性

(6) 発展として、2 波長同時照射によるネオンのイオン化を調べ、その際に生じる様々なチャンネルの振幅がどのように時間発展するかを記述するレート方程式を導出することに成功した。

FERMI での実験を念頭においたレーザーパラメータを使ってシミュレーションし、光電子角度分布は、基本波と倍波の相対位相に依存して振動するとの予測を得た。

<引用文献>

- [1] Schultze *et al.*, Science 328, 1658 (2010).
 [2] Sukiasyan, Ishikawa, and Ivanov, Phys. Rev. A 86, 033423 (2012).
 [3] Haber *et al.*, Phys. Rev. A 79, 031401(R) (2009).

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 9 件)

- [1] R. Sawada, T. Sato, and K. L. Ishikawa, Implementation of the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method for general molecules on a multi-resolution Cartesian grid, Phys. Rev. A 93, 023434-1~7 (2016) 査読有 DOI: PhysRevA. 93. 023434

- [2] K. L. Ishikawa and T. Sato, A Review on Ab Initio Approaches for Multielectron Dynamics, IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron 21, 8700916-1~16 (2015) 査読有 DOI: 10.1109/JSTQE. 2015. 2438827

- [3] T. Sato and K. L. Ishikawa, Time-dependent multiconfiguration self-consistent-field method based on occupation restricted multiple active space model for multielectron dynamics in intense laser fields, Phys. Rev. A 91, 023417-1~15 (2015) 査読有 DOI : 10.1103/PhysRevA. 91. 023417

- [4] K. L. Ishikawa, A. K. Kazansky, N. M. Kabachnik, and K. Ueda, Theoretical study of pulse delay effects in the photoelectron angular distribution of near-threshold EUV+IR two-photon ionization of atoms, Phys. Rev. A 90, 023408-1~11 (2014) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevA. 90. 023408

- [5] S. Mondal, H. Fukuzawa, K. Motomura, T. Tachibana, ..., K. L. Ishikawa *et al.* (22 名中 19 番目), Pulse-delay effects in the angular distribution of near-threshold EUV + IR two-photon ionization of Ne, Phys. Rev. A 89, 013415-1~6 (2014) 査読有 DOI: 10.1103/PhysRevA. 89. 013415

- [6] S. Mondal, H. Fukuzawa, K. Motomura, T. Tachibana, ..., K. L. Ishikawa *et al.* (26 名中 22 番目), Photoelectron angular distributions in infrared one-photon and two-photon ionization of FEL-pumped Rydberg states of helium, J. Phys. B 46, 205601-1~7 (2013) 査読有

[学会発表] (計 14 件)

[1] Kenichi L. Ishikawa, Nikolay M. Kabachnik, Andrey K. Kazansky, and Kiyoshi Ueda, “Two-photon ionization of atoms in ultrashort extreme-ultraviolet laser fields”, XXIX International Conference on Photonic, Electronic and Atomic Collisions (ICPEAC2015), Toledo, Spain, 2015/7/22-28 (招待講演)

[2] K. L. Ishikawa, “Two-photon ionization: direct or stepwise, that’s the question”, Atomic and Molecular Physics: a joint Japanese and French view over 120 years (AM0120), Cernay la Ville, France, 2014/7/21-23 (招待講演)

[3] K. L. Ishikawa, “Two-photon ionization of rare-gas atoms by femtosecond extreme-ultraviolet pulses”, International Conference on Many Particle Spectroscopy of Atoms, Molecules, Clusters and Surfaces (MPS2014), Metz, France, 2014/7/16-18 (招待講演)

[4] 澤田亮人、佐藤健、石川顕一、「励起ヘリウム原子の内殻電離のボーム経路解析」、日本物理学会第 69 回年次大会、東海大学湘南キャンパス、神奈川県平塚市、2014/3/27-30

[5] K. L. Ishikawa, “Multielectron Dynamics in Intense Laser Fields”, International Workshop on Theory for Attosecond Quantum Dynamics (IWTAQD) 10, The University of Electro-Communications, 東京都調布市, 2014/1/24 (招待講演)

[6] 石川 顕一, Suren Sukiasyan, Misha Ivanov, 「励起ヘリウム原子の内殻電離におけるアト秒電子相関とノックアップ現象 (II)」、第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京都府京田辺市、2013/9/16-20

[7] K. L. Ishikawa, “Attosecond and Femtosecond Photoionization Dynamics of He”, Intense field, Short Wavelength Atomic and Molecular Processes-2 (ISWAMP 2013), Grand Metropark Hotel, Xi’an, China, 2013/7/20-22 (招待講演)

[8] K. L. Ishikawa et al., “Correlation-driven electron dynamics in attosecond photoionization of helium”, 4th International Conference on Attosecond Physics (ATTO2013), Paris, France, 2013/7/8-12

[9] K. L. Ishikawa et al., “Correlation-Driven Electron Dynamics in Attosecond Photoionization of Helium”, The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR) 2013, Kyoto International Conference Center, 京都府京都市, 2013/6/30-7/4

[10] K. L. Ishikawa, “Two-photon ionization by femtosecond laser pulses”, International Workshop on Theory for Attosecond Quantum Dynamics (IWTAQD) 9, University of Electro-Communication, 東京都調布市, 2013/6/20 (招待講演)

[図書] (計 1 件)

大森賢治、石川顕一、石井順久、板谷治郎、香月浩之、森下亨、渡部俊太郎、「アト秒科学～1 京分の 1 秒スケールの超高速現象を光で観測・制御する～」、化学同人、200 ページ (2015 年)

[その他]

ホームページ等

<http://www.atto.t.u-tokyo.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石川 顕一 (ISHIKAWA, Kenichi)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：70344025

(2) 研究分担者

佐藤 健 (SATO, Takeshi)
東京大学・大学院工学系研究科・特任講師
研究者番号：30507091