

# 研究報告書

## 「高強度レーザーによる超高分解能4次元時空イメージング」

研究期間：平成20年10月～平成23年3月

研究者：森下 亨

### 1. 研究のねらい

X線回折や電子顕微鏡の実用化によって、原子サイズの分解能で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。高強度レーザー発生装置、および光や荷電粒子の測定技術の進歩によって、超高速現象の研究の対象は、今や数フェムト秒からアト秒領域に突入した。そこで本研究では、テーブルトップで得られる高強度近赤外レーザーパルスを用いた原子・分子の新しい超高分解能実時間イメージングのための理論および計算手法の開発を行った。

レーザーにより誘起されるイオン化電子の再衝突過程を利用して、空間的には原子サイズ(オングストローム)、時間的には分子内電子の軌道周期(アト秒)程度の超高分解能を与えるイメージング法の開発を目標とした。そして、電子状態まで含めた原子レベルでの物質の状態遷移の研究という新しい分野の開拓をすると共に、光と物質の相互作用についての深い理解を目指して研究を進めた。

### 2. 研究成果

本研究では、4つのサブテーマ「A. シュレーディンガー方程式の直接解による分析」、「B. 簡便な分析手法の開発」、「C. 物質構造の再構築アルゴリズム」、「D. 高強度レーザーによる量子ダイナミクス」を柱として、超高分解能イメージング法のアルゴリズムの完成を目指して研究を推進した。以下に各サブテーマに関する研究成果を報告する。

#### 「A. シュレーディンガー方程式の直接解による分析」

厳密計算に基づく時間依存シュレーディンガー方程式の直接解によって、イメージングの基本原則となる再衝突過程における「分離公式」を見出し、その妥当性を示した。以下にこの分離公式について簡単に説明する。

高強度レーザーを原子や分子に照射すると、レーザーの電場成分がピークとなる時刻(図1(a)のX)では、電子と残留イオン核とのクーロンポテンシャルがレーザー電場によって大きく歪められ、ポテンシャル障壁を貫いてトンネルイオン化する。トンネルイオン化した電子は、レーザー電場によって偏光方向(図1(b)の右方向)に加速される。そして電場の符号の反転に伴って元の残留イオンに戻ってきて、再び衝突する。この際、弾性散乱の後方散乱成分が高エネルギー超関イオン化電子として、また、電子が残留イオンと結合して衝突エネルギーを光に変換したものが高次高調波発生として観測される。本研究でのイメージングでは、こうした超関イオ

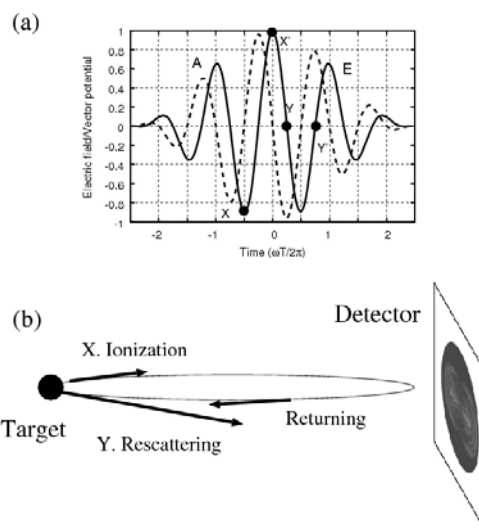


図1 (a) 実線は、5サイクル赤外レーザーパルスの電場(E)。破線は、ベクトルポテンシャル(A)。(b) 再衝突過程の後方散乱成分による分子の超高速イメージングの概念図。

ン化や高次高調波発生といった再衝突過程による実験データから原子分子の構造を抽出する。高エネルギー超閾イオン化の場合、イオン化した電子の運動量スペクトル  $S$  が、物質固有の物理量である標的イオンによる自由電子の弾性散乱微分断面積  $\sigma$  を使って

$$S = \sigma W$$

と表せることを、厳密数値計算により示した。上の分離公式において、 $W$  は再衝突電子波束の運動量分布であり、強度やパルス幅等のレーザーのパラメーターにのみ依存する量であり、標的物質の微細な構造に依存しない。ここで重要なことは、超閾イオン化という強い非線形を示す複雑な過程が、物質固有の物理量である散乱微分断面積  $\sigma$  と、レーザーのパラメーターにのみ依存する再衝突電子波束  $W$  の積の形に分離できるということである。最衝突電子波束の運動量分布は物質に依存しないので、参照物質を使った既知のデータから一旦求めておけば、未知の物質についての実験スペクトル  $S$  から分離公式を使って散乱断面積  $\sigma$  を求めることが容易である。さらに散乱逆問題を解くことによって、断面積から標的物質の電荷分布といった情報を抽出することが可能となるのである。

これまでに開発した時間依存シュレーディンガー方程式の厳密計算プログラムを高速化し、得られた高精度の数値計算結果に基づいて分離公式の妥当性や適用範囲等の詳細について検討した。分離公式中の再衝突電子波束を分析することによって、数サイクルの高強度レーザーパルスの絶対測定が高精度で可能であることを示した。さらに、超閾イオン化だけでなく、高次高調波発生過程といった他の再衝突電子による非線形過程についても同様の分離公式で表すことができることを示した。厳密数値計算結果に基づいた研究に加えて、国内外の実験研究者と協力して、分離公式に基づいて断面積が高精度で抽出できることを実験的に検証した。これらの結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。

### 「B. 物質構造の再構築アルゴリズム」

分離公式に基づいて実験データから抽出された微分散乱断面積から、電荷分布等の物質構造を得るためのアルゴリズムの開発を行った。通常の散乱問題では、まず電荷分布、すなわち入射電子に対するポテンシャルの空間分布が与えられ、それに対する散乱微分断面積を求める。一方、イメージングを行うためには、散乱微分断面積からポテンシャルを求めるという、量子力学的逆散乱問題を解くことになる。本研究では、原子の電荷の空間分布を複数のパラメーターを使って表し、実験結果を最もよく再現する電荷分布パラメーターをフィッティングによって求めるというアルゴリズムを開発した。

電荷分布のパラメーターにはトーマス・フェルミ模型に基づくものを使用し、最良パラメーターの検索には遺伝アルゴリズムおよびパウル法を使用し、そのための高速計算コードを開発した。希ガス原子について、既存

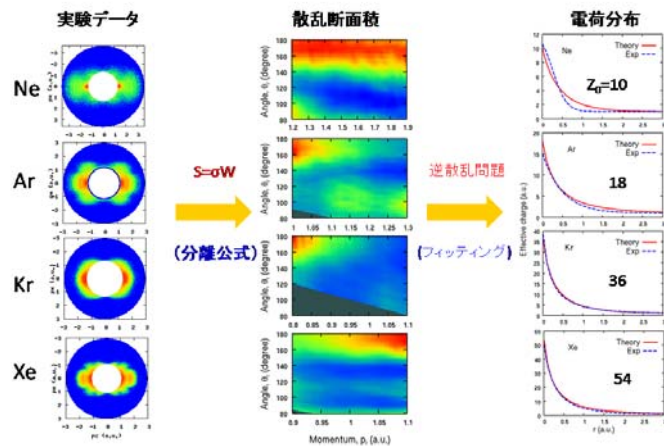


図2 (左) 高強度レーザーによる光電子スペクトルの実験データ、(中) 実験データより抽出した散乱部分断面積、(右) 実験データより抽出した希ガス原子の電荷分布と理論値の比

の電荷分布のパラメーターをフィッティングによって求めるというアルゴリズムを開発した。

の高強度レーザーによる光電子スペクトルの実験データから、実際に電荷分布を高い精度で決定できることを示した(図2)。これらの結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。現在、2原子分子についてのアルゴリズムの拡張と、計算コードの高速化を進めており、近く学術論文として発表の予定である。

### 「C. 簡便な計算手法の開発」

時間依存シュレーディンガー方程式の厳密数値計算は、高強度レーザー場中での原子・分子の振る舞いについて様々な知見を与える強力な理論研究手法である。しかし、扱う粒子数が増える等、系が複雑になると計算時間が莫大なものとなる。また、少しだけ入力パラメータを変えただけでも、繰り返し同様の長時間計算が必要となるため、適用範囲が限られている。物理現象をより深く理解するためには、厳密数値計算に加え、適切な問題設定に基づいた理論体系を構築する必要がある。

従来より高強度レーザー場中の原子・分子ダイナミクスの解析には、原子・分子内の電子と核とのクーロン相互作用がレーザー場との相互作用に比べて小さいとした、強光子場近似が使用されてきた。強光子場近似は、高次高調波スペクトルや高エネルギー超閾イオン化スペクトルに現れる、プラトー領域やカットオフ次数といった大まかな構造を説明するが、観測量の絶対値が100倍以上も異なるといった定量的な議論には問題点が多いことが知られている。また、レーザー強度が高いとした理論であるにもかかわらず、超障壁イオン化等といった高強度レーザーに対する物質の反応については定性的にも誤った結果を与える場合が多く、近似の適用範囲に不明な点が残る。そこで本研究では、外場であるレーザー電場の周期(数フェムト秒)が、原子・分子内の電子の運動の時間スケール(数十アト秒)にくらべて十分に長いという事実に基づいた、「断熱理論」という新しい理論体系の構築を進めた。

断熱理論では、電子の運動時間スケールとレーザー周期の比  $\varepsilon$  を定義し、 $\varepsilon \rightarrow 0$  の漸近展開によって時間依存シュレーディンガー方程式の解を記述する。 $\varepsilon \rightarrow 0$  の極限で断熱理論の結果は厳密解に一致し、有限の場合でも非常に精度の高い近似値を与える。まず1次元系の模型によって理論体系の詳細を吟味した。そして、高強度レーザーの研究に頻繁に使用されるチタンサファイアの800nm(周期2.6フェムト秒)のレーザーパルスの場合でも、厳密計算結果に絶対値を含めて非常によく一致することを確認した(図3)。また、断熱理論に基づいて、本研究の基本原理解である分離公式が、シュレーディンガー方程式から自然な形で得られることを数学的に証明することに成功した。さらに、再衝突電子波束について、トンネルイオン化および振動レーザー場中の電子波束の伝播といった詳細な構造について明らかにした。現在、実在の3次元系についての計算コードの開発と計算結果の解析を進めている。

断熱理論において、電子の量子力学的状態は、ゆっくりと振動するレーザー電場に追従して変化し、静電場中での時間に依存しない静的なシュレーディンガー方程式の解によって記述される。静電場が弱い場合、これはシュタルク効果としてよく知られているように摂動論によって近似されるが、本研究で取り扱う強電場の場合、摂動論を超えた新しい理論を構築する必要がある。そこで、シーガート境界条件という数学的に無矛盾の境界条件を導入することによって、強い静電場によってイオン化される原子・分子の完全な定式化と高精度の計算

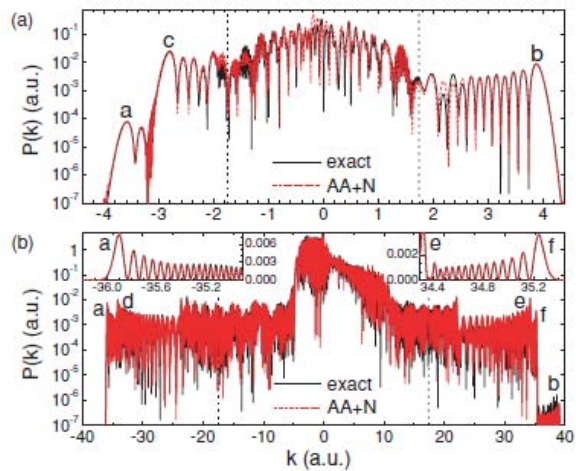


図3 高強度レーザーパルスによる光電子スペクトルの計算。断熱理論による近似計算と厳密計算との比較。

手法を開発した。そして、原子・分子のイオン化運動量分布の静電場ベクトルに対する垂直成分 (Transverse Momentum Distribution) という、今までにない新しい観測量の定式化を行い、その実験的観測法を提案した。これらの結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。

#### 「D. 量子ダイナミクス」

水素原子以外の原子・分子は、複数の電子を含む量子多体系であるが、上述の研究では、こうした多電子のうち、最外殻の1電子にのみ着目し、残りの電子による影響は平均化して有効電荷として取り扱った。しかしながら、さきがけ研究を開始したころより、最外殻以外の内殻の電子による再衝突過程や、再衝突電子が親イオン中の別の電子をイオン化する非逐次2電子イオン化の詳細な結果等、多様な研究結果が報告された。そこで、2009年夏に、強レーザーによる多電子ダイナミクスの研究を新たなサブテーマとして加え、さきがけ研究の更なる発展を目指した。まず、高強度レーザー場中の多電子ダイナミクスの基本的な理解のため、レーザー偏光方向にのみ運動する2電子系をとりあげ、高強度紫外線アト秒超短パルスの多光子吸収による2電子イオン化の理論的研究を行った。2つの電子が同一の方向にイオン化される場合、後からイオン化した電子が、先にイオン化した電子に追いついて衝突するという、新現象を見出した。こうした結果を国際会議招待講演および学術論文として発表した。今後は得られた知見をもとに、多電子遷移過程を利用したイメージング法の開発を進めていく予定である。

### 3. 今後の展開

高強度レーザーによって誘起される再衝突電子を利用した原子・分子のイメージング法の骨格がほぼ完成したといえる。今後は、イメージング法の更なる精密化や適用範囲の拡大といった展開を目指す。本研究は実験研究に即した理論研究であり、研究推進のためには最先端の実験技術情報の獲得および他の研究者との議論が欠かせない。総括の伊藤先生をはじめ、アドバイザーの先生方からのご助言、領域の研究者の方々との議論そして、JSTの様々なサポートによって、さきがけ研究を大いに加速させ、また広がりを持つことができた。最終年度の夏には「アト秒アト秒量子ダイナミクスの理論の関する滞在型国際ワークショップ」を開催し、高強度レーザー科学で活躍する国内外の気鋭の理論研究者とともに今後の展開を含めて議論した。さらに、夏以降は高強度レーザー科学の実験および理論的研究で世界的水準であるカンザス州立大学に滞在し、さきがけ研究のまとめを行うとともに、他の研究者とともに今後の研究協力を見据えた長期的な視点に基づく議論を行った。今後、こうした国内外の研究者交流によって得られたネットワークを生かして研究を展開していきたい。

### 4. 自己評価

高強度レーザーによって誘起される再衝突電子を利用した超高分解能イメージングについて、厳密数値計算、解析的理論、実験的研究といった観点から多面的に研究を進めた。そして、「再衝突電子分光法」ともいべき新しい分野を切り開くことができ、当初の研究目標をほぼ達成できたといえる。本研究期間中に実施できなかったものとしては、再衝突過程の最中に引き起こされる分子内部構造の変化に関する詳細な分析がある。これについては、分子内の複数の原子核と電子の複雑な運動の精確な記述が必要であり、「D. 量子ダイナミクス」のサブテーマで得られた知見を発展させることによって、達成させていくつもりである。一方、「C. 簡便な計算手法の開発」での断熱理論においては、静電場中の原子・分子についての量子力学的に完全な記述という、計画当初は予期していなかった結果を得ることができた。これは原子・分子物理学の教科書の新たな章に加えることができるほどの基礎物理学における貴重な成果であると自己評価している。

### 5. 研究総括の見解

原子・分子の新しい超高分解能実時間イメージングのための理論および計算手法の開発