

## 目次

1	序論	2
2	理論	3
2.1	電子再散乱、電子運動の古典近似	4
2.2	Caustic	5
2.3	CO <sup>+</sup> の電子励起微分断面積	7
2.4	計算手法	10
3	結果	11
3.1	直線偏光レーザーによる CO <sup>+</sup> 分子の非弾性再衝突	11
3.2	楕円偏光レーザーによる CO <sup>+</sup> 分子の非弾性再衝突	14
4	謝辞	17

## 1 序論

近年のレーザー技術の発展は、レーザー場中の原子・分子ダイナミクスの実験においてより高強度のレーザーを用いることを可能し、強レーザー場中の原子・分子の物理現象が注目されている。

強レーザー場中の分子のトンネルイオン化によって放出された電子は、レーザー場により加速されイオンコアに戻り電子再衝突を起こす。衝突後に観測される電子の最終的な運動量は古典力学からイオン化時刻と散乱角によって決まるが、最終的な運動量が同一となるイオン化時刻は二つ存在しそれぞれ長短の軌道を描きながら再衝突を引き起こす。ある散乱角に対してイオン化時刻を変化させていくと、長短の軌道が重なる点が存在する。この時の最終運動量は散乱角で決まり、この最終運動量の集合を Caustic と呼ぶ [1]。

原子・分子に高強度レーザーを照射した際、Caustic 付近の弾性散乱による光電子運動量スペクトル  $S(p)$  について以下の式が成り立つことが知られている [2]。

$$S(p) = \sigma(p_r, \theta_r) W(p_r) \quad (1)$$

ここで、 $\sigma(p_r, \theta_r)$  は弾性散乱断面積、 $W(p_r)$  は再衝突電子波束、 $p_r, \theta_r$  はそれぞれ再衝突電子の運動量の大きさおよび散乱角であり  $p$  は衝突後観測される電子の運動量の大きさである。これは、弾性散乱における光電子運動量スペクトルが、ターゲット原子・分子に依存する量である微分断面積と照射レーザーに依存する量である再衝突電子波束の積で表せることを示している。これにより、実験で得られた光電子運動量スペクトルから分子の構造情報を持つ微分断面積を抽出し、分子の超高速イメージングを行う方法が期待されている [3]。この手法はレーザー誘起電子回折として知られている [4]。

これまでの研究では弾性散乱について注目されていたが、最近では非弾性散乱についての研究も行われるようになった。例えば直線偏光レーザーにおける分子イオン化の振動励起を伴う再衝突について、光電子運動量分布の理論的解析が進んでいる [5]。

本論文では直線および楕円偏光レーザーにおける分子の電子励起を伴う非弾性再衝突過程について、Caustic 付近の光電子運動量分布の振る舞いを調べた。直線偏光レーザー、楕円偏光レーザーのそれぞれについて電子の古典運動を考え、非弾性散乱における Caustic を計算した。ターゲット分子として、異核二原子分子である CO 分子を考えた。トンネルイオン化後、再衝突によって  $\pi$  軌道が励起する非弾性散乱断面積を計算した Caustic で切り出し、解析を行った。

また、直線偏光レーザーにおける分子の電子励起を伴う非弾性再衝突の散乱断面積と、実験により得られた光電子運動量分布との比較解析を行った。

## 2 理論

本論文では、直線偏光レーザーによる再衝突と楕円偏光レーザーによる再衝突を扱う。直線偏光レーザーのレーザー電場  $F(t)$  および直線偏光レーザーのレーザー電場  $F(t)$  をそれぞれ以下のようにした。

$$F(t) = F_0 \cos \omega t \exp \left[ - \left( \frac{2t}{T} \right)^2 \right] \quad (2)$$

$$\mathbf{F}(t) = F_0 \exp \left[ - \left( \frac{2t}{T} \right)^2 \right] \left( \frac{1}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \cos(\omega t) \mathbf{e}_z + \frac{\epsilon}{\sqrt{1 + \epsilon^2}} \sin(\omega t) \mathbf{e}_x \right) \quad (3)$$

ここで  $F_0$  はレーザー振幅、 $T$  は周期、 $\omega = 2\pi\lambda = \frac{2\pi N}{T}$  は角周波数、 $\epsilon$  は楕円率、 $\mathbf{e}_z, \mathbf{e}_x$  はそれぞれ実験室座標の  $z$  軸,  $x$  軸に沿う単位ベクトルである。

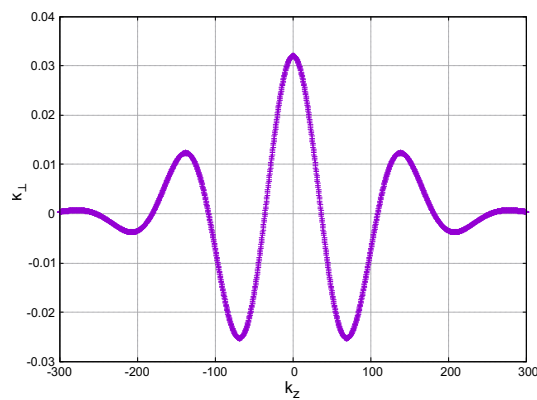


図1 直線偏光レーザー ( $F_0 = 0.032[\text{a.u.}]$ ,  $N = 2$ ,  $\lambda = 1050[\text{nm}]$ )

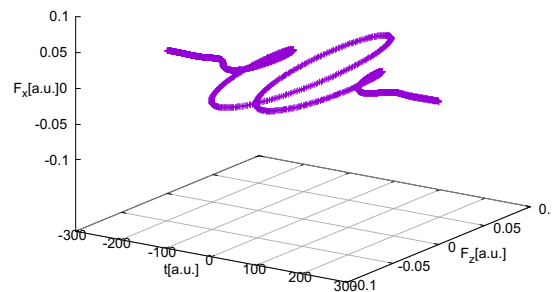


図2 楕円偏光レーザー ( $F_0 = 0.1[\text{a.u.}]$ ,  $N = 2$ ,  $\lambda = 750[\text{nm}]$ ,  $\epsilon = 0.3$ )

## 2.1 電子再散乱、電子運動の古典近似

強レーザー場中の分子のトンネルイオン化によって放出された電子は、レーザー場により加速されイオンコアに戻り電子再衝突を起こす。時刻  $t_i$  にイオン化した分子から放出された電子の運動は古典運動に近似でき、レーザー電場から加速を受ける運動方程式が成り立つ。直線偏光レーザー照射によるトンネルイオン化では、レーザーに平行な電子の運動量  $u$ 、位置  $q$ 、レーザー電場  $F(t)$  を用いて以下の式となる。

$$\begin{cases} \frac{dq}{dt} = u \\ \frac{du}{dt} = -F(t) \end{cases} \quad (4)$$

また、この連立方程式は以下の初期条件を満たす。

$$\begin{aligned} q(t = t_i) &= 0 \\ u(t_i) &= 0 \end{aligned} \quad (5)$$

このように直線偏光レーザーでは、電子はレーザーの振幅軸にのみ加速を受けるため、一次元の運動として計算できる。

レーザーによって加速された電子が、ターゲット分子に衝突する再衝突時刻を  $t_r$  とする。 $q(t_r) = 0$  となることから、式 (4) の連立方程式を解くことで  $t_r$  を以下のように計算する。

$$0 = \int_{t_i}^{t_r} \int_{t_i}^{t'} F(t'') dt'' dt' \quad (6)$$

一方、楕円偏光レーザーによるイオン化で放出された電子は振幅に沿った二次元の平面内で加速される。 $z$  軸及び  $x$  軸方向に振動する楕円偏光レーザー電場においては、電子も  $z$  軸  $x$  軸方向に加速を受ける。電子の運動量  $\mathbf{u}$ 、位置  $\mathbf{q}$ 、レーザー電場  $\mathbf{F}(t)$  を用いて以下の式となる。

$$\begin{cases} \frac{d\mathbf{q}}{dt} = \mathbf{u} \\ \frac{d\mathbf{u}}{dt} = -\mathbf{F}(t) \end{cases} \quad (7)$$

また、この連立方程式は以下の初期条件を満たす。

$$\begin{aligned} \mathbf{q}(t_i) &= 0 \\ \mathbf{u}(t_i) &= \mathbf{u}_0 \\ \mathbf{u}_0 &\perp \mathbf{F}(t_i) \end{aligned} \quad (8)$$

楕円偏光レーザーでは、イオン化した電子がレーザー電場に垂直な初期運動量  $\mathbf{u}_0$  を持つことを考慮する。

再衝突時刻  $t_r$  において  $\mathbf{q}(t_r) = 0$  となることから、式 (7) の連立方程式を解くと初期運動量  $\mathbf{u}_0$  について以下が成り立つ。

$$\mathbf{u}_0 = \frac{1}{t_r - t_i} \int_{t_i}^{t_r} \int_{t_i}^{t'} \mathbf{F}(t'') dt'' dt' \quad (9)$$

連立方程式の初期条件から、 $\mathbf{u}_0$  は  $\mathbf{F}(t_i)$  に垂直であるため再衝突時刻  $t_r$  について以下の方程式が成り立つ。

$$0 = \mathbf{F}(t_i) \cdot \frac{1}{t_r - t_i} \int_{t_i}^{t_r} \int_{t_i}^{t'} \mathbf{F}(t'') dt'' dt' \quad (10)$$

この式から、楕円偏光レーザーにおける再衝突時刻  $t_r$  を計算した。

## 2.2 Caustic

式 (6),(10) を用いて、イオン化時刻  $t_i$  で放出された電子の再衝突時刻  $t_r$  を求めることができる。衝突直後、運動量  $\mathbf{u}_f$  で散乱した電子はその後もレーザーによって加速され、最終的に運動量  $\mathbf{k}$  を持って観測される。

この最終運動量  $\mathbf{k}$  は  $z$  軸に振動する直線偏光レーザーでは

$$\mathbf{k} = \mathbf{u}_f + \int_{t_r}^{\infty} F(t) dt \mathbf{e}_z \quad (11)$$

となり、楕円偏光レーザーでは

$$\mathbf{k} = \mathbf{u}_f + \int_{t_r}^{\infty} \mathbf{F}(t) dt \quad (12)$$

で求められる。

レーザー半サイクル中において、同一の最終運動量  $\mathbf{k}$  をとる  $t_i$  は二つ存在する。そのため、最終的な運動量が等しくなる電子の運動について長い軌道 (long trajectory) と短い軌道 (short trajectory) の二つの軌道が現れる。しかし、レーザー半サイクル中に取れる  $\mathbf{k}$  の中で、この二つの軌道が重なる  $\mathbf{k}$  が存在する。衝突直後の運動量  $\mathbf{u}_f$  は衝突後の電子の散乱方向によって異なるため二つの軌道が重なる  $\mathbf{k}$  も散乱方向毎に存在し、この最終運動量  $\mathbf{k}$  の集合を Caustic と呼ぶ。(refcaustic)

$\mathbf{k}$  が Caustic 上になるような  $t_i$  を考える。再衝突直前の運動量  $\mathbf{u}_i$ 、衝突直後の運動量  $\mathbf{u}_f$  および分子の励起エネルギー  $\Delta E$  を用いると、衝突前後のエネルギー変化は以下のように表せる。

$$\frac{1}{2} \mathbf{u}_i^2 = \frac{1}{2} \mathbf{u}_f^2 + \Delta E \quad (13)$$

これらの両辺を  $t_r$  で微分する。

$$\mathbf{u}_i \cdot \frac{\partial}{\partial t_r} \mathbf{u}_i = \mathbf{u}_f \cdot \frac{\partial}{\partial t_r} \mathbf{u}_f \quad (14)$$

ここで、 $\mathbf{u}_i$  は  $t_i$  および  $t_r$ 、また式 (4),(7) の運動方程式から、直線偏光レーザーと楕円偏光レーザーでそれぞれ以下のように表せる。

$$\mathbf{u}_i = \int_{t_i}^{t_r} F(t) dt \mathbf{e}_z \quad (15)$$

$$\mathbf{u}_i = \int_{t_i}^{t_r} \mathbf{F}(t) dt + \mathbf{u}_0 \quad (16)$$

$\mathbf{k}$  が Caustic 上になる場合、 $\mathbf{k}$  は以下の条件を満たす。

$$\frac{\partial}{\partial t_r} \mathbf{k} = 0 \quad (17)$$

直線偏光レーザーでの衝突前後の運動量  $\mathbf{u}_i, \mathbf{u}_f$  に関する式 (15)(11) から、式 (14) は以下のようになる。

$$u_i \left[ -F(t_r) - \frac{u_i}{t_r - t_i} \right] - u_f \left[ \frac{\partial k}{\partial t_r} - F(t_r) \right] = 0 \quad (18)$$

ここで、直線偏光レーザーにおける  $\mathbf{u}_i, \mathbf{u}_f, \mathbf{k}$  のうちレーザーの振動方向である  $z$  軸方向の成分をそれぞれ  $u_i, u_f, k$  とした。式 (17) の条件式を用いて整理することで直線偏光レーザーにおける Caustic の条件式が得られ

$$(u_f - u_i) F(t_r) - \frac{u_i^2}{t_r - t_i} = 0 \quad (19)$$

となる。

一方、楕円偏光レーザーにおける Caustic の条件式は  $\mathbf{u}_i, \mathbf{u}_f$  の式 (16)(12) および式 (14) から以下のようになる。

$$(\mathbf{u}_f - \mathbf{u}_i) \cdot \mathbf{F}(t_r) - \frac{u_i^2}{t_r - t_i} + \frac{\mathbf{u}_0 \cdot \mathbf{u}_f}{t_r - t_i} \frac{\partial t_i}{\partial t_r} = 0 \quad (20)$$

ここで  $\partial t_i / \partial t_r$  は運動方程式の条件から求めることができる。楕円偏光レーザーの振動方向を示す単位ベクトル  $\hat{\mathbf{F}}(t) = \mathbf{F}(t) / |\mathbf{F}(t)|$  を用いると、式 (8) より以下が成り立つ。

$$\hat{\mathbf{F}}(t) \cdot \mathbf{u}_0 = 0 \quad (21)$$

この両辺を  $t_r$  で微分すると以下のようになる。

$$\frac{\partial}{\partial t_r} \hat{\mathbf{F}}(t) \cdot \mathbf{u}_0 = 0 \quad (22)$$

よって、楕円偏光レーザーにおける  $\partial t_i / \partial t_r$  は以下のように得られる。

$$\frac{\partial t_i}{\partial t_r} = \frac{\hat{\mathbf{F}}(t_i) \cdot \mathbf{u}_f}{(t_r - t_i) \cdot \left[ \left\{ \frac{\partial}{\partial t_i} \hat{\mathbf{F}}(t_i) \right\} \cdot \mathbf{u}_0 - \hat{\mathbf{F}}(t_i) \cdot \mathbf{F}(t_i) \right]} \quad (23)$$

このように、最終運動量  $k$  が Caustic 上となるような  $t_i$  または  $t_f$  は直線偏光レーザー中の再衝突において式 (18) から求められ、楕円偏光レーザー中の再衝突において式 (20) 及び式 (23) によって求めることができる。

### 2.3 CO<sup>+</sup> の電子励起微分断面積

運動量  $\mathbf{u}_i$  で入射した電子によって、CO<sup>+</sup> 分子が電子配置  $\dots(1\pi)^4(3\sigma)^1$  の基底状態から電子配置  $\dots(1\pi)^3(3\sigma)^1(2\pi)^1$  の励起状態へと励起される再衝突過程を考える。

衝突後の電子の運動量  $\mathbf{u}_f$  の大きさは、衝突前後のエネルギー関係を表す式 (13) から以下のようになる。

$$|\mathbf{u}_f| = \sqrt{|\mathbf{u}_i|^2 - 2\Delta E} \quad (24)$$

レーザーの振動方向を基準とした実験室座標では、図 (3) のように  $\mathbf{u}_f$  は角度  $(\theta, \phi)$  の方向に散乱するとする。式 (15) または式 (16) より得られる  $\mathbf{u}_i$  から、 $\mathbf{u}_f$  は以下のようになる。

$$\mathbf{u}_f = |\mathbf{u}_f| \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \phi \\ \sin \theta \sin \phi \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (25)$$

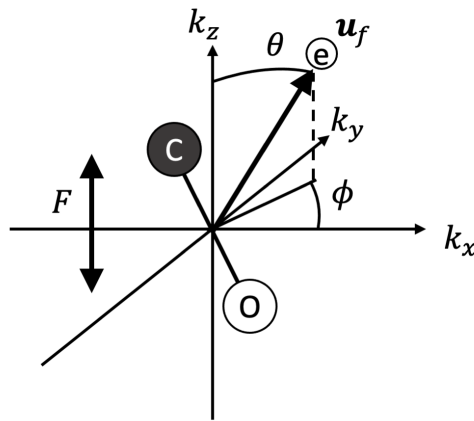


図3 レーザー振動を実験室座標における運動量空間  $(k_x, k_y, k_z)$  中の散乱電子の散乱方向  $(\theta, \phi)$

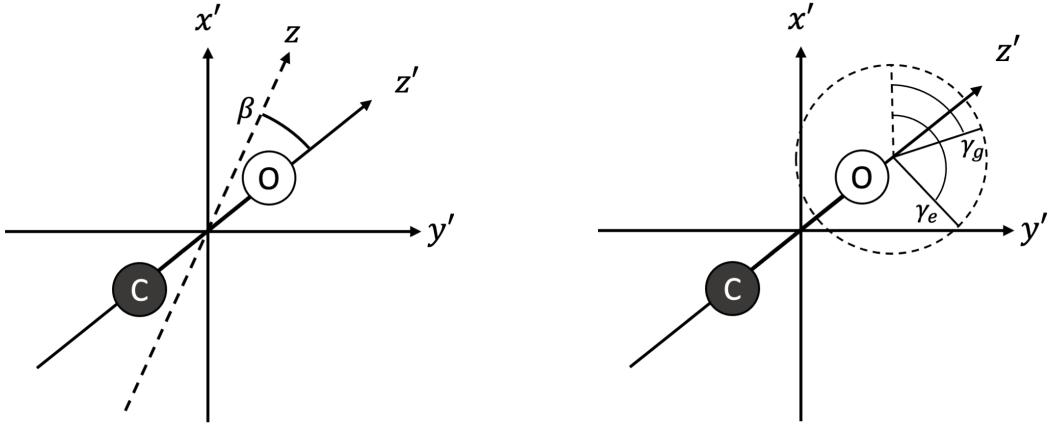


図4 分子軸を  $z'$  とした分子軸座標  $(x', y', z')$  および 図5 分子軸を  $z'$  とした分子軸座標から見た分子の基底状態の配向  $\gamma_g$  および励起状態の配向  $\gamma_e$   
 実験室座標の  $z$  軸、 $\text{CO}^+$  の配向  $\beta$

図(4)(5)のように、実験室座標系から見た基底状態の配向を  $(\beta, \gamma_g)$ 、励起状態の配向を  $(\beta, \gamma_e)$  とする。

$\gamma_g = \gamma_e = 0$  とする。実験室座標系からの配向が  $(\beta, 0)$  である基底状態を基準とした分子軸を基準とする分子軸座標系における入射前後の運動量を  $u'_i, u'_f$  とすると、 $u_i, u_f$  および実験室座標系から分子軸座標系の変換に対応する回転行列  $R$  を用いて以下のように表せる。

$$u'_i = R u_i, \quad u'_f = R u_f \quad (26)$$

ここで、配向  $(\beta, 0)$  に対応する回転行列  $R$  は以下ようになる。

$$R = \begin{pmatrix} \cos \beta & 0 & -\sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \beta & 0 & \cos \beta \end{pmatrix} \quad (27)$$

$\text{CO}^+$  分子の基底状態を  $g$ 、励起状態を  $e$  として  $g \rightarrow e$  の電子衝突励起を考える。この衝突におけるポテンシャル  $V_{eg}$  は  $\text{CO}^+$  分子の  $N$  個の電子の位置ベクトル  $r'_1, r'_2, \dots, r'_N$  および衝突前後の運動量移行  $K' = u'_f - u'_i$  を用いて以下のように表される。

$$V_{eg} = \int \dots \int \Psi_e(r'_1, \dots, r'_N) \sum_s \left( -\frac{1}{|r'_s - r_n|} \right) \Psi_g(r'_1, \dots, r'_N) dr'_1 \dots dr'_N \quad (28)$$

ここで基底状態と励起状態の波動関数をそれぞれ  $\Psi_g, \Psi_e$  とした。

ハートリー-フォックの方法を用いて、この分子内電子のうち、励起するひとつの電子のみに注

目して微分断面積の計算を簡略化する。この電子の位置ベクトルを  $\mathbf{r}'_n$ 、始状態と終状態の波動関数をそれぞれ  $\psi_g, \psi_e$  とし、式 (28) を以下のように簡略化した。

$$V'_{eg} = \int \psi_e(\mathbf{r}') \left( -\frac{1}{|\mathbf{r}' - \mathbf{r}'_n|} \right) \psi_g(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (29)$$

電子の散乱において、微分断面積はある一定の微小立体角  $d\Omega$  に散乱される電子の割合を示し、入射電子に対して散乱される電子の割合を示す全断面積  $\sigma$  はこれを全立体角で積分したものに当たる。この微分断面積を  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  と表す。

非弾性散乱における微分断面積  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  について以下が成り立つ。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{|\mathbf{u}'_f|}{|\mathbf{u}'_i|} |F(\hat{\mathbf{n}})|^2 \quad (30)$$

ここで、 $\hat{\mathbf{n}}$  は  $d\Omega$  に対応する散乱方向を示す単位ベクトルであり、 $F(\hat{\mathbf{n}})$  はこの衝突の散乱振幅である。 $|\mathbf{u}'_f| = |\mathbf{u}'_i|$  の場合、この式は弾性散乱の微分断面積に対応する。

1 次のボルン近似の下で、散乱振幅  $F(\hat{\mathbf{n}})$  は以下のように表す [6]。

$$F(\hat{\mathbf{n}}) = -\frac{1}{4\pi} \int \exp\{i(\mathbf{u}'_i - \mathbf{u}'_f) \cdot \mathbf{r}_n\} 2\mu V_{eg} d\mathbf{r}_n \quad (31)$$

ここで  $\mu$  は入射電子とターゲットである  $\text{CO}^+$  分子の間の換算質量であり、分子の質量が電子の質量に比べて十分大きいことから 1 に近似できるとする。

式 (29) のポテンシャルを式 (31) に代入し  $\mathbf{r}_n$  で積分する。これにより、電子の衝突による分子の軌道励起を伴う散乱振幅  $F(\mathbf{K}')$  を以下のように求められる。

$$F(\mathbf{K}') = -\frac{2}{|\mathbf{K}'|} \int \psi_g(\mathbf{r}') \psi_e(\mathbf{r}') e^{i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{r}'} d\mathbf{r}' \quad (32)$$

ここまで分子の配向が  $(\beta, 0)$  の場合を考えていたが、実際には分子軌道の基底状態と励起状態それぞれに分子軸周りの回転である  $\gamma_g, \gamma_e$  を考える必要がある。

配向  $(\beta, 0)$  の分子軸座標系を基準として、式 (32) の  $\psi_g$  は  $z'$  軸周りに  $\gamma_g$  回転し、 $\psi_e$  は  $\gamma_e$  回転する。このとき、回転に対応する波動関数をそれぞれ  $\psi_{g,\gamma_g}, \psi_{e,\gamma_e}$  とすると、式 (32) は以下のようになる。

$$F(\mathbf{K}') = -\frac{2}{|\mathbf{K}'|} \int \psi_{g,\gamma_g}(\mathbf{r}') \psi_{e,\gamma_e}(\mathbf{r}') e^{i\mathbf{K}' \cdot \mathbf{r}'} d\mathbf{r}' \quad (33)$$

この式を用いて、 $\text{CO}^+$  分子の電子再衝突による軌道励起に対応する非弾性散乱の微分断面積を計算した。

## 2.4 計算手法

Caustic の計算において、シンプソン則による積分およびニュートン法による方程式の数値計算を利用した。

シンプソン則について、以下の定積分を考える。

$$G = \int_a^b f(x)dx \quad (34)$$

これを十分小さい偶数個の区間に区切り、それぞれの区間を二次関数に近似する。区間の数を  $2n$  とすると区間毎の幅  $h = \frac{b-a}{2n}$  を用いて以下が成り立つ。

$$g_i = \int_{x_i}^{x_i+2h} f(x)dx = \frac{h}{3} [f(x_i) + 4f(x_i+h) + f(x_i+2h)] \quad (x_0 = a, x_{i+1} = x_i + 2h) \quad (35)$$

ここで  $i$  は  $0 \leq i \leq n$  をみたす全ての整数である。

これを拡張することで式 (34) の定積分は以下で計算することができる。

$$G = \sum_{i=0}^n g_i = \frac{h}{3} [f(x_0) + 4f(x_0+h) + 2f(x_1) + 4f(x_1+h) + \cdots + 4f(x_{n-1}+h) + f(x_n)] \quad (36)$$

次に、以下の方程式の数値計算を考える。

$$Q(x) = 0 \quad (37)$$

ニュートン法ではまず、式 (37) の解に十分近い暫定解  $x_0$  を定める。この暫定解に対して、以下の漸化式を繰り返し計算することで暫定解を解析解に近づける。

$$x_{n+1} = x_n - \frac{Q(x)}{Q'(x)} \quad (38)$$

ここで、 $Q'(x)$  は  $Q(x)$  の一階微分であり差分法を用いて計算した。

これを繰り返し計算し、許容誤差  $\xi$  に対して  $Q(x_n) \leq \xi$  が成り立ったとき、この  $x_n$  を式 (37) の解とした。

本研究では、式 (18),(20) についてこの方法を用いることで Caustic の計算を行った。

また、断面積の計算について、基底状態と励起状態に対応する軌道はどちらも  $\text{CO}^+$  分子の  $\pi$  軌道であり、以下のようにガウス関数で展開されたものを用いた。

$$\psi_{\text{CO}}(\mathbf{r}') = \psi_{\text{C}} + \psi_{\text{O}} \quad (39)$$

$$\psi_C = \sum_j [A_{C,j} \exp[B_{C,j}\{x'^2 + y'^2 + z'^2\}]y'] + A_{C,l} \exp[B_{C,l}\{x'^2 + y'^2 + z'^2\}]y'z' \quad (40)$$

$$\psi_O = \sum_j [A_{O,j} \exp[B_{O,j}\{x'^2 + y'^2 + (z' - z_o)^2\}]y] + A_{O,l} \exp[B_{O,l}\{x'^2 + y'^2 + (z' - z_o)^2\}]y'(z' - z_o) \quad (41)$$

ここで  $z_o$  は C と O の核間距離である。

この式の係数を変化させることで、 $\psi_g, \psi_e$  をそれぞれ表した。なお、 $\psi_{CO}$  を  $z'$  軸まわりに  $\gamma$  回転させた波動関数  $\psi_{CO,\gamma}$  については対応する座標  $\mathbf{r}''$  を用いて

$$\mathbf{r}'' = \begin{pmatrix} x' \cos \gamma - y' \sin \gamma \\ x' \sin \gamma + y' \cos \gamma \\ z' \end{pmatrix} \quad (42)$$

$$\psi_{CO,\gamma}(\mathbf{r}') = \psi_{CO}(\mathbf{r}'') \quad (43)$$

が成り立つ。これを用いて、 $\psi_{g,\gamma_g}, \psi_{e,\gamma_e}$  を計算した。

### 3 結果

CO<sup>+</sup> 分子の電子再衝突による軌道励起に対応する非弾性散乱過程について、Caustic 上の微分断面積を直線偏光レーザー入射と楕円偏光レーザー入射の二つの条件で計算した。電子配置  $\dots(1\pi)^4(3\sigma)^1$  の基底状態から電子配置  $\dots(1\pi)^3(3\sigma)^1(2\pi)^1$  の励起状態への励起に対応する励起エネルギーは  $\Delta = 10[\text{eV}]$  とした。

#### 3.1 直線偏光レーザーによる CO<sup>+</sup> 分子の非弾性再衝突

初めに式 (18) を用いて直線偏光レーザーにおける Caustic を計算した。レーザー電場は式 (2) で表され、各パラメータは以下のように設定した。

表 1 直線偏光レーザーにおける Caustic の計算に用いた値

$F_0[\text{a.u.}]$	$N$	$\lambda[\text{a.u.}]$
0.032	2	1050

図 (6) に計算した Caustic を示す。Caustic 上の各点は電子の散乱方向  $(\theta, \phi)$  によって定まる。

$\phi$  を固定して  $\theta$  を変化させることで Caustic は運動量空間上の曲線としてプロットできる。 $\phi = 0^\circ, 180^\circ$  の場合、最終運動量  $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$  のうち  $k_y = 0$  となるのでこのときの Caustic を  $k_z, k_x$  平面上でプロットした。

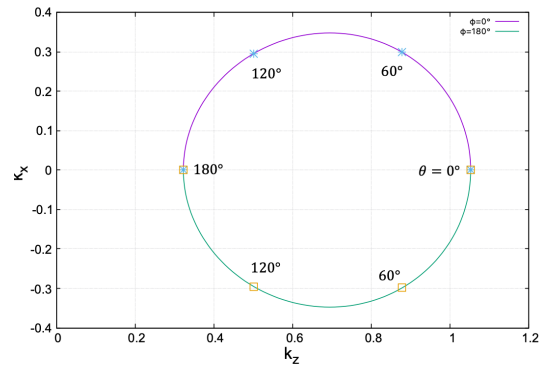


図6 直線偏光レーザーによる非弾性再衝突 Caustic,  $\phi = 0^\circ$  (紫),  $\phi = 180^\circ$  (緑)

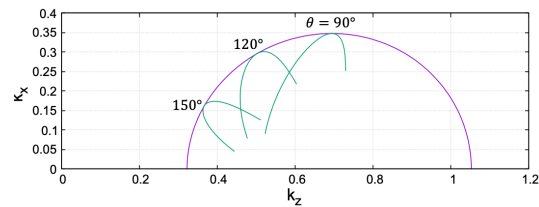


図7 直線偏光レーザーによる非弾性再衝突 Caustic ( $\phi = 0^\circ$ , 紫) および  $\theta = 90^\circ, 120^\circ, 150^\circ$  での最終運動量 ( $-70 \leq t_i \leq -63$ , 緑)

図(6)より、 $\phi = 0^\circ, 180^\circ$  の Caustic を比較すると、 $k_z$  軸対称になっていることが見て取れる。これは、直線偏光レーザー中の電子が  $z$  軸方向のみの加速を受けるためであり、直線偏光レーザーでの再衝突における Caustic はレーザー振動軸を回転軸とした軸対称となる。

図(7)では、 $\phi = 0$  の Caustic と、 $\phi = 0, \theta = 90^\circ, 120^\circ, 150^\circ$  での最終運動量のイオン化時刻  $t_i$  による変化をプロットした。図を見ると、 $\theta$  の異なる最終運動量の曲線同士で交点が存在していることがわかる。これは、交点となる点が、同一の最終運動量となる異なる  $\theta, t_i$  の組み合わせが二つ存在する点であることを示している。

一方、Caustic はある  $\phi, \theta$  において  $t_i$  を変化させた最終運動量の曲線全ての包絡線となるようにプロットされている。Caustic 上の最終運動量は、図の最終運動量の曲線同士の交点とならないため、ただ一つの  $\theta, t_i$  の組み合わせからなる点であることがわかる。

また、 $\text{CO}^+$  分子の電子軌道励起に対応する非弾性微分断面積について Caustic 上の微分断面積を計算し図(8)に示した。

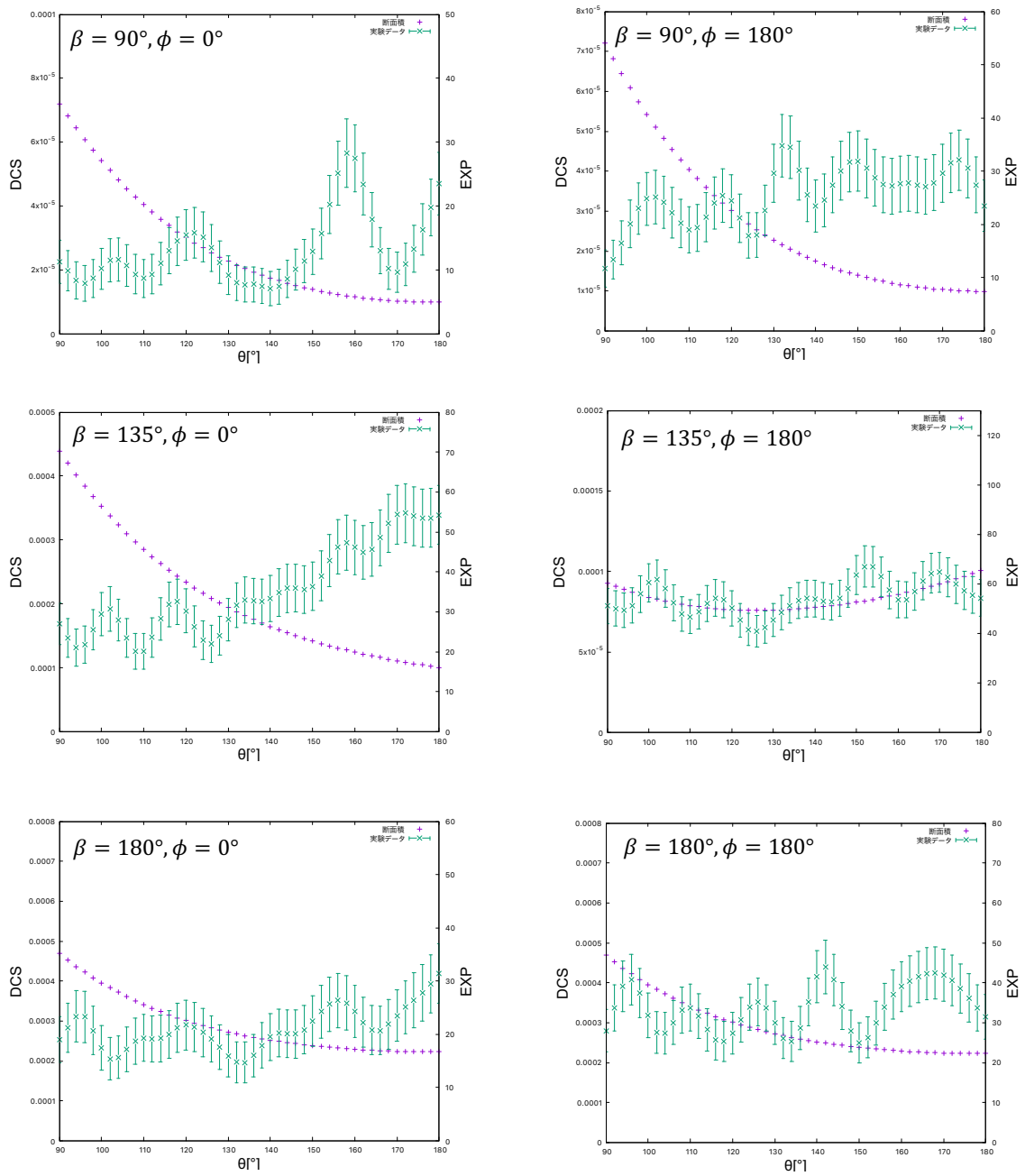


図8 直線偏光レーザーによる非弾性再衝突過程における Caustic 上の微分断面積と光電子運動量分布の実験データ

式 (30)(33) より、微分断面積は  $\mathbf{u}'_i, \mathbf{u}'_f, \gamma_g, \gamma_e$  からなるが、 $\mathbf{u}_i$  はイオン化時刻  $t_i$  でイオン化しレーザー電場により加速された電子の運動から計算でき、分子の配向  $\beta$  によって分子軸座標に座標変換できる。 $\mathbf{u}'_f$  は  $\mathbf{u}'_i$  と散乱方向、励起エネルギー  $\Delta E = 10[\text{eV}]$  で決まる。よって微分断面積は  $t_i, \theta, \phi, \beta, \gamma_g, \gamma_e$  で決定される。

本論文では、分子軸周りの配向  $\gamma_g, \gamma_e$  で平均した微分断面積を計算した。つまり以下の  $DCS(t_i, \theta, \phi, \beta)$  を計算した。

$$DCS(t_i, \theta, \phi, \beta) = \int 2\pi_0 \int 2\pi_0 \frac{d\sigma}{d\Omega}(t_i, \theta, \phi, \beta, \gamma_g, \gamma_e) d\gamma_g d\gamma_e \quad (44)$$

なお、Caustic 上の微分断面積を計算する場合、 $\theta, \phi$  によって  $t_i$  が決定されることに注意する。

また、 $\text{CO}^+$  分子の電子再衝突による電子配置  $\dots(1\pi)^4(3\sigma)^1$  の基底状態から電子配置  $\dots(1\pi)^3(3\sigma)^1(2\pi)^1$  の励起状態への励起による光電子運動量分布の実験データを名古屋大学光物理化学研究室の菱川先生、安井氏より頂いた。このうち、計算した微分断面積に対応する Caustic 上の光電子運動量分布についても、図 (8) に同時に示した。

### 3.2 楕円偏光レーザーによる $\text{CO}^+$ 分子の非弾性再衝突

次に式 (20) を用いて楕円偏光レーザーにおける Caustic を計算した。レーザー電場は式 (3) で表され、各パラメータは以下のように設定した。

表 2 楕円偏光レーザーにおける Caustic の計算に用いた値

$F_0[\text{a.u.}]$	$N$	$\lambda[\text{a.u.}]$
0.1	2	750

図 (9)(10)(11) に楕円偏光レーザーにおける  $\epsilon = 0.1, 0.3, 0.5$  での後方散乱 ( $90^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$ ) Caustic を示す。Caustic の外周は  $\theta = 90^\circ$  を示し、中心が  $\theta = 180^\circ$  を示している。

式 (3) のレーザーは  $\epsilon = 0$  で  $z$  軸方向に振動する直線偏光レーザーとなる。また、直線偏光レーザーにおける Caustic は振動軸周りの円筒対称となるため、 $k_x, k_y$  平面で見た Caustic は円状にプロットされる。

図 (9)(10)(11) を見ると、楕円率  $\epsilon$  の小さい場合の Caustic は、レーザーが直線偏光に近いために円状に近い形を取るが、楕円率が大きくなることで  $x$  軸方向の電場が大きくなり、Caustic も楕円状となることがわかる。

また、図 (12)(13)(14) に  $\epsilon = 0.3, \beta = 0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$  の Caustic 上の微分断面積を示した。

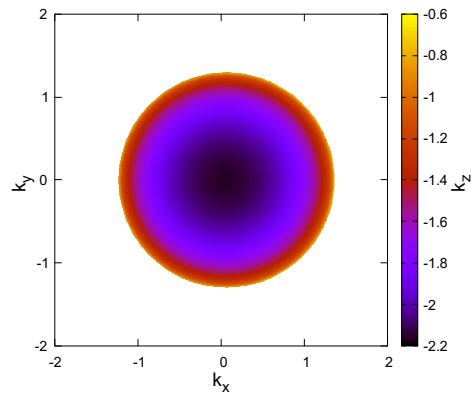


図 9 楕円偏光レーザーによる非弾性散乱における Caustic( $\epsilon = 0.1$ )

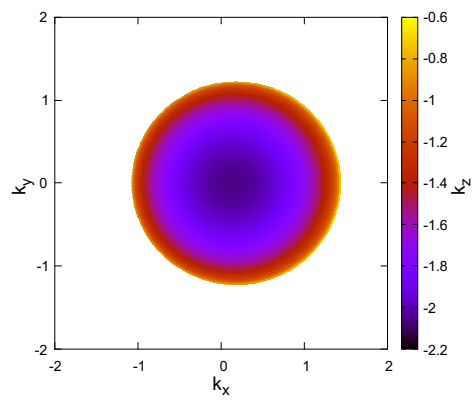


図 10 楕円偏光レーザーによる非弾性散乱における Caustic( $\epsilon = 0.3$ )

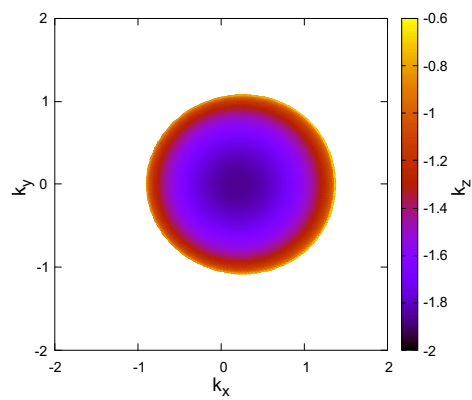


図 11 楕円偏光レーザーによる非弾性散乱における Caustic( $\epsilon = 0.5$ )

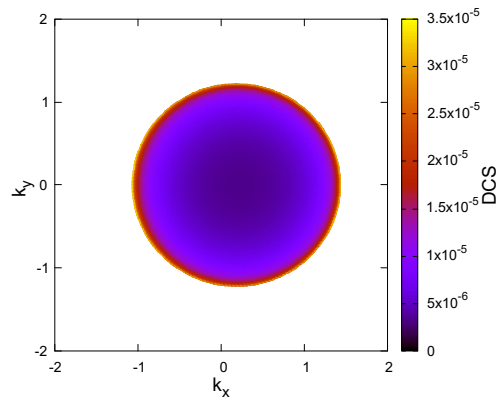


図 12 楕円偏光レーザーによる非弾性散乱における Caustic 上の微分断面積 ( $\epsilon = 0.3, \beta = 0^\circ$ )

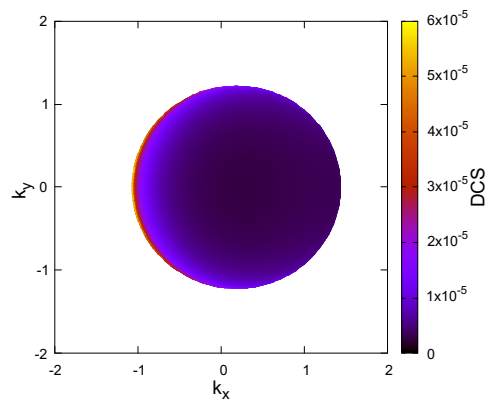


図 13 楕円偏光レーザーによる非弾性散乱における Caustic 上の微分断面積 ( $\epsilon = 0.3, \beta = 45^\circ$ )

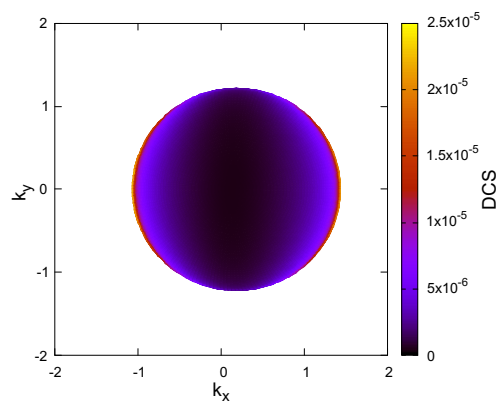


図 14 楕円偏光レーザーによる非弾性散乱における Caustic 上の微分断面積 ( $\epsilon = 0.3, \beta = 90^\circ$ )

## 4 謝辞

本研究を進めるにあたり、主任担当教授の森下先生には多大なご指導を頂きました。長谷川先生には研究について多くのご助言を頂きました。また名古屋大学光物理化学研究室の菱川先生、安井氏には実験データを提供頂きました。深く感謝いたします。

## 参考文献

- [1] Toru Morishita and Oleg I. Tolstikhin. Adiabatic theory of strong-field photoelectron momentum distributions near a backward rescattering caustic. *Phys. Rev. A*, Vol. 96, p. 053416, Nov 2017.
- [2] 森下 亨. 高強度レーザーによるアト秒領域の超高速原子・分子イメージング. 光アライアンス, 11 2011.
- [3] Toru Morishita, Anh-Thu Le, Zhangjin Chen, and C. D. Lin. Accurate retrieval of structural information from laser-induced photoelectron and high-order harmonic spectra by few-cycle laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 100, p. 013903, Jan 2008.
- [4] 大森 賢治 (編) . アト秒科学. 化学同人, 2015.
- [5] Jens Svensmark, Oleg I. Tolstikhin, and Toru Morishita. Adiabatic theory of strong-field ionization of molecules including nuclear motion: Rescattering. *Phys. Rev. A*, Vol. 104, p. 063115, Dec 2021.
- [6] 高柳 和夫. 原子衝突. 朝倉書店, 2007.