

強光子場中での O_2 および CO_2 分子の角度分解再散乱 電子スペクトル

(¹ 東北大・多元研、² 早稲田大・理工、³ さきがけ、⁴ 電通大・量子物質、
^{1,5} テキサス A&M 大・化学)

○ 奥西みさき¹、新倉弘倫^{1,2,3}、森下亨^{3,4}、Robert Lucchese^{1,5}、上田潔¹

[序] 気相中の原子・分子に高強度レーザーパルス照射するとイオン化を起し電子が放出される。放出された電子の一部は振動するレーザー電場の折り返しに伴いその向きを変え、電子を放出した親イオンに再衝突をする。再衝突電子が親イオンと弾性衝突すると高いエネルギーを持つ再散乱電子が放出され、再散乱電子スペクトルが観測される。後方弾性散乱電子は再衝突後にレーザー電場の加速により最大約 $10U_p$ という高いエネルギーを持つことが知られている。ここで U_p はレーザー電場中での自由電子が得る運動エネルギーの平均でポンデロモティブエネルギーと呼ばれる。電子の再衝突現象はレーザー電場の1光学サイクル(800nmのレーザー光で約2.7fs)未満で起こる超高速現象であることから、高エネルギー再散乱スペクトルや、再衝突電子の再結合過程によって引き起こされる高エネルギー高次高調波(High Harmonic Generation : HHG)発生によるHHGスペクトルを用いた原子・分子の超高速イメージングの可能性が従来から指摘されてきた。

最近、森下ら⁽¹⁾はH原子とAr原子について時間依存シュレディンガー方程式(TDSE)の数値計算により求めた光電子スペクトルの解析から、最も高い衝突エネルギー(=3.17 U_p)でイオンに弾性衝突し後方散乱された電子の微分散乱断面積を見積ることが出来ることを示した。更にChenら⁽²⁾はこの研究をより小さな衝突エネルギーでの後方再散乱電子に拡張することでより広いエネルギー範囲で電子の微分弾性散乱断面積を見積れることを、TDSEの数値計算により示した。本研究では、 O_2 分子および CO_2 分子の高エネルギー再散乱電子スペクトルを測定し、森下らおよびChenらの方法で実験的に抽出した電子・イオン微分弾性散乱断面積を、数値計算によって求めた微分散乱断面積と比較した。より広い範囲の衝突運動量での散乱過程を観測するために、 $7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ から $1.2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ のレーザー強度でスペクトルを測定した。

[実験] 波長800nmパルス幅100fs、または波長785nmパルス幅35fsおよび10fs、繰り返し周波数1kHzの直線偏光したレーザーパルスを $\lambda/2$ 波長板を用いて偏光方向を回転させながら、超高真空槽中に導入した分子に $f=60$ のレンズ、または $f=100$ mmのミラーで集光し、ターゲット分子をイオン化した。放出された電子を飛行時間型電子エネルギー分析器を用いて検出し、光電子の運動量スペクトルを測定した。 $\lambda/2$ 波長板を一定のスピードで繰り返し回転させることでエネルギースペクトルの角度分布を精度良く測定することが出来た。

[結果と考察] 図1に様々なレーザー強度で測定した O_2 分子の再散乱電子の2次元運動量分布スペクトルを示す。ここで赤線で示した半円上の電子強度分布が運動量(p)での電子・イオン弾性

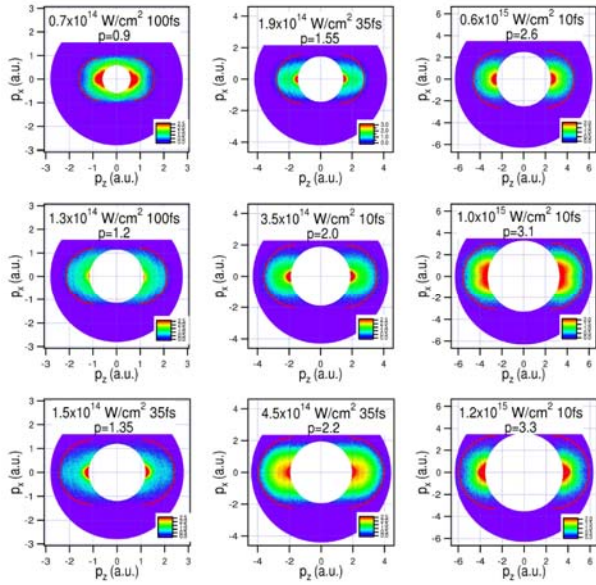


図1 様々なレーザー強度で測定した O_2 分子の2次元運動量分布スペクトル。ここでレーザーの偏光方向が z 軸方向であり、運動量 p は原子単位系での衝突運動量である。

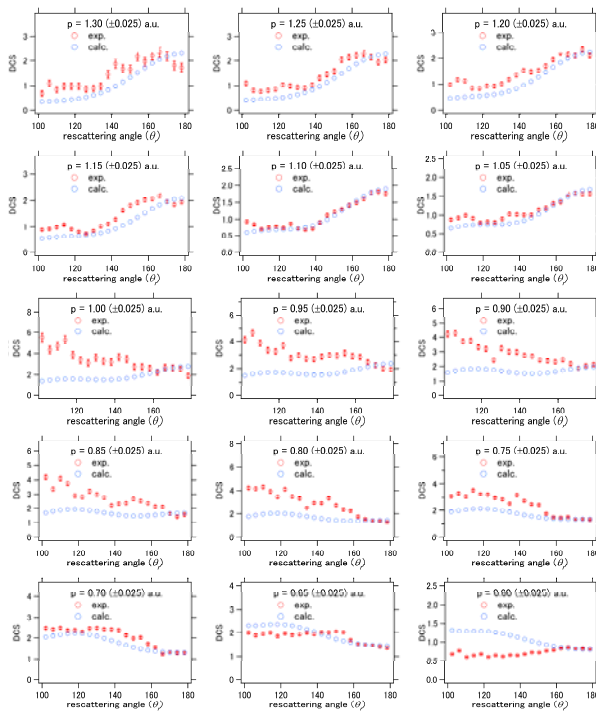


図2 再散乱電子の2次元電子運動量分布から見積もった電子・イオン微分弾性散乱断面積の数値計算との比較。ここで、計算においてイオン化確率のレーザー偏光方向の分子軸に対する依存性は、MO-ADK理論に基づく計算値を用いた。また、実験値は 170° での計算値で規格化した。

衝突による微分散乱断面積に相当する。レーザー強度の変化に伴い、電子運動量分布が変化していく様子が見られる。これらのスペクトルから抽出した異なる衝突運動量 p での微分弾性散乱断面積の一例を、数値計算によって得られた(自由)電子とイオンの微分散乱断面積と比較して図2に示す。この図の断面積は、最も弱いレーザー強度で測定した2つのスペクトルから求めたものである。この領域で運動量 p が小さな値の時に後方散乱方向(180度方向)への断面積に窪みが観測され、側方への成分が相対的に強くなるのに対して、運動量が増加すると後方散乱成分が強くなり、側方成分が弱くなる傾向を計算でも再現することが出来る。この傾向は定性的には次のように説明することが出来る。 O_2 分子はレーザー光の偏光方向に対して分子軸が約45度方向を向いたときにイオン化の確率が極大を持ち0度または90度方向に近づくにつれ急激に減少する。そこで、45度方向からレーザーの偏光方向に沿って入射する電子の後方再散乱を考えると、これは2つのO原子からの散乱電子波の重ね合わせで表現することができ、衝突運動量 p の値の変化に応じて電子波の相殺的干渉と相加的干渉が交互に現れる。従って、後方散乱に窪みが観測される p が小さい値の領域は相殺的干渉が支配的なのに対して、 p が増加するにつれて相加的干渉の領域に変化する様子がスペクトルに観測されていると考えられる。

O_2 分子および CO_2 分子の広い衝突運動量領域 ($O_2: 0.6 < p < 3.3$, $CO_2: 1.0 < p < 3.3$ a.u.) で同様の比較を行ったところ、実験値と計算値の間はかなり良い一致が見られた。

[参考文献] (1) T. Morishita, A-T. Le, Z. Chen, and C. D. Lin, *Phys. Rev. Lett.* 100, 013903 (2008). (2) Z. Chen, A-T. Le, T. Morishita, and C. D. Lin, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 42, 061001 (2009). (3) M. Okunishi, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 103, 043001 (2009)