

Annual Research Highlights

(1) Nuclear wavepacket dynamics in intense laser fields by time-resolved coincidence momentum imaging

The temporal evolution of the nuclear wavepacket of CS_2^{2+} formed in an intense laser field (60 fs, 0.13 PW/cm^2) was traced in real time by the pump-and-probe technique combined with coincidence momentum imaging of the Coulomb explosion process, $\text{CS}_2^{3+} \rightarrow \text{S}^+ + \text{C}^+ + \text{S}^+$. The momentum correlations among the fragment ions obtained as a function of the pump-probe time delay between 133 fs to 3 ps revealed that the nuclear wavepacket in CS_2^{2+} evolves not only along the anti-symmetric stretching coordinate to yield S^+ and CS^+ but also along the symmetric stretching coordinate leading to the simultaneous breaking of the two C-S bonds. The contribution from two different electronic states having bent and linear-type geometrical configurations was identified in the wavepacket motion along the bending coordinate of CS_2^{2+} .

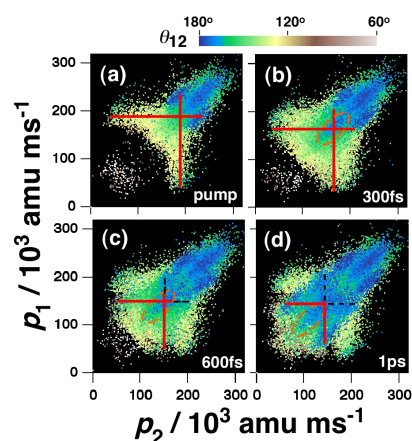


Fig. 1: The two-dimensional coincidence momentum imaging maps of (a) CH_3^+ , (b) CH_2^+ , (c) CH^+ produced through the two-body Coulomb explosion of CH_3CN_2^+ .

In Fig 1, the two-dimensional p_1 - p_2 correlation maps obtained only with a pump pulse (a), and with $\Delta t = 300\text{fs}$ (b), 600fs (c) and 1ps (d) are shown. The red solid lines indicate the results of the free-rotor simulation for the sequential process via the formation of a metastable CS_2^{2+} , while the features marked with black broken lines are attributed to the direct Coulomb explosion of CS_2^{2+} from CS^+ by the probe laser. The component corresponding to the nuclear wavepacket of CS_2^{2+} dissociating towards the symmetric stretching coordinate is visible along the diagonal $p_1 = p_2$ line (orange broken circle).

(2) Dissociative ionization of ethanol by designed laser pulse trains

The dissociative ionization of ethanol was investigated in a pulsed intense laser field composed of

a sequence of the shorter laser pulses.

Pulse trains in which the intervals between two adjacent pulses are equal were generated by an acousto-optic programmable dispersive filter (AOPDF) so that the integrated power of the pulses within the train was kept constant. When the original TL pulse (32 fs FWHM) was adopted, the laser field intensity of $4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ was achieved at the focal point. The interval of the first pulse and the last pulse in the train was fixed to be 800 fs throughout the experiment.

When the number (n) of component pulses increased from $n = 1$ to 5, the relative yield of the C-O bond breaking increased monotonically, and the ratio at $n = 5$ was about 2.5 times as large as that by a single TL pulse, suggesting that filling the interval with laser pulses is preferred for the C-O bond breaking.

When the linear chirp rate was increased from zero-chirp while keeping $n = 3$, the yield ratio of the C-O bond breaking increased and reached the maximum at the chirp rate of $5 \times 10^{-2} \text{ ps}^2$, at which the three pulses can cover smoothly the duration of about 1 ps without a gap. The maximum ratio was found to be almost the same as that achieved previously by single chirped pulses.

The observation supported strongly our proposed mechanism that the temporal duration that the intense laser field covers determines the fate of the evolution of the nuclear wavepacket of ethanol on the LDPEs.

(3) Electronic structure of multi-electron atoms in laser plasmas by a Debye shielding model

In order to understand electronic structures of atoms and atomic ions in a "laser plasma", which is a high-temperature and high-density plasma produced by focusing intense laser light on the surface of materials, we proposed a multi-electron Hamiltonian based on the Debye-shielding model. A quantum chemical code using a multi-reference CI method is developed including relativistic effects.

By using this "relativistic Debye shielding model" the excitation energies of the lowest dipole-allowed ($2p$) $^2P - (2s) ^2S$ transition of the Li-like multiply-charged atomic ions ($Z = 3 \sim 40$) are calculated as a function of μ , the Debye shielding parameter determined by the temperature and density of the plasmas. The results of the calculations showed that the excitation energies of the neutral ($Z = 3$) and singly-charged ion ($Z = 4$) decrease as μ increases, while those of the other ions with higher nuclear charges ($Z \geq 5$) increase. This demonstrates that spectral shifts toward the longer wavelength side are observed in the emission spectra of Li-like atomic ions for $Z = 3$ and 4, while spectral shifts toward the shorter wavelength side are observed for the higher charged species.

研究ハイライト

(1) 時間分解コインシデンス運動量画像法による強光子場中分子の核波束ダイナミクス

強光子場中 (60 fs, 1.3×10^{14} W/cm²) における CS₂ の核ダイナミクスをポンプ・プローブコインシデンス運動量画像法で追跡した。

図 1 に、ポンプ・プローブ法で得た、2つの S⁺ フラグメントの運動量二次元相関図 p_1-p_2 を示す。図中(a)~(d)は、(a)ポンプ光のみ、プローブ光の遅延時間 (b) $\Delta t = 300$ fs、(c) 600fs、(d) 1ps の場合を示している。相関図中には、段階的に解離する過程 (CS₂²⁺ → CS⁺ + S⁺ → C + S⁺ + S⁺; 赤で示した直線に沿った分布) および協奏的に解離する過程 (CS₂²⁺ → S⁺ + C + S⁺; オレンジ色の点線で囲った分布) がみられ、いずれも遅延時間が大きくなると共に、運動量の絶対値が小さくなる方向へ分布がシフトしている。このことは、ポンプ光による強光子場中で生成した CS₂²⁺ の核波束が、反対称伸縮振動座標方向および対称伸縮振動座標方向へ時間発展し、結合距離が伸びていく様子が実時間で捉えられたことを示している。さらに、エネルギー的に有利な段階的解離過程より、協奏的解離過程が優勢であることは、CS₂²⁺ において強光子場によって形成されたドレスト状態のポテンシャル面によって、核波束の運動が大きく影響を受けることを示している。このように、CS₂ のクーロン爆発過程 CS₂³⁺ → C⁺ + S⁺ + C⁺ を調べることによって CS₂²⁺ の核波束運動が実時間で明らかとなった。

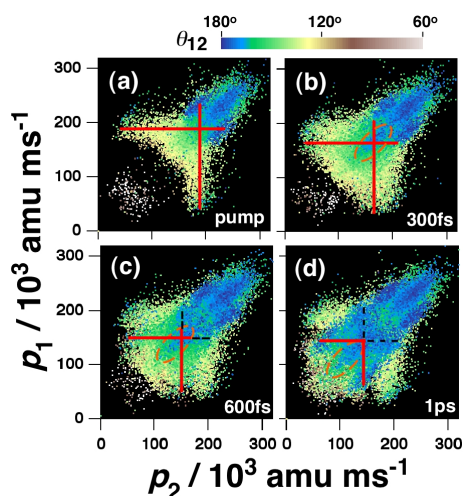


図 1 : CS₂³⁺ から生成する 2 つの S⁺ の運動量相関図

(2) 波形整形パルスによるエタノールの解離性イオン化

強光子場におけるエタノールの解離性イオン化ダイナミクスを、波形整形により得たレーザーパルス列を用いることによって調べた。

レーザーパルス列の最初と最後のパルスの時間間隔を 800 fs に固定し、短パルス数 (n) を 1 から 5 まで変化させたところ、C-O 結合解離の C-C 結合解離に対する相対収率が単調増加した。その値は、 $n = 5$ ではフーリエ限界パルスの場合に比べて 2.5 倍となった。すなわち、パルス数が増えパルス間隔が狭くなると、C-O 結合解離が促進されることが示された。次に、 $n = 3$ に固定し、周波数チャープ度を増加させていくと、チャープ度 5×10^2 ps² において相対収率が最大となった。このとき 3 つの短パルスが時間的に重なり、時間幅約 1 ps の短レーザーパルスが形成されている。

以上から、強光子場により生成されたドレスト状態ポテンシャル曲面を維持する時間が長い程 C-O 結合の切断に向かった核波束の運動が促進されることが明らかとなった。

(3) デバイ遮蔽モデルに基づくレーザープラズマ中の多電子原子の電子状態

強レーザー光を固体表面やクラスターに集光することによって、高温かつ高密度のプラズマが生成する。このレーザープラズマ中における原子・および原子イオンの電子構造を明らかにするために、Debye 遮蔽モデルに基づく多電子ハミルトニアンを構築し、多参照 CI 法を用いた量子化学計算を行った。

3 電子系 Li 様多価イオン原子 ($Z = 3 \sim 40$) について、第一許容遷移 ($2p$)²P - ($2s$)²S の励起エネルギーを Debye 遮蔽定数 μ の関数として計算した。その結果、中性原子 ($Z = 3$) および一価イオン ($Z = 4$) の励起エネルギーは μ の増加とともに減少を示すのに対し、 $Z \geq 5$ の多価イオンにおいては、励起エネルギーが増加することが示された。すなわち、プラズマ中の Li 様多価原子イオンからの発光スペクトルにおいては、 $Z = 3, 4$ については長波長側へのシフトが、その他の原子イオンについては短波長側へのシフトが観測され得ることが示された。

1. 原著論文

(1) Refereed Journals

- 1) A. Hishikawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi
"Hydrogen migration in acetonitrile in intense laser fields in competition with two-body Coulomb explosion" *J. Elect. Spec. Relat. Phenom.* **141** 195-200 (2004).
- 2) I. Maruyama, T. Sako, K. Yamanouchi
"Time dependent nuclear wavepacket dynamics of H_2^+ by quasi-stationary Floquet approach" *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **37** 3919-3936 (2004).
- 3) K. Kato, K. Yamanouchi
"Photodecomposition reaction of trapped aniline cation by photofragment excitation spectroscopy" *Chem. Phys. Lett.* **397** 237-241 (2004).
- 4) R. Itakura, K. Yamanouchi, T. Yasuike, K. Someda
"Formation of $[C_5H_6(NH_3)_2]^+$ and $[NH_4(NH_3)_m]^+$ ($m = 1 - 3$) from size-selected aniline-ammonia cluster cations in intense laser fields" *Chem. Phys. Lett.* **396** 208-212 (2004).
- 5) A. Hishikawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi
"Hydrogen migration in acetonitrile in intense laser fields studied by coincidence momentum imaging" *Physica Scripta* **T110** 108-111 (2004).
- 6) A. Hishikawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi
"Nuclear dynamics on the light-dressed potential energy surface of CS_2 by coincidence momentum imaging" *Chem. Phys. Lett.* **388** 1-6 (2004).