

Annual Research Highlights

(1) “Observation of laser-assisted electron scattering in femtosecond intense laser fields”

In electron-atom collision processes in a laser field, the electron can gain or lose its energy by multiples of the photon energies. This process is called laser-assisted electron scattering (LAES). We observed this LAES process, for the first time, using an intense near-infrared femtosecond laser field.

Figure 1(a) shows an energy spectrum of scattered electrons when the scattering occurred in the laser field (filled circles) and a background spectrum when the temporal delay of the electron pulse from the laser pulse was set to be +100 ps (open squares), so that the scattering occurs without the influence of the laser field. The relative intensities are normalized by the peak intensity of the elastic scattering signal. The increases in the signal intensity are recognized at the kinetic energy shifts of $\pm\hbar\omega$, i.e. ± 1.56 eV in the spectrum of electrons scattered in the laser field. In Fig. 1(b), the filled circles represent the LAES signals obtained by subtracting the background signals from the scattering signals in the laser field in Fig. 1(a). The distinct peak structures in Fig. 1(b) show that the one-photon transitions in the LAES process were observed.

As an application of this femtosecond-LAES phenomena, a new time-resolved gas electron diffraction method is proposed for probing the change in the geometrical structure of molecules with high precision of the order of 0.01 Å with extremely high temporal resolution of the order of femtoseconds, which is three-orders of magnitude shorter than the previously achieved temporal resolution of gas electron diffraction experiments.

1.(1)-1) *Phys. Rev. Lett.* **105**, 123202 (2010).

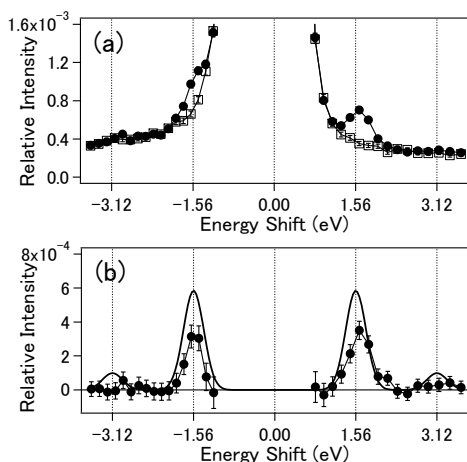


Fig. 1 The energy spectra of relative intensities of scattered electron signals. (a) Filled circles: Electron signals with laser fields. Open squares: Background signals. (b) Filled circles: A subtraction of the backgrounds from the signals with laser fields. Solid line: A calculated spectrum.

(2) “Two stages of ultrafast hydrogen migration in methanol driven by intense laser fields”

The hydrogen migration dynamics of singly charged methanol was investigated by the two-body Coulomb explosion of $\text{CH}_3\text{OH}^{2+}$ using the pump-probe coincidence momentum imaging (CMI) technique. We recorded the spectra of the kinetic energy (E_{kin}) of the fragment ions ejected from two pathways, i.e., (i) the pathway in which the C-O bond is broken without the hydrogen migration, $\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_3^+ + \text{OH}^+$, and (ii) the pathway in which the C-O bond is broken with the migration of a hydrogen atom from the methyl group to the hydroxyl group, $\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_2^+ + \text{OH}_2^+$, as a function of the time delay (Δt) between the pump and the probe pulses.

The yield distributions of the two pathways are plotted as functions of Δt and E_{kin} in two-dimensional (2D) contour pattern, as shown in Fig. 2. It can be seen in both cases that the 2D distributions can be categorized into two parts: the upper strip, where the kinetic energy distributions are independent of Δt , and the lower strip, where the peak position of the kinetic energy distributions shift toward lower energies as Δt increases, exhibiting a time-dependent behavior. The ratio of the yield of the migration pathway (pathway (ii)) to the sum of the yields of pathways (i) and (ii) is independent of Δt for the upper strip, showing that the hydrogen migration occurs within the laser pulse duration. Contrary, the yield ratio for the lower strip exhibits clear temporal change, showing that the hydrogen migration proceeds even after molecules interact with the intense laser field. The time constant for this post-pulse hydrogen migration is evaluated to be ~ 150 fs from the exponential fitting to the experimental data. The observed temporal evolutions of the yield ratio and the kinetic energy spectra reveal that there are two distinctively different stages in the hydrogen migration processes in the singly charged methanol: ultrafast hydrogen migration occurring within the intense laser field (~ 38 fs), and slower post-pulse hydrogen migration (~ 150 fs) occurring after the light-matter interaction.

1.(1)-3) *J. Chem. Phys.* **133**, 071103 (2010).

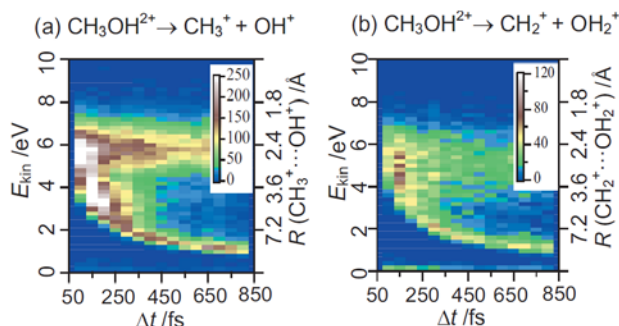


Fig. 2 The $E_{\text{kin}}-\Delta t$ 2D contour plots for the yield distributions of the fragment ions ejected through (a) $\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_3^+ + \text{OH}^+$ and (b) $\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_2^+ + \text{OH}_2^+$.

研究ハイライト

(1) フェムト秒高強度レーザー場中でのレーザーアシステッド電子散乱の観測

レーザー場中での電子 - 原子衝突過程には、散乱電子のエネルギーが光子エネルギーの整数倍だけ増減する、レーザーアシステッド電子散乱 (LAES) と呼ばれる現象が引き起こされる。我々は、近赤外線の高強度フェムト秒レーザー場によって引き起こされる LAES 過程の観測に初めて成功した。

図 1(a)の●印はレーザー場中で散乱された電子のエネルギースペクトルを示す。一方、□印はその背景信号に対応し、レーザー照射の 100 ps 後、つまり、レーザー場が存在しない時に散乱された電子のエネルギースペクトルである。いずれも弾性散乱信号のピーク強度で規格化された相対信号強度で示してある。●印のスペクトルは、1 光子エネルギー (1.56 eV) だけエネルギーシフトした点で、背景信号 (□印) よりも信号強度が増加していることが分かる。図 1(b) に示すように、レーザー照射時の散乱電子信号と背景信号との差スペクトル (●印) は、1 光子分エネルギーシフトした点で明確なピーク構造を示し、1 光子遷移に対応する LAES 過程が観測されたことを表わしている。

さらに、このフェムト秒レーザーによる LAES 過程の応用として、新たな時間分解気体電子回折法を考案した。この手法を用いれば、従来の時間分解電子回折法よりも 3 桁高い時間分解能、すなわち、フェムト秒の時間分解能で、分子の瞬間的な幾何学的構造を高精度 (0.01 Å) で決定することが可能となる。

1.(1)-1) *Phys. Rev. Lett.* **105**, 123202 (2010).

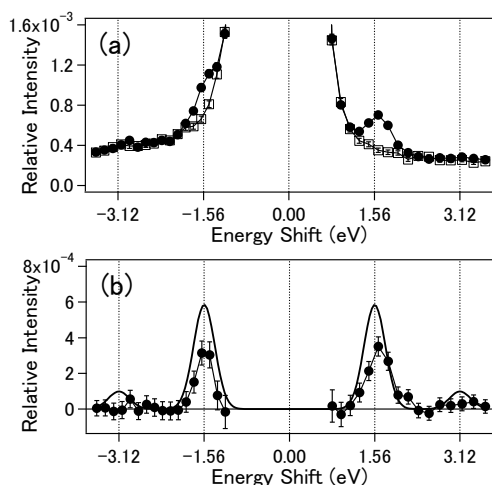


図 1 散乱電子の相対信号強度のエネルギースペクトル。(a) ●印: レーザー照射時の散乱電子信号, □印: 背景信号。(b) ●印: レーザー照射時の散乱電子信号と背景信号との差スペクトル, 実線: 数値計算によるスペクトル。

(2) 強光子場中のメタノール分子における二段階の超高速水素マイグレーション

ポンプ・プローブ計測によるコインシデンス運動量画像法を用いて、メタノール 1 価イオンにおける超高速水素マイグレーション過程の研究を行った。 $\text{CH}_3\text{OH}^{2+}$ からの 2 種類の 2 体クーロン爆発過程、すなわち、(i) 水素マイグレーションを伴わない C-O 結合解離 ($\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_3^+ + \text{OH}^+$)、および、(ii) メチル基から水酸基への水素マイグレーションを伴う C-O 結合解離 ($\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_2^+ + \text{OH}_2^+$) に対して、解離イオンの運動エネルギー放出量 (E_{kin}) のスペクトルをポンプとプローブレーザーパルスとの遅延時間 (Δt) の関数として得た。

図 2 は、過程(i), (ii)の信号収率を E_{kin} と Δt に対して二次元等高線プロットした図である。得られた二次元収率分布は 2 つの部分、すなわち、運動エネルギー分布が時間に依存しない上部の帯状構造と、 Δt の増加とともに運動エネルギー分布が低エネルギー側へシフトする下部の帯状構造に分類することができる。上部の帯状構造では、過程(i)と過程(ii)との収率の和に対する水素マイグレーションを伴う C-O 結合解離 (過程(ii)) の収率比も Δt に依存せず、水素マイグレーションがレーザーパルスの時間幅のうちに完了していることが分かる。一方、下部の帯状構造では、この収率比が明確な時間依存性を示し、分子が光と相互作用した後でも水素マイグレーションが進行していることが分かった。実験結果の指数関数フィッティングの結果、このレーザーパルス後の水素マイグレーションが進行する時定数は ~ 150 fs であった。これらの結果から、1 価のメタノールイオンにおける水素マイグレーション過程には、“レーザーパルスの時間幅 (~ 38 fs) で完了する過程”と“レーザー場との相互作用後に緩やかに (~ 150 fs) 進行する過程”という二段階の水素マイグレーション過程が存在することが明らかとなった。

1.(1)-3) *J. Chem. Phys.* **133**, 071103 (2010).

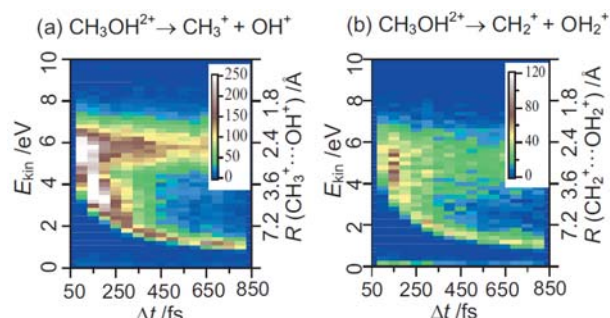


図 2 (a) $\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_3^+ + \text{OH}^+$ と (b) $\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_2^+ + \text{OH}_2^+$ に対する信号収率の E_{kin} と Δt に対する二次元等高線プロット。

1. 原著論文

(1) Refereed Journals

- 1) R. Kanya, Y. Morimoto, K. Yamanouchi, "Observation of laser-assisted electron-atom scattering in femtosecond intense laser fields," *Phys. Rev. Lett.* **105**, 123202 (2010).
- 2) H. Xu, T. Okino, K. Nakai, K. Yamanouchi, S. Roither, X. Xie, D. Kartashov, L. Zhang, A. Baltuska, M. Kitzler, "Two-proton migration in 1,3-butadiene in intense laser fields," *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12**, 12939 (2010).
- 3) H. Xu, C. Marceau, K. Nakai, T. Okino, S.L. Chin, K. Yamanouchi, "Two stages of ultrafast hydrogen migration in methanol driven by intense laser fields," *J. Chem. Phys.* **133**, 071103 (2010).
- 4) Y. Furukawa, Y. Nabekawa, T. Okino, S. Saugout, K. Yamanouchi, K. Midorikawa, "Nonlinear Fourier transform spectroscopy of D₂ using high-order harmonic radiation," *Phys. Rev. A* **82**, 013421 (2010).
- 5) K. Bambardekar, J. A. Dharmadhikari, A. K. Dharmadhikari, T. Yamada, T. Kato, H. Kono, Y. Fujimura, S. Sharma, D. Mathur, "Shape anisotropy induces rotations in optically trapped red blood cells," *J. Biomed. Opt.* **15** 041504 (2010).
- 6) A. Di Piazza, E. Lotstedt, A. I. Milstein, C. H. Keitel, "Effect of a strong laser field on electron-positron photoproduction by relativistic nuclei," *Phys. Rev. A* **81**, 062122 (2010).
- 7) H. Yazawa, T. Shioyama, H. Hashimoto, F. Kannari, R. Itakura, K. Yamanouchi, "Non-adiabatic transition in C₂H₅OH⁺ on a light-dressed potential energy surface by ultrashort pump-and-probe laser pulses," *Appl. Phys. B* **98**, 275-282 (2010).
- 8) H. Xu, T. Okino, K. Nakai, K. Yamanouchi, S. Roither, X. Xie, D. Kartashov, M. Schöffler, A. Baltuska, M. Kitzler, "Hydrogen migration and C-C bond breaking in 1,3-butadiene in intense laser fields studied by coincidence momentum imaging," *Chem. Phys. Lett.* **484**, 119-123 (2010).

2. 総説・解説

- 1) 佐藤堯洋、岩崎純史、沖野友哉、山内薫、「高輝度 EUV-FEL 光を用いた分子の非線形光学過程」、放射光、第 23 巻, 295 (2010).
- 2) R. Itakura, K. Yamanouchi, F. Kannari, "Selective Bond Breaking in Dissociative Ionization of Ethanol Induced by Tailored Intense Laser Fields," *Advances in Multi-photon Processes and Spectroscopy* **19**, 93-112 (2010).

3. 著書

- 1) K. Yamanouchi, G. Gerber, A. D. Bandrauk, editors, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science VI*, (Springer-Verlag, Germany, 2010).
- 2) K. Yamanouchi, A. Giuletta, K. Ledingham, editors, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science V*, (Springer-Verlag, Germany, 2010).

4. その他

- 1) 日刊工業新聞 (2010 年 9 月 17 日) 「電子の散乱状況 フェムト秒の観測成功 東大 連続写真撮影向け技術」.