

Annual Research Highlights

(1) “Extreme ultraviolet free electron laser seeded with high-order harmonic”

Free electron laser (FEL) light sources based on the self-amplified spontaneous emission (SASE) scheme have been developed as promising intense light sources in the short wavelength regions from extreme ultraviolet to hard X-ray. However, the temporal and spectral profiles of SASE-FEL laser pulses are composed of random and uncontrollable spikes originated from their poor temporal coherence. We injected the high-order harmonic of near-infrared ultrashort laser pulses into an undulator of the SASE-FEL facility at Harima Institute of RIKEN, and demonstrated the generation of full-coherent and intense extreme ultraviolet (EUV) pulses as the significantly amplified the input high-order harmonic pulses.

Typical spectra of the output EUV-FEL pulses obtained with and without seeding by the high-order harmonic pulses are shown in Fig. 1 in red and blue, respectively. When seeded, the output pulses exhibit the narrower spectral profiles with the much larger intensity compared with those obtained without the seeding pulses. The pulse energy of the seeded FEL, estimated to be 1.3 μJ , was indeed 650 times as large as that of the input high-order harmonic pulses, and the temporal coherence of the high-order harmonic pulses was transferred to the seeded FEL output [1].

By using the intense, full-coherent laser pulses generated as the seeded output of EUV-FEL, the intense laser science in the EUV and soft X-ray regions will be explored. This project was carried out jointly with the researchers in RIKEN, JASRI, JAEA, Keio University, NTT Basic Research Laboratories, KEK, and Synchrotron SOLEIL (France).

1.(1)-7) *Opt. Exp.* **19**, 317 (2011).

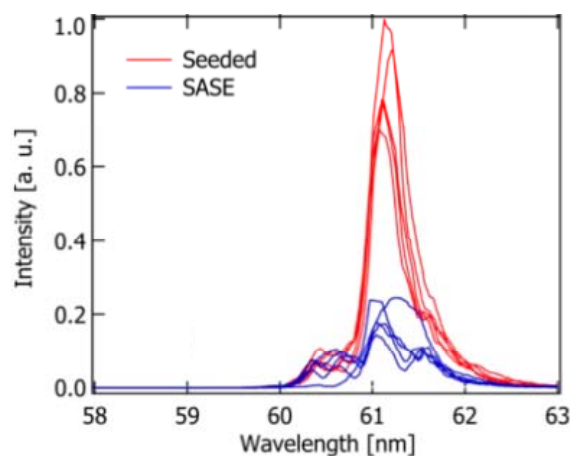


Fig. 1 The spectra of the SASE-FEL output pulses obtained by the SCSS test accelerator at Harima Institute of RIKEN (blue lines), and those of the output pulses obtained when the seeding with the high-order harmonic of ultrashort near-infrared laser pulses was achieved (red lines).

(2) “Classical dynamics of laser-driven D_3^+ ”

We investigated the dynamics of D_3^+ in an ultrashort intense laser pulse by employing the classical description of the molecule. In order to prevent autoionization or collapse of the molecule, non-classical momentum dependent potentials, which expels the electrons from the regions in the phase space where the Heisenberg principle is violated, were added to the classical Hamiltonian.

We simulated the time evolution of D_3^+ subjected to a linearly polarized three-cycle (FWHM 3.9 fs) pulse with a carrier wavelength of 790 nm. Starting from the initial conditions that could mimic the corresponding experimental conditions, the Monte Carlo method, where physical observables are obtained from statistical averages over many trajectories of the system, was employed. The following seven pathways were identified: D_3^+ (no ionization or dissociation), $\text{D}^+ + \text{D}_2$, $\text{D}_2^+ + \text{D}$, and $\text{D}^+ + \text{D} + \text{D}$ (dissociation only), $\text{D}^+ + \text{D}_2^+ + e^-$ and $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D} + e^-$ (single ionization and dissociation), and $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}^+ + e^- + e^-$ (double ionization and dissociation). In Fig. 2(a), the kinetic energy release (KER) spectra are shown for the three ionization channels $\text{D}^+ + \text{D}_2$, $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}$, and $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}^+$, at a fixed intensity $4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. A comparison with the experimental results (b) reveals good qualitative agreement, although the KER is overestimated by a factor of around 1.5.

We expect that our results may open up the possibility of classical simulation of larger polyatomic molecules such as hydrocarbon molecules driven by a laser field, since the ground state of larger sized molecules could also be constructed with the model potentials introduced in this study.

1.(1)-5) *Phys. Rev. Lett.* **106**, 203001 (2011).

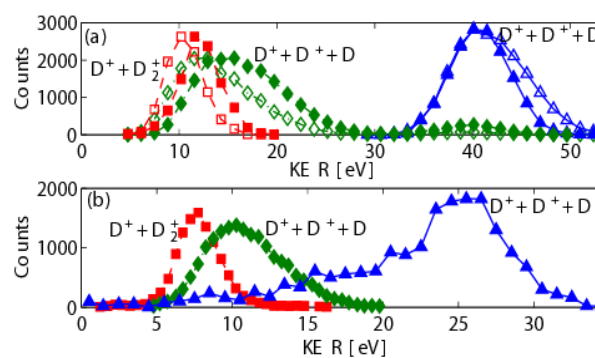


Fig. 2 (a) Filled symbols show the number of trajectories having final KER for the three ionization channels at the laser intensity of $4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. The total number of trajectories run was $N = 4 \times 10^4$. Note that the curve for the $\text{D}^+ + \text{D}_2^+$ channel (\blacksquare) has been multiplied with a factor of 10. Open symbols display the result of intensity volume averaging, normalized to the same peak value as the corresponding fixed intensity curve. (b) Experimental data obtained by McKenna *et al.* (*Phys. Rev. Lett.* **103**, 103004 (2009)) at $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$. The experimental curve for $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}^+$ has been multiplied with a factor of 20.

研究ハイライト

(1) 高次高調波によるシード型極端紫外自由電子レーザー

短波長領域の従来の自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) では、自発放射光を増幅する SASE-FEL (Self Amplified Spontaneous Emission FEL) が採用されていたが、レーザーパルスの時間分布やスペクトルがスパイク状になるという欠点があった。本研究では、高強度超短パルス希ガス試料に照射することによってフルコヒーレントな高次高調波を生成し、その光をシード光として FEL に入射し、増幅することにより、SASE-FEL の欠点である時間コヒーレンスを改善し、単色性に優れた FEL を極端紫外領域で発振させた。これは極端紫外領域としては世界初の高次高調波シード方式自由電子レーザーとなる。

図 1 の赤線はシード光が増幅された FEL 光のスペクトルである。SASE-FEL 光のスペクトル (青線) と比較して、単色性が高く、また、大幅なスペクトル形状の改善が見られている。シードされた FEL 光のパルスエネルギーは 1.3 μJ と見積られ、シード光である高次高調波が、その理想的なスペクトル特性を維持したまま、FEL によって 650 倍に増幅されていることが確認された。

開発された短波長領域でのシード型 FEL によって、極端紫外・軟 X 線領域における高強度フルコヒーレント光による強光子場科学の進展が期待される。この研究は、理化学研究所、高輝度光科学研究センター、日本原子力研究開発機構、慶應義塾大学、NTT 物性科学基礎研究所、高エネルギー加速器研究機構、Synchrotron SOLEIL (フランス) との共同で行われた。

1.(1)-7) *Opt. Exp.* **19**, 317 (2011).

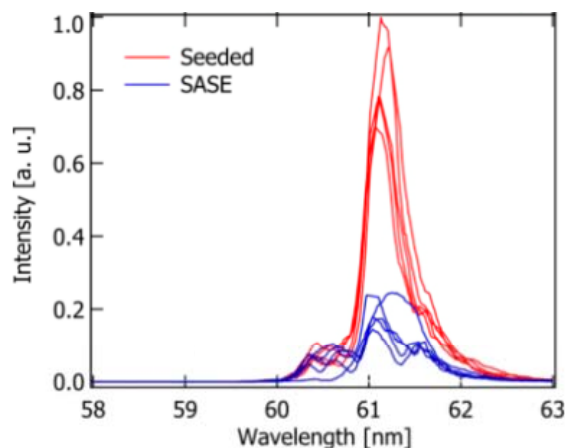


図 1 FEL 光のスペクトル。赤線：シードされた FEL 光，青線：SASE-FEL 光。

(2) 強レーザー電場と相互作用する D_3^+ 分子動力学的古典力学的記述

古典力学的なハミルトニアンで記述される強光子場中の D_3^+ 分子動力学を調べた。本研究では、ハイゼンベルグの不確定性関係を模倣する運動量に依存したポテンシャル関数を古典的ハミルトニアンに加えて計算を行った。このことによって、従来法の欠点であった基底状態にある分子の自動イオン化などによる崩壊を避けることが出来る。

計算では、 D_3^+ 分子と直線偏光の 3 サイクルパルス (FWHM : 3.9 fs, 波長 : 790 nm) との相互作用を仮定した。分子の初期条件は実験から示唆されている振動エネルギーを参照してモンテカルロサンプリングによって生成した。計算の結果、以下に示す 7 つの反応経路が見出された： D_3^+ , $\text{D}^+ + \text{D}_2$, $\text{D}_2^+ + \text{D}$, $\text{D}^+ + \text{D} + \text{D}$ (解離反応経路), $\text{D}^+ + \text{D}_2^+ + e^-$, $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D} + e^-$ (1 電子イオン化を伴う解離反応経路), $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}^+ + e^- + e^-$ (2 電子イオン化を伴う解離反応経路)。図 2(a) に、外部電場強度が $4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ の場合の 3 つの反応経路 $\text{D}^+ + \text{D}_2$, $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}$, $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}^+$ に対する解離生成物の運動エネルギースペクトルを示す。(b) に示されている実験スペクトルの形状を良く再現していることが分かる。図に見られるエネルギースケールの系統的なずれは、古典的な計算で得られる断熱ポテンシャルの不正確さによるものと考えられる。

本研究でその有効性が示された古典的な分子の取扱いを拡張することで、炭化水素分子のような、より大きな分子の強光子場中における動力学の解析手法の構築が期待される。

1.(1)-5) *Phys. Rev. Lett.* **106**, 203001 (2011).

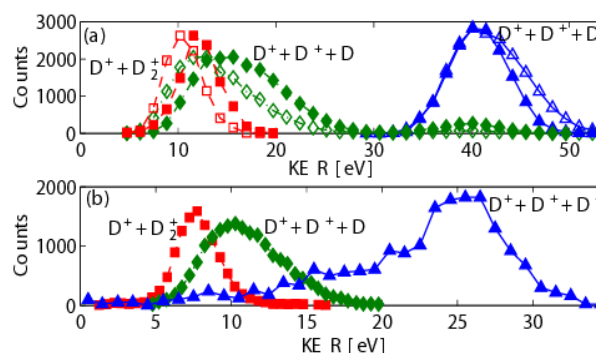


図 2 (a): 3 つの解離チャンネルに対する運動エネルギースペクトル。レーザー強度は $4 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ を仮定。全試行回数は 4×10^4 。■で示された $\text{D}^+ + \text{D}_2^+$ チャンネルの強度は 10 倍されている。中抜き記号でプロットされているスペクトルは、ガウス型のレーザー強度分布を仮定した場合の結果。(b): 実験 (レーザー強度 $I = 10^{16} \text{ W/cm}^2$) で観測された運動エネルギースペクトル。 $\text{D}^+ + \text{D}^+ + \text{D}^+$ チャンネルのデータ強度は 20 倍されている。

1. 原著論文

(1) Refereed Journals

- 1) R. Kanya, Y. Morimoto, K. Yamanouchi, "Apparatus for laser-assisted electron scattering in femtosecond intense laser fields," *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 123105 (2011).
- 2) T. Ikuta, K. Hosaka, H. Akagi, A. Yokoyama, K. Yamanouchi, F. Kannari, R. Itakura, "Separation of ionization and subsequent electronic excitation for formation of electronically excited ethanol cation in intense laser fields," *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 191002 (2011).
- 3) T. Sato, A. Iwasaki, K. Ishibashi, T. Okino, K. Yamanouchi, J. Adachi, A. Yagishita, H. Yazawa, F. Kannari, M. Aoyama, K. Yamakawa, K. Midorikawa, H. Nakano, M. Yabashi, M. Nagasono, A. Higashiya, T. Ishikawa, "Determination of absolute two-photon ionization cross-section of He by XUV Free Electron Laser," *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **44**, 161001 (2011).
- 4) H. Xu, T. Okino, K. Yamanouchi, "Ultrafast delocalization of hydrogen atoms in allene in intense laser fields," *Appl. Phys. A* **104**, 941-945 (2011).
- 5) E. Lötstedt, T. Kato, K. Yamanouchi, "Classical dynamics of laser-driven D_3^+ ," *Phys. Rev. Lett.* **106**, 203001 (2011).
- 6) S. Roither, X. Xie, D. Kartashov, L. Zhang, M. Schöffler, H. Xu, A. Iwasaki, T. Okino, K. Yamanouchi, A. Baltzuka, M. Kitzler, "High energy proton ejection from hydrocarbon molecules driven by highly efficient field ionization," *Phys. Rev. Lett.* **106**, 163001 (2011).
- 7) T. Togashi, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, M. Aoyama, K. Yamakawa, T. Sato, A. Iwasaki, S. Owada, T. Okino, K. Yamanouchi, F. Kannari, A. Yagishita, H. Nakano, M. E. Couprie, K. Fukami, T. Hatsui, T. Hara, T. Kameshima, H. Kitamura, N. Kumagai, S. Matsubara, M. Nagasono, H. Ohashi, T. Ohshima, Y. Otake, T. Shintake, K. Tamasaku, H. Tanaka, T. Tanaka, K. Togawa, H. Tomizawa, T. Watanabe, M. Yabashi, T. Ishikawa, "Extreme ultraviolet free electron laser seeded with high-order harmonic of Ti:sapphire laser," *Optics Express* **19**, 317-324 (2011).

2. 総説・解説

- 1) T. Sato, A. Iwasaki, K. Ishibashi, T. Okino, K. Yamanouchi, J. Adachi, A. Yagishita, H. Yazawa, F. Kannari, M. Aoyama, K. Yamakawa, K. Midorikawa, H. Nakano, M. Yabashi, M. Nagasono, A. Higashiya, T. Ishikawa, "XUV-FEL spectroscopy: He two-photon ionization cross-sections," *Highlights from European Journals, Europhysics News*, 42(5), 10 (2011).
- 2) 沖野友哉、山内薫：「アト秒化学の世界」、*化学と教育*、59(6)、302-303 (2011)。
- 3) H. Xu, T. Okino, K. Nakai, K. Yamanouchi, "Ultrafast hydrogen migration in hydrocarbon molecules driven by intense laser fields," *Progress in Ultrafast Intense Laser Science VII*, 35-52, Springer-Verlag (2011).

3. 著書

- 1) K. Yamanouchi, D. Charalambidis, D. Normand, editors, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science VII*, (Springer-Verlag, Germany, 2011).
- 2) K. Yamaouchi, editor, *Lectures on Ultrafast Intense Laser Science 1*, (Springer-Verlag, Germany, 2011).
- 3) 山内 薫、五神 真 共編：「先端光科学入門 2」、強光子場科学研究懇談会 (2011)。

4. その他

- 1) 日経産業新聞 (2011年1月14日)「波長 61.5nm の紫外領域のレーザを開発」
- 2) 日刊工業新聞 (2011年1月13日)「極端紫外光同位相レーザ開発」