

Annual Research Highlights

(1) “Carrier-envelope-phase dependence of asymmetric C-D bond breaking in C₂D₂ in an intense few-cycle laser field”

We have investigated the carrier envelope phase (CEP) dependence in the ejection direction of D⁺ ions generated via Coulomb explosion pathway, C₂D₂²⁺ → D⁺ + C₂D⁺, induced by intense few-cycle laser pulses.

The experimental apparatus consists of a CPA femtosecond Ti:sapphire laser system, a hollow-core fiber pulse compression system, an ultrahigh vacuum chamber for ion momentum imaging and a single-shot phase meter. The few-cycle laser pulses, whose pulse duration was 4.5 fs, were generated by introducing the output pulses of the laser system into the pulse compression system. The generated few-cycle laser pulses were split into two by a beam splitter. One of them was introduced into the phase meter to record the CEP and the other was guided into the vacuum chamber to record the momentum vectors of fragment ions generated from C₂D₂. From the coincidence measurements of the fragment ions and the CEP of few-cycle laser pulses, the CEP dependence of the momentum of fragment ions was investigated.

Figure 1 shows the mean momentum of C₂D₂⁺ and an asymmetry parameter P_{asym} for the ejection direction of D⁺ ions generated via the Coulomb explosion pathway as a function of the CEP (ϕ_{abs}). The P_{asym} was defined as

$$P_{\text{asym}}(\phi_{\text{abs}}) = \frac{I_{\text{upper}}(\phi_{\text{abs}}) - I_{\text{lower}}(\phi_{\text{abs}})}{I_{\text{upper}}(\phi_{\text{abs}}) + I_{\text{lower}}(\phi_{\text{abs}})},$$

where I_{upper} and I_{lower} represent the yield of the D⁺ ions whose ejection angles respect to the laser polarization direction are less than 45 degrees and larger than 135 degrees, respectively. The P_{asym} varies by about 1.6 % depending on the CEP, indicating that asymmetry is induced in the electron density distribution by the intense laser fields, so that two C-D bonds in C₂D₂²⁺ become inequivalent in the intense laser field.

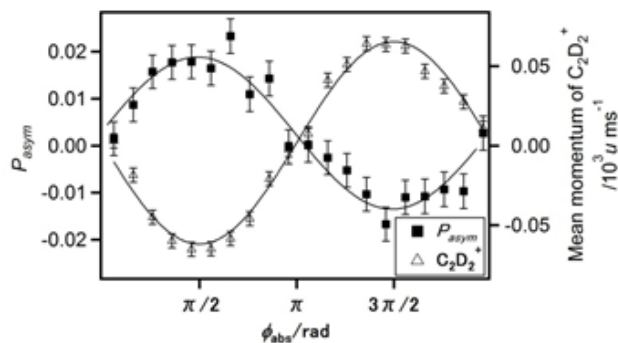


Fig. 1 The CEP dependence of the asymmetry parameter P_{asym} (■) and the mean momentum (△).

1.(1)-8) *Chem. Phys. Lett.*, **595-596C**, 61-66 (2014)

(2) “Laser-assisted electron diffraction for femtosecond molecular imaging”

We have recorded a laser-assisted electron diffraction (LAED) pattern of CCl₄ appearing in the angular distribution of laser-assisted electron scattering (LAES) signals and have shown that it is well reproduced by a numerical calculation using the geometrical structure of CCl₄.

The apparatus used in this study consists of an electron gun, a gas nozzle, a toroidal-type electron energy analyzer, and a two-dimensional detector. A monochromatic electron beam with the kinetic energy of 1 keV crosses both a laser beam ($\lambda = 800$ nm, $h\nu = 1.55$ eV, $\tau = 520 \pm 50$ fs, $I = 6 \times 10^{11}$ W/cm²) and an effusive CCl₄ beam at right angles. The kinetic energy distribution and the angular distribution of the scattered electrons are resolved by the toroidal-type electron energy analyzer and imaged on the two-dimensional detector.

Figure 2(a) shows a kinetic energy spectrum of the scattered electrons, where the horizontal axis is the amount of the energy shift (ΔE) of the electrons after the scattering process. The signal intensities are normalized with respect to the peak intensity at the zero energy shift ($\Delta E = 0$ eV). The increases in the signal intensities originating from the LAES processes are recognized at $\Delta E = \pm 1.55$ eV and ± 3.10 eV. The filled circles in Fig. 2(b) show the angular distribution of the observed LAES signals at $\Delta E = +1.55$ eV. A clear interference structure with a minimum at around 5.5 degrees and a maximum at around 9.0 degrees can be identified. In order to confirm the origin of this interference pattern, we conducted a numerical simulation by adopting the structural parameters of CCl₄ at room temperature. The simulated diffraction pattern represented by the solid curve in Fig. 2(b) is in good agreement with the experimental data, showing that geometrical structure of molecules at the moment of the laser irradiation can be determined with high precision by the LAED method.

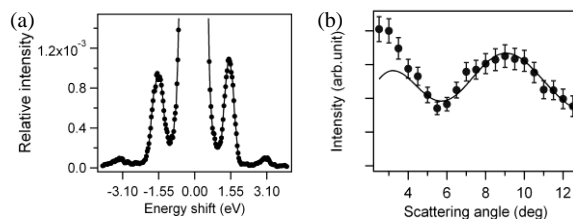


Fig. 2 (a) A kinetic energy spectrum of the scattered electrons by CCl₄ in a femtosecond laser field. (b) Experimental (filled circles) and simulated (solid line) angular distributions of the LAES signals at $\Delta E = +1.55$ eV.

1.(1).-11) *J. Chem. Phys.*, **140**, 064201-1-8 (2014)

研究ハイライト

(1) 数サイクルレーザーパルスによる C_2D_2 分子の C-D 結合切断の CEP 依存性

数サイクルレーザーパルスによって誘起された C_2D_2 分子のクーロン爆発過程 ($C_2D_2^{2+} \rightarrow D^+ + C_2D^+$) の D^+ の放出方向が、数サイクルパルスの搬送波包絡線位相 (carrier envelope phase; CEP) によって変化することを見出した。

本研究で用いた実験装置は、CPA フェムト秒レーザーシステム、中空ファイバーを用いたパルス圧縮装置、運動量画像計測装置、CEP 計測装置から構成される。CPA フェムト秒レーザーシステムの出力をパルス圧縮装置に導入し、パルス幅が 4.5 fs の数サイクルレーザーパルスを発生させた。この数サイクルパルスを 2 つに分割し、CEP 計測装置と C_2D_2 分子をサンプルとした運動量計測装置にそれぞれ導入した。数サイクルパルスの CEP と C_2D_2 分子から生成するイオンの運動量を同時計測することによって、イオンの運動量の CEP 依存性を観測した。

図 1 に親イオン $C_2D_2^+$ の平均運動量とクーロン爆発によって生成した D^+ イオンの放出方向の非対称性パラメーター P_{asym} の CEP (ϕ_{abs}) 依存性を示す。非対称性パラメーター P_{asym} は、レーザー電場方向と D^+ イオンの放出方向のなす角が 45° 以下の D^+ イオンの収量 I_{upper} 、 135° 以上の D^+ イオンの収量 I_{lower} を用いて

$$P_{\text{asym}}(\phi_{\text{abs}}) = \frac{I_{\text{upper}}(\phi_{\text{abs}}) - I_{\text{lower}}(\phi_{\text{abs}})}{I_{\text{upper}}(\phi_{\text{abs}}) + I_{\text{lower}}(\phi_{\text{abs}})}$$

と定義した。図 1 から、非対称性パラメーターが CEP の変化とともに 1.6 % 程度変化することが分かる。このことは、レーザー電場によって $C_2D_2^{2+}$ 分子内の電荷分布に偏りが生じ、2 つの C-D 結合が非等価となったことを示していると考えられる。

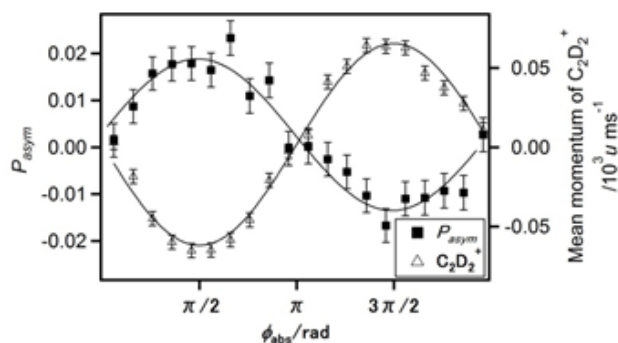


図 1 非対称性パラメーター P_{asym} (■) と親イオン $C_2D_2^+$ の平均運動量(△)の CEP 依存性

1.(1)-8) *Chem. Phys. Lett.*, **595-596C**, 61-66 (2014).

(2) レーザーアシステッド電子回折による超高速分子イメージング

CCl_4 分子によるレーザーアシステッド電子散乱 (laser-assisted electron scattering; LAES) 過程の散乱角度分布に現れるレーザーアシステッド電子回折 (laser-assisted electron diffraction; LAED) パターンを観測し、その回折パターンが CCl_4 の幾何学的構造を用いた数値計算によって良く再現できることを示した。

本研究で用いた実験装置は、電子銃、ガスノズル、トロイダル型電子エネルギー分析器、および、二次元検出器で構成される。運動エネルギー 1 keV の単色電子線を、レーザー光 ($\lambda = 800$ nm, $h\nu = 1.55$ eV, $\tau = 520 \pm 50$ fs, $I = 6 \times 10^{11}$ W/cm²)、および、 CCl_4 の漏れ出し分子線と互いに垂直に交差させた。散乱電子の運動エネルギー分布と散乱角度分布をトロイダル型電子エネルギー分析器によって分析し、二次元検出器によって画像観測した。

図 2 (a) に散乱後のエネルギーシフト量 (ΔE) を横軸とした散乱電子の運動エネルギースペクトルを示す。信号強度はエネルギーシフトがゼロ ($\Delta E = 0$ eV) のピーク強度で規格化されている。LAES 過程に由来する信号強度の増加が、 $\Delta E = \pm 1.55$ eV と $\Delta E = \pm 3.10$ eV に現れていることが確認できる。図 2 (b) の●印は $\Delta E = +1.55$ eV に観測された LAES 信号の角度分布である。 5.5° 付近に極小、 9.0° 付近に極大をもつ明確な干渉構造が観測されている。この干渉パターンの起源を明らかにするために、 CCl_4 の構造パラメーターを用いた数値シミュレーションを行った。図 2 (b) の実線で表された数値計算による回折パターンは、実験結果と良い一致を示し、レーザー光が照射された瞬間の分子の幾何学的構造を LAED 法によって高精度で決定できることが示された。

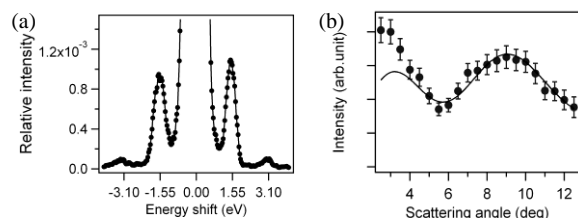


図 2 (a) フェムト秒レーザー場中で CCl_4 によって散乱された電子に運動エネルギースペクトル。(b) $\Delta E = +1.55$ eV の LAES 信号の角度分布。●印: 実験結果、実線: 計算結果。

1.(1)-11) *J. Chem. Phys.*, **140**, 064201-1-8 (2014).

1. 原著論文

(1) Refereed Journals

- 1) E. Lötstedt and K. Midorikawa, "Ejection of innershell electrons induced by recollision in a laser-driven carbon atom," *Phys. Rev. A*, **90**, 043415-1-10 (2014).
- 2) E. Lötstedt and K. Midorikawa, "Carrier-envelope phase control of electron motion in laser-driven H_3^{2+} ," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **47**, 204018-1-12 (2014).
- 3) S. Ohmura, H. Kono, T. Oyamada, T. Kato, K. Nakai, and S. Koseki, "Characterization of multielectron dynamics in molecules: A multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock picture," *J. Chem. Phys.*, **141**, 114105-1-14 (2014).
- 4) He-Long Li, X-Ye Wei, Huai-Liang Xu, See-Leang Chin, Kaoru Yamanouchi, and Hong-Bo Sun, "Femtosecond laser filamentation for sensing combustion intermediates: A comparative study," *Sensors and Actuators B*, **203**, 887-890 (2014).
- 5) X. Xie, K. Doblhoff-Dier, H. Xu, S. Roither, M. Schöffler, D. Kartashov, S. Erattupzha, T. Rathje, G. Paulus, K. Yamanouchi, A. Baltuška, S. Graefe, and M. Kitzler, "Selective control over fragmentation reactions in polyatomic molecules using impulsive laser alignment," *Phys. Rev. Lett.*, **112**, 163003-1-5 (2014).
- 6) W. Chu, H. Li, J. Ni, B. Zeng, J. Yao, H. Zhang, G. Li, C. Jing, H. Xie, H. Xu, K. Yamanouchi, and Y. Cheng, "Lasing action induced by femtosecond laser filamentation in ethanol flame for combustion diagnosis," *Appl. Phys. Lett.*, **104**, 091106-1-3 (2014).
- 7) Y. Ide, T. Kato, and K. Yamanouchi, "Non-Born-Oppenheimer molecular wave functions of H_2 by extended multi-configuration time-dependent Hartree-Fock method," *Chem. Phys. Lett.*, **595-596C**, 180-184 (2014).
- 8) S. Miura, T. Ando, K. Ootaka, A. Iwasaki, H. Xu, T. Okino, K. Yamanouchi, D. Hoff, T. Rathje, G. G. Paulus, M. Kitzler, A. Baltuška, G. Sansone, and M. Nisoli, "Carrier-envelope-phase dependence of asymmetric C-D bond breaking in C_2D_2 in an intense few-cycle laser field," *Chem. Phys. Lett.*, **595-596C**, 61-66 (2014).
- 9) X. Xie, S. Roither, M. Schöffler, E. Lötstedt, D. Kartashov, L. Zhang, G. G. Paulus, A. Iwasaki, A. Baltuška, K. Yamanouchi, and M. Kitzler, "Electronic pre-determination of ethylene fragmentation dynamics," *Phys. Rev. X*, **4**, 021005-1-10 (2014).
- 10) X. Xie, S. Roither, M. Schöffler, H. Xu, S. Bubin, E. Lötstedt, S. Erattuphuza, A. Iwasaki, D. Kartashov, K. Varga, G. G. Paulus, A. Baltuška, K. Yamanouchi, and M. Kitzler, "Role of proton dynamics in efficient photoionization of hydrocarbon molecules," *Phys. Rev. A*, **89**, 023429-1-9 (2014).
- 11) Y. Morimoto, R. Kanya, and K. Yamanouchi, "Laser-assisted electron diffraction for femtosecond molecular imaging," *J. Chem. Phys.*, **140**, 064201-1-8 (2014).

(2) その他

- 1) S. Ohmura, T. Oyamada, T. Kato, H. Kono, and S. Koseki, "Molecular orbital analysis of high harmonic generation," *JPS Conf. Proc.*, **1**, 013087-1-5 (2014).

2. 総説・解説

- 1) R. Itakura, K. Hosaka, A. Yokoyama, T. Ikuta, F. Kannari, and K. Yamanouchi, "Electron and ion coincidence momentum imaging of multichannel dissociative ionization of ethanol in intense laser fields," *Progress in Ultrafast Intense Laser Science XI*, 23-40, Springer International Publishing (2014).
- 2) T. Okino, Y. Furukawa, T. Shimizu, Y. Nabekawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Nonlinear Fourier transformation spectroscopy of small molecules with intense attosecond pulse train," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **47**, 124007-1-23 (2014).
- 3) B. Yang, L. Zhang, H. Xu, R. Li, and K. Yamanouchi, "Fragmentation of Hydrocarbon Molecules in Intense Laser Fields Studied by Coincidence Momentum Imaging: a Review," *Chinese Journal of Physics*, **52**, 1-II, 652-674 (2014).

3. 著書

- 1) K. Yamanouchi, G. G. Paulus, D. Mathur, editors, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science X*, Springer International Publishing (Switzerland), 2014.

4. その他