

Annual Research Highlights
(1) “Light-dressing effect in laser-assisted elastic electron scattering by Xe”

When an electron is elastically scattered by an atom in a laser field, the kinetic energy of the scattered electron changes by multiples of the photon energy. This scattering process is called laser-assisted elastic electron scattering (LAES). In 1984, Byron and Joachain calculated the differential cross section of the LAES process by a light-dressed H atom, and predicted that a peak structure would appear at the small scattering angles in the LAES signals with one-photon energy gain, showing that the small-angle LAES signals carry valuable information on the electron density distribution in a target atom in an external laser field. However, in the previous LAES experiments in which mid-infrared cw- or pulsed-CO₂ lasers were employed with rather moderate light-field intensities (<10⁹ W/cm²), no evidence of light-dressing effect was identified. In the present study, the observation of the light-dressing effect in the LAES process is reported for the first time since the theoretical prediction made more than 30 years ago.

Figure 1 shows the observed and simulated angular distributions of LAES signals with one-photon energy gain. In the observed angular distribution of the LAES signals (filled circles), a peak profile is recognized at small scattering angles ($\theta < 0.5^\circ$). This peak structure cannot be reproduced by a numerical simulation based on the Kroll-Watson theory (broken line), in which the laser-atom interaction is neglected. On the other hand, in a numerical simulation based on a model (solid line) in which the deformation of the electron density distribution of the target atom is approximated by a point-dipole induced by the oscillating laser electric field, a peak structure appears at the small scattering angle region of $\theta < 0.5^\circ$, showing that the observed peak structure originates from the light-dressing effect in Xe atoms induced by the intense laser field. Because the light-dressing effect in the LAES process reflects the time-dependent electron density distribution in a target atom or molecule, this peak profile representing the light-dressing effect will be of use for probing ultrafast variations of the electron density distribution within an atom or a molecule.

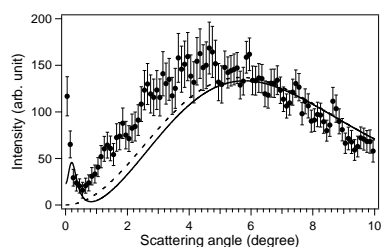


Fig. 1 The angular distributions of LAES signals with one-photon energy gain. Filled circle: experimental data. Broken line: simulation based on the Kroll-Watson theory. Solid line: simulation based on a model including the light-dressing effect.

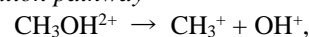
1.(1)-4) *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 123201-1-5 (2015).

(2) “Wave packet bifurcation in ultrafast hydrogen migration in CH₃OH⁺ by pump-probe coincidence momentum imaging with few-cycle laser pulses”

Ultrafast nuclear dynamics in CH₃OH⁺ has been explored on the basis of the released kinetic energy distributions of Coulomb explosion pathways of CH₃OH⁺ obtained by pump-probe coincidence momentum imaging (CMI) measurements using few-cycle laser pulses.

The 6-fs few-cycle intense laser pulses were generated by a hollow core fiber compression technique. The few-cycle laser pulses were introduced into a Michelson interferometer to generate pump and probe laser pulses. The optical time delay Δt of the probe laser pulse was scanned from -20 fs to 500 fs. These pulses were guided into an ultrahigh vacuum chamber to observe the two Coulomb explosion pathways;

Non-migration pathway



Migration pathway

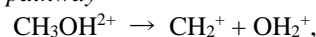


Figure 2 shows kinetic energy E_{kin} distributions of the non-migration pathway and the migration pathway as a function of the time delay Δt . In the non-migration pathway, only one component whose kinetic energy decreases as the time delay increases can be identified. This decay component shows that the C-O bond breaking proceeds in CH₃OH⁺. In the migration pathway, on the other hand, the peak position of the E_{kin} exhibits an oscillation in the delay time range between ~ 25 fs and ~ 150 fs and bifurcates into two components, that is, the decay component, assigned to the C-O bond breaking of CH₂OH₂⁺, CH₂OH₂⁺ \rightarrow CH₂⁺ + OH₂⁺, and the component keeping the constant peak position at $E_{\text{kin}} \sim 4.5$ eV, assigned to the C-O stretching vibration of CH₂OH₂⁺ trapped in the bound potential.

The characteristic time evolution of the kinetic energy distributions show that the hydrogen migration starts within CH₃OH⁺ immediately after it is excited to the potential energy surface (PES) of the second or higher-lying electronically excited state and that the prepared nuclear wave packet evolves and reaches the bound part of the PES of the electronic ground state of CH₂OH₂⁺ in 25 fs.

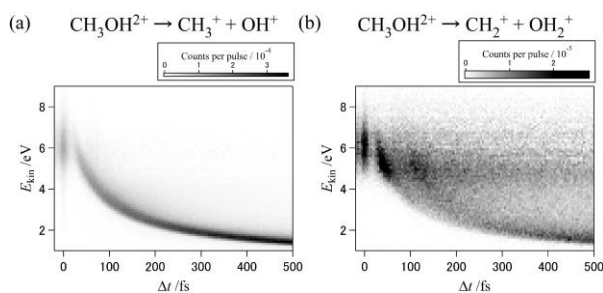


Fig. 2 The E_{kin} distributions of (a) the non-migration pathway and (b) the migration pathway as a function of Δt .

1.(1)-8) *Chem. Phys. Lett.*, **624**, 78-82 (2015).

研究ハイライト

(1) Xe 原子によるレーザーアシステッド弾性電子散乱における光ドレスト効果

電子がレーザー場中で原子によって弾性散乱されると、散乱電子の運動エネルギーがレーザー光子エネルギーの整数倍だけ変化する。この現象はレーザーアシステッド弾性電子散乱 (laser-assisted electron scattering; LAES) と呼ばれている。1984年に Byron と Joachain は光ドレスト状態にある水素原子による LAES 過程の微分散乱断面積を計算し、一光子だけエネルギー増加した LAES 信号の小角領域にピーク構造が現れることを予測した。この結果は、小角 LAES 信号が標的原子内の電子密度分布に関する有益な情報を持つことを示している。しかし、レーザー場強度 $< 10^9 \text{ W/cm}^2$ 程度の中赤外パルス CO_2 レーザーを用いた従来の LAES 観測実験では、この光ドレスト効果は検出されなかった。本研究では、理論予測から 30 年以上を経て、初めて LAES 過程における光ドレスト効果の観測に成功した。

図 1 に一光子だけエネルギー増加した LAES 信号の散乱角度分布を示す。実測の角度分布 (●印) の小角領域 ($\theta < 0.5^\circ$) にピーク構造が確認できるが、レーザーと原子の相互作用が考慮されていない Kroll-Watson 理論を基にした計算 (破線) では、このピーク構造を再現することができない。一方、標的原子内の電子分布の変化をレーザー電場によって誘起された双極子として近似したモデルによる計算 (実線) では、 $\theta < 0.5^\circ$ の小角領域にピーク構造が現れている。この結果は、観測されたピーク構造が、高強度レーザー場によって誘起された Xe 原子の光ドレスト効果に由来していることを示している。標的原子・分子の時間依存電子密度分布が LAES 過程における光ドレスト効果として反映されることを用いれば、光ドレスト効果によるピーク構造を測定することによって、原子・分子内の電子密度分布の超高速変化を解明できると考えられる。

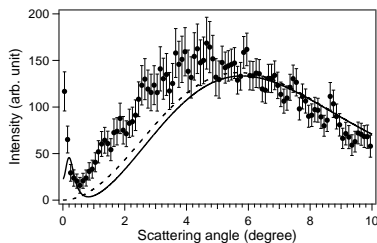


図 1 一光子だけエネルギー増加した LAES 信号の散乱角度分布。●印: 実験値、破線: Kroll-Watson 理論を基にした計算、実線: 光ドレスト効果を考慮したモデル計算。

1.(1)-4) *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 123201-1-5 (2015).

(2) 数サイクルレーザーパルスを用いたポンプ - プロブコインシデンス運動量画像法による CH_3OH^+ の超高速水素マイグレーションにおける振動波束の分岐の観測

強レーザーパルスによって誘起された CH_3OH^+ の分子ダイナミクスを、数サイクルレーザーパルスを用いたポンプ - プロブコインシデンス運動量画像法 (CMI 法) によって観測した。

中空ファイバーを用いたパルス圧縮法によってパルス幅 6 fs の数サイクルパルスを発生させ、マイケルソン干渉計によってポンプ光とプロブ光を生成した。プロブ光の遅延時間は -20 fs から 500 fs まで変化させた。ポンプ光とプロブ光を超高真空チャンバーに導入し、非水素マイグレーション過程 ($\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_3^+ + \text{OH}^+$) と水素マイグレーション過程 ($\text{CH}_3\text{OH}^{2+} \rightarrow \text{CH}_2^+ + \text{OH}_2^+$) を CMI 法によって観測した。

図 2 に非水素マイグレーション過程と水素マイグレーション過程の放出運動エネルギー (E_{kin}) の遅延時間 (Δt) 依存性を示す。非水素マイグレーション過程には、 Δt の増加につれて E_{kin} が単調に減少する成分が観測された。この成分は CH_3OH^+ の C-O 結合が解離する様子を示している。これに対し、水素マイグレーション過程では、 $25 \text{ fs} < \Delta t < 150 \text{ fs}$ の領域において E_{kin} が振動し、その後、 E_{kin} が単調に減少する成分と、 E_{kin} が $\sim 4.5 \text{ eV}$ に保たれる成分に分岐する。このことは、 CH_2OH_2^+ の C-O 結合が振動し、その後に C-O 結合が切断される成分と CH_2OH_2^+ の束縛ポテンシャルに留まる成分とがあることを示している。

今回見出された特徴ある放出運動エネルギーの遅延時間依存性は、 CH_3OH^+ の第二電子励起状態か、より高い電子励起状態に生成した振動波束が、25 fs より早く水素マイグレーションを起こし、電子基底状態の CH_2OH_2^+ 束縛ポテンシャルに到達することを示している。

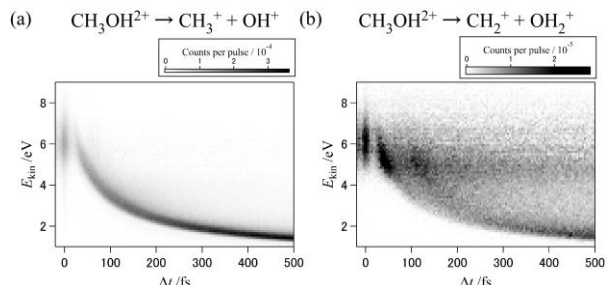


図 2 (a)非水素マイグレーション過程と(b)水素マイグレーション過程の E_{kin} 分布の遅延時間依存性。

1.(1)-8) *Chem. Phys. Lett.*, **624**, 78-82 (2015).

1. 原著論文

(1) Refereed Journals

- 1) T. Okino, K. Midorikawa, E. Takahashi, K. Yamanouchi, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, S. Miyabe, and A. Amani Eilanlou, "Direct observation of an attosecond electron wavepacket in a nitrogen molecule," *Sci. Adv.*, **1**, e1500356 -1-7 (2015).
- 2) X. Xie, E. Lötstedt, S. Roither, M. Schöffler, D. Kartashov, K. Midorikawa, A. Baltuška, K. Yamanouchi, and M. Kitzler, "Duration of an intense laser pulse can determine the breakage of multiple chemical bonds," *Sci. Rep.*, **5**, 12877 -1-11 (2015).
- 3) H. Xu, E. Lotstedt, A. Iwasaki, and K. Yamanouchi, "Sub-10 fs population inversion in N_2^+ in air lasing through multiple state coupling," *Nat. Commun.*, **6**, 8347 -1-6 (2015).
- 4) Y. Morimoto, R. Kanya, and K. Yamanouchi, "Light-dressing effect in laser-assisted elastic electron scattering by Xe," *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 123201-1-5 (2015).
- 5) Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. Amani Eilanlou, E. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Settling time of a vibrational wavepacket in ionization," *Nat. Commun.*, **6**, 8197-1-6 (2015).
- 6) H. Tomizawa, T. Sato, K. Ogawa, K. Togawa, T. Tanaka, T. Hara, M. Yabashi, H. Tanaka, T. Ishikawa, T. Togashi, S. Matsubara, Y. Okayasu, T. Watanabe, E. J. Takahashi, K. Midorikawa, M. Aoyama, K. Yamakawa, S. Owada, A. Iwasaki, and K. Yamanouchi, "Stabilization of a high-order harmonic generation seeded extreme ultraviolet free electron laser by time-synchronization control with electro-optic sampling," *High Power Laser Science and Engineering*, **3**, e14-1-10 (2015).
- 7) Y. Nabekawa, Y. Furukawa, T. Okino, A. Amani Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Frequency-resolved optical gating technique for retrieving the amplitude of a vibrational wavepacket," *Sci. Rep.*, **5**, 11366-1-14 (2015).
- 8) T. Ando, A. Shimamoto, S. Miura, K. Nakai, H. Xu, A. Iwasaki, and K. Yamanouchi, "Wave packet bifurcation in ultrafast hydrogen migration in CH_3OH^+ by pump-probe coincidence momentum imaging with few-cycle laser pulses," *Chem. Phys. Lett.*, **624**, 78-82 (2015).

(2) その他

- 1) T. Kato, Y. Ide, and K. Yamanouchi, "Molecular wave function and effective adiabatic potentials calculated by extended multi-configuration time-dependent Hartree-Fock method," *AIP Conf. Proc.*, **1702**, 090024-1-4 (2015).
- 2) E. J. Takahashi, P. Lan, T. Okino, Y. Furukawa, Y. Nabekawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Intense attosecond pulses for probing ultrafast molecular dynamics," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 16-19 (2015).
- 3) T. Okino, Y. Furukawa, A. Amani Eilanlou, Y. Nabekawa, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Attosecond frequency resolved momentum imaging of two-photon dissociative ionization dynamics of nitrogen molecules," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 24-27 (2015).
- 4) Y. Furukawa, T. Okino, Y. Nabekawa, A. Amani Eilanlou, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "High-order harmonics fourier transform spectroscopy of two-photon dissociative ionization of hydrogen molecules," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 28-31 (2015).
- 5) T. Okino, Y. Furukawa, A. Amani Eilanlou, Y. Nabekawa, E. J. Takahashi, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa, "Simultaneous observation of vibrational wavepackets of nitrogen molecule in neutral and singly-charged manifolds," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 32-35 (2015).
- 6) X. Xie, K. Doblhoff-Dier, H. Xu, S. Roither, M. Schöffler, D. Kartashov, S. Erattupuzha, T. Rathje, G. G. Paulus, K. Yamanouchi, A. Baltuška, S. Gräfe, and M. Kitzler, "Controlling fragmentation reactions of polyatomic molecules with impulsive laser alignment," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 138-142 (2015).
- 7) H. Hasegawa, Y. Ikeda, K. Sonoda, T. Sato, A. Iwasaki, and K. Yamanouchi, "Intense field ionization of C_2H_2 and $^{12}C^{13}CH_2$ aligned in field-free space," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 143-146 (2015).
- 8) K. Sonoda, H. Hasegawa, T. Sato, A. Iwasaki, and K. Yamanouchi, "Ionization of aligned O_2 by intense laser pulse," *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 147-149 (2015).

- 9) X. Xie, E. Lötstedt, S. Roither, M. Schöffler, D. Kartashov, K. Yamanouchi, K. Midorikawa, A. Baltuška, and M. Kitzler, “Strong-field electronic control of multiple-bond breaking dynamics in ethylene,” *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 150-154 (2015).
- 10) M. Kitzler, X. Xie, S. Roither, E. Lötstedt, M. Schöffler, D. Kartashov, G. G. Paulus, A. Iwasaki, A. Baltuška, and K. Yamanouchi, “Electronic pre-determination of ethylene fragmentation dynamics,” *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 155-159 (2015).
- 11) K. Nakai and K. Yamanouchi, “Long-lived neutral H₂ in hydrogen migration within hydrocarbon dication,” *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 160-163 (2015).
- 12) Y. Morimoto, R. Kanya, and K. Yamanouchi, “Laser-assisted electron diffraction for probing femtosecond nuclear dynamics of gas-phase molecules,” *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 188-191 (2015).
- 13) H. Xu, W. Chu, H. Li, J. Ni, B. Zeng, J. Yao, H. Zhang, G. Li, C. Jing, H. Xie, K. Yamanouchi, and Y. Cheng, “Filament-driven lasing action for combustion diagnosis,” *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference, Springer Proceedings in Physics*, **162**, 192-195 (2015).

2. 総説・解説

- 1) 鍋川康夫, 古川裕介, 沖野友哉, 山内 薫, 緑川克美, “高強度アト秒パルス列を用いた水素イオン振動波束の研究,” *レーザー研究*, **43**, 823-827 (2015).
- 2) 歸家令果, “フェムト秒レーザーパルスによるレーザーアシステッド電子散乱,” *しょうとつ*, **12**, 64-85 (2015).
- 3) 沖野友哉, 古川裕介, 鍋川康夫, 山内薫, 緑川克美, “アト秒非線形フーリエ分子分光,” *レーザー研究*, **43**, 217-221 (2015).
- 4) 歸家令果, 山内 薫, “フェムト秒レーザーアシステッド電子散乱,” *レーザー研究*, **43**, 159-163 (2015).
- 5) 沖野友哉, 山内 薫, “強光子場・アト秒科学の基礎と歴史,” *強光子場の化学—分子の超高速ダイナミクス*, CSJ カレントレビュー**18** (日本化学会編), Part I 2 章, 14-24, 化学同人 (2015).
- 6) 中井克典, 山内 薫, “強光子場中誘起水素マイグレーション,” *強光子場の化学—分子の超高速ダイナミクス*, CSJ カレントレビュー**18** (日本化学会編), Part II 6 章, 65-70, 化学同人 (2015).
- 7) 河野裕彦, 加藤 毅, “時間依存断熱状態法による強レーザー場中分子ダイナミクス,” *強光子場の化学—分子の超高速ダイナミクス*, CSJ カレントレビュー**18** (日本化学会編), Part II 7 章, 71-76, 化学同人 (2015).
- 8) 森本裕也, 歸家令果, 山内 薫, “超高速レーザーアシステッド電子回折,” *強光子場の化学—分子の超高速ダイナミクス*, CSJ カレントレビュー**18** (日本化学会編), Part II 11 章, 98-102, 化学同人 (2015).

3. 著書

- 1) K. Yamanouchi, L. Roso, R. Li, D. Mathur, and D. Normand, editors, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science XII*, Springer International Publishing (Switzerland), 2015.
- 2) K. Yamanouchi, S. Cundiff, R. de Vivie-Riedle, M. Kuwata-Gonokami, and M. DiMauro, editors, *Ultrafast Phenomena XIX, Proceedings of the 19th International Conference*, Springer Proceedings in Physics, **162**, Springer International Publishing, 2015.
- 3) K. Yamanouchi, C. H. Nam, and P. Martin, editors, *Progress in Ultrafast Intense Laser Science XI*, Springer International Publishing (Switzerland), 2015.

4. その他