

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H00371

研究課題名(和文) 強レーザー場フーリエ変換分光法による分子および分子錯体の超高分解能分光

研究課題名(英文) Strong-field ultra-high resolution Fourier transform spectroscopy of molecules and molecular complexes

研究代表者

山内 薫 (Yamanouchi, Kaoru)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・教授

研究者番号：40182597

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,200,000円

研究成果の概要(和文)：独自に開発を進めてきた「強レーザー場超高分解能フーリエ変換分光法」の計測精度を2桁向上させ、分光計測によって達成できる原子や分子の遷移周波数の計測精度を9桁まで高めた。長尺高精度干渉計を構築し、高強度超短パルスレーザー光によるポンプ・プローブ計測を行った。イオン収率の遅延時間依存性のフーリエ変換(FT)スペクトルから、原子、分子の振動状態、電子状態の準位エネルギーを高精度で決定した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強レーザー場超高分解能フーリエ変換(SURF)分光法は、従来では計測の困難であった無極性分子・分子イオンの回転・振動数を高精度で決定することが出来るため、SURF分光法の幅広い応用が期待されている。本研究では、SURF分光法の精度を2桁高めるとともに、原子・分子の振動分光を行うことによって、先行研究よりも飛躍的に高い精度でエネルギー準位の決定を行った。

研究成果の概要(英文)：We have improved the precision of the measurements of level energies of atoms and molecules by two orders of magnitude by strong-field ultrahigh resolution Fourier transform (SURF) spectroscopy, developed by our group, by using a long-arm interferometer newly constructed in the present project and demonstrated that the ppb (parts per billion) level accuracy can be achieved by SURF spectroscopy.

研究分野：基礎化学、物理化学

キーワード：原子・分子分光 強光子場科学

1. 研究開始当初の背景

高強度近赤外数サイクルレーザーパルスを分子に照射することによって、分子・分子イオンの回転振動波束が生成される。生成した回転振動波束をポンプ・プローブ法によって実時間観測することによって、さまざまな分子ダイナミクスが明らかにされてきた。近年我々は、高強度近赤ポンプ・プローブレーザーパルスを用いたポンプ・プローブ計測によって得られる信号をフーリエ変換することによって、 $D_2^+$ 分子の回転・振動数を高精度で決定できることを示した[1]。この分光法を強レーザー場超高分解能フーリエ変換(Strong-field ultra-high resolution Fourier transform: SURF) 分光法と呼ぶ。SURF 分光によって無極性分子・分子イオンの回転・振動数を高精度で決定することが出来るため、SURF 分光法の幅広い応用が期待されている。

2. 研究の目的

「SURF 分光を用いて、従来の高分解能分光では分離して観測できなかった分子および分子クラスターのエネルギー準位を実験的にどこまで分離して観測することができるか」という問いに着実に答えるために、長尺(掃引距離 6 m)の高精度干渉計を構築し、ppb (=  $10^{-9}$ )精度で分光計測を実現する。

3. 研究の方法

SURF 分光の周波数精度を向上させるために、装置開発「(1)長尺干渉計の開発とデータ取得システムの改良」を行った。また、現状の SURF 分光の系統誤差の要因を低減させるために、「(2)自己位相変調を利用した AC シュタルクシフトの低減」、「(3)超音速分子線を用いたドップラーシフトの計測」を行った。その後、開発した装置を用いて水素分子と希ガス原子の SURF 分光を行った。

4. 研究成果

(1)長尺干渉計の開発とデータ取得システムの改良

長尺干渉計: 図 1 に示す長尺干渉計を構築した。なお、空気の群速度分散の影響を避けるために、長尺干渉計は真空チャンバー内に構築している。遅延時間を高精度で計測するために、ポンプ光・プローブ光と平行に、周波数安定化 He-Ne レーザーを干渉計に導入し、He-Ne レーザーの干渉信号をフォトダイオードを用いて計測した。この長尺干渉計を用いて、ポンプ光とプローブ光の遅延時間を最大で 17 ns 掃引することが可能となる。その際に達成できる分解能は、 $2 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  (= 64 MHz)となる。その結果、既存の干渉計(遅延時間は最大で 0.5 ns)を用いて得られる分解能を 30 倍以上向上させることができた。単一周波数成分の周波数を決定する場合、得られる周波数の精度は分解能に比例することから、既存の干渉計を用いて得られた計測の周波数精度(100 ppb 程度)が 3ppb 程度の周波数精度にまで高められたことになる。

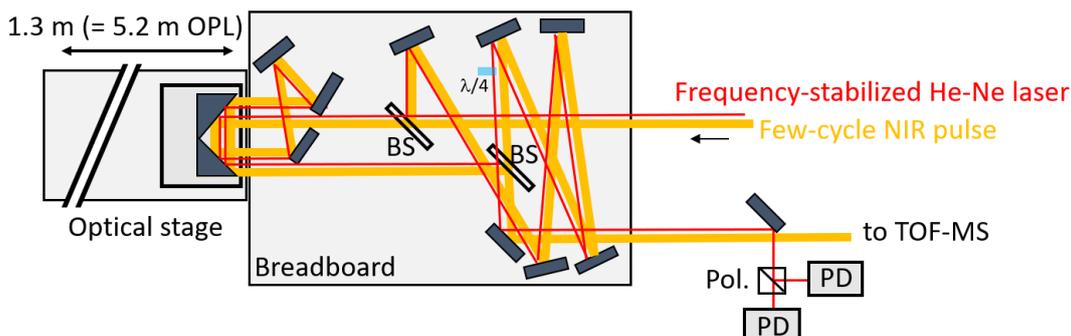


図 1. 長尺干渉計の模式図

データ取得システム: フォトダイオードの信号を FPGA を搭載した A/D コンバータによって、そして、ポンプ・プローブ計測で得られるイオンの信号を FPGA を搭載したトランジェントデジタルタイザを用いて測定することによって、フォトダイオードの信号とイオンの信号を高い時間精度で同期して取得することを可能とした。その結果、干渉計の機械的振動に由来する遅延時間のゆらぎを無視することが可能となった。また、トランジェントデジタルタイザを用いてイオン信号を解析することによって、同時に観測できる親イオン・フラグメントイオンのチャンネル数を 2 チャンネルから 16 チャンネルに増やすことができた。

(2)自己位相変調を利用した AC シュタルクシフトの低減

SURF 分光は、原理的には AC シュタルクフリーな分光手法である。しかしながら、実際に用いるレーザーパルスが裾を持つ場合、レーザーパルスの裾によってシュタルクシフトが起こる。図 2 にフォトダイオードを用いて計測したレーザーパルスのナノ秒コントラストを示す。この図から分かるように、-3 ns 付近と 10 ns 付近にレーザーパルスの裾構造がある。この裾構造が引き起こす AC シュタルクシフトの大きさは H<sub>2</sub> 分子の振動数の場合で 10<sup>-4</sup> cm<sup>-1</sup> 程度となる。そこで、AC シュタルクシフトを低減させるために、自己位相変調を利用したパルスコントラストの改善を行った。パルスコントラストの改善方法としては XPW(Crossed polarized wave)発生が良く用いられている。しかしながら、XPW 発生の変換効率はパルス幅が短くなるほど低下し、本研究に用いた sub-10 fs レーザーパルスの場合には 10 %以下と非常に低くなる。そのため、本研究では自己位相変調を利用した。

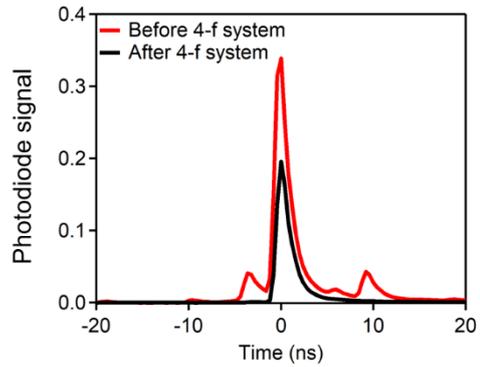


図 2. 数サイクルパルスレーザーのナノ秒パルスコントラスト。赤線: 4-f 光学系導入前。黒線: 4-f 光学系導入後。

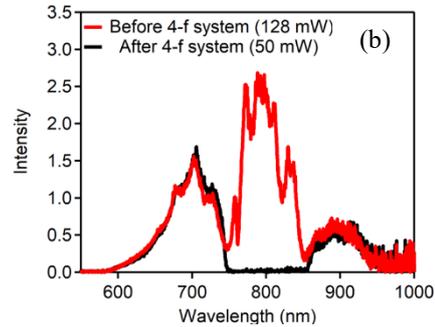
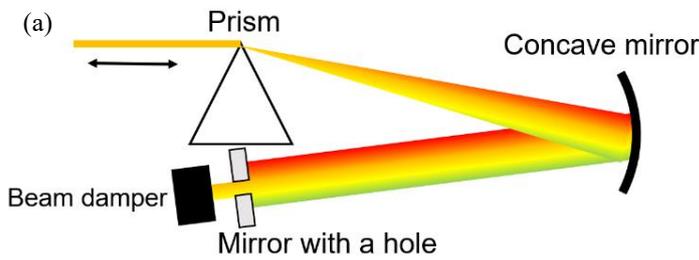


図 3. (a) 4-f 光学系の模式図。(b)4-f 光学系前後のスペクトル。

図 3 に 4-f 光学系の模式図と 4-f 光学系前後のスペクトルを示す。自己位相変調前のレーザー光のスペクトルは 800±20 nm であり、まず、自己位相変調によってスペクトル幅を 600~950 nm に広げた。その後、図 3(b)に示すように 4-f 光学系によって 800±50 nm の成分を取り除いた。自己位相変調は 3 次の非線形光学現象であり、レーザー光が強いときにしか起こらないため、自己位相変調によって生成したスペクトル成分のパルスコントラストは非常に高くなる。図 2 の黒線で示したように、4-f 光学系後のパルスコントラストは非常に高いことが確認され、AC シュタルクシフトの量は十分小さい(< 10<sup>-7</sup> cm<sup>-1</sup>)ものと見積もられた。

(3)超音速分子線を用いたドップラーシフトの計測

サンプルである分子の進行方向とレーザーの伝搬方向は直交させているため、理想的には一次のドップラーシフトは考慮する必要がない、しかしながら、実際の分子の進行方向とレーザーの伝搬方向のなす角は 90°からθだけずれる可能性があり、そのとき、ドップラーシフトの相対的な大きさΔf/fは

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{\bar{v}}{c} \sin\theta$$

と表せる。v̄は分子の平均速度、cは光速である。ドップラーシフトの量を計測するために、サンプルとして超音速分子線を用い、超音速分子線を発生させた後のレーザー照射の時刻を変えることによって、レーザー光が照射される分子の平均速度を変え、SURF 分光を行った。

図 4 に示すのが、Ar<sup>+</sup>の微細構造エネルギーの分子線速度依存性である。分子線とレーザーの伝搬方向のなす角を最適化する前は、得られたエネルギーが分子線の速度に対して線形に変化している。これは、一次のドップラーシフトによるものである。この結果を基にレーザーの伝搬方向の調整を行い、再測定を行ったところ、図 4 の黒点のように、得られるエネルギーが分子線の速度に依存しないものとなった。このようにして、一次のドップラーシフトを測定し、さらに低減させることができることを示した。

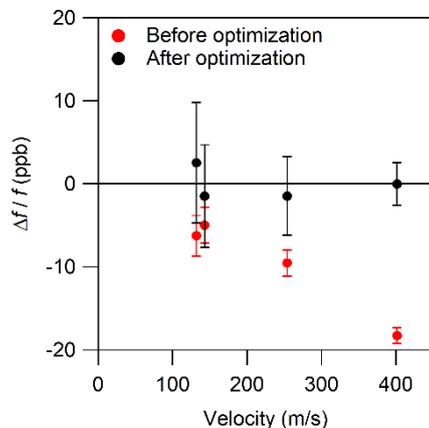


図 4. Ar<sup>+</sup>の微細構造エネルギーのサンプルの平均速度依存性。赤丸: レーザー光の集光位置の調整前。黒丸: レーザー光の集光位置の調整後。

#### (4) H<sub>2</sub> の基準振動数

SURF 分光によって得られた H<sub>2</sub> の基準振動スペクトルを図 5 に示す。このスペクトルから、H<sub>2</sub> の基準振動数を 13 ppb の精度で決定した。H<sub>2</sub> 分子の基準振動数は実験 [2] と理論 [3] の両側面から高い精度で求められている。しかしながら、実験値と理論値の間には 1.5σ のずれがあった。今回得られた基準振動数は理論計算によって得られたものと良く一致し、また、精度は先行研究 [2] よりも 3 倍高くなった [4]。

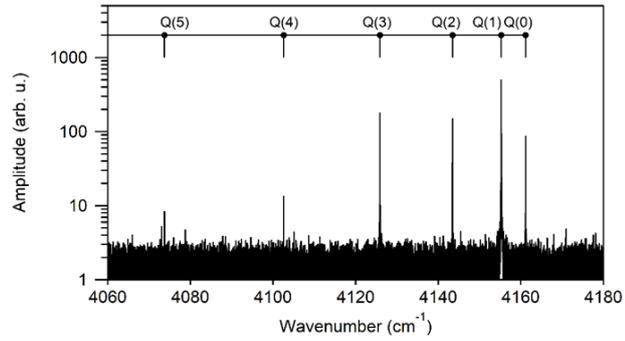


図 5. H<sub>2</sub><sup>+</sup> の振動スペクトル。分解能は 0.005 cm<sup>-1</sup>。

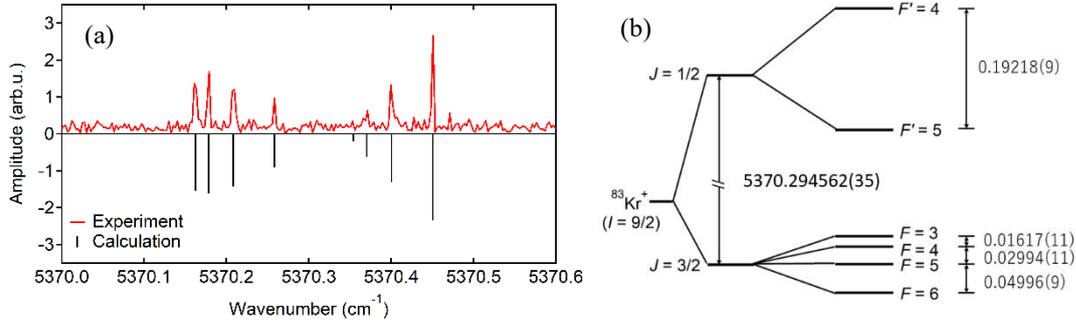


図 6. (a) <sup>83</sup>Kr<sup>+</sup> の SURF スペクトル(赤線)と、計算によって得られた超微細構造間のピーク強度(黒線)。分解能は 0.0026 cm<sup>-1</sup>。 (b) <sup>83</sup>Kr<sup>+</sup> の超微細構造のエネルギーダイアグラム

#### (5) Kr<sup>+</sup> の超微細構造分裂と微細構造分裂における同位体シフト

図 6(a) に <sup>83</sup>Kr<sup>+</sup> の SURF スペクトルと、計算によって得られた超微細構造間のピーク強度を示す。図 6(b) に示すように、<sup>83</sup>Kr<sup>+</sup> の下順位 ( $J = 3/2$ ) は 4 つに分裂し、上順位 ( $J = 1/2$ ) は 2 つに分裂するため、この 2 つの順位間での遷移は  $8 (= 4 \times 2)$  本観測されることが予測される。計算によって得られた 8 本のピーク強度は、実験によって得られたピーク強度と良く一致した。また、実験によって得られたピークの位置から超微細構造のエネルギー準位を求めるとともに、超微細構造結合定数 ( $A_{1/2}$ ,  $A_{3/2}$ ,  $B_{3/2}$ ) を得た (Table 1)。  $A_{1/2}$  については、文献値 [7] と良く一致しているが、その精度を 20 倍高めることができた。また、 $A_{3/2}$ ,  $B_{3/2}$  については、2 つの先行研究 [5, 6] によって値が異なっていたものの、先行研究 [5] によって得られた値と一致した。今回の計測によって、 $A_{3/2}$  と  $B_{3/2}$  の精度を、それぞれ 4 倍、8 倍高めることができた。

Table 1. 超微細構造結合定数の比較

	SURF 計測	Ref. 5	Ref. 6	Ref. 7
$A_{1/2}$	-0.038436(19)			-0.0385(5)
$A_{3/2}$	-0.006620(7)	-0.00661(3)	-0.00616(4)	
$B_{3/2}$	-0.015376(91)	-0.0154(7)	-0.0127(4)	

図 7 に質量数 80, 82, 84, 86 の Kr<sup>+</sup> の微細構造分裂における同位体シフトを示す。質量数が  $A$  と  $A'$  の同位体間の周波数の差  $\delta v (\equiv v^A - v^{A'})$  は、

$$\delta v = \frac{K_i}{\mu^{AA'}} + F_i \delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'}$$

と表せる。右辺第一項は原子核の質量の違い由来する項(質量シフト)であり、 $\mu^{AA'}$  は原子核の質量  $m_A$  を用いて  $(\mu^{AA'})^{-1} = (m_{A'})^{-1} - (m_A)^{-1}$  と表され、 $K_i$  は質量シフト係数である。右辺第二項はフィールドシフトと呼ばれ、 $\delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'}$  は原子核の有効電荷半径の差 ( $\delta \langle r_c^2 \rangle^{AA'} = \langle r_c^2 \rangle^A - \langle r_c^2 \rangle^{A'}$ ) であり、フィールドシフト係数  $F_i$  は上準位と下準位における原子核の電荷密度の差に比例する。微細構造分裂においては、上準位と下準位の原子核における電荷密度の差は相対論的な効果による電荷密度分布の歪みによって生じるものであり、その量は非常に小さいと考えられる。そのため、今回得られた同位体シフトは質量シフトに帰属でき、 $K_i$  は  $1.934(19) \text{ cm}^{-1} \cdot \text{a.m.u.}$  と求められる。一電子モデルの場合に得られる質量シフトの大きさ(正常質

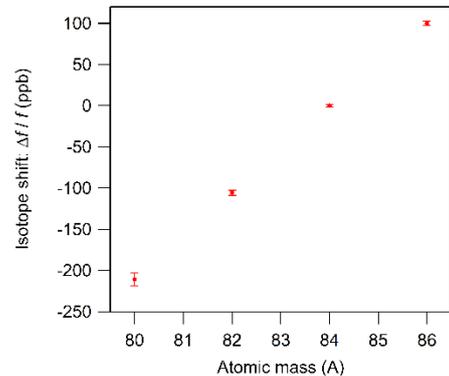


図 7. 質量数 80, 82, 84, 86 の Kr<sup>+</sup> の微細構造分裂における同位体シフト

量シフト)は  $2.925 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{a.m.u.}$  であることから、その同位体シフトが盛んに研究されているアルカリ様原子と比較して電子相関の影響(特定質量シフト)が大きく表れていることが分かる。

#### 引用文献

- [1] T. Ando, A. Iwasaki, K. Yamanouchi, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 263002 (2018).
- [2] W. Ubach et al., *J. Mol. Spec.* **300**, 44-54 (2014).
- [3] J. Komasa et al., *Phys. Rev. A* **100**, 032519 (2019).
- [4] T. Ando, K. Yamada, A. Iwasaki, K. Yamanouchi, “Strong-field ultrahigh-resolution Fourier-transform spectroscopy of H<sub>2</sub> molecule,” 第 16 回分子科学討論会 (2022).
- [5] M. Schäfer, F. Merkt, *Phys. Rev. A* **74**, 062506 (2006).
- [6] H. J. Wörner, U. Hollenstein, F. Merkt, *Phys. Rev. A* **68**, 032510 (2003).
- [7] Th. A. Paul, J. Liu, F. Merkt, *Phys. Rev. A* **79**, 022505 (2009).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計27件（うち査読付論文 27件／うち国際共著 11件／うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Fukahori Shinichi, Iwasaki Atsushi, Yamanouchi Kaoru, Hasegawa Hirokazu	4. 巻 156
2. 論文標題 Single and sequential double ionization of NO radical in intense laser fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 094307 ~ 094307
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0077239	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kitanaka Michihiro, Ishikawa Motoki, Kanya Reika, Yamanouchi Kaoru	4. 巻 795
2. 論文標題 Observation of terahertz-wave assisted electron scattering by Ar	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 139512 ~ 139512
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2022.139512	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Suzuki Takahiro, Kato Keiko, Tanaka Hideaki, Isoyama Kazuki, Kanya Reika, Yamanouchi Kaoru	4. 巻 802
2. 論文標題 Determination of geometrical structure of CCl3+ by trapped-ion electron diffraction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 139753 ~ 139753
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2022.139753	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Matsubara Takuya, Nabekawa Yasuo, Ishikawa Kenichi L., Yamanouchi Kaoru, Midorikawa Katsumi	4. 巻 2022
2. 論文標題 Attosecond Optical and Ramsey-Type Interferometry by Postgeneration Splitting of Harmonic Pulse	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Ultrafast Science	6. 最初と最後の頁 9858739-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.34133/2022/9858739	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Fu Yao, Cao Jincheng, Yamanouchi Kaoru, Xu Huailiang	4. 巻 2022
2. 論文標題 Air-Laser-Based Standoff Coherent Raman Spectrometer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Ultrafast Science	6. 最初と最後の頁 9867028-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.34133/2022/9867028	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Kageyama Hiroyuki, Szidarovszky Tamas, Ando Toshiaki, Iwasaki Atsushi, Csaszar Attila G., Yamanouchi Kaoru	4. 巻 805
2. 論文標題 Vibrational wave packet dynamics of H2O+ and H2O by strong-field Fourier transform spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 139941 ~ 139941
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2022.139941	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Hayashi Ryosuke, Iwasaki Atsushi, Vasa Parinda, Yamanouchi Kaoru	4. 巻 12
2. 論文標題 Determination of electron and phonon temperatures in gold thin film irradiated with an ultrashort laser pulse	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 095207 ~ 095207
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0090466	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Wang Siqi, Loetstedt Erik, Cao Jincheng, Fu Yao, Zang Hongwei, Li Helong, Yamanouchi Kaoru, Xu Huailiang	4. 巻 106
2. 論文標題 Modulation of population inversion in N2+ by a pump-control-seed scheme	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 033110-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.106.033110	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Zhang Meng、Ando Toshiaki、Iwasaki Atsushi、Wang Lidong、Koh Sho、Yamanouchi Kaoru	4. 巻 806
2. 論文標題 Ionization and ultrafast hydrogen migration of methylamine in few-cycle intense near-infrared laser fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 140061 ~ 140061
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2022.140061	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishikawa Motoki、Ishida Kakuta、Kanya Reika、Yamanouchi Kaoru	4. 巻 7
2. 論文標題 Angle-Resolved Time-of-Flight Electron Spectrometer Designed for Femtosecond Laser-Assisted Electron Scattering and Diffraction	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Instruments	6. 最初と最後の頁 4-1-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/instruments7010004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Motoyama Hiroto、Iwasaki Atsushi、Mimura Hidekazu、Yamanouchi Kaoru	4. 巻 16
2. 論文標題 Submicron structures created on Ni thin film by submicron focusing of femtosecond EUV light pulses	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 016503-1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/acaebe	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takuya Matsubara、Shinichi Fukahori、Erik Lotstedt、Yasuo Nabekawa、Kaoru Yamanouchi、Katsumi Midorikawa	4. 巻 8
2. 論文標題 300-attosecond response of acetylene in two-photon ionization/dissociation processes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optica	6. 最初と最後の頁 1075 ~ 1075
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OPTICA.426071	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Youyuan Zhang, Erik Lotstedt, Toshiaki Ando, Atsushi Iwasaki, Huailiang Xu, Kaoru Yamanouchi	4. 巻 104
2. 論文標題 Rotational population transfer through the A2 u-X2 g+B2 u+ coupling in N2+ lasing	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 23107
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.104.023107	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Toshiaki Ando, Alex Liu, Naoki Negishi, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi	4. 巻 104
2. 論文標題 Spin-orbit splitting of Ar+, Kr+, and Kr2+ determined by strong-field ultrahigh-resolution Fourier transform spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 33516
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.104.033516	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Siqi Wang, Erik Lotstedt, Jincheng Cao, Yao Fu, Hongwei Zang, Helong Li, Toshiaki Ando, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi, Huailiang Xu	4. 巻 104
2. 論文標題 Population inversion in N2+ by vibrationally mediated Rabi oscillation at 400 nm	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 32823
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.104.032823	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 E. Lotstedt, T. Szidarovszky, F. H. M. Faisal, T. Kato, K. Yamanouchi	4. 巻 53
2. 論文標題 Excited-state populations in the multiconfiguration time-dependent Hartree-Fock method	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 24301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ab7c3b	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Y. Zhang, E. Lstedt, K. Yamanouchi	4. 巻 101
2. 論文標題 Rotationally induced population inversion between the B2 u+ and X2 g+ states of N2+ exposed to an intense laser pulse	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW A	6. 最初と最後の頁 53412
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.101.053412	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Sakaue, H. Motoyama, R. Hayashi, A. Iwasaki, H. Mimura, K. Yamanouchi, T. Shibuya, M. Ishino, T.-H. Dinh, H. Ogawa, T. Higashiguchi, M. Nishikino, R. Kuroda	4. 巻 45
2. 論文標題 Surface processing of PMMA and metal nano-particle resist by sub-micrometer focusing of coherent extreme ultraviolet high-order harmonics pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 2926-2929
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.392695	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Q. Zhang, S. Fukahori, T. Ando, R. Kanya, A. Iwasaki, T. Rathje, G. G. Paulus, K. Yamanouchi	4. 巻 152
2. 論文標題 Absolute carrier-envelope-phase dependences of single and double ionization of methanol in a near-IR few-cycle laser field	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 194304-1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0006485	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 S. Fukahori, T. Matsubara, Y. Nabekawa, K. Yamanouchi, K. Midorikawa	4. 巻 53
2. 論文標題 Ultrafast electron-nuclear wavepacket in O2+ generated and probed with attosecond pulse trains	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics	6. 最初と最後の頁 164001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6455/ab94cc	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Kangaparambil, V. Hanus, M. Dorner-Kirchner, P. He, S. Larimian, G. Paulus, A. Baltuska, X. Xie, K. Yamanouchi, F. He, E. Lotstedt, M. Kitzler-Zeiler	4. 巻 125
2. 論文標題 Generalized phase-sensitivity of directional bond-breaking in laser-molecule interaction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW LETTERS	6. 最初と最後の頁 23202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.125.023202	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 E. Lotstedt, M. F. Ciappina, K. Yamanouchi	4. 巻 102
2. 論文標題 Static-field ionization model of He-like ions for diagnostics of light field intensity	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW A	6. 最初と最後の頁 13112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.102.013112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 H. Li, E. Lotstedt, H. Li, Y. Zhou, N. Dong, L. Deng, P. Lu, T. Ando, A. Iwasaki, Y. Fu, S. Wang, J. Wu, K. Yamanouchi, H. Xu	4. 巻 125
2. 論文標題 Giant enhancement of air lasing by complete population inversion in N2+	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW LETTERS	6. 最初と最後の頁 53201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.125.053201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Nishi, E. Lotstedt, K. Yamanouchi	4. 巻 102
2. 論文標題 Time delay in the coherent vibrational motion of H2+ created by ionization of H2	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 PHYSICAL REVIEW A	6. 最初と最後の頁 51101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.102.051101	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. A. Strelnikov, A. S. Konev, O. V. Levin, A. F. Khlebnikov, A. Iwasaki, K. Yamanouchi, N. V. Tkachenko	4. 巻 125
2. 論文標題 Switching competition between electron and energy transfers in porphyrin-fullerene dyads	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 10859-11040
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c06931	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Ando, A. Iwasaki, K. Yamanouchi	4. 巻 -
2. 論文標題 Ultrafast femtosecond dynamics and high-resolution spectroscopy in molecular cations	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Molecular Spectroscopy and Quantum Dynamics (R. Marquardt and M. Quack Eds.)	6. 最初と最後の頁 283-300
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Zhang, E. Lotstedt, K. Yamanouchi	4. 巻 15
2. 論文標題 Mechanism of population inversion in N <sub>2</sub> <sup>+</sup>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Progress in Ultrafast Intense Laser Science	6. 最初と最後の頁 21-41
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計29件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 17件)

1. 発表者名 Youyuan Zhang, Erik Lotstedt, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Rotational population transfer through the A <sub>2</sub> u-X <sub>2</sub> g+-B <sub>2</sub> u+ coupling in N <sub>2</sub> <sup>+</sup> lasing
3. 学会等名 International Symposium on Atomic, Molecular, and Optical Science 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshiaki Ando, Kana Yamada, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Development for strong-field ultrahigh-resolution Fourier-transform spectroscopy with ppb precision
3. 学会等名 International Symposium on Atomic, Molecular, and Optical Science 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takuya Matsubara, Yasuo Nabekawa, Kenichi Ishikawa, Kaoru Yamanouchi, Katsumi Midorikawa
2. 発表標題 Attosecond optical and Ramsey-type interferometry using high-order harmonics
3. 学会等名 International Symposium on Atomic, Molecular, and Optical Science 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takuya Matsubara, Shinichi Fukahori, Erik Lotstedt, Yasuo Nabekawa, Kaoru Yamanouchi, K. Midorikawa
2. 発表標題 Nonlinear Fourier transform spectroscopy of acetylene in extreme ultraviolet wavelength region by intense attosecond pulse trains
3. 学会等名 Symposium on Ultrafast Intense Laser Chemistry (#387), The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshiaki Ando, Alex Liu, Naoki Negishi, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Spin-orbit splitting energies of Ar <sup>+</sup> and Kr <sup>+</sup> determined by strong-field ultrahigh-resolution Fourier transform spectroscopy
3. 学会等名 Symposium on Ultrafast Intense Laser Chemistry (#387), The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Qiqi Zhang, Shinichi Fukahori, Toshiaki Ando, Reika Kanya, Atsushi Iwasaki, Tim Rathje, Gerhard G. Paulus, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Absolute CEP dependences of single and double ionization of methanol in an intense few-cycle laser field
3. 学会等名 Symposium on Ultrafast Intense Laser Chemistry (#387), The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Ultrafast molecular dynamics and ultrahigh resolution spectroscopy using ultrashort intense laser pulses
3. 学会等名 Symposium on Ultrafast Intense Laser Chemistry (#387), The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takuya Matsubara, Yasuo Nabekawa, Kenichi Ishikawa, Kaoru Yamanouchi, Katsumi Midorikawa
2. 発表標題 Attosecond optical and Ramsey-type interference
3. 学会等名 2021 Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe - European Quantum Electronics Virtual Conferences (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kana Yamada, Toshiaki Ando, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Ultrafast nuclear dynamics of electronically highly-excited O <sub>2</sub> <sup>+</sup> prepared by high-order harmonics of near-infrared femtosecond laser pulses
3. 学会等名 Symposium on Ultrafast Intense Laser Chemistry (#387), The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshiaki Ando, Kana Yamada, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Development of long-arm interferometer for strong-field ultrahigh-resolution Fourier-transform spectroscopy with ppb precision
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takuya Matsubara, Yasuo Nabekawa, Kenichi L. Ishikawa, Kaoru Yamanouchi, Katsumi Midorikawa
2. 発表標題 Attosecond optical and Ramsey-type interferometry using high-order harmonics
3. 学会等名 日本化学会第102春季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Yamanouchi [Plenary talk]
2. 発表標題 Ultrafast molecular dynamics and ultrahigh resolution spectroscopy using ultrashort intense laser pulses
3. 学会等名 Photonics Asia 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Toshiaki Ando, Alex Liu, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Determination of spin orbit splitting of Kr and Kr 2+ by ultrafast motion of the valence electrons
3. 学会等名 The 22nd International Conference of Ultrafast Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryosuke Hayashi, Atsushi Iwasaki Parinda Vasa, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Ultrafast electron relaxation and phonon thermalization processes in gold thin film observed by transient reflectometry
3. 学会等名 第14回分子科学討論会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kana Yamada, Toshiaki Ando, Atsushi Iwasaki, and Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Ultrafast nuclear dynamics of electronically highly excited O <sub>2</sub> <sup>+</sup> investigated by pump-probe measurements using near-infrared laser pulses and high-order harmonics
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 E. Loetstedt, M. F. Ciappina, K. Yamanouchi
2. 発表標題 Static-field ionization rates of He-like ions for intensity estimation of ultra-intense laser pulses
3. 学会等名 Symposium on Recent Development in Ultrafast Intense Laser Science 2 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 E. Loetstedt, M. F. Ciappina, K. Yamanouchi
2. 発表標題 Static-field ionization rates of He-like ions by MCTDHF method
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Zhang, E. Loetstedt , K. Yamanouchi
2. 発表標題 Population inversion between B2 u-and X2 g+ states of N2+ assisted by rotational excitation
3. 学会等名 Ultrafast Phenomena 2020 ( 国際学会 )
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Zhang, E. Loetstedt , K. Yamanouchi
2. 発表標題 Rotational coherence in R-branch transitions of air lasing at 391 nm
3. 学会等名 第14回分子科学討論会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Zhang, E. Loetstedt , K. Yamanouchi
2. 発表標題 Rotational coherence created in the B state of N2+ at 391 nm emission
3. 学会等名 Symposium on Recent Development in Ultrafast Intense Laser Science 2 ( 招待講演 ) ( 国際学会 )
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Nishi, E. Loetstedt , K. Yamanouchi
2. 発表標題 Time delay in the coherent vibrational motion of H2+ created by ionization of H2
3. 学会等名 Ultrafast Phenomena 2020 ( 国際学会 )
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takahiro Suzuki, Kato Keiko, Hideaki Tanaka, Kazuki Isoyama, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Determination of geometrical structure of $CCl_3^+$ by trapped-ion electron diffraction
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Motoki Ishikawa, Kakuta Ishida, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Measurements of two-dimensional differential cross section of femtosecond LAES signals of Ar atoms
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shuheii Sudo, Motoki Ishikawa, Reika Kanya, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Development of a photocathode-type pulsed electron gun for time-resolved electron diffraction measurements
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takuya Matsubara, Shinichi Fukahori, Erik Lotstedt, Yasuo Nabekawa, Kaoru Yamanouchi, Katsumi Midorikawa
2. 発表標題 Interferometric Autocorrelation of Attosecond Pulse Train and Nonlinear Fourier Transform Spectroscopy of Dissociative
3. 学会等名 第14回分子科学討論会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Toshiaki Ando, Keita Kobune, Atsushi Iwasaki, Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Rovibrational level energies of D2+ by strong field ultrahigh resolution Fourier transform spectroscopy
3. 学会等名 第14回分子科学討論会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Matsubara, Shinichi Fukahori, Yasuo Nabekawa, Kaoru Yamanouchi, Katsumi Midorikawa
2. 発表標題 Characterization of Attosecond Pulse Train and Nonlinear Fourier Transform Spectroscopy in Dissociative Ionization of Acetylene
3. 学会等名 Ultrafast Phenomena 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松原 卓也, 深堀 信一, ローツステット エリック, 鍋川 康夫, 山内 薫, 緑川 克美
2. 発表標題 アセチレンの解離性イオン化を用いた高強度アト秒パルス列の干渉自己相関計測およびフーリエ変換分光
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshiaki Ando, Atsushi Iwasaki, and Kaoru Yamanouchi
2. 発表標題 Strong field ultrahigh-resolution Fourier transform spectroscopy: Spin-orbit splitting of Ar+ and Kr+
3. 学会等名 Symposium on Recent Development in Ultrafast Intense Laser Science 2 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 山内 薫	4. 発行年 2022年
2. 出版社 朝倉書店	5. 総ページ数 472
3. 書名 強光子場分子科学	

1. 著者名 Kaoru Yamanouchi, Dimitrios Charalambidis(ed)	4. 発行年 2020年
2. 出版社 Springer International Publishing	5. 総ページ数 180
3. 書名 Progress in Ultrafast Intense Laser Science XV	

〔産業財産権〕

〔その他〕

山内研究室webページ <a href="http://www.yamanouchi-lab.org/">http://www.yamanouchi-lab.org/</a>
--

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------