

令和 6 年 5 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K19005

研究課題名（和文）マクロな回転対称性をもつ分子アンサンブルの生成技術の開拓

研究課題名（英文）Exploring a technique for forming a molecular ensemble with macroscopic rotational symmetry

研究代表者

酒井 広文（Sakai, Hirofumi）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・教授

研究者番号：20322034

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究で行った実験を通じて、目標とするマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブル生成の明確な証拠を得るためには、2波長のレーザーパルスの強度を、ともに $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>以上とする必要があることを明らかにした。

一方、ナノ秒2波長レーザーパルスとそのピーク強度付近で急峻に遮断することができれば、本研究で目標としたマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルを静電場も存在しない完全にフィールドフリーな条件下で用意することができる。本研究により、2波長間の相対位相を維持できる2波長レーザーパルス用のプラズマシャッター技術の開発に成功した。将来、マクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルに適用したい。

研究成果の学術的意義や社会的意義

(1) 目標とするマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブル生成の明確な証拠を得るためには、2波長のレーザーパルスの強度を、ともに $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>以上とする必要があることを明らかにした。

(2) ナノ秒2波長レーザーパルスとそのピーク強度付近で急峻に遮断することができれば、マクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルや配向分子アンサンブルを静電場も存在しない完全にフィールドフリーな条件下で用意することができる。本研究で、プラズマシャッター動作時に、初めて2波長間の相対位相の安定化に成功した。その結果、完全にフィールドフリーな条件下で配向分子アンサンブルを用意することに成功する大きな進展があった。

研究成果の概要（英文）： Through experiments conducted in this study, we have demonstrated the necessity of using laser pulses with intensities exceeding  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> at both wavelengths to obtain clear evidence of preparing molecular ensembles with the desired macroscopic three-fold symmetry.

On the other hand, if we can sharply cut off nanosecond laser pulses at their peak intensities, it will be possible to prepare the targeted molecular ensemble with macroscopic three-fold symmetry under completely field-free conditions, without any electrostatic field present. This study has also succeeded in developing a plasma shutter technique for maintaining the relative phase between two-wavelength laser pulses. This technology will be instrumental for future applications targeting molecular ensembles with macroscopic three-fold symmetry.

研究分野：最先端レーザー技術を駆使した原子分子物理学実験

キーワード：マクロな3回対称性をもつ分子アンサンブル 全光学的分子配向制御 超分極率相互作用 2波長レーザーパルス用プラズマシャッター

### 1. 研究開始当初の背景

研究代表者の酒井は、高強度レーザー電場を用いた気体分子の配列・配向制御について新しい手法が開発できないか常に潜在的に考えて来た。一方、回転対称性をもつ分子アンサンブル中から発生する高次高調波の選択則に関する理論研究 (Liu *et al.*, Phys. Rev. A **94**, 033410 (2016) など) が近年盛んに行われており関連するコミュニティでの関心は高い。しかし、実験的検証を可能とする回転対称性をもつ分子アンサンブルの生成手法は存在しなかった。そこで、実験的検証を可能とすべく、まず2波長(基本波と第2高調波)の互いに逆回りの円偏光の重ね合わせで形成される3回対称な電場ベクトルのトラジェクトリーを用いてマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブル(3回対称性をもつ気体結晶)を生成できるのではないかと直感的に発想した。数値計算により現実的な実験条件(分子の初期回転温度とレーザー強度)で実現可能であることが分かり、理論提案の論文を発表した (Nakabayashi *et al.*, Phys. Rev. A **99**, 043420 (2019))。自らが提案した手法を実験で実証することを目指していた。

### 2. 研究の目的

本研究では、図1に示す様に、2波長(基本波と第2高調波)の互いに逆回りの円偏光の重ね合わせで形成される3回対称な電場ベクトルのトラジェクトリーに沿った方向に3回対称な分子の腕を配列することにより、マクロな3回対称性をもつ分子アンサンブル(回転対称性をもつ気体結晶)を生成する実験手法の開発を主目的とする。従来の配列・配向分子アンサンブルと異なり概念的に全く新しく、関連分野に従来の研究の延長でない不連続な進歩をもたらす分子アンサンブルの生成法に繋がる挑戦的な課題である。 具体的な目標は以下の通りである。

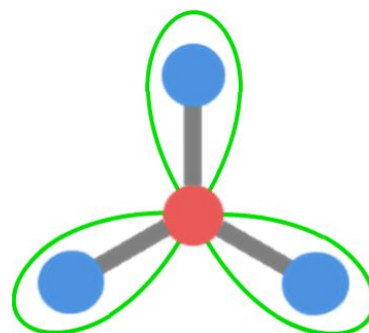


図1 3回対称性をもつ気体結晶の生成原理

- (1) 原理実証に留まらず、オーダーパラメータ 0.1 以上の達成を目指す。
- (2) 2波長レーザーパルスに適用可能なプラズマシャッター技術を開発し、レーザー電場の遮断後や分子の回転周期後に完全にフィールドフリーな条件下で3回対称性をもつ気体結晶を生成する技術を開発する。

### 3. 研究の方法

#### (1)マクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルを生成する方法

レーザー電場の円偏光面内に配列した分子アンサンブルの角度分布をクーロン爆裂イメージング法で検出するためには、偏光面に垂直な検出器面をもつ既存の速度マップ型イオンイメージング装置を用いることはできず、専用の装置開発が必要である。この場合、円偏光面内に飛び出したフラグメントイオンをイオン光学の原理で引き出して、それを2次元イメージング検出器に射影すればよい。本研究の開始時まで、図2に概念図を示した様な観測装置を開発し、観測に必要な性能を満たすことも確認した。

気体分子の配向制御と同様に、試料分子の初期回転温度が低いほどよりよく分子の向きを揃えることができる。この目的のため、高い背圧を利用できる Even-Lavie バルブを用いるだけでなく、自作の分子偏向器を用いてより低い回転量子状態にある分子を選別して試料として用いることにより、よりよく分子の向きを揃え、高いオーダーパラメータの達成を目指す。

#### (2)完全にフィールドフリーな条件下で3回対称性をもつ気体結晶を生成する技術を開発する方法

本研究では、2波長レーザーパルスとして、ナノ秒 Nd:YAG レーザーの基本波と第2高調波を使用する。この2波長パルスにプラズマシャッター技術を適用し、立下り~150 fs で急峻に遮断することができれば、完全にフィールドフリーな条件下でマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルが生成できる。1波長パルスに対しては、静電場とレーザー電場を併用する手法でレーザー電場の存在しない条件下で分子配向制御を行うために、100 mJ クラスのパルスに適用できるプラズマシャッター技術を独自に開発した (Mun *et al.*, Opt. Express **27**, 19130 (2019))。しかし、2波長パルスに対するプラズマシャッター技術は、それ自体が研究課題となる。

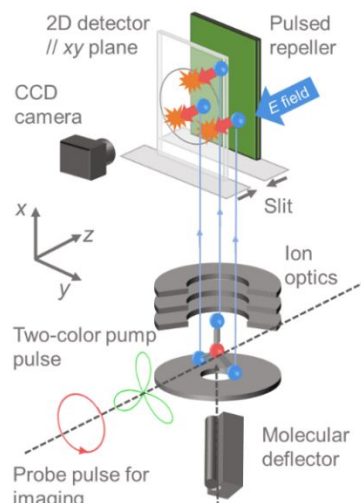


図2 3回対称性をもつ気体結晶の観測装置の概念図

#### 4. 研究成果

(1) 1年目までの実験では、目標とする分子アンサンブル生成の明確な証拠は得られなかったが、その原因は基本波と第2高調波の強度不足によると結論した。限られたレーザー出力のレーザーパルスの強度を上げるためには、レーザーパルスの径を一旦大きくすることにより、集光強度の増大を図ることが一般的である。本研究で行った実験を通じて、目標とするマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブル生成の明確な証拠を得るためには、理論提案の論文(Nakabayashi *et al.*, Phys. Rev. A **99**, 043420 (2019))で示した通り、2波長のレーザーパルスの強度を、ともに  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> 以上とする必要があることを明らかにした。

(2) 一方、ナノ秒2波長レーザーパルスとそのピーク強度付近で急峻に遮断することができれば、本研究で目標としたマクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルだけでなく、同じく非共鳴2波長レーザー電場と試料分子の超分極率相互作用を利用して生成された配向分子アンサンブルを静電場も存在しない完全にフィールドフリーな条件下で用意することができる。レーザーパルスとそのピーク強度付近で急峻に遮断するために、プラズマシャッター技術を用いるが、これまでは2波長レーザーパルスに適用した時に2波長間の相対位相を維持することができなかった。令和5年度に、プラズマシャッター用のエチレングリコールの液膜生成用に新たにステニス製ノズル(Metaheuristic JAPAN製)を導入し、2波長間の相対位相の測定結果をフィードバック制御することにより、2波長間の相対位相の安定化に成功した。その結果、初めて完全にフィールドフリーな条件下で配向分子アンサンブルを用意することに成功する大きな進展があった。将来、マクロな3回対称性をもつ分子アンサンブルにも適用したい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Md. Maruf Hossain, Nanse Esaki, and Hirofumi Sakai	4. 巻 108
2. 論文標題 All-optical three-dimensional orientation of asymmetric-top molecules with combined linearly and elliptically polarized two-color laser fields	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 063109(10pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevA.108.063109	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 Je Hoi Mun, Shinichirou Minemoto, Dong Eon Kim, and Hirofumi Sakai	4. 巻 5
2. 論文標題 All-optical control of pendular qubit states with nonresonant two-color laser pulses	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 226 (7 pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42005-022-01005-y	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

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Naoki Hara, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai
2. 発表標題 Development of a plasma shutter technique applicable to intense nanosecond two-color laser pulses
3. 学会等名 38th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 前田陵汰、ホサイン マルフ、酒井広文
2. 発表標題 気体分子の1次元配列と配向のダイナミクスにおける断熱近似の成立条件
3. 学会等名 レーザー学会創立50周年記念学術講演会第44回年次大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 峰本紳一郎、原直樹、本庄亮雅、酒井広文
2. 発表標題 全光学的な手法を用いた電場フリーな条件下での分子配向制御の実現に向けて
3. 学会等名 レーザー学会創立50周年記念学術講演会第44回年次大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 原直樹、峰本紳一郎、酒井広文
2. 発表標題 ナノ秒2色レーザーパルスにより配向制御された分子を外場の無い空間に用意する技術の開発
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Shinichirou Minemoto, Naoki Hara, and Hirofumi Sakai
2. 発表標題 All-optical field-free molecular orientation
3. 学会等名 39th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Shinichirou Minemoto, Naoki Hara, and Hirofumi Sakai
2. 発表標題 Challenge to form a molecular ensemble with macroscopic threefold symmetry
3. 学会等名 37th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Maruf Hossain, Nanse Esaki, and Hirofumi Sakai
2. 発表標題 Dynamics of all-optical three-dimensional molecular orientation with a linearly polarized fundamental pulse and an elliptically polarized second harmonic pulse
3. 学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究協力者	峰本 伸一郎  (Minemoto Shinichirou)		

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		
韓国	Center for Attosecond Sci. & Tech.	Max Planck POSTECH/KOREA	