

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560041

研究課題名(和文) 配列した分子試料を用いた紫外パルス光源の高年化

研究課題名(英文) Development of ultraviolet femtosecond pulse source by using aligned molecular samples

研究代表者

峰本 紳一郎 (Minemoto, Shinichirou)

東京大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：90323493

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究計画では、配列した分子試料から発生する第3高調波の時間依存偏光状態を観測するため、高精度で安定した干渉計を開発してきた。このシステムを配列した二酸化炭素分子から発生する第3高調波に適用したところ、位相整合の効果を反映して偏光状態は試料の圧力に強く依存性することが分かった。楕円率の圧力依存性は単調に変化するわけではなく、いくつかの異なる段階を示す。シミュレーションと詳しく比較することで、分極率などの分子の基本的な性質が解明できると考えられる。

研究成果の概要(英文)：We have developed a spectral interferometer with high accuracy and high stability in order to evaluate the time-dependent polarization state of the third harmonics generated from aligned molecular samples. By using the developed system, we measured the polarization states of the third harmonics generated from aligned CO₂ molecules, and found that the polarization state critically depends on the pressure of the sample molecules. The intensity and the ellipticity do not increase monotonically as the pressure increases but show 3-4 phases. A detailed propagation simulation of the pressure dependence will reveal the basic properties of molecules such as components of polarizability and hyperpolarizability.

研究分野：原子分子物理学実験

キーワード：分子配列 第三高調波 非線形光学 偏光分光

1. 研究開始当初の背景

分子は一般に非等方的であり、化学反応や光との相互作用(光散乱・吸収など)は本質的に分子の向きに依存する異方的な現象である。しかし、その異方性を十分な精度で観測できるようになったのは、近年、レーザー電場による分子配列(分子の向きを実験室系に対して揃えること)・配向(頭と尻尾を区別して分子の向きを揃えること)技術が十分に確立してからである。それ以来、高次高調波スペクトルの観測による分子軌道の可視化や光電子放出の角度依存性など、分子を配向・配列することによって初めて明らかになる分子内電子の構造やそのダイナミクスの研究などに応用されてきた。

一方、最近、酒井准教授のグループとの共同研究において、配列した二酸化炭素分子からの第3高調波発生を調べたところ、第3高調波の強度は分子配列の程度によって著しく変化すること、さらに配列の状態によって基本波の偏光方向に垂直な成分が極めて強い場合があることを見出した。分子媒質からの第3高調波は、紫外領域におけるコヒーレント光源の候補としてこれまでも調べられており、理論計算で求めた非線形感受率によってその挙動が再現できると報告されている。ただし、これらの理論解析には未知のパラメーターが多く含まれており、分子自体の物理量を推定するには不十分である。また、この解析では位相整合を無視できるとして議論されているが、私たちの実験結果では位相整合の効果が強いことが示唆されており、光源としてより高度化するためには発生機構をより深く理解する必要があった。

2. 研究の目的

本研究では、配列した分子媒質から発生する第3高調波について、偏光成分ごとの位相、すなわち、時間に依存した偏光状態を調べることによって、媒質の非線形感受率と位相不整合の大きさを求める。時間に依存する偏光状

態を調べることによって初めて、楕円偏光や円偏光したパルスからの第3高調波発生についても不定性なく特性を評価できるようになる。同時に、非線形感受率や位相は不整合をよく再現するような分子の分極率や超分極率(の波長依存性)を探索する方法論を開発する。これらの基本的な物理量は分子軌道計算の妥当性を評価する指標となるが、これまで実験的に調べることがほとんどできなかった。さらに、得られた分子パラメーターを用いて分子媒質を用いた簡便で高効率な波長変換素子として開発することを目標とする。

3. 研究の方法

第3高調波の時間に依存する偏光状態は、スペクトル干渉信号を偏光成分ごとに測定することによって評価する(図1参照)。フェムト秒再生増幅システムからの出力を二つに分け、一方は第3高調波発生用のプローブ光として、もう一方は参照光として用いる。分子を配列するため、プローブ光をさらに2つに分けて過渡的配列を起こすためのポンプ光とプローブ光として用いる。ポンプ光の偏光方向とプローブ光の偏光の楕円率を変えながら第3高調波の偏光特性を評価する。また、パルスの伝搬をシミュレートし、試料分子の圧力依存性やプローブ光の強度依存性をよく再現するような分子のパラメーター(分極率と超分極率)を求める。さらに、最適な条件を探索し、固体媒質に変わる高効率な波長変換素子とすることを目標とする。

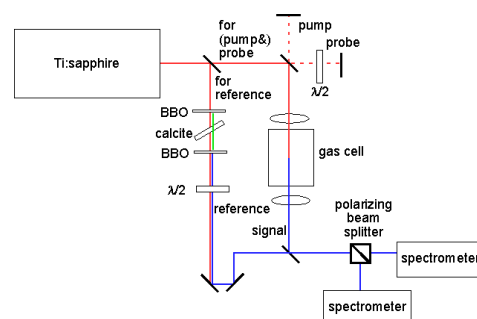


図1: 実験システムの概略図

4. 研究成果

(1) 時間に依存する偏光状態を精度よく評価するには、スペクトル干渉計の安定性、すなわち干渉信号を長時間にわたって安定化することが最も重要である。特に、本研究で対象としている第3高調波(中心波長 268 nm)のように短波長のパルスでは干渉計の安定性が実験の精度を決める要因となる。本研究計画では初年度から2年度目までかけて干渉信号の安定化に取り組み、光学部品の固定法を改良することや干渉系全体を風よけで覆うことによって、30分の観測でも位相揺らぎを $1/5$ 以下に抑えることに成功した。同時に、短時間の安定度も向上しており、1分当たりの位相ゆらぎは $1/20$ 以下を達成している(図2参照)。

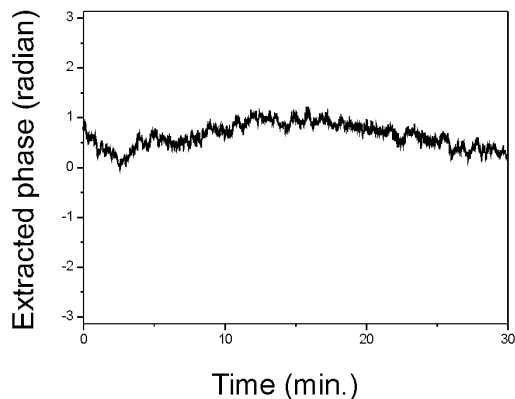


図2: 偏光分解型スペクトル干渉計によって評価した波長 268.5 nm における位相の安定性。

(2) 以上のように開発した干渉計を使用して、ほぼ直線偏光した基本波を用い、配列した窒素分子から発生する第3高調波について偏光状態を観測したところ、パルス全体にわたって楕円率がほぼ0であることが確認できた。このことから、今回開発した干渉計システムや解析プログラムが正常に機能していると考えられる。一方、配列した二酸化炭素分子から発生する第3高調波の偏光状態は試料の圧力に依存した振る舞いを示していた。圧力の違いは位相整合の様子の違いを表していると考えられる。試料ガスの圧力が低い(20 kPa)時にはパルス全体に渡って0.1以下

という小さな楕円率であるのに対して、圧力が高い(80 kPa)時にはメインパルスのピーク付近において0.3程度の比較的大きな楕円率を持つことがわかった。このことは、基本波の偏光に垂直な方向の偏光成分は、基本波にわずかに残っている楕円成分が位相整合の効果によって第3高調波で増幅されて現れていることを示唆している。

一方、配列した分子中から発生する第三高調波の発生メカニズムの詳細を解明し、強度や偏光状態を制御するためには圧力依存性を系統的に調べる必要がある。そこで、本年度は、試料セルと排気系を更新して圧力を精密・簡便・安定的に変えられるように改良した。同時に、連続的な観測を行えるようにデータ取得プログラムを最適化した。このシステムを用いて圧力依存性を調べたところ、第三高調波の楕円率は圧力とともに単調に増加するわけではなく、3ないし4段階ほどの異なる過程に分かれて変化することが分かった(図3)。圧力の絶対値に違いはあるが、同様な傾向は窒素分子や酸素分子でも見られ、配列した気体を媒質とした時の第三高調波発生における一般的な現象であることを示唆している。

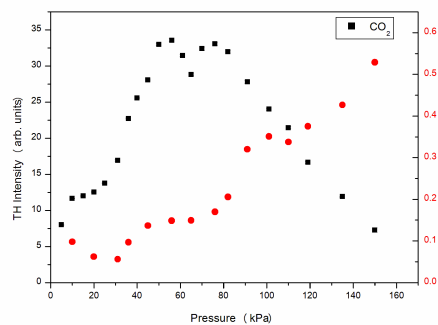


図3: 配列した二酸化炭素分子から発生した第3高調波の強度と楕円率に対する圧力依存性。

以上述べてきたように、二酸化炭素を始めとして配列した分子から発生する第3高調波においては、位相整合の効果によって偏光方向

と垂直な方向の楕円成分が増幅されていることがわかった。特に、時間に依存する偏光状態の圧力依存性から、位相整合の様子を決定するパラメータである屈折率を成分ごとに求めることができる。屈折率は分子の分極率(の周波数依存性)に関連する量であり、その分子座標系における空間的な成分を評価できれば、理論化学計算への有効な指標にもなる。

同時に、分子のパラメータが分かれば、Type II 位相整合、すなわち、基本波の偏光に楕円がついている時に発生する第3高調波の(時間に依存する)偏光状態は伝播シミュレーションで容易に予想できる。シミュレーションにより最適化することによって、深紫外のパルスに対しても時間に依存する偏光状態を自在に操る技術として応用できると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

Kosaku Kato, Shinichirou Minemoto, Yusuke Sakemi, and Hirofumi Sakai, "Phase differences of near-threshold high-order harmonics generated in atoms and molecules," *Physical Review A*, 査読有、Vol. 90、2014、063403、<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.90.063403>

Je Hoi Mun, Daisuke Takei, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai, "Laser-field-free orientation of state-selected asymmetric top molecules," *Physical Review A*, 査読有、Vol. 89、2014、051401 (R)、<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.89.051402>

Yusuke Sakemi, Shinichirou Minemoto, Kosaku Kato, and Hirofumi Sakai,

"Characteristics of high-order harmonics generated from atoms and aligned molecules with carrier-envelope-phase-stabilized 25-fs pulses," *Physical Review A*, 査読有、Vol. 85、2012、051801、<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.85.051801>

[学会発表](計 34 件)

中嶋享、寺本高啓、峰本紳一郎、他 11 名、「超高速光電子回折法の開発 II」、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 24 日、早稲田大学早稲田キャンパス(新宿区・東京都)。

K. Nakajima, T. Teramoto, S. Minemoto, 他 6 名、「Photoelectron diffraction from laser-aligned molecules with an x-ray free electron laser」, The 11th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, 2014 年 10 月 7 日、Sendai, Japan.

加藤康作、峰本紳一郎、酒見悠介、酒井広文、「イオン化閾値付近の高次高調波の位相差の測定」、2014 年第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、2014 年 9 月 19 日、北海道大学札幌キャンパス(札幌市・北海道)。

K. Kato, S. Minemoto, Y. Sakemi, and H. Sakai, "Observation of phase difference of near-threshold high-order harmonics generated in nitrogen molecules," International Symposium on "The Forefront of Ultrafast Spectroscopy," 2014 年 5 月 26 日、理化学研究所(和光市・埼玉県)。 Shinichirou Minemoto, "Ellipticity dependence of high-order harmonics generated from aligned CO₂ molecules," High-Intensity Lasers and High-Field Phenomena, 2014 年 3 月

18日～2014年3月20日、Berlin(ドイツ).

峰本紳一郎、酒井広文、「配列した分子から発生する第三高調波の時間依存偏光特性」、レーザー学会創立40周年記念学術講演会第34回年次大会、2014年1月20日～2014年1月22日、北九州国際会議場(北九州市・福岡県).

Shinichirou Minemoto, “Imaging atomic and molecular orbitals with high-order harmonic spectroscopy,” Fundamentals and applications of laser filaments (招待講演)、2013年4月4日～2013年4月6日、岡崎カンファレンスセンター(岡崎市・愛知県).

Shinichirou Minemoto, “Characteristics of high-order harmonics generated from atoms and molecules with carrier-envelope-phase-stabilized femtosecond pulses,” The Yonsei-Todai Joint Workshop (招待講演), 2013年2月13日、東京大学(文京区・東京都).

酒見雄介、峰本紳一郎、加藤康作、酒井広文、「搬送波包絡位相を制御した数サイクルパルスによる配列した分子中からの高次高調波発生」、レーザー学会学術講演会第33回年次大会、2013年1月28日～2013年1月30日、姫路商工会議所(姫路市・兵庫県).

樋口崇、中前秀一、渡部源太郎、峰本紳一郎、酒井広文、「配列分子から発生する第三高調波の楕円率依存性」、2012年(平成24年)秋季第73回応用物理学会学術講演会、2012年9月12日、愛媛大学(松山市・愛媛県).

[その他]

ホームページ等

<http://www.amo-phys-s-u-tokyo.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

峰本 紳一郎 (MINEMOTO, Shinichirou)
東京大学・大学院理学系研究科・助教
研究者番号：90323493

(3) 連携研究者

酒井 広文 (SAKAI, Hirofumi)
東京大学・大学院理学系研究科・准教授
研究者番号：20322034