

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 13 日現在

機関番号：12612

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23760047

研究課題名（和文） テラヘルツ繰り返し超短パルスレーザーによる高次高調波発生と真空紫外光の偏光制御

研究課題名（英文） High-order harmonic generation by THz-repetition-rate ultrafast laser and controlling polarization of vacuum-ultraviolet light

研究代表者

吉井 一倫（YOSHII KAZUMICHI）

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・特任助教

研究者番号：90582627

研究成果の概要（和文）：

高次高調波発生 (HHG) のための光源開発として、「光周波数標準に安定化された超短パルス列の搬送波位相制御」と「新規パルス圧縮手法の開発」を行った。

また、HHG の偏光理論の背景となる、配向分子からの HHG 過程に関する実験・理論の研究を行い「単一分子からの HHG 分布を再構成する新手法」を開発した。

研究成果の概要（英文）：

We studied a method to generate an ultrafast pulse train with absolute-frequency control by locking laser frequency to an optical-frequency-comb stabilized to the optical frequency standard. And we proposed novel technique of pulse compression.

We developed a novel method to retrieve angular distributions of high-order harmonic generation from a single molecule.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用光学・量子光工学

キーワード：高次高調波発生，超短パルスレーザー

1. 研究開始当初の背景

近年の超短パルス高強度レーザーの発展により、原子や分子内の電子と核間クーロン電場に匹敵する電場 ($10^{12} \sim 10^{15} \text{ W/cm}^2$) を実験室レベルで制御できるようになった。このような極限時間域、超高電磁場域での物質応答を利用して、これまで知られていなかった物質や光の潜在的機能・現象を発現できるようになった。その中の 1 つがレーザーパルスの 1 サイクル内で進行する高次高調波発生 (High-order harmonic generation: HHG) である。HHG を XUV 及び軟 X 線光源として、またアト秒パルス列光源として利用する応用研究が盛んに行われている。

一方、分子は種類によって様々な対称性の最高被占軌道を持つため、配向によってその電子分布の空間的な異方性を顕在化できる。よって、配向分子からの HHG は、分子の配向方向と基本波の偏光方向との角度に依存した信号強度分布を持ち、さらに発生位相の違いに起因した偏光の回転を生じる。

申請者はこのことに着目し、高強度超短パルスレーザーによるポンプ・プローブ法を用いて配向分子からの HHG の研究を行ってきた。フェムト秒パルスで非断熱的に分子配向を誘起し、電場のない下での配向分子からの HHG を実時間観測することにより、 N_2 、 O_2 分子からの HHG 理論モデルの正当性を実

証してきた。

2. 研究の目的

- (1) 超高繰返し(THz)超短(fs)パルス列を用いた、気相原子・分子からの高次高調波発生の実現。
- (2) 100%基底準位占有まで冷却した気相分子の断熱または非断熱配向による空間的に高度に配向した(配向度 ~ 1)分子集団の実現。
- (3) さらに、高配向状態分子からの高調波偏光が分子軸周りの角度に依存することを利用した、コヒーレント真空紫外光源の偏光制御手法の開発。

3. 研究の方法

- (1) 超高繰返しフェムト秒パルス列レーザー光源の改良と開発。
- (2) ターゲット試料とレーザー相互作用系の真空チャンバー及び、HHG測定用系の構築。
- (3) 高次高調波(VUV光)の偏光を最もよく制御できる分子種、配向条件、配向角度の探索と実証。

4. 研究成果

(1)についてはHHGのためのレーザー光源として所属研究室がこれまで研究を続けてきた光周波数標準に安定化されたTHz繰返し超短パルスレーザーの開発を引き継ぎ研究を行った。その結果、搬送波位相を高度に安定化した超高繰返し超短パルス光を発生し成果を論文誌に発表させた(Fig.1)。また、レーザー強度増大のためのパルス幅圧縮に向けた研究を行いパルス幅圧縮のための新手法を提案した。これは光を空間的に分散させることなく光軸上に数枚の透明材料を設置しその長さを制御するだけでフーリエ変換限界の超短パルス列が生成できるとい

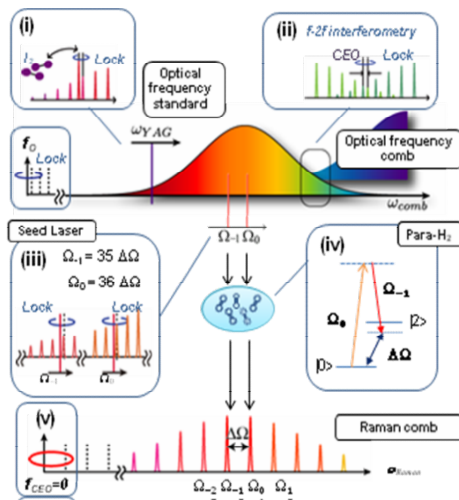


Fig. 1: Schematic diagram of generating an octave-spanning Raman comb locked to an optical frequency standard.

う手法である(Fig.2)。その成果を Nature Publishing Group 発刊の **Light: Science & Applications** 誌2巻(2013年3月)に投稿し掲載された。また、国際学会 Ultrafast Phenomena 2012(2012年7月, Lausanne, Switzerland)にて発表を行った。同時に実験システムの立ち上げも行い、上記手法の実証にはまだ至っていないが、1000THzを超える離散スペクトルの発生とパルス幅評価のための位相測定装置の開発を行い、第60回応用物理学学会学術講演会等にて報告を行った。

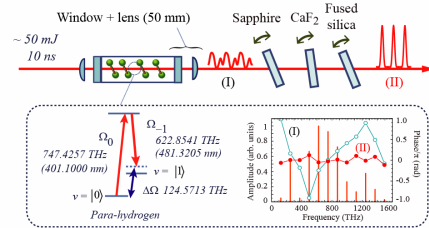


Fig.2. Schematic diagram of numerical experiment for generating an attosecond pulse train.

また、(2)、(3)に関しては、HHGの偏光理論の背景となる配向分子からのHHGの物理に関する基礎的な研究を行った。その結果、単一分子のHHG角度分布を分子集団からの実験結果のみから再構成できる手法の開発に成功した(Fig.3)。その成果をまとめ、高インパクトファクターの **Physical Review**

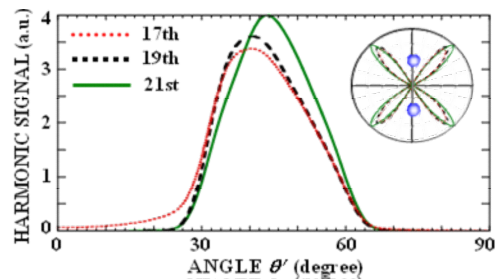


Fig.3. Angular distributions of harmonic intensity of different orders retrieved for a single O_2 molecule. The inset represents the polar plots.

Letters 誌を含む査読付き国際誌1本及び国際会議2件(うち招待講演1件)の成果を挙げることができた。

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5件)

(1) Kazumichi, Yoshii, John Kiran Anthony, and

Masayuki Katsuragawa, "The Simplest Method for Generation of an Attosecond Pulse Train," EPJ Web of Conference **41** 01010 (2013). 10.1051/epjconf/20134101010

(2) **Kazumichi Yoshii**, John Kiran Anthony, and Masayuki Katsuragawa, "The simplest route to generating a train of attosecond pulses", **Light: Science & Applications**, Vol.2, e58 (2013). 10.1038/lsa.2013.14

(3) **吉井一倫**, 洪鋒雷, 桂川眞幸, "絶対周波数精度を転写した THz 周波数間隔のラマンコム発生", **レーザー研究**, **39** 巻 11 号, pp. 836-841, (2011).

(4) **Kazumichi Yoshii**, Kentaro Shiraga, Masaki Arakawa, Hiroshi Aoki and Masayuki Katsuragawa, Feng-Lei Hong, "Octave-spanning Comb with a Wide Frequency Interval of Molecular Rotational Raman Transition", **Journal of the Korean Physical Society**, Vol.59, 2953-2955 (2011). 10.3938/jkps.59.2953

(5) **Kazumichi Yoshii**, Godai Miyaji, Kenzo Miyazaki, "Retrieving angular distributions of high-order harmonic generation from a single molecule", **Physical Review Letters**, Vol.106, 013904-1-4(2011).10.1103/PhysRevLett.106.013904

[学会発表] (計 21 件)

(1) **K. Yoshii**, J. K. Anthony, and M. Katsuragawa, "The novel route to generating of a train attosecond pulses," *Ultrafast Optics 2013 (UFO IX)*, TuP.10, Davos Congress Centre, Switzerland, (March 5th 2013).

(2) M. Katsuragawa, **K. Yoshii**, J.K. Anthony [Invited paper], "The simplest route to generating a train of attosecond pulses," *PQE-2013 (The 43rd Winter Colloquium on the PHYSICS of QUANTUM ELECTRONICS)*, Tuesday Evening Invited Session, Snowbird, Utah, USA, (January 8th 2013).

(3) **K. Yoshii**, J. K. Anthony, and M. Katsuragawa, "Generation of a Train of Attosecond Pulses with the Simplest Method," *UP2012 (XVIIIth International Conference on Ultrafast Phenomena)*, TUE. PII. 20, Lausanne, Switzerland, (July 10th 2012).

(4) N. S. Suhaimi, **K. Yoshii**, T. Suzuki, K. Shiraga, M. Arakawa, Feng-Lei Hong, M. Katsuragawa "Raman Comb With An accuracy Transferred from An Absolute Frequency", *International Workshop on Laser Science*, P20, University of Electro-Communications, Tokyo, Japan, (October 5th 2012).

(5) **K. Yoshii**, J. K. Anthony, N. S. Suhaimi, M. Katsuragawa "The Simplest method for Generation of an Attosecond Pulse Train in

UV-VIS-NIR Spectral Region", *International Workshop on Laser Science*, P19, University of Electro-Communications, Tokyo, Japan, (October 5th 2012).

(6) **吉井一倫**, John Kiran A., 〇桂川眞幸, "最も簡単なアト秒パルス列の発生法", 日本物理学会 第 68 回年次大会, 29pEG-1, 広島大学東広島キャンパス, (2013 年 3 月 29 日).

(7) 〇川島拓也, 大橋タケル, 佐々木祐介, 浜野紘明, **吉井一倫**, 植竹智, 桂川眞幸, "高次誘導ラマン散乱光系列の連続発生システム", 第 60 回応用物理学会学術講演会, 28p-D1-17, 神奈川工科大学, (2013 年 3 月 28 日).

(8) 〇**吉井一倫**, 中村佳孝, Nurul Sheeda S., John Kiran A., 桂川眞幸, "新規の分散補償法を用いたアト秒パルス列発生 I", 第 60 回応用物理学会学術講演会, 28p-D2-6, 神奈川工科大学, (2013 年 3 月 28 日).

(9) 〇中村佳孝, 星野佑介, **吉井一倫**, Nurul Sheeda S., 桂川眞幸, "透明媒質を用いた紫外-可視-近赤外光のアト秒パルス列発生-実験-", 第 33 回レーザー学会学術講演会, 30pIX-15, 姫路商工会議所, (2013 年 1 月 30 日).

(10) 〇**吉井一倫**, John Kiran A., Nurul Sheeda S., 桂川眞幸, "透明媒質を用いた紫外-可視-近赤外光のアト秒パルス列発生 -原理-", 第 33 回レーザー学会学術講演会, 30pIX-14, 姫路商工会議所, (2013 年 1 月 30 日).

(11) 〇桂川眞幸, 白神健太郎, 荒川正樹, **吉井一倫**, 洪鋒雷, "光周波数標準の精度を転写したラマンコム光源", 第 33 回レーザー学会学術講演会, 28pVII-4, 姫路商工会議所, (2013 年 1 月 28 日). (招待講演)

(12) 〇**吉井一倫**, John Kiran A., Nurul Sheeda S., 桂川眞幸, "透明材料を用いた UV-VIS-NIR 帯域のアト秒パルス列発生", 第 73 回応用物理学会学術講演会, 13p-B2-15, 愛媛, (2012 年 9 月 13 日).

(13) 〇星野佑介, **吉井一倫**, 桂川眞幸, "広帯域離散型スペクトル用 SPIDER 装置の開発", 第 73 回応用物理学会学術講演会, 12p-PA3-1, 愛媛, (2012 年 9 月 12 日).

(14) 〇川島拓也, 大橋タケル, 佐々木祐介, 浜野紘明, **吉井一倫**, 植竹智, 桂川眞幸, "二周波数同時発振注入同期連続波 Ti:sapphire レーザーの安定化", 第 73 回応用物理学会学術講演会, 12p-B1-10, 愛媛, (2012 年 9 月 12 日).

(15) 〇石井尚樹, **吉井一倫**, 宮地悟代, 宮崎健創, "配向分子からの高次高調波発生における複数分子軌道の寄与", 第 59 回応用物理学会関係連合講演会, 18p-E9-4, 東京, (2012 年 3 月 18 日).

(16) 〇大橋タケル, 佐々木祐介, 浜野紘明, **吉井一倫**, 桂川眞幸, "二周波数発振注入同

期連続波チタンサファイアレーザー”，第 59 回応用物理学関係連合講演会，16p-E9-17，東京，(2012 年 3 月 16 日)。

(17) ◯佐々木祐介，大橋タケル，浜野紘明，**吉井一倫**，桂川眞幸，“二周波数注入同期 Ti:sapphire 連続発振レーザー”，第 32 回レーザー学会学術講演会，B90-1p-I-05，宮城，(2012 年 2 月 1 日)。

(18) ◯石井尚樹，**吉井一倫**，小菌正典，宮地悟代，宮崎健創，“CO₂ 分子からの高次高調波発生における複数分子軌道の効果”，第 72 回応用物理学学会学術講演会，30a-ZH-6，山形，(2011 年 8 月 30 日)。

(19) ◯**K. Yoshii**，M. Arakawa，K. Shiraga，T. Ohashi，Y. Sasaki，Feng-Lei Hong，M. Katsuragawa “THz-spaced Raman comb with an accuracy transferred from an absolute frequency”，*Symposium on 'A Revolution in Spectroscopy by the Optical Frequency Comb'*，P12，AIST，Tsukuba，Japan，(September 26nd 2011)。

(20) ◯ **K.Yoshii**，K.Miyazaki，G.Miyaji，“Angle-Dependent High-Order Harmonic Generation from a Single N₂ and O₂ Molecule”，*CLEO/EUROPE-EQEC 2011 (2011 Conference on Lasers and Electro-Optics – 12th European Quantum Electronics Conference)*，CG.P.6 (368)，Munich，Germany，(May 26th 2011)。

(21) ◯ K.Miyazaki，**K.Yoshii**，and G.Miyaji [**Invited paper**]，“Retrieving angle-dependent high-order harmonic generation for a single molecule，” 20th International Laser Physics Workshop，5.5.1，Sarajevo，Bosnia and Herzegovina，(July 14th 2011)。

[その他]

ホームページ等

<http://kjk.office.uec.ac.jp/Profiles/0001/0005830/theses1.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉井 一倫 (YOSHII KAZUMICHI)

電気通信大学・レーザー新世代研究センター・特任助教

研究者番号：90582627