

平成 16 年度科学研究費補助金 (基盤研究 (S)) 研究状況報告書

ふりがな		さかい ひろふみ					
研究代表者名氏		酒井 広文		所属研究機関・部局・職		東京大学・大学院理学系研究科・助教授	
研究課題名	和文	未到時間領域の超短パルス光発生とその計測					
	英文	Generation of ultrashort pulses in unexplored time regions and their measurement					
研究経費		平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	総合計
16年度以降は内約額 金額単位：千円		38,600	21,800	8,600	8,600	4,600	82,200
研究組織 (研究代表者及び研究分担者)							
氏名	所属研究機関・部局・職	現在の専門	役割分担 (研究実施計画に対する分担事項)				
酒井 広文	東京大学・大学院理学系研究科・助教授	量子光学・原子分子物理学	研究全体の統括と主に真空紫外領域の実験 (高次高調波の発生実験) と理論解析				
平澤 正勝	東京大学・大学院理学系研究科・助手	光物性・レーザー物理学	主に可視 近赤外領域の実験と解析				
峰本 紳一郎	東京大学・大学院理学系研究科・助手	量子光学・原子分子物理学	主に真空紫外領域の実験 (高次高調波のパルス幅の測定) と理論解析				
当初の研究目的 (交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。)							
本研究では、未到時間領域の超短パルス光発生技術とその計測手法の確立を目指す。対象とする波長域により研究手法が異なるため以下では波長領域を分けて説明する。							
(可視 近赤外領域) 本研究での目的は、(1) 極限的超短パルスの発生、(2) 超短パルス特性の新計測法の開発、(3) 遷移状態分光法の確立の3点である。							
(1) 非平行パラメトリック(NOPA)増幅法を用いて、これまでに3.9 fsの最短光パルスの発生に成功しているが、複数のNOPA装置を組み合わせ、位相整合領域を広げることにより、さらなる短パルス光の発生を目指す。							
(2) 5 fs以下の超短光パルスでは強度の時間変化だけでなく、その絶対位相を確定することが重要となる。これまでにこの絶対位相をロックした超短パルス光の発生とその計測に成功しているが、さらにこれを進めてレーザーの最適化並びに安定化を図る方法を開発していく。							
(3) 種々の物質、特に分子に対して、超短光パルスを用いた時間分解分光測定を行う。特に基底及び励起電子状態の超高速分子振動ダイナミクスを研究する。これまで測定することが極めて困難、あるいは不可能と考えられていた極めて短寿命の中間体や遷移状態の分子振動の振幅・位相・瞬時周波数の計測を試みる。							
(真空紫外領域) 可視 近赤外領域で対象としているパルス幅はいわゆるフーリエ変換限界に近く、チタンサファイアレーザーの中心波長領域においては、これ以上の大幅な短パルス化は原理的に困難である。中心波長を短波長化し、真空紫外領域 (極端紫外線および軟X線を含む) とすれば、周波数帯域の拡大に伴い、アト秒 (as = 10 ⁻¹⁸ s) 台パルスの発生を期待することができる。本研究では、高強度超短パルス (15 ~ 20 fs) レーザー光を気体原子分子に集光することにより発生する高次高調波の新しい制御手法を探究しつつ、(4) アト秒パルスを発生する技術を開発するとともに、発生と表裏一体である(5) アト秒パルスの信頼できる計測法の開発とその応用を主目的とする。							

これまでの研究経過（研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。）

（可視 近赤外領域）

- (1) 同期励起・独立ダブルパス配置の可視光非平行光パラメトリック発振器の開発を行った。これにより帯域幅の拡大と、絶対位相のロックを両立することが可能となる。この装置を用いて、可視光領域での世界最短パルス光の発生を目指している。また超短パルス光発生のための非線形光伝播の数値シミュレーションの研究も行った。
- (2) NOPA装置から発生するアイドラ光のキャリアエンベロープ位相(Carrier - Envelope Phase: CEP)は、自己安定化させることが出来る。光学結晶ファイバーを用い、1オクターブを超える超広帯域化した白色光とその第2高調波とのスペクトル干渉から、CEPの自己安定化を実験的に確かめた。次にレーザーパルスの超短パルス化及び精密な特性評価を行った。測定対象のレーザーパルスのスペクトルが、ほぼ1オクターブの広帯域にわたるため、通常用いられる自己参照周波数分解光ゲート法(self-referencing frequency-resolved optical gating)では、光パルスのプロファイリングを全波長領域で行うことができない。そこで、測定対象のレーザーパルスが、原理的に角度分散を持っていることを利用して、和周波発生相互参照周波数分解光ゲート法により、精密な特性評価を行った。さらに、可変形鏡を用いた位相分散補償により、フーリエ変換限界にほぼ匹敵する準単サイクル近赤外パルスの発生に成功した。
- (3) 上記の超短光パルス光源とし、種々の物質の超高速分光を行った。特に電子写真技術において、光検出デバイスとして重要な役割を果たすフタロシアニンについて超高速分光を行った。ポンププローブ法を用いて電荷移動励起状態を励起し、光キャリアが発生するメカニズムを実時間振動分光の視点から解明することができた。また、自発的な凝集力によりナノ構造を形成する無機有機複合層状半導体について、無機構造部分の格子振動の高速な減衰を、ポンププローブ法を用いて研究した。

（真空紫外領域）

【平成14年度】超音速ジェットバルブ、斜入射真空紫外分光器、真空排気装置および電子増倍管などを用いて、高次高調波発生システムを新たに設計・試作した。フェムト秒チタンサファイアレーザー増幅システムの出力を希ガスまたは比較的小さな分子に集光照射し、高次高調波の発生条件の最適化を行った。高次高調波は基本波が直線偏光の時に発生する。この原理を利用すれば、基本波として15~20フェムト秒のパルスを使用してもピーク強度付近でのみ直線偏光にすることができれば、アト秒台のパルスを発生できる可能性がある。これは偏光ゲート(Polarization Gate: PG)法と呼ばれる手法である。平成14年度は、フェムト秒パルス内の偏光状態を制御する手法（波長板を用いる方法並びに空間光変調器を用いる方法）について具体的に検討を加えた。また、高次高調波発生およびそれに関連する物理現象を量子力学的に詳細に理解するため、数値計算コードの開発にも着手した。

【平成15年度】

- (1) 平成15年度は上記のPG法の原理実証実験に成功した。すなわち、ピーク強度付近でのみ直線偏光となるようなフェムト秒パルスをAr中に集光照射することにより、通常の直線偏光を用いた時よりもカットオフ近傍の次数の高調波のスペクトル幅が増大することを確認した。同様の効果はArとイオン化ポテンシャルのほぼ等しいN₂分子についても確認できた。現在さらに、プラトー領域とカットオフ領域での効果の違い、位相整合の影響などの詳細を調べる実験を進めている。また、中空ファイバーとプリズム対さらにはチャ・ブミラーを併用することによりアト秒パルスの発生に必要な20フェムト秒以下級の光パルスの発生にも成功した。
- (2) 分子(N₂, O₂, CO₂)の回転周期よりも短いフェムト秒パルスで回転波束を励起し、非断熱的に配向した分子中での高次高調波発生に成功した。配向した分子の分子軸と平行な直線偏光を用いることにより、高調波出力が著しく増大する。既存の理論で説明できない新現象も発見した。上記のPG法に配向した分子を利用すれば電子の再衝突時の実効的な衝突断面積を小さくできるので、PG法の実験条件が緩和されるだけでなく、希ガス原子よりも高効率な媒質として利用できる可能性がある。
- (3) 高次高調波発生の基本波として用いる高強度超短パルスレーザー光よりも波長が長く、強度が2桁以上低いナノ秒レーザー光を併用した時に、ナノ秒レーザー光の光子が1つあるいは2つ関与した和・差周波光が高効率で発生することを発見した。詳細は次ページの特記事項で補足する。
- (4) 量子力学的な理論に基づいた高次高調波発生の数値計算コードを開発した。これにより、実験と理論の詳細な比較が可能となった。

特記事項（これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。）

（可視 近赤外領域）

本研究グループではこれまでに、超短光パルスの新計測法開発の一環として、光パルスの絶対位相（搬送波包絡波位相）の評価法の開発を進めて来た。その結果、光パラメトリック過程を用いた超短パルスの発生では、絶対位相が自動的にロックされることを見出している。平成 15 年度は、さらにスペクトル干渉法による位相復元法とフィードバック機構を導入し、光パルス列の絶対位相を 1 時間程度の時間にわたって長時間安定させることに成功した。また、この装置は任意の絶対位相をもつ光パルスを発生させることも可能である。物質の非線形応答に関する絶対位相依存性についての分光実験は、ほとんど手をつけられていない未開拓の分野であり、今回新たに開発した光源は、現在のところこの分野を開拓するほぼ唯一の手段である。現在、この光源を用いた、新しい超短パルス分光実験を計画している。

また、遷移状態分光法の確立についても、新たに導入したマルチチャンネルロックインアンプと組み合わせることにより、5 fs 以下の超高速分光に対して極めて高精度な実験結果が得られることが判った。この検出装置は、波長を多重化しながら計測もできるロックインアンプ装置であり、そのメリットとして、(1)計測時間の劇的な短縮化により、生体試料など光劣化し易い物質系に適用可能である、(2)多波長同時計測により、波長間の比較を行うことが可能となり、信頼性が向上する、(3)観測する波長ごとの信号間の相関を評価することができる、などがあり、遷移状態分光を確立していく上で強力な手段となっている。

（真空紫外領域）

本研究では、主目的としているアト秒パルスを発生する技術の開発と、発生と表裏一体であるアト秒パルスの信頼できる計測法の開発を単に工学的に実現すれば良いと考えているわけではない。本研究の申請時からアピールしている研究のアプローチにおける特色や独創性は既に如何なく発揮されている。実際、真空紫外領域の超短パルス光の発生に不可欠な高次高調波発生の新しい制御手法の探究や新現象の探索とその解明を通じて、高次高調波発生に関するより深い理解を追究するなど研究のプロセスを重視したプロジェクトを展開しており、既に新たな知見が数多く得られている。ここでは、「これまでの研究経過」ではスペースの都合で述べられなかった内容も含め、それを補足する形で「特記事項」としてまとめる。

- (1) 高次高調波発生の基本波として用いる高強度超短パルスレーザー光よりも波長が長く、強度が 2 桁以上低いナノ秒レーザー光（それ自身の高次高調波は発生しない）を併用した時に、ナノ秒レーザー光の光子が 1 つあるいは 2 つ関与した和・差周波光が高効率で発生することを発見した。特に興味深いのは、これらの高次の和・差周波光が特にカットオフ近傍で純粋な高次高調波よりも高効率で発生する点である。この現象は、高次高調波発生標準的理論として知られる Lewenstein モデルを 2 波長の場合に拡張したモデルによっても裏付けられている。理論計算から、併用するレーザー光の波長によって和・差周波光の発生が特に高効率になる領域が存在することや偏光の組合せに関する特徴的な選択則も明らかとなった。アト秒領域のパルスでも一層の短パルス化を図るためにはより短波長、すなわち、カットオフ近傍のより高次の高調波の近傍でコヒーレント真空紫外光を発生することが必要となる。今回の実験的・理論的発見はこの観点から極めて重要なものである。
- (2) 先に成功した時間依存偏光パルスを用いた分子の多光子イオン化の制御実験に刺激され、時間依存偏光パルスを用いた 2 原子分子のトンネルイオン化の制御に関する新しいモデルを構築し、実際に数値計算を行った。その結果、同じ時間幅、同じピーク強度を持つパルスでも、偏光状態を適切に制御することにより、直線偏光の時よりもトンネルイオン化を促進できることを明らかにした。このことは、高次高調波発生第 1 ステップであるトンネルイオン化を制御できることを意味する。
- (3) 非断熱的に配向した分子中での高次高調波発生実験において、極めて特異な現象を観測することに成功した。すなわち、CO₂ を媒質とした時、高次高調波出力をポンプ光（回転波束の励起用）とプローブ光（高次高調波発生用）の時間差(delay time)の関数として観測した時の変化の仕方と、媒質のイオン化信号のそれとが逆位相になることを初めて観測し、最近その原因の理論的解明にも成功した。これは高次高調波発生を説明するいわゆる 3 ステップモデルにおいて、第 1 ステップのトンネルイオン化よりも第 2、第 3 ステップの効果が直接反映された初めての実験結果であり、極めて興味深い。
- (4) 上記(2)および(3)を組合せ、配向した分子に時間依存偏光パルスを照射することにより、分子中での高次高調波発生を究極的な形で制御することが可能となった。このことは、後述するように、**アト秒パルス発生**の全く新しいアプローチとして発展する可能性がある。

研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(発表予定のものを記入することも可能。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。)

【代表的なOriginal Papers】

- (1) H. Sakai, J. J. Larsen, C. P. Safvan, I. Wendt-Larsen, H. Stapelfeldt, and T. Kanai, "Alignment of neutral molecules by a strong nonresonant linearly polarized laser field," ACS Symposium Series, Laser Control and Manipulation of Molecules, A. D. Bandrauk, Y. Fujimura, and R. J. Gordon, Editors, Vol. 821, Chapter 21, 320-335 (2002).
- (2) H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, "Controlling the orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields," Phys. Rev. Lett. **90**, 083001-1-083001-4 (2003).
- (3) S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, T. Suzuki, and H. Sakai "Observation of molecular orientation by the combination of electrostatic and nonresonant, pulsed laser fields," J. Chem. Phys. **118**, 4052-4059 (2003).
- (4) H. Sakai, J. J. Larsen, I. Wendt-Larsen, J. Olesen, P. B. Corkum, and H. Stapelfeldt, "Nonresonant double ionization of D₂ molecules with intense 20 fs pulses," Phys. Rev. A **67**, 063404-1-063404-4 (2003).
- (5) H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, "Orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields," Eur. Phys. J. D **26**, 33-37 (2003).
- (6) S. Minemoto, H. Tanji, and H. Sakai, "Polarizability anisotropies of rare gas van der Waals dimers studied by laser-induced molecular alignment," J. Chem. Phys. **119**, 7737-7740 (2003).
- (7) T. Suzuki, S. Minemoto, T. Kanai, H. Sakai, "Optimal control of multiphoton ionization processes in I₂ molecules with time-dependent polarization pulses (in Japanese)," The Review of Laser Engineering, **31**, 762-769 (2003).
- (8) T. Suzuki, S. Minemoto, T. Kanai, H. Sakai, "Optimal control of multiphoton ionization processes in aligned I₂ molecules with time-dependent polarization pulses," Phys. Rev. Lett. **92**, 133005-1-133005-4 (2004).
- (9) H. Kano and T. Kobayashi, "Time-resolved fluorescence and absorption spectroscopies of porphyrin J-aggregates," J. Chem. Phys. **116**, 184-195 (2002).
- (10) X. Chen and T. Kobayashi, "The effect of two-exciton states on the linear absorption of the third molecular level in linear molecular aggregates," J. Chem. Phys. **117**, 11347-11351 (2002).
- (11) T. Saito and T. Kobayashi, "Conformational change in azobenzene in photoisomerization process studied with chirp-controlled sub-10-fs pulses," J. Phys. Chem. A **106**, 9436-9441 (2002).
- (12) A. Baltuska, T. Fuji, and T. Kobayashi, "Self-referencing of the carrier-envelope slip in a 6-fs visible parametric amplifier," Opt. Lett. **27**, 1241-1243 (2002).
- (13) A. Baltuska, T. Fuji, and T. Kobayashi, "Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers," Phys. Rev. Lett. **88**, 133901-1-133901-4 (2002).
- (14) S. Adachi, V. M. Kobryanskii, and T. Kobayashi, "Excitation of a breather mode of bound soliton pairs in *trans*-polyacetylene by sub-5-fs optical pulses," Phys. Rev. Lett. **89**, 27401-1-27401-4 (2002).
- (15) A. Baltuska, T. Fuji, and T. Kobayashi, "Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control," Opt. Lett. **27**, 306-308 (2002).
- (16) X.-J. Fang and T. Kobayashi, "Evolution of a super-broadened spectrum in a filament generated by an ultrashort intense laser pulse in fused silica," Appl. Phys. B **77**, 167-170 (2003).
- (17) M. Hirasawa, Y. Sakazaki, H. Hane, and T. Kobayashi, "Direct observation of vibrational dynamics in tin phthalocyanine," to appear in Chem. Phys. Lett. (2004).

【国際会議での主な Invited Talks】

- (1) H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, "Controlling the orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields," The 2002 Multiphoton Processes Gordon Conference, New Hampshire, U.S.A., June 2002.
- (2) H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, "Orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields," The International Conference on Multiphoton Processes (ICOMP) IX, Crete, Greece, October 2002.
- (3) H. Sakai, "Manipulation of molecules and its applications to the optimal control experiments," The First Canadian Workshop on Ultrafast Dynamic Imaging, Quebec, Canada, October 2003.

研究成果の発表状況 (合計)

【Original papers】33件, 【国際会議】(招待)16件,(一般)31件, 【国内会議】(招待)10件,(一般)52件

なお、研究成果の発表状況には、平成14年度に研究分担者であった小林孝嘉(東京大学大学院理学系研究科教授)と本研究費で雇用した房暁俊(博士研究員)の分が含まれている。