

## 未到時間領域の超短パルス光発生とその計測

### Generation of ultrashort pulses in unexplored time regions and their measurement

酒井 広文 (SAKAI HIROFUMI)

東京大学・大学院理学系研究科・助教授



#### 研究の概要

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技術および極限的短時間精度の計測技術の開発を目指した。研究対象を可視-近赤外領域と真空紫外領域に分け、研究グループの特長を生かした独創的な研究手法を採用して研究を展開し、数多くの顕著な成果を得ることに成功した。

#### 研究分野/科研費の分科・細目/キーワード

工学/応用物理学・工学基礎、応用光学・量子光工学/非同軸光パラメトリック増幅、キャリアエンベロープ位相 (CEP)、可視-近赤外領域、配列または配向した分子、高次高調波発生、コヒーレント真空紫外光、アト秒パルスの発生と計測、偏光ゲート法

#### 1. 研究開始当初の背景・動機

レーザー技術の進歩とともに、短パルス光発生の追求が進んできた。超短パルスレーザー光を用いて、物理・化学・生物などの多くの分野で超高速現象の解明が進んでいる。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した。

#### 2. 研究の目的

可視-近赤外領域では、極限的超短パルス光の発生、超短パルス特性の新計測法の開発、遷移状態分光法の確立を目的とした。

真空紫外領域では、高強度超短パルスレーザー光を配列分子に集光照射することにより発生する高次高調波の新しい制御手法とその物理過程を探究することを主目的としつつ、配列分子を試料とするアト秒パルスの発生技術およびアト秒領域の計測技術の開発を目指した。

#### 3. 研究の方法

可視-近赤外領域では、複数のNOPA装置を同期励起し、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した。また、絶対位相の制御された超短パルス光を超高速遷移状態分光に適用し、その有効性の実証を行った。

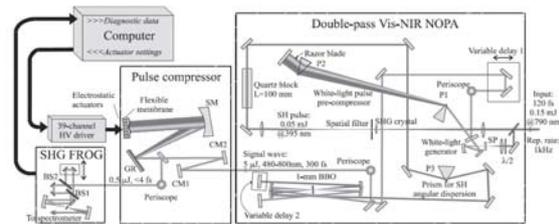
真空紫外領域では、配列分子に時間依存偏光パルスを照射することにより、高調波発生の3ステップ全てを高度に制御するとともに、分子内の超高速現象の解明につながる独自の超短パルス発生手法の開発を目指した。

研究費は主として高調波発生用の基本波レーザーや観測システムの整備に充てた。

#### 4. 研究の主な成果

##### 【可視-近赤外領域】

800 nm のチタンサファイアレーザーの基礎光を励起光として、シーディング光の白色光を発生させ、これと同じく基礎光から発生させた400 nmの第二高調波で、非平行パラメトリック増幅 (NOPA) することにより、3.9 フェムト秒の超短可視光パルスを発生させることが出来た。



##### 3.9 フェムト秒可視光パルスの発生光学系

NOPAを用いた可視光超短パルスにより超高速実時間分光が可能になり、 $3000 \text{ cm}^{-1}$ の高周波数に至るまでのさまざまな分子振動の測定解析が可能になった。これにより、さまざまな物質の素励起や非線形励起状態間の緩和過程をより詳細に理解できるようになった。上記装置系を用いて、種々の物質の超高速分光を行った。

#### [ 4. 研究の主な成果 (続き) ]

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】

(1) 時間依存偏光パルス (偏光状態が時間とともに変化するパルス) を配列した $I_2$ 分子に照射することにより、多光子イオン化過程の最適制御に成功した。時間依存偏光パルスの利用により、レーザー電場のベクトルとしての性質を最大限に利用でき、制御性の次元の拡張により、従来よりも飛躍的に高度なトンネルイオン化の制御が可能となった。この成果は、高次高調波発生の第1ステップであるトンネルイオン化を最も高度に制御する技術を開発したことを意味する。

(2) 非断熱的に配列した分子中からの高次高調波発生実験において、同一条件下で高調波信号とイオン信号を同時に計測する独自の実験手法の導入により、分子軌道の対称性の効果を明らかにするとともに、高調波発生の第3ステップである再結合過程における電子のド・ブロイ波間の量子干渉効果 (ここでは強く打ち消しあう干渉効果) を世界で初めて観測することに成功した。観測された干渉効果の著しい特徴は、この干渉効果が1分子中で光の1周期以内で起こっていることである。したがって、この干渉効果をうまく利用すれば、分子の瞬間的な構造 (直線分子の場合は核間距離) をアト秒領域の極限的短時間精度で計測するための全く新しい手法となりうることも提案した。

(3) 配列した分子に偏光ゲート法を適用した。この場合には、高調波発生効率の楕円率依存性からの自然な推論として、分子軸と楕円偏光の長軸が平行な時の方が高調波の発生が可能な時間幅がより制約され、高調波スペクトルを観測した場合、より広いスペクトル幅を示すと予想したが、実験結果はむしろ逆の傾向を示すことを初めて発見し、その物理的原因を解明した。したがって、数サイクルパルスの偏光ゲートによりアト秒パルスを発生する場合にも、搬送波包絡位相 (CEP) だけでなく、分子の空間配列を重要な制御パラメータとできることを初めて明らかにした。

5. 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

- ・物質の非線形光学応答に対する絶対位相の効果の調べることのできる唯一の超短パルス光源を開発し、その有効性を実証した。
- ・配列分子に時間依存偏光パルスを照射することにより、高調波発生の3ステップ全てを高度に制御するとともに、分子内の超高速現象の解明につながる独自の超短パルス発生手法を開発した。

#### 6. 主な発表論文

(研究代表者は太字、研究分担者には下線)

- (1) Tsuneto Kanai, Shinichirou Minemoto, and **Hirofumi Sakai**, "Ellipticity dependence of high-order harmonic generation from aligned molecules," *Phys. Rev. Lett.* **98**, 053002 (2007).
- (2) M. Ikuta, A. Yabushita, F. S. Rondonuwu, J. Akahane, Y. Koyama, and T. Kobayashi, "The  $1B_u^+ \rightarrow 3A_g^- \rightarrow 1B_u^- \rightarrow 2A_g^-$  internal conversion in carotenoids following the energy-gap law identified by 5 fs spectroscopy," *Chem. Phys. Lett.* **422**, 95-99 (2006).
- (3) Haruka Tanji, Shinichirou Minemoto, and **Hirofumi Sakai**, "Three-dimensional molecular orientation with combined electrostatic and elliptically polarized laser fields," *Phys. Rev. A* **72**, 063401 (2005).
- (4) Tsuneto Kanai, Shinichirou Minemoto, and **Hirofumi Sakai**, "Quantum interference during high-order harmonic generation from aligned molecules," *Nature (London)* **435**, 470-474 (2005).
- (5) Takayuki Suzuki, Shinichirou Minemoto, Tsuneto Kanai, and **Hirofumi Sakai**, "Optimal control of multiphoton ionization processes in aligned  $I_2$  molecules with time-dependent polarization pulses," *Phys. Rev. Lett.* **92**, 133005 (2004).
- (6) M. Hirasawa, Y. Sakazaki, H. Hane, and T. Kobayashi, "Direct observation of vibration dynamics in phthalocyanine," *Chem. Phys. Lett.* **392**, 390-395 (2004).
- (7) **Hirofumi Sakai**, Shinichirou Minemoto, Hiroshi Nanjo, Haruka Tanji, and Takayuki Suzuki, "Controlling the orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 083001 (2003).