

科学研究費助成事業（特別推進研究）公表用資料
〔研究進捗評価用〕

平成21年度採択分

平成24年 5月30日現在

研究課題名（和文） **配向制御技術で拓く分子の新しい量子相の物理学**

研究課題名（英文） **Electronic stereodynamics in molecules and ultrafast molecular imaging based on molecular orientation techniques**

研究代表者

酒井 広文 (SAKAI HIROFUMI)

東京大学・大学院理学系研究科・准教授



研究の概要：向きの揃った分子試料は、異方性をもつ理想的な量子系であり、気体結晶とも呼べる分子の新しい量子相と位置づけられる。本研究では、全く新しい分子配向制御技術を開発するとともに、配向した分子試料を用いた一連の研究により、「分子の新しい量子相の物理学」を開拓することを目的とする。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：原子・分子物理、高性能レーザー、配列・配向分子、高次高調波発生

1. 研究開始当初の背景

(1) レーザー技術を用いた気体分子の配向制御技術は、酒井グループが様々な手法の原理実証実験に成功していたが、高い配向度を達成することは困難であった。

(2) 搬送波包絡位相の安定した数サイクルパルスを用い、分子中で光の1周期以内に起こる現象を探究する「分子内電子の立体ダイナミクス」の開拓が望まれていた。

2. 研究の目的

(1) 気体分子の配向制御技術については、高い配向度を達成し、(レーザー)電場の存在しない条件下で1次元的、及び3次元的な配向制御を行う技術を開発する。

(2) 配向した分子試料を用い、「分子内電子の立体ダイナミクス」という新しい研究分野を開拓する。

3. 研究の方法

(1) 高い配向度を達成するために、分子偏向器や六極集束器を開発し、回転量子状態を選別した分子試料を用いる。静電場とレーザー電場を併用する手法や2波長レーザー電場のみを用いる全光学的な手法にプラズマシッター法を適用し、(レーザー)電場のない条件下での配向制御を行う。

(2) 電子・イオン多重同時計測運動量画像分光装置を開発し、超短パルス高強度レーザー電場と分子の相互作用に関する「分子内電子の立体ダイナミクス」の研究を行う。

4. これまでの成果

(1) 気体分子の配向制御技術の高度化—原理実証から実用化へ—

OCS分子を試料として用い、非共鳴2波長レーザー電場により形成される非対称レーザー電場を利用する全光学的な分子配向制御に初めて成功した。全光学的分子配向制御の成果は、K. Oda *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **104**, 213901 (2010)に発表し、科学新聞でも報道された。本成果は、酒井らが独自に提案した全光学的な手法(*J. Chem. Phys.* **115**, 5492 (2001))を用いた分子配向制御の世界初の確実な証拠であり、当該分野で大きなインパクトをもち、今後の発展も強く期待されている。

その後、高い配向度の達成を目指し、初期回転量子状態を選別するために分子偏向器と六極集束器を開発した。分子偏向器を用いて量子状態を選別したC₆H₅I分子を試料とし、静電場とレーザー電場を用いた手法では、利用可能なレーザー強度や静電場で世界最高水準の配向度を達成済みである。

(2) 波長1300 nm及び800 nmパルスを用いた配列分子中からの高次高調波発生

酒井グループでは先に、配列した分子中からの高次高調波発生実験において、特にCO₂分子を試料とした場合、再結合過程における電子のド・ブロイ波の量子干渉効果を世界で初めて観測することに成功した(*Nature (London)* **435**, 470 (2005))。主としてCO₂分子中の量子干渉効果の支配的な原因を探る目的から、フェムト秒Ti:sapphireレーザー増幅システムから得られる中心波長800 nmの

[4. これまでの成果 (続き)]

パルスに加え、光パラメトリック増幅器(OPA)から得られる中心波長 1300 nmのパルスも用いて高次高調波発生の実験を行った。試料としてN₂、O₂、CO₂分子を用いた。CO₂分子を用いた場合にはN₂やO₂の場合と大きく異なる結果が観測された。CO₂分子の場合には、29 eVから 39 eVの光子エネルギーの範囲で 800 nmパルスを用いても 1300 nmパルスを用いても高調波強度はイオン強度と逆位相の時間発展を示すことが確認できた。観測された効果は電子のド・ブロイ波の2中心干渉モデルでよく説明できる。今回の観測結果は、先に本研究グループのNature論文で指摘した2中心干渉効果が支配的な現象であることを強く示唆していると考えられる。本成果は、K. Kato *et al.*, Phys. Rev. A **84**, 021403(R) (2011)に発表した。その知見は長年の論争に終止符を打つものであり、当該分野における重要な成果と位置づけられる。

(3) 搬送波包絡位相を制御したフェムト秒パルスを用いた原子分子中からの高次高調波発生

CEPの制御されたパルス幅 $\tau \sim 25$ fsのレーザー光を希ガス原子や配列した分子に集光照射して観測される高次高調波スペクトルをフーリエ変換して解析した結果、チャープしてスペクトルが広がった隣り合う奇数次高調波の同じ周波数成分が発生する時間差 ΔT が高調波次数とともに減少していることが初めて明らかになった。また、配列した分子試料を用いた実験により、アト秒パルス列の発生において、CEPだけでなく分子配列もその制御パラメータになることを示唆する新たな知見を得ることができた。本成果は、Y. Sakemi *et al.*, Phys. Rev. A **85**, 051801(R) (2012)に発表した。上記の全ての知見が新しいことは勿論であるが、配列した分子を試料とした観測自体が世界初のものであり、理論研究の発展を促す重要な知見が得られた。

(4) 電子・イオン多重同時計測運動量画像分光装置の開発

分子中で超短パルス高強度レーザー電場に直接応答するのは電子なので、電子の運動エネルギースペクトルや角度分布を観測することが重要である。このため、「電子・イオン多重同時計測運動量画像分光装置」を開発した。開発した装置では、データの解釈が容易なように速度マップ型を採用した。荷電粒子の軌道計算によると、運動エネルギー40 eV程度までの電子の検出が可能である。

5. 今後の計画

(1) 静電場とレーザー電場を併用する手法や2波長レーザー電場のみを用いる全光学的な手法にプラズマシャッター法を適用し、

(レーザー)電場のない条件下での配向制御を行う。

(2) 2波長フェムト秒レーザーパルスで形成される非対称レーザー電場を用いて分子を配向し、高次高調波の観測と物理過程の解明を目指す。

(3) 開発した電子・イオン多重同時計測運動量画像分光装置を用い、「分子内電子の立体ダイナミクス」に関する研究を推進する。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む) (研究代表者は二重線、研究分担者は一重下線、連携研究者は点線)

1. Yusuke Sakemi, Kosaku Kato, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai, "Characteristics of high-order harmonics generated from atoms and aligned molecules with carrier-envelope-phase-stabilized 25-fs pulses," Phys. Rev. A **85**, 051801(R)(4 pages) (2012).
2. Kosaku Kato, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai, "Suppression of high-order-harmonic intensities observed in aligned CO₂ molecules with 1300-nm and 800-nm pulses," Phys. Rev. A **84**, 021403(R)(4 pages) (2011).
3. Shinichirou Minemoto and Hirofumi Sakai, "Measuring polarizability anisotropies of rare gas diatomic molecules by laser-induced molecular alignment technique," J. Chem. Phys. **134**, 214305(9 pages) (2011).
4. Hiroki Mizutani, Shinichirou Minemoto, Yuichiro Oguchi, and Hirofumi Sakai, "Effect of nuclear motion observed in high-order harmonic generation from D₂/H₂ molecules with intense multi-cycle 1300 nm and 800 nm pulses," J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **44**, 081002(5 pages) (2011) (Fast Track Communication).
5. Yuichiro Oguchi, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai, "Dependence of the generation efficiency of high-order sum and difference frequencies in the extreme ultraviolet region on the wavelength of an added tunable laser field," J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 014301(8 pages) (2011).
6. Keita Oda, Masafumi Hita, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai, "All-optical molecular orientation," Phys. Rev. Lett. **104**, 213901(4 pages) (2010).
7. Yuichiro Oguchi, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai, "Generation of high-order sum and difference frequencies by adding an intense parallel- and perpendicular-polarized infrared laser field," Phys. Rev. A **80**, 021804(R)(4 pages) (2009).

ホームページ等

<http://light.phys.s.u-tokyo.ac.jp/indexj.html>