

17a-F7-4

配列したCO₂分子中から発生する高次高調波の楕円率依存性Ellipticity dependence of high-order harmonics generated from aligned CO₂ molecules東大理物理¹, 東大院理物理², ^{○(B4)}羅恒宇¹, 小森健太郎¹, 峰本紳一郎², 酒井広文²Dept. of Phys., Fac. of Sci.¹ and Grad. Sch. of Sci.², The Univ. of Tokyo.,^{○(B4)}Kou Ra, Kentaro Komori, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai

E-mail: 3729879869@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp

20 世紀末に開発が始まったレーザー電場を用いた気体分子の配列・配向制御技術は、急速に進歩し続けており、既に様々な物理現象を調べるのに用いられている[1]。特に、配列した分子から発生する高次高調波は、分子軌道トモグラフィ[2]や分子構造を反映した電子のド・ブroy波の破壊的干渉[3]など、分子構造とその超高速ダイナミクスを解明するために中心的役割を果たしている。本研究室では、配列した分子中から発生する高次高調波の楕円率依存性を調べ、配列した分子の方向とプローブ光の偏光楕円の長軸の方向が平行なとき（平行配置）の方が垂直なとき（垂直配置）に比べ楕円率の増大とともに高調波強度が急速に減少することを初めて見出した [4]。今回、特に配列したCO₂分子から発生する高次高調波について、その楕円率依存性を 9 次から 29 次まで系統的に調べ、その包括的な情報を得るとともに、新現象の探索と分子軌道イメージングに資するためのメカニズムの解明を目指した実験研究を進めている。

フェムト秒Ti:sapphireレーザー増幅システムからの出力パルス(中心波長~800 nm、パルス幅~50 fs)を干渉計で分子配列用のポンプ光と高調波発生用のプローブ光として用いた。ここで、1/2 波長板と 1/4 波長板を組み合わせてプローブ光の楕円率を制御し、またポンプ光の偏光方向を変えることによりprobe光の偏光楕円の長軸が配列した分子の方向と平行または垂直となるように調整した。比較的高いプローブ光強度 (~2.5×10¹⁴ W/cm²) を用いて観測した 17 次高調波の楕円率依存性をFig. 1 に示す。横軸が楕円率、縦軸が規格化された強度を表し、赤が平行配置、青が垂直配置の依存性を示している。平行配置の方が垂直配置に比べ楕円率の増大に伴う高調波強度の減少の仕方が緩やかになっていることが分かる。これは、文献[4]の結果と逆の関係であり、分子軌道の広がり方と反直感的な関係となっている。今回初めて観測された楕円率依存性の逆転現象は、電子のド・ブroy波の破壊的干渉効果が関与するプローブ光の強度に依存する現象であるとの仮説を立て、その検証実験を進めている。

- [1] See, e.g., Yuichi Fujimura and Hirofumi Sakai, *Electronic and Nuclear Dynamics in Molecular Systems* (World Scientific, Singapore, 2011), Chapter 4.
 [2] J. Itatani *et al.*, *Nature (London)* **432**, 867 (2004).
 [3] T. Kanai, S. Minemoto and H. Sakai, *Nature (London)* **435**, 470 (2005).
 [4] T. Kanai, S. Minemoto and H. Sakai, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 053002 (2007).

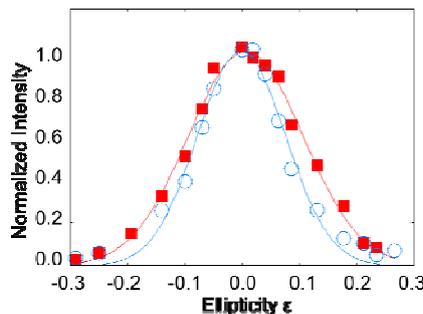


Fig.1. The ellipticity dependence of the 17th harmonic intensities from aligned CO₂ molecules in the parallel (red) and perpendicular (blue) configurations. The intensity of the probe pulse is ~2.5×10¹⁴ W/cm².