### 配列した二酸化炭素分子から発生する高次高調波強度の楕円率依存性

Ellipticity dependence of high-order harmonic intensities generated from aligned CO<sub>2</sub> molecules

# 東大院理 O(M2)中川桂、峰本紳一郎、酒井広文

## Graduate School of Science, The University of Tokyo

#### °(M2)Kei Nakagawa, Shinichirou Minemoto, and Hirofumi Sakai

#### E-mail: nakagawa@light.phys.s.u-tokyo.ac.jp

レーザー電場を用いた気体分子の配列技術は、分子軌道の対称性や分子軸とレーザー電場の向きに依存す る現象を調べる上で重要な役割を担ってきた。配列した分子から発生する高次高調波の観測は、分子軌道ト モグラフィー[1]や分子構造を反映した電子のド・ブロイ波の破壊的量子干渉[2]など、分子構造とその超高速 ダイナミクスを探究する観点から注目を集め、多くの実験が行われている。昨年の春の学会では、配列した 二酸化炭素分子中から発生する高次高調波の楕円率依存性が、高次高調波を発生させるプローブ光の強度や 試料の密度(位相整合条件)に敏感であることを報告した[3]。今回、楕円率依存性が分子を配列させるポン プ光の強度とプローブ光の強度の組み合わせに依存することを初めて明らかにした。

分子を配列させるため、Ti:sapphireレーザーパルス(中心波長~800 nm パルス幅~50 fs)の一部をポンプ 光として分子に照射し、 試料分子に固有の遅延時間後、分子の向きが揃ったときにプローブ光を照射して高 次高調波を発生させた。ここでプローブ光の楕円率は、1/2波長板と1/4波長板の組み合わせにより制御した。 また、ポンプ光の偏光方向を変えて、配列した分子の軸に対してプローブ光の偏光楕円の長軸が平行又は垂 直な配置になるようにして試料分子に照射した。発生した高次高調波のスペクトルは斜入射型真空紫外分光 器と電子増倍管を用いて観測した。配列した二酸化炭素分子から発生する高次高調波強度の楕円率依存性が ポンプ光とプローブ光の強度の組み合わせに依存する例をFig.1とFig.2に示す。図には、プローブ光の偏光楕 円の長軸を配列した二酸化炭素分子の軸に対して平行〇、及び垂直〇に配置して観測した25次高調波の楕円率依 存性が示されている。ポンプ光とプローブ光の強度が比較的高いとき(ポンプ光強度 (8.7±0.8)×10<sup>13</sup> W/cm<sup>2</sup>、 プローブ光強度 (2.1±0.2)×10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>)、Fig.1から偏光楕円の長軸を平行配置にして観測した高次高調波の強 度は、長軸を垂直配置にしたときよりも緩やかに変化することが分かり、3ステップモデルから予想される関係(長軸を 垂直配置にして観測した高次高調波の強度は、長軸を平行配置にしたときよりも緩やかに変化する)と逆の関係を示 している。一方、ポンプ光とプローブ光の強度がFig.1より低い(ポンプ光強度 (5.4±0.8)×10<sup>13</sup> W/cm<sup>2</sup>、プロー ブ光強度 (1.9±0.2)×10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>) とき、Fig.2から長軸を垂直配置にして観測した高次高調波の強度は、長軸を 平行配置にしたときよりも緩やかに変化することが分かり、3ステップモデルから予想される関係を示すとともに、文献 [4]で報告した結果を再現している。発表では、配列した二酸化炭素分子から発生する高次高調波強度の楕円率 依存性が、ポンプ光とプローブ光の強度の組み合わせに複雑に依存する様子を報告する。

本研究は、科学研究費補助金の特別推進研究「配向制御技術で拓く分子の新しい量子相の物理学」(課題番号21000003、研究代表者:酒井広文)と基盤研究(A)「配向した分子中から発生する高次高調波の物理過程の解明」(課題番号26247065、研究代表者:酒井広文)に加え、文部科学省「光・量子科学研究拠点形成に向けた基盤技術開発 最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」、及び、「最先端研究基盤事業 コヒーレント光科学研究基盤の整備」からの支援も受けて行われた。ここに記して謝意を表する。





aligned CO<sub>2</sub> molecules at the pump pulse intensity of  $(5.6\pm0.8)$ × 10<sup>13</sup> W/cm<sup>2</sup> and the probe pulse intensity of  $(1.9\pm0.2)\times10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

[1] J. Itatani et al., Nature (London) 432, 867 (2004).

[2] T. Kanai, S. Minemoto and H. Sakai, Nature (London) 435, 470 (2005).

[3] 羅恒宇、小森健太郎、峰本紳一郎、酒井広文、2014年(平成26年)第61回応用物理学会春季学術講演会.

[4] T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai, Phys. Rev. Lett. 98, 053002 (2007).