

二色円偏光合成電場よるキラル分子からの円偏光高次高調波発生 Circularly polarized high harmonic generation from chiral molecules by bichromatic circularly polarized synthesized light field

北大工 原田要一、原口英介、芝悠真、金島圭佑、[○]関川太郎

Hokkaido Univ., Yoichi Hrada, Eisuke Haraguchi, Yuma Shiba, Keisuke Kaneshima, [○]Taro Sekikawa

E-mail: sekikawa@eng.hokudai.ac.jp

中心波長が異なる互いに直交する円偏光光を時空間ともに重ね合わせ、原子や分子と相互作用させると円偏光をもつ高次高調波が発生する。円偏光高次高調波は、生体関連分子におけるキラリティーの役割や凝縮系におけるスピンドYNAMICSを理解するために役立つ光源となりうる。一方、高次高調波発生自体から、相互作用する媒質の電子状態の情報を得ることができる。キラル分子は旋光性を示し、光との相互作用の強さは円偏光度に依存する。

我々は、キラル分子からの円偏光高次高調波発生にキラリティー依存性が表れることを期待し、キラル分子であるリモネン分子からの円偏光高次高調波スペクトルを観測した。中心波長が 800 nm と 400 nm の円偏光パルスを用いた場合、 $3m+1$ 次と $3m+2$ 次の強度比が円偏光の向きにより変わることを見いだした。また、鏡像異性体を用いても強度比が変わった(2017年秋の学術講演会)。これらの結果は、円偏光高次高調波発生過程に分子のキラリティーが関与していることを示唆している。逆に、高次高調波スペクトルの測定により、分子のキラリティーを区別できる可能性を示す。

本講演では、高次高調波発生において円二色性が現れる機構を定性的に議論する。図1に R-リモネンの吸収スペクトル(実線)とその円二色性吸光度(点線)を示す[1]。今回使用したレーザー波長の整数分の1倍である 200 nm において、円二色性吸光度の符号が負であり、R-リモネンは 200 nm において右円偏光に対する吸光度が大きいことを示す。必ずしも自明ではないが、線形吸収係数が大きい方に対し非線形応答も大きいと考えられる。すなわち、200 nm においては右偏光(clockwise)に対する非線形光学応答が大きいと考えられる。また、200 nm に共鳴するためには 800 nm 光は 4 光子を必要とするが、400 nm 光は 2 光子である。そのため、2 次の非線形光学過程で共鳴する 400 nm 光に対する応答のほうが、非線形性が大きいと考えられる。右円偏光の 400 nm 光と左円偏光(counter-clockwise)の 800 nm 光の組み合わせの合成電場を用いた場合、光学的に等方なヘリウム原子からの高次高調波スペクトルと比較すると、次のような変化が生じると考えられる。400 nm 光と同じ偏光である $3m+2$ 次高調波は、800 nm 光と同じ偏光をもつ $3m+1$ 次より、400 nm 光に対する非線形性により相対的に強くなることが期待される。

図2に、実験で得られた各次数におけるヘリウム原子に対する R-リモネンからの高調波強度比を示す。R-リモネンがヘリウムと同じ特性を持つならば同じスペクトルになり、強度比は次数によらず一定となるはずである。ところが、 $3m+2$ 次の 14、17 次高調波は、 $3m+1$ 次の 16、19 次に対して右円偏光の 400 nm 光(▲)を用いると相対的に強度が増している。偏光を逆にすると強度比は逆転する。このようにキラリティーと円偏光を関係づけることができる。

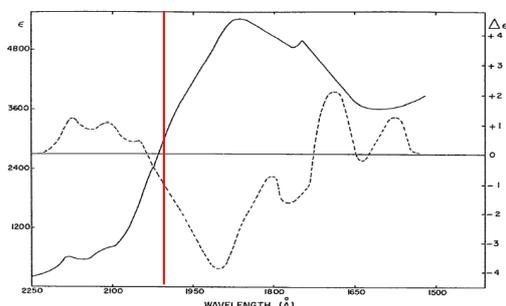


図1: R-リモネンの線形吸収(実線)と円二色(点線)スペクトル[1]

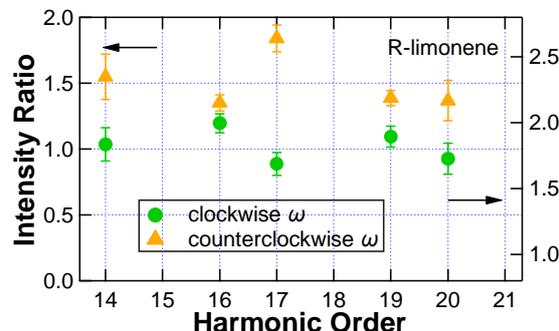


図2: ヘリウムに対する R-リモネンからの高次高調波の強度比

参考文献

[1] P. Brint, E. Meshulam, and A. Gedanken, Chem. Phys. Lett. **109**, 383 (1984).