

フェムト秒レーザーと高強度 THz パルスによる分子配向

(東大物性研、CREST) ○北野健太, 石井順久, 板谷治郎

【序】 熱平衡状態にある気相の分子集団は方向性を持っていないが、分子の回転自由度を制御することにより、高調波発生効率の配向依存性や入射光の偏光回転などの性質を示す異方性の高い非線形媒質となる。このような非線形応答は光電場に対する電子の応答に基づいているため、非線形光学手法によって分子の電子状態をプローブする手法も提案されている[1]。分子の空間方向の制御に関しては、分子軸の方向を区別せずに揃える‘配列(alignment)’と、区別する‘配向(orientation)’との二つに分けられる。配列に関しては、高強度レーザーを用いた手法により精密な制御が実現されているが、配向に関しては未だ確立されていない。量子状態選別による手法と静電場、レーザー電場による手法とを併用することにより、特定の分子種に対しては高い配向度、 $\langle \cos \theta \rangle \sim 0.8$ 、が実現されている[2]。しかしながら、光の実験への適用という視点から考えると、状態選別の過程で分子密度が希薄になる、静電場が観測量に与える影響を無視できない、という問題点が残る。これらを解決するためには、光学過程のみで高い配向度を実現することが必要である。現在までに、二波長の高強度レーザーを用いる手法[3]や高強度 THz パルスを用いた手法[4]が提案されている。前者は、既に実験的に実証されているが、配向度は $\langle \cos \theta \rangle \sim 0.1$ 、と低く、後者に関しては、適用対象が大きな双極子を持つ分子種に限定されているため、現在のところ実験的な報告例はない。

【概要】 我々はフェムト秒レーザーパルスと高強度 THz パルスを併用することにより、高い配向度を実現できることを見出した。本手法の遷移モード図を図 1(a) に示す。まず、フェムト秒パルスを照射し、回転ラマン遷移によって、全角運動量指数 J が偶数-偶数、または奇数-奇数の状態間にコヒーレンスを生成させ、分子を配列させる。パルス幅を回転周期より十分に短くすることにより、分子は非断熱的に励起されてパルス照射後も回転コヒーレンスが残る。次に共鳴 THz パルスを照射することにより、双極子遷移によって偶数-奇数間にコヒーレンスを生成させ、分子を配向させる。このダブルパルスによる手法はコヒーレント制御の一手法であり、遅延時間やパルス波形を制御して、複数の遷移経路間の干渉を利用することにより、高い配向度を実現することができる。

【シミュレーション結果】 本手法の有効性を実証するために時間依存シュレディンガー方程式の数値

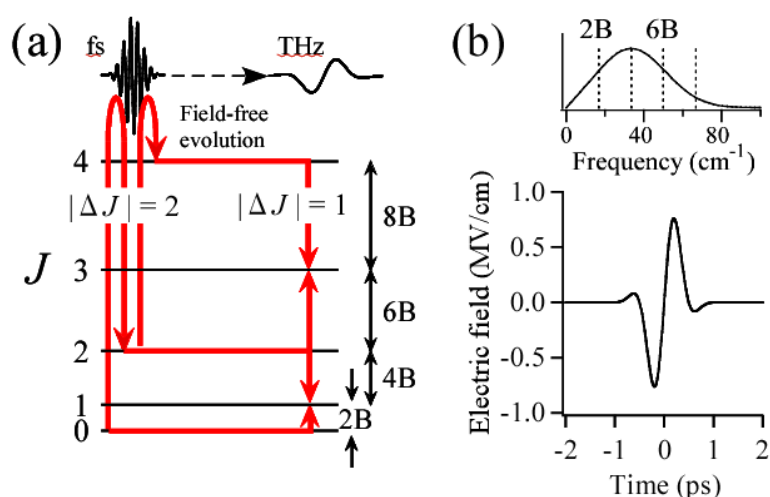


図 1: (a) フェムト秒パルスによる回転ラマン遷移と THz パルスによる双極子遷移のモード図。

(b) 本計算で用いた THz パルスの電場波形とそのスペクトル強度。スペクトル中には、HBr 分子の回転遷移の周波数を (a) と対応させて記載している。B は HBr 分子の回転定数。

解を求めた。フェムト秒パルスのパラメータは、100 fs, $I_{\text{peak}} = 18 \text{ TW/cm}^2$ 、THz パルスに関しては、近年 Watanabe らによって報告された値[5]を参考にして、700 fs, $E_{\text{peak}} = 7.6 \times 10^5 \text{ V/cm}$ とした。図 1 (b) に計算に用いた THz パルスの電場波形、及びそのフーリエ変換によるパワースペクトルを示す。図 2 に、これらのパルスを用いて行ったシミュレーション結果を示す。なお、分子には THz 帯域に回転遷移を有する HBr を用いた。図中上段では、縦軸を THz パルスに対するフェムト秒パルスの遅延時間、横軸を THz パルス照射後の時刻とし、配向度を 2 次元表示している。下段では、最大の配向度が実現される遅延時間 (-2.53 ps) における配向度の時間変化を、THz パルスの電場波形と併せて表示している。THz パルス照射後のフィールドフリーの状況下において、最大で、 $\langle \cos \theta \rangle \sim 0.84$ が実現されている。なお、THz パルスのみを照射した場合に実現される配向度の最大値は、 $\langle \cos \theta \rangle \sim 0.38$ と計算された。このようにフェムト秒パルスを併用することにより、配向度を向上させることができる。

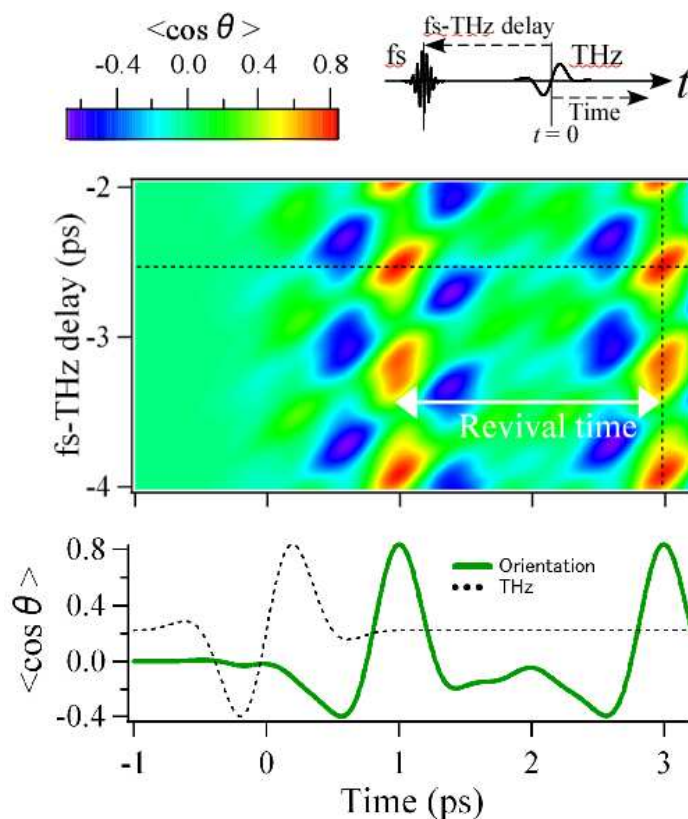


図 2: (上) 配向度の、fs-THz の遅延時間 (縦軸) と THz 照射後の時刻 (横軸) 依存性
(下) 最大の配向度が実現される fs-THz の遅延時間 (上段の図中に水平方向の点線で図示) に固定した場合の配向度の時間変化。図中には、THz パルスの電場波形を点線で示している。

【まとめ】 フェムト秒パルスと THz パルスを併用して高い配向度を実現するための手法を提案し、シミュレーション結果により有用性を確認した。本手法では、分子の隣接する回転準位間の遷移周波数が THz パルスの主要スペクトル成分と共鳴するように、フェムト秒パルスにより事前に回転励起させることで、高い配向度を実現している。そのため、フェムト秒パルスによる回転励起を制御することにより、同一の THz パルスをを用いた場合でも、様々な分子に適用することができ、汎用性が高い。また、本手法ではフィールドフリーの条件下で、高い分子数密度の配向した分子集団を生成させることができるため、レーザーパルスの波形整形や高次高調波発生などへの応用が期待できる。

References

- [1] J. Itatani *et al.*, Nature **432**, 867 (2004).
- [2] L. Holmegaard *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 023001 (2009); O. Ghafur *et al.*, Nature Phys. **5**, 289 (2009).
- [3] S. De *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 153002 (2009); K. Oda, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 213901 (2010).
- [4] M. Machholm and N. E. Henriksen, Phys. Rev. Lett. **87**, 193001 (2001).
- [5] S. Watanabe *et al.*, Opt. Express **19**, 1528 (2011).