



# 第40回 極限コヒーレント光科学セミナー

2016年11月7日(火) 10:00~11:00

物性研本館 第一会議室

講師：井手口拓郎先生

東京大学大学院理学系研究科

## 光周波数コムによる分子分光

光周波数コム（光コム）は、超短パルスレーザーから出射される光パルス列の時間コヒーレンスが極限的に高められた光源であり、等間隔に周波数が異なる 100 万本程度の単一周波数レーザーの重ね合わせと同等の特性を持つ。この精密な光周波数の櫛は、光とマイクロ波という、周波数が数桁異なる電磁波をリンクするギアの役割を担い、エレクトロニクスでは計測できない光の周波数計測を可能にした。光コムによる超精密な光の絶対周波数計測を通して、基礎物理学の未解決問題にアプローチする研究が進められている一方で、別の観点から光コムの特性を活かす応用研究が盛んに行われている。本セミナーでは、これらの応用のうち、光コムによる広帯域分子分光に関する研究について紹介する。

2 台の光コムを用いたデュアルコム分光は、光コムの特性を巧みに活かした広帯域分光手法である。空間的に重ね合わされた、繰り返し周波数のわずかに異なる 2 つの光コムは、光パルス間の時間遅延が自動的に掃引される光パルス列を生成するため、掃引型マイケルソン干渉計と同等の働きをする。そのため、光パルスの相互相関波形を高速に計測できることから、高速フーリエ変換分光器として利用することができる。機械的な遅延線を用いるマイケルソン干渉計に対して、機械動作を要しないデュアルコム分光計では、数桁に及ぶ掃引時間の短縮が可能であり、超高速な広帯域分光器となる。

デュアルコム分光の原理は極めてシンプルであるが、その実装は容易ではない。なぜならば、2 台の光コムを準備するためには、複雑なフィードバック制御が必須であるからである。この実験的な複雑さのために、デュアルコム分光は、精密分光学を行う研究機関においてのみ実現が可能である代物であった。デュアルコム分光の普及のためには、よりシンプルで簡易的な実装が待望されている。本セミナーでは、簡易的なデュアルコム分光を実装するいくつかのアプローチを紹介する[1,2]。

これまで、原理検証実験が中心であったデュアルコム分光の研究は、実際の応用を見据えたものに変遷していくフェーズにある。本セミナーでは、非線形光学効果を利用したデュアルコム分光による、生命科学への応用を目指した研究を紹介する[3]。

### 参考文献：

1. T. Ideguchi et al., Nature Communications **5**, 3375 (2014).
2. T. Ideguchi et al., Optica **3**, 748-753 (2016).
3. T. Ideguchi et al., Nature **502**, 355-358 (2013).

# 第41回 極限コヒーレント光科学セミナー

2016年11月7日(火) 13:00~14:00

物性研本館 第一会議室

講師：足立俊輔先生

京都大学大学院理学研究科

## 深紫外ドライブレザーによる高次高調波： 分子反応ダイナミクスへの応用

近年のレーザー研究のトレンドの一つに、赤外ドライブレザー(ドライバー)を用いた軟X線高次高調波の発生がある[1]。高次高調波のカットオフ(発生する高調波の最大光子エネルギー)はドライバーの波長の二乗に比例して伸びることから、従来のチタンサファイアドライバー(800 nm)より長波長の赤外ドライバーの装置開発が世界中で活発に行われている。一方その反対に、短波長の紫外ドライバーを用いて高調波を発生させると、カットオフは伸びない代わりに、比較的低次数の真空紫外・極端紫外域において高い平均出力が得られる。また、高調波間の間隔はドライバーの波長に反比例することから、紫外ドライバーにより発生させた高調波は分離性が良く、特定次数の高調波のみを容易に切り出して分光測定に供することができる。

ここで挙げた紫外ドライバーによる高調波の優れた特性は、特に光電子分光との親和性が高い。本セミナーでは、高強度深紫外ドライバーによる90nm真空紫外高調波パルスの発生[2]と、ポンププローブ光電子分光法に基づく分子反応ダイナミクスへの応用について議論する。測定対象は原子から有機分子まで多岐にわたり[3, 4]、90 nm 真空紫外パルスは測定対象に応じてポンプとして、もしくはプローブとして用いられる。90 nm真空紫外パルスをポンプとして用いることで、原子や比較的小さな分子の高い励起状態にアクセスできる[3]。一方、プローブとして用いると、化学反応後のプロダクトの基底状態を観測することができ、プロダクトの形成ダイナミクスや反応分岐比に関する様々な知見が得られる[4]。

我々は光電子分光測定と並行して、深紫外ドライバーのアップグレードも進めており、希ガスフィラメント中での自己圧縮現象を用いて、深紫外ドライバーのパルス幅を10fs近くまで短くすることに成功している。このアップグレードした深紫外ドライバーをイオン化ゲート法[5]と組み合わせ、真空紫外・極端紫外域における高強度アト秒パルス発生も視野に入れて研究を進めている。

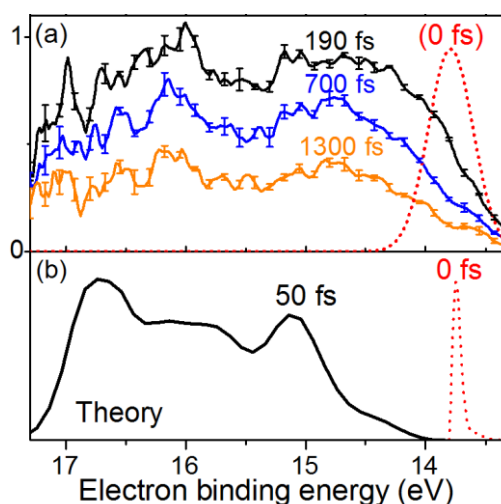


図 1 (a) CO<sub>2</sub> 分子のポンププローブ光電子スペクトル (b) 量子ダイナミクス計算により再現された光電子スペクトル[3]

[1] N. Ishii, K. Kaneshima, K. Kitano, T. Kanai, S. Watanabe, J. Itatani, *Nature Commun.* **5**, 3331 (2014)

[2] S. Adachi, T. Horio, T. Suzuki, *Opt. Lett.* **37**, 2118 (2012)

[3] M. Sato, Y. Suzuki, T. Suzuki, S. Adachi, *Appl. Phys. Express* **9**, 022401 (2016); S. Adachi, M. Sato, T. Suzuki, S. Grebenshchikov, submitted (2016)

[4] S. Adachi, M. Sato, T. Suzuki, *J. Phys. Chem. Lett.* **6**, 343 (2015); Y. Yamamoto, S. Karashima, S. Adachi, T. Suzuki, *J. Phys. Chem. A* **120**, 1153 (2016); M. Sato, S. Adachi, T. Suzuki, *J. Phys. Chem. A* **120**, 5099 (2016)

[5] T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai, S. Watanabe, *Nature* **432**, 605 (2004)



## 第42回 極限コヒーレント光科学セミナー

2016年11月7日(火) 16:00~17:00

物性研本館 第一会議室

講師：松永隆佑先生

東京大学大学院理学系研究科

### 高強度テラヘルツ電場による 非平衡超伝導ダイナミクスの研究

キャリアエンベロープ位相(CEP)が制御されたパルスレーザー技術の進展によって、ac 電場としての光が持つ性質を駆使して物質を超高速に制御する研究が活発化している。この観点から高エネルギーの超短パルスを用いて極限の時間分解能による実験が展開されている一方、物性物理における凝縮系の素励起のエネルギーは典型的には meV 程度、つまりテラヘルツ(THz)帯に集中しているため、この低エネルギー領域で物性を高速制御する技術も重要性を増している。THz パルスは受動的に CEP を固定することが容易であり、さらに近年テーブルトップで高強度の THz パルス発生技術が著しく進展したことで、THz 帯の非線形光学応答や THz 強電場による物性制御の研究が大きな注目を集めている。

我々は THz 電場による量子凝縮系の研究対象として超伝導に着目し、THz パルスを用いて非平衡超伝導ダイナミクスの解明とマクロ量子状態の光制御に向けた研究を進めてきた。典型的な金属超伝導体 NbN の超伝導ギャップは THz 帯にあるため、ギャップを共鳴的に励起することにより余剰エネルギーで格子系を加熱することなく電子系のみを瞬時に非平衡化することが可能である[1]。この「非断熱的な」THz パルス励起を利用して、秩序パラメータの振幅の振動に相当する集団励起モード、いわゆる Higgs モードを観測することに成功した[2]。Higgs モードは時間に対して非指数関数的に、時間のべき乗に従う特殊な減衰を示す[3]。これは個別励起への可逆的な無衝突エネルギー移動（ランダウ減衰）によってよく説明され、準粒子のコヒーレンスが極めて長いことを実証している。

さらにギャップ以下の周波数を持つ強い単色性 THz パルスを用いることで、準粒子の実励起を避けて系をコヒーレントに強く駆動することが可能になった。周期的な強い外場下における非平衡超伝導ダイナミクスを時間分解観測することで、秩序パラメータの強制振動が生じること、それに付随して強い高次高調波が発生することを見出した[4]。これは線形応答では電磁場と相互作用しない Higgs モードが非線形応答領域では共鳴を起こすことを意味している[4]。THz 波長の 20,000 分の 1 の厚みしか持たない超伝導薄膜から入射波の  $10^{-4}$  ほどの強度を持つ第三高調波が観測されたことは、巨視的凝縮状態における協同的な集団励起モードと電磁場が共鳴することによる巨大な非線形応答の現れであると考えられ、相互作用距離を拡大し変換効率を向上できれば THz 帯波長変換素子としても興味深い。またこの THz 高次高調波分光によって様々な物質の動的性質を探ることが可能であると考えられ、マルチバンド超伝導 MgB<sub>2</sub> 特有の集団励起を調べた最近の実験結果も紹介したい。

[1] R. Matsunaga and R. Shimano, Phys. Rev. Lett. **109**, 187002 (2012).

[2] R. Matsunaga *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 057002 (2013).

[3] R. Matsunaga *et al.*, in preparation (2016).

[4] R. Matsunaga *et al.*, Science **345**, 1121 (2014).