

4C13

中赤外フェムト秒レーザー光の波形整形とその振動回転波束制御への応用

(The University of British Columbia, Canada, CREST) ○坪内雅明、百瀬孝昌

【序】 化学反応の素過程は、反応系のポテンシャルエネルギー曲面上における初期状態の異なる様々な核波束の運動の集まりと見なすことができる。従って、波束の初期状態の精密な制御により、直接“反応制御”(coherent control)を行うことが可能となる。例えば、フェムト秒パルス対を用いた波束制御の研究では、アト秒の時間精度でのパルス対の制御により、電子励起状態での振動波束対の干渉をピコメートルの位置精度で制御することに成功している[1]。一方我々は、これまで強度・位相が精密に波形整形されたフェムト秒パルスを用いて波束制御を行うことで、量子計算への応用を見据えた分子の反応制御の研究を行ってきた[2]。

これまで反応制御の研究では、励起レーザー波長や観測の容易さから、紫外光による電子励起状態での研究が主に行われてきた。しかし、電子励起状態は他の振電状態との相互作用による系のデコヒーレンスが速いため、核波束の精密制御を行うには最適ではない。そこで我々は、中赤外領域でフェムト秒レーザーの波形整形を行い、電子基底状態の振動回転波束の制御を試みている。本研究では、中赤外領域での波形整形装置の立ち上げ及びその評価を行うと共に、波形整形されたレーザーと分子との相互作用による振動回転波束の生成とその応用に関して考察を行った。

【実験手法】 フェムト秒再生増幅器の出力の一部 (775 nm, 1kHz, 0.3 mJ/pulse, 170 fs) を光学パラメトリック発振器(OPA)に入力し、近赤外領域のシグナル光 (1.2 μm ~ 1.5 μm , 25 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ @ 1.35 μm , 80 fs) 及びアイドラー光 (1.6 μm ~ 2.1 μm , 15 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ @ 1.8 μm , 90 fs) を発生させた。シグナル光を音響光学変調素子(Dazzler, Fastlite)に入射し、その一次回折光として強度と位相が共に 4 cm^{-1} の波数分解能で整形されたパルスを得た。波形整形されたシグナル光とアイドラー光を同軸で AgGaS₂ 結晶(Type II)に集光して、波形制御された差周波 (4 ~ 8 μm) を発生させた。波形整形の結果シグナル光のパルス幅は 2 ~ 3 ps まで広がるため、アイドラー光をシリコン結晶(25 mm)に 2 回通過させパルス幅を 2 ps まで広げることにより時間的重なりを改善し、差周波の変換効率を上げた。レーザーパルスの波形は、FT-IR 分光器、オートコリレーター (SHG、二光子吸収)、及び SHG-FROG により計測した。

【数値計算】 精密に波形設計された中赤外パルスで波束制御を行うために、シグナル光の波形と中赤外光の波形との関係を数値計算から予測することは本質的に重要である。そこで、差周波発生

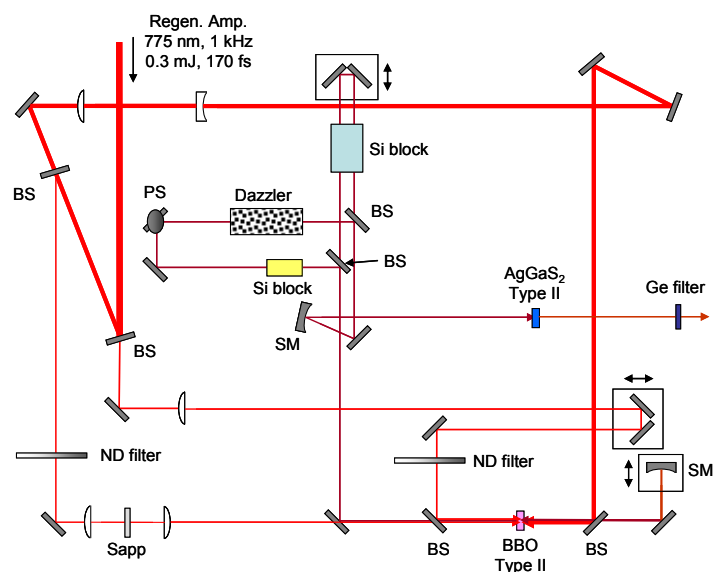


図1：波形整形中赤外光発生器。BS: ビームスプリッタ、SM: 球面ミラー、Sapp: サファイヤ板、PS: ペリスコープ。

により得られる光電場を、下式を用いて計算し、実測との比較を行った。

$$E_{\text{DFG}}^{\circ}(\Omega; \tau, L, \theta) \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\omega E_s^{\circ}(\omega) E_1^{\circ*}(\omega - \Omega) \exp(i\omega\tau) \exp\left(\frac{i\Delta k L}{2}\right) \text{sinc}\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \quad (1)$$

ここで、 Ω と ω は差周波光とシグナル光の周波数、 τ はシグナル光とアイドラー光との光学遅延、 Δk は下式に示す Type II (e-o \rightarrow e)の波数ベクトル不整合を表す。

$$\Delta k(\Omega, \omega; \theta) = -k_s^{\circ}(\omega; \theta) + k_1^{\circ}(\omega - \Omega; \theta) + k_{\text{DFG}}^{\circ}(\Omega; \theta) \quad (2)$$

【結果と考察】 図2に、シグナル光をパルス対に波形整形し、その相対位相を制御しながら中赤外光を発生させた結果を示す。図(b)に示すように、パルス間隔 1 ps のパルス対に対応する中赤外光の自己相関関数が観測されており、時間領域の波形は差周波過程で受け継がれたと言える。一方周波数領域では、パルス対の干渉による楕状のスペクトルがシグナル光、中赤外光共に観測された。また図(c), (d)に示すように、パルス対の相対位相によりスペクトルの周波数シフトが得られることがわかった。

中赤外光のスペクトルをシグナル光と比較すると、ピークの数やピーク間隔に違いが見られた。これは、実際の差周波発生過程では、結晶の厚みやフェムト秒パルス内での Δk の周波数変化

により、発生する中赤外光のスペクトルが影響を受けたためと考えられる。その他、アイドラー光のチャープやシグナル・アイドラー間の光学遅延にも中赤外光のスペクトル形は依存する。以上の条件全てを考慮して、式(1)から計算された中赤外光のスペクトルを図(d)の赤点線で示す。計算はほぼ完全に実験結果を再現した。

【展望】 ここに示された手法で発生した整形中赤外光の強度は 0.2 μJ 程度であり、凝縮相で二次元赤外分光等を行うには十分な強度である。但し、量子計算を目的とした波束制御を行うには一桁以上の強度改善が必要であることが、数値計算から明らかになった[2]。本研究では、ピコ秒に拮がった整形パルス間で差周波発生を行ったため変換効率が悪いという点が問題であった。そこで、最近報告された中赤外パルスの直接波形制御法[3]を用いた高強度整形中赤外光を得る試みを現在行っている。

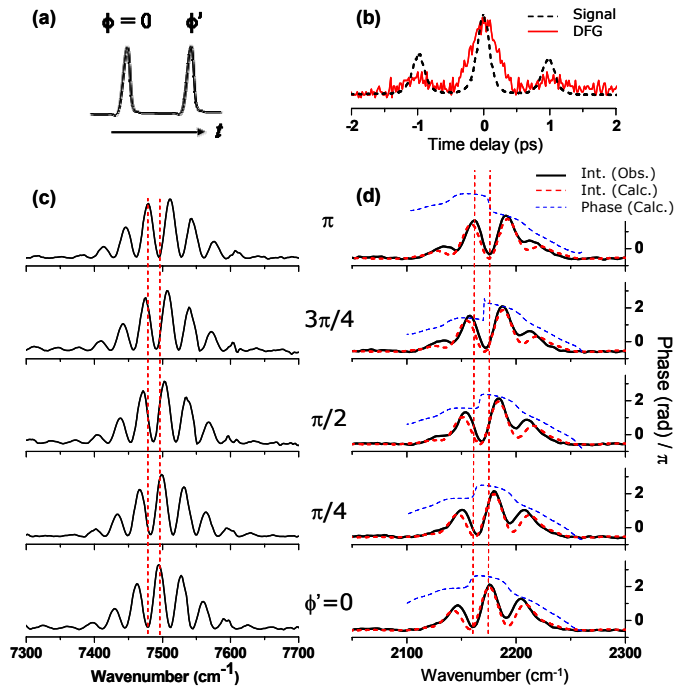


図2: 位相制御したパルス対生成。(b)シグナル光(黒波線)中赤外光(赤実線)の自己相関関数。(c)シグナル光、(d)中赤外光の FT-IR スペクトル。黒実線は実測、赤波線は計算された強度を示し、青波線は位相の計算値を示す。

- 【参照】** [1] H. Katsuki, H. Chiba, B. Girard, C. Meier, and K. Ohmori, *Science* **311**, 1589 (2006).
 [2] 坪内雅明, A. Khramov, 百瀬孝昌 2007年分子科学討論会 4P131.
 [3] S.-H. Shim, D. B. Strasfeld, and M. Zanni, *Opt. Lett.* **31**, 838 (2006).
 [4] 本研究の詳細は、M. Tsubouchi and T. Momose, *J. Opt. Soc. Am. B* **24**, 1886 (2007).