

## 振動量子制御へ向けた中赤外パルスの波形整形

(農工大・工<sup>1</sup>, JST さきがけ<sup>2</sup>) 平澤雄太<sup>1</sup>, 河原勇介<sup>1</sup>, 〇芦原 聡<sup>1,2</sup>

## 【研究目的】

レーザー光の位相を操ることで物質の量子状態を能動的に操作し、物性や反応の制御を目指す量子制御は、超短パルスレーザー技術と波形整形技術の進展によって可能となってきた。これまでは主として、可視～近赤外波長域の光パルスの波形整形による多光子（電子）遷移の制御や振動波束の増強が行われてきた[1, 2]。分子の結合の切断や構造異性化を誘導するためには、選択的に特定の高振動励起状態を生成することが重要になる。赤外光によるVibrational Ladder Climbingは、高振動状態を選択的かつ効率的に励起するのに適している。また、ポテンシャル曲面上を高い自由度でアクセスでき、余分な熱の蓄積が少ない、という利点もある。これまでに、負チャープ赤外パルスを利用したW(CO)<sub>6</sub>分子やミオグロビン分子などのVibrational Ladder Climbingが報告されている[3-6]。高振動状態は、分子反応制御の他にも量子計算への応用が提案されている[7, 8]。我々は、複数の振動励起準位が近接するような分子においても、モード選択的に高振動状態を生成する技術の開発を目指して研究を進めている。本目的へ向け、半導体音響光学素子(Acousto-Optic Modulator :AOM) を振幅・位相変調器とする4f パルスシェイパー[9]を構築した。

## 【実験】

構築した4fパルスシェイパーの概略図を図1に示す。回折格子と円筒鏡 ( $f = 150 \text{ mm}$ ) を用いて、各周波数成分をフーリエ面上に展開する。フーリエ面上のAOMで回折された各周波数成分を、対称な光学系を利用して再び一つのビームに合成する。音響波の振幅と位相を制御することで、各周波数成分の振幅と位相を独立に制御できる。

中心波長 $4.7 \mu\text{m}$ 、時間幅 $100 \text{ fs}$ の中赤外パルスを入力光とした。AOMにおけるブラッグ条件 (音響波周波数 $78 \text{ MHz}$ , 回折角 $2 \text{ deg.}$ )を最適化することにより、AOMでの回折効率として約 $80\%$ が得られた。4f光学系全体のスループットは約 $50\%$ である。

音響波の振幅を時間的に変調したとき、中赤外パルスのスペクトル振幅が変調されることを確かめた

(図2)。また、刻印数 $150 \text{ lines/mm}$ の回折格子を用いたときのスペクトル分解能は $10 \text{ nm}$  ( $4.5 \text{ cm}^{-1}$ )であった。これは、AOMにおいてブラッグ回折が起こるためには数周期の音響波が必要であるという事実に基づき、音響波の波長で決まっていると考えられる。これに対し、フーリエ面上でのスポットサ

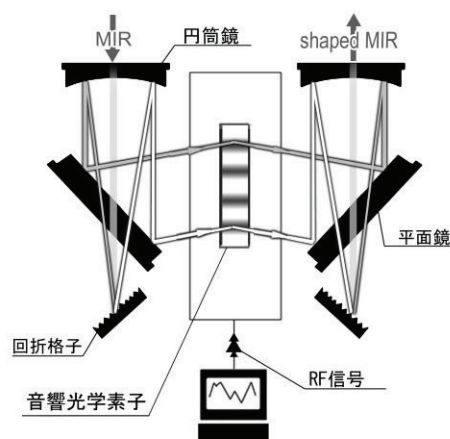


図1 4f光学系によるパルスシェイパ

イズから決まるスペクトル分解能の理論値は $2.5 \text{ nm}$  ( $1.1 \text{ cm}^{-1}$ )である。

次に、位相変調による分散補償の性能を評価した。被整形パルスの時間波形は、干渉型強度自己相関法 (Interferometric Autocorrelation: IAC) によって測定した。4fパルスシェイパーを通過する光パルスは、Ge-AOMの分散を受ける。さらには、回折格子における回折角の周波数依存性に非線形性があることと、光学系の折れ曲がりによって高次の分散が生じる。これらの結果、時間幅 $100 \text{ fs}$ の光パルスは4fパルスシェイパーを通り抜ける際に約 $2000 \text{ fs}$ まで広がる。図3に示すとおり、AOMによって $-47000 \text{ fs}^2$ の2次分散(SOD)、 $+47000 \text{ fs}^3$ の3次分散(TOD)を与えたとき、IACの波形が最も狭くなった。波形を解析した結果、パルス幅が入力と同じ $100 \text{ fs}$ まで縮まっていることを確認した。つまり、AOMを利用して、パルスシェイパー自身に起因する分散を十分補償し、その付近での分散補償ができたといえる。

### 【結論と今後の展望】

中赤外パルスの波形整形システムを構築し、エネルギーのスループットとして50%を得た。また、波長 $5 \mu\text{m}$ 付近において振幅・位相変調を達成した。今後、液相分子において高振動状態の選択的生成を目指した量子制御実験を行う。

### 参考文献

- [1] H. Rabitz et al., Science 288, 824 (2000).
- [2] T. Brixner and G. Gerber, Chem. Phys. Chem. 4, 418 (2003).
- [3] V. D. Kleiman et al., Chem. Phys. 233, 207 (1998).
- [4] T. Witte et al., Chem. Phys. Lett. 392, 156 (2004).
- [5] C. Ventalon et al., Proc. Nat. Acad. Sci. 101, 13216 (2004).
- [6] D.B. Strasfeld et al., Phys. Rev. Lett. 99, 038102 (2007).
- [7] C. Gollub, U. Troppmann, and R. de Vivie-Riedle, New J. Phys. 8, 48 (2006).
- [8] M. Tsubouchi and T. Momose, Phys. Rev. A 77, 052326 (2008).
- [9] S.-H. Shim et al., Opt. Lett. 31, 838 (2006).

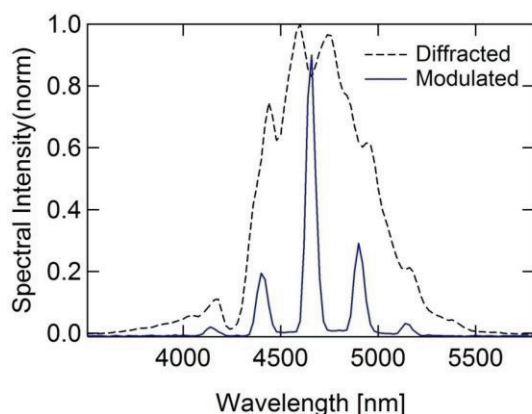


図2 スペクトル振幅の変調

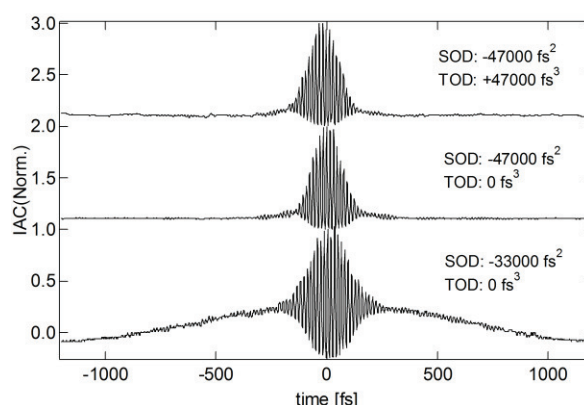


図3 分散補償によるIAC波形の変化