

4P024

高輝度波長可変可視域フェムト秒パルスレーザーシステムの開発と 分子科学への応用

(東大院理¹, 原子力機構²) ○岡野 泰彬¹, 大和田 成起¹, 沖野 友哉¹,
青山 誠², 山川 考一², 山内 薫¹

【序】近年、炭化水素分子における水素の超高速マイグレーションをはじめ、超短パルスレーザーにより生成した強光子場中における分子の超高速反応追跡に関する研究が活発に進められている[1]。これらの研究では、主な分子励起光源にチタンサファイアレーザーの基本波 (~800 nm) もしくは2倍波 (~400 nm) が用いられてきた[2,3]。強光子場下での光ドレスト状態や多光子および共鳴励起過程はレーザー波長に強く依存しており、励起光源に連続的に波長可変な光源を用いれば、より詳細な分子励起や解離過程などの反応追跡が可能となる。本研究では、これら超高速分子反応過程追跡への応用を目指し、可視光領域における波長可変フェムト秒レーザーシステムを構築した。

【実験】構築した波長可変レーザーシステムは、ドライブレーザー、波長可変光パラメトリック増幅器 (OPA)、フィラメントを利用した差周波4光波混合部の3部から構成される (図1)。フィラメント過程を利用することによって、空間フィルタリングによる空間モードの改善、インテンシティクランピングによるエネルギー安定化、さらにフィラメント中での自己位相変調による広帯域化とそれに伴う超短パルス化が期待される[4]。

ドライブレーザーには Amplitude 社製のチャープパルス増幅チタンサファイアレーザーシステム Pulsar 5000 (800 nm、~50 fs、~1 mJ、5 kHz) を用いた。ドライブレーザーから出射する基本波の一部を OPA により赤外光へ波長変換した。構築した OPA システムは、図1に示すように、サファイア基板を用いた白色光発生部およびタイプ II BBO 結晶を用いた2段の同軸型 OPA 部から構成される[5]。残りの基本波 (ω_{NIR}) により生成したフィラメント中で、OPA で波長変換した赤外光 (ω_{R}) と差周波4光波混合 ($\omega_{4\text{WM}} = 2\omega_{\text{NIR}} - \omega_{\text{R}}$) し可視光パルス ($\omega_{4\text{WM}}$) を発生した。

【結果】構築した OPA システムにより 1.2–2.2 μm の範囲で赤外光を発生した。2段目のポンプ光 (エネルギー: 174 $\mu\text{J/pulse}$) に対するシグナル光およびアイドラー光の変換効率およびパルスエネルギーを波長の関数として図2に示す。さらに、ドライブレーザーから分岐した基本波により空气中でフィラメントを生成し、基本波と赤外光との4光波混合 (4WM) により波長域 480–600 nm で波長可変可視光パルスを発生した。OPA システムによって変換された赤外光スペクトルとそれに対応する4WM後の可視光スペクトルを図3に示す。OPA のシグナル光およびアイドラー光の各波長に対応して、可視領域への連続的に可変な波長変換特性が確認された。

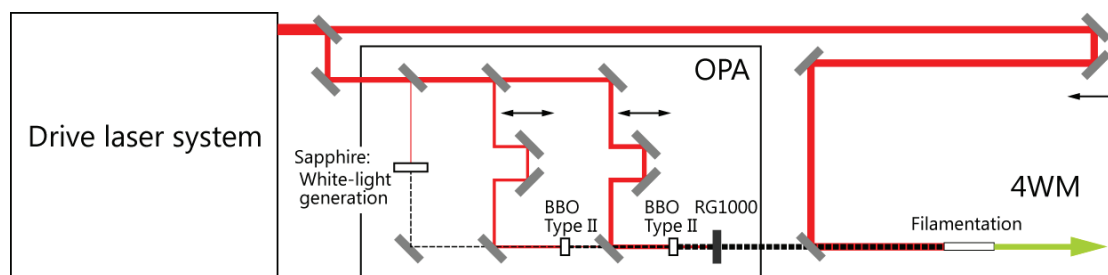


図1：波長可変レーザーシステムの構成図。

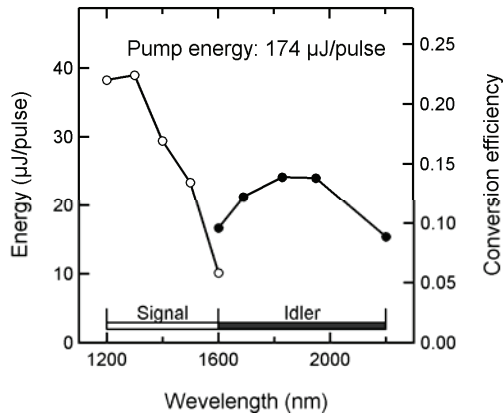


図 2：OPA 出力と変換効率の波長依存性

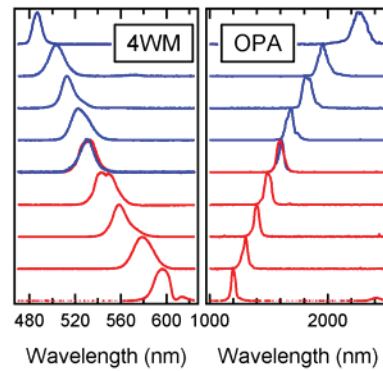


図 3：OPA による赤外光スペクトル（右）と対応する 4WM 後の可視光スペクトル（左）。赤線は OPA のシグナル光、青線はアイドラー光。

本研究で構築した OPA システムでは、同軸配置を取っているためシグナル光とアイドラー光は同軸で出射する。しかし、タイプ II 結晶を用いているので、シグナル光とアイドラー光の偏光方向が互いに垂直となり、図 3 に示すように偏光プリズムを用いた分離が可能である。また、4WM 用ポンプ光の偏光を回転させれば、シグナル光とアイドラー光のどちらかを選択的に変換することが可能である。図 4 は、実際にポンプ光の偏光面を回転させて、相対偏光角度に対するシグナル光とアイドラー光への変換スペクトルを示したものである。偏光が平行のときにシグナル光への変換が選択的に行われること、偏光の回転角度により波長の異なるシグナル光とアイドラー光の強度比を任意に調整することが可能であることが示された。

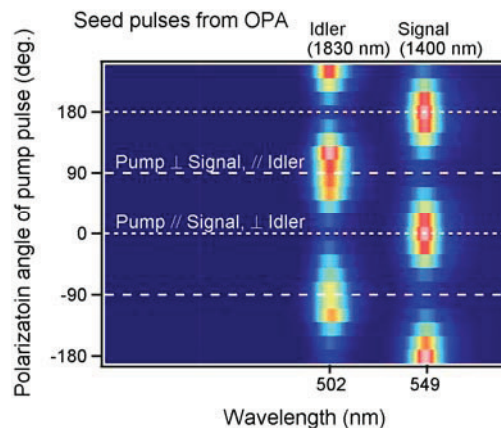


図 4：シグナル光およびアイドラー光を同時入射時における 4WM スペクトルのポンプ光偏光角度依存性

発表では構築したシステムの概要および特性とともに、分子科学への応用について紹介する。

参考文献

- [1] K. Yamanouchi *et al.*, Eds. “Progress in Ultrafast Intense Laser Science I ~ III,” (Springer, 2006-2008).
- [2] H. Xu *et al.*, Chem. Phys. Lett. **469**, 255 (2009).
- [3] H. Yazawa *et al.*, J. Chem. Phys. **124**, 204314 (2006).
- [4] F. Théberge *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 023904 (2006).
- [5] K. R. Wilson *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **14**, 444 (1997).