

## 2A13 強レーザー場における超高速水素マイグレーションの実時間追跡のための高強度搬送波位相制御数サイクルレーザーシステムの開発

(東大院・理) ○沖野 友哉、安藤 俊明、山内 薫

### 【序】

強レーザー場中に炭化水素分子が晒されると、超高速の水素マイグレーション過程が誘起されることが知られている[1-3]。超高速水素マイグレーション過程の実時間観測のためには、搬送波位相制御数サイクルパルスを用いたポンプ・プローブ計測および単一アト秒パルスを用いたプローブを行う必要がある。また、コインシデンス運動量画像計測法を用いて単一分子からの反応追跡を実現するため、高繰り返しレーザーシステムにおいて高強度搬送波位相制御数サイクルパルスを発生する必要がある。そこで、本研究では、単一アト秒パルスを発生するために十分な強度を有する高繰り返し搬送波位相制御数サイクルレーザーシステムの開発を行った。

### 【実験】

高繰り返し高強度フェムト秒レーザーシステム (Thales lasers, ALPHA5000/XS –CEP, 5 kHz, 6 mJ, 40 fs) の搬送波位相制御を、(i) レーザー発振器における搬送波位相制御、(ii) レーザー増幅器における搬送波位相制御の順番で行った。さらに、差動排気中空ファイバーパルス圧縮器を用いて、数サイクルパルス発生を行った。数サイクルパルスの搬送波位相については、 $f-2f$  干渉計を用いて計測を行った。

### 【結果】

#### (1) レーザー発振器の搬送波位相制御

レーザー発振器の搬送波位相制御は、音響光学素子 (AOM) を用いてポンプ光の強度に変調を加えることによって、オフセット周波数 ( $f_0$ ) をレーザー繰り返し周波数 ( $f_{\text{rep}} = 78.33 \text{ MHz}$ ) の  $1/4$  にロックすることによって行う。AOM による制御では、オフセット周波数の調整範囲が、 $\pm 5 \text{ MHz}$  程度と小さいため、温度・湿度・風量を一定に保った実験室においても半日以上以上の制御を行うことが難しい。そこで、長時間の搬送波位相制御を実現するために、AOM による制御に加えて、(i) チラーの温度変化による結晶温度、(ii) レーザーキャビティー内の

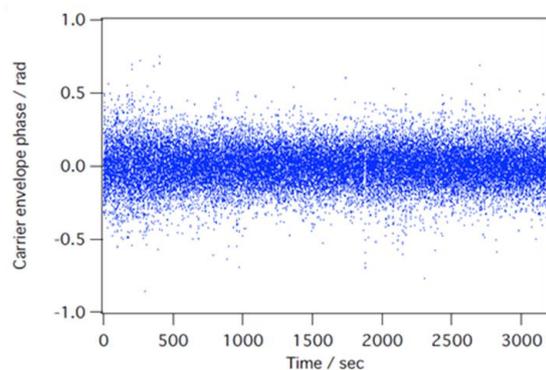


図 1: 最終増幅器出力 (30 W) の搬送波位相制御 (165 mrad rms)

ウェッジ板厚みを変化させることによって、30 時間以上の搬送波位相制御を達成した。

#### (2) レーザー増幅器の搬送波位相制御

レーザー発振器の搬送波位相制御を達成できても、増幅段でのゆっくりとした搬送波位相の変化が存在する。そこで、増幅器出力の搬送波位相を  $f-2f$  干渉計を用いて計測し、その搬送波位相の変化を補償するために、前置増幅器とクライオマルチパス増幅器の間に設置したウェッジ板の厚みを変化させることによって、搬送波

位相制御を達成した。実際には、①励起レーザーのレーザーヘッド冷却のための循環冷却システムへ防振ダンパーを設置することによる振動の光学ベンチへの伝達の低減、②エアフローの影響を最小限に抑えるための機構の開発、③防音・防振・制振材を用いることによる空調および計測機器からの振動伝搬の抑制を行い、平均出力 30 W (6 mJ/pulse)において、165 mrad の位相ゆらぎで約 1 時間の搬送波位相のロックを達成した (図 1)。

### (3) 高強度数サイクルパルスの発生

差動排気型中空ファイバーパルス圧縮器 (長さ 1 m、外径 3 mm、内径 0.3 mm) を製作し、その性能評価を行った。その結果、中空ファイバーにネオンガスを 3 atm 充填した場合に、3 mJ (40 fs) の入力に対して、2 mJ の出力を確認した。チャープミラーにて分散補償を行った結果、2 mJ, 5 fs の出力が得られた。差動排気中空ファイバーパルス圧縮器の採用によって、パルス圧縮後のポインティング安定性および出力安定性が、大きく改善された。また、出力安定性に関しても、差動排気を行わなかった場合には、10 %程度の単一ショット毎の強度変化および大きなスペクトル変化が観測されたが、差動排気を行うことによって、2 %程度まで強度変動を低減することとスペクトル変化の低減に成功した。さらに、差動排気を行わない場合には、入射エネルギーが高いため、ファイバーの入射端におけるイオン化によるプラズマ生成が起り、出力が低下 (40 %) するとともに、不安定になることと、ビーム品質が劣化することが確認された。一方、差動排気を行った場合には、ファイバーの入射端におけるイオン化が抑制され、スループットの向上 (70 %) およびビーム品質が向上した。

### (4) 高強度数サイクルパルスのキャラクタリゼーションと搬送波位相制御

中空ファイバー出力の搬送波位相制御ができていることを確認するために、出力スペクトルが 1 オクターブにわたっていることを利用した  $f$ - $2f$  干渉計の製作を行い、搬送波位相の計測を行った。その結果、300 mrad の位相ゆらぎで搬送波位相が制御できていることを確認した。この計測には、中空ファイバーの出力の不安定性 (エネルギー、ポインティング) による計測誤差が含まれており、中空ファイバーへの光入射位置を能動的にコントロールすることによって、中空ファイバー前の搬送波位相制御パルスと同様の搬送波位相のロックができるものと考えられる。

ここで得られた、高繰り返し搬送波位相制御数サイクルパルスは、強光子場中における超高速水素マイグレーションを実時間追跡するために十分な強度を有し、この出力を用いて単一アト秒パルスを発生すれば、近赤外搬送波位相制御数サイクルパルスと単一アト秒パルスを用いたポンプ・プローブ計測が可能となる。

- [1] H. Xu, C. Marceau, K. Nakai, T. Okino, S.L. Chin, K. Yamanouchi, *J. Chem. Phys.* in press.
- [2] H. Xu et al., *Chem. Phys. Lett.* **484**, 119 (2010).
- [3] H. Xu, T. Okino, K. Yamanouchi, *J. Chem. Phys.* **131**, 151102 (2009).
- [4] C. Yun, S. Chen, H. Wang, M. Chini, Z. Chang, *Appl. Opt.* **48**, 5127 (2009).
- [5] S. Bohman, A. Suda, M. Kaku, M. Nurhuda, T. Kanai, S. Yamaguchi, K. Midorikawa, *Opt. Express* **16**, 10684 (2008).