

4P095 フェムト秒パルス最適化波形整形システムの高出力化 およびペリレンの発光増大に関する考察

(東工大資源研・法政大情*) ○尾竹郁也・狩野寛*・和田昭英

【序】実験系からの応答をフィードバック信号としてパルス波形を最適化することによって、分子系や光パルスの詳細を知ることなしに化学反応や分子の励起状態の量子制御を実現しようとする試みが近年注目を集めている。我々はこれまでに共振器出力を光源としたフェムト秒レーザーパルスの最適化波形整形法を用いて、 α -perylene 結晶の示す 2 種類の蛍光 (Y 発光、E 発光) に関して、Y 発光強度の増大、および E 発光と Y 発光の発光強度比率の制御を報告してきた[1, 2]。最適化波形整形法のより広範な応用を目指す上で共振器出力ではパルス強度が不十分であり、システムの高出力化が必要とされる。しかし通常の再生増幅器の出力パルスの時間幅は 100 fs 前後であり、最適化波形整形法の光源として十分とはいえない。そこで本研究では、非線形結晶の $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ カスケード過程[3, 4]を利用してレーザースペクトル幅を増大させた後にパルス圧縮を行うことで、最適化波形整形システムの高出力化を行うとともに、このシステムを用いて perylene の発光増大に関するメカニズムを検討することを目的とした。

【実験】光源には、Ti: Sapphire 再生増幅システム (共振器: Coherent, Mira900F、増幅器: THALES, α -1000) を用いた。ビーム径 5 mm の再生増幅器の出力パルス (中心波長: 795 nm、時間幅: 120 fs、繰返し: 1 kHz、パルスエネルギー: 600 μ J) を ND フィルターで 40 μ J に減光した後、2 個の BBO 結晶 (各 7×7×15 mm、type-I) に SHG 位相整合角からわずかにずらして入射した。こうすることで、BBO 結晶中で起きる $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ カスケード過程によりスペクトル幅の増大を図った。BBO 結晶を透過したパルス (結晶透過パルス) は、400 nm カットフィルターによって SH 光を除去した後、回折格子・シリンドリカルレンズ・液晶空間光変調器からなる波形整形器[5] (回折格子: 1800 grooves/mm、シリンドリカルレンズ: $f=100$ 、液晶空間光変調器: CRI, SLM-256-NIR) でパルスの各波長成分の相対位相のみに変調を加えた。位相変調を施された波形整形パルスを厚さ 0.1 mm の BBO に集光照射して SH 光を得た。最適化波形整形のフィードバック信号 FSig には、結晶透過パルスの強度 I_0 および得られた SH 光強度 I_{SH} から計算される $I_{SH}/(I_0)^2$ を用い、 $FSig(I_0, I_{SH})=I_{SH}/(I_0)^2$ を増加させるように最適化波形整形を行った。増幅器出力パルスおよび結晶透過パルスは CCD 分光器およびオートコリレータ (APE, PULSE CHECK) で評価した。

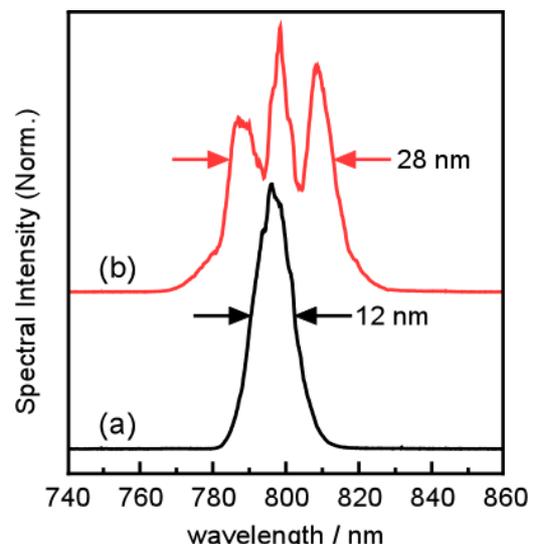


Fig. 1. Laser spectra of (a) Regen. output and (b) after BBO crystals.

【結果・考察】 図1に(a)再生増幅器の出力パルスおよび(b)結晶透過パルスのスペクトルを示す。12 nmだった出力光のスペクトル幅を、BBO結晶の $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ カスケード過程によって2倍以上の28 nmにまで広げる事が出来たが、得られた結晶透過パルスのスペクトルにはサイドバンドが顕著に現れた。図2に(a)再生増幅器の出力パルス、(b)出力パルスを最適化波形整形法により圧縮したパルス、(c)結晶透過パルスを最適化波形整形法により圧縮したパルスのオートコリレーションを示す。再生増幅器の出力パルスのスペクトルを Gaussian と仮定した場合に予想されるフーリエ限界幅は、自己相関幅で約150 fsである。しかし、用いた再生増幅器の出力パルスの自己相関幅はプリズム対により群速度分散を補正した後も173 fsであり、フーリエ限界幅よりも幾分広がっている。これを最適化波形整形法により圧縮したところ、自己相関幅をフーリエ限界幅に近い157 fsにまで改善できた。しかし圧縮後のパルスにはメインパルスの脇にサテライトが現れている事から、十分な最適化が達成されたとは言えない。

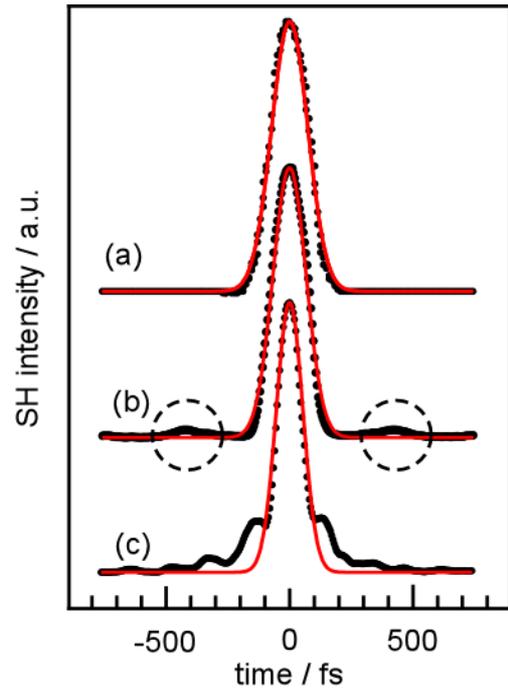


Fig. 2. Autocorrelation traces of (a) Regen. output, (b) Regen. Output with the adaptive pulse compression, and (c) BBO transmitted pulse with the adaptive pulse compression.

一方、結晶透過パルスを最適化波形整形法により圧縮することで、自己相関幅114 fsのパルスを得ることができた。この値は、実際のパルス幅にすると約80fsである。しかし、圧縮されたパルスにはメインパルスの脇に多数のサテライトが存在している。これらは図1(b)にみられるように、BBO結晶を透過したレーザースペクトルが構造を持つことに起因すると考えられる。このようなレーザースペクトルの構造の影響を除去するためには、最適化を行う際に位相の制御と同時に振幅の制御を行う必要がある。また、BBO結晶を用いた $\chi^{(2)}$: $\chi^{(2)}$ カスケード過程によるパルス圧縮はBBO結晶へ入射するパルスの位相に極めて敏感であり、我々のシステムでは現在のところ長時間に渡るパルスとスペクトルの両面の安定性が得られていない。再生増幅器を最適化システムに組み入れるためには、最適化に要する時間のさらなる短縮[5]に加えてレーザーシステムの入念な調整が必要とされる。ペリレンの発光増大に関するメカニズムの検討結果の詳細に関しては当日会場にて示す。

【参考文献】

- [1] R. Mizoguchi, S. S. Kano, A. Wada, Chem. Phys. Lett. **379**, 319 (2003)
- [2] T. Okada, I. Otake, R. Mizoguchi, K. Onda, S. S. Kano, A. Wada, J. Chem. Phys. (accepted)
- [3] S. Ashihara, J. Nishina, T. Shimura, K. Kuroda, J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2505 (2002).
- [4] X. Liu, L. Qian, F. Wise, Opt. Lett. **24** 1777 (1999)
- [5] R. Mizoguchi, K. Onda, S. S. Kano, A. Wada, Rev. Sci. Instrum. **74**, 2670 (2003)