

## 波形整形システムの改良：位相同期マルチパルス列の発生とその応用

(東工大・資源研<sup>1</sup>, 法政大・情報<sup>2</sup>)

三宅川 弘明<sup>1\*</sup>, 尾竹 郁也<sup>1</sup>, 松岡 学<sup>1</sup>, 狩野 覚<sup>2</sup>, 和田 昭英<sup>1</sup>

【序論】フェムト秒レーザーパルスのようなスペクトル幅の広い超短レーザーパルスの振幅及び位相スペクトルに変調を加えることにより、様々な時間発展をするレーザーパルスを発生させることができる。近年これらを用いた分子励起状態制御の研究が注目を集めている。我々もこれまで、波形整形法に対し遺伝的アルゴリズムを組み合わせた最適化波形整形法を用いて、*p-erylen* における蛍光強度比の操作などについて研究してきた。その結果、パルス列で表されるような形状が分子の励起状態の制御ダイナミクスに大きく寄与している可能性を示唆してきた。また位相同期したマルチパルス列は、ラマン活性な振動モードに対して誘導ラマン過程による低周波数領域での選択励起を行う際にも有用な光源となりうる。そこで本研究では、パルス列を特徴づけるパラメータのうちパルスの間隔・本数・位相関係・振幅比が可変な位相同期マルチパルス列の発生を波形整形システムを用いて行った。

【原理】先に述べたように、パルス列の発生はフェムト秒パルスの振幅及び位相スペクトルを操作することで行う。この場合、種光となる入射フェムト秒パルスと目的とするパルス列の2つのパルスについて振幅スペクトルと位相スペクトルの両方がわかっていればパルス列に限らず任意形状のパルスを発生させることが出来る。入射パルスにフーリエ極限のガウシアンパルス(中心波長  $\omega_0 = 800nm$ , パルス幅  $100fs$ ) を仮定してその振幅スペクトルを  $A_{in}(\omega)$  とすると、目的とするパルス列の振幅スペクトル  $A_{out}(\omega)$  及び位相スペクトル  $\Phi_{out}(\omega)$  は次式で表される。ただし、入射パルスにフーリエ極限のガウシアンパルスを仮定しているため、入射パルスの位相スペクトルは一定値となるので零として無視している。

$$A_{out}(\omega) = \frac{A_{in}(\omega - \omega_0)}{2} \sqrt{\left\langle \left\{ \sum_{k=0}^{n-1} [a_k \cdot \cos(k \cdot \theta)] \right\}^2 + \left\{ \sum_{k=0}^{n-1} [a_k \cdot \sin(k \cdot \theta)] \right\}^2 \right\rangle \left/ \sum_{k=0}^{n-1} \sum_{l=0}^{n-1} [a_k \cdot a_l] \right.}$$

$$\Phi_{in}(\omega) = \tan^{-1} \left\{ - \frac{\sum_{k=0}^{n-1} [a_k \cdot \sin(k \cdot \theta)]}{\sum_{k=0}^{n-1} [a_k \cdot \cos(k \cdot \theta)]} \right\}, \quad [\text{但し}, \theta = (\omega - \omega_0) \cdot \tau - \pi \cdot pf]$$

ここで、 $n$  はパルス列に含まれるパルスの本数、 $\tau$  はパルス間隔を表し、 $k$  番目のパルスの相対振幅を  $a_k$  ( $0 < a_k \leq 1$ ) によって与えた。また  $pf$  は隣り合うパルスの位相関係フラッグを表し、同位相の場合は  $pf = 0$ 、逆位相の場合は  $pf = 1$  である。

【波形整形システム】光源には、モードロック Ti: Sapphire レーザー (Coherent, Mira-Seed) を種光とした再生増幅システム (Coherent, Legend) の出力パルス (中心波長  $\omega_0 = 800nm$ , 時間幅  $80fs$ ) を用い、さらに光学素子のダメージを避けるためにビームスプリッターで取り出した出力パルスの一部をパルス列の発生に用いた。ビームスプリッターで得られたパルスはビーム径を調節した後に自作の波形整形器へと導入した。波形整形器では、レーザーパルスは回折格子 (1200 grooves/mm) によって空間的にフーリエ変換(分散)される。分散された光の各周波数成分は円筒レンズ ( $f = 100$ ) によって液晶空間光変調器 (CRI, SLM-256-NIR) の液晶画面の各ピクセルへ周波数成分ごとに集光され、そこで振幅と位相の両方のスペクトルに変調を加えられる。変調を加えられた各周波数成分の光は円筒レンズと回折格子によって空間的に逆フーリエ変換され、整形パルスとして再構築される。得られたパルスの評価は、オートコリレータ (APE, PULSE CHECK), クロスコリレータ, 及びレーザーパルスとその SH 光のスペクトルで行った。

【結果・考察】実際に発生させた各種パルス列をオートコリレータによって測定した結果を Fig.1 と Fig.2 に示す. Fig.1 はパルス間隔を固定 ( $\tau = 300\text{fs}$ ) し, パルスの本数を変えた ( $n = 2, 3, 4$ ) 場合で, Fig.2 はパルス数一定 ( $n = 4$ ) でパルス間隔を変えた場合の各パルス列の自己相関波形 (Auto-Correlation; AC) である. なお, 各パルスの振幅比と位相関係はすべて同じに設定してある. Fig.1 において, 設定パルス数 ( $n$ ) に対して自己相関波形でいずれも  $2n - 1$  本のピークが観測されていることから, 設定本数どおりのパルス列が発生しており, パルス数の制御がなされていることがわかる. また Fig.2 より, 設定パルス間隔を変えるに従い実際のパルス間隔も設定どおり変化しており, パルス間隔も制御出来ていることがわかる. 以上より波形整形システムを用いて実際にパルスの数, および間隔を独立に操作した位相同期マルチパルス列を発生させることができることがわかった.

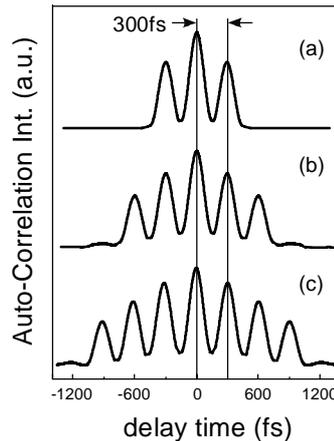


Fig.1 パルス間隔  $=300\text{fs}$  でのオートコリレーション (a)  $n=2$ , (b)  $n=3$ , (c)  $n=4$

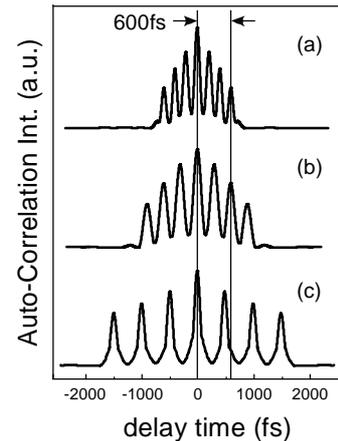


Fig.2 パルス数  $n=4$  でのオートコリレーション (a)  $=200\text{fs}$ , (b)  $=300\text{fs}$ , (c)  $=500\text{fs}$

次に, 序論で述べたように誘導ラマン過程による低波数振動モードの選択的励起を考える場合, この過程はレーザーの光子が2個関与する過程であるので, 考えるべき実効的なスペクトルを得るにはパルス電場の2乗に関するフーリエ変換を行う必要がある. そこで Fig.3 にパルス間隔一定 ( $\tau = 200\text{fs}$ ) の条件下でパルスの本数を変えた場合 ( $n = 2, 3, 4$ ) のパルス列に関して, その電場の2乗のフーリエ変換を計算して得られる実効的なパワースペクトルを示す. 図より, 基本波パルスの搬送波数である  $12500\text{cm}^{-1}$  ( $\lambda = 800\text{nm}$ ) の2倍の  $25000\text{cm}^{-1}$  ( $\lambda = 400\text{nm}$ ) 付近の領域と  $500\text{cm}^{-1}$  以下の低波数領域にもピークが存在し, 前者は2光子吸収に寄与し後者は誘導ラマンに寄与するピークである. またパルスの本数が増加するに従って各ピークの線幅が減少していくことから, パルス数が増加するにしたがいエネルギー分解能も増加していくことがわかった.

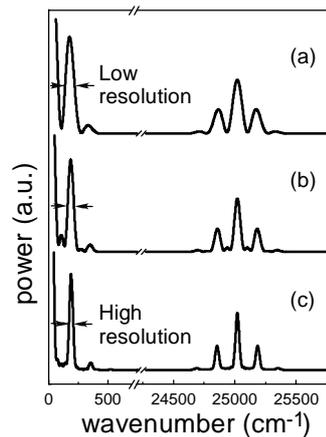


Fig.3  $=200\text{fs}$  の時の電場の2乗のフーリエ変換 (a)  $n=2$ , (b)  $n=3$ , (c)  $n=5$

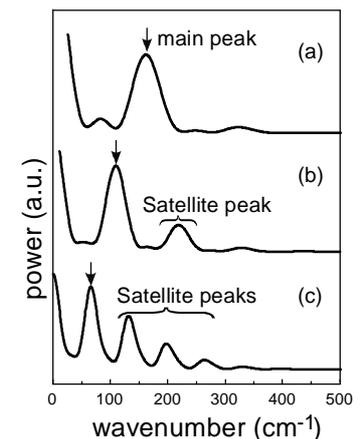


Fig.4  $n=4$  での電場の2乗のフーリエ変換 (a)  $=200\text{fs}$ , (b)  $=300\text{fs}$ , (c)  $=500\text{fs}$

さらにパルスの本数を一定 ( $n = 3$ ) にした条件下で, パルス間隔を変えた場合 ( $\tau = 200\text{fs}, 300\text{fs}, 500\text{fs}$ ) の低波数領域のスペクトルを Fig.4 に示す. この場合,  $\tau = 200\text{fs}$  の場合を除いて, 低波数領域において, 矢印で示したパルス間隔で決まるピークの高波数側にサテライトピークが現れてしまっている. そこでパルス間隔  $\tau = 500\text{fs}$  の時の各パルスのパルス幅を  $100\text{fs}$  から, パルス間隔の半分である  $250\text{fs}$  に引き延ばしたところ, Fig.5 に示したとおりサテライトピークの発生を抑制することが可能になることを見出した. サテライトピーク抑制の原理及びパルス列の位相関係の制御や強度比の制御まで含めた詳細については当日述べる.

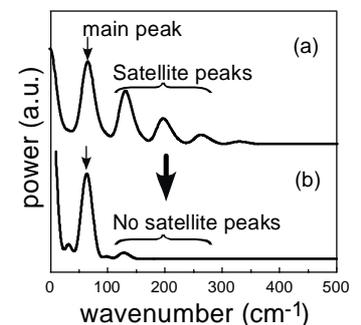


Fig.5 (a) パルス幅  $100\text{fs}$  サテライトピークがある (b) パルス幅  $250\text{fs}$  サテライトピークが消滅