論文内容の要旨

論文題目:

Molecular orientation by a noncollinear optical

parametric amplifier with a controlled

carrier-envelope phase

(搬送波位相制御非共直線光パラメトリック増幅器による分子の配向)

氏名 足立 俊輔

搬送波位相(carrier-envelope phase)とは、「レーザー電場の包絡線のピークに対する、搬 送波の相対的な位相」として定義される。近年、搬送波位相は、軟X線まで達する高次高 調波発生や超閾イオン化などの過程におけるその重要性が認識され、注目を集めている。 更に搬送波位相は、光周波数計測を始めとした精密計測学においても非常に重要な役割を 果たすことが示された。このような流れの中で、フィードバック機構を備えたレーザー発 振器及び再生増幅した高強度パルスの搬送波制御技術、またそれらを光源とした搬送波位 相に依存した現象の解明が、非常に興味ある一分野として成長しつつある。本論文の目的 は、再生増幅器出力パルスの搬送波位相を受動的に制御し、そのパルスを光源として、搬 送波位相に依存した物理現象を提示することである。(上記で与えた搬送波位相の定義は、 周波数領域におけるスペクトル位相構造を用いて、より厳密な形で与えられる。)

本論文は、以下のような構成をとっている。

まず2章において、本論文に関連した幾つかの研究分野に対する概観を与える。

3 章では、搬送波位相制御に用いた非共直線光パラメトリック増幅器(noncollinear optical parametric amplifier, NOPA; 図1)の設計と構成について解説する。チタンサフ

ァイア再生増幅器の基本波(800nm)の第二高調波を NOPA のポンプ光として用い、更にその 一部をフッ化カルシウム基板に照射することで発生する白色光を、NOPA の種光とする。 NOPA がこのような構成の場合、発生するアイドラ光の搬送波位相は自己安定化する[1]。 また、NOPA を構成する上で与えられた技術的な知見、特に光パラメトリック増幅過程にお ける利得飽和と、それに伴う、光パラメトリック発生(optical parametric generation) の増幅過程の競合に関する議論を展開する。この議論により、NOPA の安定動作のための、 ポンプ光パワーの最適設定に対する指針を与える。



図1 非共直線光パラメトリック増幅器の構成。

4章では、NOPAから発生したアイドラ光の時間的圧縮を行う。パルス圧縮は、冒頭で述べ たような高強度レーザーパルスを用いた高次高調波発生や超閾イオン化の実験を行う上で 必要不可欠であるだけではなく、今回の場合は圧縮対象が1オクターブを越えるような広 帯域のスペクトルを持っているため、パルス圧縮技術そのものが研究対象となる。また、 圧縮対象のパルスのスペクトル位相測定(パルスキャラクタリゼーション)が、圧縮の前段 階として必ず必要となる。本論文では、相互相関スペクトル分解光ゲート法 (cross-correlation frequency-resolved optical gating, XFROG)と呼ばれる技術を用い てパルスのスペクトル位相を測定した。その上で可変形鏡(deformable mirror)を用いた最 適化制御により高次のスペクトル位相分散まで含めた分散補償により、対象のアイドラ光 のパルス幅を4.3フェムト秒まで圧縮することに成功した(図2)[2]。この数字は、アイド ラ光のスペクトルから計算されるフーリエ限界パルス幅の4.0フェムト秒にほぼ一致して おり、最適化制御が適切に行われたことがわかる。また、アイドラ光の中心波長970mに 対する搬送波の周期に換算すると、4.3フェムト秒は1.3周期に相当しており、可視・近 赤外光領域における光サイクル数としては世界最短のレーザーパルスである。



図2 最適化制御後のアイドラ光の(a)時間波形及び(b)波長スペクトル(実線)とその時間/周波数位相。

次に5章では、アイドラ光の搬送波制御を扱う。アイドラ光の800nm 付近のスペクトル成 分と、NOPA の機構で副次的に発生したアイドラ光の第二高調波の同じく800nm 付近のスペ クトル成分を干渉させることにより、「f-to-2f スペクトル干渉」を行う。ここで得られた スペクトル干渉パターンを元に、よく知られたフーリエ変換フィルタ法によりスペクトル 位相を再構成する。その結果を、NOPA のポンプ光の経路に挿入されたフッ化カルシウム基 板の角度にフィードバックすると、フッ化カルシウム中での物質分散によりポンプ光の搬 送波位相は影響を受ける。更にその変化がNOPA においてアイドラ光に受け渡されることで、 アイドラ光の搬送波制御は実現されている。以上の機構を用いた系に関して、搬送波位相 の長時間安定性が評価され、引き続いて行われた搬送波位相に依存した実験に堪えうるこ とが示された。



図3 搬送波位相の時間発展。数回(~5)のフィードバック制御の後、搬送波位相は0から に制御されて いる。

引き続いて6章では、搬送波位相制御されたアイドラ光を用いて、光ポーリング過程の効率が制御できることが示される。搬送波位相を含めた形で光ポーリング過程を再考する過程で、搬送波位相を互いに共有する2つのパルスを用いた場合、光ポーリングの効率がそ

れらのパルスの搬送波位相に依存することがわかる。NOPA のアイドラ光のうち、1600nm、 800nm のスペクトル成分を用い、光ポーリング過程によりアゾ色素 disperse red 1(DR1) 試料中に分子配向を誘起し、その分子極性配向が発生させる第二高調波信号を測定するこ とにより、光ポーリング過程の効率が、搬送波位相によって制御されることを示した(図4)。



[1] A. Baltuska, T. Fuji, and T. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. 88, 133901 (2002)[2] S. Adachi, P. Kumbhakar, and T. Kobayashi, Opt. Lett. 29, 1150 (2004)