30a II 1

紫外半導体レーザーを用いた Ca^+ のレーザー冷却Laser cooling of trapped Ca^+ by using an ultraviolet laser diode○ 三浦彰仁、川崎洋司、豊田健二、渡辺昌良^{*}、占部伸二（阪大基礎工、通信総研関西先端研究センター^{*}）○ A.Miura, H.Kawasaki, K.Toyoda, M.Watanabe^{*}, S.Urabe（Osaka univ., KARC CRL^{*}）

我々のグループではサイドバンド冷却によって Ca^+ イオンを零点振動付近まで冷却することを目的として研究を進めている。サイドバンド冷却には超高安定なレーザー（729nm）が必要になるが、光フィードバック法によって狭窄化した半導体レーザーを Rb の吸収線を基準に安定化した共振器を用いて絶対安定化したものをすでに開発している。そのため単一 Ca^+ イオンの捕獲およびドップラー冷却法による予備冷却ができれば、サイドバンド冷却を行うことができる。

現在、我々は光源として紫外半導体レーザーを用いた単一 Ca^+ イオンのドップラー冷却の実験を行っている。リング電極の半径が 0.6mm の小型のポールトラップを使用し、rf 周波数 17MHz で駆動している。紫外域の光源は、チタンサファイアレーザーや色素レーザー、あるいは半導体レーザーの波長変換などによって得ることが一般的であったが、最近、紫外半導体レーザーが登場したことによって、簡単に紫外域の光を得ることが可能になった。今回使用する紫外半導体レーザーは Ca^+ イオンの S-P 遷移にあわせた 397nm のものを用い、レーザー冷却に十分な性能を得るため、外部共振器型にすることによってスペクトル狭窄化をし、さらに共振器を用いた簡易安定化を施して周波数のドリフトを防いでいる。また、共振器長を変化させることによってレーザーの周波数を連続挿引できる。これにより得られたレーザーのスペクトル幅は 15MHz であり、1GHz 以上の挿引が可能であった。これは Ca^+ の冷却を行うには十分な性能である。また、このレーザーの横モードパターンについては、シリンドリカルレンズおよびスペイシャルフィルターを用いて整形を行っている。再励起用の光源（866nm）にも外部共振器型半導体レーザーを用いている。

現在のところ、このシステムを用いて Ca^+ イオンのレーザー冷却実験を行い、結晶化していることを示すスペクトルを得ることに成功している。さらに、単一 Ca^+ イオンの捕獲とサイドバンド冷却による零点振動の実現を目指しているが、それらの現状については当日報告する。

図 1: Ca^+ の蛍光スペクトル

30a II 2

偏光制御によるシリコン原子のレーザー冷却 (I)

Laser cooling of silicon atoms by control of polarization (I)

○ 熊谷 寛、浅川雄一^A、緑川克美、小原 實^A（理化学研究所、^A慶応義塾大学）○ Hiroshi Kumagai, Yuichi Asakawa^A, Katsumi Midorikawa, Minoru Obara^A (RIKEN, ^AKeio U.)

ボース・アインシュタイン凝縮の実証に始まって、原子波レーザーや非線形原子波光学の開拓など、レーザー冷却応用分野の最近の進展は大変目覚ましい。もしこの分野で主役を担ってきたアルカリ金属原子などの替わりに、シリコンなど半導体原子を使って実現できれば、工学的観点からも新たな展開ができ、応用は計り知れない。この点に着目し、講演者らはシリコンのレーザー冷却の研究を開始している。シリコンのレーザー冷却の難しさは冷却波長が短いことだけでなく、冷却下準位が 3 つの磁気副準位を有することにもある。このためアルカリ金属原子のような磁気光学トラップが作れない。講演者らはこの点を克服するべく、時間的に偏光を制御する手法を考案した。

実験装置は 2 段階の外部共振器型波長変換部と偏光制御部からできている。波長変換部の 1 段目では、Nd:YVO₄ 第 2 高調波励起のリング型単一モードチタンサファイアレーザー光（波長 746nm）を外部共振器に導き、共振器内の LBO 結晶により 373 nm の第 2 高調波を 40% の変換効率で発生させている。続いて 2 段目では、この 373 nm 光と 780nm の単一モード半導体レーザー光を第 2 の外部共振器に導き、2 波長の同時共振をさせることにより各々の光強度を同時に増大させ、共振器内の BBO 結晶による和周波混合により 60mW を越える 252nm 光を発生させている[1]。

偏光制御部では、電気光学素子と波長板の組み合わせにより、時間的に偏光を制御している。1 つの偏光方向の光を用いる場合、下準位の 3 つの磁気副準位のうち 2 つが暗準位になって冷却サイクルが閉じなくなるが、時間的に偏光方向を変化させることで、暗準位を作ることなく冷却サイクルを閉じることができる。

図 1 シリコン原子のレーザー冷却遷移

[1] T. Fujii, H. Kumagai, K. Midorikawa, and M. Obara, Opt. Lett., 25, 1457 (2000)

朝日英彦、上田徳宜、[○]熊谷寛[△]、緑川克美[△]、小原寛[△] (理化学研究所、慶應大学)Hidehiko Asahi, Yoshinori Ueda, [○]Hiroshi Kumagai[△], Katsumi Midorikawa[△] and Minoru Obara[△] (RIKEN, Keio Univ.)

はじめに 1995 年のボース・アインシュタイン凝縮(BEC)の達成以来、vortex や原子波レーザーについての研究をはじめとして光パルスの減速や原子干渉計など多岐にわたり応用例が報告されている。我々は、拡張性が高く様々な応用が可能である水平型二重磁気光学トラップを用いた気体原子の BEC、原子波レーザーの実現を目指して Rb 原子冷却実験を行っている。

実験方法 BEC 生成のための手法として、Rb 原子の水平型二重磁気光学トラップおよび 3 個のコイルによる QUIC 型(Quadrupole-Ioffe-Configuration)トラップを用いる[1]。実験装置の概略図を下に示す(Fig.1)。Rb 原子を冷却するためのレーザーは冷却サイクル用高出力半導体レーザー(500mW@780nm)と再冷却用半導体レーザー(25mW@780nm)を、⁸⁷Rb の D₂遷移(F=2→F'=3, F=1→F'=2)にそれぞれ同調し、周波数安定化をさせ用いた。上流側のステンレス鋼によるチャンパーと下流側のガラスセルの真空度はそれぞれ10⁻⁸、10⁻¹⁰Torr 以下の真空度を保っている。ステンレス鋼のチャンパーに入射しているレーザー光は 10mW/cm² 程度のパワーで AOM を用いて共鳴周波数から約 15MHz 程度負に離調させてある。ガラスセルへ入射させてあるレーザー光は共鳴周波数からは約 25MHz 程度負に離調し、パワーは約 3mW/cm² 程度とした。

現在、我々は第一段階目の磁気光学トラップを完成させ、2×10⁹ 個程度の原子の捕獲に成功した。このときの磁場勾配は 15G/cm 程度であった。また、試作した QUIC 型トラップでは、比較的低電流(〜25A)で BEC 達成に必要な約 130G/cm の磁場勾配と約 180G/cm² の磁場曲率を得ている(Fig.2)。ガラスセルでの二重磁気光学トラップについての詳細は、当日の講演に譲る。

Fig.1 実験装置概略図

Fig.2 3個のコイルによる磁場

[1]T. Esslinger, I. Bloch, T. W. Haensch, Phys.Rev. A, R2664(1998)

[○]多田亮平 武岡正裕 神成文彦 (慶應義塾大学)

Ryohei Tada, Masahiro Takeoka, Fumihiko Kannari (Keio University)

電磁誘導透過 (Electromagnetically Induced Transparency) を利用した量子雑音の低減や相関形成が近年注目されている。4 準位原子系において 2 種類の強い光共鳴結合レーザーを用いると、2つのプローブ光に対して位相敏感な電磁誘導透過が起こり、微弱な光モード間において強度、位相相関が形成される可能性がある。本研究では Fig.1 に示すような中間準位の縮退した ladder 型 4 準位原子系において電磁誘導透過を用いた場合の 2つのプローブ光の強度、位相相関の解析を行った。Fig.1 では二つのプローブ光はそれぞれ $|1\rangle \rightarrow |2_+\rangle$ と $|1\rangle \rightarrow |2_-\rangle$ の遷移にラビ周波数 Ω_{p+} と Ω_{p-} で共鳴している。二つの結合光もまた $|2_+\rangle \rightarrow |3\rangle$ と $|2_-\rangle \rightarrow |3\rangle$ の遷移にラビ周波数 Ω_{c+} と Ω_{c-} で共鳴している。また、 $|2_+\rangle$ と $|2_-\rangle$ の固有エネルギーを同じと仮定する。結合光のラビ周波数が準位 $|3\rangle$, $|2_+\rangle$, $|2_-\rangle$ からの緩和よりも十分に大きい場合、二つの中間準位 $|2_{\pm}\rangle$ は二つの結合光を含めた新しい重ね合わせの状態を表すことができる。この新しい基底によるエネルギー準位ダイアグラムを Fig.2 に示す。Fig.2 から $|3\rangle \rightarrow |\alpha\rangle \rightarrow |1\rangle$ の間では電磁誘導透過が形成されるが、 $|\beta\rangle \rightarrow |1\rangle$ では通常の線形吸収が起きていることがわかる。このため、透過するプローブ光は定常的には $\Omega_{p+}/\Omega_{p-} = \Omega_{c-}^*/\Omega_{c+}^*$ の条件を満たす。Fig.2 の W は結合光の全強度であり $W = (|\Omega_{c+}|^2 + |\Omega_{c-}|^2)^{1/2}$ のように表される。さらに c-number Langevin 方程式を用いて、量子論的な解析を行った結果、結合光が十分に強い時に、強度の 2つのプローブ光の平均強度が同程度の場合、プローブ光間の位相と強度の揺らぎは、広い周波数の範囲で、標準量子限界より上で相関が形成されることがわかった。

Fig.1 中間準位の縮退した ladder 型 4 準位系

Fig.2 Dressed State で見た EIT-ladder 型 4 準位系

電磁誘導透過を用いた光パルスの偏光制御に関する理論解析

Theoretical Analysis for the Polarization Control of Optical Pulses Using Electromagnetically Induced Transparency.

慶大院 理工 ○藤島 大輔 武岡 正裕 神成 文彦

Keio University

D. Fujishima,

M. Takeoka

and F. Kannari

e-mail : tb04178@educ.cc.keio.ac.jp

電磁誘導透過(Electromagnetically Induced Transparency : EIT)[1]とは、高強度な結合レーザー光を適用して媒質の共鳴準位遷移間に量子干渉効果を誘起することにより媒質が透明化する現象である。EIT は非線形光学過程に対し弊害となる線形吸収を除去することが可能なことから、近年、巨大な非線形効果を用いる工学的応用への興味を集めている。EITは原子のコヒーレンスを用いた外部場による電場のコヒーレントな制御が可能なることから、光-光制御に対するいくつかのスキームが提案されている[2]。そこで我々は、EIT を用いて超短光パルスの偏光をコヒーレントに制御する新しいスキームを提案し、超高速光スイッチングに対する応用の可能性を数値的に解析する。

Fig. 1 のような、スピン状態によって中間準位が $|2_{\pm}\rangle$ と $|2_{\pm}\rangle$ に縮退した ladder-type 3 準位系を提案する。 $|1\rangle \rightarrow |2_{\pm}\rangle$ 遷移に共鳴なプローブ光に対し、 $|2_{\pm}\rangle \rightarrow |3\rangle$ 遷移に共鳴する十分強い強度の結合光を入射すると、プローブ光の各円偏光成分は結合光によって誘起された共鳴四波混合によって制御され、同時にプローブ光に対する線形吸収は共鳴結合による量子干渉効果により抑制される。その結果、プローブ光の各円偏光成分の振幅比、位相差は制御光のそれに追従し、その偏光状態は結合光の偏光状態へ近づき、非常に高い効率でプローブ光の偏光を制御することが可能となる。この結合光へプローブ光の偏光が追従する結果は、媒質に結合光を含めて表される固有状態(dressed state)を用いて定量的に説明することができる。プローブ光と結合光の偏光角度を 45° ずらして入射した場合のプローブ光伝搬の様子を Fig. 2 に示す。(a)では+の、(b)では-の円偏光成分の実部と虚部の伝搬を表している。これらの図では、伝搬終了地点において 2 つの円偏光の位相が初期状態から合計 90° 変化することが示され、プローブ光の偏光状態が結合光のそれに制御されたことを意味する。これにより超短パルス的高速コヒーレント制御が可能となる。

本スキームは非線形媒質に 2 つ以上の準安定な状態を必要とせず、またこの過程の間で原子のポピュレーションの励起を必要としないため、キャリア充填効果やインコヒーレントキャリアの散乱などの影響を受けない超高速光スイッチへの応用が期待される。本スキームを半導体量子井戸の励起子系に適用すると、スイッチとして数十 GHz 以上の非常に高い繰り返しレートで機能する可能性が見込まれる。媒質のパラメータを含めた具体的計算の詳細は発表に譲る。

Fig. 1 Degenerated 4-level atomic system.

Fig. 2 Spatial and time evolutions of the two circularly polarized components of the probe pulse.

References;

- [1] S.E.Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu. *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1107 (1990).
 [2] S. Wielandy and A. L. Gaeta. *Phys. Rev. Lett.*, **81**, 3359 (1998)

はじめに 超短パルスレーザーの応用例として、コヒーレントフォノンの発生および観測を通じた物性計測があり、すでに半導体・半金属をはじめとした様々な物質において、フォノンの時間領域計測が行われている。その一方において、ラマン分光のような周波数領域におけるフォノン計測では、顕微ラマン分光といった空間分解能を有する計測手段が発達した。これら二つの計測手段を組み合わせることにより、時間領域および空間領域いずれにも分解能を持ったフォノン計測が可能になるであろう。フォノンの時間領域計測により得られるパラメータを、空間的にマッピングできれば、半導体材料の解析などには有力なツールとなる可能性がある。そこで本研究では、走査型レーザー顕微鏡を用いてコヒーレントフォノンの顕微計測を行い、さらに励起パルスに対する初期位相など、時間領域の測定によって得られるパラメータのマッピングを試みた。

実験 コヒーレントフォノンの観測はFig. 1に示すように、ポンプ-プローブ法による反射率変化測定によって行っている。レーザーの発振波長は約800 nmで繰り返し76 MHz、プリズム対により分散補償された後のパルス幅は、顕微鏡に導入される手前で約100 fsである。本研究ではビームを顕微鏡に導入するため、PBSにてポンプ光とプローブ光を結合し、CCDカメラにて両ビームが平行であることを確認した。試料はピエゾ素子駆動のXYZステージ上にマウントされ、これを約1 μ m刻みで走査させることにより、試料上各点におけるパラメータ(ポンプ光に対するフォノンの初期位相など)をマッピングする。測定結果などの詳細についての説明は当日の発表において行う。

Fig. 1 コヒーレントフォノンの観測に用いている反射率測定ポンプ-プローブ法の実験系

はじめに 超高速面型光スイッチングなど、フェムト秒で応答するデバイスの評価するためには、材料の局所的な吸収や屈折率の変化といった光学的特性を高時間・高空間分解能で評価する技術が必要となってくる。これには、フェムト秒パルスレーザーを用いた時間分解分光と、Near Field Optical Microscopy(NSOM)もしくは Solid Immersion Lens Microscopy(SILM)のような光を直接測定する顕微方法とを組み合わせるのが適していると考えられる。現在までに、フェムト秒パルスレーザーによる Pump-Probe 分光と NSOM[1]、SILM[2]を組み合わせた例が報告されている。しかし、位相変化までを直接求めた例は少ない。そこで我々は、従来行われてきた周波数域干渉法によって、フタロシアニン薄膜の超高速複素屈折率変化を SILM により空間分解能を上げて計測した。空間分解能を向上させる方法として我々は SILM を選択した。SILM とは油浸対物レンズを高屈折率な固体に置き換えたもので、屈折率 n のレンズの中で波長が λ/n になる。NSOM に比べて分解能は落ちるが、高スループットで素子の扱いも容易であり、ダイナミックレンジが大きく、高強度な励起も可能である。

実験方法 光源はフェムト秒チタニウムサファイアレーザー(中心波長 800nm、スペクトル半値幅 45nm、繰り返し周波数 76MHz)を用いた。まずポンプとプローブ光に分けた後、プローブ光はさらに参照光とに分け、参照光、ポンプ光、プローブ光の順に試料に同軸に入射させる。実験構成図を図 1 に示す。試料には色収差を避けて反射型対物レンズ(NA0.65)で集光し、そこに SIL を置いた。SIL は波長 800nm での分散の影響が少なく且つ高屈折率な LaSFN9($n=1.885@800nm$, $R=500\mu m$, 半球型)を選択した。次に試料を通過したポンプ光と参照光を分光器を用いて周波数上で干渉させ、CCD で干渉縞を測定、解析する。また、pump-probe 分光において時間分解能はプローブ光のパルス幅で決まるが、本研究では分散媒質を多く通過しパルス幅が広がってしまうため、これを補償する必要がある。そこでビームをコリメートした後、プリズム対(SF6)によりパルスを圧縮した。結果を図 2 に示す。SIL の空間分解能は金属薄膜のエッジの応答を測定して評価し、分解能の向上が確認された。フタロシアニン薄膜の応答も含めて詳細は発表に譲る。

図 1. 実験構成図

図 2. 分散補償前(左)と分散補償後(右)の相関波形

References

- [1]B. A. Nechay, U. Siegner, M. Achermann, H. Bielefeldt and U. Keller, Appl. Phys. Lett, Vol. 74, 61 (1999)
- [2]M. Vollmer, H. Giessen, W. Stolz and W. W. Ruhle, Appl. Phys. Lett, Vol. 74, 1791 (1999)

円偏光二光子励起による半導体内部における偏極電子の生成

Generation of spin polarized electrons inside semiconductors by circularly polarized two-photon excitation

○向井将泰, 松山哲也, 鈴木真爾, 和田健司, 堀中博道, 坂 貴^A大阪府立大学大学院 工学研究科, ^A大同工業大学Masayasu Mukai, Tetsuya Matsuyama, Shinji Suzuki, Kenji Wada, Hiromichi Horinaka, Takashi Saka^AOsaka Prefecture University, ^ADaido Institute of Technology

1. はじめに

半導体における二光子遷移は、その選択則を利用して超格子などにおけるサブレベルの研究に用いられている。二光子遷移における励起光を円偏光とすれば、二光子励起における選択則と角運動量保存則によって、縮退した価電子帯をもつ半導体においても高い偏りの偏極電子を生成できると考えられる。本研究では、円偏光二光子励起の特長と考えている半導体内部層における偏極電子の生成を確認する基礎実験を行ったので報告する。

2. 実験方法と測定結果

価電子帯が縮退しているジンブレンド構造をもつ半導体を円偏光一光子励起すると、価電子帯の縮退のために最大の偏極度は50%以下に制限される。励起過程を円偏光二光子励起とすることによって、選択則を変えることができ、価電子帯が縮退している通常のバルク試料でも高い偏極度を得ることができる。伝導帯の偏極電子は、価電子帯の正孔と再結合する際に、円偏光を放出するので、発光の偏りを測定することで伝導帯電子の偏りを求めることができる。

まず、円偏光二光子励起による発光の偏りを測定する実験を行った。試料にp-GaAs基板を用い、二光子励起のために波長1500nm、パルス幅120fsのパラメトリックオシレーターを用いた。図1にその光学系を示す。レーザー光を左右円偏光に変換して試料に照射し、試料面に対して垂直方向から発光の左右円偏光成分を検出した。図2に二光子励起のときの左右円偏光成分の発光スペクトルとそれらから求めた発光の偏りを示す。励起直後の電子の偏りを P_i 、伝導帯電子のスピン緩和時間を T_s 、ライフタイムを τ とすると、発光の偏り P は、価電子帯が縮退しているときは、 $P=0.5 \cdot P_i \cdot T_s / (T_s + \tau)$ と表すことができる。図2では、約18%の発光の偏りが得られており、スピン緩和時間、ライフタイムの実測値を用いれば、伝導帯電子の初期偏極度 P_i は約70%になる。比較のために、波長750nmのTi:sapphireレーザーを用いて一光子励起による発光の偏りを測定した。発光の偏りは約8%と二光子励起の場合の半分であった。これは初期偏極度の違いによるものと解釈でき、選択則の違いを反映している。次に、GaAs基板(300 μ m)上にGaAs-AlGaAs超格子を作製したものを試料として用い、GaAs基板側から超格子層の励起を試みた。励起には波長1064nm、パルス幅10nsのNd:YVO4レーザーを用いた。励起に対して反対側から観測された発光のスペクトルを図3に示す。780nm付近の超格子層の発光が見られ、GaAs基板を透過して超格子層が励起されたことが分かる。

3. まとめ

円偏光二光子励起によって、一光子励起に比べて大きな偏りの電子が生成できること、さらに、内部層を励起できることを示した。二光子としての共鳴励起条件にもっと近づけば、さらに大きな偏極度が期待できる。

図1. 光学系

図3. 基板からの二光子励起による超格子の発光

図2. GaAs基板の二光子励起による発光と偏極度

Soft X-ray emission from Xe clusters irradiated with intense laser pulse

森道昭, 白石崇, 高橋栄治, 瀧成治, 近藤公伯 (筑波大学 TARA センター)

Michiaki Mori, T. Shiraishi, E. Takahashi, S. Taki and K. Kondo (TARA center, Univ. of Tsukuba)

近年、レーザー・クラスター相互作用によって発生する極紫外 (EUV) 光は、EUV 光発生時に副次的に発生する光学素子に悪影響を与えるデブリの発生が少なく、また高い変換効率で EUV 光が発生できるため、次世代光リソグラフィ光源として研究がすすめられている。本研究は、レーザー・クラスター相互作用における EUV 光生成の高効率化のための条件を調べる目的で、照射レーザーのパルス幅・波長そしてエネルギーを変化させ、条件を一定にしたクラスターに集光・照射をおこない、EUV スペクトルおよび変換効率の依存性について調べた。図 1 に照射レーザーのパルス幅変化における変換効率の依存性を示す。本結果は、クラスターがクーロン爆発もしくはクラスターが加熱され、分解される時間スケールがサブピコ秒であることを示している。また図 2 に変換効率の励起エネルギーおよび波長依存性を示す。本結果から、サブピコ領域では、KrF レーザーパルス照射が最も高い変換効率となることが明らかとなった。

図 1. EUV 変換効率のレーザーパルス幅依存性

図 2. EUV 変換効率のレーザーエネルギー・波長依存性

Control of dissociative ionization of nitrogen molecules by high-intensity laser pulses

清水貴之, 中野葉子, 宮崎健創, ディディエ・ノーマン* (京都大学エネルギー理工学研究所, CEA サクレイ研究所*)

Takayuki SHIMIZU, Yoko NAKANO, Kenzo MIYAZAKI, Didier NORMAND* (Institute of Advanced Energy, Kyoto University, CEA Saclay*)

1. はじめに

高強度なレーザーパルスに分子を照射すると多光子イオン化・解離 (Coulomb explosion) が生じるが、このとき生成する原子イオンはレーザーの偏光方向に対して強い異方性を持つことが知られている。高強度レーザーによって発現するような非線形相互作用過程を制御できれば、物質の光学特性を能動的 (かつ高速に) 変化させることができる。そのため、超短パルス高強度レーザーを用いて分子の多光子イオン化・解離過程制御の基礎実験を進めている。

2. 実験と結果

最大尖頭出力 1 TW の Ti:sapphire レーザー (40 fs, 10 Hz) からの出力パルスを 2 つに分離し、波長板によって円偏光パルスと偏光方向の回転できる直線偏光パルスを生成する。ダブルパルスでの実験では、円偏光パルスに一定の時間遅延を与えたのち直線偏光パルスと再合成する。どちらか一方のパルス、あるいは両パルスを同軸で真空容器内の試料ガス (N_2) に集光照射し、TOF イオン分析装置によってイオンスペクトルを観測する。最大集光強度は $\sim 5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ である。TOF 装置は自作の Wiley & McLaren 型で、MCP を用いて検出したイオン信号をデジタルオシロスコープで観測した。 N_2 のガス圧は $(0.5 \sim 5) \times 10^{-5} \text{ Pa}$ である。

実験では、1) 円偏光パルスのみ、2) TOF のイオン検出器方向へ偏光した直線偏光 (水平偏光) パルスのみ、3) イオン検出器方向と垂直に偏光した直線偏光 (垂直偏光) パルスのみ、及び 4) 直線偏光と円偏光のダブルパルス等によってイオンを観測した。結果の例を Fig. 1 に示す。(a) は円偏光パルスのみで観測したものである。この時、特定方向への分子配向は誘起されていないと考えられるが、MCP 方向への運動量成分を持ったイオンのみが検出されるため、このスペクトルは水平偏光パルスのみで観測したものとはほぼ同じであった。一方、垂直偏光パルスのみで観測した場合には、(1,1) からの N^+ の他にはほとんど窒素原子イオンは検出されなかった。Fig. 1 (b) は、垂直偏光と 2 ps の時間遅延を与えた円偏光のダブルパルスで観測したスペクトルで、(2,1), (2,2), (3,2) の順に信号が著しく減少している。この結果から直線偏光パルスによる分子配向はほぼ明らかであるが、超短パルスでは配向の誘起に著しく高強度なパルスが必要であることが解る。

Fig. 1 Examples of the time-of-flight nitrogen-ion spectra with (a) the circularly-polarized laser pulse alone and with (b) the double pulses of a vertically-polarized pulse and a successive 2-ps delayed circularly-polarized pulse.

Optimization of Gas-Phase Molecules and Clusters by Shaping of Ultrashort Laser Pulse

○峯本 紳一郎, A. Bartelt^A, C. Kaposta^A, C. Lupulescu^A, P. Rosendo^A, Š. Vajda^A, L. Wöste^A (東大理^A・ベルリン自由大)

S. Minemoto, A. Bartelt^A, C. Kaposta^A, C. Lupulescu^A, P. Rosendo^A, Š. Vajda^A, and L. Wöste^A (Univ. Tokyo, ^AFreie Universität Berlin)

近年、超短パルスレーザーの整形技術が進歩してきたことにともない、レーザー光の波形や位相を分子の化学反応に利用しようという試みが精力的になされている。例えば Gerber らは金属カルボニル錯体の光解離において、パルス波形によって解離生成物の強度比が大きく異なることを明かにした [1]。ただし、このように複雑な分子では、得られた波形がどの程度 “本当の” 最適パルスに近いのか、理論的にも実験的にも確かめることは難しい。そこで、我々はもっと単純な系であるナトリウム・カリウム混合クラスター、 Na_mK_n 、に対して、波形整形されたレーザー光による多光子イオン化効率の最適化を行い、反応最適化の妥当性について検討した。

イオン化効率の最適化は遺伝的アルゴリズムに基づくコンピュータプログラムにより行った。空間光変調器 (SLM) を用いて波形整形したレーザー光を超音速ジェット中の金属クラスターに照射し、四重極質量計によって質量分析した。最適化プログラムにより SLM の設定を変化させながらイオン強度を観測し、イオン強度が最大となるパルスを探した。得られたパルスの振幅と位相とは FROG 技術を用いて解析した。

試料として用いた NaK は、フーリエ限界の超短パルス光 (80 fs) によるポンプ-プローブ時間分解分光を行うと、図 1 (a) に示すように振動構造が現れる [2]。これは励起状態にある NaK が周期 680 fs 程度で振動しているためと考えられている。図 1 (b) および (c) に、最適化されたレーザー光の振幅と位相をそれぞれ示す。図 1 (b) に示すように、得られたパルスは 3 本のピークから構成されるパルス列となっている。ピーク間の間隔は時間分解スペクトルの振動周期とよく一致している。このことから、最適化されたパルスは励起状態上での核波束の運動を反映したものであることがわかる。一方、位相に着目すると、3 本のピークは負の直線チャープとなっており、励起状態上で核波束が収束していると考えられる。現在、理論計算を併用して解析中である。また、講演では Na_2K の最適化によって得られたパルス波形もあわせて議論する。

[1] A. Assion et al. Science **282** 919 (1999).

[2] Š. Vajda et al. J. Phys. Chem. A **102** 4066 (1998).

図 1: NaK^+ の超短パルス光によるポンプ-プローブ時間分解スペクトル (a)、および最適化されたパルスの振幅 (b) と位相 (c)。

配向した分子を用いた enhanced ionization 効果の観測

Observation of enhanced ionization effect using aligned molecules

○酒井 広文 (Hirofumi Sakai), Jakob Juul Larsen^A, C. P. Safvan^A, Ida Wendt-Larsen^A, Henrik Stapelfeldt^A

(東大理院 (Graduate School of Science, The University of Tokyo), ^Aオーフス大 (University of Aarhus))

フェムト秒高強度レーザーパルスによる分子の多光子イオン化過程は、レーザー光の偏光方向と分子軸の方向との関係により事情が大きく異なる。レーザー光の偏光方向が分子軸と垂直の時は、イオン化の過程は核間距離にかかわらず原子様である。ところが、偏光方向が分子軸と平行の時は、イオン化の速度は核間距離に強く依存し、いわゆる critical distance では、平衡核間距離の時よりも何桁も増大することが理論的に予想されている。この現象は enhanced ionization と呼ばれている。

ここでは、筆者らが開発した中性分子の配向技術 [1, 2] を用いて、イオン化用レーザー光の偏光方向と分子軸の方向が垂直の時と平行の時のイオン収率の違い等を定量的に評価した。実験では、 I_2 等の分子中にフェムト秒レーザーパルスを集光照射した。Fig. 1 にイオン化用レーザーの偏光方向と平行に配向した分子 (実線) とランダムな方向を向いた分子 (点線) を用いて得られた I^{2+} イオンの運動エネルギー分布の例を示す。詳細な解析の結果、以下の知見を得た。1) Fig. 1 から明らかな様に、配向した分子の分子軸がイオン化用レーザーの偏光方向と平行の時、レーザーの強度が同一でもより多価のイオンをより高効率に生成できる。2) このことは、enhanced ionization から予想される結果と両立し、今回の実験結果は、同メカニズムの新しい視点からの実証であると考えられる。3) 今回の実験では、イオン化用レーザーパルスのリーディングエッジが核間距離の増大に寄与していると考えられる。従って、第 1 パルスで分子を解離し、critical distance 付近でイオン化用レーザーパルスを照射すれば、より一層多価のイオンをより一層高効率に生成できると期待される。4) イオン化用レーザー光の偏光方向と分子軸のなす角を調整することにより、分子イオンの価数、即ちプラズマ状態の制御が可能である。

FIG. 1. The kinetic energy distribution of I^{2+} ions with (solid curve) and without (dotted curve) alignment laser pulses. I_2 molecules are seeded in Ar. The intensities of the laser pulse are 1.6×10^{12} and $3.0 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ for the alignment and ionizing laser pulse, respectively.

[1] Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Jakob Juul Larsen, Karen Marie Hilligsøe, Kasper Hald, and Henrik Stapelfeldt, "Controlling the alignment of neutral molecules by a strong laser field," J. Chem. Phys. **110**, 10235-10238 (1999).

[2] Jakob Juul Larsen, Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Ida Wendt-Larsen, and Henrik Stapelfeldt, "Aligning molecules with intense nonresonant laser fields," J. Chem. Phys. **111**, 7774-7781 (1999).

最近筆者らは、直線偏光したレーザー電場を用いて中性分子の配向を制御することに成功した [1, 2]。これらの実験では、異核 2 原子分子 A-B の場合、配列 A-B と B-A は区別されていない。分子の配列を制御し、全ての分子を A-B または B-A に揃えることが出来れば、化学反応ダイナミクスにおける配置効果の研究や、光解離生成物の選択的制御等に有効であることは自明である。

筆者らは、2 波長レーザー光の重ね合わせにより生成される非対称電場 (即ち、非対称ポテンシャル) を用いた中性分子の配列制御の可能性について検討した。分子の回転周期に比べて配列がゆっくり進む状況 (adiabatic regime) で、シュレーディンガー方程式を数値的に解いて、orientation parameter $\langle\cos\theta\rangle$ と alignment parameter $\langle\cos^2\theta\rangle$ のレーザー強度依存性やレーザーパルス内の時間発展等を評価した。ここで、 θ はレーザー電場の偏光方向と分子軸のなす角である。本計算の妥当性は、量子力学の断熱定理によって保証されている。モデル分子と FCN 分子について計算を行い、初期回転温度が十分低い分子については、上記のアプローチにより配列制御できる可能性があることが分かった。Fig. 1 に FCN 分子について計算した、orientation parameter $\langle\cos\theta\rangle$ のレーザー強度依存性を示す。初期回転温度が 1 K の時、 $1.4 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ のレーザー強度に対して $\langle\cos\theta\rangle = 0.52$ の値が得られている。

- [1] Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Jakob Juul Larsen, Karen Marie Hilligsøe, Kasper Hald, and Henrik Stapelfeldt, "Controlling the alignment of neutral molecules by a strong laser field," *J. Chem. Phys.* **110**, 10235-10238 (1999).
 [2] Jakob Juul Larsen, Hirofumi Sakai, C. P. Safvan, Ida Wendt-Larsen, and Henrik Stapelfeldt, "Aligning molecules with intense nonresonant laser fields," *J. Chem. Phys.* **111**, 7774-7781 (1999).

FIG.1. The dependence of $\langle\cos\theta\rangle$ on the laser intensity for some rotational temperatures.

原子や分子と超短パルス高強度レーザー光との相互作用において観測される多くの興味深い現象のうち、高次高調波発生、高エネルギー電子の発生、および非段階的 2 重イオン化は、いわゆる準古典的モデル [1] によって良く説明される。即ち、直線偏光した高強度レーザー電場によって変形したポテンシャルを電子がトンネルイオン化し、その電子がレーザー電場によって駆動され、親イオン近傍に戻って来た時、上記の現象が起きると理解できる。

今回筆者らは、高強度 20 fs パルスを用いて D_2 分子のクーロン爆裂の実験を行った。 D^+ イオンの運動エネルギー分布には、段階的 2 重イオン化によると解釈できる 3.5 eV 付近の主要なピークに加えて、最大 10 eV に達する高エネルギー成分が観測された。実際、平衡核間距離 $R_e = 0.74 \text{ Å}$ でクーロン爆裂が起きれば、約 10 eV の運動エネルギーを持つ D^+ イオンが生成されるはずである。このことは、 D^+ イオンの高エネルギー成分が、非段階的 2 重イオン化によって生成されたものであることを示唆する。

上記の準古典的モデルのメカニズムに従えば、楕円偏光を用いた場合、電子は親イオン近傍に戻ることが出来ないため、 D^+ イオンの高エネルギー成分は消滅するはずである。レーザー強度を一定に保ち、楕円偏光を用いて実験を行った所、楕円率の増大と共に、高エネルギー成分の信号強度が減少することを確認した。

多光子イオン化過程では、レーザー電場の振幅が本質的に重要である。筆者らはさらに、レーザー電場の振幅を一定に保ち、円偏光と直線偏光を用いて実験を行った (この時、円偏光パルスの強度は、直線偏光パルスの強度の 2 倍となる)。円偏光を用いた時、高エネルギー成分が消滅することを確認した (Fig. 1)。これまでに得られている実験結果は、高エネルギー成分が非段階的 2 重イオン化によるものであるという解釈と両立する。

FIG. 1. Kinetic energy distribution of D^+ ions compared under the same E -field amplitude. Solid and dotted curves are obtained with circularly and linearly polarized pulses, respectively.

[1] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).

Free Electron Laser Effect on Hydrolysis of Ethylacetate

○西尾 亮介, 栗津 邦男^A, 片山 誠二 (静岡県立大学, ^A大阪大学)○Ryosuke Nishio, Kunio Awazu^A, Seiji Katayama (University of Shizuoka, ^AOsaka university)

【序論】自由電子レーザー (FEL) は単波長かつ高エネルギーの光を発生することのできる装置である。近年、FEL による様々な化合物 (エステル化合物、ペプチド等) のアブレーション成功例がある。しかし、議論は因果関係に留まっており、アブレーションのメカニズムまで言及した報告は少ない。このような観点に立って、我々は酢酸エチルの加水分解実験から FEL 作用メカニズムの検討を行った。

【方法】酢酸エチルを濃度が 4%(w/w) となるように水または重水に溶解し、これらをそれぞれ赤外分光光度計の液体用セル (窓板はフッ化バリウム) に入れ、波長 5.65 μm (酢酸エチル C=O 伸縮振動に対応) の FEL を 30 分照射した。なお、同じ試料を 30 分放置し、これを非照射試料とした。照射試料及び非照射試料を GC により定量分析し、原料である酢酸エチルと生成物であるエタノールの量比から加水分解反応の進行度を見積もった。

【結果】酢酸エチルを水に溶解した場合、非照射試料はほとんど加水分解しなかったが、照射試料はかなり加水分解した。即ち FEL 照射により酢酸エチルの加水分解反応が引き起こされた。また重水に溶解した場合もほぼ同様の結果を得た。

【考察】以前に行った NMR 測定結果から、FEL の照射による反応機構は従来のエステル加水分解反応機構 (酢酸エチル→エタノール+酢酸) と同じであることが分かっている。また水は波長 5.65 μm の FEL を吸収することから、酢酸エチル及び水の FEL 吸収による反応の活性化が考えられる。そこで水溶液を波長 5.65 μm の FEL を吸収しない重水溶液に置き換えて同様の照射実験したところ、酢酸エチルの加水分解反応が引き起こされた。故に FEL が酢酸エチルのエステル結合のみを励起し、その結果切断 (アブレーション) が起こったと結論付けられる。

An Experiment of Environmental Gas Decomposition by Pulsed CO₂ Laser (Applied to R-12)○前野一夫, 笠井雄一^A, 遠藤誠一^B (千葉大学工学部都市環境,^A千葉大学工学部機械 (学), ^B(株) 丸創)Kazuo MAENO, Yuichi KASAI^A, Seichi ENDO^B (Chiba University, Faculty of Eng., Dept. Urban Environment Systems, ^AChiba University, Faculty of Eng., Undergraduate Student, ^BMaruso Co. Ltd.)

はじめに： フロンガスはその安定性・低毒性などの長所から有効な冷媒として産業界での生産量・使用量が爆発的に増大してきた。地球成層圏に存在するオゾン層を破壊することが明らかになった特定フロンは塩素・フッ素の結合を有する難分解性化合物であり、代替フロンはフッ素化合物で地球温暖化効果の極めて深刻な気体である。現在、フロンの分解にはロータリーキルン法や高周波分解法など幾つかの手段が研究され実用化されているが、国内累積 100 万 t を越えるフロンの分解には全く不足である。これらの気体分子は遠赤外領域の光に強い吸収性を有するので、炭酸ガスレーザーの集光を利用すると分解反応が強く進み、プラズマ電離下ではさらに自由電子による輻射吸収が進むので、レーザー光によるフロン等難分解性ガスの分解法は極めて有効と考えられる。本研究は高出力 CW レーザーによるフロン等のガス分解を最終目的として、まず TEA CO₂ パルスレーザー集光による R-12 の分解を試みた実験とその結果の第一報である。

実験の方法および結果と考察： 実験装置全体の概略図を図 1 に示す。循環閉鎖フロン流路において TEA CO₂ パルスレーザー光 (1 pulse/s, 約 4 J/pulse) をレンズで集光し、内径 22mm のガラス流路内にレーザーパルスによりプラズマを発生させ R-12 を分解する。分解された構成分子種は水酸化カルシウム溶液中に泡として放出され、環境に無害な塩として沈殿し、フィルターにより濾過・乾燥後採取される。本研究では採取された塩を粉末 X 線解析装置で分析し、その構成物質を調べた。またプラズマ生成部を可視化した。レーザーパルス数を実験条件として生成物の量を測定し考察を行った。実験結果として、比較的容易にプラズマが形成され青紫色の発光が観測されるが、パルス数の増加に伴ってガラス内のプラズマの範囲が増大した。また、採取された沈殿物の写真から、その多くは白色で、一部銀白色の沈殿物も見られ、その沈殿量とレーザー総パルス数には 500 パルス前後で強い依存性が見られた。粉末 X 線解析の結果からは沈殿物の多くは炭酸カルシウムであり、他に極少量の塩化カルシウム水和物が混合していることが判明した。本実験の流路設計と水蒸気添加条件がまだ最適化されていないことが主な原因である。

Fig.1 Experimental apparatus

Measurement of laser wake-field in low density plasma

○近藤公伯、森道昭、高橋栄治、白石崇、瀧成治（筑波大学 TARA センター）

K. Kondo, M. Mori, E. Takahashi, T. Shiraishi, and S. Taki, (TARA, Univ. of Tsukuba)

高出力超短パルスレーザーの醍醐味は、それを集光したときに得ることができる高強度光電磁場である。テラワット級のレーザーパルスを集光すれば 10^{18}W/cm^2 に達する集光強度が得られる。この強度は規格化されたベクトルポテンシャル a_0 の大きさとしておよそ 1 に匹敵する。従って、そのような電磁場中にさらされた物質はたちどころにイオン化し、プラズマ状態となる。プラズマ中の電子は $a_0 \sim 1$ の電磁場中で高速 Quiver し、様々な興味深い物理現象を引き起こす。中でも超短パルスレーザーで作り出されるレーザー航跡場は、荷電粒子の加速場として注目されている。特に技術的な観点からすれば、このようなレーザー航跡場を実験的に観測し、これを制御し、且つ長尺化する必要があると考えている。TARA センターでは比較的低密度のプラズマを用い、THz 領域の電子プラズマ波を発生させ、ダイナミクスの観測技術を開発してきた。特にレーザーによる航跡場制御を行うためには、この技術の確立が重要であり、現在、励起光の第二高調波をプローブ光として周波数領域干渉計測の安定化を試みており、レーザー航跡場の 2 次元情報を取得することができている[1]。一方、レーザー航跡場が発生する過程では、電子プラズマは高速 Quiver 運動をしながらレーザースポットの外側へ掃き出されるのであるが、この際に、平均電子密度分布の空間均一性が破れるため、励起レーザーの第二高調波が発生する。図は観測された第二高調波の励起強度依存性を示している。通常の弱励起の場合、励起強度の 2 乗に比例するはずであるが、観測結果は強度の 1.8 乗に比例しており、相対論効果を考慮した励起強度依存性により説明できる。この第二高調波はレーザー航跡場が励起されたことを示すと同時に、観測の際、航跡場発生位置の同定に利用できると考えている。

2 倍高調波の励起強度依存性

[1] E. Takahashi, et. al., Phys. Rev. E, 62, 7247-7250 (2000), E. Takahashi, et. al., J. Phys. Soc. Japan 69, 3266-3275 (2000).

Stationary Population Inversion in Expanding Plasma Jets

○赤塚 洋、狩野 勝弘（東工大原子炉研）

H. Akatsuka and K. Kano (Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology)

はじめに：膨張プラズマジェット中には低電子温度の再結合状態が作られるため、反転分布が生成され、短波長レーザー励振に広く応用されている。こうした再結合励起レーザーはパルス発振には広く応用されているが、定常発振への応用例は未だ数少ない。本研究では、大気圧アーク放電熱プラズマを、弱い磁場下の低気圧室中へ噴出する事により、種々の原子中での定常反転分布を得るべく実験を行った。

実験方法及び結果：Fig. 1 の様な装置により、大気圧アーク放電(放電電流 120A, 放電電圧約 20V)プラズマを陽極細孔(1mmφ)から弱い縦磁場(0.162T)下の低気圧室中(到達真空度 10^{-2} Torr, プラズマ噴出時 0.1 Torr)へと定常噴出することにより、電子温度約 0.1eV, 電子密度約 10^{13}cm^{-3} 程度の低温高密度再結合プラズマが生成される[1]。放電気体には、水素・ヘリウム混合気体、ヘリウム、アルゴンを使用し、可視域分光計測を行い、励起準位数密度を視線方向線積分値として測定し、ボルツマンプロットを作成した。その結果、それぞれのプラズマ中で H I, He I の各準位間では、高励起準位は局所熱平衡状態にある一方、低励起状態に反転分布が見いだされ、Ar I では見いだされなかった。H I の場合特に反転が大きく、適切なミラーを用いれば赤外域での定常レーザー発振も期待できることが判明した[2]。He I の場合は $4^1\text{S}-3^1\text{P}$, $4^3\text{D}-3^3\text{P}$ 等の準位間で反転したが、定常発振は困難なレベルであった[3]。電子温度も、水素・ヘリウム各プラズマでは 0.1eV 程度であったが、アルゴンプラズマでは 0.5eV 程度と高いことも判明した[4]。

考察：反転の生じることが、電子温度の急激な低下と等価であることは、気体接触プラズマ冷却と反転形成に関する研究[5]の結果、明らかにされている。本研究で発生したプラズマについても、発生プラズマ種毎に電子温度に差のあることは、断熱膨張よりも、低気圧残留ガスによる気体接触冷却効果の方が電子温度低下に支配的であることを示していると考えられる。即ち、低エネルギー電子と衝突断面積の大きい水素・ヘリウムでは緩和が効果的に進み、アルゴンプラズマでは残留アルゴン原子はラムザウアー効果による 0.3eV 付近の弾性衝突断面積の極小ゆえに電子が緩和されにくいことを示している。以上の検討結果から、アルゴンプラズマの電子冷却のためには、ラムザウアー効果のない冷却ガス分子を低気圧室へ導入することが有効と考えられ、文献[5]と同様の数値計算を実施し、ヘリウム導入によりアルゴンプラズマで定常反転を得られることを確認した。また、実験的にも、アルゴンプラズマにヘリウムガスをパフイングする事により、電子温度の急激な低下と、いくつかの準位間で反転分布が得られることを確認した。

参考文献：[1] H. Akatsuka and M. Suzuki: Rev. Sci. Instrum., 64 (1993) 1734. [2] H. Akatsuka and M. Suzuki: Phys. Rev. E, 49 (1994) 1534. [3] H. Akatsuka and M. Suzuki: Plasma Sources Sci. Technol., 4 (1995) 125. [4] 赤塚 洋、鈴木正昭：プラズマ核融合学会誌, 70 (1994) 1196. [5] U. Furukane, K. Sato and T. Oda: J. Phys. D: Appl. Phys., 22 (1989) 390.

Fig. 1. Experimental arrangement and plasma jet.

Dynamics of an optically pumped CH₃OH 119 μ m ring laser

○ 藤井 和也, 林 智宏, 曾我部 伸 (大阪市立大学・工学部)

K.Fujii, T.Hayashi and N.Sokabe (Osaka City Univ.)

光励起遠赤外線レーザー出力のダイナミクスは、HCOOH[1] や、とりわけ NH₃[2] レーザーに関して詳しく調べられてきたが、ごく少数 (3 ~ 4 本) のレーザー線に限られている。我々はダイナミクスを発現する可能性のあるレーザーとして CO₂ 9- μ m P(36) 発振線で励起される CH₃OH 119 μ m 発振線に注目して、その振る舞いを観測したので報告する。

3 枚のミラーで構成した周回長 2.3 m のリング共振器を用いて、CH₃OH 119 μ m を通常の動作圧と比較してかなり低い圧力 (10 ~ 16 Pa) で発振させた。励起光の離調周波数を約 -20 MHz として、リング共振器の離調周波数を正 (後方出力領域) から負 (前方出力領域) の方向に変化させ、後方出力を MIM ダイオードで観測した。その結果、後方出力領域では自己パルス動作 (Fig.1(a)) と周期分岐が、また、前方出力領域へと出力方向が反転する直前においては弱い前方出力によると考えられる変調自己パルス動作 (Fig.1(b)) が観測された。

観測されたダイナミクスを 3 光波 A 型 3 準位系モデルを記述する Maxwell-Bloch 方程式と 119 μ m 発振線に関するパラメーターの既報値 [3] を用いて解析した結果の一例を Fig.2 に示す。観測結果を解析結果をもとにして議論する。

References

- [1] M.Lefebvre, D.Dangoisse and P.Glorieux, Phys. Rev. A **29**(1984)758.
- [2] C.O.Weiss and J.Brock, Phys. Rev. Lett. **57**(1986)2804.
- [3] J.Heppner, C.O.Weiss, U.Hübner and G.Schinn, IEEE J. Quantum Electron. **QE-16**(1980)392.

Fig.2. Time evolution of calculated backward intensity. CH₃OH gas pressure of 16 Pa, a pump intensity of 3 W/cm² and a pump detuning of 25 MHz.

Fig.1. Time evolution of backward FIR output intensity. (a)Self-pulsation and (b)Modulated pulsation. Observed under a CH₃OH gas pressure of 16 Pa and a pump intensity of 3W/cm². Cavity detuning; (a)2 MHz, (b) 0.5 MHz.

Dependence of photoacoustic signal strength on acoustic mode

○ 貫原 謙一, 泉原 勇, 曾我部 伸 (大阪市立大学・工学部)

K.Nukihara, I.Izuhara and N.Sokabe (Osaka City Univ.)

高感度の微量気体検出器としての光音響 (PA) 分光システムの構築を主な目標とし、導波路型パルス CO₂ レーザーを光源として、PA 信号強度の音響モード依存性を調べている。今回、内径 98 mm、長さ 240 mm の PA セル内に設置した長さ (L) 204 mm で内径 (2R) 14 mm (ホーン I) 及び 51 mm (ホーン II) の 2 種類の音響共振ホーンを用いて、CH₃OH と 4% C₂H₂/N₂ 標準気体を試料として 10 ~ 1000 [Pa] の圧力範囲において PA 信号の音響モード依存性を調べたので報告する。

CH₃OH と C₂H₂ の吸収線と近共鳴にある CO₂ 発振線として、それぞれに対して 9 μ m 帯 P(24) と R(10) を用い、PA 信号をボックスカー積分器で記録し、その FFT 解析を行った。

レーザーパルス終了後の PA 信号を Fig.1 に示す。(a) はホーン I の、また (b) はホーン II で観測された PA 信号である。Fig.2 には、それぞれの PA 信号の FFT スペクトルを示した。(a) が優勢な基本軸モード (001) の単純な減衰振動の波形を示しているのに対して、(b) では高次のモードが並存していて、基本動径モード (100) が優勢であることがわかる。個々の音響モードの PA 信号強度は、固有モード関数を $p_j(r)$ 、レーザー光の強度分布を $I(r)$ 、V を共振ホーンの体積とすると、 $\int_V p_j(r)I(r)dV$

に比例する。このとき、これにより音響固有モード間の優劣が決定される [1],[2]。また、個々の音響モードの PA 信号強度と Q 値が圧力に依存し、その依存性について報告する。

References

- [1] S.Schafer, A.miklos and P.Hess, Appl. Opt. **36**, 15(1997)3202-3211.
- [2] Lu-yuan Hao, Jia-xiang Han, et al, Rev. Sci. Instrum. **71**, 5(1991)1975-1980.

Fig.1 PA signals developed in resonant horns of 14-mm (a) and 51-mm (b) dia.

Fig.2 FFT spectra of PA signals shown in Fig.1.

○田中 淳、三浦 光博、曾我部 伸 (大阪市立大学工学部)
J.Tanaka, M.Mitsuhiro, N.Sokabe (Osaka City Univ.)

半導体レーザーの高出力化と相俟って、外部共振器型半導体レーザー(ECDL)[1,2]は、周波数可変レーザーとして広範囲の応用がなされている。我々も原子分子分光への応用を目的として ECDL を製作し、その性能評価を兼ねて ^{87}Rb D_2 線の超微細構造スペクトルを飽和分光[2]により観測している。 ^{87}Rb D_2 線の $F''=2 \rightarrow F'=1, 2, 3$ 遷移のスペクトルの間隔は 156.13 MHz と 264.97 MHz であり、これらを分離観測するには飽和分光を必要とするが、通常対向ビームを利用する飽和分光法では強いクロスオーバー共鳴が発現する。このクロスオーバー共鳴線を低減するために、今回偏光飽和分光法を用いて観測した。

製作した ECDL は 780 nm で発振する LT024MD(シャープ、40 mW)と Littrow マウントの回折格子を用いた共振器長 3.6 cm のもので、約 30 GHz にわたるモードホップのない周波数掃引が可能である。1/4 波長板で円偏光とした飽和光を磁気遮蔽した室温の Rb 気体セル(ϕ 2.5cm $\times$ 5cm)中を透過させ、直線偏光の対向プローブ光をセル透過後直交した偏光子を透してフォトダイオードで検出する。背景光のない状態で検出するために高感度であるが、スペクトル形状は偏光子の配向に依存して変化する。観測された吸収信号を Fig 1 に示す。比較のため線形及び通常の飽和分光スペクトルを示した。クロスオーバー共鳴線が抑圧されているが、スペクトル幅は飽和のために自然幅と比較してかなり広い。この原因は主に飽和によるものと考えられ、この効果による幅の発生を抑え、より狭いスペクトル幅での観測を目指す。

References

- [1]C.E.Wieman, Rev. Sci. Instrum. 62(1991)1.
[2]K.B.MacAdam, A.Steinbach, C.E.Wieman, Am. J. Phys. 60, No.12(1992)1098.

Fig.1 Rb D_2 line.(a)linear absorption spectrum,(b) saturated absorption, (c)polarization absorption.

*樋口淳一、西澤典彦、後藤俊夫、森正和^A、山根一雄^B（名古屋大学、^A愛知工業大学、^B富士通(株)）

*Junichi Higuchi, Norihiko Nishizawa, Toshio Goto, Masakazu Mori^A, Kazuo Yamane^B (Nagoya Univ., ^AAichi Inst. Tech., ^BFUJITSU LTD.)

はじめに 近年、ショット雑音限界を克服する光として、スクイズド光が注目されている。光子数スクイズド光は、光ファイバの非線形効果を利用する事で比較的容易に生成することができる。これまでにスペクトルフィルタ¹⁾ (回折格子とスリット)やファイバループミラー²⁾を用いた光子数スクイズド光の生成が報告されている。本研究では、光ファイバを通過させるだけで容易にスクイズド光を生成できる非線形偏光干渉計を用いた光子数スクイズド光の生成を目指す。今回、非線形偏光干渉計の量子論的な解析と光子数スクイズド光の生成実験を行ったので報告する。

実験系及び解析結果 図1に非線形偏光干渉計の実験系を示す。非線形偏光干渉計は空間的な光の重ねあわせを用いず、光ファイバを通すだけで光の干渉による非線形性を得ることができる。このため、容易にスクイズド光を生成できると考えられる。光源から出た光パルスは2本の長さの等しい定偏波ファイバを90°ひねって接続したものに入射される。出力光はバランス型遅延差検出器に入射され、スペクトルアナライザで観測される。パルス光や量子揺らぎの変化はビーム伝搬法と線形近似を用いて計算した。³⁾

図2は数値解析によって求めた伝搬距離 13mにおける入出力特性と雑音の変化を表している。 θ はファイバの複屈折軸と $\lambda/2$ 板のなす角度を表しており、正のときは入力側と出力側の $\lambda/2$ 板を同方向に回転した場合、負のときは逆方向に回転した場合を表している。雑音は入出力特性の傾きが小さくなるところで減少し、最大約-13dBの光子数スクイズド光が生成されることが分かった。また θ が正のときと負のときで対称的な変化をすることが分かった。

図3は伝搬距離30mにおける入出力特性と雑音の変化の実験結果を表している。数値解析と同様に入出力特性の傾きが小さくなるところでパルス光の強度ゆらぎが減少しており、ショット雑音レベルと同程度まで抑圧することができた。

参考文献 1) S.R.Friberg, S.Machida, M.J.Werner, A.Levanon and T.Mukai : Phys. Rev. Lett. **77** (1996) 3775.
2) D.Krylov and K.Bergman : Opt. Lett. **23** (1998) 1390.
3) J.Higuchi et al : Jpn. J. Appl. Phys. **39**(2000) 6243

図1 非線形偏光干渉計を用いたスクイズド光生成の実験系

図2 数値解析結果

伝搬距離 13m

図3 実験結果

伝搬距離 30m

31p II 3 非線形ファイバーとスペクトルフィルタを用いた超短パルス光子数スクイーキングの入力波形依存性の解析

Theoretical analysis for the input pulse shape dependence of photon number squeezing in optical ultrafast pulses using a nonlinear optical fiber and a spectral filter

○坂田 丞 武岡 正裕 神成 文彦（慶應大学理工学部）

○S.Sakata, M.Takeoka, and F.Kannari (Keio University)

はじめに 超短パルスを非線形異常分散光ファイバーとスペクトルフィルタを用いた系に入射させることにより、光子数スクイズド状態が発生することが理論的にも実験的にも確認されている[1]。この現象は3次の非線形性や2次の分散特性に由来し、スペクトルモード間に量子相関を持たせることによってスクイーキングが生み出される。通常強い非線形相互作用を得るため、ファイバー内に入射させる初期波形はsech型のソリトンパルスが選ばれているが、スペクトル内の相互作用を解析した上でスクイーキングを最適値に導く入力波形を見出せる可能性がある。またsub-pico秒の超短パルスにおいては誘導ラマン散乱の影響も無視できないものとなり、超短パルスを利用する上でのラマン散乱の影響を踏まえた解析も必要と考えられる。そこでpositive-P表現による量子非線形シュレーディンガー方程式を用いた数値計算により、ラマン散乱の影響を含めない状態で入射パルスの波形、位相に対する光子数スクイーキングの依存性、ラマン散乱の影響を含めた場合についての依存性について解析した。

解析結果 誘導ラマン散乱の影響を無視した場合で入力位相を変化させた時の解析例を示す。Fig.1は光子数分散の伝播距離発展性を示す図で、sech型の振幅波形を持つ入力パルスのスペクトル位相を(a) $\psi(\omega) = -0.0375|\omega|$ 、(b) $\psi(\omega) = 0.056\omega^2$ のように変調させた結果を表す。そこで光子数スクイーキングは(a)ではまったく発生せず、(b)では $\xi = 4.0[Z/Z_0]$ で強いスクイーキングが発生していることが見て取れる。この位置は無変調な場合での最大限のスクイーキングの位置とずれたものだが、時間波形であるFig2を見れば自己急峻化の最大値の発生する地点と同一である事が分かり、尚且つこの位置ではスペクトル位相はほぼフラットなものとなっている。つまりチャージング量を変化させることでパルスの急峻化の位置を適切に調節することが可能であり、この性質を利用すればソリトンの次数を一定にしながらも強い光子数スクイーキングを導けるのではないかと考えられる。

Fig.1. Photon-number variance versus propagation distance for $N=1$ at $t_0=1ps$, cutoff frequency $=244 \pm 2.2GHz$

Fig.2. Intensity waveform in time domain $sech(\omega)e^{i\psi(\omega)}$
(a) initial pulse $\psi(\omega) = -0.0375|\omega|$
(b) initial pulse $\psi(\omega) = 0.056\omega^2$

[1] S.R.Freiberg, S.Machida, M.J.Werner, A.Levanon, and Takaaki Mukai *Phy.Rev.Lett.*, **77**, 3775-3778(1996)

good cavity condition ($\kappa \ll \gamma_{\parallel} < \gamma_{\perp}$, κ : 共振器の光損失, $\gamma_{\parallel}$: 縦緩和定数, $\gamma_{\perp}$: 横緩和定数) である単一モード class A レーザーは、光電場 (E) の 1 変数が主としてレーザー発振状態を決めており変数が少ないためにカオス発振は困難であると考えられてきたが、単一モード class A レーザーとして可視域 He-Ne (6328 Å) を選択し実験を行った結果、外部鏡による光学的遅延帰還 (optical delayed feedback) を加えるのみでカオスは発生した¹⁾⁻⁴⁾。今回は理論的解析として池田不安定性と同様に遅延帰還のみで変数系が無次元となることを一般的な形で述べる。また、離調 (detuning) を含む単一モード class A レーザー方程式をレーザーの基本方程式から断熱消去により導出し、光学的遅延帰還は Lang-小林方程式定式を拡張して多重戻りを考慮し以下のように導出した⁵⁾。

$$dx(T)/dT = \mu(1 + i\alpha)x(T) - b(1 + i\beta)|x|^2x(T) + a(1 + i\epsilon) \sum_{n=1}^{\infty} x(T - nT_r)(R_2R_3)^{(n-1)/2}, \quad a = \frac{1}{\gamma_{\perp}\tau_{in}} \frac{1 - R_2}{R_2\sqrt{1 + \epsilon^2}} (R_2R_3)^{1/2}. \quad (1)$$

$x = Ee^{i\phi}$: 電場, R_3 : 外部鏡の反射率, R_1, R_2 : 内部鏡の反射率 $\mu(1 + i\alpha)$: 複素ゲイン係数, $b(1 + i\beta)$: 複素飽和係数, $1 + i\epsilon$: 戻り光の位相のずれ, T_r : 外部共振器のラウンドトリップタイム, $\gamma_{\perp}\tau_{in}$: 内部共振器のラウンドトリップタイム

上の方程式の定常解を求めた上で安定性解析を行い系が不安定になる条件を求める。更に数値計算により分岐図、時系列、アトラクター等を求め、遅延帰還と離調の影響により単一モード class A レーザーよりカオスが発生することを述べる。またレーザー方程式を多重戻りに拡張し、リアプノフ指数を用い数値計算上での戻りの有効回数を求めた上で、多重戻りの効果によりカオス閾値が低下することも述べる。カオス領域で、時系列に LFF に類似した波形が現れたことも述べる。

- 1) 桑島史欣, 北嶋巖, 岩澤宏 第 16 回レーザー学会講演 (1996).
- 2) F. Kuwashima, I. Kitazima, and H. Iwasawa, レーザー研究. **24**, 1337(1996).
- 3) F. Kuwashima, I. Kitazima, and H. Iwasawa, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, L325(1998).
- 4) F. Kuwashima, T. Ichikawa, I. Kitazima, and H. Iwasawa, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 6321(1999).
- 5) F. Kuwashima, I. Kitazima, and H. Iwasawa, Jpn. J. Appl. Phys. 掲載決定

はじめに

半導体レーザー励起マイクロチップ固体レーザーは高品質、小型、軽量化が可能なため次世代の加工用高出力レーザーとして近年注目を浴びつつある。特にアレイ間の位相同期を達成することで高出力のみならず高輝度レーザーを実現できることから、位相同期は応用上非常に重要な技術である。位相同期の手法として外部鏡からの戻り光を利用した Talbot 効果が有効であり [1]、これはアレイ間の干渉・回折により再構築された自己近視野像を共振器へフィードバックさせることでアレイ間の位相を一致させる手法である。しかしながら、Talbot 効果によるレーザー間の光学的結合は時に出力の不安定化をもたらす、応用上問題となる。そこで本研究では、Talbot 共振器を有する Nd:YAG マイクロチップレーザーにおけるカオスの出力の観測を行い、その波形の特性および発生条件について詳細に検討した。

実験方法および結果

マイクロチップレーザー結晶として Nd:YAG を使い、これを 12 素子からなる半導体レーザーバーにより励起した。その結果中央の 9 個のアレイにおいて発振が観測された。位相同期を達成するために出射面から 1/4 Talbot 長 (30 cm) 離れた位置に外部鏡を設置した。各々のアレイ光はレンズを用いて近視野像の再構成を行い、プリズムを用いて一つ一つの成分に分割し、隣り合う二つのアレイの時間的出力変化を同時にフォトダイオードとオシロスコープで検出した。外部鏡 (Talbot 鏡) が存在しない場合には、各々のレーザーアレイ出力は持続的緩振と発振周波数 (数百 kHz) で振動しており、それらの波形には全く相関が無くアレイ間の結合が存在しないことが分かった。ここで Talbot 鏡を設置し、その傾きを変化させてアレイ間の結合強度を増加させたところ、緩振と発振周波数オーダーでのカオスの出力振動が観測された (Fig. 1(a))。カオス波形には相関が見られ、カオス同期が達成されていることも分かる。カオス発生の要因としては、アレイ間のレーザー発振周波数のデチューニングと緩振と発振周波数との非線形相互作用が原因であると考えられる。これは従来盛んに研究が行われてきた変調誘起型のカオスとは発生機構が異なっている [2]。アレイ間の結合をさらに増加させると、アレイ間でのインジェクションロッキングが達成されて発振周波数が一致し、それと同時にカオスの出力も安定化された (Fig. 1(b))。以上のことから、インジェクションロッキングが達成される近傍においてカオスが発生することが明らかになった。

参考文献 [1] Y. Kono, M. Takeoka, K. Uto, A. Uchida, and F. Kannari, IEEE J. Quantum Electron. **36**, 607 (2000).

[2] A. Uchida, T. Ogawa, M. Shinozuka, and F. Kannari, Phys. Rev. E **62**, 1960 (2000).

Fig. 1 Temporal waveforms at various couplings.

Numerical demonstration of the applications for secure communication by using chaos synchronization in microchip lasers

○小川 武史 篠塚 昌彦 *内田 淳史 *吉森 茂 神成 文彦

(慶應大学理工学部, *拓殖大学工学部)

T. Ogawa, M. Shinozuka, A. Uchida, S. Yoshimori, and F. Kannari

(Keio University, *Takushoku University)

はじめに 近年レーザカオスを利用した秘匿通信への応用が盛んに研究されている。これはカオスの初期値鋭敏性に基づく予測不可能なカオス振動を搬送波として、伝送情報を埋め込み暗号化する手法 (Chaotic Masking法[1]) である。復号化の際にはカオス搬送波成分を差し引き、つまり、二つの離れたカオスシステムで発生する時系列をカオス同期法により一致させる必要不可欠がある。ここで重要なのは、伝送信号成分の加わった光信号を受信側のスレーブレーザに注入することで、マスターレーザで発生するカオス搬送波成分に同期した光出力を再現することである。しかしながら、信号成分の復号化の条件およびその詳細なメカニズムは報告されていない。我々はこれまでにカオス発振する二つの異なるマイクロチップレーザにおいて、カオスの出力振動の同期が可能なることを数値的・実験的に証明している[2]。本研究の目的は、マイクロチップレーザにChaotic Masking法を適用し信号成分の復号化が可能であることを示し、その条件およびメカニズムの解明を行うことである。

解析結果 励起変調によりカオス発振するマスターレーザ (送信側) の光出力に、正弦波変調でメッセージを加え送信し(a)、受信側で送信信号とカオス同期信号(b)の差(c)を計算することでメッセージ信号の回復が可能となる。Figure1 に 100kHzの信号をカオス搬送波に埋め込み伝送を行った数値解析結果を示し、伝送情報の復号化が可能であることが分かる。伝送信号回復の条件として、送信信号周波数がスレーブレーザにおける緩和発振周波数帯 (1000kHz) 付近では、メッセージの再現が困難であることが判明した。Figure2 にスレーブレーザの外部正弦変調信号入力に対する利得を実線で示す。400kHz以下の低周波域においてスレーブレーザでの正弦変調成分の利得が減少することがわかった。次に、信号成分をカオス搬送波成分に埋め込んだ際の正弦変調成分の利得をFigure2 にプロットし、信号成分の利得は正弦変調信号のみをスレーブレーザに注入した際と同様の結果が得られた。この結果、低周波域での信号成分の復号化は、正弦変調成分のスレーブレーザでの利得の差に起因していると考えられる。

[1] G. D. VanWiggeren et al, Phys. Rev. Lett. **81**, 3547 (1998); L. Larger, et al, Phys. Rev. E **57**, 6618 (1998)[2] A. Uchida, M. Shinozuka, T. Ogawa, and F. Kannari, Opt. Lett., Vol. **24**, No.13, pp.890-892 (1999)

Figure2 Temporal waveforms ; (a) encoded intensity of master laser, (b) synchronized intensity of slave laser, (c) decoded message

Figure2 Amplitude transfer function for modulation frequency. A solid line indicates gain without carrier waveforms. Circles indicate the calculated gain with chaotic carrier waveforms.

Experimental demonstration of secure communication systems with laser chaos by using a chaotic on-off keying method

○篠塚 昌彦 *内田 淳史 小川 武史 *吉森 茂 神成 文彦 (慶應大学理工学部, *拓殖大学工学部)

○M. Shinozuka A. Uchida, T. Ogawa, S. Yoshimori, and F. Kannari (Keio University, *Takushoku University)

はじめに レーザカオスを利用した秘匿通信は、情報を埋め込むカオス搬送波をレーザの非線形性を利用してハードウェア的に作成することで、従来のソフトウェアでの暗号化よりも秘匿性の高い新たな通信方式として有望である。近年レーザカオスを用いた秘匿通信の実験的実証が行われており、光通信への応用が期待されている[1]。ここで 2 つの離れたシステムで同一のカオス搬送波を作成する「カオス同期法」が復号化のために非常に重要となる。我々は独立発振する 2 つの Nd:YVO₄ マイクロチップレーザにおいて、注入同期法によるカオスのレーザ出力の高精度なカオス同期を既に達成している[2]。この結果シングルモードにおいてはインジェクションロッキングが達成されれば、レーザパラメータを一致させることなく高精度カオス同期が達成されることが分かった。これは盗聴者によるカオス搬送波の複製を容易とし、シングルモードレーザカオス同期を利用した通信方式は秘匿性に欠けるということを表している。そこでマルチ縦モードレーザ間のカオス同期を行ったところ、2 つのレーザ結晶のフリースペクトルレンジを一致させないことには高精度カオス同期が達成できないことが分かり、結晶そのものに秘匿性が含まれていることが分かった。本研究ではこのシステムを用いて Chaotic on-off keying 法という新しいカオス秘匿通信法を提案し、実験的実証を試みた。この手法ではデジタル信号の 0,1 符号を 1 つのカオス状態とカオスに振幅変調を加えた状態にそれぞれ対応させて符号化を行い送信した。受信側であるスレーブにおいてカオス同期を達成することで初めてこれら 2 つのマスターレーザの状態を判断することが可能となり、同期精度の変化を観測することで復号化を行うことができる。

実験結果 2 つの独立発振する Nd:YVO₄ マイクロチップ結晶に、光アイソレータ(-60dB)を用いることで一方にレーザを注入しマスタースレーブ型を形成した。また、光アイソレータ後に音響光学変調器(AOM)を設置しマスターからのレーザ光に直接振幅変調を加えた。Fig.1 に同期精度を表す相図をカオス同期が達成されたときの(a)と AOM を用いてカオスに変調をかけたときの(b)を示す。両図より AOM で変調を掛けることによりカオス同期の精度が悪化することが分かった。これはカオスに加えた変調成分がマスタースレーブ間で異なる利得で応答したのが原因と考えられる。これら 2 つの同期状態をスイッチングすることによって得られる実験結果を Fig.2 に示す。また同図においては low pass filter を通すことによりメッセージ信号の回復が可能である。

[1] G. D. VanWiggeren et al, Phys. Rev. Lett. **81**, 3547 (1998); L. Larger, et al, Phys. Rev. E **57**, 6618 (1998).[2] A. Uchida, M. Shinozuka, T. Ogawa, and F. Kannari, Opt. Lett. **24**, 890 (1999).

Fig.1 Correlation plots at (a)chaos synchronization without signal and (b)chaos synchronization with signal.

Fig.2 Input message and decoded message after chaos synchronization.

Programmable pulse shaping of femtosecond pulses by use of acousto-optic programmable dispersive filter.

○佐藤 正学, 田辺 孝純, 大野 公久, *Francois PETIT, *Frederic VERLUISE, *Pierre TOURNOIS, 神成 文彦
(慶應義塾大学理工学部, * (株) B.M.I)

M. Sato, T. Tanabe, K. Ohno, , *Francois PETIT, *Frederic VERLUISE, *Pierre TOURNOIS, F. Kannari
(Keio University, B. M. I Co., Ltd.)

はじめに 超短パルスレーザは THz 電磁波発生, 原子及び分子のコヒーレント制御といった超高速現象に人々に活用され, その潜在能力は幅広い分野で期待されている。フェムト秒パルスレーザ光源からはおおそ sech^2 の時間波形が出力されるが, このパルスを任意に整形することで応用上, さらなる強力なツールとなる。我々は波形整形を実現するに際し, 増幅系内において音響光学分散フィルタ(AO-PDF)を用いた。このフィルタは Tournois 氏により提案されたものであり, 超短パルスの任意な制御を実現可能とするフィルタである[1][2]。このフィルタを再生増幅系内のパルス伸長器前に設置し, 入力パルスとフィルタの TeO_2 結晶内で発生する音響波との相互作用により整形波は $E_{\text{out}}(t) \propto E_{\text{in}}(t) \odot S(t/\alpha)$ と表現される。この過程においてはパルスを空間的に分散させ, フーリエ面で振幅及び位相変調を行う必要はない。

実験結果 以上の構成により増幅系内の圧縮器のミスマライメントによる 2, 3 次分散量を AO-PDF の音響波に起因する 2, 3, 4 次分散を加えることにより分散補正を行った。さらに振幅制御を加えることにより, ダブルパルスの生成を行い, これらのパルスを周波数分解光ゲート法により測定した。分散補正後の FROG 波形を Fig.1 に示す。

さらに, 増幅系における利得狭帯化を抑制するために, 振幅制御することで, より広帯域なスペクトル生成を試みた結果, スペクトル幅を広帯域化前の 24nm から 44nm へと広帯域化することができた。この広帯域化前及び後のスペクトル波形を Fig.2 に示す。

[1] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielmann, P. Tournois Opt. Lett. 25 (8) 575 (2000)

[2] F. Verluise, V. Laude, J. P. Huignard, P. Tournois, and A. Migus, J. Opt. Soc. Am. B 17, 138(2000)

Fig.1 分散補償後のパルスの FROG 波形

Fig.2 広帯域化前後のスペクトル波形 (破線: 広帯域前, 実線: 広帯域後)

Shaped Pulse Amplification using Fourier Pulse Shaper with Acousto-Optic Programmable Dispersive Filters

○田辺 孝純, 持田 晴夫, 佐藤 正学, 大野 公久, 神成 文彦 (慶應大学理工学部)

○T. Tanabe, H. Mochida, M. Sato, K. Ohno, and F. Kannari (Keio University)

はじめに 波形が整形された高強度な超短光パルスは, 特に化学反応, 原子, 分子のコヒーレント制御において重要である。我々の用いた波形整形器は回折格子で光パルスを空間的に分散しフーリエ面で空間光変調器 (SLM: Spatial Light Modulator) を用いて周波數位相に変調を加える。再び, 回折格子によって時間域に戻すことによって波形を制御する。

また, 近年提案された音響光学分散フィルタ (AOPDF: Acousto-Optic Programmable Dispersive Filters) [1, 2] は超短パルスの位相および強度を広範囲かつ高精度に整形可能である。AOPDF では音響光学結晶 (TeO_2) に入射した光パルスは, 結晶内で音響波と相互作用する。結晶内の音響波を適当に設計することによって任意に整形された光パルスを得ることが可能である。

波形整形器を増幅器の前に設置することによって整形波形の強度を確保することができる。さらに, 回折格子を用いた波形整形器からの出力パルスは時間空間結合の影響を受けることが知られているが, 再生増幅器によって時間空間結合の影響が緩和することが予想される。

実験セットアップ SLM を用いた波形整形器と AOPDF を, 再生増幅器を用いたチャープパルス増幅器 (CPA: Chirped Pulse Amplifier) の前に設置し, 増幅器前置き型波形整形を行った。実験セットアップ図を Fig.1 に示す。

SLM の位相変調量がゼロのとき増幅された光パルスが最短になるように, あらかじめ AOPDF を用いて増幅器の分散補償及び, 利得狭帯の補正をおこなった。AOPDF は強度変調が可能であるが, それが再生増幅器への入射光のスペクトル幅を狭めることもありフィードバック波形整形などのアプリケーションに用いるには潜在的に危険である。そこで任意の波形整形には SLM による周波數位相の変調を用いた。

増幅器前置き型波形整形に AOPDF による分散補償を併用した場合と, 波形整形器単独で分散補償まで実現した場合についても比較した。さらに波形整形器の時間空間結合の, 増幅器後のパルスに対する影響にも考察した。

[1] P. Tournois, Opt. Commun. 140, 245-249 (1998).

[2] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielman, and P. Tournois, Opt. Lett. 8, 575-577 (2000).

Fig.1 Experimental setup. Both pulse shaper and AOPDF are set before the CPA system.

Femtosecond Pulse Amplification in Regenerative Amplifier with Spectral Control

○清水 庸介、板谷 治郎*、豊田 浩一、緑川 克美* (東京理科大学、*理化学研究所)

○Y. Shimizu, J. Itatani*, K. Toyoda, K. Midorikawa* (Science University of Tokyo, *RIKEN)

空間マスクによるスペクトル整形を用いてスペクトル幅を広げ、パルス幅をより短くする試みがなされている。このときパルスは、裾のないきれいな波形を求めようとすると、時間幅で20 fs程度が限界となっている。そこで我々は、スペクトル整形による強度変調をさらに大きくしスペクトルを二つに分け、そのビートによりさらなる短パルスが得られると考え、実験を行った。その結果、スペクトル整形によりスペクトルの全帯域はわずかに広がるため、さらなる短パルス化が期待できることがわかった。

レーザーシステムは、モード同期チタンサファイア発振器、オフナー光学系による無収差パルス伸長器、再生増幅器、3パス増幅器およびパルス圧縮器から成る。再生増幅器のポンプエネルギーは6.7 mJであり、出力エネルギーは1 mJである。本実験では、再生増幅器内に空間マスクを挿入しスペクトル整形を行った。再生増幅器内でスペクトル整形を行うのは、増幅器内の往復により効果が得やすいためである。また、スペクトル波形は、再生増幅器内に配置されたプリズム対によって、スペクトルが空間的にチャープされた位置に空間マスクを挿入することによって制御した。スペクトル整形によるダブルピークのスペクトルから得られた出力パルスの自己相関波形を図1に示す。中心のパルスの時間幅は、 sech^2 を仮定すると14.4 fsである。出力パルスは、二つのスペクトルのビートであるため、出力パルスにおいてピークを結んだ包絡線の幅が二つのパルスのスペクトル幅に対応し、一つのピークの幅が二つのスペクトルの波長差に対応している。

出力パルス波形を適する形に出来れば、高次高調波発生などへの応用が期待できる。

図1 出力パルスの自己相関波形とスペクトル

White-light continuum generation for femtosecond time-resolved spectroscopy

名倉 千裕、河野弘幸*、須田亮*、小原實、○緑川克美* (理化学研究所、慶應義塾大学)

Chihiro Nagura, Hiroyuki Kawano*, Akira Suda*, Minoru Obara, ○Katsumi Midorikawa* (RIKEN, Keio Univ.)

はじめに

フェムト秒パルスを透明媒質に集光して得られる白色光は、フェムト秒時間分解分光における広帯域プローブ光として非常に有用である。紫外域の白色光は、ワイドバンドギャップ半導体や誘電体におけるキャリアのダイナミクスの観測等に用いられている。しかし周波数の時間分散のため、分散補正を行わない場合、時間分解能は強く制限される。より高い時間分解能で測定を行うには、白色光の時間分解周波数特性を調べる必要がある。我々は70 fsのチタンサファイアレーザを用い、液体、固体中で発生する白色光の特性を調べた。1 ω 、2 ω 、3 ω を用い、様々な媒質に集光することによって200 nmから近赤外までの白色光を得た。カーシャッター法を用いた白色光の時間分解周波数特性の測定についても行った。

実験方法および結果

Ti:sapphireレーザ(中心波長785 nm、1 mJ、70 fs)を第二高調波および第三高調波に波長変換し、それぞれを液体、固体に集光しそのスペクトルを観測した。レーザパルスの波長が長いほど、また媒質が広いバンドギャップを有する程、発生する白色光のスペクトルは広がった。これは、多光子吸収や、それともなう自由電子の発生が、実効的な相互作用強度を制限しているためである。白色光の発生には、励起レーザの光子エネルギーの3倍以上のバンドギャップを持った透明媒質が必要と言われている[1]が、2 ω 、3 ω を用いても同様であることが確認できた。

偏光子を用い直線偏光させた2 ω で発生させた白色光を、同様な偏光子を用いて消光比を測ったところ、元の偏光度は保たれていた。この白色光をカーシャッター法により時間分解しそのスペクトルを測定した。ポンプ光には1 ω を用いた。図1に水(媒質長1 cm)を用いた場合の各波長成分の相互相関を示す。白色光は分散の影響で広がっていたが、補正により各波長領域で300 fsの分解能が得られることが分かった。このシステムは、深紫外から赤外までのフェムト秒時間分解分光への応用が可能である。

[1] A. Brodeur and S. L. Chin, Phys. Rev. Lett. 80, 4406 (1998)

図1 各波長成分の群遅延

物質に高強度の光を照射すると、異なるエネルギー準位間で結合が起こり、それまで物質が本来持っていた特性とは異なる性質を示すようになる。このような量子干渉効果を用いると、光の吸収・放出などの性質を光電場により制御することができるようになる。これを利用して、反転分布のないレーザーや電磁波誘起透明化(EIT)などの応用が考えられてきた。しかし、このような現象を起こすには位相緩和時間よりも速い励起が必要となるため、これまで極低温の狭帯域材料が用いられてきた。これに対して、パルスエネルギーの大きい広帯域光を励起に用いると、数10THzのラビ周波数で吸収放出を誘導できるため、フェムト秒位相緩和に打ち勝つコヒーレントな分極を誘起することができる。このような励起を行うことにより、常温の超広帯域・超高速材料についても、量子干渉効果を起こすことができるようになる。

紫外から赤外域で GW/nm のスペクトル強度を持つフェムト秒白色光を 2 ビーム完全同軸配置で用いて試料を励起し、照射後の飽和スペクトルを第 3 のプローブビームで観測した。図 1 は励起光 2 ビーム間の位相変化に対する色素 (Rh6G)

の基底状態吸収の変化である。低光強度では、吸収周波数と位相緩和時間に相当する単純な減衰振動であるが、光強度を増加させるにつれてビートが現れ $t=0$ よりも 3 サイクル程度後に大きな吸収飽和が観測されている。これは異なる下準位を持つ吸収放出の干渉により起こったものである。

参考文献: H. Nishioka, H. Koutaka, and K. Ueda: "Quantum interference effect in a fs-dephasing medium", Postdeadline paper IPD2-10, International Quantum Electronics Conference(IQEC2000), Nice France, September 14, 2000.

図 1 励起ビーム間の位相変化(時間遅延)に対する吸収の変化。ラビ周波数は $\omega_R/2\pi=30\text{THz}$