

氏 名 三宅 伸一郎

学位(専攻分野) 博士(理学)

学位記番号 総研大甲第 1574 号

学位授与の日付 平成25年3月22日

学位授与の要件 物理科学研究科 構造分子科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 新規高輝度狭帯域レーザーによるコヒーレント分布操作

論文審査委員 主 査 教授 大森 賢治
教授 大島 康裕
准教授 藤 貴夫
准教授 平等 拓範
准教授 金森 英人 東京工業大学

物質と光のコヒーレントな相互作用は、状態分布の移動と反転、または複数準位間のコヒーレントな結合を可能とする。このような相互作用を利用する方法は、 π パルス法、および断熱透過法の一つである高速断熱透過 (RAP)、誘導ラマン断熱透過 (STIRAP) などが広く知られている。これらのいわゆるコヒーレント分布移動法は、状態分布を始状態から終状態へ完全に移動する強力な方法である。しかし、上記の従来用いられてきた手法では以下に述べるようなさまざまな制約があった。つまり、超短パルスを利用した場合では周波数帯域の広さから単一の状態を選別できない点、CW光源では電界強度の低さにより非線形光学効果が小さい点、また π パルス法、RAPでは注目する遷移に共鳴する波長の光源を必要とする点、STIRAPでは中間状態の緩和が遅くなければならない点、が挙げられる。本論文では、上記の制約を受けない手法と期待されているチャープ断熱ラマン透過 (CARP) の実現化について検討を行った。CARPは断熱透過法の一形態であるが、相互作用としては非共鳴の誘導ラマン過程を用いる。分子間振動や回転といった低周波数の遷移を対象とする場合、直接遷移を用いた過程ではマイクロ波、ミリ波、テラヘルツ、遠/中赤外線といった光源を対象ごとに準備しなければならないのに対し、誘導ラマン過程は入射する二つの光波の搬送波の差が注目する遷移のエネルギー差となるため、搬送波が数百THzに位置する光波領域であれば対象の遷移エネルギーの制約をうけない。さらにCARPの断熱パラメーターはパルス中での周波数変化であるため、レーザーの強度ゆらぎや光強度の空間的不均一性による分布移動効率の変動が生じにくいという利点を持っている。出願者は、CARPを実現するため、近年急速に発達している Yb 添加ファイバーと光変調技術に着目し、周波数チャープしたナノ秒光パラメトリック増幅 (OPA) 光源の開発を行った。以下に本論文の概要を示す。

本論文は六章からなる。第一章は、本論文の序論であり本研究の目的と背景を述べる。狭帯域パルス光源開発の経緯とファイバーレーザーの特徴および断熱透過法の現状を述べる。

第二章では、CARPの理論と実現化についての検討、および光源に要求される特性と具体的な構成について述べる。気相中の分子の振動や回転のエネルギーは数~数千 cm^{-1} 程度であり、簡単な分子であってもその回転構造を分解するためには、1 GHz以下の周波数分解能を持った光が必要とされる。このような光パルスは、フーリエ変換の関係から数 ns 以上の時間幅のパルスとなる。一方ラマン過程を誘起するためには MV/cm 以上の電界強度が必要となる。よって、CARPの実現には単一の量子状態を選択できる分解能を備え、十分なコヒーレンスを有し、適切に周波数チャープしたパルス光が必要である。一方、ナノ秒のフーリエ極限パルスは帯域の狭さによって、超高速パルスにおいて行われる構造分散および材料分散による周波数チャープは現実的に適用できない。そこでナノ秒フーリエ極限パルスに周波数チャープを加えるために、位相変調とパルス切り出しを組み合わせた方法を提案した。CARPは相互作用としては誘導ラマンに分類されるため、ポンプ光とストークス光の二つの波長が要求される。一台の OPA から得られるシグナル光とアイドラー光をそれぞれポンプ光とストークス光として用いる方法を提案した。

第三章では、前章で提案したナノ秒チャープ OPA 光源の製作およびパルス特性の測定について述べる。シード光源である単一縦モード外部共振器半導体レーザーの製作、CWファイバー増幅器の製作、シード光のパルス切り出しと位相変調器による周波数変調系の構築、位相変調したシード光パルス用の第2のファイバー増幅器の製作、Nd:YAGレーザー第二高調波励起光による OPA の製作、増幅されたパルスの周波数チャープを測定するための光ヘテロダイン検出の構築、についてそれぞれ詳述する。単一縦モード外部共振器半導体レーザーは < 1 MHz の線幅、< 10 MHz の波長ステップで > 50 GHz のモードホップフリー波長掃引が可能であった。ファイバー増幅器によるパルス増幅では 20 ns、4 μJ の光出力が位相変調を乱すことなく得られた。光ヘテロダイン検出では 700 MHz の帯域の変調を 5 MHz の分解能で測定することが可能であった。

第四章、製作したナノ秒チャープ OPA 光源の特性について述べる。単一縦モード外部共振器

半導体レーザーおよびファイバー増幅器の周波数安定性および掃引特性、光ヘテロダイン検出したナノ秒パルス中の周波数変化の測定結果について詳述する。位相変調を加えない場合の OPA 出力パルスは、8 ns のパルス幅のフーリエ極限パルスに対応する 55 MHz にほぼ近い 70 MHz の周波数帯域幅であった。位相変調を加えた OPA 出力では、理論的に予測されるとおりの 600 MHz の周波数帯域を持ったアップおよびダウンチャープが実現された。シグナル光とアイドラー光の出力エネルギーはおのおの 20 mJ/pulse であった。

第五章、ナノ秒チャープ OPA 光源と断熱透過法の将来展望および様々な応用について考察する。シード光の波長可変範囲は、0~1000 cm^{-1} の波数領域のラマン遷移についての CARP を可能とするものであり、< 100 MHz の周波数分解能は回転構造を十分に分離できる値であった。さらに 40 mJ のパルスエネルギーは OPA 出力を更に波長変換することが可能であることを意味し、CARP すなわち非共鳴ラマンのみならず可視・紫外領域の断熱透過法、および飽和分光法や多光子吸収などの非線形分光法への適用が可能と期待される。また光ヘテロダイン検出では測定できないが、位相変調器の変調帯域は DC-40 GHz に渡り、位相変調した光源による新規コヒーレント分光法の可能性も議論する。

第六章、結論として本研究で得られた結果についてまとめる。

物質と光のコヒーレントな相互作用を利用すると、状態分布を始状態から終状態へ完全に移動することが可能であり、例えば、最安定構造に局在したゼロ点振動準位から準安定な構造に大きな存在分布を持つ量子状態への高効率な分布移動として、量子状態選択的異性化が達成できると期待される。このようなコヒーレント分布移動を実現する方法としては、 π -パルス法や断熱透過法などが広く知られている。これら従来の方法には、双極子遷移と共鳴する波長を発振する光源を必要とする等の制約があった。本論文では、上記の制約を受けないと期待されているチャープ断熱ラマン透過 (CARP) の実現化について検討を行った。CARPは断熱透過法の一形態であるが、相互作用としては非共鳴の誘導ラマン過程を用いるために、光波領域の電磁波を利用してマイクロ波～赤外領域の遷移について状態分布を実現できる。さらにレーザーの強度ゆらぎや光強度の空間的不均一性による分布移動効率の変動が生じにくいという利点を持っている。出願者は、CARPを実現するため、近年急速に発達しているYb添加ファイバーと光変調技術に着目し、周波数チャープしたナノ秒光パラメトリック増幅(OPA)光源の開発を行った。以下に本論文の概要を示す。

本論文は六章からなる。第一章は序論であり、研究の背景である狭帯域パルス光源開発の経緯、ファイバーレーザーの特徴、および断熱透過法の現状が概説され、本研究の目的が述べられている。

第二章では、CARPの理論と実現化についての検討、および光源に要求される特性と具体的な構成について述べられている。CARPの実現には単一の量子状態を選択できる分解能を備え、十分なコヒーレンスを有し、適切に周波数チャープしたパルス光が必要である。一方、ナノ秒のフーリエ極限パルスは帯域の狭さによって、超高速パルスにおいて行われる構造分散および材料分散による周波数チャープは適用できない。そこで申請者は、ナノ秒フーリエ極限パルスに周波数チャープを加えるために、位相変調とパルス切り出しを組み合わせるといった新たな方法を提案している。

第三章では、前章で提案したナノ秒チャープ OPA 光源の製作およびパルス特性の測定について述べられている。個別のモジュールを組み合わせることによって全光源システムを構成する設計指針を採用し、モジュールごとに要求性能を実現するように設計・製作を行っている。光学通信用に開発された光位相変調器を周波数チャープの実現に活用していること、ファイバー増幅器を2段に結合することにより OPA の安定動作に十分な光増幅率を実現していること等、様々な工夫がなされている。

第四章では、製作したナノ秒チャープ OPA 光源の特性が述べられている。位相変調を加えない場合はほぼフーリエ極限パルスとなり、位相変調を加えた OPA 出力では、理論的に予測されるとおりの 600 MHz の周波数帯域を持ったアップおよびダウンチャープが実現されている。また、出力エネルギーは 40 mJ/pulse であり、CARP が十分実現できる値となっている。

第五章では、ナノ秒チャープ OPA 光源と断熱透過法の将来展望および様々な応用について考察されている。本研究で製作したシステムは、 $0\sim 1000\text{ cm}^{-1}$ の波数領域のラマン遷移についての CARP を可能とするものであり、回転構造を十分に分離できる周波数分解能を有する。さらにパルス出力は OPA 出力を更に波長変換するに十分なレベルであり、可視・紫外領域の断熱透過法、および飽和分光法や多光子吸収などの非線形分光法への適用が可能と期待される。

第六章、結論として本研究で得られた結果についてまとめる。

以上のように、本論文は、物質と光のコヒーレント相互作用を利用した状態分布操作について考察し、周波数チャープナノ秒パルス光源を新規に開発したものであり、分子量子状態の観測・制御の新展開へと繋がるものとして高く評価できる。本論文の成果の一部は査読付国際学術誌に公表されている。以上より、本論文は博士論文に値するものであると審査員全員一致で結論した。