

超高速コヒーレント制御のための
フェムト秒レーザ増幅パルスの
高精度波形整形に関する研究

平成 15 年度

田辺 孝純

本論文の構成と内容

レーザー光はコヒーレントという性質を持つために、美しいのみばかりでなく、レーザー光を単純に ON/OFF に使用するのみではなく波動として用いた場合に、最大の受益を我々にもたらす。レーザー光を多様な応用に用いるためにこれまでに様々な形でレーザー装置の研究開発が進んできた。その中で、フェムト秒パルスレーザーは極限時間域性、高強度性、広帯域性を兼ね備える高機能な光源である。特にその広帯域性に着目すると、フェムト秒レーザーパルスは光パルスに含まれる全ての波長の位相が揃った、広い帯域にわたってコヒーレンスが保たれている光源である。

そこで、このフェムト秒レーザーパルスの波動としての性質を大いに利用し、その光電界を適切にデザインする。整形光電場の光のコヒーレンスを物質に転写すると、物質の励起状態を通常では起きえない状態へ制御することができる。こうした物質の超高速ダイナミクスの制御は、物質の分極を介した超高速光・光制御、物質の励起偏在化を利用した量子工学応用、光制御による分子の化学反応制御等の様々な工学的応用にとって重要である。

光と物質の相互作用を考えると、ターゲット物質の相互作用ハミルトニアンが記述される場合には、量子化学計算を用いると最適励起波形が求められる。しかし計算された波形は複雑な構造を持つため、実験室でその波形を再現するためには振幅位相を高精度・高自由度に操作する必要がある。一方、相互作用ハミルトニアンが記述できない場合には、実験室内で光物質相互作用の結果を指標とした閉ループ制御系を構築して最適励起パルスを得る必要がある。しかしこの場合も、波形整形システム自体の自由度及び精度が、指標の最適化の性能に影響を与える。

そこで本研究では、フェムト秒レーザーパルス増幅器の前に波形整形器を導入し、増幅器からの出力光パルスの高精度な振幅位相制御を実現した。

第 1 章では、従来の研究を概説し本研究の背景を述べ、本研究の目的を各章の構成と共に示した。

第 2 章では、波形整形器の特性を、時間空間結合効果を中心に詳細に議論した。本章では時間空間結合効果を初めて直接的に測定し、その効果が光物質相互作用に大きな影響を与えることを実験的に明らかにした。

第 3 章では、第 5 章、第 6 章で用いる適応制御アルゴリズムを本システムのモデルと共に示した。信号の SN に注意する必要があるものの、焼き鈍しアルゴリズムが高精度波形整形システムに用いると良い性能を発揮する事を計算によって明らかにした。

第 4 章では、波形整形器をフェムト秒レーザー増幅器の前に導入すると時間空間結合効果が緩和するなどの、前置き型システムの利点を示し、オープンループ増幅器前置き型波形整形実験をおこなった。その結果は閉ループ制御系を構築する必要性を示している。

第 5 章では、増幅器前置き型波形整形システムを用いて一種のスペクトルグラムである周波数分解光ゲート画像を指標とした閉ループ制御系を構築した。本研究の特色はフェムト秒レーザーパルスの振幅と位相の両方を最適化の指標として制御した点であり、このことによってターゲットとして設定可能な波形の選択性が大幅に向上した。

第 6 章では、波形評価法に周波数域干渉法を用いて振幅位相の両者の測定精度を向上させた。本測定法を用いると長いパルスもその振幅位相を正確に測定することが可能となるので、パルス幅としては 1 ps を超え、 ~ 100 fs の細かさで包絡線が変化するパルスの整形が可能になった。第 5 章で示した振幅位相整形の操作性に加え、本章では波形整形システムの精度の向上が図られた。

第 7 章では、光プロセスと超高速コヒーレント制御実験を示した。高精度な波形整形システムを用いると、光の特定のパラメータのみを独立に正確に変化させることが可能である。こうした性能が物質の内部状態を簡潔にモデル化するために重要であることを、エタノールの光解離実験及び色素の蛍光強度最適化実験を例として示した。

第 8 章に、各章で得られた知見をまとめ、本研究の総括をおこなった。

本研究で得られたシステムが、超高速コヒーレント科学において物理解明に重要な実験手法を提供することを示した。また本研究では、超高速コヒーレント制御で工学的には最も興味深い、理論的な波形を実験室内で再現するというチャレンジングな課題に取り組み、高強度光パルスの振幅位相制御の実現、波形整形精度の向上など、重要な基本性能の向上を達成した。

目次

第 1 章	序論	1
1.1	はじめに	1
1.2	フェムト秒パルスレーザーの発展とその特色	2
1.2.1	パルスレーザー装置の発展	2
1.2.2	Ti:Sapphire 固体レーザーによるフェムト秒レーザーパルス発生	3
1.2.3	チャープパルス増幅によるフェムト秒レーザー増幅	5
1.3	フェムト秒パルスレーザーの波形整形技術と測定技術	6
1.3.1	フェムト秒パルスレーザー波形整形技術の歴史と研究動向	6
1.3.2	フェムト秒光パルス波形測定	13
1.4	フェムト秒パルスレーザーのコヒーレント制御応用	16
1.4.1	原子・分子のコヒーレント制御	16
1.5	本研究の目的及び意義	22
1.5.1	本研究の背景	22
1.5.2	本研究の目的	24
1.5.3	本論文の構成	25
	参考文献	27
第 2 章	波形整形器とその時間空間結合作用	44
2.1	はじめに	44
2.2	4f 型波形整形器	45
2.2.1	時間特性	46
2.2.2	時間空間特性	50
2.2.3	時間空間特性の測定	57
2.2.4	時間空間結合の影響	68
2.2.5	本節のまとめ	79
2.3	AOPDF (Acoustic optic phase dispersion filter)	80
2.3.1	原理	80

2.3.2	フィルター特性	81
2.3.3	AOPDF のデバイス特性	82
2.3.4	本節のまとめ	85
2.4	$4f$ 型波形整形器及び AOPDF 波形整形器のパフォーマンス比較	86
2.5	本章のまとめ	87
	参考文献	88
第 3 章	適応制御波形整形	91
3.1	はじめに	91
3.2	適応制御を用いたフェムト秒レーザパルスの波形整形	92
3.3	遺伝的アルゴリズムによる波形整形	93
3.3.1	アルゴリズム	93
3.3.2	計算条件	95
3.3.3	計算結果	95
3.4	焼きなまし法による波形整形	98
3.4.1	アルゴリズム	98
3.4.2	計算条件	100
3.4.3	計算結果	100
3.5	アルゴリズムの採択	102
3.6	前置き型波形整形適応制御のアイデア	102
3.7	本章のまとめ	103
	参考文献	104
第 4 章	増幅器前置き型波形整形	105
4.1	はじめに	105
4.2	原理	105
4.2.1	時間空間結合効果の緩和	105
4.2.2	パワー取り出し効率の向上・最大取り出しパワーの向上	107
4.3	チャープパルス再生増幅器	108
4.3.1	セットアップ	108
4.3.2	パルスストレッチャ	109
4.3.3	再生増幅器	110
4.3.4	パルスコンプレッサ	110
4.4	増幅器前置き型波形整形実験	111
4.4.1	実験セットアップ	111
4.4.2	LC-SLM を用いた位相変調による増幅器前置き型波形整形	113

4.4.3	AOPDF を用いた振幅位相変調による増幅器前置き型波形整形	117
4.5	本章のまとめ	120
	参考文献	122
第 5 章	高精度増幅器前置き型波形整形 (FROG 画像参照適応制御)	125
5.1	はじめに	125
5.2	周波数分解光ゲート法	126
5.2.1	セットアップ	126
5.2.2	波形再構築アルゴリズム	127
5.3	LC-SLM による位相変調のみによる増幅器前置き型最適制御実験	128
5.3.1	位相変調のみによる FROG 画像最適化制御	128
5.3.2	実験セットアップ	129
5.3.3	実験結果および考察	131
5.3.4	本節のまとめ	136
5.4	AOPDF による振幅位相変調による最適制御実験	137
5.4.1	実験セットアップ	137
5.4.2	実験結果及び考察	138
5.4.3	本節のまとめ	146
5.5	本章のまとめ	147
	参考文献	148
第 6 章	高精度増幅器前置き型波形整形 (TADPOLE 参照補正)	150
6.1	はじめに	150
6.2	TADPOLE 測定法	151
6.2.1	セットアップ	151
6.2.2	波形解析手法	152
6.3	LC-SLM を用いた位相補正による閉ループ波形整形システム	152
6.3.1	実験セットアップ・原理	152
6.3.2	実験結果及び考察	154
6.3.3	本節のまとめ	161
6.4	AOPDF を用いた振幅位相補正による閉ループ波形整形システム	163
6.4.1	実験セットアップ・原理	163
6.4.2	実験結果及び考察	164
6.4.3	本節のまとめ	169
6.5	本章のまとめ	170
	参考文献	172

第 7 章	波形整形システムの光プロセス及び超高速コヒーレント制御への応用	173
7.1	はじめに	173
7.2	周波数制御による Si 表面の周期パターン光プロセス応用	174
7.2.1	はじめに	174
7.2.2	原理及び実験セットアップ	174
7.2.3	実験結果	176
7.2.4	本節のまとめ	179
7.3	蛍光色素励起の適応制御	179
7.3.1	はじめに	179
7.3.2	実験セットアップ	180
7.3.3	実験結果及び考察	182
7.3.4	本節のまとめ	189
7.4	エタノール光解離制御実験への応用	190
7.4.1	はじめに	190
7.4.2	線形チャープ変化による系統的光解離制御実験	192
7.4.3	適応制御による光解離最適化実験	195
7.4.4	本節のまとめ	202
7.5	本章のまとめ	203
	参考文献	205
第 8 章	本研究のまとめ	209
8.1	はじめに	209
8.2	各章のまとめ	209
8.2.1	波形整形器とその時間空間結合作用 (第 2 章)	209
8.2.2	適応制御波形整形 (第 3 章)	210
8.2.3	増幅器前置き型波形整形 (第 4 章)	210
8.2.4	FROG 画像参照適応制御波形整形 (第 5 章)	210
8.2.5	TADPOLE 参照補正波形整形 (第 6 章)	211
8.2.6	波形整形システムの光プロセス及び超高速コヒーレント制御への応用 (第 7 章)	211
8.3	総括	212
	謝辞	215

第 1 章

序論

1.1 はじめに

人類の文明の発達は知的活動に支えられてきた。歴史を辿っても、石器の発明に始まり産業革命を経て IT 革命に至るまで、科学技術の発達は我々の生活様式や社会構造を様々な形で変革してきた。近年では、テクノロジーの変革が社会へもたらす影響はより直接的になっている。バイオテクノロジー、情報技術 (Information Technology: IT)、そしてナノテクノロジーはいずれも社会構造を大きく変える力を持っている。こうしたテクノロジーは恒にサイエンスと密着して発達してきた。すでに我々の生活に無くてはならない計算機も半導体固体物理の発展と共に現在の形へと進化してきた。近年の新薬の開発には医学、生物学で得られた最新の知見が大きく貢献しているであろう。このように、テクノロジーの発達の裏側には恒にサイエンスが存在している。

本研究で取り扱う光もまた人類の生活を大きく変革してきた。人類がこのような高度な文明を築くようになった一つの大きな要因は「光」の発見であろう。はじめは、外敵から身を守る道具として、光は火と結びつけられていたであろう。その光を人間はより高度に利用し始めた。光は人間の社会活動の時間を伸ばし、人はそれをさらには情報伝達の道具としてさえ使い始めた。その後、電気の発明に伴い、人工的な光を作り出すことができるようになり、そのころから先人達は経験を体系化して学問として光を理解しようとした。

本研究の基礎をなすレーザー技術を支える学問はマクスウェルによって体系化された電磁気学、シュレディンガーやハイゼンベルグ等によって体系化された量子力学である。これらの学問のおかげで、光は波動としての性質を持つ事が理解され、この性質が今まさに我々の社会に還元する技術として使われ始めている。光通信応用を例にとれば、レーザーを単純な光源として用いる光の ON/OFF で情報を伝送する時代は終わりを向かえつつある。近年の高速な IT 技術の発展は、より大容量な通信を要求し、光通信技術では光のコヒーレンスや波動性を問題にする必要に迫られている。このときに、光を波として扱う電磁気学が重要なツールとなる。更に、その先の技術としては、量子光学に基づいた光通信応用が見えており、光を量子として扱わなくてはいけなくな

るであろう。量子光学が研究室を飛び出し、我々の生活に直結するテクノロジーと融合するのもそう遠くはない。

超高速光技術も、他のテクノロジーもそうであるように様々な物理や高度に専門化された要素技術が複雑に積み重なっている。フェムト秒パルスレーザーは、光のコヒーレンスというレーザー自体の持つ能力に加え、高ピークパワー性や超高速性など他では得られない能力を持っており、理学的にも工学的にも非常に魅力的である。今後必ず我々の生活の一部を支える技術へと成長を遂げるであろう。しかし光の発展で見てきたように、超高速光技術もまた、それを支える要素技術と超高速現象を説明する物理の両方を理解し続けていくことが、今後この技術が継続的に発展するためには必要不可欠である。

本章では、フェムト秒レーザーの制御技術開発と、量子力学を体現するコヒーレント科学という、テクノロジーとサイエンスの両面から超高速光技術を概観する。はじめにフェムト秒パルスレーザーの発達とその特色について述べる。その後、実際にフェムト秒レーザーパルスの発生、制御、増幅、測定という要素技術について述べる。特に本研究での中心技術となるフェムト秒レーザーパルス制御技術に関しては近年の研究動向を含めて概観する。最後にレーザーのコヒーレンスの情報を物質に転写するコヒーレント制御を紹介し、フェムト秒レーザーパルス制御技術との関連を述べる。

1.2 フェムト秒パルスレーザーの発展とその特色

1.2.1 パルスレーザー装置の発展

誘導放出によるマイクロ波増幅を実現するメーザを、波長を短くして近赤外 (Near Infrared Radiation: NIR) 領域で誘導放出を行なう努力を続けていた C. Townes と A. Schawlow はファブリペロー型干渉計で光メーザの単一モード発振が可能であることを 1958 年に提案した¹⁾。C. Townes は 1964 年にコヒーレント光発生の貢献で、A. Schawlow は 1981 年にレーザー分光の貢献でそれぞれノーベル物理学賞を受賞している。最初のレーザー装置は 1960 年に T. Maiman によってルビーレーザーで構築された²⁾。1 cm のルビー結晶の両端を銀コーティングして共振器を構成し、結晶をフラッシュランプを用いて励起した。このレーザーは、発振閾値が高いため、尖塔値が 1 kW から 100 MW の 10^{-7} s 程度の時間幅を有する多数のパルスが乱雑に集まったスパイク発振であった。レーザーの短パルス化はパルス発生法に単純な変調方式を用いる代わりに、Q スイッチ技術が導入されて以降、急激に加速した。1964 年にはすでに、0.7 J、30 ns のパルスが、ポッケルスセルを用いて得られている³⁾。

その後、モード同期法の導入によって、ナノ秒 (10^{-9} s) からピコ秒 (10^{-12} s)、さらにはフェムト秒 (10^{-15} s) オーダでのパルスレーザー発振が可能となった。モード同期技術の中でもフェムト秒パルスレーザーで今日特に重要な受動モード同期技術は、過飽和吸収有機色素を用いてすでに 1965 年にルビーレーザーを用いて実現されている⁴⁾。1966 年には Nd^{3+} -doped glass レーザーで受動同期技術を用いて、最短パルス幅 3.7×10^{-13} s が得られたと見積もられ⁵⁾、超短パルスレーザー発

生はサブピコ秒領域へと突入していくことになる。

フェムト秒パルスレーザの実現にはモード同期に並ぶもう一つの重要な要素がある。それは広帯域な利得媒質の実現である。フーリエ変換の関係より、

$$\Delta t \cdot \Delta f \geq K \quad (1.1)$$

の関係が成り立つ。ただし、 Δt はパルス幅、 Δf は周波数幅であり、 K はパルスの形状によって決まる定数である。初期のフェムト秒パルスレーザは色素レーザによって実現された。それは Eq. (1.1) によれば短パルス発生には広帯域なスペクトルが必要であり、レーザ色素媒質のゲイン帯域がフェムト秒パルスを発生する能力を持っているからである。

連続 (Continuous wave: CW) 光励起による CW 受動モード同期法と色素レーザの発達によって、1972 年には Rhodamine 6G レーザ色素で 1.5 ps のパルス発振が得られた⁶⁾。1 ps を切るパルスが得られるようになったのはそれからわずか 2 年後の 1974 年であり、相関幅 700 fs、繰り返し 100 kHz、ピークパワー数 kW のパルスが C. Shank と E. Ippen によって得られた⁷⁾。その後、衝突パルスモード同期 (Colliding pulse mode-locking: CPM) 法によって 100 fs を切るようなパルスが得られるようになり⁸⁾、1984 年には 27 fs のパルスが直接共振器から得られるようになった⁹⁾。

1.2.2 Ti:Sapphire 固体レーザによるフェムト秒レーザパルス発生

その後、広い蛍光及び吸収スペクトルを有する、サファイア (Al_2O_3) に 3 価のチタンイオン (Ti^{3+}) をドーブした、Ti:Sapphire ($\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$) 結晶はその光学的・熱的特性より広く超短パルスレーザ用媒質として用いられるようになった。 ${}^2\text{E} \rightarrow {}^2\text{T}_2$ 遷移は広帯域な蛍光スペクトルを示す¹⁰⁾。色素レーザは、モード同期が不安定であり、色素が劣化しやすく、また取り扱いが煩雑である等の理由からフェムト秒パルスレーザ発生装置は Ti:Sapphire レーザをはじめとする固体レーザに取って代わられたわけである。

Ti:Sapphire 結晶のレーザ特性は P. Moulton によって詳細に調査され、パルスレーザ装置が構築された¹⁰⁾。音響光 (Acoustic Optic: AO) 強制モード同期技術と副共振器によるフィードバックを用いたモード同期技術によって、1989 年には 800 fs のパルス幅が得られ Ti:Sapphire 共振器としてははじめて 1 ps を切った¹¹⁾。

Ti:Sapphire レーザが今日のフェムト秒レーザの主流となったのは、CW モード同期を用いることで安定して数 10 fs のパルスが得られるようになったからである。3 次の光学非線形効果である光カー効果によるレンズ作用を利用した光カーレンズモード同期法は今日最も広く用いられている。当初は Coupled-cavity mode locking として U. Keller 等によって光カー媒質として量子井戸反射鏡を用いて実現された¹²⁾。その後直ちに D. Spence 等によって Ti:Sapphire 結晶自体を光カー媒質とした光カーレンズモード同期が実現された¹³⁾。その報告では共振器内のパルスの分散補償にプリズム対を用いることで Ti:Sapphire レーザで 100 fs を切る光パルスを得た。非常に

簡便で安定であることから，光カーレンズモード同期法はフェムト秒光パルス発生今日の主流となっている¹⁴⁾．D. Spence 等の構成ではアウトプットカップラ直前にスリットは用いてはいないものの，その共振器構成は現在のフェムト秒レーザー共振器の原型となっている．

光カーレンズモード同期法による Ti:Sapphire レーザシステムの構成を Fig. 1.1 に示す．レー

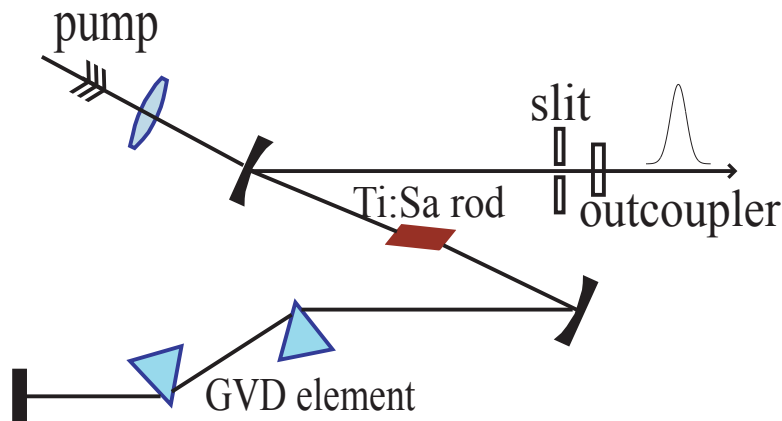


Fig.1.1 Schematic of a typical Ti:Sapphire femtosecond pulse laser system. The optical Kerr effect at the crystal causes the beam to self-focus. A slit is placed near the output coupler. Consequently, the amount of the light, propagating through the slit, becomes sensitive to the self-focusing. In another word, the pulse component where the peak power is high can propagate, on contrary to the low power components, which are filtered out at the slit. A prism pair is placed to compensate the positive GVD of the ultrashort laser pulse.

ザ媒質中で光は光カーレンズ効果の影響を受けるので¹⁵⁾ビームが空間的に自己収束する．自己収束は光カーレンズ効果が強く起きるほど大きくなる．パルスの時間波形を考慮した際にはパルスのピーク付近でより強い光カー効果を受ける．スリットの透過量は光の強度に依存するので過飽和吸収体によるモード同期と同様に，パルスの時間中心付近でより透過光が大きくなりモード同期が実現する．結晶中をパルスが伝搬すると分散効果によって時間的にパルス幅が伸張される．Ti:Sapphire レーザの発振波長の 800 nm 付近では正の分散を受けるので，この正分散を補償しパルスの時間幅を短く保つために群速度分散 (Group velocity dispersion: GVD) 素子としてプリズム対が共振器内に配置されている．

近年では光カーレンズモード同期法による Ti:Sapphire フェムト秒レーザーシステムで，高次分散補償にダブルチャープミラーを用いて，6.5 fs の光パルスが 1997 年に得られている¹⁶⁾．また BK7 ガラス板を非線形媒質として共振器内に挿入することによってスペクトルを広げ 5 fs の光パルスが¹⁷⁾直接共振器から得られている．さらには共振器外部に光ファイバーを用いてスペクトルを広げ，その後分散補正する光パルス圧縮技術と組合せることにより，パルス幅 4.5 fs の光パルスの発生が報告されている^{18, 19)}．

こうした共振器からの出力は一般に数 10 MHz の繰り返し周波数を持つ，100pJ ~ nJ オーダの光強度のパルスであるが，増幅技術の進歩により，光増幅を組み合わせることによって，非線形光学効果を積極的に用いた超短光パルス発生システムを構築する事が可能になる．2002 年には，非コリニア配置の OPA (Non-collinear optical parametric amplifier: NOPA) とディフォーマブルミラーを用いた分散補償を行なうことによって，サブ 4 fs の幅の光パルスを可視光領域で得た報告や^{20, 21)}，アルゴンを満たした中空ファイバーを用いてスペクトルを広げた後に，4f 型波形整形器を用いて高次分散まで補正し最短パルス 3.4 fs を得た報告が行なわれている²²⁾．こうした報告ではいずれも増幅したパルスが用いられている．

1.2.3 チャープパルス増幅によるフェムト秒レーザー増幅

このようにフェムト秒レーザーのシステムを高機能化するためや，様々な応用に用いるためには，増幅技術は欠かせない．しかし，フェムト秒レーザーをそのまま増幅するには限界があり，パルスのピーク強度が GW/cm^2 を超えるあたりから結晶や光学素子の破壊を引き起こすようになる．そこで，空間的あるいは時間的にレーザーパルスを伸張する．空間的にビーム径を広げた場合²³⁾，レーザー装置，特にゲイン媒質のサイズが大きくなってしまふ．そこで，光パルスを時間的に伸張し，増幅後に再びパルスを時間幅を圧縮するシステムが考案された．パルスの時間的な伸張と圧縮には分散素子を用いる．一般にパルス伸張器では正の 2 次分散を，パルス圧縮器では逆に負の 2 次分散を加える．このチャープパルス増幅 (Chirped Pulse Amplification: CPA) システム²⁴⁻³⁰⁾の登場によりフェムト秒パルスの増幅器技術は広く普及した．CPA の概念図を Fig. 1.2 に示す．

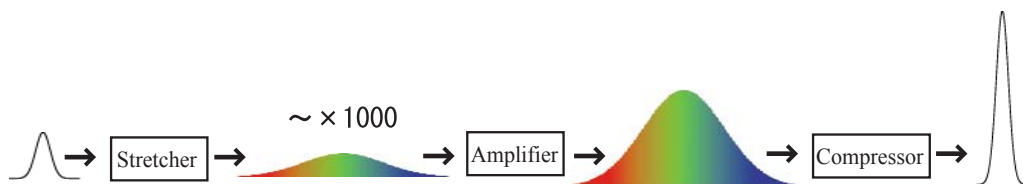


Fig.1.2 A diagram of a chirped pulse amplification system. A pulse is temporally stretched before amplification to reduce its peak intensity. It is because a high peak power pulse can optical damage the components in the amplifier system. Usually, positive GVD is added to temporary stretch the pulse, and negative GVD is added at the compressor.

高強度短パルスレーザーの開発は進んできており，スラブ型 Nd:Glass レーザ増幅器では，1 PW の光出力が実現している³¹⁾．また全固体 Ti:Sapphire レーザシステムにおいては，1991 年に 10 Hz 動作で 125 fs のパルス幅で 0.5 TW のパワーが得られるレーザーシステムが報告された³²⁾ のをはじめ，1997 年には S. Backus 等が 1 kHz の繰り返し，パルス幅 25 fs で，0.2 TW のピー

ク強度を達成して³³⁾，これが高繰り返し高パワーレーザの開発の先鞭となった．例えば 1 TW のレーザ光を直径 10 μm まで集光するとその光電場は 3×10^{10} V/cm に達し，これは水素原子内のクーロン電場の約 10 倍に相当する³⁴⁻³⁶⁾．

1.3 フェムト秒パルスレーザの波形整形技術と測定技術

フェムト秒レーザパルスはその超高速・広帯域・高強度という性質から，様々な目的の超高速コヒーレント制御に用いられるようになってきた．ここでは，コヒーレント制御におけるキーテクノロジーとなったフェムト秒レーザパルスの波形整形技術の発達とその研究動向について述べる．同時にフェムト秒レーザの高精度の整形にはその測定技術の確立も不可欠な要素であるという理由より，測定技術についても概観する．

1.3.1 フェムト秒パルスレーザ波形整形技術の歴史と研究動向

波形整形技術と超高速コヒーレント制御

すでに 1960 年代後半においてピコ秒パルスを圧縮する技術は報告されており³⁷⁾，これも一つの波形整形の例ではあるが，実際にはより機能的に複素電界の位相及び振幅を制御するという意味の波形整形技術は後述する周波数並列制御による波形整形の登場を待つ必要があった．

フェムト秒レーザパルスの波形整形技術はコヒーレント制御と共に発達してきた．フェムト秒レーザはその高速性と広帯域性から，ポンププローブ計測に用いることによって物質の非平衡超高速ダイナミクスを計測することができる．フェムト秒レーザパルスをポンププローブに用いて超高速ダイナミクスを計測することはフェムト秒レーザが色素レーザで実現されていた初期の頃から期待されてきた．その後ポンププローブを更に発展させると超高速コヒーレント過程を制御できることが示され，さらにプローブパルスにチャープを加えることによって物質の励起の状態が変化することが報告された．後述する最適化制御理論 (Optimal Control Theory: OCT) によって，パルスの位相及び強度をより複雑に制御すると物質の量子状態を任意に制御できることが示され，それに伴って高度に波形を整形する技術が求められるようになってきた．

周波数並列制御によるフェムト秒レーザ波形整形

フェムト秒パルスレーザはその極限時間域性のため直接時間域で制御することは簡単ではない．フェムト秒パルス制御技術の中で，現在最も広く用いられている手法は周波数並列制御法である．C. Froely 等は 30 ps の入力パルスを整形するために Fig. 1.3 に示す周波数並列制御のセットアップを提案した³⁸⁾．2 対のグレーティングとレンズを用いることによって，周波数領域でフィルタリングを加えることによって，光パルスに変調を加える構成を取っているために高速応答を示す素子を必要としない．周波数面には振幅や位相を変調するために空間アドレスによる空間光変調器 (Spatial Light Modulator: SLM) と呼ばれるマスクを配置する．

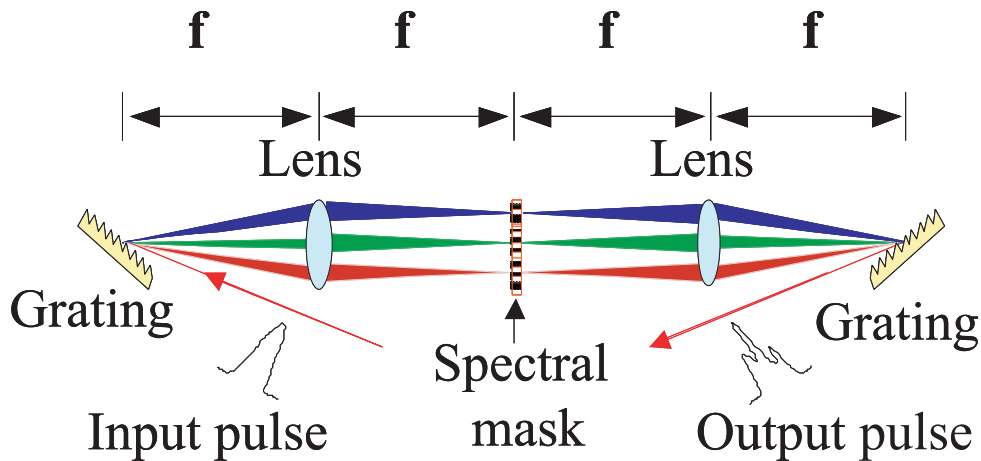


Fig.1.3 Schematic of a Fourier synthesis pulse shaper. Input pulse is spatially dispersed into spectral components and forms a temporal Fourier transformed spectral image on the back focal plane of the first lens. The second lens and grating recombine the light into time domain. A spectral mask is placed to modulate the laser pulses with spectral filtering. LC-SLM is commonly used as a computer controlled spectral mask.

この周波数並列制御法を用いたフェムト秒領域の波形整形は 1988 年に A. Weiner 等がはじめて行なった³⁹⁻⁴¹⁾。最初の報告では fused silica 板を用いた固定マスクが使われた。固定マスクはマイクロリソグラフ技術を用いて振幅位相マスクが設計された。その後 1990 年には今日最も広く用いられているプログラブルな液晶空間光変調器 (Liquid Crystal Spatial Light Modulator: LC-SLM)^{42, 43)}を用いた波形整形器が報告されている⁴⁴⁾。1995 年には振幅と位相の両方を変調可能にした LC-SLM を用いてより正確に波形を整形することが M. Wefers と K. Nelson によって試みられた⁴⁵⁾。

また SLM にフォトリフラクティブ素子によるホログラムを利用したもの⁴⁶⁾や音響光学変調器 (Acoustic-Optical Modulator: AOM) を用いたもの^{47, 48)}等が報告されている。また, 2001 年には 512 ピクセルの位相変調 LC-SLM を用いて, 20 fs への光パルス圧縮が実現されている⁴⁹⁾。近年では 640 や 648 ピクセルなど高ピクセル数を持つ位相変調器や^{50, 51)}, PAL-SLM (Parallel-Aligned Nematic Liquid Crystal Phase-Only SLM) と呼ばれる光-光制御による SLM が報告されている⁵²⁾。

位相変調のみによるスペクトルフィルタリング波形整形

スペクトルフィルタリングで振幅変調を行なう場合にはスペクトルを振幅フィルターするので波形整形器の透過効率が整形波形によっては非常に低下するので, スペクトル位相のみを変調する波形整形が用いられることが多い。

位相のみの変調による波形整形は光の効率という面では有利であるが，目的とする複素光電界を直接得ることはできない．複素電界の時間波形を $e(t)$ ，スペクトル波形を $E(\omega)$ で表し，包絡線近似を用いて表すと，

$$e(t) = a(t) \exp \{-i\phi(t)\} \quad (1.2)$$

$$E(\omega) = A(\omega) \exp \{-i\Phi(\omega)\} \quad (1.3)$$

となる．さらに，時間と周波数の関係を規定するフーリエ逆変換の式

$$e(t) = -\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(i\omega t) d\omega \quad (1.4)$$

を与える．ある複素電界時間波形 $e(t)$ は複素電界スペクトル $E(\omega)$ が与えられたときには Eq. (1.4) によって一意に決まるが，フーリエ変換の演算は振幅項 $A(\omega)$ ，位相 $\Phi(\omega)$ に関してそれぞれ線形演算が成り立たないので，スペクトル振幅 $A(\omega)$ とスペクトル位相 $\Phi(\omega)$ の関数のうちどちらか一方がすでに決められている場合，片方のみを任意に変調しても，時間振幅波形 $a(t)$ 又は $\phi(t)$ を一意に得ることはできない．即ちスペクトル位相 $\Phi(\omega)$ のみ変調を加える波形整形の場合では，スペクトル振幅 $A(\omega)$ は波形整形器への入力パルスによって決まっているので，理論的に任意の複素電界 $e(t)$ を設計することは不可能である．しかし，スペクトル位相 $\Phi(\omega)$ のみを変調可能である場合においても逆問題を解くことによって， $\Phi(\omega)$ を適切に設計することが可能であれば，目的とする時間振幅 $a(t)$ の近似解を得られるのではないかという考えに基づき，1993年に A. Weiner 等は焼きなまし法 (Simulated Annealing: SA) と呼ばれる結晶の冷却をモデルにした最適化手法を取り入れた．彼らは，目的とする時間複素電界振幅の近似波形がスペクトル位相変調のみで求まることを理論的に示し，位相マスクの設計手法を与えた．位相変調には $\pm\pi/2$ の2値マスクを仮定している⁵³⁾．1996年には K. Takasago 等がスペクトル位相のみを変調する条件で，時間振幅波形 $a(t)$ のみでなくその位相 $\phi(t)$ をも最適化の指標とした場合のスペクトル位相マスクの設計手法について提案し，拘束条件が厳しいものの限られた範囲内では時間振幅 $a(t)$ 位相 $\phi(t)$ の両者を近似的に得るスペクトル位相マスクが設計可能であることを示し，実際にその波形を波形整形器で生成する実験を行なっている⁵⁴⁻⁵⁶⁾．その後この最適化を実験室内で行なう試みをはじめられた．従来は最適化手法を取り入れた繰り返し計算は計算機上でスペクトル位相のみによる理論的なマスクを設計するために用いられていた．計算によって求めた理論的なスペクトル位相マスクを波形整形器に印加して目的とする波形を得ていた．それに対して，実験室内で整形波形をリアルタイムに測定し，その波形の情報を実験室内繰り返し制御の最適化の指標とすることが試みられた．1997年に波形整形器後に BBO(Beta Barium Borate) 結晶を配置し第二次高調波発生 (Second Harmonic Generation: SHG) 光の強度を指標とすることでパルスの分散を補償する実験が D. Yelin 等や T. Baumert 等のグループによって報告された^{57, 58)}．また，U. Siegner 等は GaAsP の2光子吸収信号を最大化することによってパルスの分散を補償する実験を2002年に報告している⁵⁹⁾．D. Yelin 等はさらに波形の時間域振幅情報を測定するこ

との可能な SHG 相互相関測定をリアルタイムで行い、得られる相関波形がターゲット波形の相関波形と一致するように最適化制御の指標を設定し、整形波形の時間振幅が目的波形と一致するように最適化制御を行なった⁶⁰⁾。SHG 相互相関測定を用いているので、フェムト秒レーザパルスの複素電界の包絡線をターゲットとすることが可能であり、450 fs 間隔のダブルパルス列や矩形波の整形を実現した。

このころから、スペクトル位相を制御可能なフェムト秒レーザ波形整形器は、分散補償とより複雑に振幅位相を設計する波形整形の 2 つの目的に使用されるようになってきた。

一方、CPA の安定性が向上しフェムト秒レーザシステムから高強度な光パルスが簡便に得られるようになり、こうした高強度光パルスは広く用いられるようになってきた。これに伴い、高強度の光物理が盛んに研究されるようになってきた。現在ではパルスエネルギー mJ オーダ、パルス幅数 10 fs、繰り返し動作周波数数 kHz の商用の CPA レーザシステムが手に入る。このような光強度での光物質相互作用においては従来では観測されなかった高次の非線形現象に基づく現象が顕著に観測されるようになり、多くの興味深い実験が報告されるようになった⁶¹⁻⁶⁴⁾。当然、波形整形技術をその光強度に用いる試みが行なわれた。

レーザシステムの分散補償

フーリエ変換の関係を与える Eq. (1.1) の等号が成り立つ場合には、与えられた周波数幅で最短パルス幅が得られる。この条件は各スペクトル成分の位相が全て揃っている時に成り立ち、我々はそれをフーリエ限界パルスと呼ぶ。フェムト秒レーザパルスは多数の波長 (モード) の光の集まりであり、その各々のモードの光の位相がモード同期によって揃っている。光パルスが物質中を伝搬すると、各光波長成分が感じる誘電率が異なるために、異なる位相速度で伝搬する。これを群速度分散といい、特に帯域が広い場合には光パルスが時間的に広がる最も支配的な現象である⁶⁵⁾。また、光パルスが高強度になると自己位相変調 (Self phase modulation: SPM)、誘導ラマン散乱 (Stimulated Raman Scattering: SRS)、四光波混合 (Four Wave Mixing: FWM) 等の非線形光学効果が顕著に現れるようになってくるが、それらの非線形光学効果もまた、パルスの時間波形やスペクトル波形に影響を与える。レーザ共振器からの出力をそのまま用いる場合には、ほぼ理論で示される通りの sech の時間振幅波形をしたフーリエ限界パルスが得られる。空气中を伝搬する場合でも、空気の群速度分散定数や非線型定数はそれほど小さくなく、ほぼ理論通りの波形が得られる。しかし、多くの応用で重要となる光パルス増幅や波長変換システムではシステムに内在する分散や非線形効果が無視できない。こうしたシステムを用いる場合には、これらの波形を変調する効果を補正する必要がある。そのために、スペクトル位相を変調することが可能な波形整形器を用いることができる。しかし、こうした分散や非線形光学効果による波形の変調は正確に記述することが簡単ではない。そこで、適応制御等による閉ループを構築し、増幅器後やファイバー伝送後などのパルスを最適化することによって、レーザシステムの分散補償を実現することが試みられてきた。

分散補償技術が鍵となる分野はモノサイクル光パルス発生のための広帯域光の位相制御である。L. Xi 等は中空ファイバーを用いて広げたスペクトルの位相を揃え、モノサイクルパルスを発生させるために波形整形器を用いている。彼らは当初 128 ピクセルの LC-SLM を用い^{66, 67)}、近年では 648 ピクセルの SLM を用いて、スペクトル位相をフィードバック制御することによって NIR 光をサブ 5 fs まで圧縮している^{51, 68, 69)}。

CPA はストレッチャーとコンプレッサーのグレーティングの配置を正確に設計することによって 3 次の分散まで正確に取り除けるが⁷⁰⁾、増幅媒質中での非線形チャープによる位相の乱れを取り除くことは簡単ではない⁷¹⁾。そこで、波形整形器を用いて CPA の分散補償する試みがなされた。1998 年に A. Efimov と D. Reitze によって LC-SLM を用いた波形整形器を CPA の前に配置し CPA の分散を 4 次分散まで手動で補償することが試みられた。またレーザシステムの補正マスク上にさらにパルス列を生成するマスクを加えて、増幅器前置き型波形整形実験を行なった⁷²⁾。彼等はその後、増幅器の分散を適応制御を用いて補正することが可能であることを示した。CPA からの出力光パルスをレンズを用いて空気中で集光し plasma breakdown を発生させ、それによって発生する 400 nm–450 nm の波長の信号を適応制御の指標とした。その波長の光を強めるように適応制御を行なった結果、37 fs から 30 fs へのパルス幅の圧縮が達成された^{73, 74)}。

1999 年に T. Brixner 等は CPA 後に波形整形器を配置して 195 fs のパルスを 103 fs に適応制御を用いて圧縮した⁷⁵⁾。彼らは、LC-SLM の光学損傷閾値を超えないように波形整形器のフーリエレンズにシリンドリカルレンズを用いる工夫をしている⁵⁸⁾。

CPA の分散を前置き型波形整形で補償した報告は、波面制御に用いる deformable mirror を用いて、手動で行なった実験^{76, 77)}や適応制御を用いて CPA 後に最短パルスを得た実験⁷⁸⁾等が報告されている。また SLM に石英板を用いて使用可能な波長領域を向上させた波形整形器を用いて適応制御した例⁷⁹⁾等が近年も盛んに報告されている。

また 2000 年に従来の $4f$ 型波形整形器とは異なる音響光学分散フィルター (Acoustic optical phase dispersion filter: AOPDF) による波形整形が報告され^{80, 81)} AOPDF を用いて CPA の分散補償実験が行なわれた。⁸²⁾

同年に D. Zeidler 等はフィードバック制御を用いて OPA からの出力パルスを分散補償し中心波長 620 nm のパルスを 16 fs 以下に圧縮した。この報告は波形整形技術を実際に分子制御等のコヒーレント制御に用いようとした試みである。コヒーレント制御はある特定の波長の光だけで全てが行えるものではなく波長可変な OPA の出力波形を制御することは特に重要である。同様に整形波形をコヒーレント制御に用いるためには単純な分散補償のみではなく位相や振幅を積極的に制御する必要がある。

増幅パルスの波形整形

フェムト秒パルスレーザ増幅器後の光パルスは様々な応用に用いられるわけであるが、波形整形技術をレーザパルス増幅システムの分散補償として使用するのみではなく、増幅器後の波

形を積極的に整形するために用いた例について概観する．1998年に M. Fetterman 等は AOM を用いた $4f$ 型波形整形器を用いて，増幅器前置き型波形整形実験の報告を行なった．彼らは STRUT(Spectrally and Time Resolved Upconversion Technique) と呼ばれるパルス測定方法⁸³⁾ を用いて，測定されたスペクトル位相と強度のターゲットパルスからの誤差を AOM-SLM に補正として加え，時間振幅が Hyperbolic secant のチャープパルスの設計を行なった．実際にコヒーレント制御に用いるために高精度に波形整形を行なおうとした最初の報告である⁸⁴⁾．

一方 T. Brixner 等は 2000 年に TADPOLE(Temporal analysis, by dispersing a pair of light e fields)⁸⁵⁾ と呼ばれるパルス測定手法を用いて，波形を高精度に測定し増幅器後の波形を任意に整形する試みを行なっている⁸⁶⁾．彼らは波形整形器を増幅器後に配置して，TADPOLE を用いてスペクトル位相を測定した．測定されたスペクトル位相とターゲットスペクトル位相との誤差が LC-SLM に補正信号として送られた．TADPOLE を波形整形システムに取り入れた理由は，この手法が非常に高感度に波形を測定可能な技術だからである．こうした特性は整形波形をコヒーレント制御に用いる際には特に重要となる．

2001 年には K. Takasago 等によって増幅器前置き型波形整形を用いて，RF-Gun を目的としてピコ秒のフラットトップ矩形波の発生実験が行なわれている⁸⁷⁾．再生増幅器を用いた CPA 前に波形整形器を設置することによって，増幅器後のビームプロファイルが非常に綺麗に得られることを示した． $4f$ 波形整形器には，時間空間結合と呼ばれるが効果が存在する．これは時間波形を変調すると必ず空間プロファイルにも影響を与えてしまう効果である．これは J. Paye と A. Migus のグループと M. Wefer と A. Nelson のグループによって独自に定量的に解析され^{88, 89)} た．K. Takasago 等の実験結果は増幅器前に波形整形器を設置することによってこの時間空間結合効果が緩和されることを示唆している．

さらに 2002 年には A. Rundquist 等によって Gerchberg-Saxton(GS) アルゴリズムによって生成された理論的なマスクを増幅器前の波形整形器に印加して目的の時間包絡線信号を生成する実験が行なわれている⁹⁰⁾．

フェムト秒レーザー波形整形の高機能化

近年フェムト秒パルスレーザーを用いた超高速コヒーレント制御では，波形整形技術の一層の高機能化が求められている．例えば，分子制御の分野における分子と光の相互作用においては，光電界の振幅位相の他にも，偏光も重要な役割を果たすことがわかってきた^{91, 92)}．またシングルモードファイバーやフォトニック結晶ファイバー中の白色光の発生の偏光依存が近年注目されている⁹³⁻⁹⁵⁾．こうした応用に用いるために，複素電界振幅位相を制御する波形整形の他に，偏光の制御が可能な波形整形も報告されている^{96, 97)}．さらに利用可能なフェムト秒レーザーの中心波長の範囲を広げる試みもなされている．波形整形を分子制御に用いる目的のために，分子の振動モードに共鳴するような中赤外光 (Mid Infrared Radiation: MIR) 領域で波形整形を行ないたいという要求がある．技術的な課題は，このような波長域の光ではフェムト秒レーザー波形整形に広く用

いられている LC-SLM の透過率が低く、また大きな位相変調を加えることが難しいことにある。2000 年に A. Weiner 等は $3\ \mu\text{m} - 20\ \mu\text{m}$ の波長の光パルスをスペクトルフィルタ法によって波形整形したが、それはパルスコンプレッサーのフーリエ面にスリット状の振幅変調マスクを配置するものであった⁹⁸⁾。同グループはまた、整形した NIR パルスを GaSe で差周波混合して NIR 領域で整形したパルスを MIR 領域のパルスに転写する手法を用いて、パルス列を生成する実験について報告している⁹⁹⁾。2001 年に N. Belabas 等が狭帯域なパルスと広帯域なパルスによる差周波混合 (Differential Frequency Mixing: DFM) によって広帯域な MIR パルスが整形可能なことを示し、T. Witte 等はこの考えをさらに発展させて、狭帯域パルスと整形された広帯域パルスの DFM を用いて MIR 領域の整形パルスを発生させた¹⁰⁰⁾。これより先に、H. Tan 等は 2 段の NOPA の波長 600 nm 付近のアイドラー光を整形することによって MIR 領域の整形波形を得ている^{101, 102)}。

逆に原子分子を高い電子励起状態に励起するためには UV(Ultra Violet) 領域の光が必要であるが、電子励起過程を制御するための UV 領域での波形整形技術が開発されつつある。その目的に使用可能な波形整形器としては石英板で構築された SLM⁷⁹⁾がある。また近年 M. Hacker 等は MEMS-SLM(Micro-Electro-Mechanical Systems-SLM) と呼ばれるデフォーダブルミラーを用いた波形整形器で 400 nm 領域のパルスの波形整形を行なっている¹⁰³⁾。また MIR 領域での波形整形と同様に、波長変換技術を用いて NIR や可視光での整形波形を UV 領域に転写する試みも行なわれている^{104, 105)}。

フェムト秒レーザーパルスは分子のコヒーレント制御応用に用いられるばかりではない。4f 型波形整形器には一般的には好ましくない特性として時間空間結合効果⁸⁸⁾が存在するが、逆にこの性質を積極的に利用してパラレルシリアル光変換デバイスとして光情報処理に用いることができる。D. Leaird 等は 1999 年に時間空間変換デバイスとして波形整形器を用いている¹⁰⁶⁾。さらに 2002 年には T. Feurer 等は 2 次元 SLM を用いることによって、時間空間結合効果が現れる方向とは直交するビーム断面に、空間的に異なる位置に異なる時間波形を生成する 2 次元時間空間波形整形器について報告している^{107, 108)}。

一方フェムト秒レーザーパルスを波形整形し、その波形に情報を載せる事が可能であれば超高速光通信に用いることが可能である。1990 年に J. Salehi 等はスペクトル位相面で拡散符号を加えた周波数符号化符号分割多重通信 (Frequency-encoded code division multiplex access: FE-CDMA) の実験を行なっている¹⁰⁹⁾。同様のコンセプトを用いた 2D 画像の伝送も提案されている¹¹⁰⁾。また周波數位相に情報を載せるスキームはインコヒーレント光源に対しても行え、本スキームによる光通信応用は複数の報告がある¹¹¹⁻¹¹³⁾。また、通信波長の $1.55\ \mu\text{m}$ での高速位相変調実験は AOM-SLM を用いて W. Yang 等によって報告されている¹⁰²⁾。実際にフェムト秒レーザー波形整形を高速光通信応用に用いるためにはバルク型の 4f 波形整形器では都合が悪く、導波路型の位相変調器の実現が求められていた。そこで AWG(Arrayed Waveguide Grating) が開発され、フェムト秒レーザーパルスを高速光通信に応用することが可能となった^{114, 115)}。実際のファイバー伝送

実験は，正常分散領域のダークソリトン伝搬が A. Weiner 等によって報告され¹¹⁶⁾，異常分散領域では適応制御を用いることによってソリトン伝搬よりもさらに短パルス伝送が可能だが，F. Omnetto 等によって報告された¹¹⁷⁻¹¹⁹⁾。

1.3.2 フェムト秒光パルス波形測定

フェムト秒レーザーパルスの波形整形技術を正確に評価するためにはその波形を正確に測定しなくてはならない．単純にフォトダイオードとオペアンプを用いた電気回路ではナノ秒の応答速度を得るのが限界である．サブピコ秒領域のレーザー光パルスを測定するために現在までに様々な手法が開発されている．

SHG 強度自己相関^{120, 121)}はおそらくフェムト秒レーザーパルスの測定に現在でも最も広く用いられている手法である．2 つに分けられた光路の片方に時間遅延をつけ，再び SHG 結晶上で空間的に重ね合わせる．この 2 つのビームが同軸 (コリニア) の場合バックグラウンドのある SHG 強度自己相関，そうでない場合はバックグラウンドフリー SHG 強度自己相関¹²²⁾ と呼ばれる．こうして時間遅延を距離に置き換え，その距離をスキャンすることによって最終的に横軸が遅延時間の相関波形を得ることができる．バックグラウンドフリー SHG 自己相関波形は遅延時間の関数として，

$$G_2(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (1.5)$$

と表される．波形の関数を仮定することによって自己相関幅からパルス幅を求めることができる¹²³⁾．つまり，SHG 強度自己相関波形はパルス波形を仮定しなくてはならないことから，正確に時間波形を特定できるわけではなく，パルス幅の見積もりができるのみである．

1 パルスで相関波形が測定可能なシングルショット SHG 強度自己相関も報告されており，これは時間パターンを空間にマッピングすることによって 1 ショット計測を実現している¹²⁴⁾．

バックグラウンドを含んだ SHG 強度自己相関系において時間遅延をゆっくり走査することによって SHG フリンジ分解自己相関波形¹²⁵⁾を得ることができる．SHG フリンジ分解自己相関波形は，相関信号 $I_{SH}(\tau)$ ，入射パルスを $E(t) = A(t) \cos(\omega t + \phi(t))$ とすれば，

$$\begin{aligned} I_{SH}(\tau) &\propto \int_{-\infty}^{\infty} |\{E(t) + E(t - \tau)\}^2| dt \\ &= 2 + 4G_0^{(2)}(\tau) + 4F_1(\tau) + 2F_2(\tau) \equiv G_{FR}^{(2)}(\tau) \end{aligned} \quad (1.6)$$

となる．ここで，

$$G_0^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t-\tau)dt \quad (1.7a)$$

$$F_1(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} [A^2(t) + A^2(t-\tau)]A(t)A(t-\tau) \cos[\omega\tau - \phi(t) + \phi(t-\tau)]dt \quad (1.7b)$$

$$F_2(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} A^2(t)A^2(t-\tau) \cos 2[\omega\tau - \phi(t) + \phi(t-\tau)]dt \quad (1.7c)$$

である．Eq. (1.6) の第 1 項及び第 2 項がバックグラウンドを含んだ SHG 強度自己相関波形，第 3 項及び第 4 項がフリンジの項であり，このフリンジの項に位相の情報が含まれている．そのために，SHG 強度自己相関測定と異なり本測定は相関波形の包絡線のみでなく電界振幅の内部の情報，すなわち位相情報を知ることができる¹²⁶⁾．SHG フリンジ分解自己相関波形及び，基本波の相関波形から干渉相関計算 (Iterative pulseform Reconstruction from Interferometric Signals: IRIS) と呼ばれる繰り返し計算を用いることによって位相が再生可能であることが報告されている^{127, 128)}が，実際にはこの繰り返しアルゴリズムは実験環境ではノイズが存在するために，収束しないことが多い¹²⁹⁾．一般には SHG フリンジ分解自己相関測定はパルス内のチャープの有無とそのおおよその量を推定するのに用いられる．また SHG 結晶を使用するかわりにフォトダイオードの二光子吸収を用いたパルス測定も広く用いられている¹³⁰⁾．

フェムト秒レーザの波形を正確に測定するために，これまで様々な手法が試みられた．I. Walm-sley と V. Wong は，時間的に定常の線形フィルタリングを用いたのみでは DC 測定器では光パルスを一意に測定することができないことを理論的に示した^{131, 132)}．DC 測定器とは，測定対象光パルス幅よりも遅い応答を示す測定器のことを指しており，こうした測定器を使用している限り非線形効果を用いなくてはパルスを測定することができない．SHG や光カー効果などの非線形光学効果の過渡的光応答を用いれば時間的に定常でないフィルターを用いることができるようになるので，パルス測定が可能となる．

フェムト秒レーザの波形をより簡便に正確に測定するために，周波数分解光カーゲート (Frequency Resolved Optical Gating: FROG) 法¹³³⁾が R. Trebino 等によって開発された．FROG では 2 次の非線形性を利用した SHG-FROG^{134, 135)} 3 次の非線形性を利用した偏光ゲート FROG(Polarization Gating FROG: PG-FROG) が特に広く利用されている．FROG ではスペクトルグラムに似た 2 次元画像を測定し，その画像を繰り返し計算によるアルゴリズムを用いて波形を再構築する．波形の再構築は繰り返し計算に基づくアルゴリズムが必要なため，精度や高速性で課題が残る．近年でも測定感度をを向上させるために既知の強い光パルスをゲート光に用いる相互相関 FROG(Cross FROG :X-FROG) 測定による微弱光検出や，Video-FROG による数 Hz での波形再構築アルゴリズムの開発が行なわれている．FROG は § 5.2(p. 126) で詳しく述べる．近年では SHG-FROG をさらに簡易なセットアップで実現した GRENOUILLE(GRating-Eliminated No-nonsense Observation of Ultrafast Incident Laser Light E-fields) と呼ばれる測

定手法が開発されている¹³⁶⁾。

I. Walmsley 等によって報告された自己干渉型周波数干渉法 (Spectral Phase Interferometry for Direct Electrical-field Reconstruction: SPIDER)¹³⁷⁻¹³⁹⁾ は 2 次の非線形作用を利用し波形をまったく仮定することなしに位相まで測定できる手法として注目を集めている。パルスは 2 つに分けられ片方は分散素子によってチャープが加えられる。もう片方のビームはさらに 2 つに分けられ、お互いに時間遅延 τ をつけられて和周波混合 (Sum Frequency Mixing: SFM) 結晶にチャープパルスと共に入射する。この時間遅延の付けられた 2 つのパルスは結晶上でチャープをつけられたパルスの異なる周波数成分と SFM される。わずかに周波数の異なる SFM された 2 つの遅延時間 τ つけられたパルスは分光器で測定され、時間遅延に対応したフリンジが観測される。このフリンジに位相情報が含まれるので、それを解析¹⁴⁰⁾ することによって、強度及び位相を再構築する。この再構築アルゴリズムは FROG の波形再構築アルゴリズムと比較するとはるかに簡潔であり高速である。SPIDER は今日 FROG と並び広く用いられている測定手法である。SPIDER を用いて最短 3.4 fs を測定した例が報告されている²²⁾。短パルス化を目指す際にはスペクトル位相を正確に知ることはどういった分散補償を加えればよいかを知るために重要である。こうした測定においては特に分光器の校正を正確に行なわないと、見かけ上線形チャープが測定されてしまうことが指摘されており¹⁴¹⁻¹⁴³⁾、高度に分散を補償する応用では注意が必要である。SPIDER はパルスの分散補償を行なうために残留分散を測定する目的では良い性能を示す一方、複雑なスペクトル位相及びスペクトル振幅を有する波形を測定するのに用いるのは簡単ではない¹⁴⁴⁾。それは、SPIDER では 1 つのパルス 2 つに分け、片方のパルスに分散を加え (A)、もう一方のパルスは時間遅延を付けた 2 つのパルスを生成させ (B)、これらのパルス (A と B) の間で SFM を行なうが、分散したパルスはスペクトルが時間波形にマッピングされるために、測定対象のパルスはスムーズなスペクトル振幅を持っていない。また、測定には 2 次の非線形光学効果を用いているものの、片方のパルスを伸張するために分光器で測定可能なほどの SFM 波を得るにはパルスのパワーが必要であり、ある程度短いパルスしか測定することができない。ここに挙げた波形測定手法以外にも、PICASSO (Phase and Intensity from Cross correlation and Spectrum Only)¹⁴⁵⁾、STRUT⁸³⁾、TROG (Time-resolved optical gating)^{146, 147)} 等の波形測定手法が提案されている。こうした超高速光パルス測定装置はここ数年商品として手にはいるようになってきている。例えば SHG 自己相関測定装置、SHG-FROG 装置、PG-FROG 装置、GRENOUILLE、SPIDER 等である。

一方、すでに既知の光パルスが存在する場合には線形フィルタリングのみでもパルスを測定することが可能になる。代表的なものがスペクトル干渉計測 (Spectral Interferometry: SI)^{148, 149)} であり、SI は最も正確にパルスを測定できる手法の一つである¹⁵⁰⁾。SI と FROG を組み合わせた測定手法が TADPOLE⁸⁵⁾ であるが、TADPOLE と SI の詳細は § 6.2.1 (p. 151) で述べる。

こうした測定装置は波形整形装置には非常に重要であり、実際に前述したように超高速コヒーレント制御に波形整形を用いる目的のために、M. Fetterman 等は STRUT⁸⁴⁾ を T. Brixner 等は

TADPOLE⁸⁶⁾を整形波形の高精度測定システムとして用いている。

1.4 フェムト秒パルスレーザーのコヒーレント制御応用

モード同期したフェムト秒レーザーパルスはスペクトル位相に高い相関を持つために、モード間のコヒーレンスが高い光源である。こうした広帯域スペクトルの位相関係が保たれている性質を用いると、コヒーレント制御を行える。これはフェムト秒レーザーの大きな特色である。当然パルス幅も短いので、物質の超高速現象を捉えたり、制御したりすることが可能である。フェムト秒レーザーの各モード間の位相関係を任意に制御した場合、物質励起状態を制御することが可能である。そのため、フェムト秒レーザーの波形制御技術はこのコヒーレント制御と密接に関係している。そこで、本節では、フェムト秒レーザーを用いた超高速現象の測定及び制御について取り上げ、後半で波形整形技術との関連を述べる。

1.4.1 原子・分子のコヒーレント制御

ポンププローブによる超高速現象の解明

原子や分子の励起や緩和には光や熱を伴うため、逆にこれらの物質に光や熱による活性化エネルギーを加えれば物質を励起状態に至らしめ化学反応を誘起できる。こうした化学反応を用いた生成物は人々の生活を潤してきたため、その化学反応過程をより深く理解しようとする探求心が生まれるのはごく自然なことである。特に化学反応の反応経路の決定に大きな役割を果たしている遷移状態の理解は重要であるが、この過渡状態を捉えるためには数 ps と非常に高速な現象をとらえる技術が必要があり難しかった。ちょうどリンゴを貫く弾丸のスナップショットを撮るためには弾丸の速度よりも十分短い時間のみ発光するフラッシュが必要なように、化学反応の遷移状態を捉え実時間分光するにはサブピコ又はフェムト秒レーザー光パルスが必要であった。フェムト秒レーザーパルスを用いてスナップショットを得るために、ポンププローブ手法¹⁵¹⁾を用いて、気相ガス中での分子の遷移状態を測定した¹⁵²⁾A. Zewail は、フェムト秒化学への貢献でノーベル賞を受賞している。

このようなポンププローブを用いた遷移状態の観測から更に発展させて、これらの過渡状態を積極的に光を用いて制御しようとする試みが行なわれた。量子力学に基づけば物質は波動としての性質を有するために、光のコヒーレンスのアナロジーが成り立つ。物質は光電界とは分極を媒介とすることで相互作用するので、コヒーレントなレーザー光を物質に照射するとそのコヒーレンスを物質に転写することができる。コヒーレント光の振幅、位相、周波数、偏光等を制御し、それらの情報を物質に転写することによって、物質に新たな電子励起状態を発現させることができる。こうした、物質の励起状態を制御することによって、量子波束を制御することを量子制御やコヒーレント制御と言う。簡単な例を挙げれば、CF₃Br 分子の C-Br 振動モードに共鳴する波長

の CW 光を照射すれば，



の光解離が起るが，C-F 振動モードに共鳴する波長の CW 光を照射しても CF_2Br と F に解離することはない．これは，C-F 振動モードが高エネルギー状態を取るために光を用いて C-F 振動モードに対応するエネルギーを供給しても，分子内で直ちにエネルギーの再分配化が起きてしまうことに原因がある¹⁵³⁾．しかし，こうしたエネルギーの平均化は一般に数ピコ秒の間に起きるので，サブピコあるいはフェムト秒光パルスを用いればエネルギー再分配が起きる前に通常では起きえない電子励起状態を作りだし，新たな反応経路へ化学反応を導く事が期待される．

1985 年に D. Tannor と S. Rice は分子の光解離を制御するために，プローブ光を高い電子励起状態から誘導緩和させるためのダンプ光として用いるポンプダンプ法を提唱した¹⁵⁴⁾．Tannor-Rice モデルとして知られる本手法を用いた分子制御では，始めにポンプ光を用いて分子を光に晒し高い電子状態へと励起する．一般に高い電子励起状態にある分子は基底準位とは異なる平衡核間距離を有するために，励起核波束は運動量を付与され移動を開始する．その後，ある適当な時間遅延をつけられた第 2 のパルスを用いて波束を基底準位にダンプさせると，基底準位にあるポテンシャル障壁を乗り越えることができる．1991 年に T. Baumert 等は Tannor-Rice モデルに基づいてポンプ-ダンプパルスの時間遅延を変化させると， Na_2 分子の Na_2^+ イオン化と Na^+ のフラグメント化がそれぞれ位相が 180° ずれた時間遅延依存を示すことを明らかにした¹⁵⁵⁾．後に N. Scherer 等によって，位相関係の保たれたポンプ-ダンプ実験が I_2 分子において行なわれたが¹⁵⁶⁾，オリジナルの Tannor-Rice モデルではダンプ光の時間タイミングが重要でありダンプ光は必ずしもポンプ光との位相関係が保たれている必要はない．

そういった意味では光のコヒーレンスをより積極的に用いた位相制御の始まりは，1986 年に M. Shapiro と P. Brumer による，2 つの周波数の光を孤立分子に照射して，光励起状態からの反応を分岐する Brumer-Shapiro モデルの提唱に始まるといえる¹⁵⁷⁾．このモデルは 2 スリット問題の光のアナロジーを考えると理解しやすい．異なる経路を通過してきた光が干渉するように，異なる励起経路を通過してきた波動関数は干渉を起こし，その量子干渉が destructive であるか constructive であるかは，それぞれの波動関数の位相，即ち波動関数にマッピングされている励起光の位相差に依存する．Brumer-Shapiro モデルに基づいて，1990 年に C. Chen 等は Hg 原子の $6s^1S_0 \rightarrow 6p^1P_1$ 遷移に一光子と三光子励起の光を用い，その相対位相を制御し量子干渉効果をイオン化を指標にして観測した¹⁵⁸⁾．Brumer-Shapiro モデルによる分子における反応分岐の実験は 1995 年に L. Zhu 等によって HI 分子の一光子，三光子励起光の位相差を変化させることで，HI 分子が HI^+ に光イオン化するか， $\text{I}^+ + \text{H}$ に光解離反応するかの反応分岐比が変化することを示すことによって行なわれた^{159, 160)}．

一方，レーザーシステムの出力強度が確保できるようになり，それに伴って励起の制御手法に新しい可能性が生まれた．STIRAP(Stimulated Raman adiabatic passage)^{161, 162)}と呼ばれる励

起スキームでは、3準位系にストークス光とポンプ光を順番に、時間的に部分的に重ね合わせて入射することによって、非常に効率的な励起が達成できる¹⁶³⁾。STIRAPの考えを推し進めて、1998年にM. KobrakとS. RiceはNa₂分子の光解離制御がインコヒーレントな2つのパルス対を用いて可能であることを示し¹⁶⁴⁾、先に行なわれたA. Shinitman等の実験結果¹⁶⁵⁾を説明した。STIRAPでは励起過程がパルス面積には大きく依存しないために、非常に簡単に励起を制御できる。

チャープパルスによる制御

その後、波形をより積極的に制御することによって、分子システムを目的とする量子状態に制御する試みが行なわれた。特にフェムト秒レーザーパルスの線形チャープを制御する手法は励起状態の偏在化に非常に有効であった。

単純なポンププローブやポンプダンプ手法に加えて各パルスのチャープを制御すると各パルスの瞬時周波数がポテンシャル曲面に沿うことになるので、波束の偏在化をより顕著にすることが可能である。1995年にB. Kohler等は¹⁶⁶⁾フェムト秒レーザーパルスのチャープを制御するとI₂分子のB電子状態に効率的に励起が可能なることを理論と実験の両面から明らかにした。この実験はフェムト秒レーザーパルスのチャープ量を制御しており、その後続くフェムト秒レーザーパルスの位相制御実験の先駆けとなる実験といえる。その後、C. Bardeen等によってLD690分子の振動準位の励起が、負のチャープパルスを用いた効率的な電子励起を介したポンプダンプ手法によって増強されることが示された^{167, 168)}。こうした高効率励起チャープパルスは分子 π パルスと呼ばれる^{169, 170)}波形として知られている。

チャープパルスを用いた制御においても、高強度な光パルスが生成できるようになってきた結果原子分子の励起がより自由に行えるようになってきた。J. Melinger等はI₂分子を用いて周波数がゆっくりと変化する比較的大きな線形チャープパルスを用いて、断熱遷移(adiabatic passage)による遷移実験を行なっている¹⁷¹⁾。この断熱エネルギーカーブは、エネルギー準位を光電場・物質・相互作用ハミルトニアンを結合したドレスト描画を用いると説明でき^{172, 173)}、このカーブに沿って励起が行なわれる¹⁷⁴⁾。断熱遷移による光励起の利点は、 π パルスと異なりパルス面積やパルス形状にはあまり依存しない点である。

量子化学計算による理論計算

光化学反応を制御するのに、パルス列を用いたり、単純な線形チャープ用いた手法のみが存在するわけではない。実際には、目的とする終量子状態を定義して、量子システムのモデルを記述する。そのモデルを元に計算して、ターゲット量子システムがある時間で目的となる終状態となるように、逆問題を解くことで解は得られる。この逆問題を解く手法として、最適化制御理論(Optimal Control Theory: OCT)が1988年A. Peirce等によって提案された¹⁷⁵⁾。量子システムのハミルトニアンが記述可能な場合に、ラグランジュ乗数法を用いて、与えられた系の目的と

する終状態に最も近くなる解を求める．Morse potential モデルの 2 原子分子の光解離過程の最適化計算をおこなった．こうした比較的単純な系をモデルとした場合でも，その最適化波形は非常に複雑である．また，C. Tesch 等は C_2H_2 アセチレン分子の C-H 振動モードを最適化するパルス波形を OCT によって求めたが，その時間波形は数 ps に渡り非常に細かい構造を示し，スペクトル構造も複雑なものが得られている¹⁷⁶⁾．これらのことが実際に実験室環境において分子を最適化制御することを困難にしていた．さらに，通常が多原子分子ではそのハミルトニアンを記述することさえ困難である．

実験室内適応制御

そこで，R. Judson 等は，1992 年に実験室環境内で最適化制御を用いることを提案した¹⁷⁷⁾．KCl 分子をモデルとし遺伝的アルゴリズム (Genetic Algorithm: GA) を用いて，分子システムのハミルトニアンが記述できない場合でも目的とする励起状態に至らしめる最適励起波形を得ることが可能であることを理論的に示した．

その後 § 1.3.1(p. 6) のフェムト秒レーザー波形整形技術と組み合わせることによってアダプティブ制御を用いたコヒーレント分子制御実験は数多く行なわれるようになった¹⁷⁸⁾．1997 年に，C. Bardeen 等は IR125¹⁷⁹⁾ レーザ色素をメタノール媒質中に溶解し，その蛍光強度を GA アルゴリズムを用いて最適化することに成功している．使用した波形整形器は音響光学素子をフーリエマスクに用いた 4f 型波形整形器であり，高効率な励起パルスや，蛍光が最も強くなるパルスを得た．

翌年には A. Assion 等が， $CpFe(CO)_2Cl$ 分子の選択的光解離制御を GA アルゴリズムを用いた適応制御を用いて行なっている．飛行時間測定質量分析装置 (Time of Flight Mass Spectrometer: TOF-MS)¹⁸⁰⁾ のスペクトル信号を用いて， $Fe-Cl^+$ イオンが生成する光解離過程，及び $CpFe(CO)Cl^+$ が生成する光解離過程のうちどちらか一方のみを増強する励起波形を実験的に得た^{181, 182)}．

また，D. Meshulach 等は Cs 原子を整形されたフェムト秒レーザーで励起する実験をおこない，原子の吸収線が励起パルスのスペクトルよりも遙かに狭い場合に，二光子励起を抑圧させるような dark pulse が存在することを理論的に示し，4f 波形整形器を用いて理論的な位相変調を加えることで実際に励起が抑圧される事を示した^{183, 184)}．

1999 年には T. Weinacht 等が，Cs 原子のリドベルグ波束の制御に閉ループ制御を用いている¹⁸⁵⁾．リドベルグ波束の振幅位相を測定し¹⁸⁶⁾ その差分信号を AO 型 4f 波形整形器に送ることで，リドベルグ波束を目的とする形に制御している．

2000 年には，T. Hornung 等が一光子励起過程及び二光子励起過程の最適化制御を行なっている．Na 原子の $3s \rightarrow 5s$ 二光子励起の dark pulse を GA を用いて設計した¹⁸⁷⁾．

物理モデルを解明する試み

このころには分子制御の分野における適応制御手法自体はかなり確立され¹⁸⁸⁻¹⁹⁰⁾、適応制御の実験結果から物理モデルを読みとる試みが始まった。幸い T. Hornung 等が用いた Na 原子の実験系は D. Meshulach 等によってモデル化されており彼らの実験結果はそれを良く説明した¹⁹¹⁾。同様の二光子励起過程の dark pulse 生成実験は他のグループによっても報告されている¹⁹²⁾。さらに、T. Hornung 等は K_2 分子をモデルとして、適応制御のパラメータ化を試みている¹⁹³⁾。分子 π パルスの候補としてチャープパルス係数、ISRS(Induced Stimulated Raman Scattering) の候補としてパルス列の係数、そして Tannor-Rice モデルによるポンプダンプパルス過程の候補として位相関係の保たれたダブルパルスの係数をそれぞれ適応制御の係数として、適応制御と物理モデルを結びつけた上で実験を行ない、物理モデルとのデータベース構築を試みている。さらに彼らのグループはアルゴリズムのパラメータによる影響の調査、 $4f$ 型波形整形器の LC-SLM の位相のピクセル数を 128, 64, 32, 16 ピクセルと変化させたときどのように SHG 信号の最適化実験に影響を与えるかの調査し、パラメータ空間とノイズの量が半比例することを示した¹⁹⁴⁾。同様に B. Pearson 等は GA アルゴリズムに着目してそのパラメータ設定が実験に与える影響について調べた¹⁹⁵⁾。また T. Brixner 等も LC-SLM の位相ピクセル数を 128, 64, 32 ピクセルと変化させたときに、 $CpFe(CO)_2Cl$ の光解離のイオン生成量に差が出ることを示し、この光解離プロセスが非常に複雑であると主張した。さらに SHG との関係を探ることが光物性、光化学を理解する助けになると提案した¹⁹⁶⁾。最近彼らは、液相における実験において蛍光強度/SHG を適応制御の指標とすることによって、詳細な物理モデルの構築までは至らずとも強度依存性を打ち消した上で最適化を行なうことによって物理を解明しようとしている¹⁹⁷⁾。同様の手法を用いて色素の効率的な発光を達成した報告は他のグループによっても報告されている¹⁹⁸⁾。また C. Daniel 等が、適応制御実験によって $CpMn(CO)_5$ の光解離を最適化制御したが、この実験と並列してポンプブロープ実験及び量子計算を行なうことによって最適化制御実験で得られた実験結果を説明することを試みている¹⁹⁹⁾。複数の実験をこうして並列に行なうことの重要性が指摘されている²⁰⁰⁾。

高強度光電界への応用

一方、フェムト秒レーザー装置の発達によって高強度な光パルスが生成可能になり、超高速コヒーレント制御は新たな曲面を向かえつつある。先に述べた STIRAP や断熱遷移の考えを強力に推し進めると、分子原子の光操作性を大きく向上させることができる。

光パワーが TW/cm^2 を超えるあたりから電子準位の混成がおき、分子のポテンシャル曲面(Potential Energy Surface: PES) が変形する³⁶⁾。こうした PES は Light-Dressed PES (LD-PES) を呼ばれる。なお、PES は原子核の位置をパラメータとして電子エネルギーを表わしたものである。

R. Levis 等は特にこうした高強度光パルスに着目した適応制御実験を行なった。アセトン

$((\text{CH}_3)_2\text{CO})$ 等の多原子分子の光解離イオン化のチャンネル比を適応制御手法を用いて制御した。彼らは、分子が強電場中に曝されることによって各電子準位が AC-Stark 効果²⁰¹⁾によって広がり、従来非共鳴な光も吸収されるとして実験結果を説明した。さらに、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{COCH}_3$ 分子における実験では、単なる光解離過程だけでなく、分子中の原子の再配置を行なうような反応が最もよく起るような最適化制御が可能であることを示した^{202, 203)}。

高強度な光電場を分子制御に用いて LD PES を形成すると、従来よりも光による分子の反応経路を自由に操作できるのではないかと期待されている^{36, 204)}。通常、光が物質と相互作用する際には物質の電子励起準位や振動励起準位に共鳴する光を入射させる必要がある。核波束は PES の形状によってその運命が決定される。即ち励起準位が光解離性の場合、どのように光解離するかは波束が励起された瞬間に決定される。従来の Tannor-Rice モデルにおいても、振動励起準位を直接励起する場合においても PES は分子固有のものとして存在するために、PES に沿って光周波数を制御することのみが、波束の形状や動きを制御する手法であった。しかし、外部電場が加わると AC-Stark 効果の影響で電子準位が変化する。その結果分子の PES が歪められた LD PES を形成するようになる。AC-Stark は光の周波数によって振動する時間に依存するハミルトニアンで記述する必要があるので、光交流電場 $\omega(t)$ を一周期にわたって平均化する²⁰⁵⁾ ことによって時間に依存しないシュレディンガー方程式を導出する¹⁷²⁾。この際に場の量子化も行なう。この状態をフロケ状態、又はドレスド状態という^{173, 206)}。フェムト秒レーザーパルスを用いるときにはパルス包絡線が時間に依存するので、S. Chu 等は準定常フロケハミルトニアンを用いてこの効果を記述した²⁰⁷⁻²⁰⁹⁾。

LD PES の考えでは、高強度な光電場を用いると PES は外部光電場によって操作できるので、励起波束の運命は外部電場を制御することによって決定することが可能になる。

その他の超高速コヒーレント制御

最後に、フェムト秒レーザー波形整形を用いた超高速コヒーレント制御のうち特に重要と思われる報告を示す。

振動準位の励起制御には従来は一旦高い準位の電子状態へ励起し、そこからダンプパルスで振動準位を励起する Tannor-Rice モデルに基づく制御手法が取られることが多かった。それは振動準位の励起には MIR パルスが必要となり、波形整形を行なうことが難しかったことに原因がある。しかし、2002 年に D. Zeidler 等は FWM を用いてポリマーの振動準位に共鳴する光を直接生成し、その波形を適応制御することによって、振動励起を直接実現している²¹⁰⁾。また彼らのグループは *Rhodospseudomonas acidophila* と呼ばれる光合成タンパク物質の分子内エネルギー乗の最適化に適応制御を用いている²¹¹⁾。

また適応制御手法は気相や液層分子以外にも適用されている。J. Kunde 等は AlGaAs 半導体の吸収をポンププローブ手法と適応制御波形整形手法を組み合わせ最適化制御している^{212, 213)}。彼らはこうした半導体の非線形吸収の制御が超高速光スイッチング等への応用につながるとして

いる．波形整形技術の固体への応用はこうした電子励起の制御以外にもフォノン励起の制御に用いることもできる．フォノンは電子励起を介して励起されるが，一般に光励起が格子に結合した時には光電界の位相はコヒーレンスを保つのが難しいためにさほど重要では無くなる．そのためにスペクトル位相フィルタリングによる波形制御は効果が少ないように思われるが，スペクトル位相変調によって複素電界時間振幅をある特定の周期を持つ整形波形を設計することによって，特定のフォノン振動をコヒーレントに励振することが可能になる．A. Weiner 等は有機結晶 α -perylene の 1 つのモード周波数 2.39 THz に合わせたパルス列を波形整形器で生成し，それを励起光することによって特定のフォノンのモードの振幅を強く励起した²¹⁴⁾．また，R. Stoian 等は誘電体²¹⁵⁾や Si 等の半導体²¹⁶⁾ において波形整形器を用いてプレパルスを設計し，それを照射するとフェムト秒アブレーションパターンに変化が見られると主張している．これはプレパルスから格子系へエネルギーが移乗している状態でメインのパルスが照射されると，アブレーション過程に変化が生じることに起因している

また，物質を介した光・光相互作用を適応制御する実験も報告されている．中空ファイバーへの入射するパルスのスペクトル位相を制御することで高次高調波 (High Harmonic Generation: HHG) の 27 次のみを選択的に励振させた²¹⁷⁾．近年，光コヒーレンストモグラフィー (Optical Coherence Tomography: OCT) に用いる光源としてフォトニック結晶ファイバー (Photonic Crystal Fiber: PCF) 後の白色光のスペクトル振幅をファイバー前に設置した波形整形器を用いて適応制御する試みも行なわれている^{218, 219)}．また，古典的なフェムト秒光パルス制御技術を用いて光の量子状態を制御する試みが提案されている． $4f$ 型波形整形器を光ファイバー前に設置し，最適化制御を用いると，光ファイバー中での光カー効果による光子数スクイーミングが最適化できることを M. Takeoka 等が提案した²²⁰⁾．また，同様の制御スキームを用いるとパルス内の 2 つの周波数モードの量子相関を高めることが可能である事が示された²²¹⁾．こうした量子光学への応用は，フェムト秒レーザパルスの最適化制御の可能性を広げるものとして特に注目される．

1.5 本研究の目的及び意義

1.5.1 本研究の背景

レーザの光の持つ最も美しい性質は光のコヒーレンス性である．光のコヒーレンスを物質に転写することによって他では得られない物質の状態を作り出すことも可能である．加えてフェムト秒レーザには高速性，広帯域性，高ピークパワー性の性質が加わるので，光による物質励起状態の操作性は更に向上する．

フェムト秒レーザはその高速性が故に，原子や分子の高速な応答を調べるために用いられてきた¹⁵¹⁾．それを更に発展させ，フェムト秒レーザの持つ広帯域性を利用して光の周波数振幅や位相を制御する^{38, 40)}ことにより，物質の高速応答を制御する試み^{181, 212, 214, 222, 223)}が始まっている．光は原子や分子と相互作用するのでこうした振幅や位相の制御されたフェムト秒レーザを用

いと、その応答から物質の内部構造をうかがい知ることができるばかりではなく、その先には原子分子の励起偏在化を利用した量子情報処理への応用²²⁴⁾、物質の高速応答を介した光・光スイッチング²¹²⁾、高次非線形効果による高次高調波発生²¹⁷⁾やイメージングのためのコヒーレント軟x線発生等のテクノロジーへの貢献も期待されている。しかしながらフェムト秒レーザーはその超高速性のため、制御はもとより高精度な測定も容易ではない。

超高速コヒーレント物理の理論では、分子や原子のハミルトニアンが記述されるときには物質を目的とする量子状態に励起する最適励起波形の計算手法は確立されている¹⁷⁵⁾。2原子や3原子分子など単純な構造を持つ孤立した分子では実際に計算が可能である²²⁴⁾。しかしながらこうした非常に単純な構造を持つ分子においてでさえも、その最適励起波形は非常に複雑な波形を示す。それは、分子内でエネルギーが再分配されるために、ある特定のモードのみを励起するのが難しいからである。実際の波形整形技術は理論で要求される性能とはまだ隔たりが存在するがこうした単純なターゲットでも理論で示される励起波形を実際に設計することができれば物理化学や分光学に与える影響は大きいので、波形整形技術の高精度高自由度波形性の向上が求められている。

一方、複雑な分子ではハミルトニアン¹⁸¹⁾の記述が困難であるので、理論においても最適励起波形を計算することは難しい。さらに液相や固相では分子間相互作用の影響もあり、問題は更に複雑になる。一般にテクノロジー応用を目指した際に、特に興味あるのはこうしたターゲットであるので、ハミルトニアン¹⁸¹⁾の記述ができなくとも実験室内で励起状態を制御したい。そこでそのための試みが行なわれてきた¹⁷⁷⁾。そのためには光と物質の応答を測定し、それを最適化計算の指標とするパフォーマンス参照型実験室内閉ループ制御を行なう必要がある。閉ループ制御は与えられた条件内で最適な波形を探索する。これまでも閉ループ制御を用いて、ファインケミカル応用につながる化学反応分岐の制御¹⁸¹⁾、高速光制御につながる半導体の非線形吸収の最適化²¹²⁾等が報告されている。こうしたパフォーマンス参照型実験室内閉ループ制御においては、波形整形システム自体が高機能・高精度であれば、より広大な解空間を自由に探索できる。結局、実験のパフォーマンスは波形整形システムの性能によって決定するため、この場合においても波形整形技術の向上が求められている。

複雑な分子や固体における波形整形応用は、閉ループ制御のみが重要なわけではない。例えば光と分子の相互作用では、一光子吸収や多光子吸収過程による電子励起、それを介した振動励起、または振動準位の直接励起、AC Stark 効果²⁰¹⁾によって遷移幅が広がるドレイド状態の形成³⁶⁾による非共鳴励起、分子の構造変形によるイオン化促進やクーロン爆裂^{64, 225)}、トンネルイオン化など、量子力学で一つに体系化できても、様々な物理過程が複合的に重なり合っている。こうした複雑な現象が重なり合うと、起きている現象は一見すると複雑に見える。しかし、その場合でも現象を支配している基本となる物理モデルは簡潔に記述できることがあり、こうした物理モデルを構築することは、我々が物理をより直感的に理解するには欠かせない。こうした観点に基づき、光パルスの特定のパラメータに対する物質の応答をシステムティックに調査することによって単純化されたモデルを明らかにすることが期待されている^{193, 204)}。その目的のためにも、波形

整形システムは十分高機能かつ高精度である必要がある。

ここでは，波形整形器を超高速コヒーレント制御に用いる場合，

1. 理論で求められる波形を整形する，
2. システムティックに光のパラメータを制御して物質の光応答を観測する，
3. 光と物質の相互作用を指標としてパフォーマンス参照型閉ループを構築する，

3つの手法のいずれにおいてもフェムト秒レーザー波形整形システムの高精度化・高機能化が不可欠であることを述べた。

1.5.2 本研究の目的

光電界はその包絡線である複素電界振幅と包絡線内の電界振動を表現する複素電界位相で記述される。従来の波形整形では，レーザーシステムから得られる光パルスがフーリエ限界パルスになるように，時間波形のピーク強度を参照して波形整形器に変調を加える実験は行なわれている。しかし本研究では，レーザーシステムから得られる光パルスが単純に時間的に短ければ良いのではなくて，前述の3つの手法による超高速コヒーレント制御に用いることができるような光パルスを生成することを目的とする。この目的のためには，振幅と位相の両方を制御することが重要となるが，レーザーシステム後のフェムト秒レーザーパルスの位相までをも複雑に整形した例はほとんど無い。そこで，本研究では，複素電界振幅及び位相をターゲットとしてその両方を最適化する。

さらに，超高速コヒーレント制御が増幅器の発達と共に発展してきたように，整形光パルスも高強度化が求められている。増幅器後に波形整形器を設置して光パルスを整形した例があるが，このシステムでは得られる光パルスのエネルギーに限界が生じ，空間プロファイルも波形整形器での時間空間結合効果によって悪化する等の重大な問題があった。そこで本研究では，増幅器前に波形整形器を設置してこれらの問題を解決し，従来の増幅器後波形整形では得られないような高強度な光パルスを恒に一定の強度で，均一の空間プロファイルで得ることを目指す。同様の増幅器前置き型スキームによる波形整形システムでは，増幅器の分散を補償する実験は報告されているが，やはり出力パルスのピーク強度のみに着目している。増幅器前置き型波形整形システムを超高速コヒーレント制御応用に用いることを目指して高強度光パルスの振幅と位相の両方を同時に目的とする波形に制御する試みは本研究が初めてである。

本研究では，超高速コヒーレント制御に用いるフェムト秒光パルス増幅波形整形システムの構築を目指すので，本システムが目標とする波形整形精度を設定する必要がある。現在超高速コヒーレント制御においては，励起光パルスのパラメータをシステムティックに変化させてその光応答を調べることによって，ターゲット物質の相互作用ハミルトニアンを解明することが求められ始めている。そこで本研究で構築する波形整形システムでは，光パルスの他のパラメータを一定に保ったまま，注目するパラメータ（線形チャープ量，光強度，光パルス幅，中心周波数，等）のみをシステムティックに変化させることができる精度を確保する。また，そもそも超高速コヒーレ

ント制御の理論においては数 ps のパルス幅で数 10 fs オーダで振幅が変化する光電界が求められているので、本システムによって整形される光パルスはこの要求性能を満たすことを目標とする。まとめると、

1. 複素光電界の振幅のみでなくその位相もターゲット波形と比較して、目的となるように整形する。
2. 増幅器後に波形整形したのでは、得られる光強度に限界があり、空間プロファイルも崩れるために、増幅器前置き型波形整形システムを構築して、高強度な光パルスを一定の強度、一定の空間プロファイルで得ることを目指す。
3. 本研究で構築する波形整形システムは光パルスの特定のパラメータのみを独立に変化させることができる精度を確保することを目指す。さらに、数 ps の時間窓を持ち、数 10 fs で振幅が変化するような波形を本波形整形システムのターゲット整形波形とすることによって、超高速コヒーレント制御に用いることができる性能を確保する。

1.5.3 本論文の構成

第 2 章では、波形整形器の時間空間結合効果について述べる。本章の目的は波形整形器の時間空間結合効果を詳細に調査し、その効果がコヒーレント制御にどのように影響を及ぼすかを示し、それを解決または緩和させることが重要であることを示すことである。そのため、始めに波形整形器自身のデバイス特性を調べた後に、波形整形器の時間空間特性の定式化を行なう。さらに、超短光パルスの時間空間同時測定手法を提案し波形整形器の時間空間結合効果を初めて直接的に観測する。

第 3 章では、第 5 章と第 7 章で用いる適応制御のアルゴリズムを調査し、本波形整形システムにおいてはどのようなアルゴリズムを採択すれば良いかを調べる。遺伝的アルゴリズムと焼き鈍しアルゴリズムを波形整形システムに用いた際にどのような性能が期待できるかを計算によって比較する。

第 4 章では、増幅器前置き型波形整形システムによる振幅位相整形を行なう。増幅器の前に設置した波形整形器に、理論的に計算で求めた振幅位相変調を加えた時に、増幅器後にどの程度の精度で波形が得られるかを実験によって確認する。また、波形整形器の時間空間結合効果が増幅器前置き型波形整形システムにおいては緩和することを確認する。

第 5 章では、増幅器前置き型波形整形システムの整形精度を向上させるために増幅整形パルスの波形を指標とする閉ループを構築する。そのために、閉ループの指標にはスペクトルグラムに似た 2 次元画像である FROG 画像を用いて、そこに含まれる光パルスの振幅位相の情報をもとに、波形整形器に加える変調を最適化アルゴリズムを用いて変化させる。

第 6 章では、第 5 章で得られた知見を更に発展させ、より高精度な波形整形システムを構築する。そのために TADPOLE 参照型閉ループ制御システムを構築して、整形光パルスの測定精度

を向上させると共に、より速い解の収束を実現させる。本章の波形整形システムを用いて、数 ps の時間幅を持ち数 10 fs で振幅が変調するような、振幅位相の両方が制御された高強度パルスを整形する。

第 7 章では、本研究で構築した増幅器前置き型波形整形システムを用いた光プロセス応用及びコヒーレント制御への応用を行なう。始めに、増幅パルスを用いた Si 基板へのホログラフィックパターン書き込み実験を行ない、本波形整形システムが光プロセス応用に用いることのできる光強度が得られる事を確認し、書き込みパターンを周波数制御のみで変化できることを実証する。次に、蛍光色素の蛍光強度を指標として最適励起パルスを求める適応制御実験を行ない、本システムが光物質相互作用を指標とした閉ループ制御に用いることができることを実証する。最後に、光パルスの特定のパラメータのみをシステムティックに変化させる精度が本波形整形システムに備わっていることを示すために、分子の高強度光電場中での光解離反応のチャープ依存性を調べる実験を行う。同時に光解離の結果得られるフラグメントイオン比を直接閉ループの指標とすることによって、最適励起波形を求めた。こうした実験を組み合わせることが物理を解明するために非常に重要であることと、こうした様々な実験に本波形整形システムを用いることができる事を示す。

第 8 章で、本研究のまとめを行なう。

参考文献

- [1] A. L. Schawlow and C. H. Townes, “Infrared and optical masers”, *Phys. Rev.*, **112**, 1940–1949, (1958).
- [2] T. H. Maiman, “Stimulated optical radiation in Ruby”, *Nature*, **187**, 493–494, (1960).
- [3] G. Bret and F. Gires, “Giant-pulse laser and light amplifier using variable transmission coefficient glasses as light switches”, *Appl. Phys. Lett.*, **4**, 175–176, (1964).
- [4] H. W. Mocker and R. J. Collins, “Mode compentation and self-locking effects in a q-switched ruby laser”, *Appl. Phys. Lett.*, **7**, 270–273, (1965).
- [5] A. J. DeMaria, D. A. Stetser, and H. Heynau, “Self mode-locking of lasers with saturable absorbers”, *Appl. Phys. Lett.*, **8**, 174–176, (1966).
- [6] E. P. Ippen, C. V. Shank, and A. Dienes, “Passive mode locking of the CW dye laser”, *Appl. Phys. Lett.*, **21**, 348–350, (1972).
- [7] E. P. Ippen and C. V. Shank, “Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked CW dye laser”, *Appl. Phys. Lett.*, **24**, 373–375, (1974).
- [8] R. L. Fork, B. I. Greece, and C. V. Shank, “Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking”, *Appl. Phys. Lett.*, **38**, 671–672, (1981).
- [9] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, “Negative dispersion using pairs of prisms”, *Opt. Lett.*, **9**, 150–152, (1984).
- [10] P. F. Moulton, “Spectroscopic and laser characteristics of Ti : Al₂O₃”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**, 125–133, (1986).
- [11] J. Mark, L. Y. Liu, K. L. Hall, H. A. Haus, and E. P. Ippen, “Femtosecond pulse generation in a laser with a nonlinear external resonator”, *Opt. Lett.*, **14**, 48–51, (1989).
- [12] U. Keller, W. H. Knox, and H. Roskos, “Coupled-cavity resonant passive mode-locked Ti:Sapphire laser”, *Opt. Lett.*, **15**, 1377–1379, (1990).
- [13] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, “60-fs pulse generation from a self-mode-locked Ti:Sapphire laser”, *Opt. Lett.*, **16**, 42–44, (1991).
- [14] J. Diels and W. Rudolph, “Ultrashort laser pulse phenomena”, Academic Press, (1996).
- [15] W. Koechner, “Solid-State Laser Engineering”, Springer-Verlag, New York, 5 edition,

- (1999).
- [16] I. D. Jung, F. X. Kärtner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tchude, “Self-starting 6.5-fs pulses from a Ti:Sapphire laser”, *Opt. Lett.*, **22**, 1009–1011, (1997).
- [17] R. Ell, U. Morgner, F. X. Kärtner, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, M. J. Lederer, A. Boiko, and B. Luther-Davies, “Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti:Sapphire laser”, *Opt. Lett.*, **26**, 373–376, (2001).
- [18] A. Baltuška, Z. Wei, M. X. Pshenichnikov, and D. A. Weirsma, “Optical pulse compression to 5 fs at a 1-MHz repetition rate”, *Opt. Lett.*, **22**, 102–104, (1997).
- [19] M. Nisoli, S. D. Silvestri, O. Svelto, R. Szipcs, K. Frensz, C. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, “Compression of high-energy laser pulses below 5 fs”, *Opt. Lett.*, **22**, 522–524, (1997).
- [20] A. Baltuska, T. Fuji, and T. Kobayashi, “Visible pulse compression to 4 fs by optical parametric amplification and programmable dispersion control”, *Opt. Lett.*, **27**, 306–308, (2002).
- [21] A. Baltuska and T. Kobayashi, “Adaptive shaping of two-cycle visible pulses using a flexible mirror”, *Appl. Phys. B*, **75**, 427–443, (2002).
- [22] K. Yamane, Z. Zhang, K. Oka, R. Morita, M. Yamashita, and A. Suguro, “Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation”, *Opt. Lett.*, **28**, 2258–2260, (2003).
- [23] A. E. Siegman, “Lasers”, University Science, Mill Valley, California, (1986).
- [24] E. Brookner, “Phased-array radars”, *Sci. Amer.*, **252**, S76, (1985).
- [25] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses”, *Opt. Comm.*, **56**, 219–221, (1985).
- [26] O. E. Martinez, “Grating and prism compressors in the case of finite beam size”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**, 929–934, (1986).
- [27] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou, “Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **24**, 398–403, (1988).
- [28] E. B. Treacy, “Optical pulse compression with diffraction gratings”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **5**, 454, (1969).
- [29] O. E. Martinez, “Design of high- power ultrashort pulse amplifiers by expansion and recompression”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **23**, 1385–1387, (1987).
- [30] O. E. Martinez, “3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion:

- Application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **23**, 59–64, (1987).
- [31] S. P. Hatchett, C. G. Brown, T. E. Cowan, E. A. Henry, J. S. Johnson, M. H. Key, J. A. Kocha, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, R. W. Lee, A. J. Mackinnon, D. M. Pennington, M. D. Perry, T. W. Phillips, M. Roth, T. C. Sangster, M. C. Singh, R. A. Snavely, M. A. Stoyer, S. C. Wilks, and K. Yasuike, “Electron, photon, and ion beams from the relativistic interaction of petawatt laser pulses with solid targets”, *Phys. Plasmas*, **7**, 2076–2082, (2000).
- [32] J. K. Kmetec, J. J. Macklin, and J. E. Young, “0.5-TW, 125-fs Ti:Sapphire laser”, *Opt. Lett.*, **16**, 1001–1003, (1991).
- [33] S. Backus, C. G. Duffee III, G. Mourou, H. C. Kapteyn, and M. M. Murnane, “0.2-TW laser system at 1 kHz”, *Opt. Lett.*, **22**, 1256–1258, (1997).
- [34] T. Ducas, M. Littman, R. R. Freeman, and D. Kleppner, “Stark ionization of high lying states of sodium”, *Phys. Rev. Lett.*, **35**, 366–369, (1975).
- [35] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, and K. C. Kulander, “Observation of non-sequential optical field double ionization of helium”, *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 2642–2644, (1992).
- [36] K. Yamanouchi, “The next frontier”, *Science*, **295**, 1659–1660, (2002).
- [37] R. A. Fisher and J. A. Fleck, “On the phase characteristics and compression of picosecond pulses”, *Appl. Phys. Lett.*, **15**, 287–289, (1969).
- [38] C. Froely, B. Colombeau, and M. Vampouille, “Shaping and analysis of picosecond light pulses”, in *Progress in Optics XX*, E. Wolf, ed. (North-Holland, Amsterdam, 1983), 65–153, (1983).
- [39] A. M. Weiner, J. P. Heritage, and E. M. Kirschner, “High-resolution femtosecond pulse shaping”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**, 1563–1572, (1988).
- [40] A. M. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators”, *Rev. Sci. Instrum.*, **71**, 1929–1960, (2000).
- [41] A. M. Weiner, “Femtosecond optical pulse shaping and processing”, *Progress in Quantum Electron.*, **19**, 161–238, (1995).
- [42] N. Konforti, E. Maroma, and S.-T. Wu, “Phase-only modulation with twisted nematic liquid-crystal spatial light modulators”, *Opt. Lett.*, **13**, 251–253, (1988).
- [43] D. J. Cho, S. T. Thurman, J. T. Donner, and G. M. Morris, “Characteristics of a 128×128 liquid-crystal spatial light modulator for wave-front generation”, *Opt. Lett.*, **23**, 969–971, (1998).
- [44] A. M. Weiner, D. E. Leaird, S. Pastel, and J. R. Wullert, “Programmable femtosecond

- pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator”, *Opt. Lett.*, **15**, 326–328, (1990).
- [45] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Generation of high-fidelity programmable ultrafast optical waveforms”, *Opt. Lett.*, **20**, 1047–1049, (1995).
- [46] K. Ema, “Real-time ultrashort pulse shaping and pulse-shape measurement using dynamic grating”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, L2046–L2049, (1991).
- [47] C. W. Hillegas, J. X. Tull, D. Goswami, D. Strickland, and W. S. Warren, “Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses”, *Opt. Lett.*, **19**, 737–739, (1994).
- [48] J. X. Tull, M. A. Dugan, and W. S. Warren, “High resolution acousto-optic shaping of unamplified and amplified femtosecond laser pulses”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 2348, (1997).
- [49] H. Wang, Z. Zheng, D. E. Leaird, A. M. Weiner, T. A. Dorschner, J. J. Jijol, L. J. Friedman, H. Q. Nguyen, and L. A. Palmaccio, “20-fs pulse shaping with a 512-element phase-only liquid crystal modulator”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, **7**, 718–727, (2001).
- [50] G. Stobrawa, M. Hacker, T. Feurer, D. Zeidler, M. Motzkus, and F. Reichel, “A new high-resolution femtosecond pulse shaper”, *Appl. Phys. B*, **72**, 627–630, (2001).
- [51] M. Shibata, M. Hirasawa, N. Nakagawa, R. Morita, A. Suguro, H. Shigekawa, and M. Yamashita, “Experimental demonstration of phase-dispersion compensation for ultra-broadband femtosecond optical pulses generated by induced-phase modulation”, *Appl. Phys. B*, **74**, S291–S294, (2002).
- [52] L. Fanghong, M. Naohisa, Y. Narihiro, I. Yasunori, T. Haruyoshi, I. T. K. Yuji, and H. Tsutomu, “Phase modulation characteristics analysis of optically-addressed parallel-aligned nematic liquid crystal phase-only spatial light modulator combined with a liquid crystal display”, *Opt. Rev.*, **5**, 174–178, (1998).
- [53] A. M. Weiner, S. Oudin, D. E. Leaird, and D. H. Reitze, “Shaping of femtosecond pulse using phase-only filters designed by simulated annealing”, *J. Opt. Soc. Am. A*, **10**, 1112–1120, (1993).
- [54] K. Takasago, T. Itoh, M. Takekawa, K. Utoh, and F. Kannari, “Design of frequency-domain filters for femtosecond pulse shaping”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, 624–629, (1996).
- [55] K. Takasago, M. Takekawa, F. Kannari, M. Tani, and K. Sakai, “Accurate pulse shaping of femtosecond lasers using programmable phase-only modulator”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, L1430–L1433, (1996).
- [56] K. Takasago, M. Takekawa, M. Suzuki, K. Komori, and F. Kannari, “Evaluation of fem-

- tosecond pulse shaping with low-loss phase-only masks”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, **4**, 346–352, (1998).
- [57] D. Yelin, D. Meshulach, and Y. Silberberg, “Adaptive femtosecond pulse compression”, *Opt. Lett.*, **22**, 1793–1795, (1997).
- [58] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback”, *Appl. Phys. B*, **65**, 779–782, (1997).
- [59] U. Siegner, M. Haiml, J. Kunde, and U. Keller, “Adaptive pulse compression by two-photon absorption in semiconductors”, *Opt. Lett.*, **27**, 315–317, (2002).
- [60] D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg, “Adaptive real-time femtosecond pulse shaping”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**, 1615–1619, (1998).
- [61] A. G. Suzor, X. He, O. Atabek, and F. H. Mies, “Above-threshold dissociation of H_2^+ in intense laser fields”, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 515–518, (1990).
- [62] B. Sheehy and L. F. DiMauro, “Atomic and molecular dynamics in intense optical fields”, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **47**, 463–494, (1996).
- [63] P. H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. G. Muller, and D. W. Schumacher, “Softening of the H_2^+ molecular bond in intense laser fields”, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1883–1886, (1990).
- [64] T. Seideman, M. Y. Ivanov, and P. B. Corkum, “Role of electron localization in intense-field molecular ionization”, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2819–2822, (1995).
- [65] G. P. Agrawal, “Nonlinear Fiber Optics”, Academic Press, second edition, (1995).
- [66] L. Xu, N. Nakagawa, R. Morita, H. Shigekawa, and M. Yamashita, “Programmable chirp compensation for 6-fs pulse generation with a prism-pair-formed pulse shaper”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **36**, 893–899, (2000).
- [67] L. Xu, L. Li, N. Nakagawa, R. Morita, and M. Yamashita, “Application of a spatial light modulator for programmable optical pulse compression to the sub-6-fs regime”, *IEEE Photon. Tech. Lett.*, **12**, 1540–1542, (2000).
- [68] N. Karasawa, L. Li, A. Sugurao, H. Shigekawa, R. Morita, and M. Yamashita, “Optical pulse compression to 5.0 fs by use of only a spatial light modulator for phase compensation”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**, 1742, (2001).
- [69] M. Adachi, M. Hirasawa, A. Suguro, N. Karasawa, S. Kobayashi, R. Morita, and M. Yamashita, “Spectral-phase characterization and adapted compensation of strongly chirped pulses from a tapered fiber”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L24, (2003).
- [70] S. Kane and J. Squier, “Fourth-order-dispersion limitations of aberration-free chirped-pulse amplification systems”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 1237–1244, (1997).
- [71] M. D. Perry, T. ditmire, and B. C. Stuart, “self-phase modulation in chirped-pulse

- amplification”, *Opt. Lett.*, **19**, 2149–2151, (1994).
- [72] A. Efimov and D. H. Reitze, “Programmable dispersion compensation and pulse shaping in a 26-fs chirped-pulse amplifier”, *Opt. Lett.*, **23**, 1612–1614, (1998).
- [73] A. Efimov, M. Moores, N. Beach, J. Krause, and D. Reitze, “Adaptive control of pulse phase in a chirped-pulse amplifier”, *Opt. Lett.*, **23**, 1915–1917, (1998).
- [74] A. Efimov, M. D. Moores, B. Mei, J. L. Krause, C. W. Siders, and D. H. Reitze, “Minimization of dispersion in an ultrafast chirped pulse amplifier using adaptive learning”, *Appl. Phys. B*, **70**, S113–S141, (2000).
- [75] T. Brixner, M. Strehle, and G. Gerber, “Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses”, *Appl. Phys. B*, **68**, 281–284, (1999).
- [76] E. Zeek, K. Maginnis, S. Backus, U. Russek, M. Murnane, G. Mourou, H. Kapteyn, and G. Vdovin, “Pulse compression by use of deformable mirrors”, *Opt. Lett.*, **24**, 493–495, (1999).
- [77] G. Chériaux, O. Albert, V. Wänman, J. P. Chambaret, C. Féliz, and G. Mourou, “Temporal control of amplified femtosecond pulses with a deformable mirror in a stretcher”, *Opt. Lett.*, **26**, 169–171, (2001).
- [78] E. Zeek, R. Bartels, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. Backus, and G. Vdovin, “Adaptive pulse compression for transform-limited 15-fs high-energy pulse generation”, *Opt. Lett.*, **25**, 587–589, (2000).
- [79] A. Suda, O. Yu, K. Nagasaka, P. Wang, and K. Midorikawa, “A spatial light modulator based on fused-silica plates for adaptive feedback control of intense femtosecond laser pulses”, *Opt. Express.*, **9**, 2–6, (2001).
- [80] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, “Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping”, *Opt. Lett.*, **25**, 575–577, (2000).
- [81] D. Kaplan and P. Tournois, “Theory and performance of the acousto optic programmable dispersive filter used for femtosecond laser pulse shaping”, *J. De. Physique IV*, **12**, 69–75, (2002).
- [82] P. Tournois, “Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems”, *Opt. Comm.*, **140**, 245–249, (1997).
- [83] J. Rhee, T. S. Sosnowski, A. Tin, and T. Norris, “Real-time dispersion analyzer of femtosecond laser pulses with use of a spectrally and temporally resolved upconversion technique”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**, 1780–1785, (1996).
- [84] M. R. Fetterman, D. Goswami, D. Keusters, W. Yang, J.-K. Rhee, and W. S. Wilson, “Ultrafast pulse shaping: amplification and characterization”, *Opt. Express*, **3**, 366–

- 375, (1998).
- [85] D. N. Fittinghoff, J. L. Bowie, J. N. Sweetser, R. T. Jennings, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, and R. Trebino, “Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses”, *Opt. Lett.*, **21**, 884–886, (1996).
- [86] T. Brixner, A. Oehrlein, M. Strehle, and G. Gerber, “Feedback-controlled femtosecond pulse shaping”, *Appl. Phys. B*, **70**, S119–S124, (2000).
- [87] K. Takasago, A. Yada, T. Miura, M. Washio, F. Kannari, K. Torizuka, and A. Endo, “Generation of submili-joule picosecond square shaped pulses for low emittance electron generation in photocathode RF-GUN”, *Int. J. Appl. Electron.*, **14**, 151–156, (2001).
- [88] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Space-time profiles of shaped ultrafast optical waveforms”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **32**, 161–172, (1996).
- [89] J. Paye and A. Migus, “Space-time wigner functions and their application to the analysis of a pulse shaper”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**, 1480–1490, (1995).
- [90] A. Rundquist, A. Efimov, and D. Reitze, “Pulse shaping with the gerchberg-saxton algorithm”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2468–2478, (2002).
- [91] S. Guérin, L. P. Yatsenko, H. R. Jauslin, O. Faucher, and B. Lavorel, “Orientation of polar molecules by laser induced adiabatic passage”, *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 233601, (2002).
- [92] H. Sakai, S. Minemoto, H. Nanjo, H. Tanji, and T. Suzuki, “Controlling the orientation of polar molecules with combined electrostatic and pulsed, nonresonant laser fields”, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 83001, (2003).
- [93] J. K. Chee and J.-M. Liu, “Polarization-dependent parametric and raman process in a birefringent optical fiber”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **26**, 541–549, (1990).
- [94] S. G. Murdoch, R. Leonhardt, and J. D. Harvey, “Polarization modulation instability in weakly birefringent fibers”, *Opt. Lett.*, **20**, 866–868, (1995).
- [95] S. Coen, A. H. L. Chau, R. Leonhardt, J. D. Harvey, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russel, “Supercontinuum generation by stimulated raman scattering and parametric four-wave mixing in photonic crystal fibers”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 753–764, (2002).
- [96] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Programmable generation of ultrafast optical waveforms: recent advances in theory and technology”, *Proc. SPIE*, **2377**, 208–219, (1995).
- [97] T. Brixner and G. Gerber, “Femtosecond polarization pulse shaping”, *Opt. Lett.*, **26**, 557–559, (2001).
- [98] R. A. Kaindl, M. Wurm, K. Reimann, P. Hamm, A. M. Weiner, and M. Woerner, “Generation, shaping, and characterization of intense femtosecond pulses tunable from

- 3 to 20 μm ", *J. Opt. Soc. Am. B*, **17**, 2086–2094, (2000).
- [99] F. Eickemeyer, R. A. Kaindl, M. Woerner, T. Elsaesser, and A. M. Weiner, "Controlled shaping of ultrafast electric field transients in the mid-infrared spectral range", *Opt. Lett.*, **25**, 1472–1475, (2000).
- [100] T. Witte, D. Zeidler, D. Proch, K.-L. Kompa, and M. Motzkus, "Programmable amplitude- and phase-modulated femtosecond laser pulses in the mid-infrared", *Opt. Lett.*, **7**, 131–133, (2002).
- [101] H.-S. Tan, W. S. Warrena, and E. Schreiber, "Generation and amplification of ultrashort shaped pulses in the visible by a two-stage noncollinear optical parametric process", *Opt. Lett.*, **26**, 1812–1814, (2001).
- [102] H. S. Tan, E. Schreiber, and W. S. Warren, "High-resolution indirect pulse shaping by parametric transfer", *Opt. Lett.*, **27**, 439–441, (2002).
- [103] M. Hacker, G. Stobrawa, R. Sauerbrey, T. Buckup, M. Motzkus, M. Wildenhein, and A. Gehner, "Micromirror slm for femtosecond pulse shaping in the ultraviolet", *Appl. Phys. B*, **76**, (2003).
- [104] M. Hacker, T. Feurer, R. Sauerbrey, T. Lucza, and G. Szabo, "Programmable femtosecond laser pulses in the ultraviolet", *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**, 866–871, (2001).
- [105] Y. Nabekawa and K. Midorikawa, "Broadband sum frequency mixing using noncollinear angularly dispersed geometry for indirect phase control of sub-20-femtosecond UV pulses", *Opt. Express.*, **11**, 324–338, (2003).
- [106] D. E. Leaird and A. M. Weiner, "Femtosecond optical packet generation by a direct space-time pulse shaper", *Opt. Lett.*, **24**, 853–855, (1999).
- [107] T. Feurer, J. C. Vaughan, R. M. Koehl, and K. A. Nelson, "Multidimensional control of femtosecond pulses using a programmable liquid crystal matrix", *Opt. Lett.*, **27**, 652–654, (2002).
- [108] J. C. Vaughan, T. Feurer, and K. A. Nelson, "Automated two-dimensional femtosecond pulse shaping", *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2489–2495, (2002).
- [109] J. A. Salehi, A. M. Weiner, and J. P. Heritage, "Coherent ultrashort light pulse code-division multiple access communication systems", *IEEE J. Lightwave Technol.*, **8**, 478–491, (1990).
- [110] H. Tanabe and F. Kannari, "Two-dimensional optical data transmission with space-time conversion combined with code division multiple access", *Optical Rev.*, **9**, 100–105, (2002).
- [111] L. Wang and A. M. Weiner, "Programmable spectral phase coding of an amplified spontaneous emission light source", *Opt. Comm.*, **167**, 211–224, (1999).

- [112] Y. Teramura, A. Shirakara, and F. Kannari, “Spatial phase information transmission through single-mode fibers by coherence function shaping of low coherent light”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, L1416–L1418, (1999).
- [113] Y. Teramura and F. Kannari, “Spatial phase information transmission through an optical fiber by coherence function synthesis”, *Appl. Opt.*, **40**, 6466–6473, (2001).
- [114] H. Tsuda, H. Takenouchi, T. Ishii, K. Okamoto, T. Goh, K. Sato, A. Hirano, T. Kurokawa, and C. Amano, “Spectral encoding of 10 Gbit/s femtosecond pulses using a high resolution arrayed-waveguide grating”, *Electron. Lett.*, **35**, 1186–1188, (1999).
- [115] D. E. Leaird, S. Shen, A. M. Weiner, A. Sugita, S. Kamei, M. Ishi, and K. Okamoto, “Generation of high-repetition-rate WDM pulse trains from an arrayed-waveguide grating”, *IEEE Photonics Tech. Lett.*, **13**, 221–223, (2001).
- [116] A. M. Weiner, J. P. Heritage, R. J. Hawkins, R. N. Thurston, E. M. Kirschner, D. E. Leaird, and W. J. Tomlinson, “Experimental observation of the fundamental dark soliton in optical fibers”, *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2445–2448, (1988).
- [117] F. G. Omenetto, B. P. Luce, and A. J. Taylor, “Genetic algorithm pulse shaping for optimum femtosecond propagation in optical fibers”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 2005–2009, (1999).
- [118] F. G. Omenetto, A. J. Taylor, M. D. Moores, and D. H. Reitze, “Adaptive control of femtosecond pulse propagation in optical fibers”, *Opt. Lett.*, **26**, 938–940, (2001).
- [119] F. G. Omenetto, D. H. Reitze, B. P. Luce, M. D. Moores, and A. J. Taylor, “Adaptive control methods for ultrafast pulse propagation in optical fibers”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, **8**, 690–698, (2002).
- [120] M. Maier, W. Kaiser, and J. A. Giordmaine, “Intense light bursts in the stimulated raman effect”, *Phys. Rev. Lett.*, **17**, 1275–1277, (1966).
- [121] J. A. Armstrong, “Measurement of picosecond laser pulse width”, *Appl. Phys. Lett.*, **10**, 16–18, (1967).
- [122] E. P. Ippen and C. V. Shank, “Dynamic spectroscopy and subpicosecond pulse compression”, *Appl. Phys. Lett.*, **27**, 488–490, (1975).
- [123] G. A. K.-W. K. L. Sala and G. E. Hall, “CW autocorrelation measurements of picosecond laser pulses”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **16**, 990–996, (1980).
- [124] F. Salin, P. Georges, G. Roger, and A. Brun, “Single-shot measurement of a 52-fs pulse”, *Appl. Opt.*, **26**, 4528–4531, (1987).
- [125] J. C. Diels, E. W. V. Stryland, and D. Gold, “Femtosecond time resolved fluorescence”, In C. V. Shank, E. P. Ippen, and S. L. Shapiro, editors, *Picosecond Phenomena V*, 117–120, (1978).

- [126] J. M. Diels, J. J. Fontaine, D. C. McMichael, and F. Simoni, “Control and measurement of ultrashort pulse shaped (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy”, *Appl. Opt.*, **24**, 1270–1282, (1985).
- [127] K. Naganuma, K. Mogi, and H. Yamada, “General-method for ultrashort light-pulse chirp measurement”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **25**, 1225–1233, (1989).
- [128] K. Naganuma, K. Mogi, and H. Yamada, “Time direction determination of asymmetric ultrashort optical pulses from 2nd-harmonic generation auto-correlation signals”, *Appl. Phys. Lett.*, **54**, 1201–1202, (1989).
- [129] D. N. Fittinghoff, “Temporal and spectral measurements of ultrashort laser pulses”, SC104, in *Short course notes, OSA Annual meeting 2002* (2002).
- [130] D. T. Reid, M. Padgett, C. McGowan, W. E. Sleat, and W. Sibbett, “Light-emitting diodes as measurement devices for femtosecond laser pulses”, *Opt. Lett.*, **22**, 233–235, (1997).
- [131] V. Wong and I. A. Walmsley, “Analysis of ultrashort pulse-shape measurement using linear interferometers”, *Opt. Lett.*, **19**, 287–289, (1994).
- [132] I. Walmsley and V. Wong, “Characterization of the electric field of ultrashort optical pulses”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**, 2453–2463, (1996).
- [133] D. J. Kane and R. Trebino, “Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **29**, 571–579, (1993).
- [134] K. W. Delong, R. Trebino, J. Hunter, and W. E. White, “Simultaneous recovery of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**, 2463–2466, (1995).
- [135] K. W. Delong, R. Trebino, J. Hunter, and W. E. White, “Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**, 2206–2215, (1994).
- [136] P. Shea, M. Kimmel, X. Gu, and R. Trebino, “Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement”, *Opt. Lett.*, **26**, 932–934, (2001).
- [137] C. Iaconis and I. A. Walmsley, “Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **35**, 501–509, (1999).
- [138] C. Iaconis and I. A. Walmsley, “Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses”, *Opt. Lett.*, **23**, 792–794, (1998).
- [139] C. Iaconis, V. Wong, and I. A. Walmsley, “Direct interferometric techniques for characterizing ultrashort optical pulses”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, **4**, 285–294, (1998).
- [140] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, “Fourier-transform method of fringe-pattern

- analysis for computer-based tomography and interferometry”, *J. Opt. Soc. Am.*, **72**, 156–160, (1982).
- [141] C. Dorrer, “Influence of the calibration of the detector on spectral interferometry”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 1160–1168, (1999).
- [142] C. Dorrer and I. A. Walmsley, “Accuracy criterion for ultrashort pulse characterization techniques: application to spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 1019–1029, (2002).
- [143] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. D. Silvestri, and O. Svelto, “Adaptive pulse compression to 3.7 fs of a cascaded hollow fiber supercontinuum”, In *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2003)*, Technical Digest, Postconference Edition, (Optical Society of America, Washington DC), CFI3, (2003).
- [144] M. Motzkus, (private discussion).
- [145] J. W. Nicholson, J. Jasapara, W. Rudolph, F. G. Omenetto, and A. J. Taylor, “Full-field characterization of femtosecond pulses by spectrum and cross-correlation measurements”, *Opt. Lett.*, **24**, 1774–1776, (1999).
- [146] R. Koumans and A. Yariv, “Time-resolved optical gating based on dispersive propagation: a new method to characterize optical pulses”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **36**, 137–144, (2000).
- [147] R. Koumans and A. Yariv, “Pulse characterization at 1.5 μ m using time-resolved optical gating based on dispersive propagation”, *IEEE Photon. Technol. Lett.*, **12**, 666–668, (2000).
- [148] C. Froehly, A. Lacourt, and J. Vienot, “Time impulse response and time frequency response of optical pupils: Experimental confirmations and applications”, *J. Opt. (France)*, **4**, 183, (1973).
- [149] J. Piasecki, B. Colombeau, M. Vampouille, C. Froehly, and J. A. Arnaud, “Nouvelle méthode de mesure de la réponse impulsionnelle des fibres optiques”, *Appl. Opt.*, **19**, 3749–3755, (1980).
- [150] D. N. Fittinghoff, (private discussion).
- [151] R. G. W. Norrish and G. Porter, “Chemical reactions produced by very high light intensities”, *Nature*, **164**, 658, (1949).
- [152] A. H. Zewail, “Laser femtochemistry”, *Science*, **242**, 1645–1653, (1988).
- [153] N. Bloembergen and A. H. Zewail, “Energy redistribution in isolated molecules and the question of mode-selective laser chemistry revisited”, *J. Phys. Chem.*, **88**, 5459–5465, (1984).
- [154] D. J. Tannor and S. A. Rice, “Control of selectivity of chemical reaction via control of

- wave packet evolution”, *J. Chem. Phys.*, **83**, 5013–5018, (1985).
- [155] T. Baumert, M. Grosser, R. Thaiweiser, and G. Gerber, “Femtosecond time-resolved molecular multiphoton ionization: The Na_2 system”, *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 3753–3756, (1991).
- [156] N. F. Scherer, A. Matro, L. D. Ziegler, M. Du, R. J. Carlson, J. A. Cina, and G. R. Fleming, “Fluorescence-detected wavepacket interferometry. 2. Role of rotations and determination of the susceptibility”, *J. Chem. Phys.*, **96**, 4180, (1992).
- [157] M. Shapiro and P. Brumer, “Control of unimolecular reactions using coherent light”, *Chem. Phys. Lett.*, **126**, 541–546, (1986).
- [158] C. Chen, Y.-Y. Yin, and D. S. Elliott, “Interference between optical transitions”, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 507–510, (1990).
- [159] L. Zhu, V. Kleiman, X. Li, S. P. Lu, K. Trentelman, and R. J. Gordon, “Coherent laser control of the product distribution obtained in the photoexcitation of HI”, *Science*, **270**, 77–80, (1995).
- [160] L. Zhu, K. Suto, J. A. Fiss, R. Wada, T. Seideman, and R. J. Gordon, “Effect of resonances on the coherent control of the photoionization and photodissociation of HI and DI”, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 4108–4111, (1997).
- [161] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann, “Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laserfield. A new concept and experimental results”, *J. Chem. Phys.*, **92**, 5363–5376, (1990).
- [162] K. Bergmann, H. Theuer, and B. W. Shore, “Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules”, *Rev. Mod. Phys.*, **70**, 1003–1025, (1998).
- [163] B. W. Shore, K. Bergmann, A. Kuhn, S. Schiemann, and J. Oreg, “Laser-induced population transfer in multistate systems: A comparative study”, *Phys. Rev. A*, **45**, 5297–5300, (1992).
- [164] M. N. Kobrak and S. A. Rice, “Equivalence of the Kobrak-Rice photoselective adiabatic passage and the Brumer-Shapiro strong field methods for control of product formation in a reaction”, *J. Chem. Phys.*, **109**, 1–10, (1998).
- [165] A. Shnitman, I. Sofer, I. Golub, A. Yogev, M. Shapiro, Z. Chen, and P. Brumer, “Experimental observation of laser control: Electronic branching in the photodissociation of Na_2 ”, *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 2886–2889, (1996).
- [166] B. Kohler, V. V. Yakovlev, J. Che, J. L. Krause, M. Messina, K. R. Wilson, N. Schwentner, R. M. Whitnell, and Y. Yan, “Quantum control of wave packet evolution with tailored femtosecond pulses”, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3360–3363, (1995).

- [167] C. J. Bardeen, Q. Wang, and C. V. Shank, “Selective excitation of vibrational wave packet motion using chirped pulses”, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 3410–3413, (1995).
- [168] C. J. Bardeen, Q. Wang, and C. V. Shank, “Femtosecond chirped pulse excitation of vibrational wavepackets in Iod690 and bacteriorhodopsin”, *J. Phys. Chem. A*, **102**, 2759–2766, (1998).
- [169] J. Cao, C. J. Bardeen, and K. R. Wilson, “Molecular “ π Pulse” for total inversion of electronic state population”, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 1406–1409, (1998).
- [170] J. Cao, C. J. Bardeen, and K. R. Wilson, “Molecular π pulses: Population inversion with positively chirped short pulses”, *J. Chem. Phys.*, **113**, 1898–1909, (2000).
- [171] J. S. Melinger, S. R. Gandhi, A. Hariharan, D. Goswami, and W. S. Warren, “Adiabatic population transfer with frequency-swept laser pulses”, *J. Chem. Phys.*, **101**, 6439–6454, (1994).
- [172] J. H. Shirley, “Solution of the Schrödinger equation with a Hamiltonian periodic in time”, *Phys. Rev.*, **138**, B979–B987, (1965).
- [173] C. C. Tannoudji and S. Reynaud, “Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multi-level atom in an intense laser beam”, *J. Phys. B*, **10**, 345–363, (1977).
- [174] J. P. C. Kroon, H. A. J. Senhorst, H. C. W. Beijerinck, B. J. Varharr, and N. F. Verster, “Rabi oscillations in the optical pumping of a metastable neon beam with a cw dye laser”, *Phys. Rev. A*, **31**, 3724–3732, (1985).
- [175] A. P. Peirce, M. A. Dahleh, and H. Rabitz, “Optimal control of quantum-mechanical systems: Existence, numerical approximation, and applications”, *Phys. Rev. A*, **37**, 4950–4964, (1988).
- [176] C. M. Tesch, K.-L. Kompa, and R. V. Riedle, “Design of optimal infrared femtosecond laser pulses for the overtone excitation in acetylene”, *Chem. Phys.*, **267**, 173–185, (2001).
- [177] R. S. Judson and H. Rabitz, “Teaching lasers to control molecules”, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 1500–1503, (1992).
- [178] W. S. Warren, H. Rabitz, and M. Dahleh, “Coherent control of quantum dynamics: The dream is alive”, *Science*, **259**, 1581–1589, (1993).
- [179] C. J. Bardeen, V. V. Yakovlevand, K. R. Wilson, S. D. Carpenter, P. M. Weber, and W. S. Warren, “Feedback quantum control of molecular electronic population transfer”, *Chem. Phys. Lett.*, **280**, 151–158, (1997).
- [180] W. C. Wiley and I. H. McLaren, “Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution”, *Rev. Sci. Instrum.*, **26**, 1150–1157, (1955).

- [181] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses”, *Science*, **282**, 919–922, (1998).
- [182] M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, M. Strehle, and G. Gerber, “Controlling the femtochemistry of $\text{Fe}(\text{CO})_5$ ”, *J. Phys. Chem. A*, **103**, 10381–10387, (1999).
- [183] D. Meshulach and Y. Silberberg, “Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse”, *Nature*, **396**, 239–242, (1998).
- [184] D. Meshulach and Y. Silberberg, “Coherent quantum control of multiphoton transitions by shaped ultrashort optical pulses”, *Phys. Rev. A*, **60**, 1287–1292, (1999).
- [185] T. C. Weinacht, J. Ahn, and P. H. Bucksbaum, “Controlling the shape of a quantum wavefunction”, *Nature*, **397**, 233–235, (1999).
- [186] T. C. Weinacht, J. Ahn, and P. H. Bucksbaum, “Measurement of the amplitude and phase of a sculpted Rydberg wave packet”, *Phys. Rev. Lett.*, **80**, 5508–5511, (1998).
- [187] T. Hornung, R. Meier, D. Zeidler, K. Kompa, D. Proch, and M. Motzkus, “Optimal control of two-photon transitions: Bright and dark femtosecond pulses designed by a self-learning algorithm”, In *12th Int. Conf. Ultrafast Phenomena, OSA Technical Digest*, Charleston, (Optical Society of America, Washington DC.), 147–149, (2000).
- [188] S. Vajda, A. Bartelt, E. Kaposta, T. Leisner, C. Lupulescu, S. Minemoto, P. R. Francisco, and L. Wöste, “Feedback optimization of shaped femtosecond laser pulses for controlling the wavepacket dynamics and reactivity of mixed alkaline clusters”, *Chem. Phys.*, **267**, 231–239, (2001).
- [189] T. Feurer, A. Glaß, T. Rozgonyi, R. Sauerbrey, and G. Szabo, “Control of photodissociation process of CsCl using a feedback-controlled self-learning fs-laser system”, *Chem. Phys.*, **267**, 223–229, (2001).
- [190] T. Brixner, N. H. Damrauer, P. Niklaus, and G. Gerber, “Photosensitive adaptive femtosecond quantum control in the liquid phase”, *Nature*, **417**, 57–60, (2001).
- [191] T. Hornung, R. Meier, D. Zeidler, K. Kompa, D. Proch, and M. Motzkus, “Optimal control of one- and two-photon transitions with shaped femtosecond pulses and feedback”, *Appl. Phys. B*, **71**, 277–284, (2000).
- [192] T. Ando, T. Urakami, H. Itoh, and Y. Tsuchiya, “Optimization of resonant two-photon absorption with adaptive quantum control”, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 4265–4267, (2002).
- [193] T. Hornung, R. Meier, and M. Motzkus, “Optimal control of molecular states in a learning loop with a parameterization in frequency and time domain”, *Chem. Phys. Lett.*, **326**, 445–453, (2000).
- [194] D. Zeidler, S. Frey, K. L. Kompa, and M. Motzkus, “Evolutionary algorithms and their

- application to optimal control studies”, *Phys. Rev. Lett. A*, **64**, 023420–1–12, (2001).
- [195] B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht, and P. H. Bucksbaum, “Coherent control using adaptive learning algorithms”, *Phys. Rev. A*, **63**, 063412–1–12, (2001).
- [196] T. Brixner, B. Kiefer, and G. Gerber, “Problem complexity in femtosecond quantum control”, *Chem. Phys.*, **267**, 241–246, (2001).
- [197] T. Brixner, N. H. Damrauer, B. Kiefer, and G. Gerber, “Liquid-phase adaptive femtosecond quantum control: Removing intrinsic intensity dependencies”, *J. Chem. Phys.*, **118**, 3629–3701, (2003).
- [198] S.-H. Lee, K.-H. Jung, J. H. Sung, K. H. Hong, and C. H. Nam, “Adaptive quantum control of dcm fluorescence in the liquid phase”, *J. Chem. Phys.*, **117**, (2002).
- [199] C. Daniel, L. G. J. Full, C. Lupulescu, A. M. J. Manz, S. Vajda, and L. Wöste, “Deciphering the reaction dynamics underlying optimal control laser fields”, *Science*, **299**, 536–539, (2003).
- [200] H. Rabitz, “Shaped laser pulses as reagents”, *Science*, **299**, 525–526, (2003).
- [201] S. H. Autler and C. H. Townes, “Stark effect in rapidly varying field”, *Phys. Rev.*, **100**, 703–722, (1955).
- [202] R. J. Levis, G. M. Menkir, and H. Rabitz, “Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses”, *Science*, **292**, 709–712, (2001).
- [203] R. J. Levis and H. Rabitz, “Closing the loop on bond selective chemistry using tailored strong field laser pulses”, *J. Phys. Chem. A*, **106**, 6427–6444, (2002).
- [204] R. Itakura, K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, and F. Kannari, “Dissociative ionization of ethanol in chirped intense laser fields”, *J. Chem. Phys.*, **119**, 4179–4186, (2003).
- [205] G. Floquet, “Sur les équations différentielles linéaires à coefficients périodiques”, *C. R. Acad. Sci. (Paris)*, **91**, 880–882, (1880).
- [206] A. D. Bandrauk, “Molecules in Laser Fields”, Marcel Dekker Inc. (New York), (1993).
- [207] S. I. Chu, “Generalized floquet theoretical approaches to multiphoton and nonlinear optical processes in intense laser fields”, *Advances in Chemical Physics*, **73**, 730–799, (1989).
- [208] D. Telnov and S. I. Chu, “Floquet formulation of time-dependent density functional theory”, *Chem. Phys. Lett.*, **264**, 466–476, (1997).
- [209] S. I. Chu, “Recent developments in semiclassical Floquet theories for intense-field multiphoton processes”, *Adv. At. Mol. Phys.*, **21**, 197–253, (1985).
- [210] D. Zeidler, S. Frey, W. Wohlleben, M. Motzkus, F. Busch, T. Chen, W. Kiefer, and A. Materny, “Optimal control of ground-state dynamics in polymers”, *J. Chem. Phys.*,

- 116**, (2002).
- [211] J. L. Herek, W. Wohlleben, R. J. Cogdell, D. Zeidler, and M. Motzkus, “Quantum control of energy flow in light harvesting”, *Nature*, **417**, (2002).
- [212] J. Kunde, B. Baumann, S. Arlt, F. Morier-Genoud, U. Siegner, and U. Keller, “Adaptive feedback control of ultrafast semiconductor nonlinearities”, *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 924–926, (2000).
- [213] J. Kunde, B. Baumann, S. Arlt, F. M. Genourd, U. Siegner, and U. Keller, “Optimization of adaptive feedback control for ultrafast semiconductor spectroscopy”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**, 872–881, (2001).
- [214] A. M. Weiner, D. E. Leaird, G. P. Wiederrecht, and K. A. Nelson, “Femtosecond multiple-pulse impulsive stimulated Raman scattering spectroscopy”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**, 1264–1275, (1991).
- [215] R. Stoian, M. Boyle, A. Thoss, A. Rosenfeld, G. Korn, E. E. B. Campbell, and I. V. Hertel, “Laser ablation of dielectrics with temporally shaped femtosecond pulses”, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 353–355, (2002).
- [216] M. Spyridaki, E. Koudoumas, P. Tzanetakis, C. Fotakis, R. Stoian, A. Rosenfeld, and I. V. Hertel, “Temporal pulse manipulation and ion generation in ultrafast laser ablation of silicon”, *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 1474–1476, (2003).
- [217] R. Bartels, S. Backus, E. Zeek, L. Misoguti, G. Vdovin, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, “Shaped-pulse optimization of coherent emission of high-harmonic soft x-rays”, *Nature*, **406**, 164–166, (2000).
- [218] X. Shengbo, D. H. Reitze, and R. L. Windeler, “Control of supercontinuum generation in microstructured fibers: Theory and experiment”. in preparation for *Opt. Lett.*
- [219] D. H. Reitze and X. Shenbo, “Characterization and adaptive control of continuum from microstructured fiber”, In *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2002)*, Technical Digest, Postconference Edition, (Optical Society of America, Washington DC), CThL2, (2002).
- [220] M. Takeoka, D. Fujishima, and F. Kannari, “Optimization of ultrashort-pulse squeezing by spectral filtering with the Fourier pulse-shaping technique”, *Opt. Lett.*, **26**, 1592–1594, (2001).
- [221] D. Fujishima, F. Kannari, M. Takeoka, and M. Sasaki, “Generation of entanglement between frequency bands by nonlinear fiber propagation and spectral pulse shaping”, *Opt. Lett.*, **28**, 275–277, (2003).
- [222] I. Brener, P. C. M. Planken, M. C. Nuss, M. S. C. Luo, S. L. Chuang, L. Pfeiffer, D. E. Leaird, and A. M. Weiner, “Coherent control of terahertz emission and carrier

- populations in semiconductor heterostructures”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**, 2457–2469, (1994).
- [223] A. M. Weiner, “Enhancement of coherent charge oscillations in coupled quantum wells by femtosecond pulse shaping”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**, 2480–2491, (1994).
- [224] C. M. Tesch and R. V. Riedle, “Quantum computation with vibrationally excited molecules”, *Phys. Rev. Lett.*, **89**, 157901, (2002).
- [225] J. H. Posthumus, A. J. Giles, M. R. Thompson, and K. .Coldling, “Field-ionization, Coulomb explosion of diatomic molecules in intense lase fields”, *J. Phys. B*, **29**, 5811–5829, (1996).

第 2 章

波形整形器とその時間空間結合作用

2.1 はじめに

フェムト秒レーザパルスを高精度・高自由度の波形整形するために，波形整形器に求められる性能は，ある固定の変調のみを加えられれば良いのではなくて，コンピュータ制御可能な可変変調が行えることである．そのため，高精度波形整形システムを構築する際には電子光 (Electrical-optical: EO) インターフェースとなる変調器を用いる必要がある．光を時間的に変調する場合，ポッケルス効果などを利用した EO 変調器を用いることが可能である．しかし，そうした直接的な変調では ns オーダが限界となる．フェムト秒レーザパルスの波形整形に用いるための高速な変調を実現するには異なる方式が必要となる．外部モード同期法の考えを延長し，時間域変調素子を多段で並べる手法なども初期では提案されたが，高速性に限界がある等の理由により，現在ではフーリエ面で変調を加える手法が最も一般的であり，また最近複屈折性音響光学結晶を用いて分散制御する手法も提案されている．

周波数制御を用いた $4f$ 型波形整形器における EO 変調器は LC-SLM であり，音響光学結晶を用いた AOPDF においては音響波を介して EO 変換を行なっている．特に $4f$ 型波形整形器は超高速コヒーレント制御に広く用いられ始めているが，時間波形を変調すると空間パターンまでも変調してしまう時間空間結合効果の存在が指摘されている．

そこで，本章ではこれらの波形整形器の時間特性，空間特性を解析し，その時間空間プロファイルを初めて直接測定することを目指す．

そのために，始めに波形整形器の原理と理論について紹介する．その後， $4f$ 型波形整形器の時間空間特性の定式化を行なう．同時に実験システムを構築する場合には，ミスアライメントの影響を理解することは重要であるので，そうした状況の時間空間プロファイルの定式化を初めて行なう．さらに時間空間結合効果の超高速コヒーレント制御への影響を考察するために，その効果を直接時間空間 2 次元測定によって観測する．

2.2 $4f$ 型波形整形器

$4f$ 型波形整形器は C. Froely 等によって提案され¹⁾，本波形整形器はフェムト秒レーザ波形整形で今日最も広く用いられている²⁾．Fig. 2.1 に光学的セットアップを示す． $4f$ 型波形整形器と呼ばれるのはその光学系の構成に基づく．入力パルスは最初のグレーティングによって空間的に

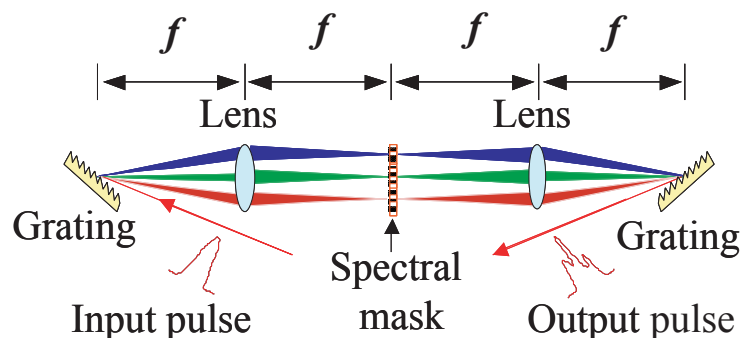


Fig.2.1 Optical configuration of a $4f$ pulse shaper. Input pulse is optically Fourier transformed by a grating and a lens. The input pulse is spatially dispersed into frequency at the grating. A lens collimates the lateral dispersed light and images a Fourier transformed spectrum on the back focal plane of the lens, where a computer controlled liquid crystal spatial light modulator (LC-SLM) is placed for phase modulator. Symmetrical optical configuration inverse Fourier transforms and puts the light again back to temporal domain.

スペクトルに分散される．これを横分散と呼ぶ．横分散を受けた光は最初のレンズによって平行にコリメートされる．レンズの後ろ焦点面に入力パルスのスペクトル面，つまりフーリエ変換面が形成される．このフーリエ面に変調マスクを配置し変調を加える．変調マスクには初期には固定マスクが用いられたが³⁾，現在では，LC-SLM を用いるのが一般的である^{2, 4, 5)}．LC-SLM では各ピクセルは空間アドレス化されており，異なる空間に異なる位相あるいは振幅変調を加えることができる．フーリエマスクとしては LC-SLM 以外には AOM を用いたもの⁶⁾や，Deformable mirror を用いたもの⁷⁾等がある．

光は変調後再びレンズとグレーティングによって時間域に戻される．マスクに変調が加わっていない場合には $4f$ 波形整形器は分散が加わらない零分散セットアップになっており，入力パルスと出力パルスは同一のパルスである．

$4f$ 型波形整形器にはレンズを用いたセットアップ以外にも凹面鏡を用いたもの，凹面シリンドリカルミラーやレンズを用いた物などが存在する．光学系の配置の方法自体にも様々な可能性があるがその各配置に関しての考察は最近 A. Präkelt 等が報告している⁸⁾．本研究では，断らない限りレンズを用いた波形整形器を使用した．凹面鏡などの反射オプティクスを用いると，光が

透過する素子が LC-SLM のみになるので波形整形器の理想的な零分散セットアップを構築できる。しかしながら仮にレンズで分散が存在した場合でも、波形整形器自身の分散は LC-SLM を用いて補正可能なはずである。その考えに基づき本研究ではレンズを採用した Fig. 2.1 のセットアップを用いたが、実際にも本研究で用いたスペクトル幅 (45 nm (半値全幅 (Full Width at Half Maximum: FWHM))) を有する光源ではレンズを使用したことによる分散の影響は観測されなかった。

本研究で用いた波形整形器のパラメータを示す。グレーティングにはグループ周期 $d^{-1} = 651 \text{ line/mm}$ のホログラフィックグレーティング、フーリエレンズには近赤外波長域で校正された $f = 145 \text{ mm}$ のアクロマティックレンズ (Meles Griot LD Tablet Lens)、LC-SLM には Cambridge Research & Instruments 社製 SLM-128-NIR を用いている。LC-SLM は 128 ピクセルの位相変調器であり、各ピクセルサイズは幅 $97 \mu\text{m}$ 高さ 2 mm であり、ピクセル間には $3 \mu\text{m}$ の幅のピクセルギャップが存在する。ピクセルギャップは光は透過するが、位相変調は加わらない。光パルスを用いた場合の損傷閾値は、 10 mJ/cm^2 である。グレーティングへの入射角は $\theta_i = -12.23^\circ$ 、1 次回折光を用い中心波長 800 nm の時その回折角は $\theta_d(\lambda_0) = 47.17^\circ$ である。波形整形器の波長帯域は十分にスペクトル帯域の広いオプティクスを使用すれば、LC-SLM の変調が加わるピクセルに入射可能なスペクトルと等しい。即ち、この入射角で用いた場合本波形整形器は 100 nm の波長帯域を有する。また、Fig. 2.1 には示していないが、本研究で用いた LC-SLM は縦偏光方向成分のみに変調が加わるので、フーリエレンズと LC-SLM の間に広帯域アクロマティック 0 次半波長板 (CVI 社製 ACWP-700-1100-10-2) を配置し偏光方向を 90° 回転している。特に断らない限り、本研究の実験及び計算は全て本波形整形器のパラメータで行なっている。

2.2.1 時間特性

ここでは波形整形器によって整形される光パルスの時間特性を定式化する。同時にグレーティングの高次分散の影響も考える。近年フェムト秒レーザーの短パルス化が進み、使用可能な光の帯域が拡大してきた。こうした光を扱う広帯域な波形整形器を構築する場合には波形整形器で用いるグレーティングの高次分散の影響を考える必要が出てくる。高次分散の時間波形に及ぼす影響はすでに H. Wang 等によって示されているが⁵⁾、ここでは高次分散をどのように取り扱うのが適切であるかを更に詳細に議論する。

グレーティング-レンズによる時間フーリエ変換作用

波形整形器の時間特性のみを考える場合には幾何光学的に扱えば十分である。グレーティングは時間と空間を結合する素子として知られる。グレーティングに入射した光の 1 次回折光の回折

角は

$$\lambda = d\{\sin \theta_i + \sin \theta_d(\lambda)\} \quad (2.1)$$

で与えられる．ここで λ は波長， d は回折格子のグループ間隔， θ_i ， θ_d は各々グレーティングへの入射角と回折角である．

グレーティングとレンズはレンズの焦点距離 f だけ離れた位置に配置されるので，レンズの表面において，各角周波数成分の中心角周波数 ω_0 からの距離のずれ x は空間分散または横分散とよばれ

$$x(\omega) = f \tan[\theta_d(\omega) - \theta_d(\omega_0)] \quad (2.2)$$

で与えられる．幾何光学ではレンズは光を平行にコリメートする作用をするので，レンズの後ろ焦点面，即ちマスクが配置されるフーリエ面においてもその空間分散は Eq. (2.2) と同じ形式で表される．マスクに入射するスペクトル成分を計算するためには Eq. (2.1) 及び(2.2) の 2 式が基本式となる．

角周波数・波長域解析

Eq. (2.2) の左辺を角周波数 ω の関数で表示することを試みる．入射パルスの時間フーリエ変換像がマスク面上で結像することを示すためには，Eq. (2.2) の左辺が時間 t のフーリエ変換の基底である ω の線形関数になっている事を示せばよい．そこで Eq. (2.2) を角周波数 $\omega = \omega_0$ でマクローリン展開する．すると，

$$\begin{aligned} x(\omega) &= x(\omega_0) + \frac{1}{1!} x'(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!} x''(\omega_0)(\omega - \omega_0)^2 + \cdots \\ &= f \left\{ \frac{\partial \theta_d}{\partial \omega} \Big|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \theta_d}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \cdots \right\} \end{aligned} \quad (2.3)$$

となる．Eq. (2.1) と $\lambda = 2\pi c/\omega$ の関係式より，

$$\frac{\partial \theta_d}{\partial \omega} = -\frac{2\pi c}{\omega^2 d \cos(\theta_d(\omega))} \quad (2.4)$$

である．ただし c は光速である．Eq. (2.3) の 1 次の項に対して 2 次の項が十分小さく無視できるとき，Eq. (2.3) は

$$x(\omega) = -\frac{2\pi c f}{\omega_0^2 d \cos(\theta_d(\omega_0))} (\omega - \omega_0) \equiv \alpha(\omega - \omega_0) \quad (2.5)$$

と書き換えられる．Eq. (2.5) はグレーティングとレンズによって光がフーリエ変換され，入射した光が角周波数毎に異なる空間分散を受けレンズの後ろ焦点面において入射光電界の時間フーリエ変換像が投影されることを示している．本表式が W. Wefers と K. Nelson によるオリジナルな

表式⁹⁾である．マスクを通過した光は再びレンズとグレーティング対によって逆の作用を受けることを勘案すれば，波形整形器後の光は

$$E_{\text{out}}(\omega) = E_{\text{in}}(\Omega)M(\alpha\Omega) \quad (2.6)$$

で表されることがわかる．ここで， $\Omega = \omega - \omega_0$ ， $M(\alpha\Omega)$ はマスク関数であり， α はマスク面上の空間 x を変換する定数である．

次に波形整形器のマスク面に等波長で光が分散されとした場合の表示を試みる．すなわち Eq. (2.2) を，波長 λ の関数として表示する．Eq. (2.3) と全く同様の手順によって， $\lambda = \lambda_0$ を中心としてマクローリン展開する．ここで λ_0 は中心波長である．今度は角周波数ではなく，波長を基底としてマクローリン展開するので，1 次の項に着目すれば空間分散が波長の線形関数として表されることになり，Eq. (2.5) は，

$$x(\lambda) = \frac{f}{d \cos \theta_d(\lambda_0)}(\lambda - \lambda_0) \quad (2.7)$$

となる．

グレーティングの高次分散の影響

Eq. (2.5) や Eq. (2.7) などの近似式は入射パルスのスペクトル幅が広がってくるとマクローリン近似の 2 次以上の項が無視できなくなる．この角周波数や波長に対して非線形な項をグレーティングの高次分散と呼ぶ．広帯域の光を扱う場合には，入射パルスのどの波長成分がスペクトル面のどの空間座標にマッピングするかをより正確に記述する必要がある．そこで，Eq. (2.1)，Eq. (2.2) に $\lambda = 2\pi c/\omega$ の関係を使うことによって近似を使わない形式

$$x(\omega) = f \tan \left\{ \arcsin \left(\frac{2\pi c}{d\omega} - \sin \theta_i \right) - \theta_d(\omega_0) \right\}. \quad (2.8)$$

が導出できる．

高次分散の影響を考察するために，本研究で用いた波形整形器について角周波数の 1 次近似や波長の 1 次近似である Eq. (2.5) や Eq. (2.7) を用いた場合と，近似を使わない形式 Eq. (2.8) を用いた場合で比較した．波長 λ とフーリエ面での空間座標の関係を Fig. 2.2 に示す．当然 Eq. (2.8) の曲線が誤差の無い正確な位置を与える関数であるが，中心波長からずれるほど近似を用いた Eq. (2.5) や Eq. (2.7) はその誤差が大きくなることがわかる．特に Eq. (2.5) の角周波数を基底として展開した近似式の場合ではその誤差は無視できないほどに大きい．これらの近似による誤差が実際にどの程度波形に影響を及ぼすかを調べるために，それぞれの近似条件を用いてパルス在设计し比較した．その結果を Fig. 2.3 に示す．波形整形器のパラメータには § 2.2(p. 45) で示したものを適用した．位相マスクには，交代位相マスク $(0, \pi, 0, \pi, \dots)$ を加えた．入射パルスにはガウス型スペクトルのスペクトル幅 45 nm (FWHM) を持つフーリエ限界パルスを仮定した．

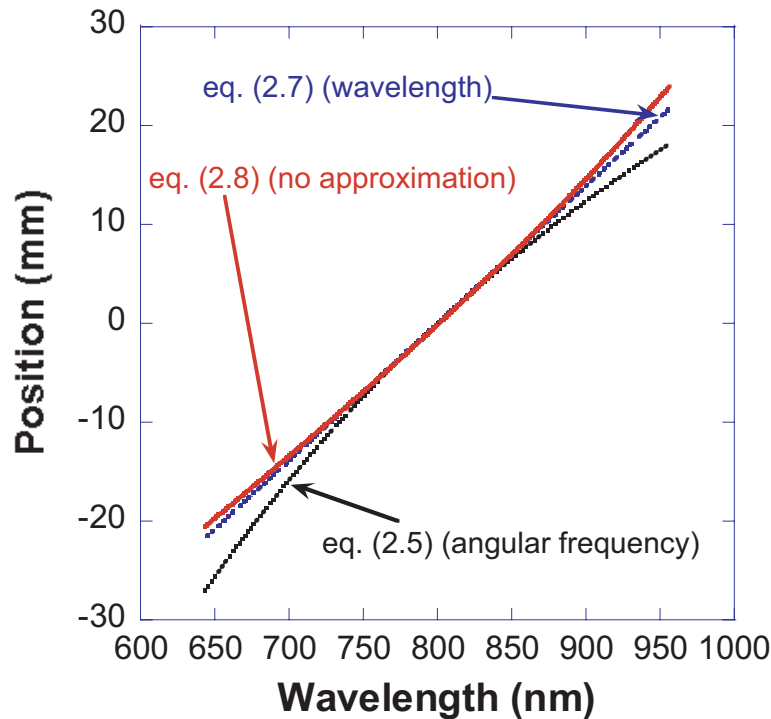


Fig.2.2 Spatial coordinates of the incident pulse frequency at the spectral plane are shown in respect to the wavelength.

W. Wefers と K. Nelson の表式に従い ω によるマクローリン近似を用いた場合には、Eq. (2.5) より直感的に時間 t のフーリエ像がマスク面上に得られることが理解できる利点があるものの、Fig. 2.2 よりその近似条件はスペクトル帯域が非常に狭い範囲でしか成り立たないことがわかる。実際に Fig. 2.3 では、パルス幅実際よりも長く計算されてしまう。一方、等波長で分散されると近似した Eq. (2.7) の場合には、Fig. 2.3 の結果は近似を用いない表式で計算したパルス幅より多少狭くはなるもののそれほどの差は現れない。

これらの結果より、波形整形器の計算を行なう際にはマスク面に入射パルスが等周波数に分散されると近似するのではなく、等波長に分散される波形整形器のモデルを採用して計算を行なうべきであることがわかる。理論的なマスクを計算機上で設計してそのマスクを実際に波形整形器に印可するような場合には、ここでの計算誤差は実験で得られる波形の誤差に直接結びつくために高次分散の影響を正しく取り扱うことは重要である。

今回の実験で用いた光源のスペクトル帯域では Eq. (2.7) の近似でも十分ではあるが、波長帯域がさらに拡大した場合にはグレーティングの高次分散の影響はやはり無視できなくなるはずであるので、本研究では Eq. (2.8) の近似を用いない式で波形整形器を表しマスクを設計することにした。

本論文では特に断りのない限り LC-SLM 上での空間座標を求める際には近似を使わない Eq. (2.8) の変換式を採用している。

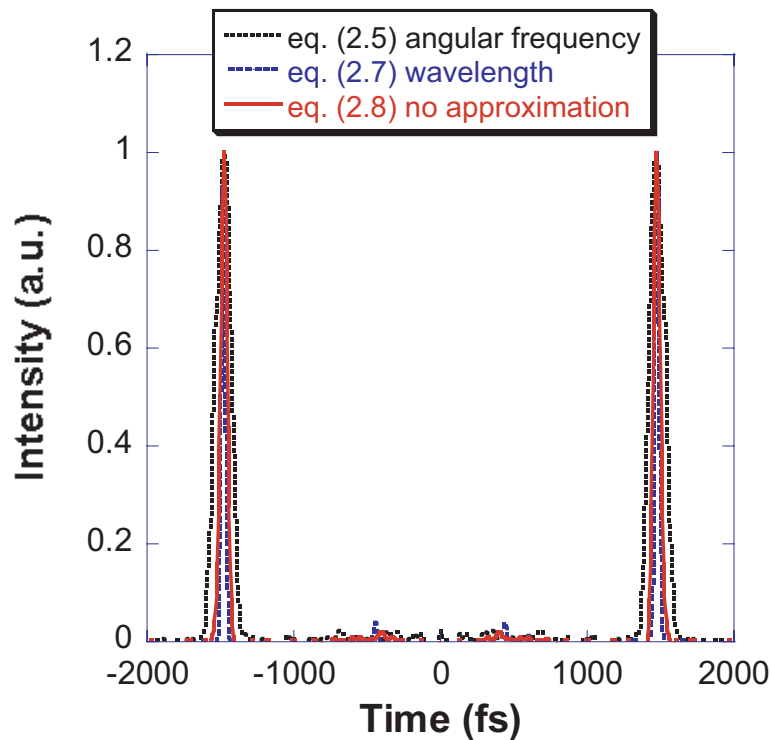


Fig.2.3 Calculated double pulses with various approximations when alternate phase mask is applied to the LC-SLM. Solid line represents the ideal shaped waveform, where dotted line represents calculation results with various approximations, which is described in the text.

2.2.2 時間空間特性

$4f$ 型の波形整形器の時間空間結合の効果について記述する¹⁰⁻¹²⁾。はじめにフーリエ変換公式など数学的な準備を行ない，波形整形器に用いる光学素子をそれぞれ定式化する。その後に波形整形器の理想的なセットアップの時とアライメントがずれた場合に関して波形整形器の光電界を時間と空間の両方で記述する。高精度波形整形を実現するにあたり，時空間結合は特に重要であるので，その詳細な解析結果について述べる。

包絡線近似表示と数学的準備

本節では，波形整形器への入射パルスは包絡近似が成り立つものとし，

$$e_1(x, t) = e_{in}(x, t) \exp(i\omega_0 t) \quad (2.9)$$

と表す。 $e_{in}(x, t)$ は位相を含んだ包絡線表示である。

フーリエ変換及び、逆変換は

$$F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} f(t) \exp(-i\omega t) dt \quad (2.10a)$$

$$f(t) = -\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} F(\omega) \exp(i\omega t) d\omega \quad (2.10b)$$

で定義する .

電界の時間 t に関するフーリエ変換及びフーリエ逆変換を表すのに , $E(\omega) = \mathcal{F}_t\{e(t)\}$ や , $e(t) = \mathcal{F}_\omega^{-1}\{E(\omega)\}$ の表式も用いるものとする . e の様に小文字で表した時には時間領域 , E の様に大文字で表した時には角周波数領域を示すものとする . 一方ビームの進行方向に直交する方向の空間 x に関するフーリエ変換及び逆変換は $\tilde{e}(k) = \mathcal{F}_x\{e(x)\}$ や , $e(x) = \mathcal{F}_k^{-1}\{\tilde{e}(k)\}$ と表す . 空間角周波数領域は $\tilde{\sim}$ をつけて表すものとする .

レンズ , グレーティング , 自由空間伝搬の定式化

はじめに光パルスがグレーティング , レンズ及び自由伝搬した時に受ける作用についてまとめる . ビームの断面方向の空間を x , 進行方向を z , 時間を t とし , それらの関数として光電界 $e(x, z, t)$ を表す .

1. レンズによる作用¹³⁾

焦点距離 f レンズの前焦点面における複素光電界を $e(x, -f, t)$ または角周波数表示で $E(x, -f, \omega)$ と表したときに , レンズの後ろ焦点面 $z = f$ における複素光電界は

$$e(x, f, t) = \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda f}} \tilde{e}\left(\frac{2\pi x}{\lambda f}, -f, t\right) \quad (2.11a)$$

$$E(x, f, \omega) = \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda f}} \tilde{E}\left(\frac{2\pi x}{\lambda f}, -f, \omega\right) \quad (2.11b)$$

である .

2. 近軸近似による自由区間伝搬¹⁴⁾

$z = z_0$ での複素光電界を $e(x, z_0, t)$ または角周波数表示で $E(z, z_0, \omega)$ で表したとき , ある点 $z = z_1$ まで z 方向に伝搬した複素光電界は , フレネル近似を用いると

$$\tilde{e}(k, z_1, t) = \tilde{e}(k, z_0, t) \exp\left\{-\frac{i(z_1 - z_0)\lambda k^2}{4\pi}\right\} \quad (2.12a)$$

$$\tilde{E}(k, z_1, \omega) = \tilde{E}(k, z_0, \omega) \exp\left\{-\frac{i(z_1 - z_0)\lambda k^2}{4\pi}\right\} \quad (2.12b)$$

である .

3. グレーティングによる作用

以下の表式は O. Martinez によって与えられている¹⁵⁾ . グレーティングによる 1 次回折光

は入射直前の電界包絡線が $E_{\text{in}}(x, z_{\text{in}}, \omega)$ で表される場合，回折直後の複素光電界は，

$$E(x, z_{\text{diff}}, \omega) = \sqrt{\beta} E_{\text{in}}(\beta x, z_{\text{in}}, \Omega) \exp(i\gamma\Omega x) \quad (2.13)$$

となる．ここで $\Omega = \omega - \omega_0$ である．1次回折光の方向から光が入射するアンチパラレルに配置されているグレーティングの場合には，

$$E(x, z_{\text{diff}}, \omega) = \sqrt{\frac{1}{\beta}} E_{\text{in}}\left(\frac{x}{\beta}, z_{\text{in}}, \omega\right) \exp\left(i\frac{\gamma}{\beta}\Omega x\right) \quad (2.14)$$

である．ただし， β, γ はグレーティングのパラメータによって決定する定数であり，

$$\beta = \frac{\cos \theta_i}{\cos \theta_d(\omega_0)} \quad (2.15a)$$

$$\gamma = \frac{2\pi}{\omega_0 d \cos \theta_d(\omega_0)} \quad (2.15b)$$

である．ここで d はグレーティングのグルーブ間隔， θ_i は入射角， θ_d は回折角である．

波形整形器の時間空間特性 (理想状態)

理想的な状態の波形整形器の時間空間特性は K. Nelson や J. Paye 等によって定式化されている⁹⁻¹¹⁾．ここでは，W. Wefers と K. Nelson による波形整形器からの出射パルスの時空間プロファイルの表式を示す¹⁰⁾．彼らは，入射パルスが Eq. (2.9) で表されるときに出力複素光電界 $e_{\text{out}}(x, t)$ が

$$e_{\text{out}}(x, t) = \exp(i\omega_0 t) \int e_{\text{in}}(-(x - x'), t - t') g(x', t') dx' dt' \quad (2.16)$$

と示されることを導出した．ここで $g(x, t)$ は

$$g(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\beta\lambda_0 f} M\left(\frac{2\pi x}{\beta\lambda_0 f}\right) \delta\left(t + \frac{\gamma}{\beta}x\right) \quad (2.17a)$$

$$g(x, t) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\gamma\lambda_0 f} M\left(-\frac{2\pi t}{\gamma\lambda_0 f}\right) \delta\left(x + \frac{\beta}{\gamma}t\right) \quad (2.17b)$$

のいずれかで表される．ここで $\delta(x)$ はディラックのデルタ関数であり，

$$\delta(x - a) = \begin{cases} 1 & (x = a) \\ 0 & (x \neq a) \end{cases} \quad (2.18a)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \delta(x) dx = 1 \quad (2.18b)$$

の性質を有する． $M(k)$ はマスク関数 $m(x)$ の x に関する空間フーリエ変換関数である．

Eq. (2.16) , Eq. (2.17) より出力波形はマスクの畳み込みと入力パルスの電界の畳み込みで表されるので , 角波数空間と角周波数空間では単なる乗算の形で表され

$$E_{out}(k, \omega) = \tilde{E}_{in}(-k, \Omega)m \left(-\frac{\lambda_0 f}{2\pi}(\gamma\omega + \beta k) \right) \quad (2.19)$$

である .

整形された出力波形の空間と時間の結合性は Eqs. (2.16) , (2.17) においてデルタ関数内のみに見れる . 時間空間結合の度合はパラメータ γ/β によって決定され , それは Eq. (2.15) より

$$\frac{\gamma}{\beta} = \frac{2\pi}{\omega_0 d \cos \theta_i} \quad (2.20)$$

で与えられる定数である .

時間空間結合とは , $4f$ 型波形整形器において時間波形を変調すると出力電界パルスの空間プロファイルまでもが変調を受けてしまう効果として知られている . 定性的には , グレーティングとレンズ対が各波長ごとの空間フーリエ変換像を LC-SLM 面上に結像するために , その面において空間プロファイルが各周波数成分毎に畳み込んだ形をするために , そこでの変調が出力電界の空間にも影響を与えると説明できる .

波形整形器の時間空間特性 (ミスコンフィギュレーション状態)

次に , 波形整形器が理想状態からずれた場合についてその出力プロファイルを定式化する¹²⁾ . Fig. 2.4 に , 本解析における波形整形器の図を示す . z 軸はパルスの伝搬方向を正にとり , x 軸は

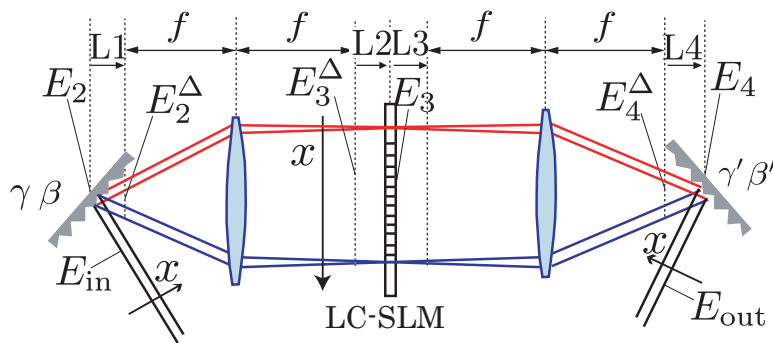


Fig.2.4 Axis of coordinates and the arrangement of components in a $4f$ pulse shaper. The variables are described in the text.

図の矢印の方向を正とした . また , 入射側のグレーティングの定数を γ, β とし , 出射側を γ', β' とした .

入射パルスを Eq. (2.9) で表すと , グレーティング直後 の光電界は Eq. (2.13) を用いて ,

$$E_2(x, \omega) = \sqrt{\beta} E_{in}(\beta x, \Omega) \exp(i\gamma\Omega x) \quad (2.21)$$

となる．空間角周波数 k 空間で表すと，

$$\tilde{E}_2(k, \omega) = \frac{1}{\sqrt{\beta}} \tilde{E}_{\text{in}} \left(\frac{1}{\beta} k - \frac{\gamma}{\beta} \Omega, \Omega \right) \quad (2.22)$$

となる．さらに L_1 伝搬後 は，Eq. (2.12b) より，

$$\tilde{E}_2^{\Delta}(k, \omega) = \tilde{E}_2(k, \omega) \exp \left(-\frac{L_1 \lambda_0 k^2}{4\pi} \right) \quad (2.23)$$

となる．これが第 1 のレンズの前焦点面における電界表示であるので，Eq. (2.11b) より，後ろ焦点面 での電界表示は，

$$E_3^{\Delta-}(x, \omega) = \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda_0 f}} \tilde{E}_2^{\Delta} \left(\frac{2\pi x}{\lambda_0 f}, \omega \right) \quad (2.24)$$

となる．さらに L_2 伝搬 することによってマスク直前での電界が，

$$\tilde{E}_3(k, \omega) = \tilde{E}_3^{\Delta-}(k, \omega) \exp \left(-\frac{iL_2 \lambda_0 k^2}{4\pi} \right) \quad (2.25)$$

と求まる．これを x 空間で表示した場合には， $L_2 \neq 0$ の条件の元でフレネルの回折積分計算を行なうと，

$$E_3(x, \omega) = -\frac{1}{\sqrt{L_2 \lambda_0}} \exp \left(-i\frac{\pi}{4} \right) E_3^{\Delta-}(x, \omega) \otimes_x \exp \left(-i\frac{\pi}{L_2 \lambda_0} x^2 \right) \quad (2.26)$$

となる．但し \otimes_x は x に関する畳み込み演算子を表す．

マスク直後 の電界はマスク関数 $m(x)$ をかけて

$$E'_3(x, \omega) = E_3(x, \omega) m(x) \quad (2.27)$$

となる．さらに L_3 伝搬 後は

$$\tilde{E}_3^{\Delta+}(k, \omega) = \tilde{E}'_3(k, \omega) \exp \left(-\frac{iL_3 \lambda_0 k^2}{4\pi} \right) \quad (2.28)$$

である．これを x 空間で表示した場合には，

$$E_3^{\Delta+}(k, \omega) = -\frac{1}{\sqrt{L_3 \lambda_0}} \exp \left(-i\frac{\pi}{4} \right) E'_3(x, \omega) \otimes_x \exp \left(-i\frac{\pi}{L_3 \lambda_0} x^2 \right) \quad (2.29)$$

となる．この電界は第 2 のレンズの前焦点面に来ているので 後ろ焦点面 での光電界は，Eq. (2.11a) より，

$$E_4^{\Delta}(x, \omega) = \sqrt{\frac{2\pi}{\lambda_0 f}} \tilde{E}_3^{\Delta+} \left(\frac{2\pi x}{\lambda f}, \omega \right) \quad (2.30)$$

である．これを k 空間で表現すれば，

$$\tilde{E}_4^\Delta(k, \omega) = -\sqrt{\frac{\lambda_0 f}{2\pi}} E_3^{\Delta+} \left(-\frac{\lambda_0 f}{2\pi}, \omega \right) \quad (2.31)$$

である．

グレーティングの距離が L_4 だけ伸びていた場合，グレーティング直前の電界は Eq. (2.12b) を用いて，

$$\tilde{E}_4(k, \omega) = \tilde{E}_4^\Delta(k, \omega) \exp \left(-\frac{iL_4 \lambda_0 k^2}{4\pi} \right) \quad (2.32)$$

となる．これがグレーティングによって作用されるので，グレーティング直後の波形整形器の出力電界は，Eq. (2.14) より，

$$E_{\text{out}}(x, \omega) = \frac{1}{\sqrt{\beta'}} E_4 \left(\frac{x}{\beta'}, \omega \right) \exp \left(i \frac{\gamma'}{\beta'} \Omega x \right) \quad (2.33)$$

となる．出力電界を k 空間で表示すると，

$$\tilde{E}_{\text{out}}(x, \omega) = \sqrt{\beta'} \tilde{E}_4(\beta' k - \gamma' \Omega, \omega) \quad (2.34)$$

となる．出力電界表示 $\tilde{E}_{\text{out}}(k, \omega)$ を入力電界 $\tilde{E}_{\text{in}}(k, \omega)$ で表現するには，すでに必要な式変形は上記で済んでいるので，単純に Eq. (2.34) から Eq. (2.21) まで逆順に代入してゆくだけでよい．

計算を進めると， $L_2 > 0$ ， $L_3 > 0$ の条件のもと，

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{\text{out}}(k, \omega) = & \frac{1}{\lambda_0 \sqrt{L_2 L_3}} \sqrt{\frac{\beta'}{\beta}} \exp \left(-i \frac{\pi}{2} \right) \\ & \left[\left[\left[\left\{ \tilde{E}_{\text{in}} \left(-\frac{\beta' k + (\gamma' - \gamma) \Omega}{\beta}, \Omega \right) \exp \left\{ -i \frac{\lambda_0 L_1}{4\pi} (\beta' k - \gamma' \Omega)^2 \right\} \right\} \right] \right. \\ & \otimes_{x'} \exp \left\{ -i \frac{\lambda_0 f^2}{4\pi L_2} (\beta' k - \gamma' \Omega)^2 \right\} \left. \right] m \left(-\frac{\lambda_0 f}{2\pi} (\beta' k - \gamma' \Omega) \right) \\ & \otimes_{x'} \exp \left\{ -i \frac{\lambda_0 f^2}{4\pi L_3} (\beta' k - \gamma' \Omega)^2 \right\} \left. \right] \exp \left\{ -i \frac{\lambda_0 L_4}{4\pi} (\beta' k - \gamma' \Omega)^2 \right\} \end{aligned} \quad (2.35)$$

となる．但し $x' = -\frac{\lambda_0 f}{2\pi} (\beta' k - \gamma' \Omega)$ である．

$L_2 = L_3 = 0$ の場合には，

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{\text{out}}(k, \omega) = & \tilde{E}_{\text{in}} \left(\frac{-\beta' k + (\gamma' - \gamma) \Omega}{\beta}, \Omega \right) m \left(-\frac{\lambda_0 f}{2\pi} (\beta' k - \gamma' \Omega) \right) \\ & \exp \left\{ -i \frac{(L_1 + L_4) \lambda_0}{4\pi} (\beta' k - \gamma' \Omega)^2 \right\} \end{aligned} \quad (2.36)$$

となる．

Eq. (2.36) の式で理想的な波形整形器の場合には, $L_2 = L_3 = 0$ の条件に加えて, $L_1 = L_4 = 0$, 更に $\beta = \beta'$, $\gamma = \gamma'$ なので, Eq. (2.19) に一致する.

今マスク関数 $m(x)$ が位相マスクの場合には, $\beta \neq \beta'$, $\gamma \neq \gamma'$ のグレーティングの回転角が合っていない場合を除いて, ミスアライメントの影響は全て複素指数関数の内部に現れるので, 波形整形器のミスアライメントの影響は時間領域ではスペクトル位相, 空間領域には空間周波数位相に影響を与えると理解できる.

グレーティングの角度がミスアライメントされていた状態の場合, つまり $\beta \neq \beta'$, $\gamma \neq \gamma'$ の場合に注目すると, ミスアライメントの影響は Eq. (2.35) や Eq. (2.36) の入射電界 $\tilde{E}_{in}(k, \omega)$ の波数空間 k に作用することがわかる. これは出力電界の異なるスペクトルが異なる波数の値を示すことを意味する. グレーティングは入射電界を空間的に波長に分解するが, 出力側グレーティングの角度が入力側と異なれば, それぞれのグレーティングでの横分散力が異なるので, 出力側グレーティングで入射側グレーティングで受けた分の横分散を補正することができない. そのため空間的にスペクトル毎に異なる方向で波形整形器から出射するようになるという直感的理解とも一致する. その他の項には入射と出射グレーティングのパラメータが結合した形式は現れない.

一方, グレーティングの距離が異なる距離に配置されている場合 (L_1 および L_4) は, Eq. (2.36) 中の位相項に作用する. つまり, グレーティングの距離のみがずれた場合には出力電界の位相のみを変化させる. 一般にグレーティングの距離が理想的な $4f$ 状態からずれた場合には, 線形チャープ (2 次分散) が波形整形器で加わるとされる. これは Eq. (2.36) から正しいことがわかる. 簡単のため入射ビームに平面波を仮定すると入射電界 $\tilde{E}_{in}(k, \omega)$ はある空間角周波数 $k = k_0$ を持ち, 波数関数は δ 関数として表現される. すると Eq. (2.36) の第 3 項は $\Omega^2(L_1 + L_4)$ の関数である. そのためにグレーティングの距離のズレは出力パルスに線形チャープを加えることがわかる. 但し, ここで注意しなくてはいけないのは入力ビームが有限の空間プロファイルを持つ場合には $k = k_0$ 以外の値が存在するために Eq. (2.36) の第 3 項は k^2 の関数にもなるので, グレーティングの距離を変化させると出力電界の波数域の位相がゆがむ. 波数域の位相の 2 次分散は空間域でも 2 次の分散関数になるので波面が 2 次に歪むことを示している. ここで Eq. (2.36) のマスク関数 $m(x)$ に着目すれば, マスク関数で 2 次の位相分散を加えた時にはグレーティングがずれた場合と同じ項の形状 $(\beta'k - \gamma'\Omega)^2$ が現れることがわかる. つまり, グレーティングの距離を変化させることによる周波数及び波数領域の変調はマスクで 2 次分散を加えることによって周波数も波数も補正可能である. グレーティングの距離を変え線形チャープを誘起した場合は, 時間空間結合効果から逃れられないが, 逆にグレーティングの距離のミスアライメントによって引き起こされた時間空間結合効果は線形チャープを補正するマスクを印可することによって波数も周波数も補正される. また, Eq. (2.36) によれば, 波形整形器は必ずしも $4f$ セットアップになっている必要はなく $L_1 = -L_4$ の関係が満たされていれば $4f$ セットアップと等価であることがわかる. この知見はアライメント手順を知る上で重要である. ただし, 入射側と出射側のグレーティングとレンズ間の距離の差があまりにも大きい場合, 第 1 レンズと第 2 レンズでの光の屈折角に

大きな差が出てくるために，収差の影響を受けやすくなると考えられる．

レンズの距離が適切でない場合は Eq. (2.35) の畳み込み関数の位相項に影響がでる．即ちこの影響によって時間域の位相及び空間域の波面の双方が線形チャープする．特に波面がチャープすることは即ち出力電界は入力電界とは異なる発散角で伝搬していくことを示している．焦点距離が f の 2 枚のレンズを $2f$ 間隔以外の距離で配置した場合には出力ビームが発散角を持つようになるという幾何光学的な直感的理解とも一致する．Eq. (2.35) からわかるようにこのレンズの距離のズレはいかなるマスク関数を加えたところで，補正できない．そのためにレンズの距離のアライメントは特に注意を要する．

2.2.3 時間空間特性の測定

フェムト秒レーザーパルスの時間空間測定

前節で述べた波形整形器の時間空間結合を測定するためには，時間と空間の同時測定が必要となる．そこで，ここでは時空間プロファイルの測定に空間周波数干渉法 (Spatial Spectral Interferometry: SSI) 法¹⁶⁾を 2 次元測定に拡張し，波形整形器後の時空間プロファイルを初めて同時に測定した¹²⁾．

フェムト秒レーザーはその高速性ゆえ，その波形を正確に測定するのは高度な技術が必要となる．§ 1.3.2(p. 13) で示したようにこれまでフェムト秒レーザーパルス波形を測定する様々な手法が提案されてきた．光電界を正確に記述するためには，時間と空間の両方を正確に記述する必要がある．しかしながらフェムト秒レーザーパルスの時間空間の同時測定はこれまでほとんど報告されてきていない．2 次元 SLM を用いた 2 次元波形整形器を用いて^{17, 18)}空間的に異なる位置に異なる間隔のパルス列を生成した実験では，その包絡線を測定するために SHG 相互相関測定の測定器に CCD(charge-coupled device) を用いた例が報告されている¹⁷⁾．CCD のようなアレイ型測定器を用いることによって空間分解することが可能になる．しかしこの手法では光パルスの包絡線の測定にとどまる．さらに 2 つのパルスの時間遅延を変化させるために光路をスキャンする必要があり，本当の意味での時間空間の同時測定にはなっていない．時間空間プロファイルの同時測定を行なうためにはワンショット計測を行なう必要がある．2003 年には 2 次元 SHG 相互相関測定をさらに発展させて，空間分解 FROG(Spatial Resolved FROG: SR-FROG)¹⁹⁾が報告されたが，パルスの時間波形を再構築するために FROG では 2 次元画像が必要なため，やはり時間軸のスキャンは避けられない．

フェムト秒レーザーを用いた超高速コヒーレント技術において，時間と空間に着目した応用はまだ始まったばかりである．近年，フォトンクス結晶構造中でのフェムト秒レーザーパルスの伝搬を走査型フォントネル顕微鏡 (photon scanning tunneling microscope: PSTM) 技術と相互相関測定技術を組み合わせることによって空間分解測定をした例が報告されている²⁰⁾．こうした空間分解された測定を用いることによってフォトンクス結晶中での光の空間的な伝搬が直接可視化

できる．また 2 次元波形整形を用いることによって，空間的に異なるポンププローブを行ない，photon-polariton の時間空間的な発展を観測した例が報告されている²¹⁾．このように超高速コヒーレント過程の時間空間発展を問題とした報告例は今後ますます増えていくであろう．そのためにも，光パルスの時間空間同時測定技術の開発は重要である．

本研究で報告する 2D-SSI は時間空間をワンショットで同時に測定することができる¹²⁾．同時に SPIDER に基づく時間空間 2 次元測定も報告されたが，線形フィルタリングのみを用いる 2D-SSI は微弱光測定，高精度測定の面で有利である．

空間周波数干渉法 (Spatial Spectral Interferometry: SSI)

周波数干渉法 (Spectral Interferometry: SI) 法は信号光のリファレンスパルスからのスペクトル位相差を求めることが可能な測定法として知られている．即ちリファレンスパルスの位相が既知の場合には，信号光のスペクトル位相を特定することが可能である．Fig. 2.5 (a) に SI のセットアップを示す．SI は信号光と参照光の間に時間遅延 τ をつけた光を分光器に入射させ，周波数面に現れるフリンジを測定することによって位相を測定する手法である．光はグレーティングとレンズによって空間的に周波数に分散されグレーティングのグループと直角方向に周波数軸が形成される．干渉縞は周波数軸に沿って形成し，その干渉縞にはスペクトル位相及びスペクトル振幅の情報が含まれている．本測定法は 1 次元データのみで光電界の位相情報が得られるために高速な波形再構築が可能である．

一方 SSI 計測は SI 計測を 2 次元に拡張した測定手法である．Fig. 2.5 (b) に SSI のセットアップを示す．SSI ではもう一方の軸に空間情報を載せることによって，時間と空間の 2 次元空間の同時測定が可能となる．つまりスペクトル位相とスペクトル振幅を空間的に分解することができる．SI と SSI の違いは，SI では信号光と参照光を時間遅延 τ をつけて分光器に入射させるのに対して，SSI ではその必要がない．かわりに 2 つの光に角度をつけて入射させ，分光器のフーリエ面上で空間的に重なるようにアライメントをする．フーリエレンズには，グレーティングの分散方向のみをフーリエ変換するようにシリンドリカルレンズを用いる．いま 2 つの光を $u_{\text{ref}}(\mathbf{r}, t)$ ， $u_{\text{sig}}(\mathbf{r}, t)$ とし，

$$u_{\text{ref}}(\mathbf{r}, t) = E_{\text{ref}}(\mathbf{r}) \exp[i(\mathbf{k}_{\text{ref}} \cdot \mathbf{r} + \phi_{\text{ref}}(\mathbf{r}) - \omega t)] \quad (2.37a)$$

$$u_{\text{sig}}(\mathbf{r}, t) = E_{\text{sig}}(\mathbf{r}) \exp[i(\mathbf{k}_{\text{sig}} \cdot \mathbf{r} + \phi_{\text{sig}}(\mathbf{r}) - \omega t)] \quad (2.37b)$$

と表す．但しここで， \mathbf{k} は波数ベクトル， $\mathbf{r} = (x, y, z)$ は空間座標， ϕ_{ref} ， ϕ_{sig} はリファレンスとシグナル光の波面である．この 2 つの光が角度 2θ で入射するとき，CCD 面 (x, y, z_0) にはフリンジ $I(x, y)$ が観測され，

$$\begin{aligned} I(x, y) &= |u_{\text{ref}}(x, y, t) + u_{\text{sig}}(x, y, t)|^2 \\ &= E_{\text{ref}}^2(x, y) + E_{\text{sig}}^2(x, y) \\ &\quad + 2E_{\text{ref}}(x, y)E_{\text{sig}}(x, y) \cos[2ky \sin \theta + (\phi_{\text{ref}}(x, y) - \phi_{\text{sig}}(x, y))], \end{aligned} \quad (2.38)$$

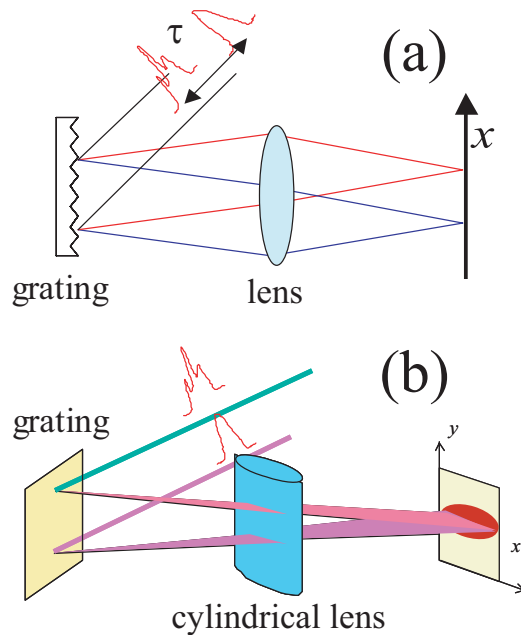


Fig.2.5 (a) Optical configuration of spectral interferometer (SI). Signal pulse and delayed reference pulse are introduced into spectrometer. Fringes form on the back focal plane of the Fourier lens where amplitude and phase information are contained. It is a one-dimensional data array. (b) Optical configuration of spatial-spectral interferometer (SSI). No time delay is set between the signal pulse and reference pulse, but they are introduced with different angle into the spectrometer. Because the wave-front of two pulses interfere, Fringe pattern forms along the spatial coordinate y . At the same time, input pulses are temporally Fourier transformed by a cylindrical lens, hence, spectral information maps on the spectral axis x . Consequently, phase and amplitude information in both time and space can be obtained from two-dimensional fringe data picture.

で与えられる．この様子を Fig. 2.6 に示す．ここで， x_ω は周波数軸にマッピングされた空間座標である．2つのビームの波面の位相差， $\phi_{\text{ref}}(x_\omega, y) - \phi_{\text{sig}}(x_\omega, y)$ は y 軸に沿って平均フリンジ間隔 $2k \sin \theta$ からのシフトとして観測される．つまりそのシフト量を測定すれば，位相情報が得られる．

SSI を用いて波形整形器後のパルスを測定した結果を Fig. 2.7 に示す．分散が加わらない零分散セットアップの波形整形器を用いた場合には，Fig. 2.7 (a) の結果に示されるようにフリンジは等間隔で y 軸方向に並ぶ．スペクトル位相変調を加えると，フリンジ間隔が変調量に従って変化する．Eq. (2.38) に示されるように 1 フリンジが 2π に対応するため，例えば 2D-SSI でのフリンジでの半フリンジのスリップは π の位相変調を表す．実際に Fig. 2.7 (b) からその様子が良くわかる．この例では中心波長付近で 0 から π への位相変調を与えた．Fig. 2.7 から明らかのように，信号光のスペクトル位相はフリンジを信号処理しなくとも，フリンジを直接測定したのみで

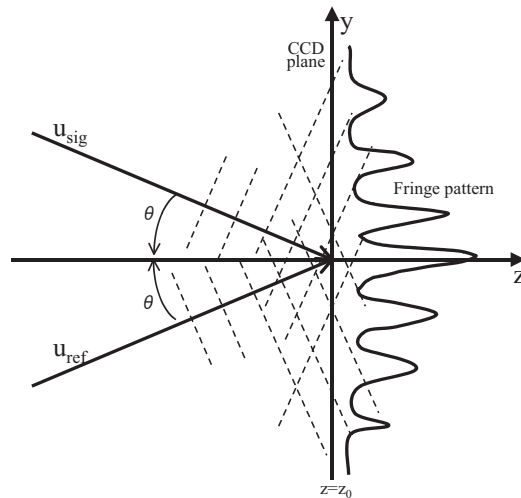


Fig.2.6 Side view of 2D-SSI fringe formation. Reference pulse and signal pulse arrive at the CCD plane with different angle, and form fringes along the y axis, whose pattern depends on the angle and the relative spatial phase of these two rays.

直感的に得られる。この点も本手法の大きな特色であり，この SSI の特性は波形整形器のアライメント時に特に効力を発揮する。

フーリエ変換位相解析法 (Fast Fourier transform phase retrieval method: FFTM)

2D-SSI では，フリンジ画像から直接位相情報が得られるものの，より定量的議論を行なうためにフリンジ画像から位相を再構築したい。その目的のためフーリエ変換法 (FFTM) を用いる²²⁾。2D-SSI の場合，2次元画像を処理する必要があるので，空間軸に沿って各波長成分毎に FFTM を行なう。簡単のため Eq. (2.38) を書き直すと，

$$\begin{aligned} d(x) &= a(x) + b(x) \cos\{\phi(x)\} \\ &= a(x) + c(x) \exp(ik_0x) + c^*(x) \exp(-ik_0x) \end{aligned} \tag{2.39}$$

となる。ここで $c(x) = \frac{1}{2}b(x) \exp\{i\phi(x)\}$ である。Eq. (2.39) をフーリエ変換すると，

$$D(k) = A(k) + C(k - k_0) + C^*(k + k_0) \tag{2.40}$$

となり，DC 成分 $A(k)$ と 2 つの AC 成分 $C(k - k_0)$ と $C^*(k + k_0)$ に分けられる。ただし大文字はそれぞれ小文字の関数のフーリエ変換を表す。この $C^*(k + k_0)$ をバンドパスフィルターで取り出し，その信号を k_0 だけ周波数シフトさせて零周波数とする。その後逆フーリエ変換し両辺対数を取ると位相項が虚数項に現れ，

$$\log\{c(x)\} = \log\left\{\frac{1}{2}b(x)\right\} + i\phi(x) \tag{2.41}$$

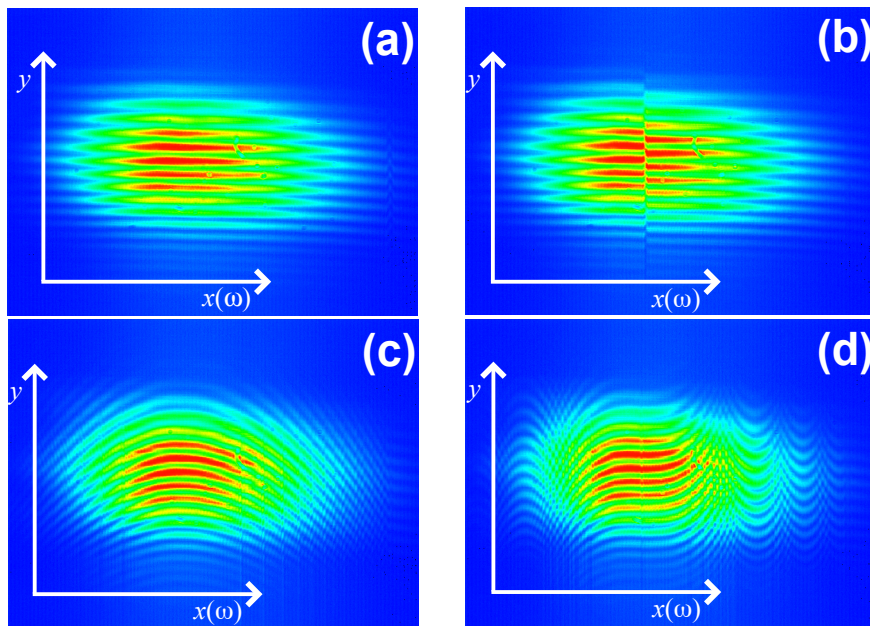


Fig.2.7 Measured SSI fringe pattern of the output pulse from a pulse shaper. (a) No modulation is applied to the LC-SLM. (b) Discrete π phase step is applied at pixel #64. (c) Second order dispersion is applied. (d) Third order dispersion is applied.

と示される．振幅は実数部に現れるので，振幅情報も同時に得ることができる．しかし，信号光の振幅は分光器を用いればスペクトル強度を直接測定することも可能であるので，一般的には振幅情報は直接分光器で信号光のスペクトルを測定することで得る．

Fig. 2.8 に，FFTM のプロセス処理の図を示す．当然高い SN で信号を測定するためには，信号光と参照光の強度を等しくし，フリンジのコントラストを向上させる必要がある．しかし Fig. 2.8 の例の場合のように仮にフリンジのコントラストが低い場合においても，FFTM プロセスの過程において DC 成分はフィルタリングされるので，フリンジ成分のみの情報が得られる．

SSI の分解能

SSI の分解能及び測定窓を決定する要因について記述する．

はじめに時間領域の分解能および測定窓について述べる．時間分解能はフーリエ変換の関係によって SSI の周波数測定帯域によって決まる．より広帯域なスペクトルを測定すれば，時間分解能は向上する．時間窓は周波数分解能によって決まる．この周波数分解能は分光器の周波数分解能及び CCD のピクセルサイズのいずれか低い方によって制限される．分光器の周波数分解能は，

$$\Delta x = \frac{\lambda_0 f}{2\pi} \beta \Delta \xi \quad (2.42)$$

によって与えられる． Δx は分光器のフーリエ面上での空間座標の広がり (FWHM または $1/e$)

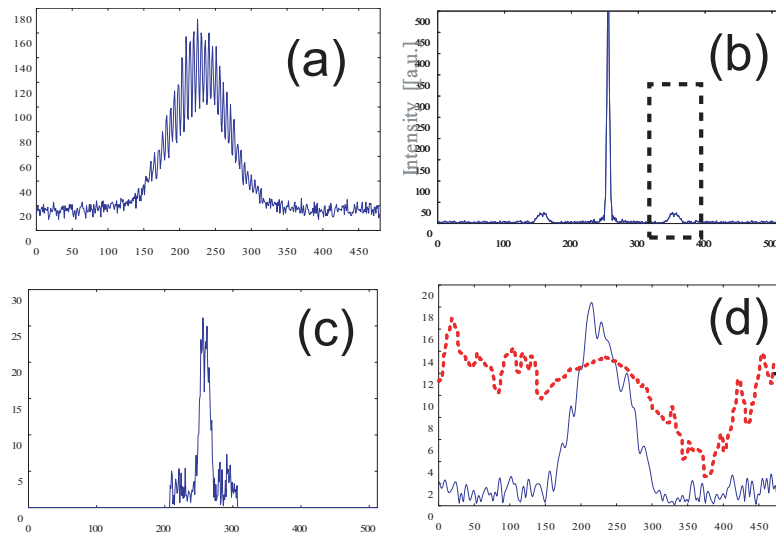


Fig.2.8 (a) Acquired data. It is a one-dimensional fringe data array. In this particular case the contrast of the fringes are not high. However, DC component can be filtered out during FFTM process. Therefore, the phase information contained in the fringe interval is still obtained; (b) Fourier transformed data of (a); (c) Band pass filtered data array from (b); (d) Reconstructed phase and intensity information by inverse Fourier transforming data (c).

であり, $\Delta\xi$ は入射ビームの空間角周波数の広がり (FWHM または $1/e$) である. 周波数分解能が単純に分光器の周波数分解能あるいは CCD のピクセルによって決定されるのは SSI の大きな利点である^{23, 24)}. SI では § 6.2.1(p. 151) に述べるように時間遅延によって決定されるフリッジ間隔によって測定時間窓が決定される. サンプリング定理に基づけば, SI と比較すると SSI では最低でも 2 倍以上のスペクトル分解能が得られることになる.

次に SSI の空間領域の分解能及び測定窓について記述する. シリンドリカルミラーを用いて, 空間測定軸に沿ってビーム径を拡大縮小するような望遠鏡を構築し空間分解能を向上させたり空間窓を拡大させたりすることができるが, ここではそうした望遠鏡は構築しないものとする. その場合には, 空間窓は単純に CCD の受光面のサイズによって決まる. 但し Fig. 2.6 で示されるようにビームが角度 θ で受光面に入射するので, 受光面の幅が w とすると, $w \cos \theta$ のビームまで測定可能である. ただし一般には θ は十分に小さいので $w \simeq w \cos \theta$ である. 一方, 空間分解能は空間軸にそって FFTM を行なうので, フリッジ間隔によって決まる. FFTM では 1 フリッジが 1 サンプルポイントに対応するので, フリッジ間隔が細かいほど高い空間分解能が得られる. フリッジ間隔はリファレンスとシグナル光の入射角によって決定するが, サンプリング定理によれば 1 フリッジには最低でも 2 つの測定点を必要とするので, 最大得られる空間分解能は, CCD のピクセルサイズの倍の大きさである. しかし実際には波面の歪みがフリッジの平均振動の摂動として現れるために, その波面の歪みを正確に測定するためには, 1 フリッジに対して

最低でも4~5点の測定点が必要である。今、1フリッジに対して n 点の測定点があった場合に、位相の情報はフリッジ間隔の摂動として現れるので、位相の分解能は $\alpha = 2\pi/n$ radとなる。仮にフリッジ周期が β mmの場合にその積は $\alpha\beta = 2\pi\Delta f$ となる。ここで Δf mm/pixelはSSIの空間分解能、即ち多くの場合はCCDのピクセルサイズである。これは、この Δf が与えられている場合、空間分解能と位相分解能の両方を同時に向上させることはできないことを示している。補助的説明をFig. 2.9に示す。

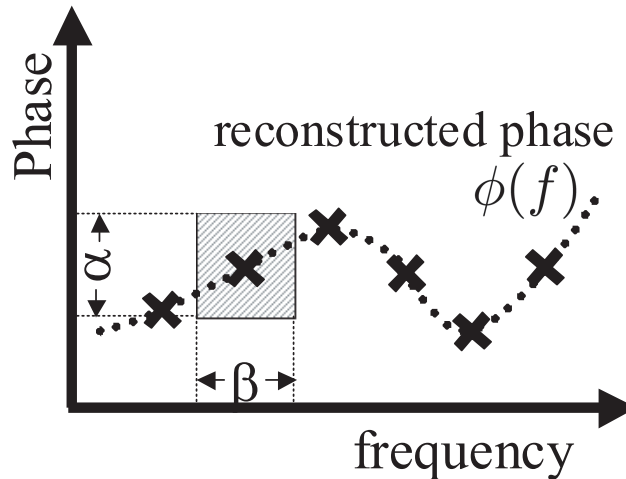


Fig.2.9 The reconstructed phase is shown in respect of frequency. Each cross represents a data point, and the square area is the ambiguity of a data point can exist. The area size is given by $\alpha\beta = 2\pi\Delta f$, where Δf is the frequency resolution of the SI apparatus.

本SSIは、2次元時間空間プロファイルを測定する場合のみではなく、空間情報を捨て去り時間波形のみを測定する用途に用いた場合でもすぐれている。SSIではフリッジ形状から直感的に位相が得られる利点のみならず、前述したようにスペクトル分解能も高い。SIの場合には1次元の周波数フリッジデータをFFTMを適用してスペクトル位相を再構築するが、SSIの場合にはFFTMを空間軸に沿って行なう。そのためフリッジ周期によって制限を受ける分解能がSIの時とは異なり空間軸に現れ、周波数軸には現れない。そのため2D-SSIではSIと比較して最低でも2倍、通常5~10倍近くスペクトル分解能が高く測定することができる。

またSIでは近年、参照パルスの時間遅延を変化させるのみで、分光器中のグレーティングの高次分散に起因する分光器のわずかな校正誤差の影響によって、見かけの線形チャープが測定されてしまうことが報告されている²⁵⁾が、SSIでは参照パルスとリファレンスパルス間に時間遅延をつけることは無いのでそうした問題は起らない。

逆に通常2D-SSIは空間軸に沿ってFFTMを行なうが、空間分解能を高く得たい場合には2つのパルスに時間遅延をつけ分光器にコリニアに入射させることによってSI測定を行ない、周波数軸に沿ってFFTMを行えばよい。

4f 型波形整形器の時間空間プロファイル

波形整形器後の時間空間プロファイルを 2D-SSI を用いて測定した．実験セットアップを Fig. 2.10 に示す．セットアップは大きく分けて波形整形器と SSI からなる．波形整形器からの出

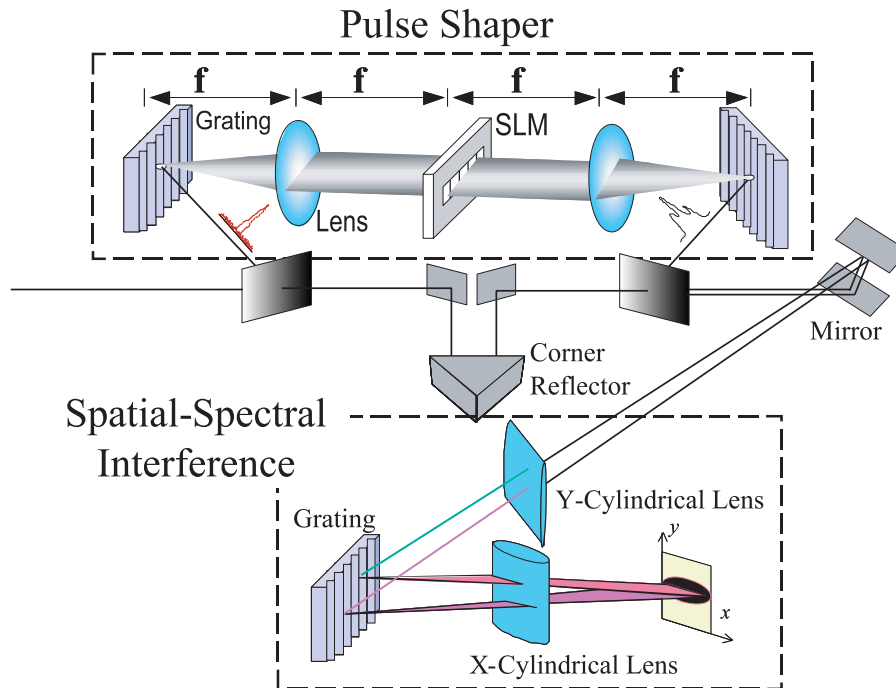


Fig.2.10 Experimental setup consisting of two parts: a pulse shaper and SSI apparatus

射光を信号光として測定するために，波形整形器を迂回する参照光を用意する．参照光と信号光を角度をつけて SSI に入射させる．SSI では周波数-空間の 2 次元を同時測定できるわけであるが，測定可能な空間は SSI への入射光のグレーティングのグループに対して平行方向（分散方向に直角方向）である．グループに対して直交する方向の空間プロファイルは平均化される．

波形整形器後の時間空間結合の影響は Eq. (2.19) で表わされるように，Fig. 2.10 の波形整形器のグレーティングの分散方向に平行方向 (x 軸) にのみ現れるために，特に興味のある x 軸を SSI で測定するためにはビームプロファイルを 90° 回転する必要がある．そのためににミラー 2 枚を 90° ねじった配置に設定したペリスコープを構築した．このことによって，ビームプロファイルも 90° 回転させることができる．逆に，時間空間結合の影響は現れない波形整形器のグレーティングのグループに平行方向 (y 軸) を測定する場合には，ペリスコープを取り外しビームを回転することなく SSI に入射させた．Fig. 2.10 中の y -cylindrical lens は，波形整形器直後のプロファイルを測定するためのイメージングレンズである．波形整形器直後のビームプロファイルを知りたいので，測定対象軸のみイメージングを行なうためにシリンダリカルレンズを用いた．波形整形器の出射側グレーティングから SSI の CCD 面の距離が 1200 mm であるので， $f_y = 300$ mm

のレンズを用いて、波形整形器の出射側グレーティングと SSI の CCD 面の中間に配置した。SSI のフーリエレンズには $f_x = 100$ mm のシリンドリカルレンズを用いている。グレーティングは $d^{-1} = 600$ line/mm, CCD 素子 (Kodak KAI-0372M) は、有効光電面寸法 8.9 mm \times 6.6 mm, 画素寸法 11.6 μ m \times 13.6 μ m 画素数 640×480 pix のものを用いた。本測定器では参照光と信号光の位相差を測定するので、分散素子であるレンズを使用することができる。そのためセットアップが簡便である。またフレネル回折の影響による信号光の波面の 2 次の位相変化は同じ距離だけ参照光も伝搬するのでやはり打ち消される。グレーティングへの入射角は $\theta_i = -17^\circ$ に設定し 1 次回折光を用いた。本セットアップでは、CCD カメラで測定されるスペクトル幅は $\Delta S = 96.8$ nm であり、そこから求まる測定器の実効的な時間分解能は 22.4 fs である。但し、光源のスペクトルの全値幅がこの測定器のスペクトル帯域よりも十分に小さいので、CCD カメラで測定されるスペクトルよりも低周波や高周波のスペクトル成分は零としても差し支えない。こうした作業を信号処理の過程で加えることによって見かけの時間分解能を向上させることができる。これは、信号処理を行なう過程でスペクトル帯域 ΔS の外のスペクトル強度は 0 であるという情報を追加したことによる影響であるので、それが明らかでない場合にはそうした信号処理を行なってはいけない。この作業を行なう理由は、時間波形を表示する際に実効的な時間分解能の間をなめらかに補完した信号表示が欲しいからである。一方 CCD のピクセルサイズに対応するスペクトル分解能は 0.15 nm であるが、Eq. (2.42) より計算されるスペクトル分解能は 0.29 nm であるので、本セットアップでは分光器がスペクトル分解能を制限している。SSI へ入射するビームは直径 2.03 mm (FWHM) のガウスプロファイルとした。空間軸に沿って FFTM を行なうので、空間分解能はフリンジ間隔によって決定されるが、そのフリンジ間隔は参照光と信号光の入力角度 θ によって決定される。 θ の値は実験中に微調整を繰り返すことが多いため、空間分解能の値は測定毎に変化するが、代表値として空間分解能 121.7 μ m が得られている。

はじめに波形整形器が正しくアライメントされている場合の SSI で測定された波形整形器の時間空間プロファイルを示す。Fig. 2.11 (a) で示される時間空間結合の傾きが SSI で測定された (b) の画像で良く再現されていることがわかる。一方、Fig. 2.11 (c) より波形整形器のスペクトル分散方向に直交する y 軸方向では時間空間結合の影響が現れていないことが確認される。ここで用いたマスクは交代位相マスク $(0, \pi, 0, \pi, \dots)$ であり、時間的にはダブルパルスを生成する。また、このマスクは最も時空間結合が顕著に表れる位相マスクの例でもある。

波形整形器がミスアライメントした状態の時間空間プロファイルを理解し、また測定可能することは、波形整形器を高精度に調整するためには必要不可欠であり、非常に複雑に時間空間プロファイルが結合するので、2 次元時間空間測定手法の原理実証に良いターゲットでもある。

波形整形器の出射側のグレーティングの角度が 1° ずれていた場合の測定結果を計算結果と共に Fig. 2.12 に示す。時空間結合によるプロファイルの傾きに加えて、各パルスの波面が傾いていることが見て取れる。Fig. 2.12 (b) の測定結果の各パルスの時間幅は計算よりも若干広がっているが、これはグレーティングの角度を回転させる際にグレーティングの距離が若干ずれた影響

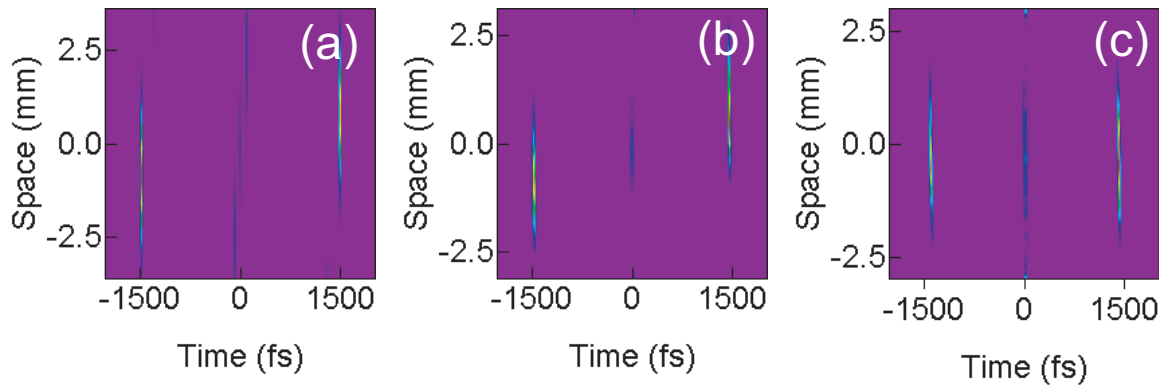


Fig.2.11 Calculation results and measured experimental results of spatio-temporal intensity distribution of the pulse shaped with a $4f$ pulse shaper are shown. An alternate phase-only mask ($0, \pi, 0, \pi, \dots$) is applied to the LC-SLM. (a) Calculation result of intensity distribution in $x-t$ coordinates. (b) Measured space-time $x-t$ intensity distribution. (c) Measured space-time $y-t$ intensity distribution. x represents the horizontal axis, which is identical direction to the spectral dispersion at the grating in the pulse shaper, where y is the vertical axis, which is perpendicular direction to x .

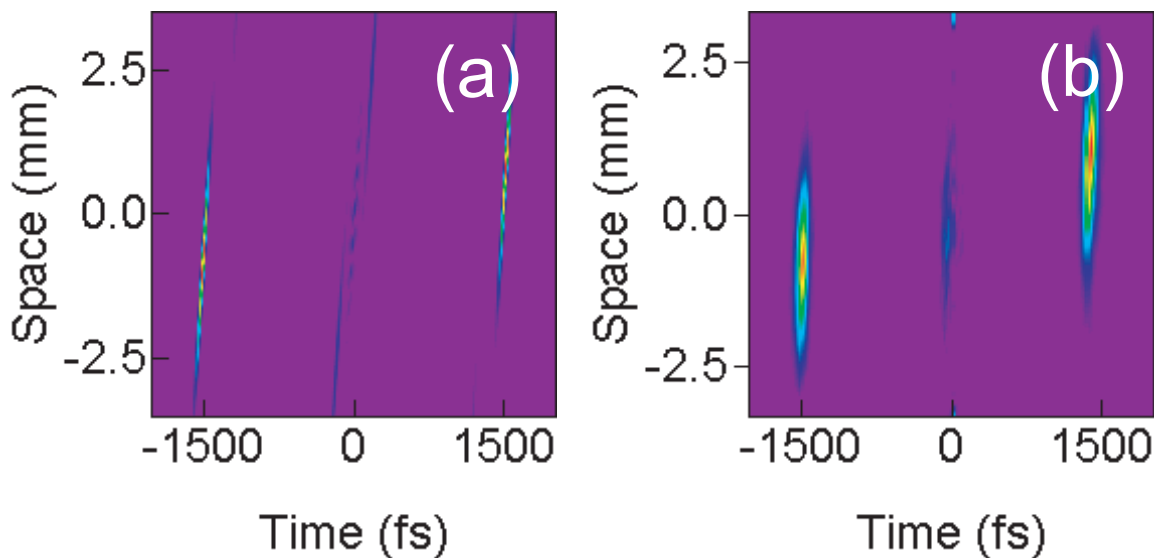


Fig.2.12 (a) The calculated spatio-temporal intensity distribution of shaped pulse with a $4f$ pulse shaper, where the angle of the output grating differs by 1° from that at the input. The shaping mask is an alternate phase-only mask. (b) The corresponding experimental result.

である．実際にグレーティングの距離をずらした場合には Fig. 2.13 (a) に示される様に各パルスのパルス幅が伸びる．このパルス幅の伸張はスペクトル位相が線形チャープするからであり，そ

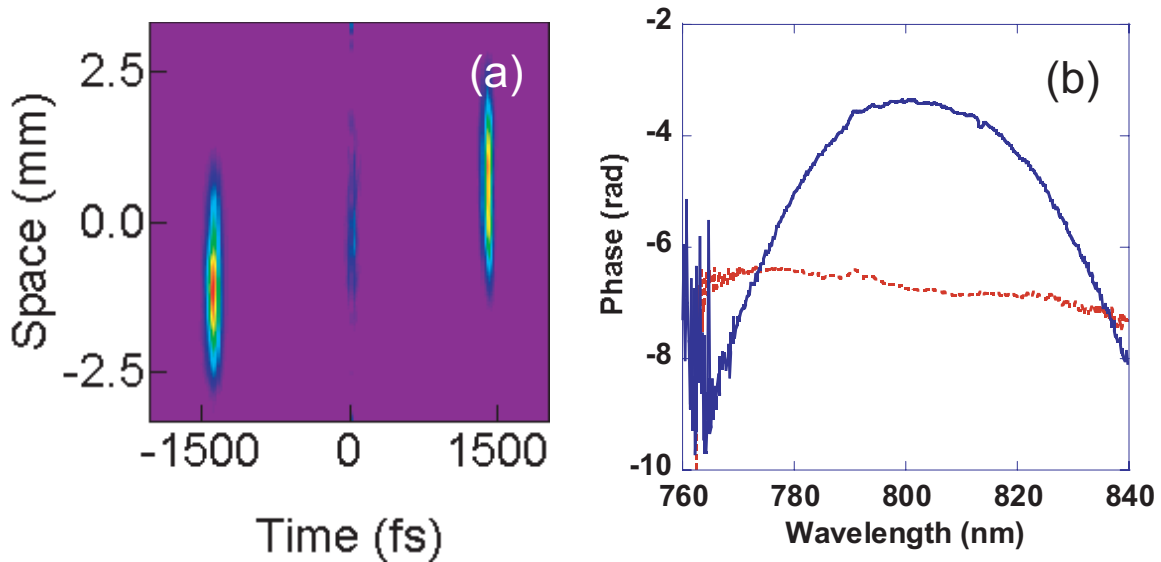


Fig.2.13 (a) The measured spatio-temporal intensity when the output grating slightly differs in its position. An alternate phase mask is applied to the pulse shaper. (b) Spectral phase distribution at the center of the beam (space $x = 0$ mm) of the output pulse from the pulse shaper. The solid line represents the spectral phase at the corresponding grating position of (a). The dotted curve represents the spectral phase with the ideal $4f$ setting. The null phase mask is applied to the pulse shaper.

の効果はスペクトル位相を観測すると明らかである．Fig. 2.13 (b) の点線は波形整形器が理想状態にセットアップされているときに，SLM に変調を加えていない場合の出力スペクトル位相である．零分散セットアップになっているために，かなり広いスペクトル領域にわたって位相がフラットに保たれている．一方実線は波形整形器のグレーティングの距離を理想状態よりも伸ばした場合のスペクトル位相である．スペクトル位相が線形に負にチャープすることが見て取れる．Eq. (2.19) の知見と一致する．

最後にレンズの距離が異なった場合の時間空間プロファイルを，Fig. 2.14 に示す．再び SLM には変調を加えずに波形整形器後のスペクトルを測定した．Fig. 2.14 (b) にレンズの位置をずらした場合の空間領域の位相即ち波面を示した．Fig. 2.14 (b) の点線で示されているのは波形整形器がほぼ理想状態にセットアップされている場合の出力パルスの波面である．実線はレンズの位置を理想状態からずらした場合である．波面が歪む事がこの結果からわかる．波面に直交する方向に光は伝搬するので，レンズ位置のアライメントがずれると出力ビームは発散角を持つことがわかる．この波面の歪みは SLM にどのようなマスクを印可したところで補正することができないのでレンズ位置のアライメントは特に慎重を要する．

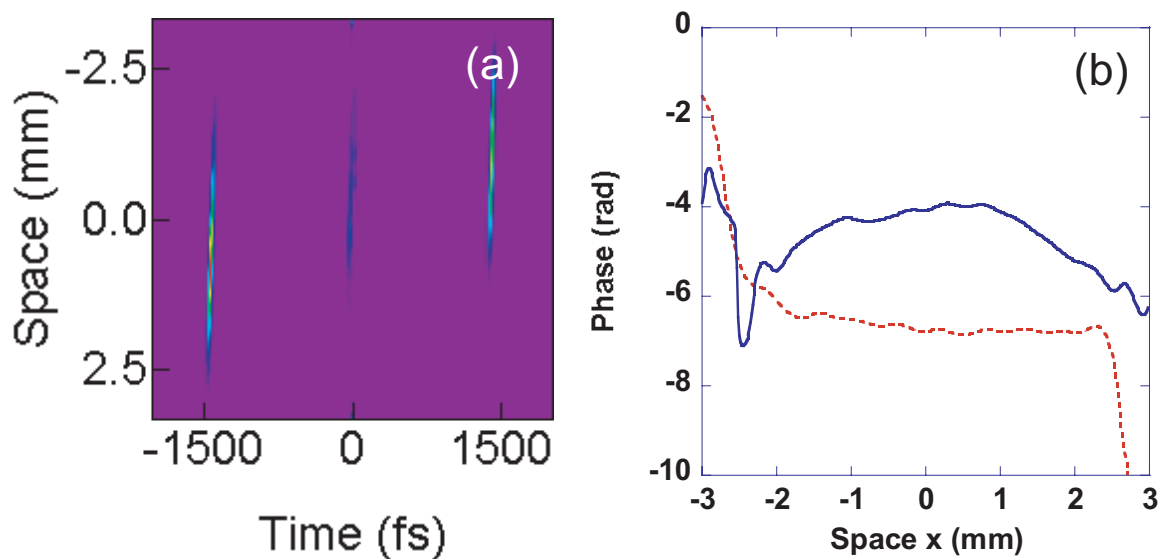


Fig.2.14 (a) Measured spatio-temporal intensity distribution when the output lens slightly differs in its position from that of the input. An alternate phase mask is applied to the pulse shaper. (b) Spatial phase distribution of the output pulse at time $t = 0$ s. Solid line represents the spatial phase at corresponding lens positions of (a). Dotted line represents the spatial phase when the $4f$ pulse shaper is aligned nearly perfect. A null phase mask is applied to the pulse shaper.

波形整形器の定式化によって得られた時間空間プロファイルが実際に実験的に測定されたことによって、それらの定式化が正しい事が示された。また、波形整形器の時空間プロファイルを測定することによって 2 次元時間空間測定法自体の原理実証実験が行えた。

2.2.4 時間空間結合の影響

Fig. 2.11 の実験結果からも、Eq. (2.19) からも、理想的にセットアップされた波形整形器においても時間空間結合効果が存在することが示されている。この時間空間結合がもたらす様々な影響について述べる。特に波形整形器をコヒーレント制御にもちいる際のこの時間空間結合の問題について考える。

空間プロファイル・空間周波数に与える影響

本研究で用いた波形整形器のパラメータを用いてその出力光電界の時間空間特性を計算した。波形整形器は理想的にセットアップされていると仮定し、波形整形器への入射パルスにはスペクトル幅 45 nm (FWHM)、中心波長 800 nm のガウス型スペクトルを持つパルスを仮定し、入射ビームには 1.0 mm (FWHM) のガウス型のビームプロファイルを与えた。マスクには交代位相マスクを与えた。その時の出力波形を Fig. 2.15 に示す。本シミュレーションは、Eq. (2.19) に基

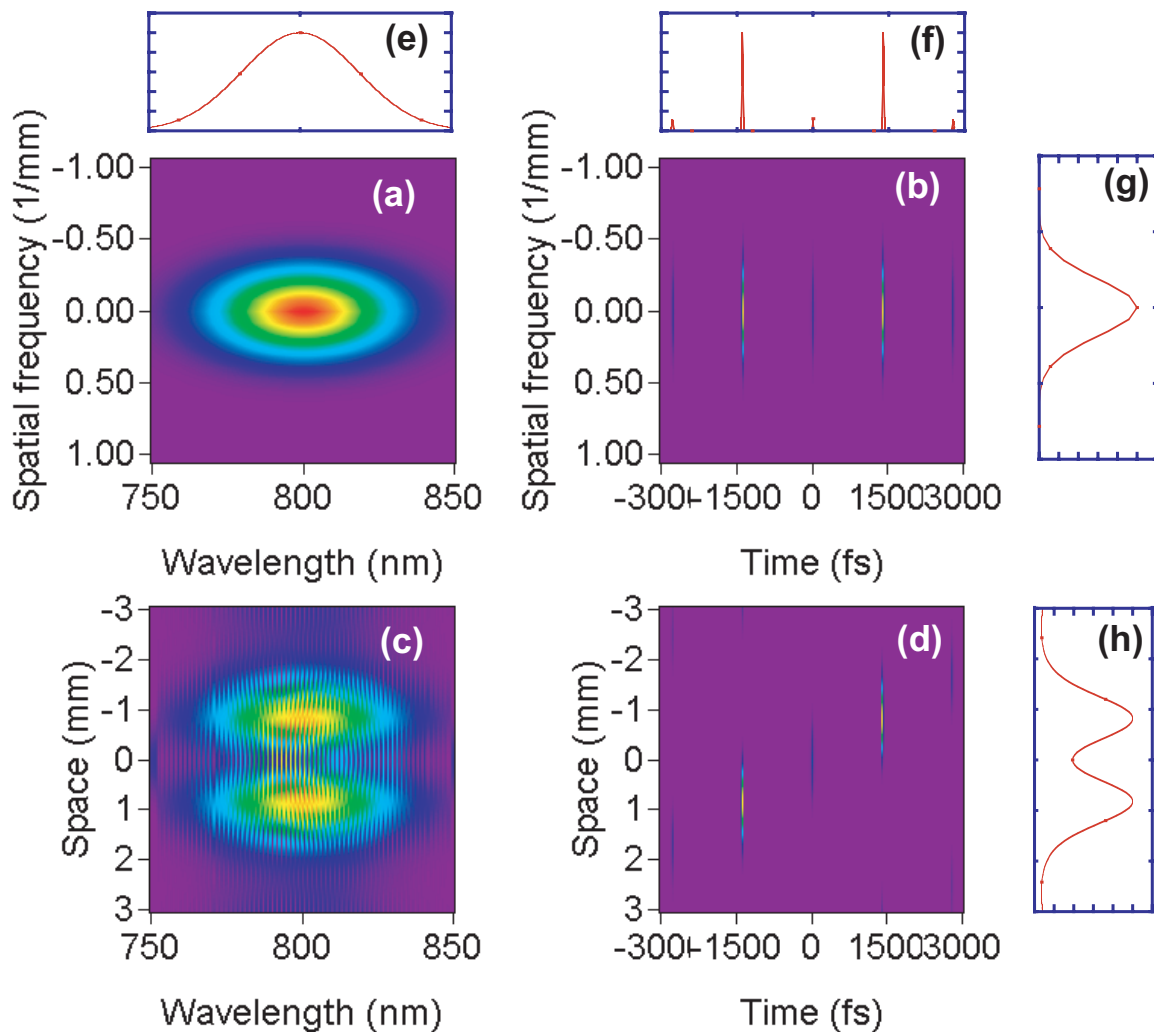


Fig.2.15 Two dimensional Wigner function distribution in space, spatial frequency, time, and wavelength of a shaped output pulse when alternate phase mask is applied to the LC-SLM. (a) Wavelength-spatial frequency distribution of a shaped pulse. This output profile is identical to the input pulse profile. The space-time coupling effect appears only in phase. (b) Time-spatial frequency distribution of a shaped pulse. The spatial frequency distribution corresponds to the focal spot image since a lens functions as a Fourier transform element. (c) Wavelength-space distribution of a shaped pulse. The spectrum in different space has different shape. Two peaks in space is observed. (d) Space-time distribution of a shaped output pulse. Spatial-temporal coupling effect is easily observed as a tilt. (e) The summed frequency along spatial axis. It is identical with input. (f) Summed temporal profile fold along spatial axis. (g) Summed spatial frequency profile, hence the far field image of the output pulse. It is identical to the input. (h) The spatial profile summed up along temporal axis.

づき，マスクでのピクセル化による 128 ピクセルの離散的な位相変調の影響及び各ピクセル間に存在するピクセルギャップの影響も考慮されている．

Fig. 2.15 (d) の時空間プロファイル $t-x$ に Eq. (2.20) の傾きとして与えられる時間空間結合の影響が顕著に表れている．交代位相マスクは時間域でダブルパルスを生成するマスクとして知られているが，その 2 つのパルスの空間的位置が Eq. (2.20) に沿ってシフトすることがわかる．時間域を変調するためにマスクに変調を加えると，恒に空間変調が伴うので，波形整形応用を光物質相互作用に適用する際には，単純に時間波形のみを考慮したのでは不十分である．超高速コヒーレント仮定で時間空間発展を問題にする場合²¹⁾を除いては，一般には空間変調と時間変調による影響は独立に考えたい．そのためこの時空間結合効果による時間に依存した空間プロファイルの変調を解消する必要がある．一つには出力ビームを集光する事による解決があげられる．光と物質を効果的に相互作用させるために光を物質に照射する場合には，高い光密度を得るためにビームをレンズで集光するのが一般的である．そこで，Fig. 2.15 (b) の空間周波数と時間の $k-t$ プロファイルに着目すると，空間周波数プロファイルには時空間結合の影響が出ていない．出力パルスの空間周波数プロファイルは入力空間周波数と全く同一である．ここで，レンズの作用が空間フーリエ変換であることを思い出すと，Fig. 2.15 (b) のプロファイルは波形整形器直後のビームをレンズで集光したときのレンズの焦点での時間空間プロファイルであることがわかる．幾何光学的な理解では，時空間結合の影響は出力ビームを水平にシフトさせるのみなので収差の無い理想的なレンズを用いれば集光スポットはどのような位相変調をマスクに加えても変化しないはずである．しかし実際にはもう少し複雑である．Fig. 2.15 で示したプロファイルは波形整形器射出直後のプロファイルであり，自由空間を光を伝搬させるとビームはフレネル回折を受ける．そのため波面は Eq. (2.11) で示されるように 2 次関数的にゆがむ．集光レンズはフレネル回折と逆方向の 2 次の位相関数を空間電界に加える素子であるが，フレネル回折による影響によって見かけの焦点距離が伸びる．そうした自由空間を伝搬したビームを焦点距離 f のレンズで集光すると，最小スポットはレンズの焦点距離 f の後方にくる．そのため集光レンズはもはや波形整形直後のイメージをフーリエ変換しない．そのために最小スポットにおいて，波形整形器での時間空間結合の影響が見られる様になる．

実際に時間空間結合効果による空間プロファイルが変調する影響が光物質相互作用においてどのように影響を与えるのかを調べた．波形整形器をマルチパス増幅の CPA レーザシステムの後構築し，整形波形を $f = 60$ mm のアクロマティックレンズで集光した．本実験の波形整形器には，曲率 $R = 300$ mm の金コーティングされた凹面鏡を用いた反射型 $4f$ 波形整形器を構築し，グレーティングには $d^{-1} = 600$ mm/line のホログラフィックグレーティング (PC0600 30x30x6 800 nm (TM+TE)) を用いて，グレーティングの入射角は $\theta_i = -15^\circ$ とし，1 次回折光を用いた．交代位相マスクを用いてダブルパルスを作成した集光レンズの最小スポット点に 70 nm の厚みの Cr をガラス基板上に蒸着させたサンプルを設置しその時のアブレーションパターンを観測した．実験結果を Fig. 2.16 に示す．Fig. 2.16 (a) は波形整形器のマスクに変調を加えていない場合の

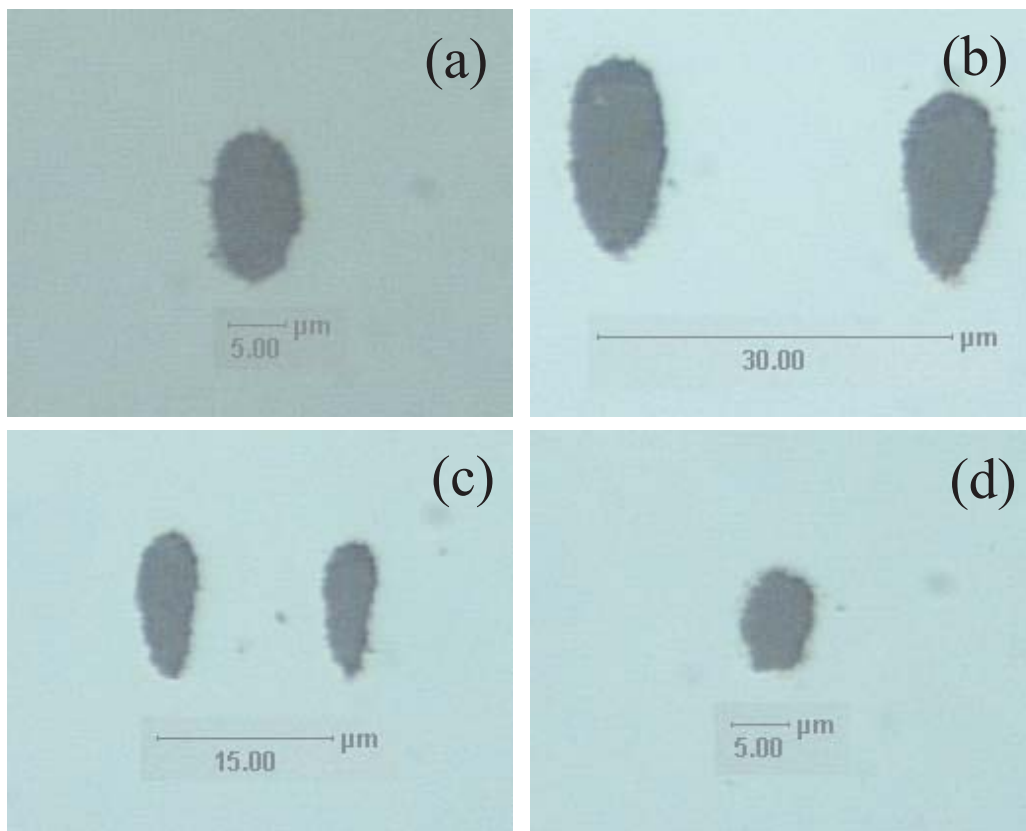


Fig.2.16 (a) Ablation pattern on the Cr surface when no modulation is added to the pulse shaper. (b) Ablation pattern when alternative phase mask is added to the pulse shaper. The pulse after the pulse shaper propagates about 3 m long. (c) Ablation pattern when alternative phase mask is added to the pulse shaper. Imaging lenses are build after the pulse shaper to compensate the Fresnel diffraction. (d) Ablation pattern when alternative phase mask is added to the pulse shaper. Imaging lenses are build and adjusted perfectly so that two pulses spatially overlap. Various hole sizes are due to the different fluence of the pulse.

アブレーションパターンである。レンズの角度収差の影響によって、ビームの形状は非対称ではあるものの1つの穴が加工される。Fig. 2.16 (b) は波形整形器の LC-SLM に交代位相マスクを加えた場合のアブレーションパターンである。この時ビームは波形整形器後、集光レンズまで約 3 m 伝搬している。交代位相マスクは時間域では最も時間遅延が大きいダブルパルスを生じ、また時間空間結合の空間域への影響も最も顕著に表れる。ダブルパルスによる交代位相マスクを波形整形器に加えたことによって生成された2つのパルスがサンプル上で 30 μm 近くも空間的にシフトすることがわかる。ポンププローブ実験に波形整形器で生成したパルスを用いる際にはこの2つのパルスが空間的に一致している必要があるが、本条件では空間的に全く重ならない。次にフレネル回折の影響を低減させるために波形整形器後の伝搬距離を 40 cm に短縮した。伝搬距離を短くすることによって2つのパルスの重なりを高めることは可能であるが、わずか 40 cm 伝

搬させた場合でも Fig. 2.16 (c) より, $15 \mu\text{m}$ 程度の重なりが起きるので, 光を強く集光する場合にはやはり集光スポットの重なりが得られない. 伝搬によるフレネル回折をキャンセルする位相関数を持つ光学素子はレンズであるので, リレーレンズを構築することができる. そこで波形整形器後にガリレイ型望遠鏡をリレーレンズとして構築し, 波形整形器直後のイメージを集光レンズの直前に得られるようにした. その結果 Fig. 2.16 (d) のパターンが得られ, 空間的な重なりがほぼ取れていることがわかる. ただ, このセットアップにおけるレンズ位置の調整は非常にセンシティブでありまた, 多数のレンズを用いるために, レンズの収差が増幅されたり, 系が非常に複雑になる等問題点も多い. またレーザーシステムのビーム広がり正確に調整することも必要となる. Fig. 2.16 (d) ではレーザーシステムから得られるビームのダイバージェンス及び, 波形整形器に入射するまでのビームのフレネル回折を補正するために波形整形器前にもガリレイ型望遠鏡を構築している.

時間空間結合の影響を低減する手法として K. Nelson と W. Wefers が提案する, 波形整形器を往復伝搬させることも可能である¹⁰⁾. しかし, Fig. 2.17 に波形整形器を往復伝搬後の時間空間プロファイルを示すように, 光を波形整形器を往復伝搬させることによって空間プロファイルは劇的に改善するものの空間プロファイルの裾でビーム広がり観測されるようになる. 本手法での問題点の一つ目が, 往復伝搬させると更に高度なアライメントが要求されることである. LC-SLM のピクセルサイズが $100 \mu\text{m}$ とすると, 復路の光のポインティングが $100 \mu\text{m}$ ずれると復路では隣のピクセルに光が入射し異なる変調が加わってしまう. 当然時間波形は設計した物とは異なったものが得られる. また, 波形整形器の効率が問題となる応用では, 光を往復させることによってスループットが著しく低下するために用いることができない. 一般にスペクトルが広い光を扱う場合には使用するグレーティングのグループ間隔が広がるが, グループ間隔が広がるにつれ, グレーティングの回折効率は低下するので, 比較的広帯域の光を扱う場合には特に問題となる. 実際に Fig. 2.16 の実験で用いた波形整形器の伝送効率は約 10% であり, 光を往復させるセットアップを 50% ビームスプリッターと共に構築すると効率は 0.25% を切ったために, 強く集光した場合でもアブレーション応用にもちいることができなかった.

4f 波形整形器は様々なコヒーレント制御で用いられているが, このようにその時間空間結合の影響を取り除くことは容易ではない. Fig. 2.16 の例で取り上げたようなフェムト秒アブレーションを利用した微細加工応用, 気相・液層・固相に限らず物質の光電界の波形依存を調べる全てのコヒーレント制御においてそのスポットサイズが波形毎に変化することは避けなくてはならない. 光解離反応制御などの高強度な光電場応用ではスポットサイズの広がり光強度を著しく低下させるために特に避ける必要がある.

実効的に時空間結合効果を緩和させるために, ビームをなるべく広げてから波形整形器へ入射する手法があり, これは有効である. ビームを拡大すると相対的に時間空間結合の傾きが緩和される. 但し無視可能な領域まで時間空間結合効果を低減させるためには入射ビームを 30 mm 以上に広げる必要があり²³⁾, その場合にはレンズの球面収差が問題になる可能性があるなど, 簡単

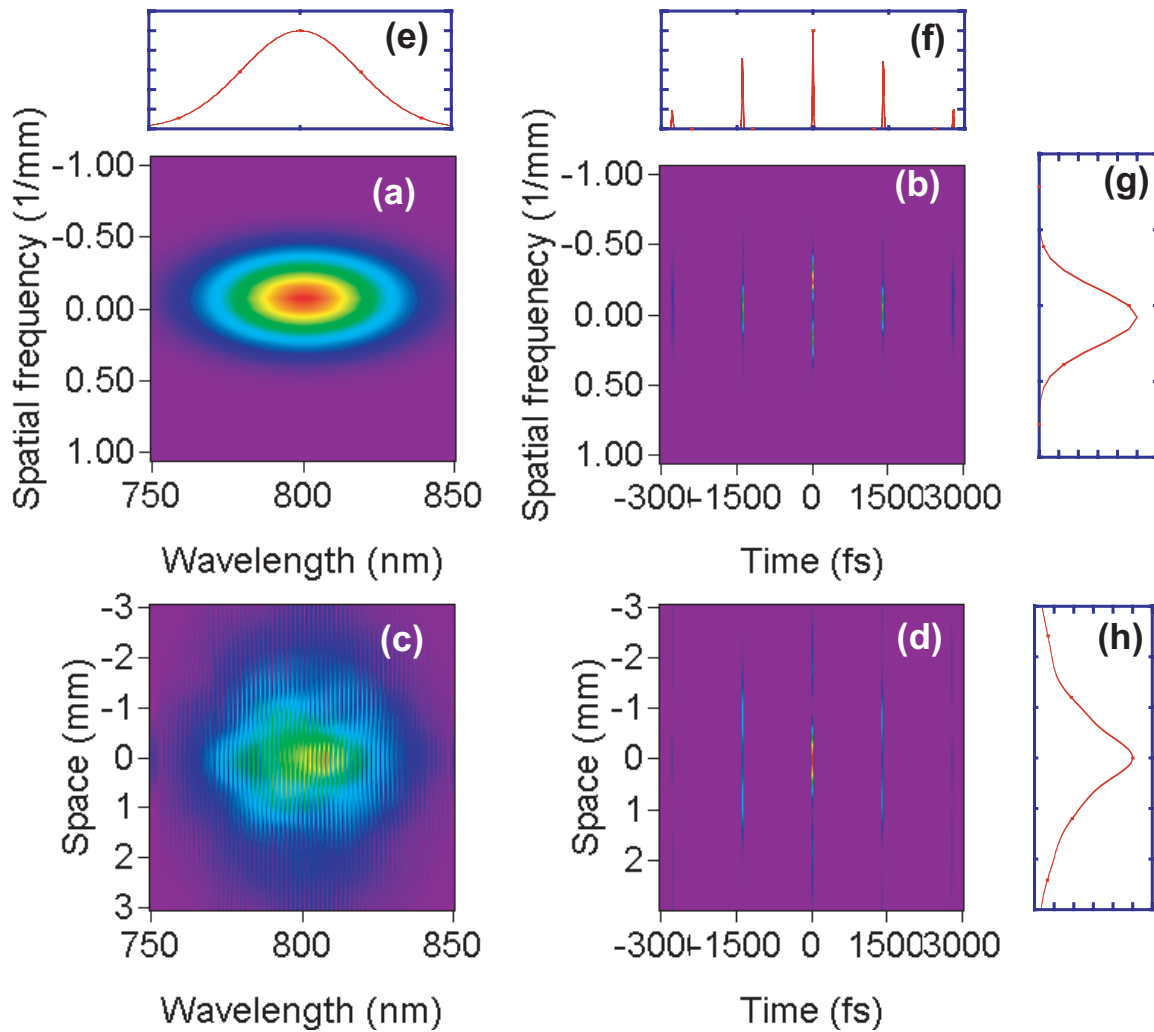


Fig.2.17 Two-dimensional Wigner function distribution in space, spatial frequency, time, and wavelength of a shaped output pulse when half alternate phase mask ($\pi/2, 0\pi/2, 0, \pi/2, \dots$) is applied on the LC-SLM. The pulse double-passes the pulse shaper. (a) Wavelength-spatial frequency distribution of a shaped pulse. This output profile is identical to the input pulse profile. The space-time coupling effect appears only in phase. (b) Time-spatial frequency distribution of a shaped pulse. The spatial frequency distribution corresponds to focal spot image since a lens work as a Fourier transform element. (c) Wavelength-space distribution of a shaped pulse. The spectrum in different space has different shape. (d) Space-time distribution of a shaped output pulse. (e) The summed frequency along spatial axis. It is identical to the input. (f) Summed temporal profile folded up along spatial axis. (g) Summed spatial frequency profile, hence the far field image of the output pulse. It is identical from the input. (h) The spatial profile summed up along temporal axis.

ではない．もう一には波形整形器後に空間フィルターを設置する手法がある．例えば Fig. 2.15 の後に 1 mm の空間フィルターを設置した場合空間フィルターによってスペクトルもフィルタリングされるものの，時間波形にはそれほど影響を与えない．空間フィルター関数さえ正確に把握していれば後で正確に時間波形を計算可能であるので空間プロファイルはほぼ一定の条件で実験が可能になり，これはコヒーレント制御において有利である．

時間波形・スペクトルに与える影響

時空間結合による影響は空間プロファイルへの予期せぬ変調のみでなく，スペクトル波形，即ち時間領域波形にも影響を及ぼす場合がある．この事実は時間空間結合作用をモデルに置いて計算を行なわないと，特に複雑な位相変調を加える場合に大きな誤差を生むことを示している．

6 ピクセル毎に $0, \pi$ の位相が交代する交代位相マスクを加えた (Fig. 2.18)．本マスクを LC-

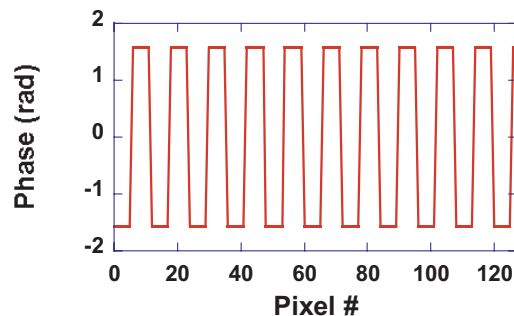


Fig.2.18 Alternate phase mask function applied to the LC-SLM. In every 6 pixels π phase shift is added.

SLM に加え，波形整形器後のスペクトルをスペクトルアナライザーで測定した．スペクトル分解能 0.1 nm の条件でスペクトルアナライザーに Advantest Q8381 を用いた測定した．スペクトルアナライザーのプロブはシングルモードファイバプロブであるので，空間的にフィルターを加えていることになる．測定結果を，Fig. 2.19 に示す．Fig. 2.19 (a) に LC-SLM に変調を加えていないときの波形整形器からの出力パルスのスペクトルを示した．波形整形器への入射ビーム径は 1 mm とし，Fig. 2.19 (b) に Fig. 2.18 に示す位相マスクを加えたときの波形整形器後のスペクトルを示した．スペクトルに深いディップが観測される．入射ビーム径を 3 倍に広げた場合には，そのディップの深さ及びその幅が改善することが Fig. 2.19 (c) からわかる．Fig. 2.19 (b)，(c) をそれぞれ拡大したものを Fig. 2.20 に示す．拡大図からも入力のパルスを広げるにつれ，スペクトルのディップの幅が狭くなることを見て取れる．このディップが波形整形器の時空間結合効果に起因することを Fig. 2.21 の計算結果によって示す．Fig. 2.21 では波形整形器の時空間結合効果の取り扱いを変化させて計算した．Fig. 2.21 (a)-(d) は波形整形器の時空間結合を考慮せずに計算したスペクトル ((a), (c)) 及び時間波形 ((b), (d)) である．Fig. 2.21 (a)-(b) と

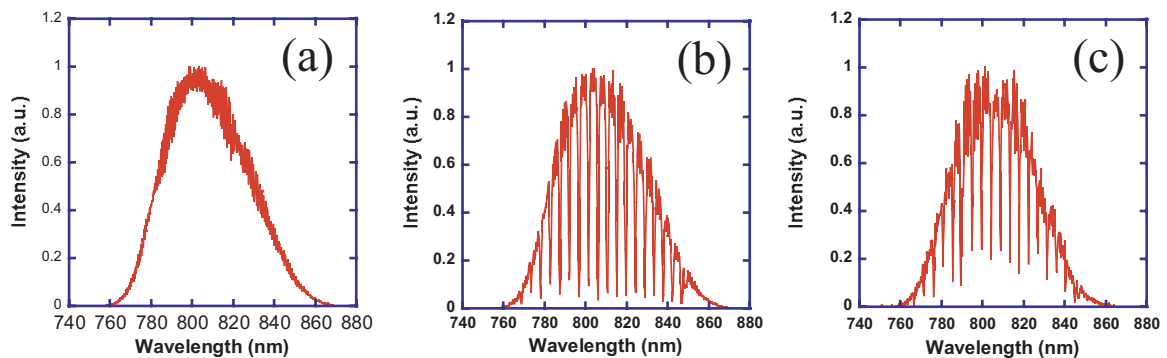


Fig.2.19 (a) Output spectrum from the pulse shaper when no phase modulation is applied to the LC-SLM. (b) Output spectrum from the pulse shaper when alternate phase mask in every 6 pixels is applied to the LC-SLM. The input beam diameter is 1 mm. Deep dips are observed which correspond to the abrupt phase. (c) Output spectrum from the pulse shaper when alternate phase mask in every 6 pixel is applied to the LC-SLM. The diameter of the input pulse to the pulse shaper is expanded three times with a Galileian telescope.

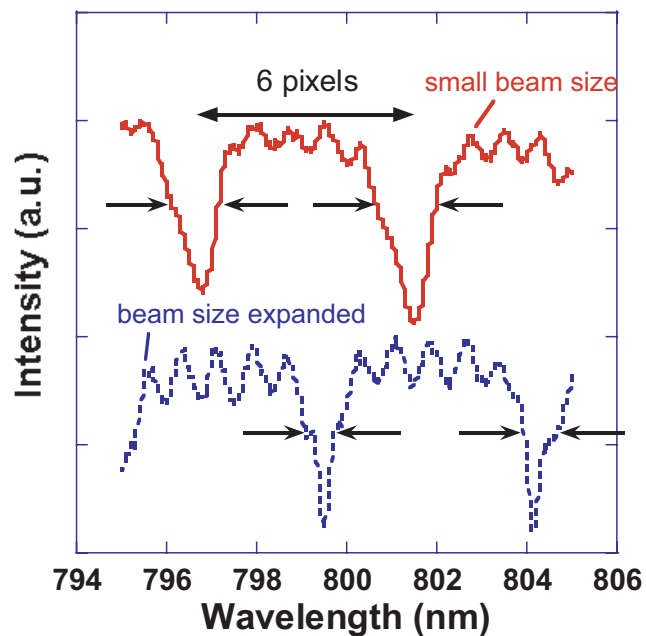


Fig.2.20 Expanded view of the spectrum with different input diameter. The spectrum dip width is reduced when the diameter of the input beam is expanded.

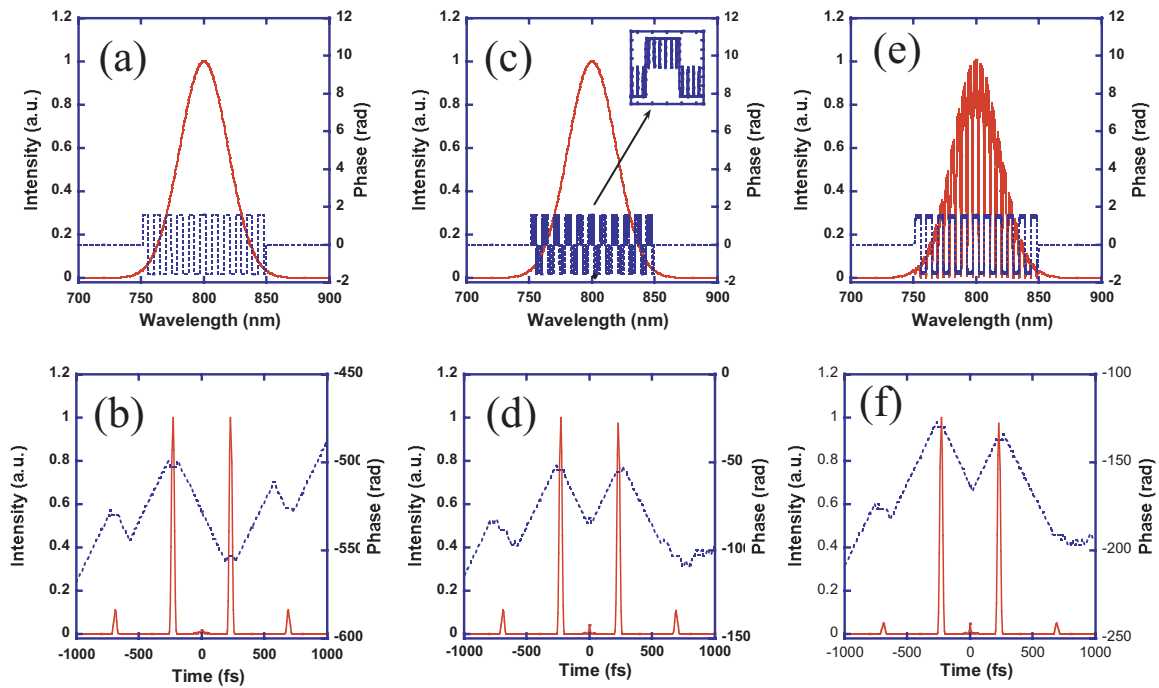


Fig.2.21 Calculated results of spectrum and temporal waveform from a pulse shaper with various assumptions. (a)-(b) Spectrum and temporal waveform from the pulse shaper when space-time coupling is not taken into account. Pixel gap effect is also neglected. (c)-(d) Spectrum and temporal waveform from the pulse shaper when space-time coupling is not considered, but pixel gap effect. Slight larger null component in (d) is due to the pixel gap effect. (e)-(f) Spectrum and temporal waveform from the pulse shaper when both the space-time coupling and the pixel gap effect is taken into account. The pulse component in ± 700 fs in (f) is smaller than that of (b) and (d), where the space-time coupling is not considered. The time window of a pulse shaper is limited by the spectrum resolution at the Fourier plane which is equivalent to the magnification of the space-time coupling effect.

(c)-(d) の違いはピクセルギャップの考慮の有無であるが，時間波形 (b) , (d) において零成分の増加が見られる以外には目立った変化は観測されない．本研究に用いた LC-SLM では， $97 \mu\text{m}$ の幅の各ピクセルの間に， $3 \mu\text{m}$ のピクセルギャップが存在する．ピクセルギャップでは光は位相変調を受けずに透過する．Fig. 2.21 (d) で示される時間波形の零成分は変調を受けなくて透過してきた成分に対応し，この零成分増加する理由はピクセルギャップを考慮したことによって光が変調を受けずに透過する成分が増加している事に起因する．しかしスペクトル強度波形は Fig. 2.21 (a)-(d) の時間空間結合効果を考慮に入れないときには，入力波形と同一である．一方 Fig. 2.21 (e)-(f) に示される波形は時間空間結合効果を考慮に入れた場合であり，スペクトル強度に大きなディップが観測される．ここでの入力ビームは直径 1 mm のガウスプロファイルを仮定している．位相の急峻な変化が起きるとスペクトル振幅に大きなディップが観測される．この

ことから, Fig. 2.19 で観測されたスペクトルのディップの影響は波形整形器の時間空間結合効果に起因することがわかる. 定性的な理解としては, 空間プロファイルを考慮に入れない場合には, マスク面でのスペクトル分解能は無限に小さくなるが, 空間プロファイルを考慮にいれ, 波形整形器の時間空間結合効果を考慮したことによって, マスク面でスペクトル分解能が有限の値を持つようになる. ある波長成分 λ は波形整形器のフーリエ面で有限のスポットを持つために同一の波長成分でも, ピクセルギャップ付近に入射したスペクトル成分は, 変調を受ける成分と変調を受けない成分の両方が存在することになる. そのために干渉効果によってスペクトルが削られる. Fig. 2.15 (c), (e) によれば, ビーム全体にわたってスペクトルを積分した場合には Fig. 2.15 (e) に示されるように入力と同じスペクトルが得られる. これは中心付近で削られた光成分がビームの周辺部分にあらわれることを示している. このことから, Fig. 2.19 で観測されるビームの中心部分のスペクトルのディップは, ピクセルギャップにおける異なる屈折率に起因する回折効果という解釈も可能である.

波形整形器のパラメータが与えられたときには, そのスペクトル面での波長分解能はその入射ビームの空間周波数幅によって規定されてくる. ビーム径が広い場合により高い波長分解能が得られる. 波長分解能を向上させる意味はその波形整形器の時間窓を向上させることでもあるので重要である. 実際に Fig. 2.21 (f) によって示される ± 700 fs の成分が Fig. 2.21 (d) よりも小さいのは, 時空間結合効果を考慮に入れたために波形整形器の時間窓関数が正しく得られるからである.

Fig. 2.22 に実際に Fig. 2.18 のマスクを LC-SLM に加えた場合の実験で得られたスペクトルを計算結果と共に示す. 計算結果と実験結果が非常に良く一致する. そこで, どの程度まで波形

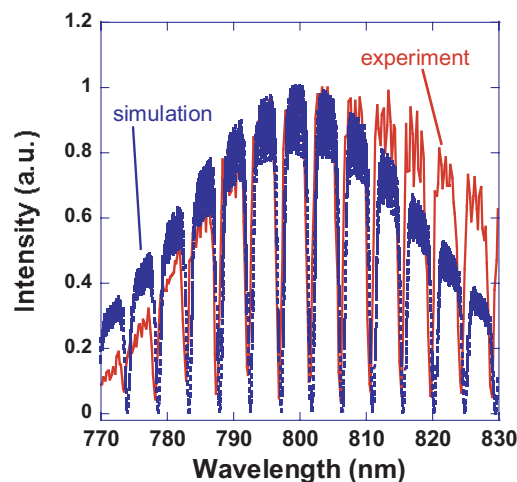


Fig.2.22 The experimental and calculated result of the output spectrum from a pulse shaper, when alternate phase mask is applied to the LC-SLM.

整形器への入射ビーム径を広げれば, 時間空間結合効果が十分に低減されるかを計算によって示

す．異なる入射ビーム径で波形整形器に入射した際の出カスペクトルの計算結果を Fig. 2.23 に示す．波形整形器には本研究で用いたパラメータを使用し，マスクには Fig. 2.18 に示した交代位相

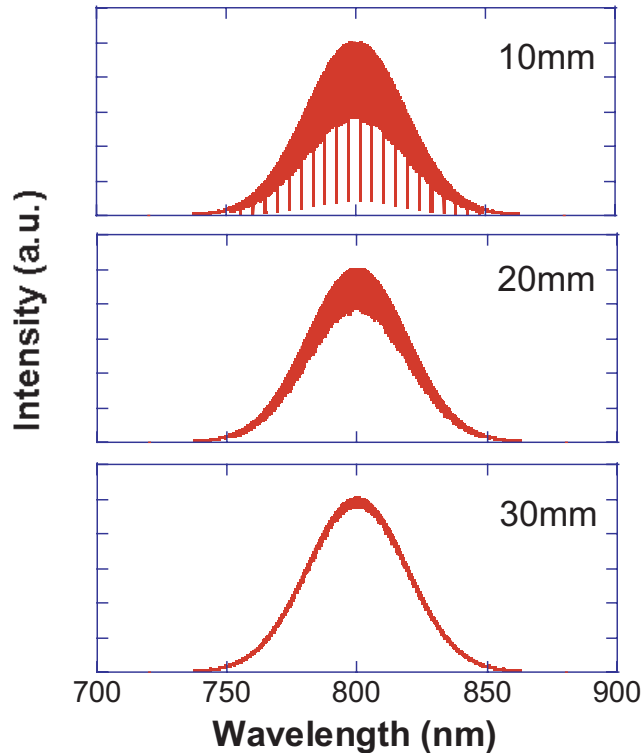


Fig.2.23 Calculation of a spectrum from a pulse shaper when the diameter of the input beam is changed.

マスクを加えた．スペクトル包絡線が太く表示されているのは細かいディップがピクセル毎のピクセルギャップで存在するからである．さらに 6 ピクセル毎に 0 から π への急峻な位相変調を加えているために，深いディップが観測される．深いディップが存在することは，即ち波形整形器のスペクトル面での波長分解能に対応するスポットサイズがピクセルキャップの $3 \mu\text{m}$ 以上のサイズを有していることを示している．この深いディップを軽減させるためには，入射ビーム径を 30 mm 以上に広げる必要があるが，光学のサイズ，レンズの球面収差の影響を考慮すると簡単ではない．波形整形器への入射ビーム径は 1 mm であるため，正確に時間波形を設計するためには時間空間結合効果を考慮に入れる必要がある．ターゲットパルスとして長いパルスを設計する第 7 章の実験以降では時間空間結合効果を含めて波形を設計することによって，時間空間結合効果による波形のひずみの影響を考慮している．

こうした時間空間結合効果のスペクトル域に及ぼす影響は交代位相マスクのように急峻な位相変調を与えるときに最も顕著に表れるが，一見なめらかな位相変調である線形チャープにおいても観測されることがあることに注意を払う必要がある．Fig. 2.24 に大きな 2 次分散を加えた場合の波形整形器後の時間波形及びスペクトル波形の計算結果を示す．Fig. 2.24 (b) に示される

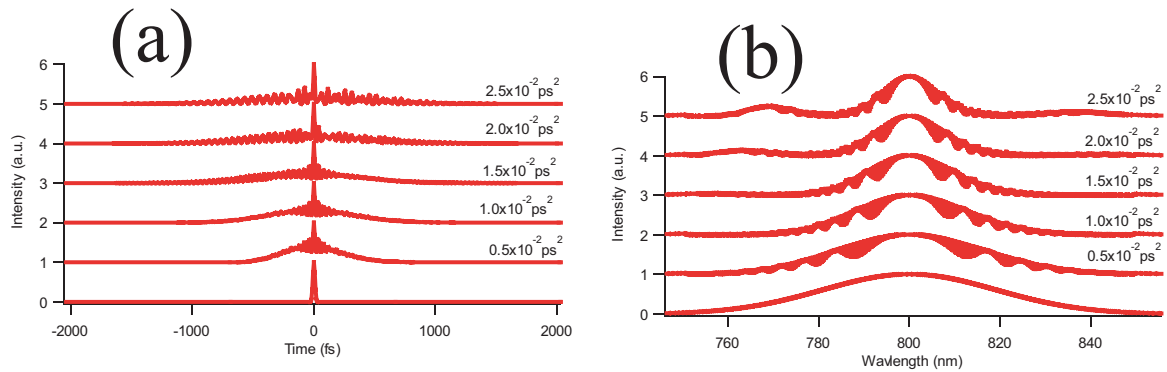


Fig.2.24 Output pulse from the pulse shaper in respect to various second order dispersion applied to the LC-SLM. (a) Output temporal waveform from the pulse shaper when space-time coupling is taken into account. The input diameter is 1 mm. (b) Corresponding spectrum intensity.

ように大きな 2 次分散を加えた場合にスペクトルの裾の成分が削られていくことが見て取れる。これは、一見すると 2 次分散はなめらかな位相変調を加えているが、スペクトルの裾においては位相の変化がピクセルの分解能に対して急激に変化するために実際には位相変調が急峻に変化することに原因がある。スペクトルの裾が削られる理由はこの効果による $5 \times 10^{-2} \text{ ps}^2$ の大きな 2 次分散を LC-SLM に加えた場合の出力スペクトルの計算結果と実験結果を Fig. 2.25 に示す。Fig. 2.25 (a), (b) はそれぞれ時間空間結合を考慮に入れた計算結果及び測定結果であるが、Fig. 2.24 (b) で示されるようにスペクトルの裾から変調がかかっていることがわかる。本研究では、波形整形器を増幅器の前に設置するが、増幅器への入射スペクトル幅は制限があるので、こうした位相変調を加える場合にはスペクトルが狭くならないように注意を払う必要がある。実際にこうしたスペクトル位相を LC-SLM に加えたシード光を用いたところ、増幅器後のパルス毎の強度の揺らぎが観測されるようになった。スペクトルを Fig. 2.25 (c) に示すが、スペクトルが非常に狭くオプティクスを損傷する可能性があるために、こうした位相変調を加えることは避けなくてはならない。

2.2.5 本節のまとめ

本節では $4f$ 波形整形器の動作原理及びその時間空間結合効果を定式化し、その効果を実際に測定した。その測定のために 2 次元 SSI による時間空間測定法を開発した。後半は時間空間結合効果が空間域及び時間域に及ぼす影響について詳細に議論した。特にスペクトルの狭窄化は増幅器前置型波形整形システムでは増幅器の損傷を避けるために特に注意する必要がある。

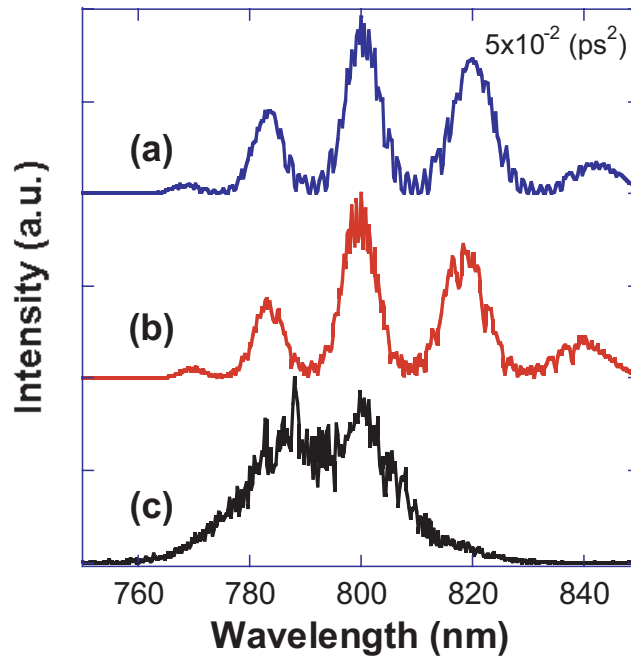


Fig.2.25 The output spectrum when large second order dispersion is applied to the LC-SLM. (a) Calculation result. (b) Measured spectrum. (c) Measured spectrum after the CPA when (b) is used as seed pulses.

2.3 AOPDF (Acoustic optic phase dispersion filter)

近年, $4f$ 型波形整形器とは全く異なる手法で波形を整形可能な音響光学分散位相フィルター (Acoustic optic phase dispersion filter: AOPDF) によるフェムト秒レーザーパルス波形整形器が P. Tournois 等によって提案された²⁶⁻²⁸⁾. この波形整形器はアライメントが非常に簡便に行え, また時間空間結合効果の影響が小さいという特徴を持つ.

2.3.1 原理

AOPDF の光の変調部は異方性の結晶を用いている. 光を変調するために音響波を光と反対方向から結晶に入射させる音響波を光と相互作用させて波形整形をおこなう. フェムト秒レーザーパルスを整形するためには, 音響波をデザインする必要があり, 整形された音響波を電気信号から生成するドライバーが必要となるが, 光を変調する結晶自体の大きさはコンパクトである. 結晶には TeO_2 を用いる. 入射光は結晶の正常軸に沿った直線偏光を入射させる. 光は屈折率 n_o を感じて伝搬する. 正常軸を伝搬する光は音響波と相互作用する. 音響波のブラッグ周期と一致した波長の光は, 異常軸の伝搬モードと結合し, 偏光を 90° 回転させ異常軸に乗り移る. 異常軸を伝搬する光は屈折率 n_e を感じて伝搬する. 結晶からの出射パルスのうち偏光方向が 90° 回転した

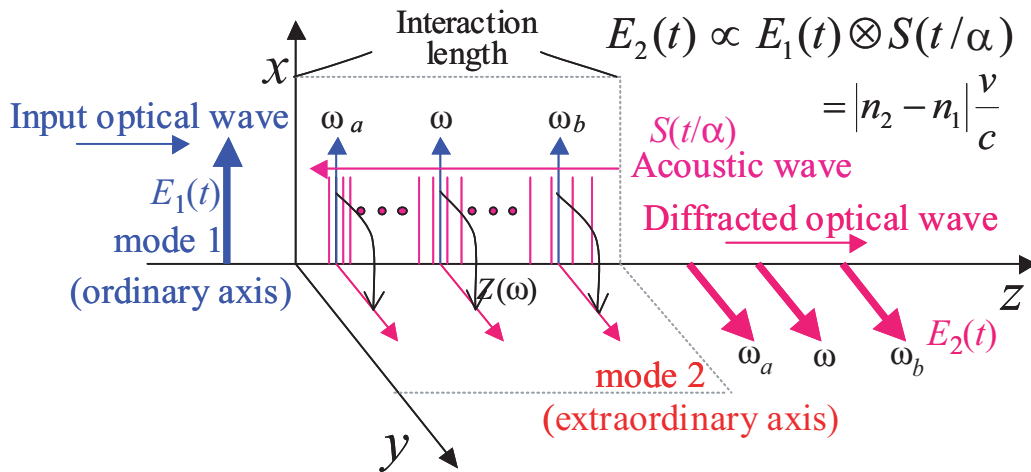


Fig.2.26 Scheme of an AOPDF. Linear *s* polarized input light interacts with shaped acoustic waves propagating from the opposite direction. The diffracted *p* polarized light is the output pulse from the AOPDF.

光に着目すると音響波波形に依存した時間波形が得られている。ある波長の光は正常軸と異常軸ではその群速度が異なるために結晶のどの位置で光をブラッグ回折させるかによって結晶での群遅延を決定することができる。その設定は各波長毎に可能であるので、結局音響波を適切に設計することによって、群速度分散を設定することができる。言い換えれば位相フィルターとして機能させることが可能である。また、音響波の振幅はブラッグ結合の大きさに比例するために、音響波の振幅を制御することによって振幅フィルターとしても動作させることが可能である。用いた AOPDF (Fastlight 社製 Dazzler) へ入力させる音響波のドライバ特性は RF 信号: 52.5 MHz の中心周波数, 帯域 >10 MHz, ダイナミックレンジ >50 dB であり, 動作周波数は 1 kHz である。結晶は TeO₂, 結晶長 25 mm であり, これは 3 ps の最大時間遅延に対応する。

2.3.2 フィルター特性

AOPDF のフィルター特性は,

$$E_{\text{out}}(t) = E_{\text{in}}(t) \otimes S\left(\frac{t}{\alpha}\right) \tag{2.43}$$

で表される。ここで $E_{\text{out}}(t)$ は出力光電界, $E_{\text{in}}(t)$ は入力光電界, $S(t')$ が音響波である。ここでスケールングファクター α は

$$\alpha = \Delta n \frac{V}{c} \tag{2.44}$$

で与えられる。 $\Delta n = |n_e - n_o|$, V は音響波の速度, c は光の速度である。

ここで，AOPDF への入力光パルスのパルス幅が整形波形と比較して十分に短いと仮定し，デルタ関数的に扱おうと，出力光電界は $S(t/\alpha)$ と非常に単純に表されることになる．実際に実験に使用する場合には，この近似でも十分な場合が多く，この直感的なフィルター特性が本デバイスを非常に扱いやすいものとしている．Fig. 2.27 に，音響波の設計例を示す．ポストパルスには

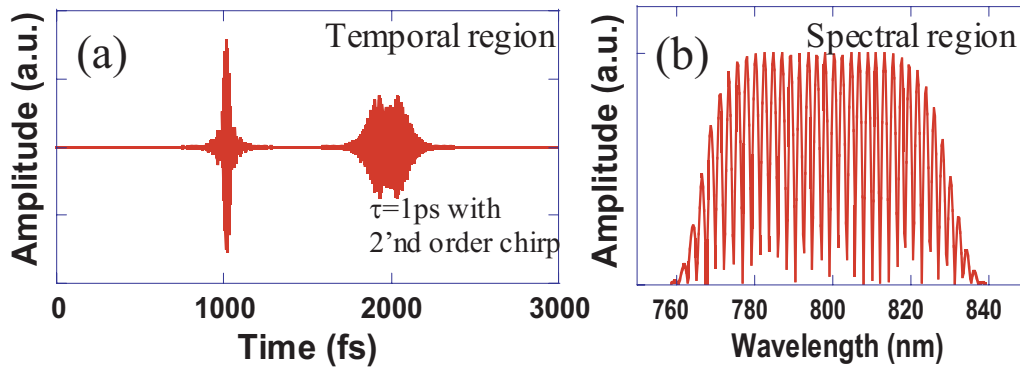


Fig.2.27 Example of acoustic wave designing

2 次分散を加えた 1 ps 間隔のダブルパルスを設計している．Fig. 2.27 (a) に時間波形振幅，(b) にその時間波形に対応するスペクトル振幅フィルタを表示している．実際に得られる整形波形は Fig. 2.27 (a) と入射パルスとの畳み込みである．入射パルスが十分に短くデルタ関数で近似できる時には Fig. 2.27 (a) に示した波形が得られる．入射パルスの帯域が有限の場合には，入射パルスの帯域に依存して Fig. 2.27 (a) の 1000 fs の成分に現れる整形波形のパルス幅が伸びる．このパルス幅は入射パルス幅と同じになる．一方 2000 fs に現れるパルスは，Fig. 2.27 (b) のスペクトル関数よりも入射パルスのスペクトルが広い場合には，同じパルス幅が得られるが，入射パルスのスペクトルが狭い場合には設計したパルスよりもパルス幅が短く得られる．それは狭帯域なスペクトルを含む光に分散を加えた場合では時間幅が十分に伸張できないからである．

2.3.3 AOPDF のデバイス特性

光の取り出し効率

AOPDF で光パルスを整形するためには，光パルスが音響波とタイミング良く相互作用する必要がある．つまり，AOPDF の波形整形の繰り返し動作周波数は音響波を発生できる繰り返し周期によって決まる．最大繰り返し動作周波数は音響波が結晶中に入射してから反対側の端に到達する時間の逆数で与えられる，即ち結晶長によって決まるが，実際には音響波発生ドライバによって制限を受ける．また，音響波は結晶中に定在的に存在するわけではなく，光の入射方向と逆に伝搬するので，光パルスとタイミングを取ることも重要になる．一般的な Ti:sapphire のオシレータの繰り返し周期，76 MHz 程度に対して，AOPDF の最大動作周波数は 17 kHz である．仮に AOPDF を 1 kHz で動作させた場合には，76,000 パルスに 1 回光パルスをピックアップす

る必要がある．タイミングチャートを Fig. 2.28 に示す．光パルスのピックアップは AOPDF 前

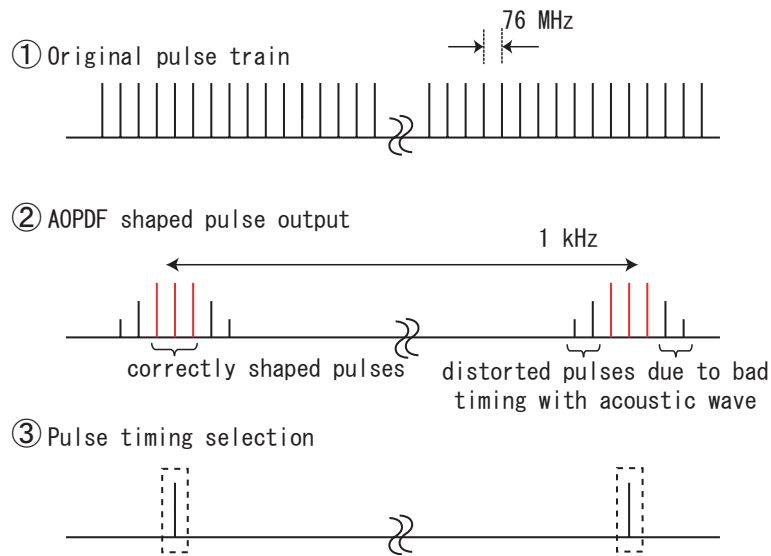


Fig.2.28 AOPDF timings. (a) Input pulse train to the AOPDF. (b) Diffracted pulse train from the AOPDF. (c) Single pulse is picked up to get correct shaped pulse.

後どちらで行なってもかまわないが，AOPDF 後にピックアップする場合には，AOPDF からの出射パルスには設計通りに変調が加わっていないものが含まれる．それは音響波の一部しか結晶に入っていないタイミングで結晶を透過した光パルスである．こうしたタイミングで入射したパルスを取り除く．繰り返し周期の高いオシレータの光を用いても AOPDF 後のパルスの繰り返しは AOPDF の動作周波数で決定してしまうために，パワー効率は非常に低いと言える．但し 1 パルスだけに注目した場合には，AOPDF の回折効率は最大 60% 程度得られる．光の回折効率は音響波の振幅および光との相互作用長に依存する．そのため音響波の時間幅が短い場合においても高い回折効率を得るためには，強い振幅の音響波を入力する必要がある．そのためどのような音響波を用いた場合にも，回折効率を一定に保つためには音響波の振幅を波形毎に調整する必要があるが，一般に 2 次分散を大きく加えた場合の音響波と同じ回折効率を音響波が短いフーリエ限界パルス付近で得ようとする音響波の振幅が大きくなりすぎ回折効率も飽和し，正しい波形が得られないことがある．そのためには音響波振幅を小さくする必要があり，結局回折効率は位相変調にも依存する．

ジッター計測

AOPDF では，変調はアクティブに加えているので，整形パルスのパルス間隔のタイミングジッターは元の光パルスのジッターに音響波のジッターが加わったものになる．音響波のジッターの存在を確認するために，Fig. 2.29 のセットアップを構築した．本セットアップでは，ジッターの存在を測定するために SI を用いる．リファレンス光には時間遅延 τ をつけている．リファレ

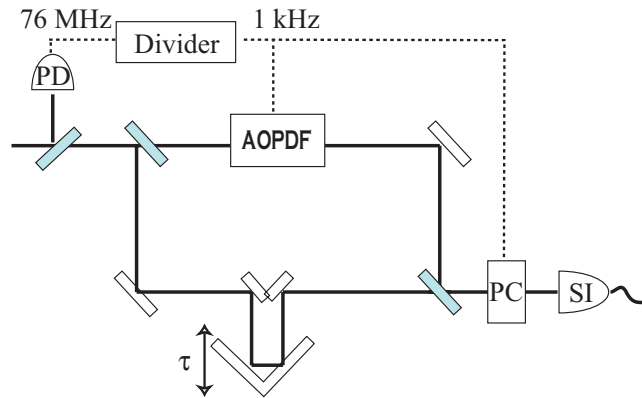


Fig.2.29 AOPDF jitter measurement. PC: Pockels cell; SI: Spectral Interferometer. The input pulse train is 76 MHz repetition rate. The AOPDF and the Pockels cell are operated with 1 kHz. Time delay τ is added to the reference pulse. The timing jitter of the laser source (76 MHz), Divider, and the PC is cancelled out with this setup, and the timing jitter of the AOPDF can be obtained as a fringe instability acquired with the SI spectrometer.

ンス光の光路長の揺らぎを最小限に抑えるために光路はなるべく短く保ち，更に空気の揺れを最小にとどめるために覆いを施した．光源，Divider 及びポッケルスセルによるジッターはリファレンス光とシグナル光の両方に均等に加わるためにキャンセルされ，本セットアップを用いれば AOPDF の整形パルスのジッターのみを観測することが可能である．SI で得られるフリンジは，

$$I(\omega) = |\mathcal{F}\{e_{\text{ref}}(t - \tau) \exp(\phi_{\text{ref}}) + e_{\text{shaped}}(t - \tau') \exp(\phi_{\text{shaped}} + \delta)\}|^2 \quad (2.45a)$$

$$= A(\omega) + E_{\text{ref}}(\omega) E_{\text{shaped}}(\omega) \cos\{\Phi_{\text{ref}}(\omega) - \Phi_{\text{shaped}}(\omega) + \omega\tau + (\omega\tau' + \delta)\} \quad (2.45b)$$

で表される．Eq. (2.45a) の τ' および δ はそれぞれ，整形パルスの電界包絡線のタイミングジッター及び，包絡線に対する位相オフセットである包絡線位相 (Carrier Envelope Phase: CEP) を示している．本来キャリアに対して包絡線の遅延がずれることによって CEP がずれるので， τ' と δ は本質的には同じであるが，簡単のため分けて考える．Eq. (2.45b) によれば，整形パルスの包絡線のタイミングジッターは参照光の時間遅延が変化しないのでフリンジの周期に，CEP のジッターはフリンジのオフセットとして現れることがわかる．Fig. 2.29 のセットアップを用いて，フリンジを測定した結果を Fig. 2.30 に示す．フリンジ間隔には大きな変化が無いものの，測定毎にフリンジが左右に大きく揺れる事がわかる．数周期以内の範囲でフリンジが左右に揺れており，つまり δ が存在している事を示している．フリンジの 1 周期は位相に換算すると 2π rad であり，波長 800 nm の場合には，時間域に直すと 2.7 fs の揺れであるので，最低でも 2.7 fs 以上のタイミングジッターが AOPDF には存在することがわかる．本ジッターの存在は，AOPDF の整形波形を応用に用いる際に問題になるばかりではなく，波形評価に SI 等の CEP にセンシティブな計測法を用いることが困難になることを示している．AOPDF によって整形された波形は CEP に

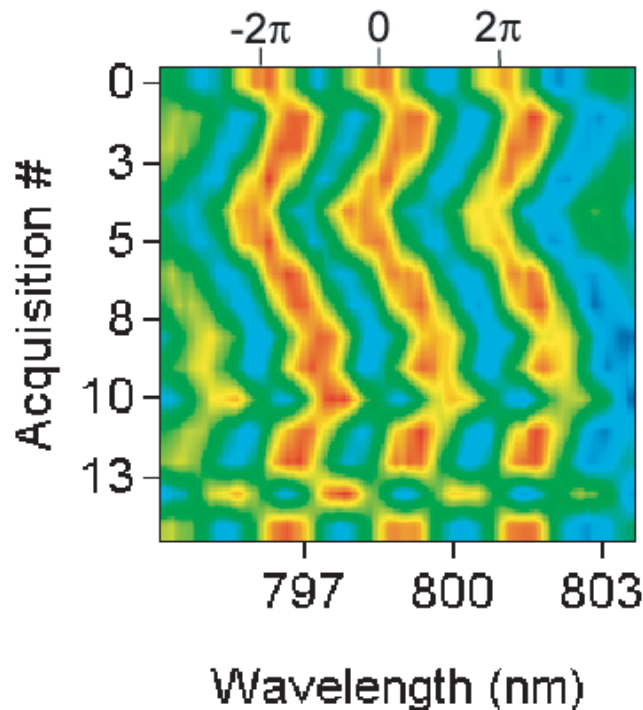


Fig.2.30 Fringe instability. Single-shot measured spectral fringes are shown with respect to the acquisition number. One fringe corresponds to a 2π slip, where a 2π slip corresponds to a 2.7-fs timing jitter in time domain.

敏感でない FROG 等の測定法を用いるか，SI を用いるのであればワンショットベースで測定する必要がある．パルス毎のジッターが存在する場合にフリンジ波形を数パルスに渡って平均化したのでは，フリンジのコントラストが失われてしまうために SN が低下する．AOPDF による整形波形を干渉計測する場合には SI で用いる CCD の電子シャッター時間をパルスピッカーと同期させてシングルショットベースで測定する必要がある．

2.3.4 本節のまとめ

本節では AOPDF のフィルター特性とそのジッター計測に関して議論した．特にジッターの存在によって，AOPDF で整形整形された波形の測定手法は制限を受ける可能性があることを指摘した．但し § 6.4.1(p. 163) においてジッターが存在する場合でも SI を用いて波形を高い SN で測定する手法について述べる．

2.4 $4f$ 型波形整形器及び AOPDF 波形整形器のパフォーマンス比較

波形整形システムの EO 変調部となる波形整形器の特性はシステム全体のパフォーマンスを規程する大きな要素となる。Tab. 2.1 に $4f$ 型波形整形器と AOPDF の簡単な比較を示す。

Tab.2.1 Characteristics of LC-SLM based $4f$ pulse shaper and AOPDF

	AOPDF	LC-SLM
Shaping in	Time domain Phase & amplitude modulation	Spectral domain Need extra LC-SLM & polarizers for amplitude modulation
Modulation	Active Typ. 58 (μ s) repetition period Time jitter observed	Passive Operates at any repetition rate Small time jitter
Alignment	Easy	Difficult
Programming	Complicate Typ. 4096×16 (bits)	Easy Typ. 128×16 (bits)
Dynamic range	High Typ. > 50 (dB)	Low Typ. < 20 (dB)
Time window	Limited by crystal length Typ. ~ 3 (ps)	Determined by spectral resolution (lateral dispersion) on Fourier plane Typ. ~ 3 (ps)
Time resolution	Determined by bandwidth of rf signal Typ. ~ 6.7 (fs)	Determined by spectral bandwidth Typ. ~ 21 (fs) with $\Delta\lambda = 100$ (nm)
Other characteristics	Small spatial distortions	Large spatio-temporal coupling

2.5 本章のまとめ

本章では，高精度波形整形器システムでのキーデバイスとなる $4f$ 型波形整形器及び AOPDF の波形整形器について原理及びその特性を議論した．

特に $4f$ 型波形整形器の時間空間結合効果に関して詳しく解析し，その結合効果による時間空間プロファイルを 2D-SSI 測定法を用いて初めて直接測定した．この時間空間結合がコヒーレント制御にもたらす影響を空間域及び時間域から明らかにした．特に時間空間結合による空間プロファイルの変調の影響をフェムト秒レーザーアブレーションへの応用例を示すことによって示した．本時間空間結合効果は波形整形器への入射ビームを広げることや，波形整形器後に空間フィルターを用いることによって低減可能であることを示した．

また AOPDF のによって整形されたパルスのジッターの存在を明らかにし，正確な波形を測定する手法に関しての考察を行なった．こうしたジッターが存在する場合には，一般には干渉計測を用いたのでは正確に波形を測定することが難しいことも明らかにした．

参考文献

- [1] C. Froely, B. Colombeau, and M. Vampouille, “Shaping and analysis of picosecond light pulses”, in *Progress in Optics XX*, E. Wolf, ed. (North-Holland, Amsterdam, 1983), 65–153, (1983).
- [2] A. M. Weiner, “Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators”, *Rev. Sci. Instrum.*, **71**, 1929–1960, (2000).
- [3] A. M. Weiner, J. P. Heritage, and E. M. Kirschner, “High-resolution femtosecond pulse shaping”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**, 1563–1572, (1988).
- [4] A. M. Weiner, D. E. Leaird, S. Pastel, and J. R. Wullert, “Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator”, *Opt. Lett.*, **15**, 326–328, (1990).
- [5] H. Wang, Z. Zheng, D. E. Leaird, A. M. Weiner, T. A. Dorschner, J. J. Jijol, L. J. Friedman, H. Q. Nguyen, and L. A. Palmaccio, “20-fs pulse shaping with a 512-element phase-only liquid crystal modulator”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, **7**, 718–727, (2001).
- [6] C. W. Hillegas, J. X. Tull, D. Goswami, D. Strickland, and W. S. Warren, “Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses”, *Opt. Lett.*, **19**, 737–739, (1994).
- [7] G. Chériaux, O. Albert, V. Wänman, J. P. Chambaret, C. Féliz, and G. Mourou, “Temporal control of amplified femtosecond pulses with a deformable mirror in a stretcher”, *Opt. Lett.*, **26**, 169–171, (2001).
- [8] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, A. Assion, C. Horn, C. S.-. Tudoran, M. Winter, and T. Baumert, “Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping”, *Rev. Sci. Instrum.*, **74**, 4950–4953, (2003).
- [9] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**, 1343–1362, (1995).
- [10] M. M. Wefers and K. A. Nelson, “Space-time profiles of shaped ultrafast optical wave-

- forms”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **32**, 161–172, (1996).
- [11] J. Paye and A. Migus, “Space-time wigner functions and their application to the analysis of a pulse shaper”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**, 1480–1490, (1995).
- [12] T. Tanabe, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Spatiotemporal measurements based on spatial spectral interferometry for ultrashort optical pulses shaped by a fourier pulse shaper”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2795–2802, (2002).
- [13] K. Iizuka, “Engineering Optics”, Springer-Verlag New York, 2 edition, (1985).
- [14] A. Yariv, “Quantum Electronics”, John Wiley & Sons, New York, 3 edition, (1988).
- [15] O. E. Martinez, “Grating and prism compressors in the case of finite beam size”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **3**, 929–934, (1986).
- [16] D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg, “Real-time spatial-spectral interference measurements of ultrashort optical pulses”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 2095–2098, (1997).
- [17] T. Feurer, J. C. Vaughan, R. M. Koehl, and K. A. Nelson, “Multidimensional control of femtosecond pulses using a programmable liquid crystal matrix”, *Opt. Lett.*, **27**, 652–654, (2002).
- [18] J. C. Vaughan, T. Feurer, and K. A. Nelson, “Automated two-dimensional femtosecond pulse shaping”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2489–2495, (2002).
- [19] J. C. Vaughan, T. Feurer, and K. A. Nelson, “Automated spatiotemporal diffraction of ultrashort laser pulses”, *Opt. Lett.*, **28**, 2408–2410, (2003).
- [20] M. L. M. Balistreri, H. Gersen, J. P. Korterik, L. Kuipers, and N. F. V. Hulst, “Tracking femtosecond laser pulses in space and time”, *Science*, **294**, 1080–1082, (2001).
- [21] T. Feurer, J. C. Vaughan, and K. A. Nelson, “Spatiotemporal coherent control of lattice vibrational waves”, *Science*, **299**, 374–377, (2003).
- [22] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, “Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based tomography and interferometry”, *J. Opt. Soc. Am.*, **72**, 156–160, (1982).
- [23] T. Tanabe, K. Ohno, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, “Feedback control for accurate shaping of ultrashort optical pulses prior to chirped pulse amplification”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, (2004). (in press).
- [24] J. P. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo, and J. C. Gauthier, “Single-shot spectral interferometry with chirped pulses”, *Opt. Lett.*, 1612–1614, (2001).
- [25] C. Dorrer, “Influence of the calibration of the detector on spectral interferometry”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 1160–1168, (1999).
- [26] P. Tournois, “Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems”, *Opt. Comm.*, **140**, 245–249, (1997).

-
- [27] D. Kaplan and P. Tournois, “Theory and performance of the acousto optic programmable dispersive filter used for femtosecond laser pulse shaping”, *J. De. Physique IV*, **12**, 69–75, (2002).
- [28] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois, “Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping”, *Opt. Lett.*, **25**, 575–577, (2000).

第3章

適応制御波形整形

3.1 はじめに

あるシステムの出力を目的の状態に制御するために、フィードバック制御を用いることがある。システムの線形伝達関数が既知である場合には適切なフィードバックゲインを設定すると、安定して目的の出力を得られる。一方、システムの伝達関数が非線形で表示される場合や伝達関数が不明な場合には、出力を目的とする状態に制御するために、入出力情報からコントローラのパラメータを自動調整する Parametric Adaptive Control を行なうことができる。本手法のアイデアはフェムト秒レーザパルス波形整形システムに取り込める。但し、フェムト秒レーザパルスの波形整形では、環境の変化に追従してコントローラのパラメータを即時に変化させなくてはならない状況はまれであり、最適化アルゴリズムは、繰り返し制御を用いて最適解を探索するための道具として用いる。本論文での最適化制御や適応制御とは、レーザシステム後の波形や物質の量子状態等をシステム出力と見なし、それを目的とする状態にするためには、コントローラである波形整形器へどのような入力パラメータを加えれば良いかを調べるために、閉ループを用いた繰り返し制御による解探索を行なう手法の事を指すことにする。波形整形器への入力パラメータは波形整形器で加えるスペクトルフィルタ関数である。

本章では、適応制御波形整形手法に基づいて高精度に波形を整形するシステムを構築する際に制御系の要素技術となる最適化アルゴリズムの理解を深めることを目的とする。特に波形整形システムにはどのようなアルゴリズムを取り入れた適応制御を用いれば良いかを位相変調のみによる時間波形整形計算をモデルにして明らかにする。これまでも、最適化アルゴリズムのパラメータの変化が、適応制御を超高速度コヒーレント応用に用いた際にどのような影響を与えるのかを調べた例はある^{1, 2)}。しかし、遺伝的アルゴリズムは、プログラマがどのようなアルゴリズムを実装するか選択できる自由度が高いことや、波形整形器の変調方法に工夫を取り入れることによってそれぞれの最適化アルゴリズムの性能に差がでることは十分に考えられる。そこで、焼き鈍し法と遺伝的アルゴリズムを最適化アルゴリズムとして用いた場合のそれぞれの波形整形精度

を，独自に比較する必要がある．

本章では，始めにこれらのアルゴリズムの原理を述べた後に波形整形システムのモデルにそれぞれを適用し，それらの結果から実際に実験に用いる波形整形最適化アルゴリズムを選択する．

3.2 適応制御を用いたフェムト秒レーザーパルスの波形整形

適応制御が有効なケースの一つは，システムの伝達関数が既知であっても出力から入力を直接求めることができない逆問題になっている場合である．スペクトル位相のみを変調することによって目的時間複素電界を得るスペクトル位相フーリエシンセサイジング波形整形において，最適位相マスクを設計する場合が本例にあたる．Eq. (1.4) によると，フーリエ逆変換演算は振幅項と位相項のそれぞれが独立に線形に演算されるわけではない．スペクトル振幅 $A(\omega)$ とスペクトル位相 $\Phi(\omega)$ の両方を与えて初めて時間領域の振幅 $a(t)$ ・位相 $\phi(t)$ が定まるため，スペクトル振幅 $A(\omega)$ が光源のスペクトルによって決まっている場合，スペクトル位相 $\Phi(\omega)$ を変調するのみでは，目的とする時間波形 $e(t)$ を一意に定めることはできない．しかし近似波形であれば，スペクトル位相 $\Phi(\omega)$ を直接求める代数的な手法は逆問題となっているために存在しないが，最適化手法を取り入れて求める事ができる．特に，時間振幅波形 $a(t)$ または時間位相 $\phi(t)$ のみをターゲットとする場合にはかなりの精度が得られると期待される．

一方，実験室環境においても最適化制御は有効である．例えば，フェムト秒レーザーパルスが物質中を伝搬する場合でも，それを記述する波動方程式では非線形項が無視できないために，やはり代数的に出力から入力を求めることはできない．フェムト秒レーザーパルスはその広帯域性及びその高ピークパワー性によって，光パルスが物質中を伝搬するとその形状が容易に変化する．非線形波動方程式を光の伝搬方向にセグメント化し，そのセグメント内で線形近似して光の伝搬を記述するスプリットステップフーリエ法³⁾を応用し，そうした伝搬計算アルゴリズムを逆に辿りシステム出力から入力を近似的に求める手法も提案したが⁴⁾，実際には非線形定数を正確に求めることは簡単ではないために，正確な入力波形を決めることは難しい．更に，こうした系においては線形定数やわずかな外乱であっても非線形項の影響と相まって波形に大きな変化を与える．こうした理由から仮にシステムを非線形方程式でモデル化できる場合でも，非線形伝搬方程式を解くことなしに，実験室内で閉ループを構築し出力を最適化する手法が有効である．

実験室内で最適化制御による閉ループを構築する3つ目のケースはシステムの伝達関数自体が不明な場合である．具体例としては，振幅位相の制御されたフェムト秒レーザーパルスを光物質相互作用に用いてターゲット物質の量子状態を目的とする状態に制御するような実験に適用する場合である．分子等の相互作用ハミルトニアンを記述することは物理的に困難な場合が多く，どのようなスペクトルマスクで変調された光パルスが物質の量子状態を目的とする状態へと操作するかは不明である．こうしたシステムが完全にブラックボックス化されている場合でも，最適化制御は非常に良いパフォーマンスを示す．

最適化制御では進化的アルゴリズム (Evolutionary Algorithm: EA) で総称される免疫型アルゴリズム (Immune Algorithm: IA) や遺伝的アルゴリズム (GA), 結晶の焼きなましをモデルにした焼き鈍しアルゴリズム (SA), 問題を複数の部分問題に分割する組み合わせ分枝限定法 (Branch and Bound) 等が用いられる。このような最適化アルゴリズムは巡回セールスマン問題 (travelling salesman problem, N 個の町を巡回して出発点に戻る最短路を求める) を事実上解決した。

次節以降では位相のみの変調による波形整形システムにおいてしばしば用いられる GA 及び SA の 2 種類のアルゴリズムを用いた波形整形を示し, それらの波形整形およびコヒーレント制御に用いる際のパフォーマンスに関して議論する。

3.3 遺伝的アルゴリズムによる波形整形

3.3.1 アルゴリズム

遺伝的アルゴリズム (Genetic Algorithm: GA) は最適化制御の中でももっとも広く用いられているアルゴリズムである。GA のフローチャートを Fig. 3.1 に示す。GA は生物の発生過程をモデルとしている。まず各世代 (generation) で複数の遺伝子個体 (individual) を用意する。遺伝子個体は多くの場合 1 次元配列であり, 今回のモデルでは 128 ピクセルのスペクトル位相変調を表わすマスク関数配列である。その遺伝子個体の中から特に適用度 (目的波形からの誤差が小さい) が高い遺伝子個体のみを選択し, 残った遺伝子個体同士で交叉を行なうことによって次の世代の遺伝子を作り出す。交叉とは世代内のある遺伝子個体の一部を取り出し, 他の遺伝子個体と組み合わせる作業である。GA の直感的理解は積み木で家を作る場合に似ている。はじめランダムに存在する積み木から, 複数の家 (初期遺伝子) を作成する。適用度の高い家を構成する積み木を残し (淘汰) その積み木のみで再び新たな家構築 (交叉) すればさらに適用度の高い家を簡単に作る事ができる。GA は適用度の高い家を造り出す積み木を用いて新たに家を構築した方が更に適応度の高い家が簡単に作り出すことが可能であるという前提に基づいている。但し, 淘汰によって適応度の高い積み木のみを選択し続けると三角の積み木ばかり残ってしまうことがある。そうした遺伝子個体の極端な偏りを防ぐために突然変異を取り入れる。位相マスク関数を遺伝子個体とした場合の突然変異はあるピクセルをある確率でランダムに選択してその値をランダムに変化させる作業である。

GA アルゴリズムを模式的に示した図が Fig. 3.2 である。後に述べる SA との対比で GA の特徴を述べると, 始めは広い解空間の中からランダムに遺伝子個体数だけのサンプル点を選択する。その後, その遺伝子個体のうち最適解に近い解のみが生存して, その解同士で交叉を繰り返すことで, 更に最適解に近づける。ここで局所的極小解に陥ることを防ぐ目的で突然変異を導入することである確率で局所的極小解を抜けられる機構を用意しておき, 大域的最適解を見つける。

GA はアルゴリズムの自由度が高く, コードはプログラマに大きく依存する。そのためにター

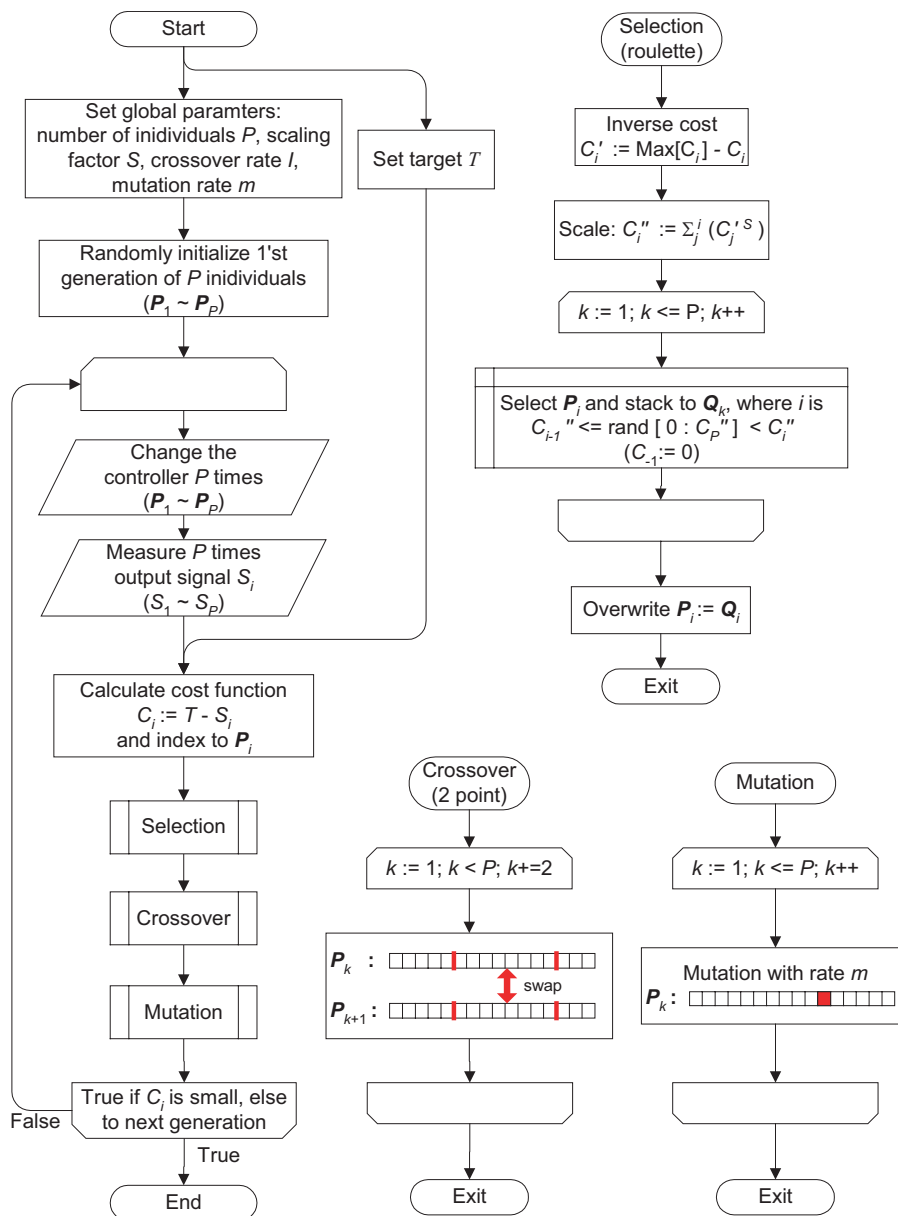


Fig.3.1 Flowchart of genetic algorithm. Function $\text{Max}[C_i]$ returns the maximum value from C_i , and $\text{rand}[a:b]$ generates random value in range from a to b .

ゲットシステムの特性を勘案しつつアルゴリズムを実装する必要がある。

今回の、スペクトル位相変調による波形整形をモデルとした計算では、選択アルゴリズムには適応度比例方式、交叉には2点交叉則を用いた。適応度比例方式はルーレット則とも呼ばれ、適応度に応じて選択される確率を決定する。また、適応度に応じて適応度をどのように(何乗に)比例させるかを決定するためにスケーリング係数 S を導入した。2点交叉では、あるスペクトルマスク関数配列からランダムに2点を選び、その2点に挟まれる配列を他の遺伝子個体の同じ位置のマスク関数と交換する。詳細なアルゴリズムは、Fig. 3.1 中に示した。

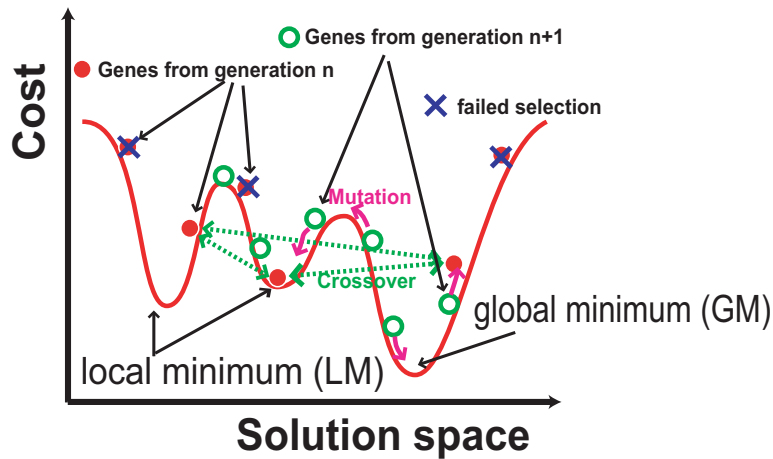


Fig.3.2 Schematic image of GA.

3.3.2 計算条件

計算で用いた波形整形器の条件は、§ 2.2 に示した。位相変調量の分解能を決定するマスクのグレーレベルは $G = 2\pi/64$ rad に設定した。GA アルゴリズムに与えるパラメータは、1 世代の個体数 $P = 30$ ，スケーリング係数 $S = 1.0$ ，交叉率 $I = 90\%$ ，突然変異率 $m = 0.5\%$ とした。突然変異率はマスクの全てのピクセルに対して行なった。即ち位相ピクセル数が 128 の場合には、突然変異によって一つでもマスクが書き変わる確率は 47.4% となる。また突然変異率はランダムに値を変えるのではなく、両隣のピクセルの中間の値を取った場合の方が良い結果が得られた。

適応度は SA 法と対応させるために以降コストと呼ぶ。ターゲット時間強度波形と整形された時間強度波形の差をコストと定義してそのコストが最小になるように最適化を行った。すなわちコスト C は

$$C = \frac{1}{N} \sqrt{\sum_{i=1}^N \left(\frac{I_i^{(\text{shaped})}(t)}{\sum_{i=1}^N I_i^{(\text{shaped})}(t)} - \frac{I_i^{(\text{target})}(t)}{\sum_{i=1}^N I_i^{(\text{target})}(t)} \right)^2} \quad (3.1)$$

で定義した。ここで N は時間波形を格納する配列の要素数、 $I_i^{(\text{shaped})}(t)$ 、 $I_i^{(\text{target})}(t)$ はそれぞれ、整形波形及びターゲット時間強度波形が格納されている配列の i 番目の要素である。また S はスケーリング係数である。

3.3.3 計算結果

理想的な場合

100 世代後に得られた、スペクトル位相変調による整形パルスを Fig. 3.3 に示す。Fig. 3.3(a) の実線が整形波形、点線がターゲット波形である。ターゲット波形には強度比の異なるダブルパ

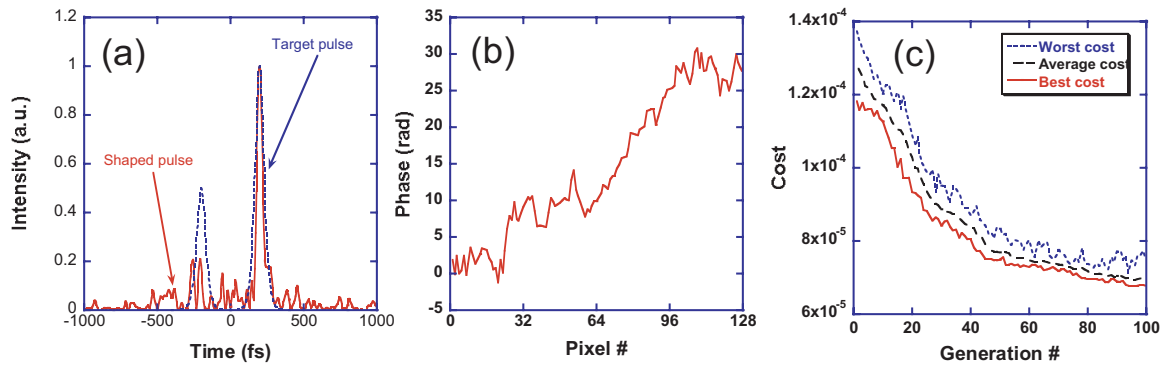


Fig.3.3 (a) Shaped pulse with GA algorithm. Shaped pulse and target pulse are shown. (b) Optimized phase mask function. (c) Cost function in respect to generation number.

ルスを設定した。各世代内でもっとも良いコスト，悪いコスト，またその世代の平均コストを Fig. 3.3(c) に示す。GA において収束を判断する材料は，1 世代内での最も良いコストと悪いコストの差である。この差が小さくなるということは，世代を重ねる事によって，ある世代内の遺伝子個体の全てが環境に対して高い適応を示すということであり，これは GA の，環境に適応する，という目標を達成していることになるので，この状態で解が収束したと判断できる。今回の計算では，各世代の遺伝子個体数 $P = 30$ としたので，100 世代で 3000 回スペクトル位相マスクを書き換えていることになる。

突然変異率を極端に少なくする等，GA に加えるアルゴリズムのパラメータを変化した結果，世代が若いうちは，交叉の影響によってコストが減少することがわかった。世代が進むにつれ，交叉の影響のかわりに，突然変異がコストを低減する主たる要素になる。また，GA ではパラメータをよほど大きく変化させない限り，収束にはそれほど大きな差は見られず，アルゴリズムのパラメータに対しては，それほど鋭敏ではない。

ノイズが存在する場合

次にノイズが存在するときの，GA の性能を調べる。より実際のモデルに近づけるために，信号の揺らぎの大きさは測定信号から見積もった。波形整形器後の光をシングルモード光ファイバーに入射し，その伝搬後のパルスを SHG 結晶に入射させた。SHG 結晶で発生する SHG 光をフォトマルで測定しデジタルオシロスコープに取り込み，信号の揺れの大きさを観測した。Fig. 3.4 にデータ取得毎の SHG 信号の揺れを示した。平均光強度を 100 とすると，標準偏差 2.88 % の大きさに信号が揺れている。SHG ではわずかなピーク強度の変化が変換効率に大きく影響を与えるので，光ファイバーへのカップリング効率のわずかな揺れ，空気の揺らぎによる波形の乱れなどが影響していると考えられる。

そこで，計算モデルではコスト C に対して標準偏差 2.88 % の大きさにノイズを加える。その

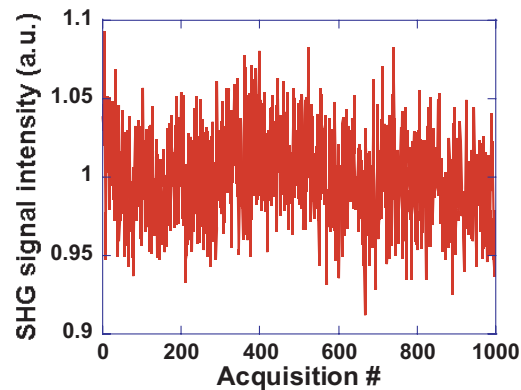


Fig.3.4 Measured SHG signal fluctuation. Seed pulse from a Ti:Sapphire oscillator is first coupled into single mode fiber propagates about 30 cm, and then the output pulse is focused on the BBO crystal. SH generates and it is measured with a photo-multiplier. The normalized output voltage is shown with respect to the sampling number.

モデルを用いて同様に GA を用いてスペクトル位相変調のみによる波形整形を行なうと, Fig. 3.5 で示される波形が得られる.

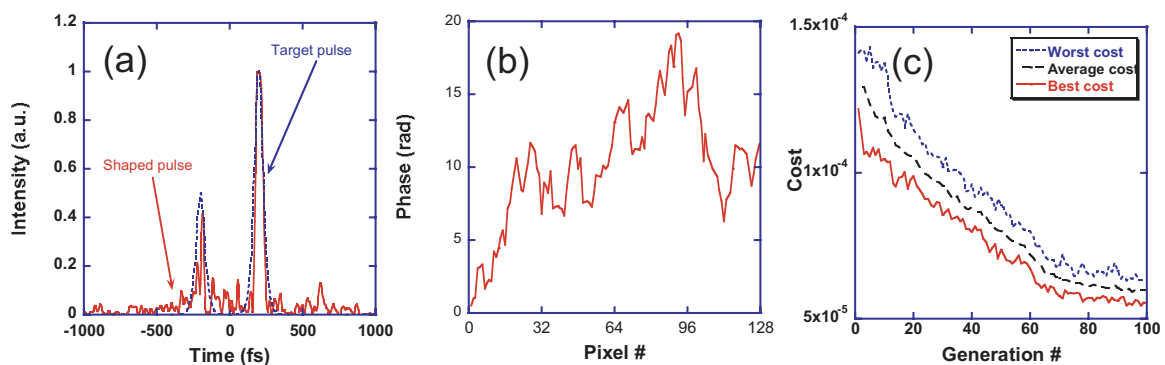


Fig.3.5 (a) Shaped pulse with GA algorithm when noise is added to the signal. Shaped pulse and target pulse are shown. (b) Optimized phase mask function. (c) Cost function in respect of the generation number.

GA を用いるとこの程度のノイズでは整形精度にはほとんど影響を与えず, コストは理想的な場合とほぼ同じ値にまで収束することがわかった. ただ, Fig. 3.3 (a) でも Fig. 3.5(a) においても時間波形の振幅には凹凸が目立つ.

3.4 焼きなまし法による波形整形

3.4.1 アルゴリズム

焼きなまし (Simulated Annealing: SA) のフローチャートを Fig. 3.6 に示す . SA は液体が凍

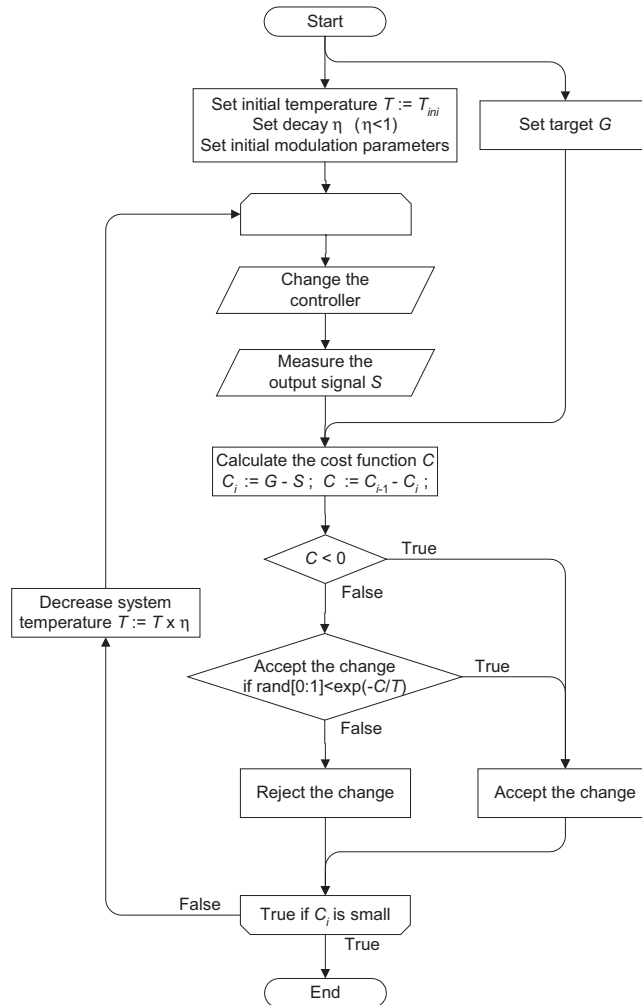


Fig.3.6 Flowchart of a simulated annealing algorithm. Function rand[a:b] generates random value in range from a to b.

るときの結晶化あるいは金属が凝固する際の焼きなましをモデルとしている . 高温では液体中の分子は自由に運動するが , 液体をゆっくり冷やすことによって熱振動が失われ , 原子はしばしばその大きさの何 10 億倍の距離について全方向に完全に整列し , 純粋な結晶を作る . この際に結晶成長は系の最小エネルギー状態をとるように成長する . そこで , 液体をゆっくり冷やすことによって最小エネルギー状態を見つけることができる . SA はこの概念を取り入れるためにシステム温度を定義して , システム温度が高い状態では , コストが悪化した場合でもその変化を受け入れ , シス

テム温度はゆっくりと冷ましていく．逆に液状の金属を急冷（焼きいれ）することによってこの状態よりも少しエネルギー状態の高い多結晶質または非結晶の状態に陥ることも可能である⁵⁾．SAではこれはシステム温度を急冷することによって，局所的極小解に陥っている状態に対応する．

Fig. 3.7にSAを模式的に示した．GAとの大きな違いは，GAは世代内で最も良いコストを得

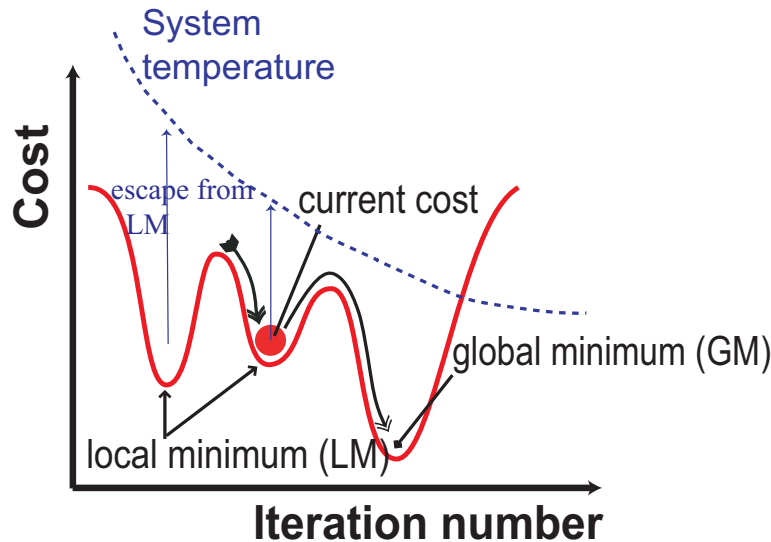


Fig.3.7 Schematic image of SA algorithm.

られたマスクを選択することによって最適解を求めていく（前の世代との比較はしない）のに対して，SAではコストの前回からの変化分を評価する点である．GAでは，始め解空間の中からランダムに個体数だけのポイントを選び，その中で選択刷るのに対して，SAは，解空間のある点を始点として，そこからFig. 3.7で概念的に示した解空間の曲線を移動していくことによって最適解を発見する．このときに，システム温度を設定することで局所的極小点に陥らないように工夫している．システム温度がまだ高い場合，多少コストが悪化した場合でもある確率でその変化を受け入れ，最適化が進むにつれてシステム温を低下させ，受け入れ確率を低減させる．

より広い解空間を効率的に調査するためには，Fig. 3.7で示す曲線状の1 iteration毎の移動距離を（特に iterationを開始した直後では）十分に大きく取る必要がある．そこで，本研究ではSAにさらに多少の改良を加えた． n 番目のループにおいて変化させるマスクのピクセル数 f_n は1回目のループでは全ピクセル数 $f^{(\max)}$ の半分の数（ $f^{(\max)} = 128 \text{ pix}$ の場合 $f_1 = 64 \text{ pix}$ ）とする．コストが目的に近づいた場合，次のループにおいては，

$$f_{n+1} = f_n + 1 \quad (\text{if } f_n < f^{(\max)}) \quad (3.2)$$

の数のピクセルを変化させる．一方変化の結果コストが目的から遠ざかった場合には次のループでは

$$f_{n+1} = f_n - 1 \quad (\text{if } f_n > 0) \quad (3.3)$$

の数のピクセルを変化させる．このことにより，コストが目的に近づいた場合には，移動をより早めることによってより幅広く効率的に解を調査することができるので，解の収束が早まることが期待される．

3.4.2 計算条件

波形整形器のパラメータは § 2.2 に示した．マスクの(量子化)グレーレベル $G = 2\pi/64$ rad とした．また，初期マスクはフーリエ限界パルスとした．また，ピクセルを変化させる際には，前回の値の情報は用いずに $0 \sim 2\pi$ までランダムに値を選択できるものとした．そのアルゴリズムの方が経験的に収束が速いからである．

3.4.3 計算結果

理想的な場合

アルゴリズムには以下のパラメータを与えた．初期温度 $T_{ini} = 5.0 \times 10^{-6}$ ，温度の冷却係数 $\eta = 9.95 \times 10^{-1}$ の条件で計算をおこなった．

3000 回後に得られた最適パルスを Fig. 3.8 (a) に示す．またこのときのコスト関数の減少の様子を Fig. 3.8 (c) に示す．Fig. 3.8 (a) を GA による整形波形 Fig. 3.3 (a) と比較すると波形の振

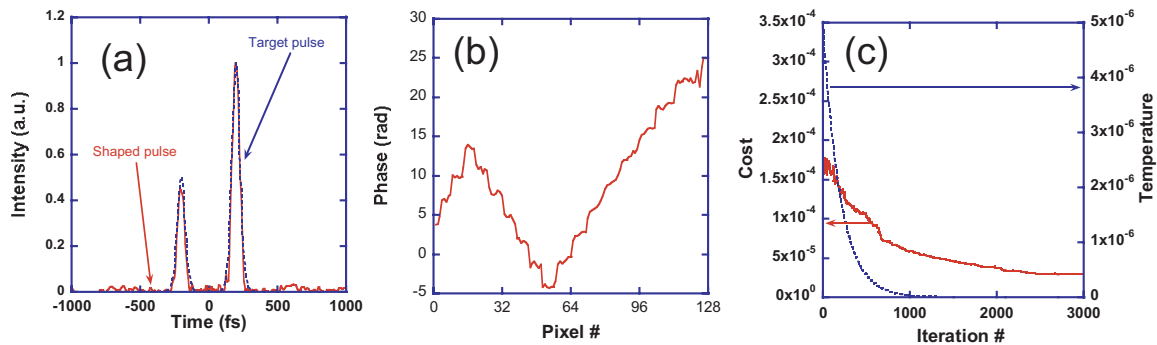


Fig.3.8 (a) Shaped pulse with SA algorithm. The shaped pulse and the target pulse are shown. (b) Optimized phase mask function. (c) Cost function in respect of iteration number.

幅の凹凸が低減されている．Fig. 3.8 (b) 及び Fig. 3.3 (b) のマスク関数を比較すると SA による最適化の方がマスク関数がスムーズになっており，これが強度の凹凸を低減させている．このようにマスクがスムーズに得られるのは，SA はピクセル毎に少しずつ値を変化させ，きめの細かい制御を行なっているからである．Fig. 3.8 (c) のコストの値も GA の場合と比較すると大きく改善されている．

次に，他の条件は保ちつつ，システム温度パラメータを変化させて計算を行なった．初期温

度 $T_{ini} = 5.0 \times 10^{-5}$, 温度の冷却係数 $\eta = 9.995 \times 10^{-1}$ とした . このときの , コスト関数が Fig. 3.9 (a) に示されている . Fig. 3.9 (a) を見て明らかなようにコストが全く改善しない . この

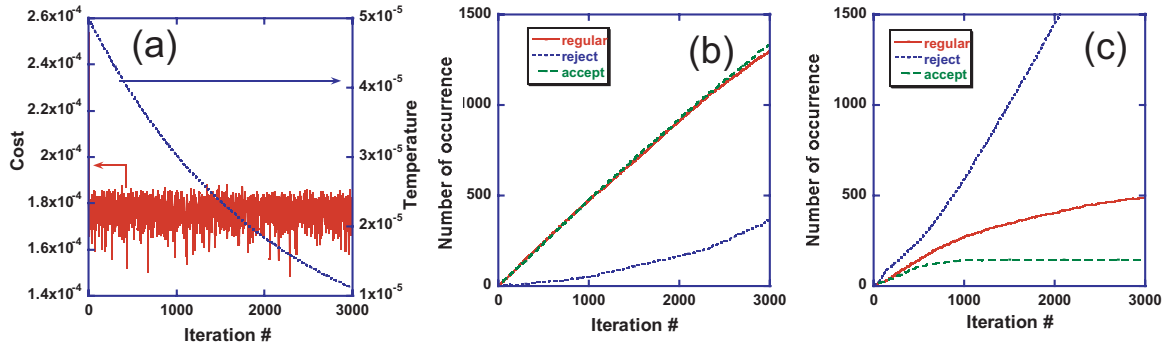


Fig.3.9 (a) Cost function in respect of iteration number with different system temperature parameters. (b) Number of rejected, regular, and accepted masks in respect of iteration number. (c) Same as (b) of Fig. 3.8.

ときの regular, reject, accept の iteration 毎の変化を Fig. 3.9 (b) に示す . 3000 回に近づいた頃によろやく少し reject が増えるものの , accept が多い . 即ち , Fig. 3.9 (a) で最適化が行えないのは , システム温度が高すぎるために , アルゴリズムが iteration を重ねても解を絞れないからである . 実際に Fig. 3.8 で示した実験の regular , reject , accept の発展の様子を Fig. 3.9 (c) に示すが , 1500 程度の iteration ですでに温度が冷え切り accept が増加していかないと見て取れる . このように , regular , reject , accept の iteration 毎の変化をモニターすることによって SA の温度パラメータが適切に設定されているかを知ることができる .

SA は , GA の様にプログラマが自由にアルゴリズムを設定できる自由度は無いものの , システム温度の調整が非常に重要であり , アルゴリズムを目的の動作をさせるためには , ターゲットに応じてシステム温度をきめ細かく調整する必要がある .

ノイズが存在する場合

次に , Fig. 3.4 に示すノイズをモデルに取り入れる . GA の場合と同様にコストに標準偏差 2.88 % の揺らぎを加える . SA を用いて最適化を行なった結果を Fig. 3.10 に示す . このときの温度パラメータは , 初期温度 $T_{ini} = 5.0 \times 10^{-5}$, 温度の冷却係数 $\eta = 9.97 \times 10^{-1}$ とした .

Fig. 3.9 で示したように SA は非常にパラメータに鋭敏であるので , GA の場合とは異なり , ノイズを加えた場合には異なる最適パラメータを探してあげる必要がある . 経験的にノイズを加えると , この最適パラメータの範囲がより狭くなることがわかった . わずかなパラメータの差でも最適化に大きな差が出てくる .

Fig. 3.10 (c) でわかるように今回加えた信号の揺らぎの大きさでは , GA で最適化した場合の方がコストが若干良かった . また , GA では SA ほどパラメータに鋭敏ではなかったので , 使い勝

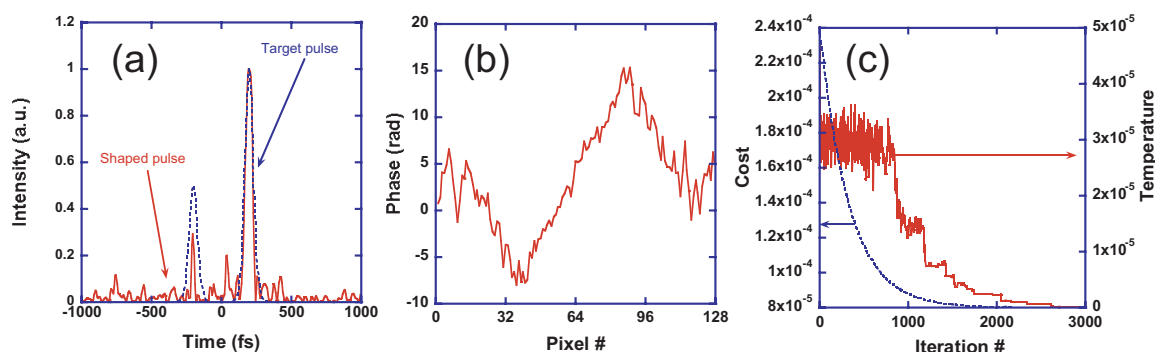


Fig.3.10 (a) Shaped pulse with SA algorithm when noise is added to the signal. The shaped pulse and the target pulse are shown. (b) Optimized phase mask function. (c) Cost function in respect to iteration number.

手が良い。

3.5 アルゴリズムの採択

GA はノイズが存在するときには SA よりも良いパフォーマンスを発揮することがわかった。しかし、実際に GA で整形されたパルス波形では理想状態においてもかなり凹凸が目立ち、本研究の高精度波形整形システムに適用するアルゴリズムとしてはふさわしくない。理想的な状況下では、SA 法は GA 法に比べより最終波形の収束性が遙かに良好であり、整形波形はターゲット波形を非常に精度よく再現する。今回、ノイズのモデルに用いた信号は、シングルモードファイバー後の光の微弱な SHG 信号であり、こうした信号を観測しているにもかかわらず、信号の積算や同期検波を行っていない。実際には実験系の工夫によって、より SN の高い信号取得が実現できるであろう。こうしたことを総合的に判断すると、本研究においては、高精度な整形を目的としているので、最終波形の収束が良い SA 法を採用するのが妥当である。但し、いずれの適応制御実験においてもノイズを可能な限り少なく抑える必要があることは本章のモデル計算によって明らかになった。

3.6 前置き型波形整形適応制御のアイデア

先にも述べたように周波數位相変調のみで波形整形を実現する場合、その時間波形は一意的に求まらないために適応制御を用いた波形整形が必要となる。ここで前置き型波形整形適応制御のアイデアをまとめておく。

適応制御を用いた波形整形が特に不可欠となるのは、フェムト秒光パルスが物質中を伝搬する場合である。フェムト秒光パルスが物質中を伝播する時、光は物質と相互作用を起こしフェムト秒光パルス自体に変調が加わり時間あるいはスペクトル波形が変化する。例えば群速度分散に

よって誘起されるパルス広がり，自己位相変調によって誘起されるスペクトル広がり等である．一般に光と物質の相互作用を解析的に記述するのは困難な場合が多い．物質中には不明な量の高次分散，高次の非線形効果が内在し，相互作用には様々な外乱や物質中の不均一性に起因する擾乱などの要素が影響を与え，光と物質との相互作用の記述をますます難しくする．

したがって前置き型波形整形を実現するために適応制御による制御を導入することは，系の伝達関数が不明であってもその後の波形を最適に制御するのに不可欠である．

前置き型波形整形システムの概念図を Fig. 3.11 に示す．システムは不明な複素伝達関数を持

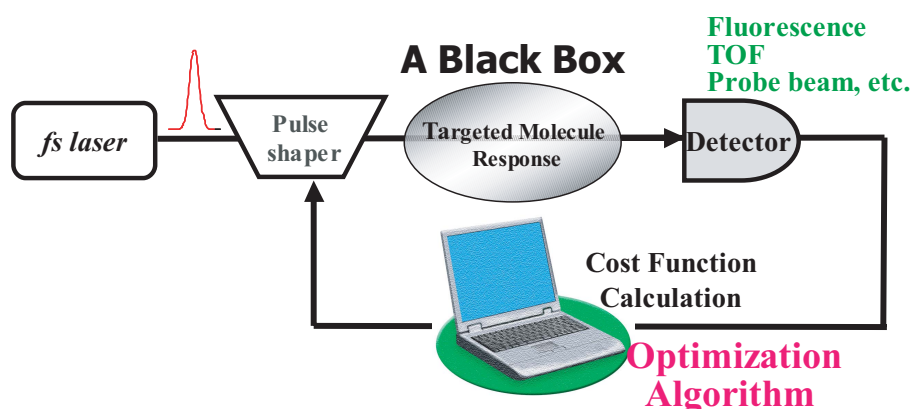


Fig.3.11 Block diagram of adaptive control.

ち，系の出力が最適となるように，出力をモニタしつつその出力が最適となるように入力の変調を変化させる．この出力としては光のパルス波形そのものだけでなく，光と相互作用した物質の終状態でもよい．

3.7 本章のまとめ

本章では，適応制御波形整形システムまたはパフォーマンス参照適応制御システムにおいてキーテクノロジーとなる適応制御アルゴリズムには何を用いるのが適しているかをモデル計算によって明らかにした．計算結果によれば，波形整形において高精度な整形精度を実現するためには，SA法が適している事が明らかになった．但し，SA法の温度パラメータ，及び信号のSNには特に注意する必要があることがわかった．また，モデル計算を行なうことによって，波形整形システムに実際に適用する際に，どのようなパラメータをアルゴリズムに与えるべきであるかをモデル計算を行なった経験から明らかにした．

参考文献

- [1] G. Tóth and A. Lörincz, “The effect of control field and measurement imprecision on laboratory feedback control of quantum systems”, *J. Chem. Phys.*, **101**, 3715–3722, (1994).
- [2] D. Zeidler, S. Frey, K. L. Kompa, and M. Motzkus, “Evolutionary algorithms and their application to optimal control studies”, *Phys. Rev. Lett. A*, **64**, 023420–1–12, (2001).
- [3] G. P. Agrawal, “Nonlinear Fiber Optics”, Academic Press, second edition, (1995).
- [4] T. Yamazaki, T. Tanabe, F. Kannari, S. Shida, and S. Fushimi, “Fiber delivery of ultra-short optical pulses pre-shaped on the basis of a backward propagation solver”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, 7313–7317, (2003).
- [5] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling, “Numerical Recipes in C”, Cambridge University Press, (1988).

第 4 章

増幅器前置き型波形整形

4.1 はじめに

共振器から直接得られる光パルスの強度は一般的に数 100 pJ オーダであり応用に十分でない場合が多い．共振器長を伸ばすことによって 100 nJ 程度の光パルスを直接共振器から得る試みが行なわれているが¹⁾，分子の光解離反応やレーザ光加工，HHG，OPA による周波数変換に用いるにはパワーが不足している．そこでオシレータからの光をシードとして光パルスを増幅するシステムが広く普及している．

そこで本章では超高速光物性コヒーレント制御への応用²⁻⁶⁾を汲んで増幅光パルスの振幅及び位相の両方を波形整形することを目指す．その際に増幅器後に波形を整形したのでは，得られる光パワーが制限され，空間プロファイルも悪化すると考えられるために，増幅器前置き型波形整形システムを構築する．

始めに，増幅器前置き型波形整形システムの後置き型システムと比較した時の利点を述べ，その後波形整形器に理論的な振幅位相変調を加えて増幅器後にどの程度の精度で波形が得られるかを明らかにする．なお，波形整形システムは実験室内ではフィードバックを施さないオープンループであるが，位相マスクの設計には § 3.4 で示した適応制御による最適マスク計算を用いている．

4.2 原理

4.2.1 時間空間結合効果の緩和

これまでも増幅された整形パルスをコヒーレント制御に用いるために波形整形器を増幅器後に設置して整形した例が報告されている^{4, 7-9)}．しかし Fig. 2.15 や Fig. 2.16 など，§ 2.2.4 で得られた知見に基づくと，時間空間結合効果によるビームプロファイルの変調は決して無視してはならない．特に，§ 7.4 で行なう分子の光解離反応制御実験のような高次非線形効果を伴う実験に

においてはこの空間プロファイルの変調は致命的である．本研究で用いる増幅器前置き型波形整形システムの最大のメリットはその点にある．我々のレーザシステムでは再生増幅器を用いるが，再生増幅器は共振器の構成をとっている．レーザ共振器はその空間プロファイルを既定する固有モードを有するが，再生増幅器も例外ではない．増幅器前に設置された波形整形器で時間的に変調を加えられた光パルスは空間変調が加わるもの，自身が固有のモードを持つ再生増幅器にシードされる際に空間的にフィルターされる．非常に強い時間空間結合効果が波形整形器で加わった場合には Fig. 2.19 のようにスペクトル強度に変調が加わることがあるが，空間フィルターを用いれば，空間域の変調をかなり低減することが可能である．

Fig. 4.1 (a) のビームプロファイルは波形整形器後のビームプロファイルを測定した結果である．LC-SLM に加えた変調の有無によりビームプロファイルが変化することがわかる．Fig. 4.1 で加えた交代位相マスクは最も時間空間結合効果が顕著に現れるマスクとして知られる¹⁰⁾．Fig. 2.15 (h) より，波形整形器後の時間空間結合効果の空間域の効果は空間プロファイルでは波形整形器でのグレーティングの横分散方向に平行にビームが広がる現象として現れることから，この Fig. 4.1 (a) のビームプロファイルは時間空間結合によるものである．一方 Fig. 4.1 (b) は

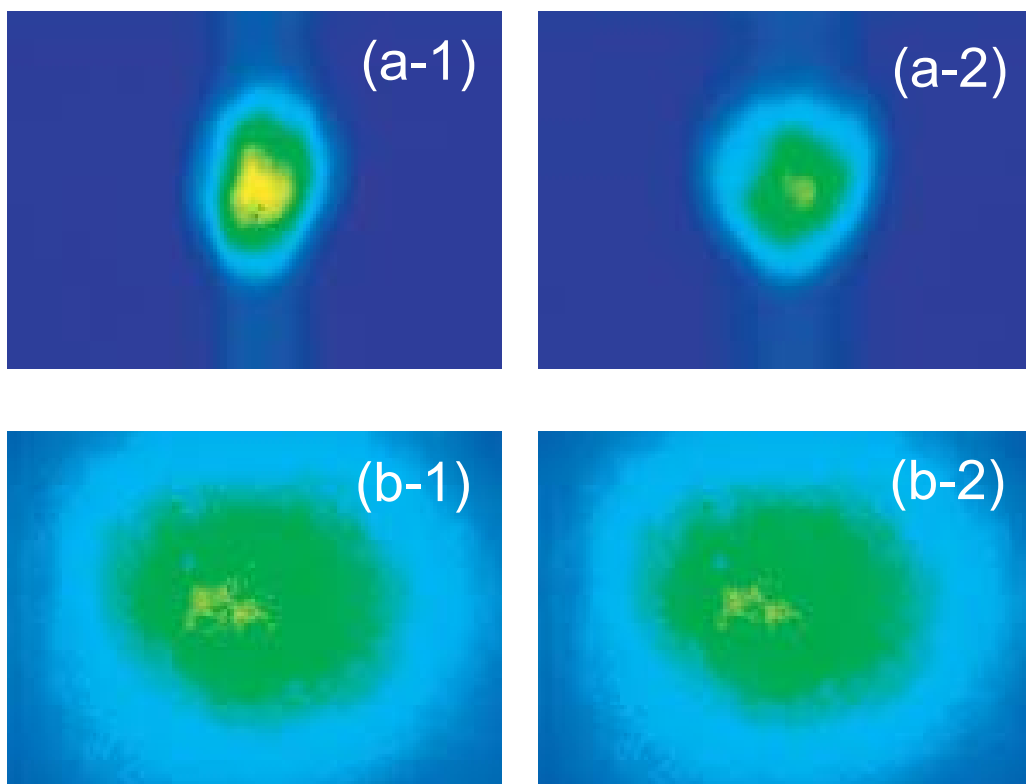


Fig.4.1 (a) Measured CCD profiles after the pulse shaper. The beam profile when no modulation is added (a-1), and when alternative phase mask is added on the mask (a-2). (b) Measured beam profiles after the CPA system. The beam profile when no modulation is added (b-1) and when the alternative phase mask is added (b-2).

CPA 後のビームプロファイルであるが、波形整形器での変調の有無にかかわらず、ビームプロファイルに変化は全く観測されない。波形整形器の時間空間結合効果は必ずビームプロファイルへの変調として現れるので、この測定結果は増幅器後のパルスでは時間空間結合作用がほとんど観測されないことを示している。但し、時間空間結合による影響は位相振幅結合としてスペクトルに現れることは § 2.2.4 (p. 74) で述べた通りである。

4.2.2 パワー取り出し効率の向上・最大取り出しパワーの向上

増幅器前置き型波形整形システムのもう一つの大きな利点はレーザシステムからの光パワーの取り出し効率と最大得ることが可能な光パワーの向上が図られる点である。波形整形システムのスループットは AOPDF では最大 60 % 程度であるが位相変調のみを変化させた場合でもその取り出し効率を一定に保つことは難しい (§ 2.3.3 (p. 82))。

4f 波形整形器ではグレーティング対を用いるために、スループットを高く設計するのは簡単ではない。グレーティングの回折効率を 60 % と仮定し、他では損失が無いとしても波形整形器全体では 36 % の伝送効率にしかならない。グレーティングで高い回折効率を得るにはブレース角によって決定される、使用波長での最も高い回折効率を得られる角度などにも注意を払って使用する必要があり制約条件が多い¹¹⁾。また波形整形器へ入射する光パルスのスペクトル帯域が広い場合、グレーティングでの横分散が大きすぎて LC-SLM の窓に収まらないことがないように、使用するグレーティングのグループ間隔を大きくする必要がある。しかしグループ間隔が広いグレーティングを用いると、高次の回折角が存在するために回折効率が低減する。そのために、波形整形器の効率も低下することになる。

波形整形器に振幅変調を加えた場合にはその振幅フィルターに依存して伝送効率が変化するので設計パルス毎に異なるパルスエネルギーが得られる。光と物質のコヒーレント相互作用には当然光強度も重要なパラメータであるために、波形毎に得られる光強度が変化する波形整形システムを用いたのでは、物質の量子状態の変化が時間波形の変化による影響であるのか光パルスの強度の変化に起因するのか問題を切り分けることが難しくなる。さらに、高強度な光電界を用いた応用では少しでも強いパルスエネルギーが欲しいので増幅器後に波形整形器を配置したのではパワー効率の面で不利である。増幅器前置き型波形整形システムでは増幅器へのシード光を整形する事になるが、増幅器では光強度が $10^3 \sim 10^4$ 増幅されるので、シード光でのエネルギー損失は増幅されたパルスに対しては無視可能なほど微小である。その結果システム全体は、常に一定のエネルギーが得られる。これが前置き型波形整形システムの第 1 の利点である。

第 2 の利点は、前置き型波形整形システムでは、高強度光パルスによる光学機器の損傷を防ぐことができることである。AOPDF で用いる結晶は損傷閾値が低く増幅器後に用いることはできない。また、4f 型波形整形器の変調器として最も広く用いられている LC-SLM のダメージ閾値は一般に 10 mJ/cm^2 程度である¹²⁾。増幅器後のビーム径を 10 mm とし、波形整形器に

$f = 150 \text{ mm}$ のレンズを使用すると仮定すると, LC-SLM に照射可能なエネルギーは約 $80 \mu\text{J}$ に制限される. 波形整形器のグレーティングの回折効率が 60% と仮定しても, 波形整形器後に得られるパルスの最大パルスエネルギーは約 $50 \mu\text{J}$ に制限される. この問題はフーリエレンズにシリンドリカルレンズを用いる用いることによって解決可能であるが^{7, 13)}, 更に高強度な増幅システムを用いた場合にはそれでも限界が存在する. またシリンドリカルレンズを用いる場合には別の問題も生じる. 本研究で用いた LC-SLM の縦方向のピクセル幅は 2 mm であるが, 縦方向のみ光を 2 mm にコリメートすると, フレネル回折の影響を強く受けるようになる. そのため, 2 mm の縦ビーム径のまま波形整形器中を伝搬させるのは簡単ではない. またシリンドリカルレンズを用いた場合には, グレーティングとレンズの傾きが整形パルスの精度に特に鋭敏になるので, 波形整形器のセットアップは極端に難しくなる. 一方, 前置き型波形整形システムではシード光のパルスエネルギーは数 100 pJ 程度なので, AOPDF においても, LC-SLM においても波形整形器の光学素子が損傷することはない.

従って, 増幅器前置き型波形整形システムは

1. 変調を変化させても恒に一定のパルスエネルギーが得られる
2. PW/cm^2 を超えるようなエネルギーの光パルスが整形波形として得られる

の利点がある.

4.3 チャープパルス再生増幅器

4.3.1 セットアップ

CPA(Chirped Pulse Amplification)^{14, 15)} の概念は G. Mourou 等によって提案された. 以降, 超短光パルスの増幅は光パルスの尖塔値で高いピーク強度が得られる魅力のため精力的に研究されてきた¹⁶⁻²⁰⁾. CPA の基本構成を Fig. 4.2 に示す.

パルスストレッチャーに入射した光パルスは, 周波数領域で正の 2 次の分散 (線形チャープ) を受けることによって時間的にパルス幅が伸張される. 共振器から得られる光パルス強度は数 100 pJ のオーダーであるが, 仮に *sech* パルスをパルス幅 40 fs のまま, 1 mJ まで増幅するとそのピーク強度は 25 GW にものぼり, 再生増幅器内のポッケルスセルなどのオプティクスが損傷を受ける. ビーム径を広げることによって光子密度を低減させることが可能であるが, 増幅媒質の直径を確保する必要があり, コスト的にもスペース的にも不利であるために, 現在では時間域でパルスを伸張する CPA の構成が主流である. パルスストレッチャーとしては, 単純に材料分散を利用して正分散を加えるシステムもあるが, 現在では Öffner 型²¹⁾ と呼ばれる無収差全反射型ストレッチャー²²⁾ で, グレーティングと凹凸面鏡による構造分散を用いてパルスを広げる手法が一般的である. Öffner 型ストレッチャーを用いた場合には材料分散を用いる場合と異なり, 3 次分散も正確に調整することが可能である. 材料分散を用いたシステムではチャープミラーを用いて 3 次分

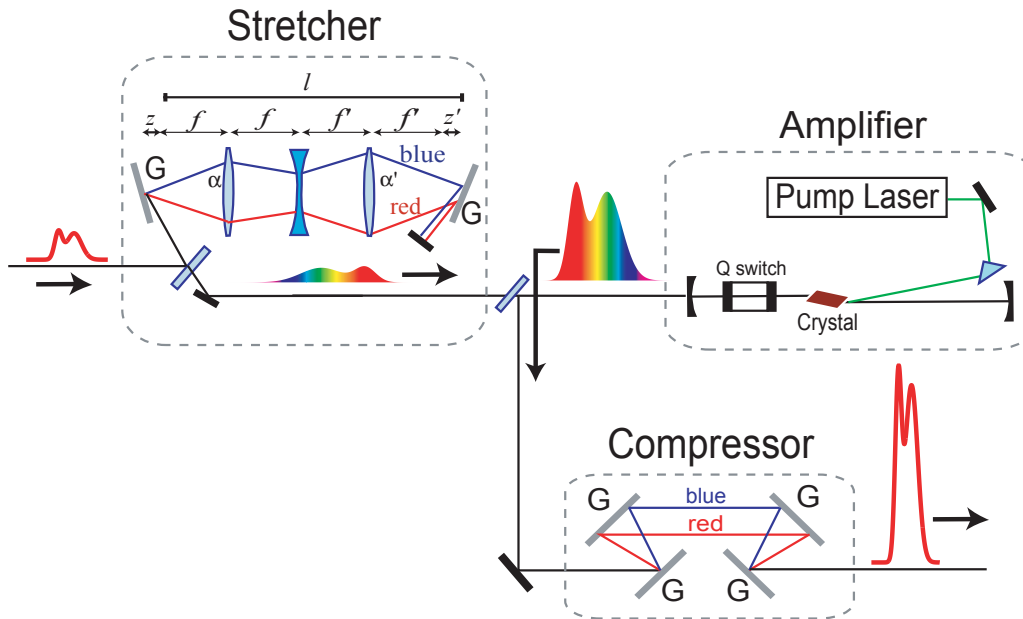


Fig.4.2 Schematic of Chirped Pulse Amplification (CPA). Input pulse is temporally stretched by adding positive dispersion. Negative dispersion is added at the compressor. G: Grating.

散を補償する必要がある。線形チャープしたチャープパルスには入射パルスの周波数軸が時間軸にマッピングされるために、伸張した時間軸のパルス形状は入射のスペクトルに依存する。そのため増幅器内でパルス幅を十分長く保つためには、入射パルスのスペクトル幅を十分に確保する必要がある。このチャープパルスは増幅器システムにシードされ増幅される。フェムト秒レーザーパルスの CPA におけるパルス増幅器としては、再生増幅器やマルチパス増幅器が用いられる。増幅されたパルスはパルスコンプレッサーを通過する。パルスコンプレッサーはグレーティングやプリズム対から構成されており、主にパルスストレッチャーで加える正の 2 次分散を補償するように設計されている。システム全体の分散値はパルスストレッチャー、再生増幅器、コンプレッサーの和であり、ストレッチャーとコンプレッサーを適切に設計することによって、3 次分散まで正確に取り除くことが可能である¹⁶⁾。

再生増幅器にはポッケルスセルが取り付けられており、あるタイミングでシードパルス再生増幅器の共振器内に取り込む。その後再びポッケルスセルに電圧を加えて動作させることによって増幅したパルス共振器から取り出す。

4.3.2 パルスストレッチャ

パルスストレッチャはパルスコンプレッサと比較して構造が比較的複雑である。そのため、初期はファイバーの正分散を利用し¹⁵⁾、その後 O. Martinez によって提案されたグレーティング

対^{23, 24)}を用いたもの等, 様々な構成が提案された. 現在では Fig. 4.2 に示す Öffner 型パルスストレッチャが広く用いられている. Öffner 型パルスストレッチャではパルスが 2 回パルスストレッチャ内を伝搬する. 1 回パルスストレッチャ内をパルスが伝搬する間に受ける分散の量は²⁵⁾

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = -\frac{\omega_0}{c} \left(\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega} \Big|_{\omega_0} \right)^2 (z'M + z). \quad (4.1)$$

で与えられる, ただし, $z' = l - 2f(f + f')$, $M = f/f'$, また $\partial\theta_d/\partial\omega$ は Eq. (2.4) で与えられる量である. l, f, f' は Fig. 4.2 中に示した. Eq. (4.1) の $z'M + z$ の符号によって 2 次分散の向きが変わる. もっとも大きな正の分散は $z = -f$, $z' = -f'$ の場合に達成され, 現在のストレッチャはこの構成を取っている. 現在は全反射鏡で構成されることがほとんどであり, この場合には各収差が全く生じない. さらに重要な点は Öffner 型ストレッチャはパルスコンプレッサーとしてほとんどの CPA システムで使用されている Treacy パルスコンプレッサーと正確に逆の分散値を持つように設計することが可能な事である.

4.3.3 再生増幅器

増幅器において線形増幅を達成するためには, シード光のスペクトルよりも広い帯域を有する増幅媒質が必要である. また増幅器は飽和強度以下で動作させる必要がある. 以上の条件がそろわない場合には線形増幅が達成されない.

しかし実際にはシード光のスペクトルが広いために増幅器において利得帯域の狭窄化が生じる. また逆に, 増幅器を飽和強度で動作させることによって常に一定のエネルギーレベルまでパルスを増幅すれば, 増幅パルスの強度揺らぎを抑えることが期待される. そのために再生増幅システムはしばしばシード光を線形に増幅しない.

結晶中で光密度は非常に強くなるために非線形効果も無視できない. また共振器内に大きな群速度分散が存在することは Q スイッチのタイミングを変化させて共振器内を光が往復する回数を変化させると出力パルスの 2 次分散の量が変化することが観測されるので明らかである.

4.3.4 パルスコンプレッサ

Fig. 4.2 に示す Treacy パルスコンプレッサ²⁶⁾もまた 2 回グレーティング対を伝搬する. 1 回グレーティングペアを伝搬する場合に受ける分散量は²⁶⁾,

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = -\frac{\lambda_0^3 G}{2\pi c^2 d^2 \cos^3(\theta_i - \theta_d)} \quad (4.2a)$$

$$\frac{d^3\phi}{d\omega^3} = -\frac{d^2\phi}{d\omega^2} \frac{\lambda_0}{2\pi c} \left[1 + \frac{\lambda_0 \sin(\theta_i - \theta_d)}{d \cos^2 \theta_i - \theta_d} \right] \quad (4.2b)$$

と表される. ここで G はグレーティングペア間の距離, d はグレーティングのグループ間隔, λ_0 は中心波長, θ_i は入射角, $\theta_d = \theta_i - \phi_m$ であり ϕ_m は回折角である. Eq. (4.2a) が G に線形で

あることに注目すれば，パルスコンプレッサ内のグレーティング間の距離を調整することによって2次分散が調整可能なことがわかる．また3次分散は Eq. (4.2b) が示すように2次分散を変化させるとそれに伴って一緒に変化してしまうことがわかる．2次分散と3次分散の変化の割合を変えるにはグレーティングの角度を変化させる必要がある．ただし，2対のグレーティングの角度が完全に平行になるように注意を払わないと，パルスは空間的にもチャープを受けてしまう¹⁸⁾．

パルスコンプレッサのアライメントは，§ 5.2(p. 126) で述べる FROG 画像を参照して行い，LC-SLM に変調を加えない場合にフーリエ限界パルスが CPA 後に得られるように，グレーティング間の距離を調整した．

4.4 増幅器前置き型波形整形実験

4.4.1 実験セットアップ

光源

光源には，レーザダイオード (Laser Diode: LD) 励起 Nd : YVO₄ 第2次高調波励起 (Coherent 社製 Verdy Diode-Pumped Laser) カーレンズモード同期 Ti:Sapphire レーザ (Coherent 社製 MIRA) を用いた．平均出力 500 mW，繰り返し周波数 76 MHz である．オシレータ直後のスペクトルを Fig. 4.3 に示す．中心波長 800 nm，スペクトル幅 45 nm(FWHM) である．

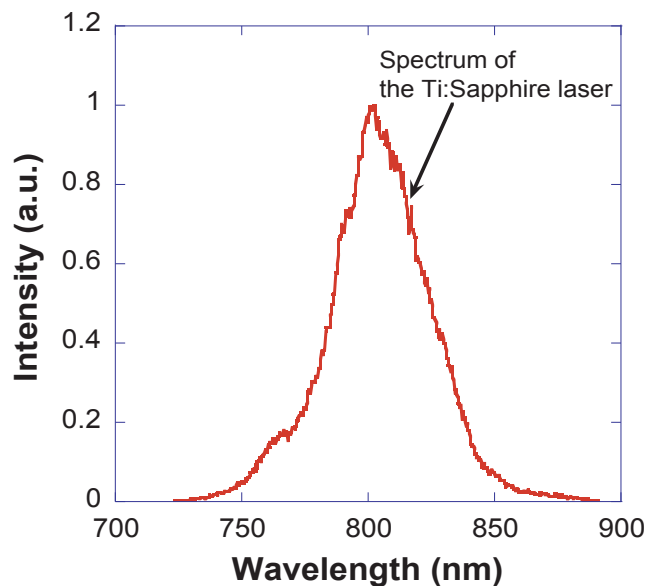


Fig.4.3 Spectrum of the seeding pulse.

整形系

スペクトル位相変調実験に用いた $4f$ 型波形整形器のパラメータは § 2.2 (p. 45) に示した。但し、グレーティングへの入射角は $\theta_i = 6.5^\circ$ 、中心波長の回折角は $\theta_d(\lambda_0) = -43^\circ$ の-1次回折光を用いた。このときの波形整形器の伝送効率は約 40 % であった。

一方、振幅位相変調波形整形には AOPDF を用いた。AOPDF のパラメータは § 2.3.1 (p. 80) に示した。

増幅系

CPA システムには B. M. Industries(現 Thales Lasers) 社製 Alpha-1000/US チャープパルス再生増幅器を用いた。パルスストレッチャで再生増幅器が損傷を受けないパルス幅に伸張するには、パルスストレッチャへの入射パルスのスペクトル幅は最低 30 nm (FWHM) が保証される必要がある。再生増幅器の励起光源にはフラッシュランプ励起 Q スイッチ動作の Nd:YLF レーザ (B. M. Industries 社製 CW Pumped Doubled Multi-KHz Nd:YLF Laser) を用いた。励起レーザ強度は平均パワー約 10 W、繰り返し 1 kHz である。再生増幅器直後の増幅パルス強度は 1–1.2 mJ であり、パルスコンプレッサ直後のパルスエネルギーは 450 μ J である。コンプレッサ後のスペクトル強度を、Fig. 4.4 に示す。

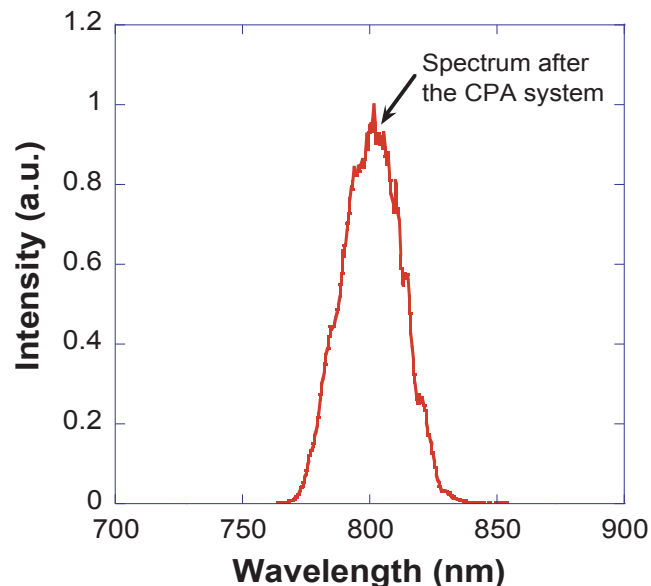


Fig.4.4 Spectrum after the CPA system

測定系

使用した PG-FROG(Positive Light 社製 Polarization Gating FROG) の波長測定範囲は 750–900 nm , パルス幅測定レンジは 30–120 fs であり , 測定パルスはパルスエネルギー $> 100 \mu\text{J}$, ビーム径 2–6 mm を満たす必要がある . PG-FROG 装置内に設置された CCD カメラは日立電子製 KP-MSeries 3/2 インチ CCD , 有効画素数 (HxV):768 × 493 , S/N:56 dB である . 実際に PC に取り込まれる画素数は 640 × 480 である . PC への画像取り込みには画像集録ボード (National Instruments 社製 PCI-1407) を用いており , 画像の量子化数は 8 bit である .

4.4.2 LC-SLM を用いた位相変調による増幅器前置き型波形整形

オープンループ増幅器前置き型波形整形

ここでは閉ループを構築せずに , 計算機上で求めた理論的なスペクトル位相マスクを増幅器の前に設置した波形整形器に加えたときの実験結果を示す .

増幅器からのパルス波形は § 5.2 で示す PG-FROG で測定した . LC-SLM に位相変調をかけない場合の増幅器からの出力波形をコンプレッサーのグレーティングの距離を調整することによって最適化する . Eq. (4.2) に従うと , グレーティングの距離を変化させると , 2 次分散及び 3 次分散の量を変化させることができる . 一方 , グレーティングへの入射角度を変化させることによって , 2 次分散と 3 次分散の大きさの比を変化させることができる . しかしながら , 2 次分散と 3 次分散量の両方を最適化する¹⁶⁾ことは簡単ではない . 再生増幅器では光が共振器を何回往復するかによって加わる正の 2 次分散量が大きく変化する . 共振器を何回往復させるかはポンプ光の光強度 , ポンプ光のビームプロファイル , 共振器のアライメントなどによって変化するために , 毎回ストレッチャーとコンプレッサーのグレーティングを調整して , 3 次分散まで最適化することは簡単ではない .

本実験で用いた CPA 後の FROG で測定した時間波形は Fig. 4.5 に示したが , サイドパルスの存在から明らかなように 3 次の分散が完全には取り除けていない . コンプレッサーのグレーティングの間隔を調整して , CPA 後のパルスを最も短くするためのアライメントには , CPA 後の光を空气中で集光しその集光点でプラズマを発生させ (エアブレーク) その強度を最大化する事によって行なった . 最終的には Eq. (5.1) で表わされる FROG 画像を観測しつつグレーティング間の距離を微調整した . Fig. 4.5 の状態から , 更に 3 次分散を取り除くためには , グレーティングの角度を変化させる必要があるが , Eq. 4.2 に従えばグレーティングへの入射角度を変化させると 2 次分散値も変化する . 従って入射角度を変化させた場合には再びグレーティング間の距離を再調整する必要があり , 2 次及び 3 次分散を同時に補償するためには角度調整と距離調整を繰り返し行なう必要があるので作業が複雑化する . また , コンプレッサーでは 2 対のグレーティングが存在するが , それらの角度は正確に平行である必要がある . そのことも 3 次分散を調整するための ,

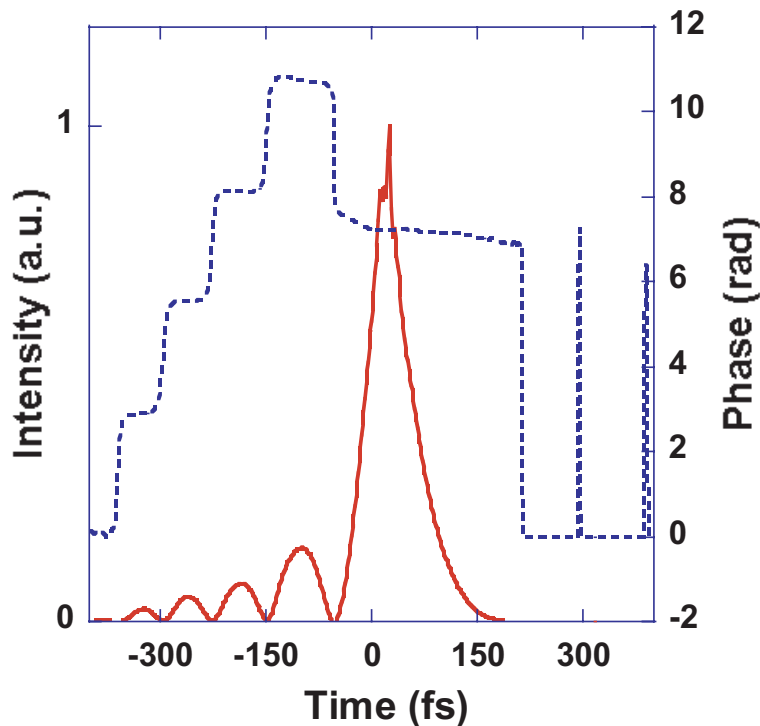


Fig.4.5 The reconstructed temporal waveform from acquired FROG trace when the dispersion of the CPA is compensated only with the grating distance in the compressor. Third order dispersion is inherent in this waveform.

グレーティングの角度を調整するアライメントを難しくする。グレーティング対が平行でないと、コンプレッサー後のパルスに空間チャープが加わりパルスの集光性が極端に悪化する¹⁸⁾。

そこで、本章での増幅器のアライメントの状態はほとんどの場合 Fig. 4.5 の状態で終えた。再生増幅器ではポンプ光レーザーや増幅器共振器のわずかなズレによって、実験毎に共振器内の光パルスの往復回数が増える。こうしたことから多くの CPA システムでは必ずしも 3 次分散は調整されていない。更には、4 次分散の存在が CPA 後のパルスのコントラストを低下する事が報告されている¹⁶⁾。そこで、Fig. 4.5 の状態で CPA を動作させた時にも、精度の良い出力波形を得ることが必要である。

LC-SLM に M 系列マスクを加えた結果 Fig. 4.6 の時間波形を得た。M 系列マスクはパルス列を生成するマスクとして知られている¹⁰⁾。理論的に得られるパルスと比較すると、各パルスの幅がかなり広がっていることがわかる。このパルス幅の広がりには増幅器の高次分散効果に主に起因しており、高次分散が補償されていないレーザーシステムに理論的な整形マスクを加えたのみでは、目的波形が得られないことがわかった。そこでオープンループ型の増幅器前置き型波形整形システムでは、あらかじめ増幅器の分散を補償しておく必要がある。レーザーシステムの高次分散を補償するために LC-SLM を用いて 5 次分散まで手動で調整した。分散補償は FROG 画像をモニターし、FROG 画像のピーク強度が最も強くなるように手動で調整した。最終的に得られた FROG

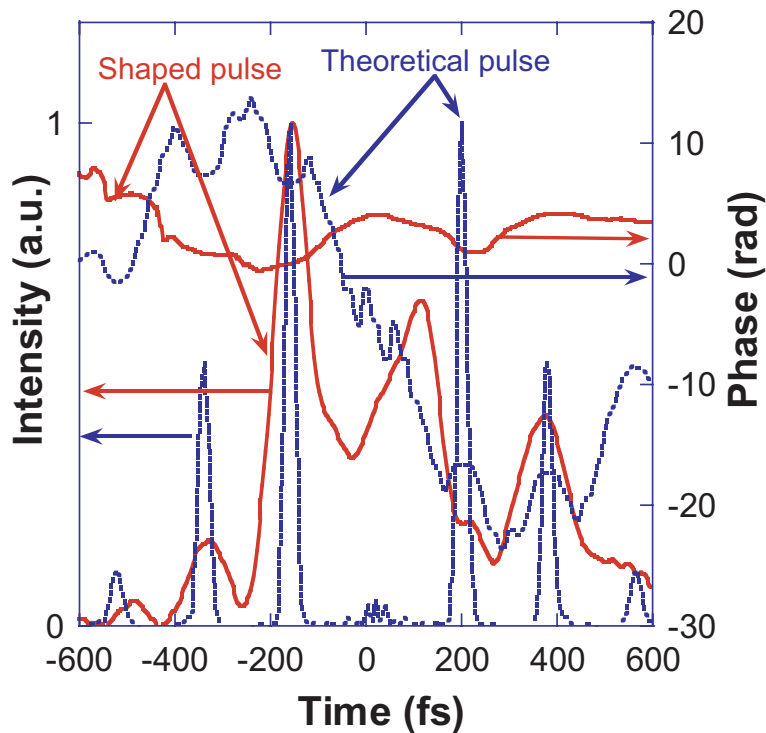


Fig.4.6 Solid line represents the calculated temporal waveform of the M sequence mask pulse. Dashed line represents the measured pulse, when an M sequence mask is added on the LC-SLM. The second order dispersion is compensated with the compressor. The FROG error was 1.2 % for this experimental result.

画像を FROG 再構築アルゴリズムを用いて波形再構築すると Fig. 4.7 で示される時間波形を得た。得られたパルス幅は 47 fs (FWHM) であり，ほぼフーリエ限界パルスが得られている。

この分散補償したマスク上にさらに目的波形の理論的なマスクを印加すると，増幅器の分散を補償しつつ，波形整形が行える。

理論的なマスクは § 3.4 で示した SA アルゴリズムを用いて，計算機上で設計した。プロトタイプとして 300 fs のダブルパルスをターゲットとしてマスクを設計した。さらにデモンストレーションとして三角波形をターゲットとした波形のマスクも設計した。計算機上で計算されたマスクを実際に LC-SLM に加えた。その結果を Fig. 4.8 に示す。Fig. 4.8 (a) のダブルパルスでは，ピーク強度の非対称性やピークの位置のズレが観測される。ターゲット波形から誤差を生じる原因は，実験室内での誤差及び増幅器が入力に依存する非線形伝達関数を持っているためである。そのために分散補償マスク上にターゲットマスクを加えたのみでは不十分である。実験室内での誤差は波形整形器の LC-SLM のピクセルと波長の対応関係を調べる際のカリブレーション誤差，FROG 測定の際の時間軸と波長軸の関係を調べる際の誤差がある。このケースでの FROG エラーは 0.7 % 程度であった。増幅器の伝達関数が入力に依存するのは，増幅器に存在する非線形光学効果の影響であり，それが Fig. 4.8 でのターゲット波形からの誤差に最も大きく影響

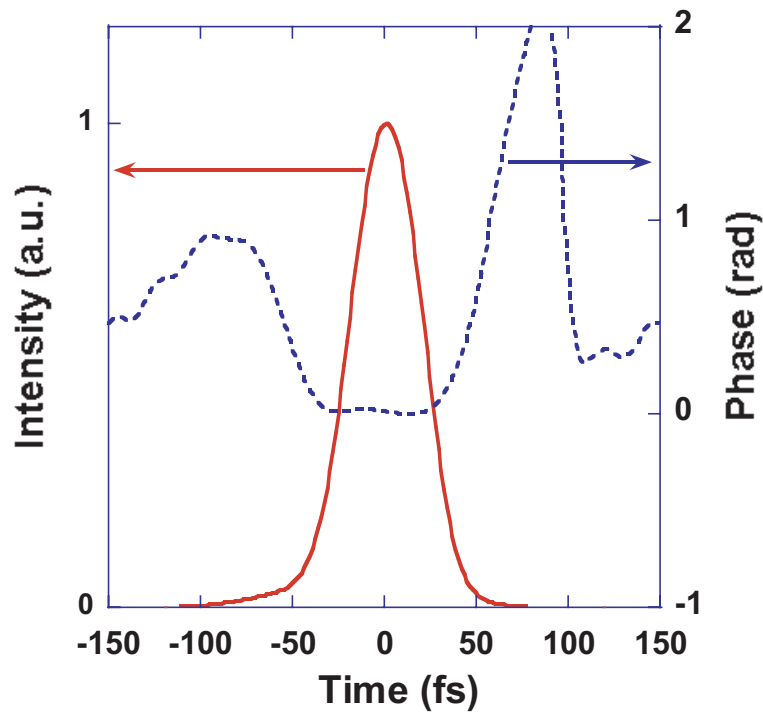


Fig.4.7 Reconstructed temporal waveform from FROG trace after compensating high order dispersion with the LC-SLM. It gives almost Fourier transform limited pulse.

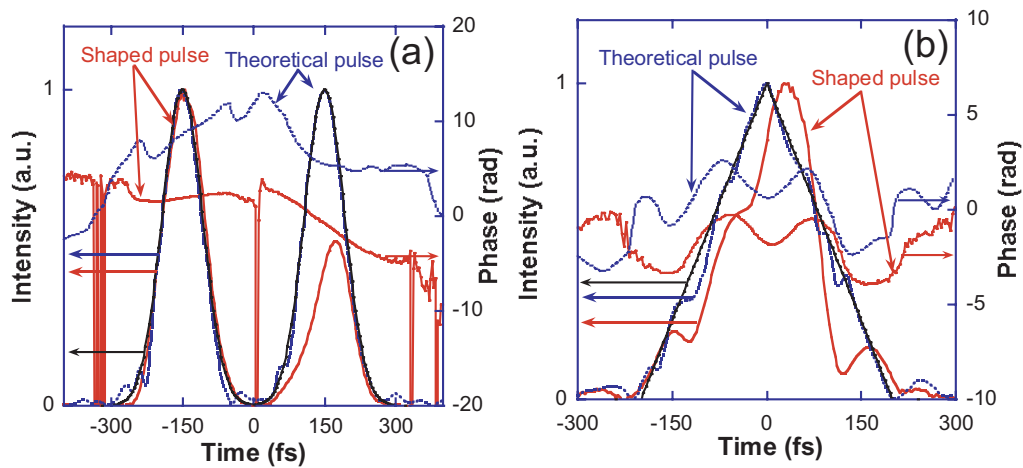


Fig.4.8 (a) Shaped double pulse after the CPA by applying ideal mask function to the LC-SLM. Solid line represents the calculated pulse shape and the dotted line the measured shaped pulse. (b) Shaped triangle pulse after the CPA by applying ideal mask function to the LC-SLM.

を与えていると考えられる．非線形光学効果の中で最も重要な効果は自己位相変調 (Self Phase Modulation: SPM) であるが，SPM は Eq. (4.3) に示すように時間波形の立ち上がり，立ち下がりに依存した位相変調が加わる．

$$\begin{aligned}\Delta\omega(t) &= -\frac{\partial}{\partial t}\Delta\phi(t) \\ &= -\frac{2\pi n_2 l}{\lambda} \frac{\partial}{\partial t}|E(t)|^2\end{aligned}\quad (4.3)$$

ここで n_2 は非線形屈折率である．SPM が存在するために本手法を用いたのみでは正確な波形を増幅器後に得ることはできない．但しそれでも，Fig. 4.8 においてある程度の波形が再現される理由はストレッチャーで大きな 2 次分散を加えているために再生増幅器内でのパルス波形はスペクトルが時間域にマッピングされるからである．波形整形器で加える位相変調は増幅器内ではパルス時間波形には摂動として現れるのみであるので，オープンループ型の増幅器前置き型波形整形システムにおいてもある程度の波形が再現される．実際に増幅器前に設置した $4f$ 波形整形器に 2 次分散と中心波長付近で $0, \pi$ の位相ステップを加えた位相マスクを印可した．波形整形器を通過した光をシグナル光，波形整形器を迂回した光をリファレンス光とし，増幅器前と増幅器後のスペクトル位相差をそれぞれ，§ 6.2.1 (p. 151) で述べる SI を用いて測定した．その結果を Fig. 4.9 に示す．シグナル光とリファレンス光の位相差を測定するので，増幅器が持つ分散は打ち消され，SI を用いると波形整形器で加えた位相の変調成分のみを測定することができる．さらに SI で測定した増幅器前後の位相を比較する事によって，信号光と参照光の波形の差に起因する増幅器の非線形な変調を知ることができる．なめらかな位相変化と 1 カ所の急峻な π の位相ステップが比較的良く再現されている事から，位相マスクの変調がなめらかでそれほど複雑な構造を持たない時に限っては，SPM 等の非線形性によって起る位相変調はそれほど大きくはなくオープンループ波形整形システムを用いても位相変調のみによる波形整形はある程度の精度で整形可能である．しかし，位相変調がより複雑な場合にはその限りでは無いことが予想され，高精度波形整形システムを実現するためには閉ループ制御を構築する必要がある．

ここでオープンループによる波形整形がどの程度の精度で波形を整形できるのかを明らかにし，後に Fig. 6.10 と比較検討するために，Fig. 4.8 (a) で整形した 300 fs のダブルパルスを § 6.3.2 に示す手法によってスペクトルグラム表示して Eq. (6.6) で定義する 2 乗誤差画像を算出する．その結果を Fig. 4.10 に示す．Fig. 4.10(a)，(b) はそれぞれターゲット波形と整形波形のスペクトルグラム表示であり，Fig. 4.10(c) はそれらの画像の 2 乗誤差である．また，Fig. 4.10(c) を全ピクセルにわたって積算した整形誤差を表わす指標は $C = 2.05 \times 10^{-1}$ であった．

4.4.3 AOPDF を用いた振幅位相変調による増幅器前置き型波形整形

増幅器前置き型波形整形システムにおいて，振幅位相変調を加えた例を示す．入力スペクトルを $S_{\text{seed}}(\omega)$ ，増幅器のゲイン関数を $G(\omega)$ としたときに，増幅器からの出力パルスのスペクトル

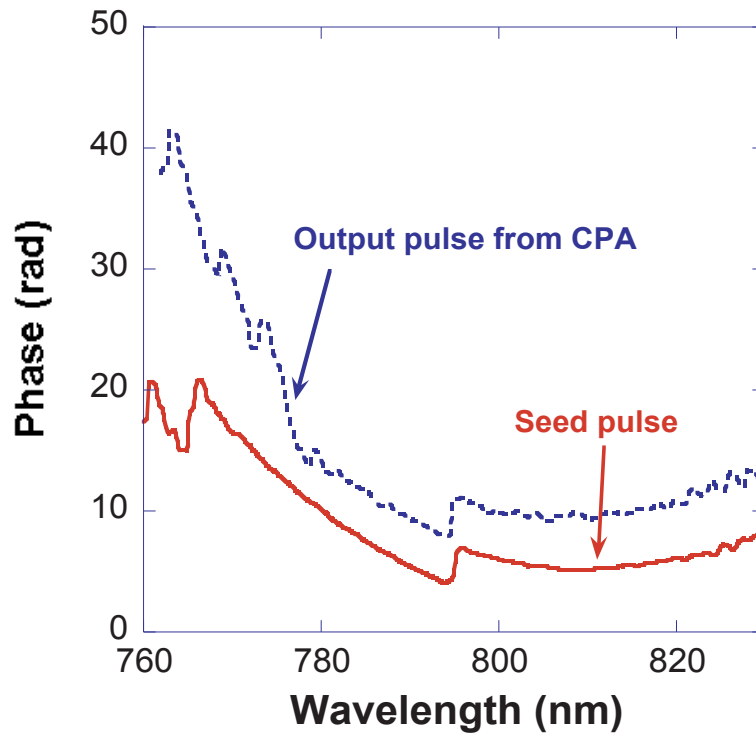


Fig.4.9 The solid line represents the spectral phase difference of the signal and reference pulse before the CPA. Both pulses are seeded to the CPA and the dotted line is the measured spectral phase difference of these two pulses after the CPA. The difference between the dotted line and solid line is caused by the nonlinear phase transmission in the CPA, which depends on the input pulse shape.

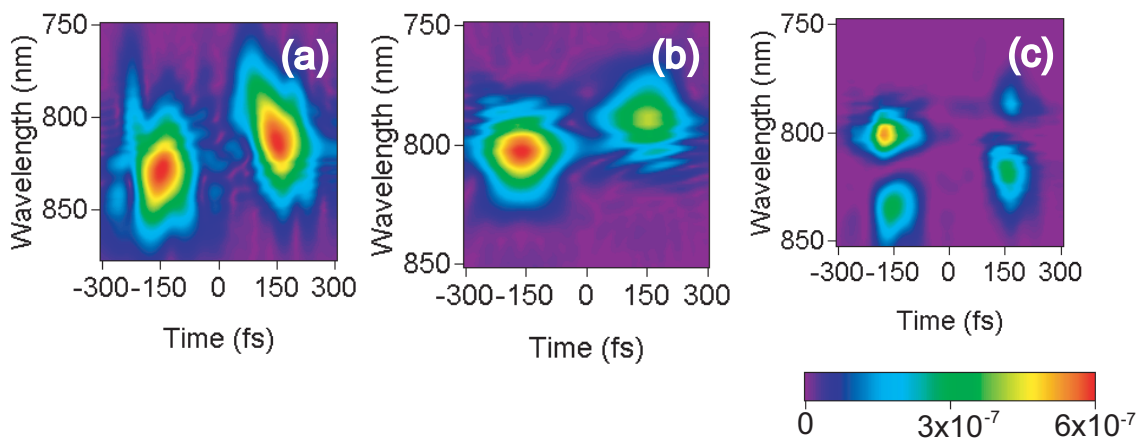


Fig.4.10 (a) Spectrogram of a target pulse for 300 fs double pulse. (b) Spectrogram of shaped 300 fs double pulse using open-loop control. (c) The error function between (a) and (b)

$S_{\text{amp}}(\omega)$ は ,

$$S_{\text{amp}}(\omega) = S_{\text{seed}}(\omega)G(\omega) \tag{4.4}$$

で表される . 増幅器の利得 $G(\omega)$ は有限の帯域を持つ . その帯域は中心周波数をピークとした利得関数になってるために , 一般に増幅器後のスペクトル幅はシード光のスペクトル幅よりも狭くなる . これを利得の狭帯域化と呼ぶ . この利得狭帯域化の影響によって , 増幅器後のパルス幅はフーリエ限界の関係 (Eq. (1.1)) によって長くなる . 利得の狭帯域化を補償するために , 増幅器内にエタロンを挿入し , 増幅器のゲインの中心波長付近に損失 $L_{\text{etalon}}(\omega)$ を与え , 増幅器全体としてのゲイン $G_{\text{eff}}(\omega) = G(\omega)L_{\text{etalon}}(\omega)$ を広帯域化することによって増幅器後のパルス幅を短くする手法が報告されている¹⁹⁾ . 一方 , 利得の狭帯域化の影響はシード光のスペクトルを整形することによっても補正可能である . そこで , 振幅位相変調波形整形器として AOPDF を用いて CPA の分散補償をしつつ , 増幅器の利得狭帯域化を補償する²⁷⁾ . 補償の手順は , はじめに波形整形器の位相マスクを調整して CPA の分散を補償する . 分散は 4 次分散までを FROG 画像をモニターし手動で補償した . その後 CPA の出力スペクトルを分光器でモニターし , そのスペクトル幅が最も広くなるように波形整形器の振幅マスクを手動で調整した . その後再び FROG を用いて FROG 画像を測定する . 実験結果を Fig. 4.11 に示す . コンプレッサー中のグレーティング間の距離を調整

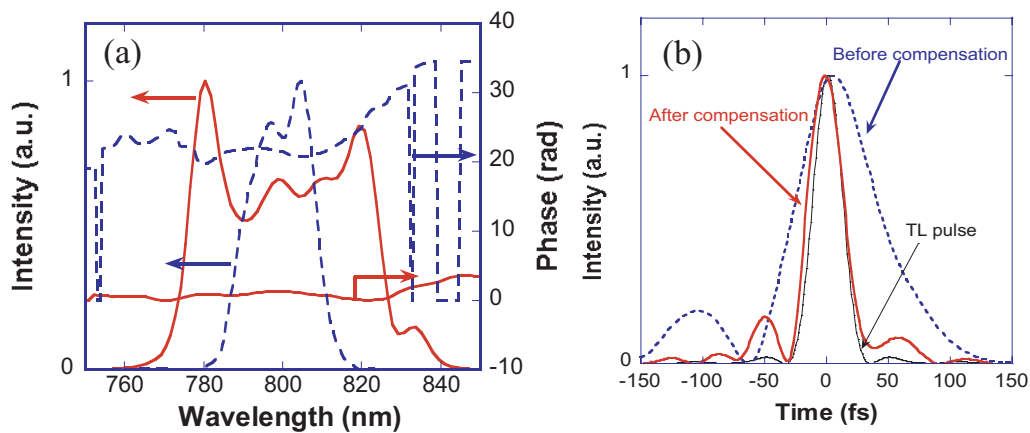


Fig.4.11 (a) Dotted curve represents the spectrum after the CPA, when only the phase is compensated with grating distance in the compressor, to compensate second order dispersion of the CPA. Solid curve represents the phase and amplitude mask added on the pulse shaper to compensate both the high order dispersion and gain compensation (b) Reconstructed temporal waveform from FROG trace before (dotted) and after (solid) the compensation with a theoretical transform limited pulse calculated from the spectrum (thin line).

することによって得られたパルス幅は 79 fs であるが , AOPDF を用いて高次分散位相補償および利得狭帯域化の振幅補償を行なった結果 33 fs のパルス幅が得られている . 分散補償のみを行なった

Fig. 4.7 の 47 fs と比較してもかなりのパルス幅の短縮が実現されている。パルス幅が短縮されたのは Fig. 4.11 (a) のスペクトル振幅に示されるように、CPA からの出力パルスのスペクトル幅が 49 nm に達しているからである。利得狭帯域化の補償のため加えている振幅マスクを、Fig. 4.12 に示す。利得狭帯域化の補償振幅マスクは、シード光のスペクトルの中心波長である 800 nm を中

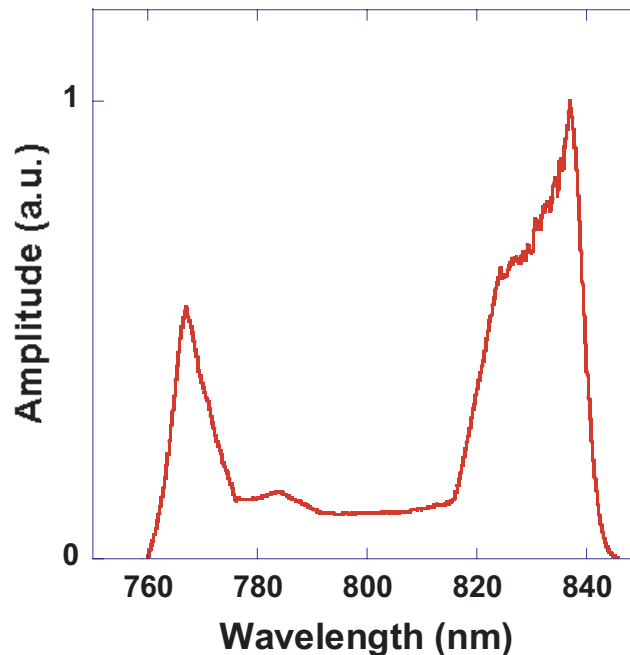


Fig.4.12 Amplitude mask added on the AOPDF pulse shaper.

心として、前後約 20 nm のスペクトル幅の透過率を約 10 % に削減させている。このことにより、再生増幅器へシードする光のスペクトル幅を広げており、その結果、増幅器後に広帯域なスペクトルを持つパルスを得ることができる。特に本例は増幅器の前に波形整形器を設置したために可能となった実験である。増幅器後に波形整形器を設置し Fig. 4.12 で示したような振幅マスクを加えたのでは光強度の大部分を失うことになり、増幅器の性能を生かしているとは言い難い。

4.5 本章のまとめ

本章では実験室内では適応制御を用いない、オープンループ型の増幅器前置き型波形整形の実験を行なった。

始めに、増幅器前置き型波形整形システムに期待した光パワーの利用効率の向上や、最大得られる光パワーの向上が実際に確認されることを実証した。特に波形整形器での時間空間結合効果を緩和させることは重要であるが、前置き型波形整形では、自身が空間モードを持っている再生増幅器が空間フィルターとして作用するため、増幅器後のビームプロファイルが恒に一定になる。これは時間波形の影響のみを考慮したい超高速コヒーレント制御応用で重要となる。

次に、増幅器前に設置した波形整形器に理論的な変調を加えた際にどのような波形が得られるかを明らかにした。CPAでの分散を光学系(コンプレッサー)のみによって補償した場合、波形整形器を用いて補償した場合のそれぞれについて理論的なマスクを加えたときの整形精度を明らかにした。CPAではストレッチャーとコンプレッサーの両方のグレーティングの光学系を時間をかけて調整することによってシステム全体の3次分散まで補償することは理論的に可能であるが、コンピュータ制御による位相分散補償器を用いて、機能的にソフトウェア上で分散補償を行なった方がコスト的に有利である。またその場合には4次分散以上の高次分散までを正確に補償できる。実際に本章では、コンプレッサーのみを調整しただけでは3次分散を取り除くことはできず、その状態では理論的な変調を波形整形器に加えても目的とする波形を得ることはできなかった。そこで、高次分散を増幅器の前に設置した波形整形器で補償し、その上に更に理論的なマスクを印加した。その結果限られた精度内での波形整形が可能であることが明らかになった。但し、高次の残留分散を波形整形器を用いて補償したとしても、実験室内の誤差や増幅器の非線形伝達関数の影響を補償し、更に高精度な波形整形を実現するためには、閉ループ制御による波形整形システムを導入する必要があることも同時に明らかになった。

本章ではさらに、増幅器前置き型波形整形システムではシード光の中心周波数を削る振幅変調マスクを加える事によって、増幅器の利得狭窄化を補償することができることも示した。この例のように、振幅変調を加えるとターゲット波形はより自由に設定できる事を確認した。

参考文献

- [1] S. H. Cho, F. X. Kartner, U. Morgner, E. P. Ippen, J. G. Fujimoto, J. E. Cunningham, and W. H. Knox, “Generation of 90-nJ pulses with a 4-MHz repetition-rate Kerr-lens mode-locked Ti : Al₂O₃ laser operating with net positive and negative intracavity dispersion”, *Opt. Lett.*, **26**, 560–562, (2001).
- [2] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses”, *Science*, **282**, 919–922, (1998).
- [3] B. J. Pearson, J. L. White, T. C. Weinacht, and P. H. Bucksbaum, “Coherent control using adaptive learning algorithms”, *Phys. Rev. A*, **63**, 063412–1–12, (2001).
- [4] R. J. Levis, G. M. Menkir, and H. Rabitz, “Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses”, *Science*, **292**, 709–712, (2001).
- [5] W. S. Warren, H. Rabitz, and M. Dahleh, “Coherent control of quantum dynamics: The dream is alive”, *Science*, **259**, 1581–1589, (1993).
- [6] R. Itakura, K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, and F. Kannari, “Dissociative ionization of ethanol in chirped intense laser fields”, *J. Chem. Phys.*, **119**, 4179–4186, (2003).
- [7] T. Brixner, M. Strehle, and G. Gerber, “Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses”, *Appl. Phys. B*, **68**, 281–284, (1999).
- [8] R. J. Levis and H. Rabitz, “Closing the loop on bond selective chemistry using tailored strong field laser pulses”, *J. Phys. Chem. A*, **106**, 6427–6444, (2002).
- [9] T. Brixner, N. H. Damrauer, B. Kiefer, and G. Gerber, “Liquid-phase adaptive femtosecond quantum control: Removing intrinsic intensity dependencies”, *J. Chem. Phys.*, **118**, 3629–3701, (2003).
- [10] T. Tanabe, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Spatiotemporal measurements based on spatial spectral interferometry for ultrashort optical pulses shaped by a fourier pulse shaper”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2795–2802, (2002).
- [11] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, A. Assion, C. Horn, C. S.-. Tudoran, M. Winter, and

- T. Baumert, “Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping”, *Rev. Sci. Instrum.*, **74**, 4950–4953, (2003).
- [12] Spatial Light Modulator Optics User’s Manual, Cambridge Research Instruments Inc., Revision 1.01 December (1996).
- [13] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback”, *Appl. Phys. B*, **65**, 779–782, (1997).
- [14] D. Strickland and G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses”, *Opt. Comm.*, **56**, 219–221, (1985).
- [15] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou, “Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **24**, 398–403, (1988).
- [16] S. Kane and J. Squier, “Fourth-order-dispersion limitations of aberration-free chirped-pulse amplification systems”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 1237–1244, (1997).
- [17] A. Rundquist, C. Durfee, Z. Chang, G. Taft, E. Zeek, S. Backus, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, I. Christov, and Y. Stoev, “Ultrafast laser and amplifier sources”, *Appl. Phys. B*, **65**, 161–174, (1997).
- [18] G. Pretzler, A. Kasper, and K. J. Witte, “Angular chirp and tilted light pulses in CPA lasers”, *Appl. Phys. B*, **70**, 1–9, (2000).
- [19] K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Matsuoka, H. Takuma, D. N. Fittinghoff, and C. P. J. Barty, “Ultrahigh-peak and high-average power chirped-pulse amplification of sub-20-fs pulses with Ti:Sapphire amplifiers”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, 385–394, (1998).
- [20] M. Aoyama, K. Yamakawa, Y. Akahane, J. Ma, N. Inoue, H. Ueda, and H. Kiriyaama, “0.85-PW, 33-fs Ti:Sapphire laser”, *Opt. Lett.*, **28**, 1594–1596, (2003).
- [21] A. Öffner. U.S. patent 3,748,015 (1971).
- [22] G. Chériaux, P. Rousseau, F. Salin, J. P. Chambaret, B. Walker, and L. F. Dimauro, “Aberration-free stretcher design for ultra-short pulse amplification”, *Opt. Lett.*, **21**, 414–416, (1996).
- [23] O. E. Martinez, “3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: Application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **23**, 59–64, (1987).
- [24] M. Pessot, J. Squier, G. Mourou, and D. Harter, “Chirped-pulse amplification of 100-fs pulses”, *Opt. Lett.*, **14**, 797–799, (1989).
- [25] J. Diels and W. Rudolph, “Ultrashort laser pulse phenomena”, Academic Press, (1996).

-
- [26] E. B. Treacy, “Optical pulse compression with diffraction gratings”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **5**, 454, (1969).
- [27] K. Ohno, T. Tanabe, and F. Kannari, “Adaptive pulse shaping of phase and amplitude of an amplified femtosecond pulse laser by direct reference to frequency-resolved optical gating traces”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2781–2790, (2002).

第 5 章

高精度増幅器前置き型波形整形 (FROG 画像参照適応制御)

5.1 はじめに

増幅器前置き型波形整形システムは時間空間結合効果の緩和の効果及びエネルギー効率の面で波形整形器を増幅器後に配置するシステムと比較すると有利である。但し、増幅器には不明の高次分散及び非線形性が内在するため、波形整形器に理論的なマスクを加えるストレートな波形整形では不十分である。そこで増幅器からの出力パルスを測定しその結果を波形整形器のマスクの変調量に反映させる閉ループを構築する必要がある。こうした閉ループを構築することによって増幅器の非線形性に起因する波形の変調までも補償できることが期待される。システムの非線形伝達関数が不明であることから、最適化アルゴリズムを用いて、最適解を実験室内で探索するシステムを構築する。最適化アルゴリズムを用いると、システムに内在する非線形の大小にかかわらず最適解を得ることが可能であると期待される。

そこで本章では、増幅器後のパルスを PG-FROG を用いて測定し、2次元画像である FROG 画像を参照とした増幅器前置き型波形整形システムを構築し、振幅位相の両方をターゲット波形に近づけるアダプティブ波形整形システムを構築する¹⁾。

はじめに振幅と位相の両方を測定可能な FROG 測定手法について紹介したのちに、FROG 画像を用いた適応制御のアイデアを示す。スペクトル位相のみの変調による実験を通じて本システムの有効性を確認し、振幅位相の変調を伴ったアダプティブ波形整形実験を行なう。

5.2 周波数分解光ゲート法

5.2.1 セットアップ

周波数分解光ゲート法 (Frequency Resolved Optical Gating: FROG)²⁾ はフェムト秒光パルスの振幅位相を特定できる測定法として広く用いられている。特に 3 次の非線形を用いた光カーシャッタを利用した偏光ゲート FROG (Polarization Gating FROG: PG-FROG)³⁾ は理論的にどのような波形であってもその振幅及び位相特性を曖昧さなしに特定する事が可能である。但し 3 次の非線形光学効果を用いているために効率は低く、測定可能なパルスはエネルギーが高いものに限られる。PG-FROG のセットアップ図を Fig. 5.1 に示す。入射パルスはゲート光、プローブ

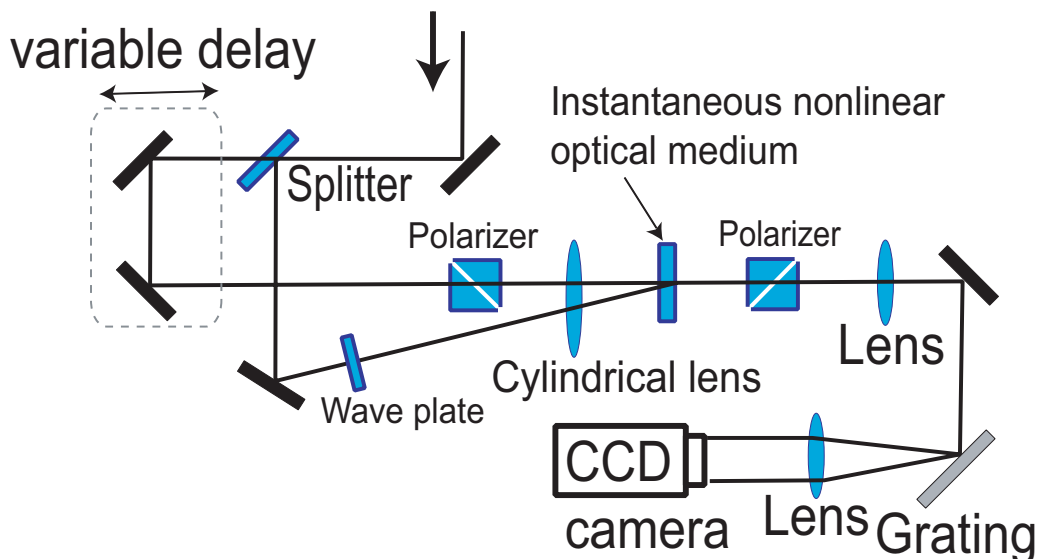


Fig.5.1 Schematic of a Polarization Gating Frequency Resolved Optical Gating (PG-FROG).

光の 2 つの光路に分けられる。ゲート光は半波長板によって 45° 偏光方向が回転される。カー結晶の前後にクロスニコルに配置された偏光板が挿入されている。光カー効果はカー媒質内でゲート光が信号光と時間的に重なった瞬間のみ、信号光の偏光方向を回転させる。この光カーシャッタの効果は超高速分光などにおいて時間分解スペクトルを測定する際に広く用いられている手法でもある⁴⁾。シングルショット計測を可能にするために、カー結晶への集光レンズにはシリンドリカルレンズを用いる。ゲート光とプローブ光がお互いに角度をつけられて非線形結晶上で重なり合うために、水平方向のビーム断面はパルスの時間遅延に相当する。これはシングルショット SHG 自己相関測定とほぼ同じ原理である⁵⁾。従って、カー結晶によって偏光方向が回転された光の横軸には時間遅延がマッピングされる。一方、垂直方向はグレーティングによって波長域に分散される。その結果、横軸が時間遅延、縦軸が周波数のいわば 2 次元のスペクトルグラム画像が

CCD 画面上で得られる . この画像を以降 FROG 画像と呼ぶ . FROG 画像は直接 CCD カメラによって測定され , その信号は

$$I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} e(t)g(t - \tau) \exp(-i\omega t) dt \right|^2, \quad (5.1)$$

で与えられる . 特に PG-FROG の場合 $g(t - \tau) = |e(t - \tau)|^2$ である . この FROG 画像はスペクトルグラムに非常に近い性質を持っているため , ある程度パルス情報を直接我々に教えてくれる . チャープの向きやそのおおよその量の情報は直接 FROG 画像を参照することによって得ることが可能である .

5.2.2 波形再構築アルゴリズム

FROG 画像には振幅位相の両方の情報が含まれる . FROG 画像からも振幅位相情報を定性的に得ることができるが , スペクトルや時間波形を再構築するためにはこの FROG 画像を元に繰り返し計算をおこなう再構築アルゴリズムを用いる必要がある . Eq. (5.1) で与えられる FROG 画像から波形を再構築するアルゴリズムを , Fig. 5.2 に示す^{6, 7)} . このアルゴリズムは 2 次元デー

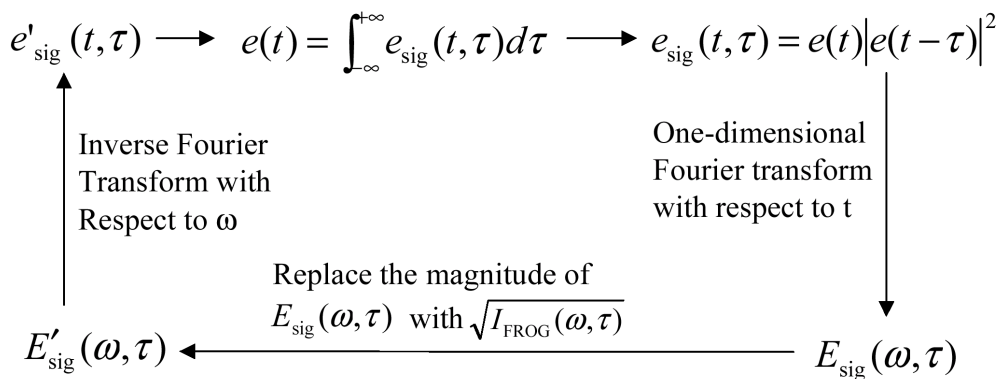


Fig.5.2 Iterative-Fourier-transform algorithm for inverting a FROG trace to obtain an ultrashort pulse's intensity and phase.⁶⁾

タを繰り返し計算することによって複素電界 $e(t)$ を再構築する . 2 つの制約条件を設けることによって波形を一意に再構築できることが知られている . $I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)$ を生じる $e(t)$ はただ 1 つに限定されることが証明されており , 再構築した波形から生じる $I'_{\text{FROG}}(\omega, \tau)$ 波形が十分実験値に近い場合に元の波形を再構築したとみなす .

はじめに初期波形 $e(t)$ を仮定する . この初期波形から相関関数 $e_{\text{sig}}(t, \tau)$ を計算し , それを t についてフーリエ変換することによって $E_{\text{sig}}(\omega, \tau)$ を得る . 次に 1 つめの制約条件を適用する . つ

まずはこの波形の振幅を実験データと入れ替える．このとき位相はそのまま残す．

$$E'_{\text{sig}}(\omega, \tau) = \frac{E_{\text{sig}}(\omega, \tau)}{|E_{\text{sig}}(\omega, \tau)|} \sqrt{I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)} \quad (5.2)$$

さらにこの波形を周波数 ω に関して逆フーリエ変換した後に

$$G = \sum_{\omega, \tau=1}^N \left[I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) - |E_{\text{sig}}(\omega, \tau)|^2 \right]^2 \quad (5.3)$$

が最小となるような $e(t)$ を最小化アルゴリズムによって求める．これが2つめの制約条件である．

こうして $e(t)$ を再び繰り返し計算を行なうことによって解は最小値へと収束する．アルゴリズムが十分に収束したかどうかの判断は，実験データとの置き換えの際に誤差を

$$E_{\text{error}} = \sum_{\omega, \tau=1}^N \left[\frac{I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) - |E_{\text{sig}}(\omega, \tau)|^2}{I_{\text{FROG}}(\omega, \tau)} \right]^2 \quad (5.4)$$

と定義し E_{error} の値で行なう．これが十分少なくなったところで計算を打ち切る． E_{error} を FROG エラーと呼ぶ．

PG-FROG の実験データ場合，典型的な FROG エラーの値は 128×128 の FROG 画像を再構築した時で約 1% である²⁾．

FROG は，2次元データを元に繰り返し計算を行なう必要がある．現在数 Hz で動作する Video-FROG も存在する⁸⁾が，波形再構築アルゴリズムに高速性が求められるために測定精度は犠牲になる．これ以上の高速性は計算機の飛躍的進歩が無い限り望めない．

本研究では Femtosoft 社製の FROG 再構築プログラムを用いた．解析に用いた PC は PentiumIII 600 MHz, メモリ 128 MB であり， 512×512 pix の FROG 画像を 100 回解析するのに約 3 分要した．

5.3 LC-SLM による位相変調のみによる増幅器前置き型最適制御実験

5.3.1 位相変調のみによる FROG 画像最適化制御

従来フェムト秒レーザーパルスの分散を補償するために，SHG 強度を最適化制御の指標として，それを強めるように閉ループを構築した例がある⁹⁾．SHG 結晶での二倍波発生効率はピーク強度にほぼ比例するので，SHG 強度を指標とすることによってレーザーシステムの分散補償を行なうことができる．しかしフェムト秒レーザーを様々な光物質コヒーレント相互作用に用いる場合には，単に最短パルスを得るのみでは不十分であるために，光パルスの複素電界波形自体を指標とした最適化制御を導入する必要がある．高速スキャン SHG 相互相関測定を導入し，相互相関波形のサ

ンプルポイントを最適化の指標として波形を整形する試みは報告されている¹⁰⁾ものの、その手法では時間域電界包絡線を測定できるが複素電界位相を特定することはできないので、時間波形の振幅の最適化にとどまる。光のコヒーレンスが電子にマッピングされるような超高速コヒーレント制御では光電界の位相制御が重要であるために振幅のみならず位相も含めてその両方を最適化する必要がある。こうした振幅位相の最適化システムを用いてフェムト秒レーザパルスの振幅及び位相まで整形するためには、曖昧さなしにその両者を測定可能な測定手法をシステムに導入する必要がある。

前節で述べたように FROG 計測ではフェムト秒レーザパルスの振幅及び位相の両方が求まる。そこで本研究ではワンショット計測が可能な PG-FROG 測定を用いる。PG-FROG 画像を元に最適化制御の指標であるコスト値を算出し、ターゲット波形とのコストとの差を減少させる方向にアダプティブアルゴリズムによる閉ループを構築すればよい。しかし、FROG 画像から波形を再構築するには Fig. 5.2 で示した繰り返しアルゴリズムを用いる必要があるが、コスト計算に毎回この計算を用いると、現実的な時間内で最適パルスを得ることが困難になる。そこで、Eq. (5.1) で表される FROG 画像自体にすでにフェムト秒レーザパルスの振幅位相の両方の情報が含まれているので、FROG 画像自体から直接コスト値を算出する。評価関数であるコスト関数はスカラー数で無くてはならないので、2次元画像から一つの指標関数を導出する必要がある。そこで、本研究ではターゲット波形の FROG 画像をあらかじめ計算しておき、それをターゲット FROG 画像とした。その上で CCD で測定される FROG 画像とターゲット FROG 画像の差分を計算し、コスト関数を

$$C_n = \sum_{\omega, \tau} \left\{ \frac{I_{\text{FROG}}^{\text{shaped}}(\omega, \tau)}{\sum_{\omega, \tau} I_{\text{FROG}}^{\text{shaped}}(\omega, \tau)} - \frac{I_{\text{FROG}}^{\text{target}}(\omega, \tau)}{\sum_{\omega, \tau} I_{\text{FROG}}^{\text{target}}(\omega, \tau)} \right\}, \quad (5.5)$$

で定義した。ここで、 $I_{\text{FROG}}^{\text{target}}(\omega, \tau)$ 、 $I_{\text{FROG}}^{\text{shaped}}(\omega, \tau)$ はそれぞれターゲット FROG 画像と実験中に測定される FROG 画像である。FROG 画像は時間軸、周波数軸が 640×480 pix の画像を用いた。

Fig. 5.3 に本スキームの FROG 画像参照適応制御波形整形の計算結果を示す。Fig. 5.3 右下のターゲット FROG 画像を仮定し、実験で用いた $4f$ 型波形整形器の LC-SLM の位相変調のみでターゲット FROG 画像に近づくように最適化制御を行なった。初期波形は中心波長 800 nm、波長幅 45 nm のガウス型スペクトルを持つフーリエ限界パルスを仮定している。この結果より約 1000 回程度でかなりターゲット画像に近い FROG 画像が得られることがわかる。

5.3.2 実験セットアップ

セットアップ

本実験セットアップを Fig. 5.4 に示す。再生増幅器後の波形は PG-FROG でモニターされ、その画像信号は直ちにコンピュータに取り込まれる。コンピュータは LC-SLM と GPIB(General

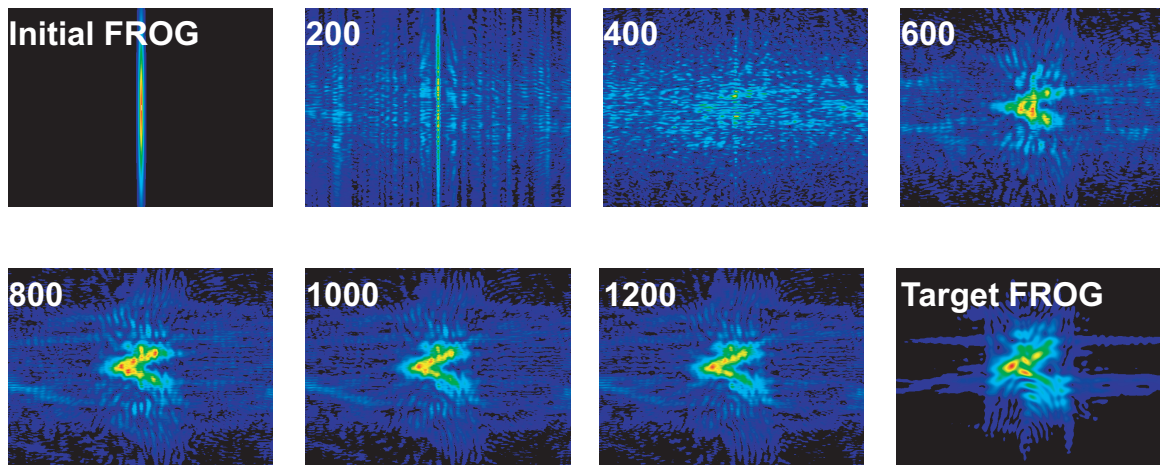


Fig.5.3 An example of FROG-trace referring procedure. Initial waveform is Fourier transform limited pulse with center wavelength of 800 nm and 45 nm (FWHM) bandwidth. FROG traces are in certain number of iteration. Target FROG trace is shown at the right side of lower row.

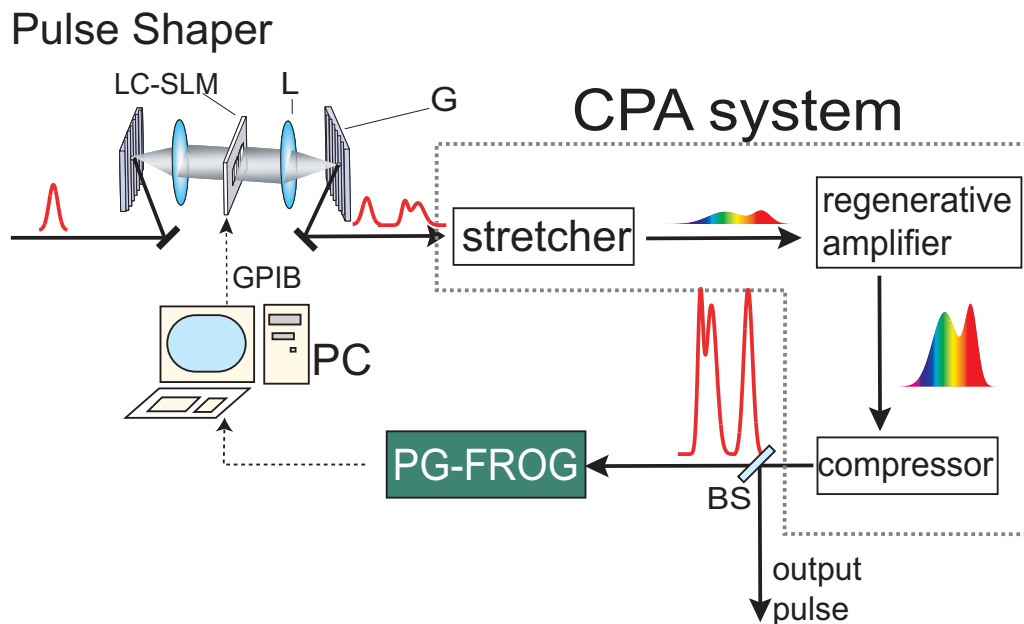


Fig.5.4 Experimental setup of FROG trace referring phase-only adaptive pulse shaping before regenerative chirped pulse amplifier. Output pulse from the CPA is 0.45 mJ. The pulse is monitored with PG-FROG, and the CCD camera in the FROG apparatus is connected with the PC. L: Lens, G: Grating.

Purpose Interface Bus) 経由で接続されている。

制御系

LC-SLM への制御は Gateway 社製パーソナルコンピュータ (Celeron 600 MHz) を用いて, National Instruments 社製 PCI-GPIB ボードを経由して行われる。GPIB バスの最大転送レートは 1.5 Mb/s である。マスクを 1 回書き換えるのに必要なビット数は $2 \text{ bit} \times 128 + (\text{制御ビット}) 2 \text{ bit} + (\text{CR}) 1 \text{ bit} = 259 \text{ bit}$ であり, 帯域から計算される転送速度は $\sim 0.2 \text{ ms}$, Eq. (5.5) に示すコストの計算に要する時間は, 1 演算に平均 15 クロック必要¹¹⁾であると仮定すれば, $640 \times 480 \text{ pix}$ の画像で, 23 ms かかる計算になる。一般にネマティック液晶の応答速度は ms オーダであるが, 実際には, 本実験では LC-SLM に書き換え信号を送った後 1.5 s 間を空けた後に FROG 画像を取得した。これは, LC-SLM の駆動ドライバの反応速度がまだ十分ではないことと, FROG 画像を取得する CCD カメラのシャッタースピードを十分長く取り, CCD 画素に十分電荷がたまるとのを待つ必要があるためである。LC-SLM の特性として高い電圧を加えた方が応答がはやいために, 高い電圧値を用いて 0 から 2π の変調を加えればより応答が速くなると考えられる。

5.3.3 実験結果および考察

300 fs ダブルパルス

定量的定性的な議論が可能ないようにシンプルなプロトタイプとして 300 fs ダブルパルスの設計実験を行なう。Fig. 5.5 (a) に, ターゲット FROG 画像を示す。このターゲット FROG 画像は,

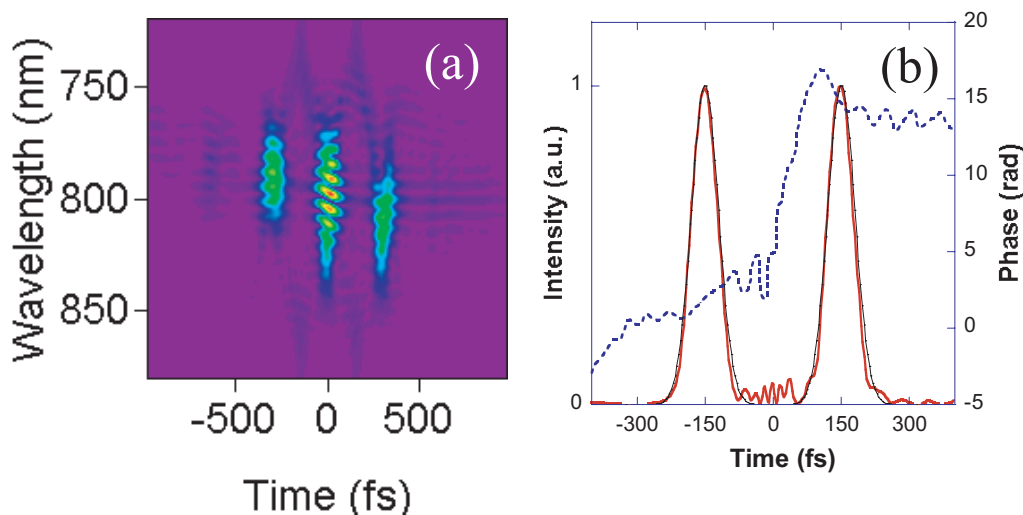


Fig.5.5 (a) Target PG-FROG trace calculated from (b). (b) Calculated target waveform (thick line) designed with SA. Thin line represents ideal intensity waveform used for SA calculation.

Fig. 5.5 (b) のターゲット波形をから Eq. (5.1) を用いて計算された．本システムでは最適化制御を用いるので原理的にはターゲット FROG 画像にはどのようなものを用いても良い．ここでは波形整形器に位相変調のみを加えているが，位相変調のみでは得られない波形をターゲット波形としてターゲット FROG 画像を用意しても良い．最適化アルゴリズムは，実験制約条件の中で最も近い解を自動的に求めてくれるはずである．しかしながら，ここではシステムのパフォーマンスを議論する必要があることから，ターゲット波形には実際に位相変調のみで得ることが可能な波形を用意した．光源で，与えられたスペクトルにおいてスペクトル位相フィルタリングのみで得られることを計算機上で確認済みである．それを確認することによって，実際に実験で得られた波形とターゲット波形を直接比較することが可能になり，システムのパフォーマンスの議論が明確になる．

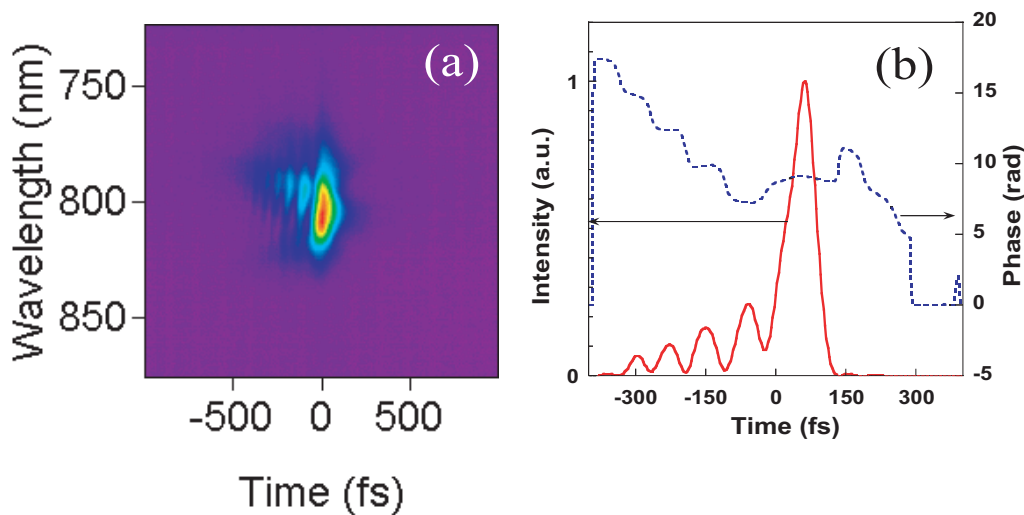


Fig.5.6 (a) Initial FROG trace when no modulation is applied to the LC-SLM. Only the gratings distance in the pulse compressor of the CPA is optimized. This FROG trace indicates that a large third order dispersion is inherent in the output pulse. (b) Reconstructed intensity (solid) and phase (dotted) distribution from the initial FROG trace (a). Sub pulses are due to the large third order dispersion.

再生増幅器から得られる初期 FROG 波形は Fig. 5.6 (a) である．この初期 FROG 波形を FROG 再構築アルゴリズムを用いて再構築すると Fig. 5.6 (b) となる．

この波形を初期波形とし，Fig. 5.5 をターゲット FROG 画像として最適化を開始する．このときの SA のパラメータは，初期温度 $T_{\text{ini}} = 1.0 \times 10^{-7}$ ，温度冷却係数 $\eta = 9.990 \times 10^{-1}$ ，グレーレベル (量子化レベル) $2\pi/16$ rad である．

適応制御中のコストの減少の様子を Fig. 5.7 に示す．コストは Eq. (5.5) によって計算される，ターゲット FROG 画像とリアルタイムモニタリングされている増幅器後の整形波形の FROG 画像の差なので，このコストが減少していくにつれて，測定 FROG 画像がターゲット FROG 画像

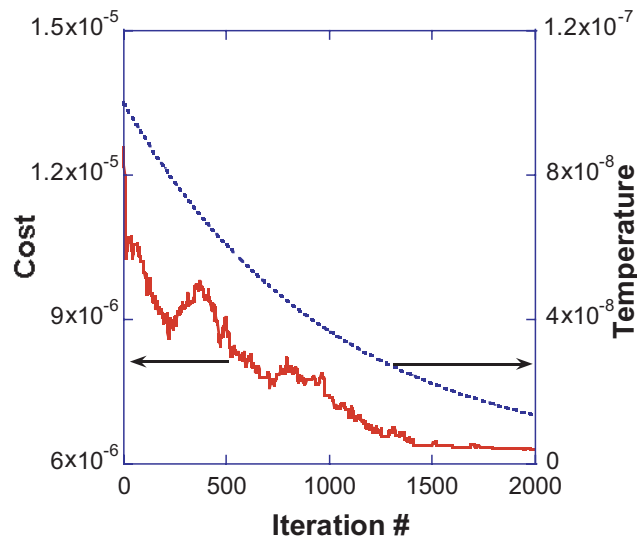


Fig.5.7 Solid line represents the Cost function in respect of the iteration number. Dotted line represents the system temperature given to the algorithm.

に近づく．最適化の結果 375 回の regular , 288 回の accept , 1337 回の reject が得られた．

最終的に得られた FROG 画像を , Fig.5.8 (a) に示す . またそのときのマスク関数をターゲット波形のマスク関数と共に Fig. 5.9 に示す . Fig. 5.8 (b) は 最終的に FROG 解析によって得ら

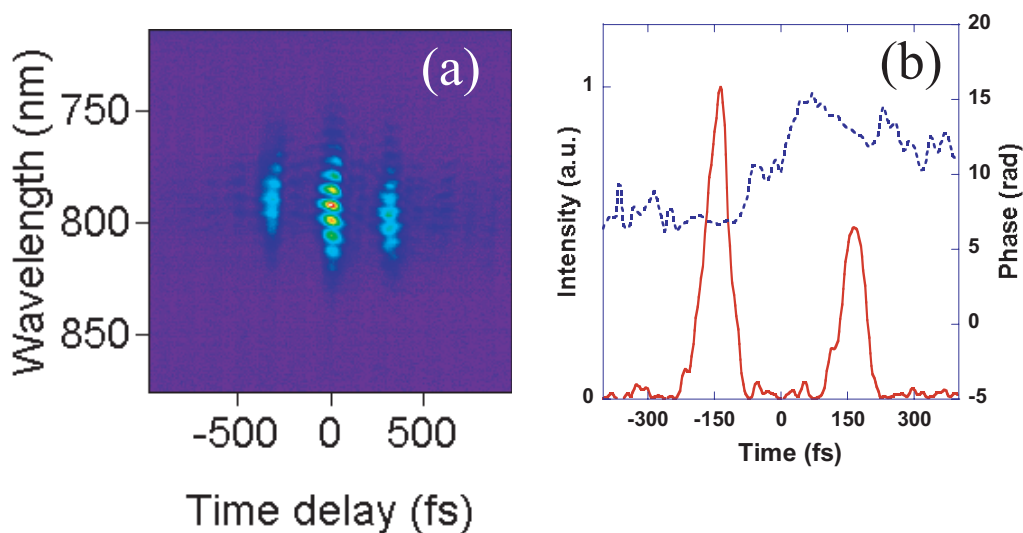


Fig.5.8 (a) Shaped FROG trace after 2000 iterations. (b) Reconstructed shaped waveform from FROG trace (a).

れた波形である . グリッドサイズ 512 × 512 で解析したときの FROG エラーは 0.6 % であった .

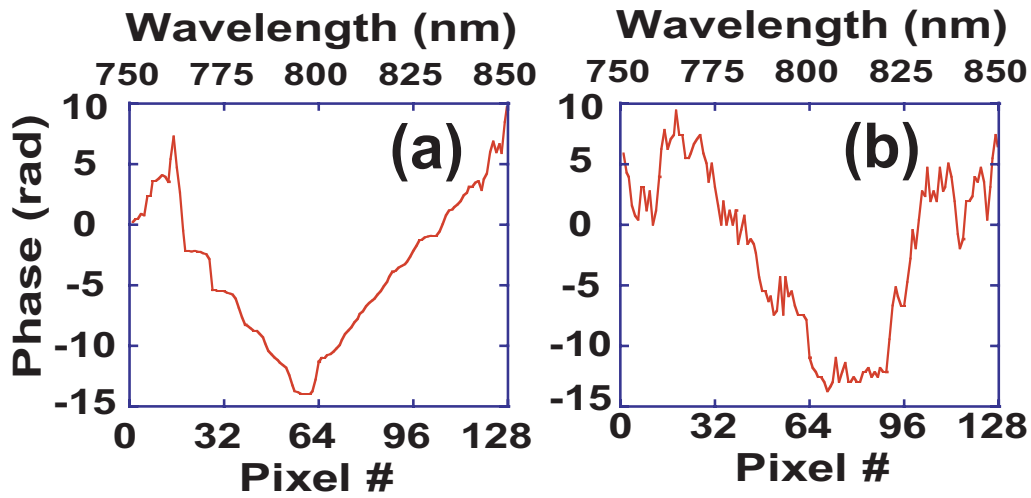


Fig.5.9 (a) Mask function of the target waveform. (b) Mask function of the shaped pulse.

様々な波形設計における波形整形システムのパフォーマンス

Fig. 5.10 (a) , (b) にそれぞれ 200 fs 間隔 , 及び 400 fs 間隔のダブルパルス設計例を示す . い

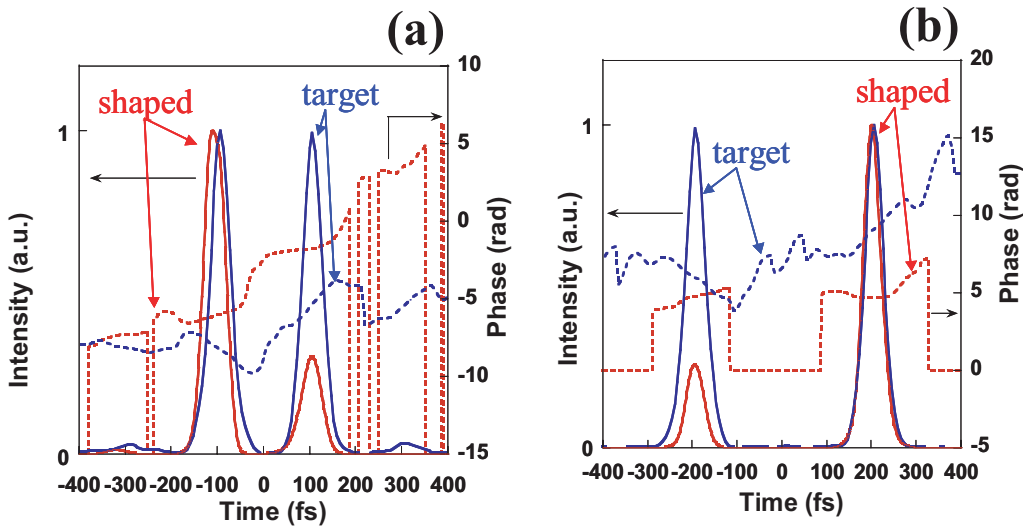


Fig.5.10 (a) 200 fs separated double pulse. (b) 400 fs separated double pulse.

ずれもその強度比は異なるもののパルス間隔は良く再現されている . Fig. 5.11 には , チャープパルスをターゲット波形とした際の FROG 画像参照適応制御波形整形例を示している . コヒーレント制御では今だチャープパルスなどの比較的単純な構造を持った光パルスを高精度に整形することは重要である . 3 次分散の大きい増幅システムを用いた場合でも , レーザシステムの高次の残留分散は前置き型波形整形適応制御システムを用いて自動補償可能な事が示された .

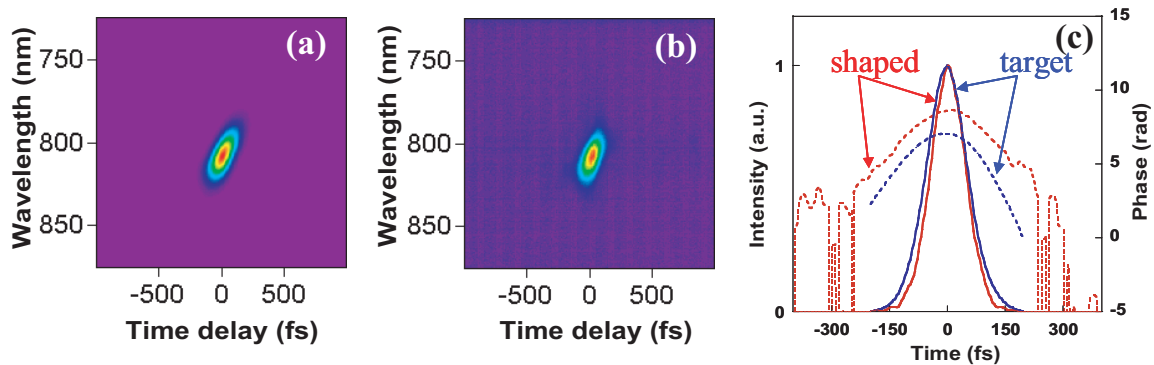


Fig.5.11 (a) Target FROG trace calculated from target waveform in (c); (b) Shaped FROG trace after 3500 times iterations. Initial FROG trace is same as Fig. 5.6 where a large 3rd order dispersion is inherent; (c) Target and shaped waveform. Shaped waveform is reconstructed from (b).

Fig. 5.12 には flat-top 波形をターゲット波形とした例を示す．こうした矩形波では立ち上がり立ち下がり成分に高低周波成分が集まる．そのためにスペクトルの裾までかなり正確に整形しなくては急峻な立ち上がりや立ち下がりを実現することは難しい．本システムで用いたワンショット計測可能な PG-FROG ではスペクトルの裾まで正確に位相を求めることは難しいために，整形された波形の立ち下がりや立ち上がりがなまった波形になっている．

FROG 画像参照適応制御波形整形システムのパフォーマンス

超高速コヒーレント制御においては複素電界を高精度に制御することが求められている．マイケルソン干渉系において 2 つの光路が半波長，即ち位相 π ずれた場合には光は destructive に干渉する．同様に光のコヒーレンスは電子量子波束に転写されるので，2 つのパルスで励起する簡単な例では電子量子波束の位相 π 以内の精度で制御可能なように光パルスの遅延時間を精度良く制御する必要がある．このように一般に超高速コヒーレント制御に整形波形をもちいる際にはその精度を確保することは最も重要である．

プロトタイプとして行なった Fig. 5.8 の実験結果はターゲット波形のパルス間隔が良く再現されている．しかしながら，ピーク強度には非対称性が見られる．この誤差は 2 つの原因が考えられる．一つは最適化の指標の残差であり，他方は FROG 画像再構築の際の誤差である．最適化による誤差はコスト関数が零にならないことから必ず存在する．FROG エラーも同様であり，この両者を同時に 0 にできない限りターゲット波形と完全に同一の波形を得ることはできない．しかし，これらのどちらが整形波形の誤差により重大な影響を及ぼしているかを調べることは，システムのさらなる高精度を実現する上で重要である．

そこで FROG 画像から得られた再構築された時間波形 Fig. 5.8 から再び Eq. (5.1) を用いて FROG 画像を再計算する．Fig. 5.13 にその再計算された FROG 画像を示す．Fig. 5.13 で

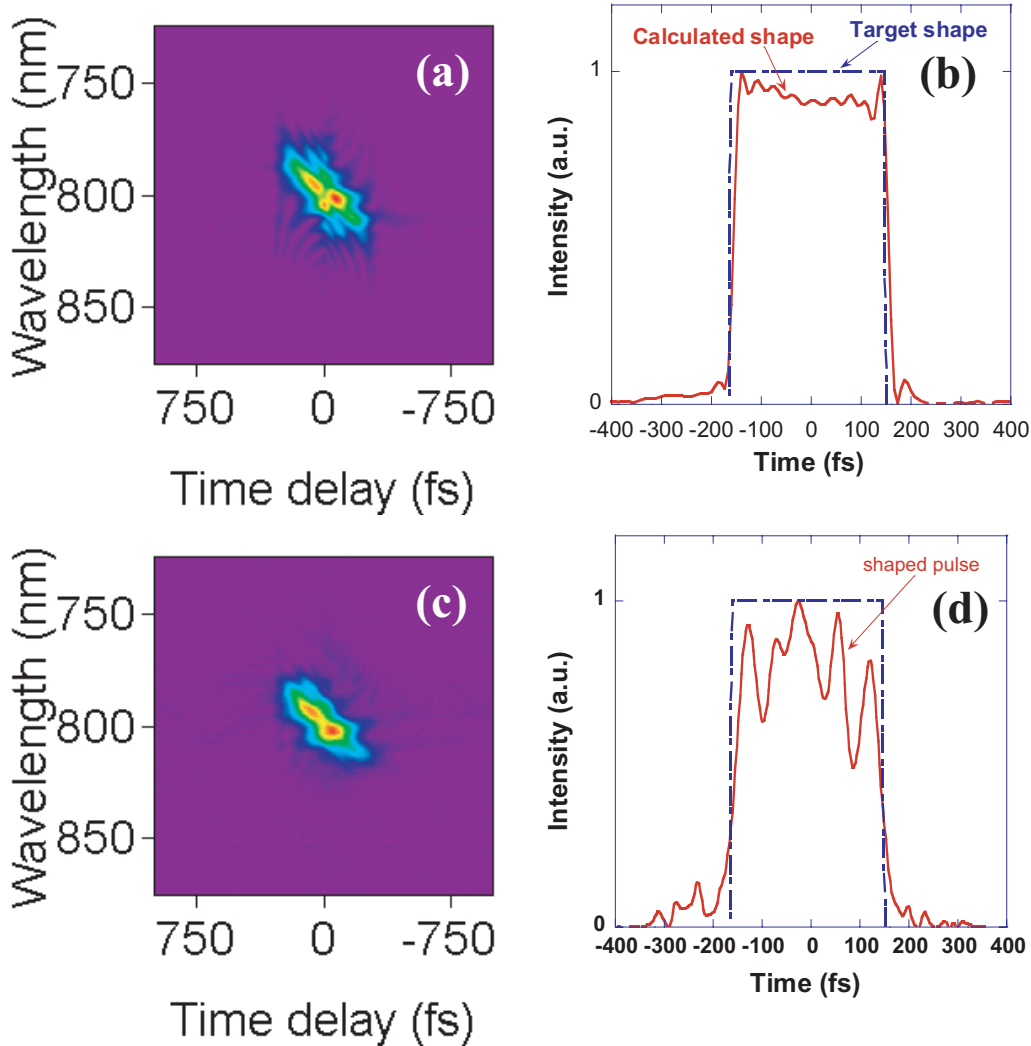


Fig.5.12 (a) Target FROG trace of a flat-top pulse; (b) target waveform; (c) shaped FROG trace; (d) reconstructed waveform.

は、 -150 fs と 150 fs の成分のピーク強度に差が見られる。ピーク強度比は約 0.69 であり、この非対称性は波形再構築に用いた測定された FROG 画像 Fig. 5.8 (a) には見られない。このことから、Fig. 5.8 (b) の時間強度波形に見られる非対称性の誤差要因は主に FROG エラー、即ち Fig. 5.2 で示す FROG 再構築アルゴリズムの過程で加わると考えられる。これは一概に FROG 測定手法の不備を指摘しているわけではなく、FROG 測定法を本システムに組み入れて用いたシステムとしての精度の限界を指摘している。

5.3.4 本節のまとめ

本節では LC-SLM を用いた $4f$ 型波形整形システムによる増幅器前置き型波形整形システムによる適応制御波形整形実験について述べた。本閉ループは、増幅器の線形・非線型性を全く仮定

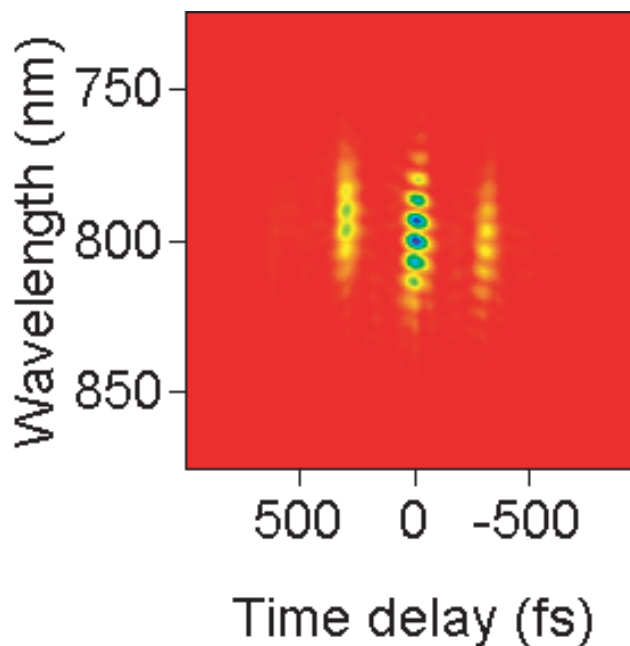


Fig.5.13 Retrieved FROG trace calculated from the reconstructed waveform (Fig.5.8 (a)). Maximum value of the component at delay time -150 fs and 150 fs is in magnification ratio of 0.69.

していないので，増幅器に限らず光ファイバー伝送などの¹²⁾非線形性が高い伝送媒質を用いた場合にも有効である．パルス列，チャープパルス，矩形波パルス整形実験を例に本システムの整形精度を示した．

特に，ダブルパルスを例にとり FROG 画像参照適応制御波形整形システムの整形精度を議論した．その結果，本システムでは FROG 波形測定手法を用いているので，FROG 画像から振幅位相を再構築する際に誤差が加わり，これがシステムの波形整形精度を低下させていることが明らかになった．

5.4 AOPDF による振幅位相変調による最適制御実験

本節では FROG 画像を参照として，振幅位相整形による増幅器前置き型アダプティブ波形整形実験について述べる¹³⁾．振幅位相波形整形器には AOPDF を用いた．

5.4.1 実験セットアップ

実験セットアップは Fig. 5.4 に示したものと波形整形器以外は同一である． $4f$ 波形整形器の代わりに AOPDF を用いた． $4f$ 波形整形器と AOPDF の光路はフリッパーで切り替え可能にしてある．

増幅器前置き型波形整形システムにおける振幅位相変調では振幅変調を加える際に増幅器へのシード光のスペクトル帯域を削りすぎないように注意する必要がある。本節で示したいいずれの実験でも、ターゲットにはスペクトルの狭い波形を用いなかったので問題とならなかったが、ターゲット波形のスペクトル帯域が狭い場合には、安全装置としてシード光のスペクトルモニタリングを行なう必要がある。

5.4.2 実験結果及び考察

位相変調のみによる分散補償実験

AOPDF と $4f$ 型波形整形器とのデバイス特性の差がどのように波形整形システムのパフォーマンスに影響を与えるかを考察するために、振幅位相変調アダプティブ波形整形実験を行なう前に、AOPDF による位相のみの適応制御波形整形実験を行なった¹³⁾。

AOPDF では直接時間域で波形を整形するため、波形整形器の時間窓は AOPDF の結晶長によって決定される。設計した音響波が結晶外にはみ出た場合には、その成分は整形されない。前置き型適応制御波形整形システムではこの AOPDF の特性に注意する必要がある。それは、大きな 2 次分散を加えた場合に、音響波のスペクトルの裾の部分が結晶の外にはみ出るために AOPDF でスペクトルの狭窄化を引き起こすからである。こうした光をシードすることは、CPA の損傷に直結する可能性がある。

スペクトル領域で位相マスクを設計する場合、急峻な位相変調を加えると音響波が結晶の外に容易にはみ出てしまうので、本実験においては安全を考慮し、スペクトル位相を Eq. (5.6) で示されるように級数展開し、その係数を適応制御の変数とした。

$$\phi(\omega) = \phi_0 + \phi_1 \cdot (\omega - \omega_0) + \phi_2 \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \phi_3 \cdot (\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (5.6)$$

係数は 7 次のオーダーまで用いて、再生増幅器の分散をアダプティブに補償する波形整形実験を行なった。

Fig. 5.14 (b) にターゲット FROG 画像を示す。これは、42 fs のフーリエ限界パルスであり、本実験を行なった際の CPA 後のスペクトル幅 17 nm (FWHM) から算出される最短パルスである。Fig. 5.14 (a) は本実験を行なった時の初期 FROG 波形であり、3 次分散が内在している。Fig. 5.14 (c) が 4000 回 iteration した後の最適 FROG 画像である。コスト関数の減少の様子を、Fig. 5.15 に示す。Fig. 5.14 (c) の FROG 画像に FROG 再構築計算を施し、グリッドサイズ 128×128 で 1.6% の FROG エラーで時間波形を求めた。この再構築波形を、Fig. 5.16 にターゲット波形と共に示す。-50 fs から 50 fs の光が存在する時間内における位相が数 rad 以内に収まっていることがわかり、フーリエ限界パルスに近いパルスが得られていることがわかる。実際に Fig. 5.17 に初期波形 FROG 波形に含まれるスペクトル位相及び、最適化制御によって最終的に AOPDF に加えた最適マスクを示すと、AOPDF で CPA の初期分散を補償する方向に位相が加わっている事がわかる。

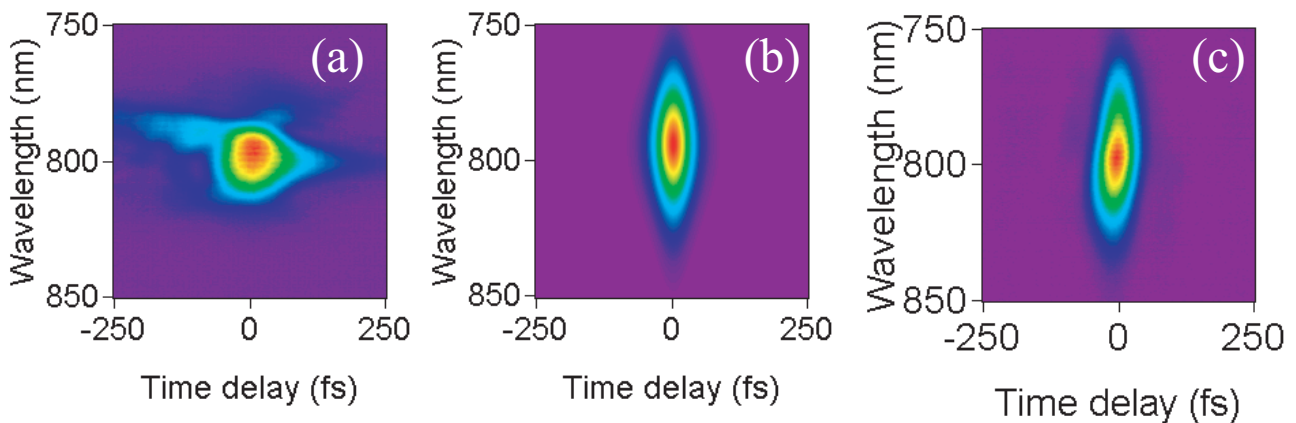


Fig.5.14 (a) Initial FROG trace. Large 3'rd order dispersion is inherent; (b) Target FROG trace. It is calculated from a 42 fs transform limited pulse which corresponds to a 17 nm bandwidth spectrum; (c) Optimized FROG trace after 4000 times iterations. High order dispersions are compensated.

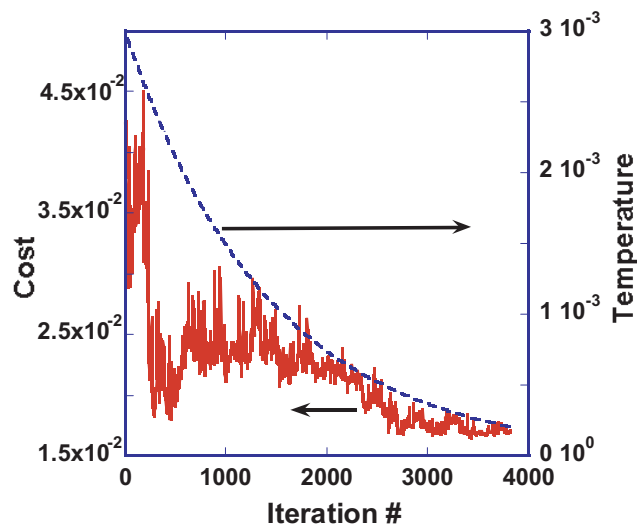


Fig.5.15 The solid line represents the cost function in respect to the iteration number. The dispersion of the CPA is compensated with adaptive control. Dotted line represents the system temperature given to the SA.

AOPDF では、急峻な位相を加えると、音響はが結晶外に出てしまい、スペクトルが削れてしまう事に注意する必要があるものの、LC-SLM を用いた $4f$ 型波形整形器同様、高次分散を細かく補償するような分散補償器としては十分な性能を発揮する。

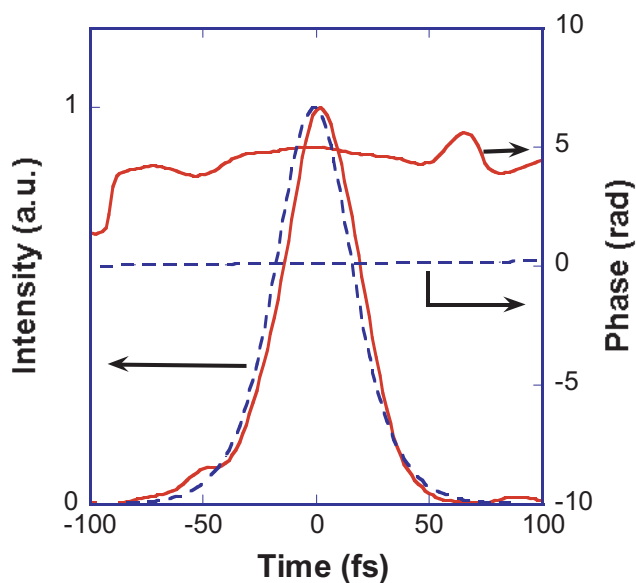


Fig.5.16 Solid line represents the reconstructed waveform from optimized FROG trace in Fig. 5.14 (c), and the dotted line is the target waveform. The pulse width of the solid line is 45 fs (FWHM).

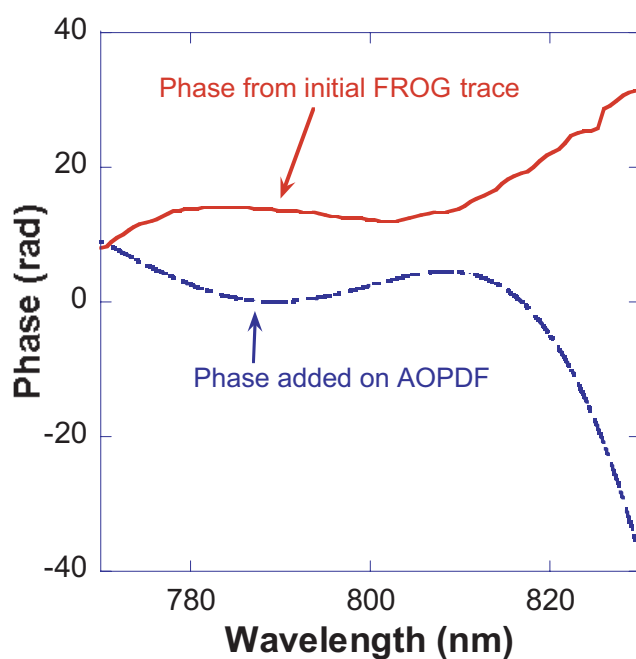


Fig.5.17 The broken line represents the phase mask applied to the AOPDF. Solid line represents the reconstructed phase from initial FROG trace of Fig. 5.14 (a). This figure shows that a reverse phase is searched and applied to the AOPDF.

振幅位相変調によるダブルパルス設計

次に振幅位相変調による AOPDF 適応制御波形整形実験を行なう¹³⁾。同一のパルス形状をしたダブルパルスを設計するためには、位相変調のみでなく、振幅変調も加える必要がある。AOPDF へ入射するパルス波形を $e(t)$ 、そのフーリエ変換像を $E(\omega)$ 、2 つのパルス間に加える時間遅延を τ とすると、ダブルパルスのスペクトル強度 $I(\omega)$ は、

$$I(\omega) = 2|E(\omega)|^2 + 2|E(\omega)|^2 \cos(\omega\tau) \quad (5.7)$$

であるので、スペクトル強度には正弦波状の振幅変調を加える必要がある。各パルスがフーリエ限界パルス 42 fs(FWHM) の、150 fs 間隔のピーク強度 1:1 のダブルパルスを設計した。設計手順としては、Fig. 5.18 に示した手順によってあらかじめ音響波の時間域の足し合わせをおこない、AOPDF のフィルター関数を時間遅延 150 fs のダブルパルスが得られるようにしておく。AOPDF の出力波形は、Eq. 2.43 で表されるので、この手順によって入力波形の複製が 150 fs 間隔で得られることになる。このときに、AOPDF には振幅変調が加わっている。しかしながら、AOPDF への入力パルスに含まれる分散や AOPDF 後に設置した CPA の分散によって、各パルスが最短パルスとして CPA 後に得られる保証はない。そこで、更に位相分散フィルターを適応制御を用いて調整する。Fig. 5.19 (a) にターゲット FROG 波形及び (b) に 1750 回 Iteration を行なった適応制御波形整形後の FROG 波形を示す。コスト関数は最終的に 1.7% まで低減された。ターゲット FROG 波形 Fig. 5.19 (a) の -150 fs と 150 fs の成分をスペクトル域で着目するとフリッジが現れない。これは各パルスを独立で測定した場合には、スムーズなスペクトルが得られること、即ち各パルスはオリジナルの入力スペクトルが含まれている事を示している。こうしたパルスは Fig. 5.5 を例とする位相のみの変調によるパルス設計では不可能である。Fig. 5.19 (b) を FROG 画像再構築計算すると、Fig. 5.20 が得られる。再構築の際の FROG エラーは 256×256 のグリッドサイズで 0.5% であった。パルス幅及びパルス間隔が非常に良く再現されていることがわかる。やはりピーク強度の非対称性は Fig. 5.19 (b) の最適化 FROG 波形では見られないことから、FROG 画像再構築計算の際にもたらされたものであると考えられる。

Fig. 5.19 (b) の ± 75 fs の成分で多少の干渉が観測される理由は、Eq. (5.7) で示される強度変調のコントラストが CPA 後には十分に得られていないからであると考えられる。

振幅位相変調による中心波長の異なるダブルパルス設計

振幅変調の効果をより積極的に応用した例として中心波長の異なるダブルパルス設計を行なった。超高速コヒーレント制御等において波長の異なるコヒーレントなパルス対を用いたポンププロープ実験などにも応用可能である。

Fig. 5.21 (a) にターゲット FROG 画像を示した。ターゲット FROG 画像は、ピーク強度 1:1、パルス間隔 200 fs、パルス幅 60 fs (FWHM)、中心波長 795 nm と 805 nm のダブルパルスから

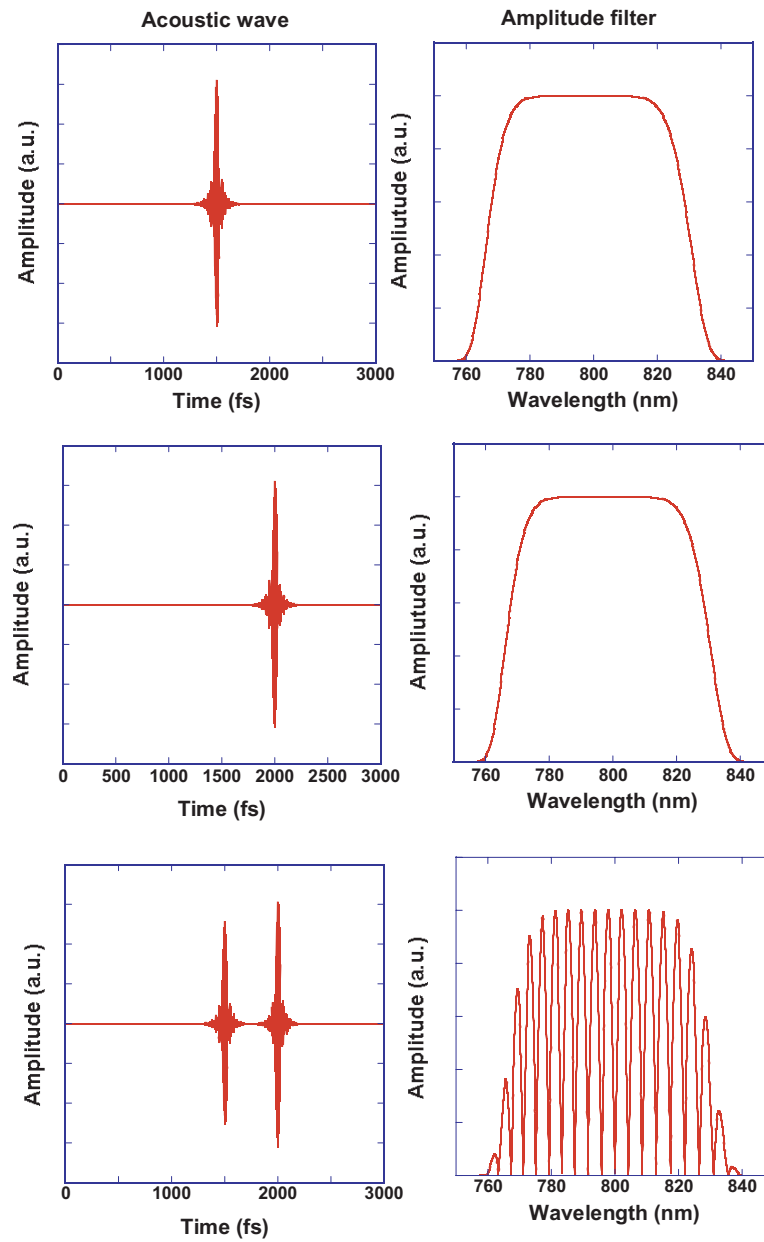


Fig.5.18 Demonstration of 500 fs separated double pulse design.

生成された .1500 回の Iteration 後のコストは 1.3% となった .そのときの最適 FROG 波形を Fig. 5.21 (b) に示す . Fig. 5.21 (b) を再構築した時間波形及びスペクトル波形を Fig. 5.22 に示す .スペクトル領域の位相の傾きは時間遅延に対応するので ,波長が短い成分が時間遅延を受け ,波長が長い成分が時間的に進むことが Fig. 5.22 (b) のスペクトル波形から理解される .より直感的に理解するためにはスペクトルグラム表示する必要がある .p.156 に示す手順を用いてターゲット波形及び再構築された整形波形からそれぞれスペクトルグラムを生成した .スペクトルグラムを Fig. 5.23 に示す .ピーク強度が異なる以外は ,かなり精度よく中心波長の異なるダブルパ

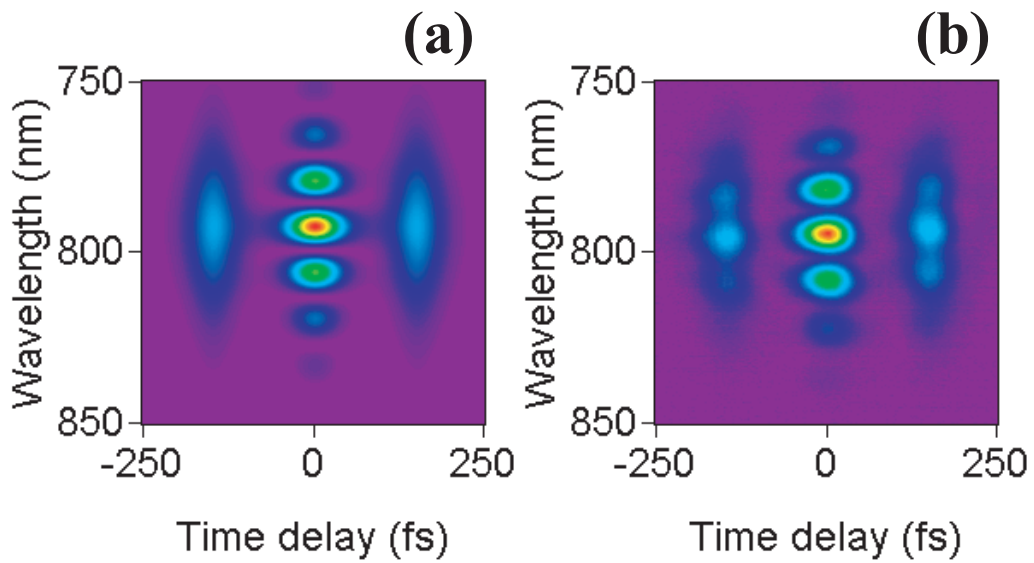


Fig.5.19 (a) Target FROG trace; (b) Shaped FROG trace after 1750 times iterations.

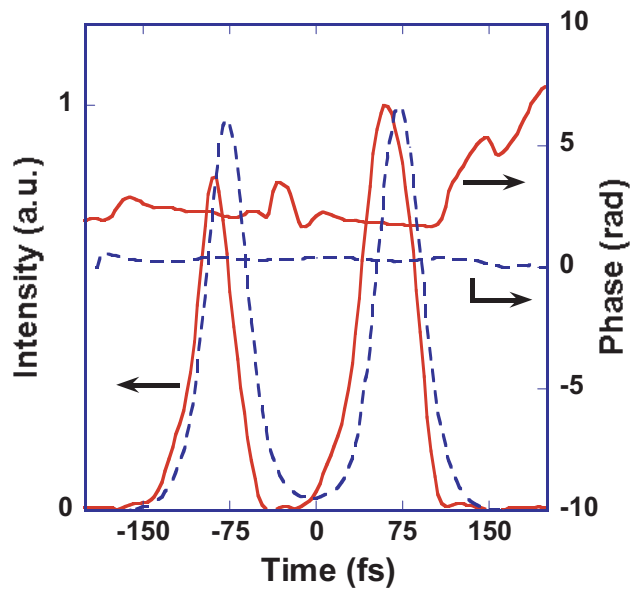


Fig.5.20 Solid line represents the reconstructed waveform from the optimized FROG trace in Fig. 5.19 (b). Dotted line is the target waveform. Almost identical waveform except peak intensity is obtained.

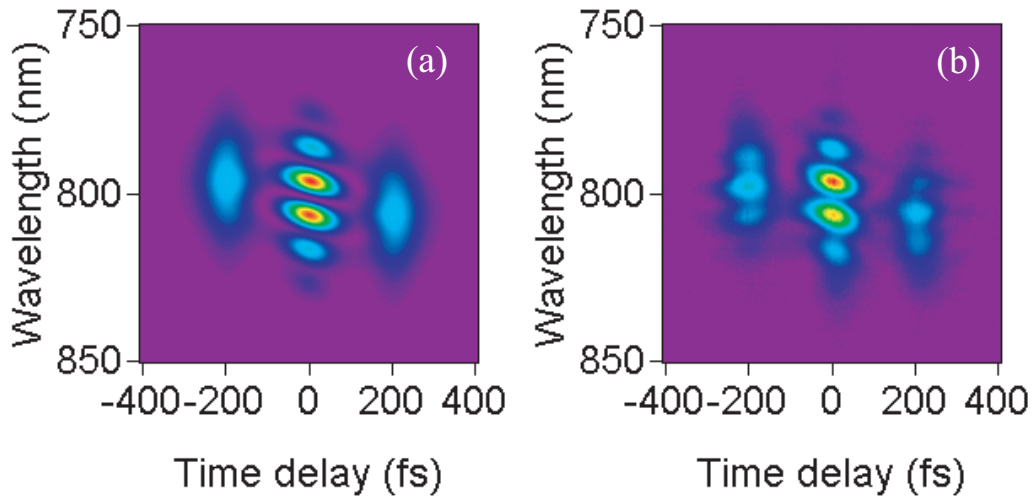


Fig.5.21 (a) Target FROG trace of double pulse with different center wavelength. The pulse interval is 200 fs with each pulse has 795 nm and 805 nm center wavelength. (b) Shaped FROG trace after 1500 times iterations.

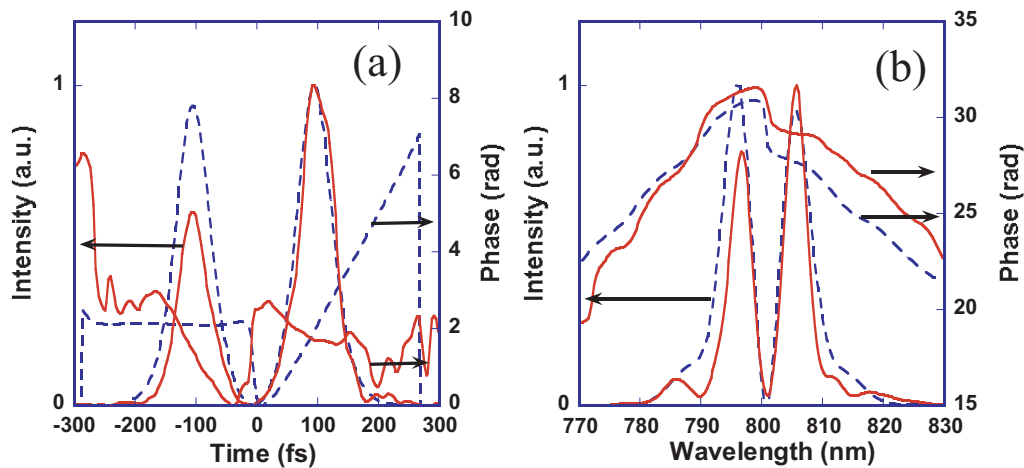


Fig.5.22 (a) Reconstructed waveform from shaped FROG trace in Fig. 5.21 (b). (b) Reconstructed Spectrum. The phase tilt corresponds to different time delay.

ルスが生成されていることがわかる。

振幅位相変調による利得狭窄化補償パルス設計

振幅位相変調を加える CPA の利得狭窄化を補償する実験を行なう。本実験では、スペクトル振幅及び、スペクトル位相を波長帯域は 100 nm、中心周波数 800 nm として、32 pix にピクセル化して AOPDF のフィルタ関数を決定した。本実験においては振幅変調をピクセル化して扱うために、AOPDF で整形されるパルスのスペクトルが 30 nm 以下に削られないよう細心の注意を払う

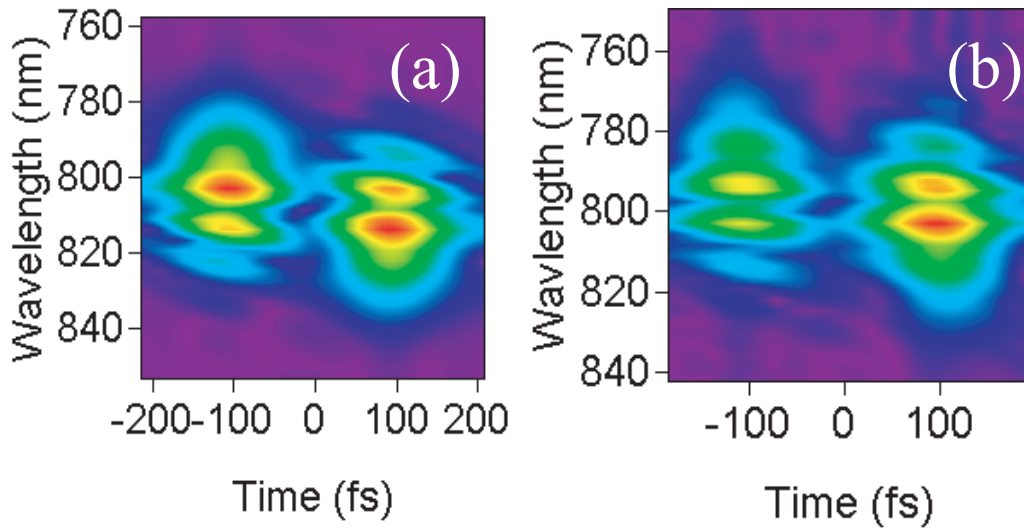


Fig.5.23 (a) Spectrogram of target trace; (b) Spectrogram of the reconstructed shaped pulse.

必要がある．制御ソフトウェアに，AOPDF で加える振幅フィルタによって整形パルススペクトル幅が狭窄化されないための安全アルゴリズム及び，AOPDF 直後にスペクトルモニタを設置して CPA のインターロックシステムに直結するシステムを導入する必要がある．但し，本実験では，ターゲット波形がある程度スムーズなスペクトル位相，及びスペクトル狭窄化の起らない広帯域な波形を用意したのでその必要はなかった．

ターゲット波形には，Fig. 5.24 (a) を用いた．ターゲット波形には 30 fs のフーリエ限界パル

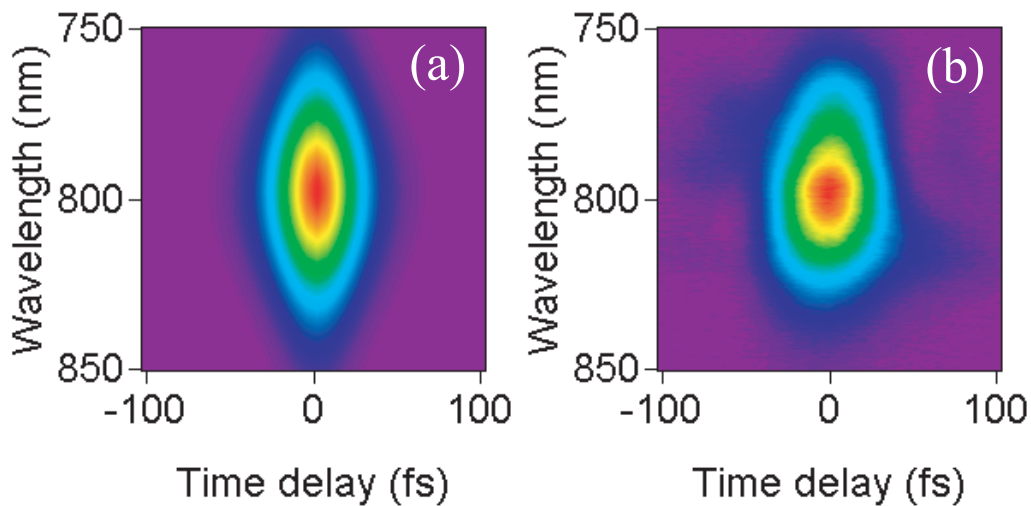


Fig.5.24 (a) Target FROG trace of a transform limited 30 fs pulse. (b) Shaped pulse after 2500 times iterations with 32 pixelized spectral phase and spectral amplitude modulation.

スを仮定した．本ターゲット波形のパルス幅は本研究で用いた CPA の通常の動作では得られな

い．本 FROG 画像を適応制御のターゲットとすることによって CPA の利得狭窄化補償と分散補償が自動的に達成されるはずである．実際に 2500 回マスクを書き換えると 1.3% までコストが低下した．Fig. 5.24 (b) の最適 FROG 画像を再構築すると，Fig. 5.25 が得られる．パルス幅は

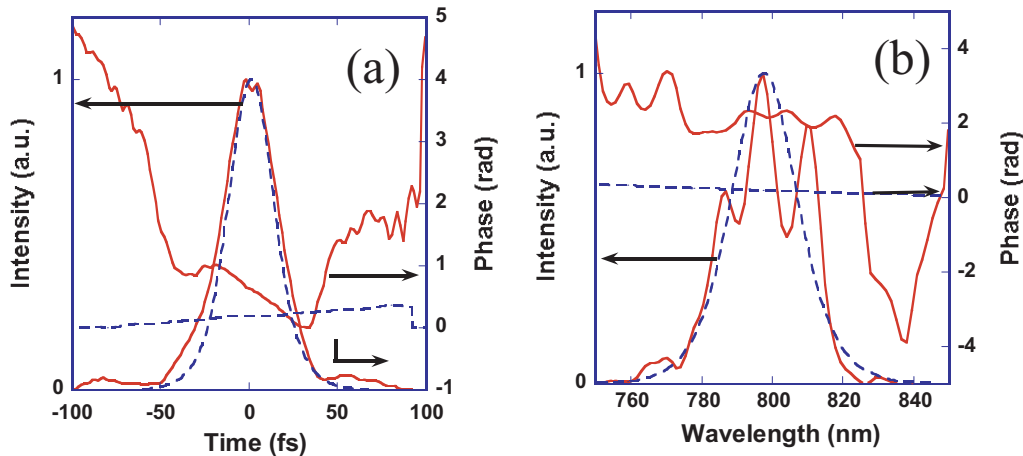


Fig.5.25 (a) Solid line represents the reconstructed waveform from the optimized FROG trace in Fig. 5.24 (b). Dotted line represents the target waveform. (b) Solid line represents the reconstructed spectrum and the dotted line the target.

35 fs (FWHM) とターゲット波形よりは若干長いものの，位相のみを補償した分散補償によって得られる最短パルス幅 42 fs に対してはかなりのパルス幅の短縮が達成されている．実際に CPA 後のスペクトル幅は 30 nm が得られており，CPA の利得狭窄化の補償が AOPDF の振幅変調によって得られていることがわかる．AOPDF に加わっている振幅位相マスクを Fig. 5.26 に示す．Fig. 5.26 (a) の振幅マスクから，中心周波数付近にディップが加わり CPA の利得狭帯域化が補正されていることがわかる．振幅位相適応制御を用いると CPA の利得狭帯域化を補償しつつ，分散補償を行える．

5.4.3 本節のまとめ

本節では AOPDF を用いた FROG 画像参照適応制御波形整形実験について述べた．はじめに，位相のみの変調を用いて，CPA の分散補償を分散係数の 7 次まで最適化して行えることを示した．AOPDF では音響波が結晶外に出ってしまうために急峻な位相変調を加える際には注意が必要であるが，分散補償などのスムーズな位相変調に対しては LC-SLM と同等か又はスペクトル位相のセグメント化が必要ない分それ以上のパフォーマンスを発揮する．その後，高精度に波形を整形する目的には欠かせない，振幅位相の両方に変調を加える FROG 画像参照適応制御整形実験を示した．ダブルパルスプロトタイプとして振幅位相変調による性能の向上を示した．特に，中心波長の異なるダブルパルスの設計や，CPA の利得狭窄化を補償する広帯域シードパルス整形な

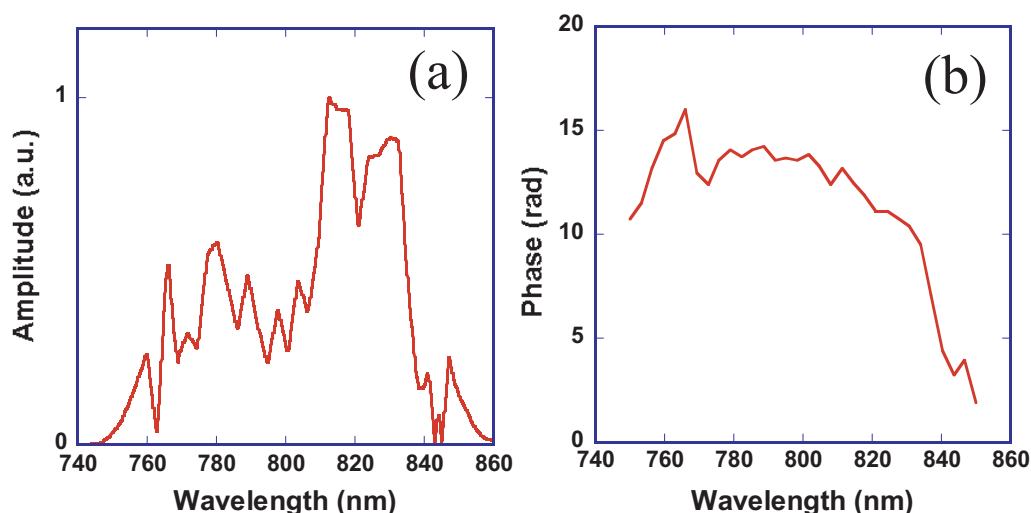


Fig.5.26 (a) The amplitude filter function applied to the AOPDF spectral mask. Low transmission of the seeding pulse at the center wavelength compensates the gain narrowing effect at the CPA. (b) The phase function applied to the AOPDF.

どは振幅変調を行なうことで初めて可能になった。

5.5 本章のまとめ

本章では FROG 画像を参照とする適応制御波形整形実験を行なった。FROG 画像参照適応制御波形整形システムでは、マスクの書き換え回数が数 1000 回に上るために解を求めるために非常に時間がかかるものの、介在するシステムの線形・非線型性を全く仮定していないために、一般にどのような非線形媒質が介在していてもその後物理的に得られる範囲内で最も最適な波形を得ることが可能である。

光パルスの振幅及び位相の両方を指標とすることによって、振幅及び位相の両方を同時にターゲット波形に近づける事ができる。こうした振幅位相を積極的に整形するシステムを初めて実現した。このように振幅位相が整形されたフェムト秒レーザーパルスを得ることは分子制御などの超高速コヒーレント制御においてはインパクトが大きい。

本章ではダブルパルスをプロトタイプとして実験を行ないシステムの性能を議論した。その結果、パルス間隔はかなり正確に再現されるもののピーク強度に異なる強度比が得られた。コヒーレント制御ではパルスタイミングが重要であるが、同時に高次の非線形光学効果を用いた光物質相互作用では光パルスの振幅の制御も重要となってくるために強度の非対称性は今後改善が必要な点である。この整形誤差は、FROG 画像を参照するという測定システムに原因があることを再構築波形から再び FROG 画像を再構築することによって明らかにした。

参考文献

- [1] T. Tanabe, K. Ohno, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, “Feedback control for accurate shaping of ultrashort optical pulses prior to chirped pulse amplification”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, (2004). (in press).
- [2] R. Trebino, D. W. DeLong, N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, and B. A. Richman, “Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating”, *Rev. Sci. Instrum.*, **68**, 3277–3295, (1997).
- [3] D. J. Kane and R. Trebino, “Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **29**, 571–579, (1993).
- [4] J. Takeda, K. Nakajima, S. Kurita, S. Tomimoto, S. Saito, and T. Suemoto, “Time-resolved luminescence spectroscopy by the optical Kerr-gate method applicable to ultrafast relaxation processes”, *Phys. Rev. B*, **62**, 10083, (2000).
- [5] F. Salin, P. Georges, G. Roger, and A. Brun, “Single-shot measurement of a 52-fs pulse”, *Appl. Opt.*, **26**, 4528–4531, (1987).
- [6] R. Trebino and D. J. Kane, “Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating”, *J. Opt. Soc. Am. A*, **10**, 1101–1111, (1993).
- [7] K. W. DeLong and R. Trebino, “Improved ultrashort pulse-retrieval algorithm for frequency-resolved optical gating”, *J. Opt. Soc. Am. A*, **11**, 2429–2437, (1994).
- [8] D. J. Kane, “Real-time measurement of ultrashort laser pulses using principal component generalized projections”, *IEEE J. Select. Top. Quantum Electron.*, **4**, 278–284, (1998).
- [9] D. Yelin, D. Meshulach, and Y. Silberberg, “Adaptive femtosecond pulse compression”, *Opt. Lett.*, **22**, 1793–1795, (1997).
- [10] D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg, “Adaptive real-time femtosecond pulse shaping”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**, 1615–1619, (1998).
- [11] 所真理雄, “計算システム入門”, 岩波書店, (1988).
- [12] M. Sato, M. Suzuki, M. Shiozawa, T. Tanabe, K. Ohno, and F. Kannari, “Adaptive pulse shaping of femtosecond laser pulses in amplitude and phase by referring the frequency

- resolved optical gating (FROG) pattern”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**, 3704–3709, (2002).
- [13] K. Ohno, T. Tanabe, and F. Kannari, “Adaptive pulse shaping of phase and amplitude of an amplified femtosecond pulse laser by direct reference to frequency-resolved optical gating traces”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2781–2790, (2002).

第 6 章

高精度増幅器前置き型波形整形 (TADPOLE 参照補正)

6.1 はじめに

PG-FROG 測定はシングルショット計測可能であり，加えて光パルスの振幅位相特性を求めることが可能である．しかしながら，3 次の非線形光学効果である光カー効果を測定に用いるために，比較的強度が弱い，光パルスの裾の部分の構造までも正確に測定するのは困難である．FROG 測定を用いた FROG 画像参照適応制御波形整形システムでは増幅器の伝達関数を仮定する必要がないというメリットがあるものの，解が求まるまでにかかなりの時間がかかる．波形を求めるためにこのような複雑な制御系を用いることは，可能な限り避けたい．そもそも，再生増幅器では多少の非線形性が存在するものの，高次の非線形効果は起きないように設計されている．それは，強い光カー効果はキャビティー内での自己収束に結びつき，オプティクスを損傷させるからである．そのためにパルスストレッチャーで十分に光パルスを伸張し，再生増幅システムでの非線形効果は最低限に抑えるように設計されている．こうしたシステムにおいては，適応制御を用いずとも，得られた振幅と位相をターゲット波形のそれと直接比較してその誤差を補正するスキームによる波形の整形が行えると期待される．

そこで本章では Temporal analysis, by dispersing a pair of light e fields (TADPOLE) 測定¹⁾ 振幅位相補正ループによる増幅器前置き型波形整形システムを構築する．

始めに TADPOLE 測定の原理を紹介し，その後 TADPOLE を増幅器前置き型波形整形による整形パルスの測定に適用する．TADPOLE 参照補正スキームを用いてスペクトル位相のみ及びスペクトル振幅・位相による波形整形を行ない，その精度を議論する．本システムでは高精度な測定が期待されるので，本研究で目指す数 ps の時間幅を持ち数 10 fs で振幅が変化するようなパルスの設計を試みる．

6.2 TADPOLE 測定法

6.2.1 セットアップ

TADPOLE 測定¹⁾は，FROG 測定法と SI 測定を組み合わせた測定手法である．TADPOLE

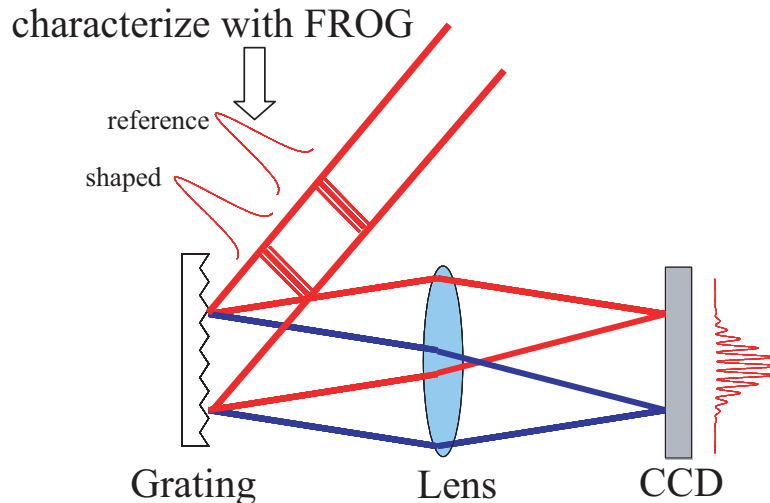


Fig.6.1 Schematic of TADPOLE measurement. The main part of TADPOLE measurement is SI spectrometer. The reference pulse is characterized independently with FROG measurement.

測定の主要な技術は SI 測定である．SI 測定では，参照光を測定光から時間遅延 τ つけて分光器に入射させる．いま 2 つの光を $e(t - \tau) \exp(-i\phi_{\text{ref}})$ ， $e(t) \exp(-i\phi_{\text{sig}})$ とすると，分光器のフーリエ面で観測されるスペクトル強度は

$$\begin{aligned} I(x, y) &= |e(t) \exp(-i\phi_{\text{sig}}) + e(t - \tau) \exp(-i\phi_{\text{ref}})|^2 \\ &= 2E^2(\omega) + 2E^2(\omega) \cos[\omega \{\tau + (\phi_{\text{ref}}(\omega) - \phi_{\text{sig}}(\omega))\}], \end{aligned} \quad (6.1)$$

となる．SSI の場合とのアナロジーを考えると，SSI での 2 光波のフーリエ面への入射角度が SI の場合の時間遅延に対応する．時間遅延を大きく取ることによって，フリッジの分解能が向上し，スペクトル分解能即ち測定時間窓が向上する．しかし，逆に時間分解能は低下する．

SI 測定のために，分光器を用いる．分光器の構成は，830 nm ブレズド 600 line/mm の回折格子，焦点距離 $f = 100$ mm のシリンダカルレンズ，そして CCD カメラを用いた．CCD カメラは波長軸には 640 pix のピクセル数を有し，各ピクセルは $13.7 \mu\text{m}$ である．また，SI 測定には商用で手に入るスペクトルアナライザを用いても良い．本実験では一部市販のスペアナ (Advantest 社製 Q83810) も用いた．中心波長 800 nm，帯域 100 nm，0.2 nm のスペクトル分解能の条件で測定した．どちらを用いたかは各実験の節に記述するが，後者のスペアナを用いた

場合の方が、スペクトル分解能が高く、感度も良いことから、やや高精度に測定が可能であった。ただ、CCD カメラを用いた場合にはスキャン素子が無いためにワンショット計測が可能である。これはシステムの高速度という点では非常に有利である。

信号光の位相を求めるためには、参照パルスが既知である必要がある。参照パルスを FROG で測定するのが TADPOLE 測定と呼ばれる測定手法である。このときに参照パルスはほぼフーリエ限界パルスの高強度な光を用いる。そうすることによって、FROG 測定を用いた場合でも高精度に波形を特性することができる。

6.2.2 波形解析手法

SI で測定したフリンジから波形を解析するためには FFTM を用いた。FFTM の詳細は Fig. 2.8 に記述してある。SSI のケースとは異なり、SI の解析では波長軸に沿って FFTM を用いるので、波長のスペクトル分解能はフリンジ間隔、すなわち参照光と信号光の遅延時間の大きさによって決定されることになる。しかし遅延時間を大きく取りすぎることは、Fig. 2.9 で示すように位相分解能の低下をもたらすために、適度な遅延時間を設定する必要がある。本章の実験では実際にはターゲット波形や用いたスペクトルアナライザの波長分解能に応じて参照光と信号光の時間遅延の大きさをその都度変化させたが、代表値として $\tau = 1.88$ ps であった。これは波長分解能 1.1 nm に対応する。

6.3 LC-SLM を用いた位相補正による閉ループ波形整形システム

6.3.1 実験セットアップ・原理

実験スキームを Fig. 6.2 に示す。TADPOLEO 測定ではリファレンス光はあらかじめ PG-

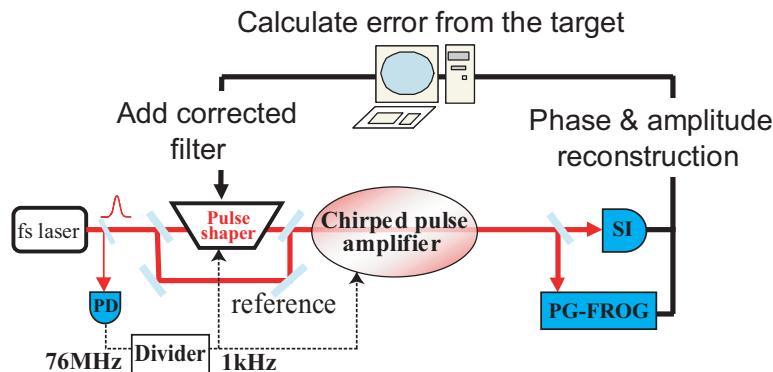


Fig.6.2 Experimental scheme of a TADPOLE referring closed loop error compensation method.

FROG で測定しておく．リファレンス光が CPA 後にほぼフーリエ限界パルスとなるようにストレッチャー及びコンプレッサーを調整しておく²⁾．フーリエ限界パルスを測定する場合においては FROG 測定の精度は保証される．実際にグリッドサイズ 128×128 において $< 0.5\%$ 以下の FROG エラーで参照パルスを求めることが可能である．Fig. 6.3 に FROG 画像及びそれより再構築された参照パルスを示す．Fig. 6.3(b) の参照パルスから求めたスペクトル位相が Fig. 6.4 で

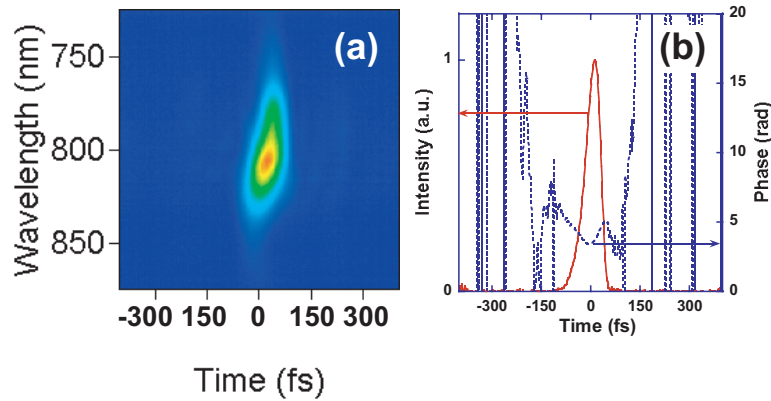


Fig.6.3 (a) Measured FROG trace of the reference pulse. (b) Reconstructed waveform from the FROG trace (a).

ある．なお，スペクトル振幅はスペクトルアナライザによって個別に測定した．SI によって求めた Eq.(6.1) で表される信号光とリファレンス光の位相差にこのスペクトル位相を加え，信号光のスペクトル位相を求めることができる．スペクトル強度は別途スペアナで測定することによって求めることができる．位相補正スキームにおいては，スペクトル位相のみをリアルタイムに測定すれば十分なのでスペクトル強度はループが終了した後に測定する．

補正ループは以下のアルゴリズムで行なう．1 回目のループでは，波形整形器にはターゲット波形のスペクトル位相 $\phi_1^{\text{mask}} = \phi^{\text{target}}$ を加える．その時の CPA 後の波形を TADPOLE 測定し，測定された位相 ϕ_1^{measure} とターゲット位相 ϕ^{target} との差を計算する

$$\phi_1^{\text{err}} = \phi^{\text{target}} - \phi_1^{\text{measure}} \quad (6.2)$$

この位相誤差が補正する対象であるので，この共役位相を現在のマスクに加える．即ち 2 回目に加えるマスクは，

$$\phi_2^{\text{mask}} = \phi_1^{\text{mask}} - \phi_1^{\text{err}} \quad (6.3)$$

となる．同様に n 回目のループで加えるマスクは，

$$\phi_n^{\text{mask}} = \phi_{n-1}^{\text{mask}} - \phi_{n-1}^{\text{err}} \quad (6.4)$$

となる．本補正ループを繰り返していくことによって解が目的 ϕ^{target} に収束していくことを期待する．

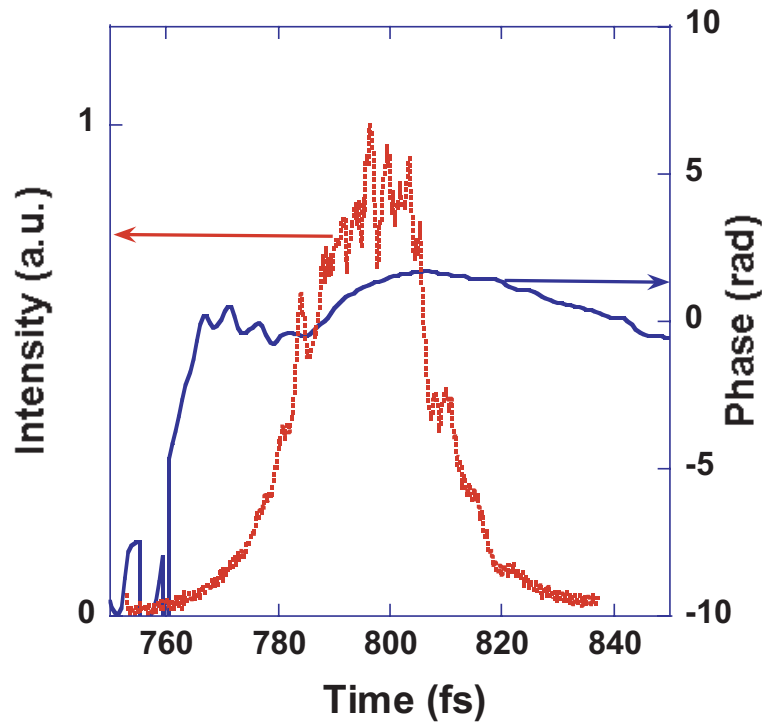


Fig.6.4 Reference spectrum phase retrieved from FROG trace. Spectrum intensity is acquired from spectrum analyzer.

6.3.2 実験結果及び考察

実験結果

300 fs ダブルパルスをプロトタイプとして、実験を行なった。Fig. 6.5 に、実験結果を示した。Fig. 6.5 (a) は理論的なターゲットマスクを印加した時の時間波形、(b) は 1 回目にマスクを書き換えた際の時間波形、(c) が 2 回目のループで再構築された波形に対応する。本手法による波形整形では、パルス間隔のみならずピーク強度も良く再現される。Fig. 6.6 にスペクトル位相をマスク関数として表示する。点線はターゲット波形のマスク関数である。一方、実線は Fig. 6.5 の波形から求められた、スペクトル位相より計算されたマスク関数である。スペクトルの裾ではスペクトル強度がほとんど無いのでスペクトル位相は意味を持たないものの、本実験を行なった際の CPA 後のスペクトル幅が 17 nm(FWHM) であることを考慮すると、裾まで正確に位相が整形されている。

補正マスク

TADPOLE 補正スキームのよる増幅器前置き型波形整形の様々なパルスの設計例を Fig. 6.7 (a) , (c) , (e) に示す。本実験は市販のスペクトルアナライザで測定した。スペクトル分

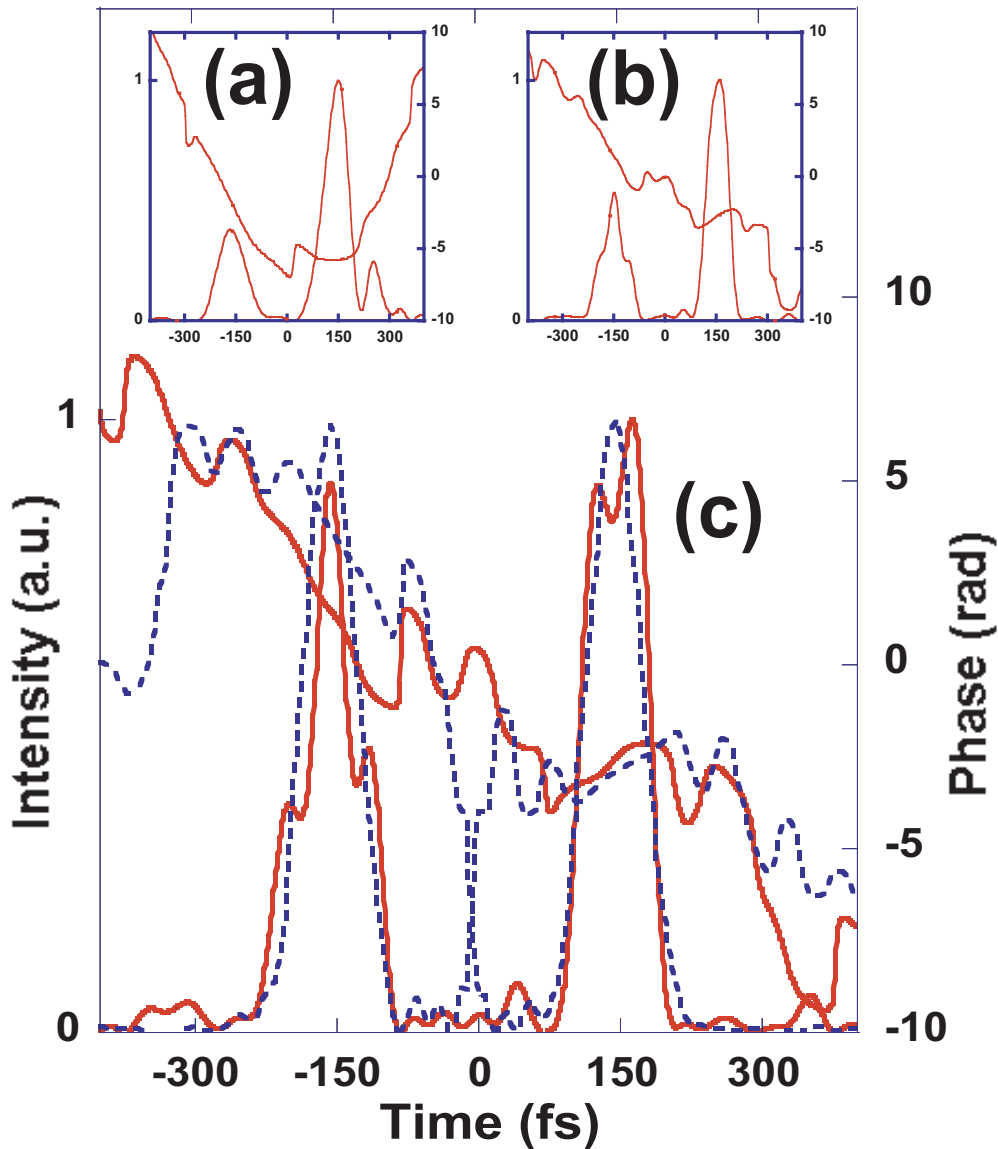


Fig.6.5 (a-c) Double peaked pulse with pulse interval of 300 fs, shaped with spectral phase error correction method referring TADPOLE signal. LC-SLM was rewritten twice from original mask: (a) original, (b) first loop, and (c) second loop. Solid line represents the shaped pulse and dotted line represents the calculated target intensity and phase from given spectrum intensity.

解能が高く，かつ測定可能なスペクトル幅が広いため，Fig. 6.7 (a) の波形では，Fig. 6.5 で見られた振幅の揺らぎが更に低減している．Fig. 6.7 (a) で見られる，150 fs の成分における 2π の位相のズレは位相の 2π 不定性によるものであるので，ターゲット波形と整形波形はかなりの精度で再現されている．本波形は 2 回のマスクの書き換えで得られている．本スキームは誤差を波形整形器に補正することによって，高精度な波形を整形している．Fig. 6.7 (a) の波形を設計するために波形整形器に加えた補正の合計を Fig. 6.7 (b) に示した．このマスクを波形 Fig. 6.7 (c) ，(e)

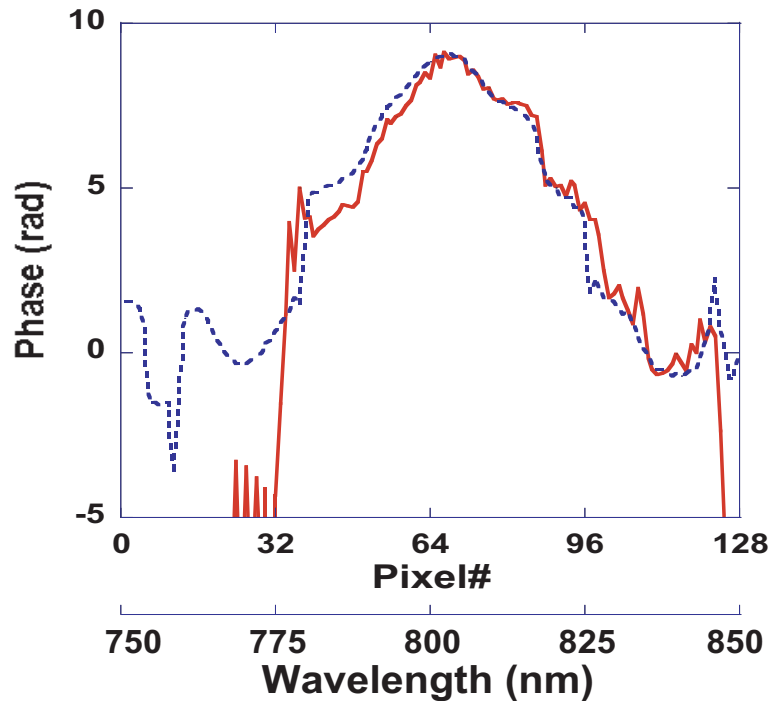


Fig.6.6 Mask functions of target and shaped pulses. Dotted line represents the phase mask function of target pulse and solid line the spectral phase obtained by SI.

の理論的なターゲットマスクに加えた。その結果をそれぞれ Fig. 6.7 (d), (f) に示す。それぞれのパルスを、補正ループを実行した結果と比較するとターゲット波形からの誤差が大きくなっている。これは補正マスクは波形に依存し、補正ループは各設計ターゲット毎に行なう必要があることを示している。

FROG 画像参照適応制御波形整形システムとの精度比較

より定量的に FROG 画像参照適応制御波形整形システムと TADPOLE 参照補正ループシステムの性能を比較するために、それぞれの結果の波形の振幅位相の両方の誤差を評価する。波形を直接比較したのでは、振幅と位相のそれぞれの誤差の重みを均一に評価する事ができない。また位相には 2π 不定性も考慮しなくてはならない。そこで、それぞれの波形をスペクトルグラム表示して評価することにする。スペクトルグラムでは瞬時周波数とその振幅の情報が 2 次元画像として得られる。瞬時角周波数 $\omega(t)$ と位相の関係は

$$\omega(t) = \frac{\partial \phi(t)}{\partial t} \quad (6.5)$$

で与えられるので、スペクトルグラムを用いることで強度と位相を同時に同じ重みで評価可能になる。スペクトルグラムの生成には、与えられた波形に時間窓をかけ、その波形をフーリエ変換することによってその時間窓内の瞬時周波数を求める、短時間フーリエ変換を行なう必要がある。

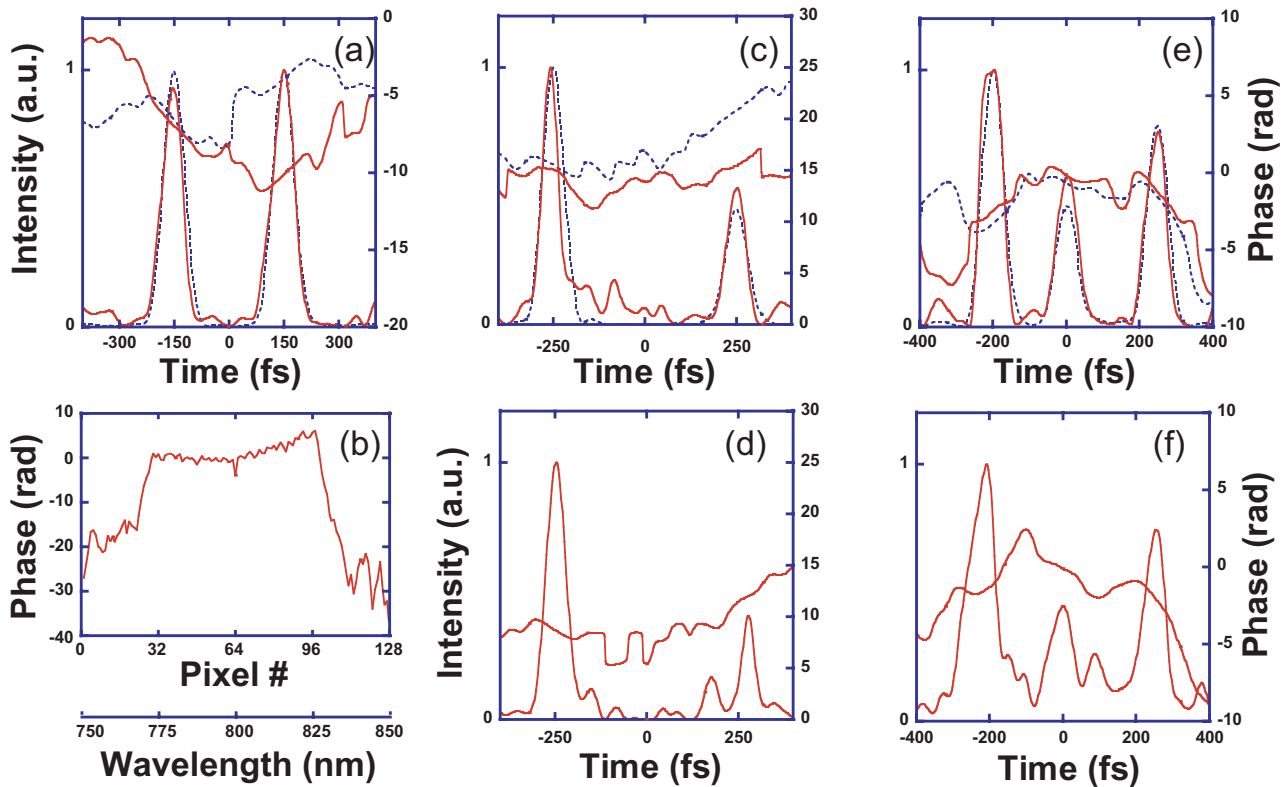


Fig.6.7 (a) Double peaked pulse with 300 fs interval is shaped. Dotted curve represents the target waveform, and solid curve the shaped waveform. The phase mask was rewritten twice. (b) Sum of corrected phase mask function during two correction loops. (c) Asymmetric (1:2) pulses separated by 500 fs is shaped. Dotted curve is target and solid curve is shaped waveform after two corrections. (d) Waveform shaped by applying ideal mask function of (c) on correction mask function (b). (e) Triple peaked pulse is shaped. Pulse positions are (-200 fs, 0 fs, 250 fs) with pulse intensity ratio of (1.0:0.5:0.8). (f) Waveform shaped by applying ideal mask function of (e) on correction mask function (b). (A commercial spectrum analyzer (Advantest: Q83810) is used for this experiment. Wavelength resolution was 0.2 nm, bandwidth was 100 nm and center wavelength was 800 nm.)

ここではスペクトルグラムの時間分解能及びスペクトル分解能を正しく設定するにはどのような時間窓を掛け合わせるかが重要となる。しかし、信号のスペクトル波形が与えられた場合、そのスペクトルのフーリエ限界波形よりも細かい構造を時間波形が取ることはない。そこで、与えられた信号のスペクトル強度から求めたフーリエ限界パルスを窓関数に設定し時間分解能を規定すればよい。

Fig. 5.8 (b) で与えられた、FROG 画像参照適応制御波形整形によって整形された 300 fs ダブルパルスをスペクトルグラム変換し、Fig. 6.8 (b) に示す。また、その際のターゲット波形 Fig. 5.5 (a) のスペクトルグラムを Fig. 6.8 (a) に示す。

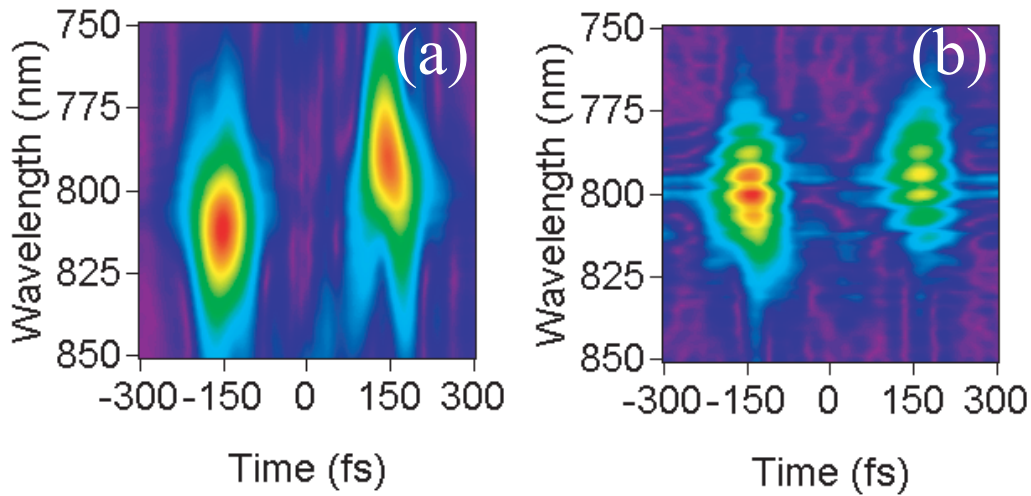


Fig.6.8 (a) Spectrogram from a target pulse for a 300 fs double pulse shaping with FROG referring experiment. (b) Spectrogram from a shaped 300 fs double pulse with FROG referring adaptive experiment.

一方 Fig. 6.5 (c) で示される波形のスペクトルグラムを Fig. 6.9 (b) に , そのときのターゲット波形を Fig. 6.9 (a) に示す .

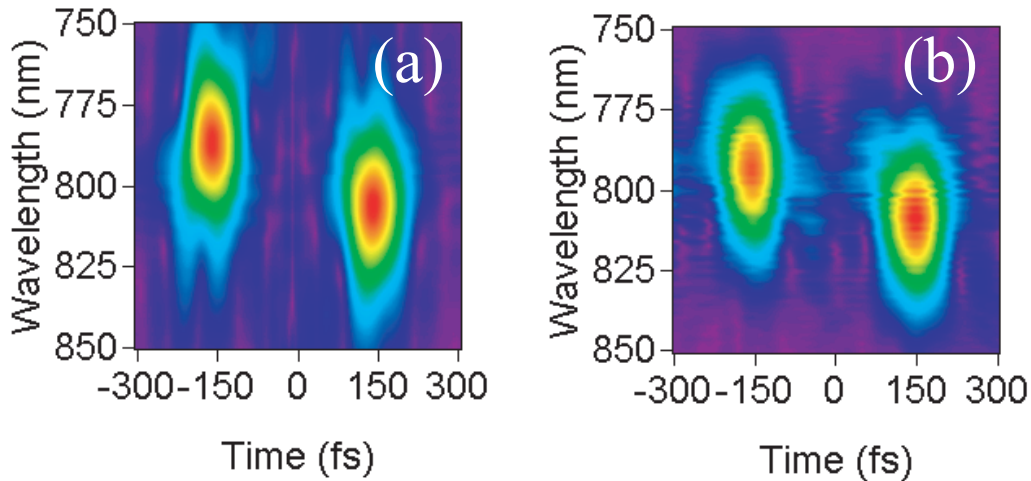


Fig.6.9 (a) Spectrogram from a target pulse for a 300 fs double pulse shaping with TADPOLE referring experiment. (b) Spectrogram from a shaped 300 fs double pulse with TADPOLE referring experiment.

それぞれのターゲット波形からの誤差を評価するために , スペクトルグラムの 2 乗誤差を

$$G(t, \omega) = \left\{ \frac{I_T(t, \omega)}{\sum_{t', \omega'} I_T(t', \omega')} - \frac{I_S(t, \omega)}{\sum_{t', \omega'} I_S(t', \omega')} \right\}^2 \quad (6.6)$$

と定義した．ここで $I_T(t, \omega)$ はターゲット波形のスペクトルグラム， $I_S(t, \omega)$ は整形波形のスペクトルグラムである．

この 2 乗誤差関数を Fig. 6.10 に示した．Fig. 6.10 (a) に Fig. 6.8 で示される FROG 画像参照アダプティブ整形実験の結果得られた波形のスペクトルグラムの誤差，Fig. 6.10 (b) に Fig. 6.9 で示される TADPOLE 位相補正整形実験の結果得られた波形のスペクトルグラムの誤差を示す．本誤差画像はそれぞれの波形整形システムを用いた場合に，時間域・スペクトル域のどこにおいて

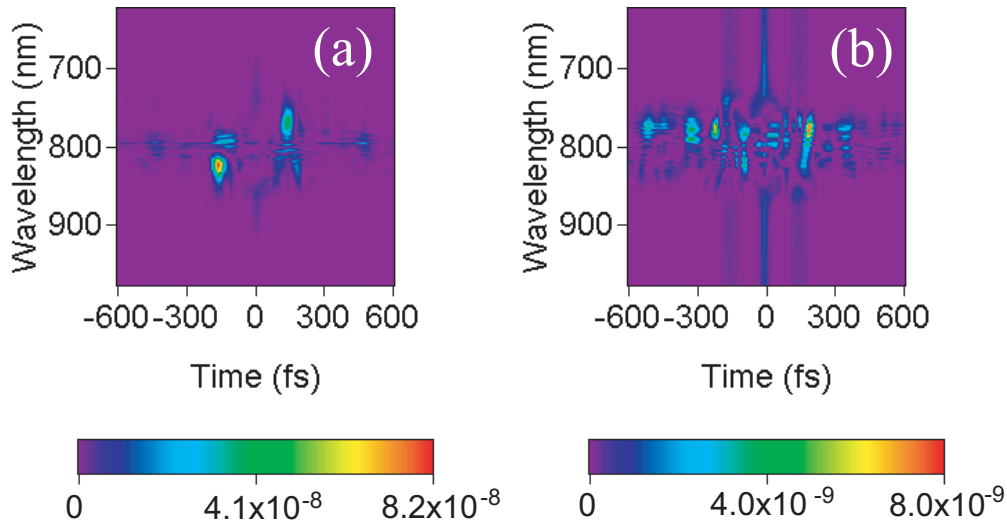


Fig.6.10 (a) The spectrogram error trace between target and shaped pulse of FROG trace adaptive experiment. (b) The spectrogram error trace between the target and shaped pulse of TADPOLE error correction experiment. Note that the intensity scale is about one order different. The experiment were carried out with a 300 fs apart double peaked pulse.

どの程度の誤差が含まれているかを明らかにする．ここで注意すべきは，Fig. 6.10 (a) と (b) で強度バーのスケールが 1 桁以上異なることである．明らかに TADPOLE を参照とした波形整形システムでは整形精度が向上していることがわかる．定量的に評価するために，全ピクセルを和算した $C = \sum_{t, \omega} G(t, \omega)$ という量を定義する．FROG 画像参照適応制御実験では $C = 5.10 \times 10^{-5}$ であり，TADPOLE 測定補正スキームによる実験では $C = 1.11 \times 10^{-5}$ であった．ここで画像サイズ 256×256 pix で時間域は ± 600 fs，波長域 622 nm to 978 nm のスペクトルグラムを用いている．より大きな値の差が得られなかったのは，バックグラウンド成分の和がかなりの部分を占めているからであると考えられる．

分光器の波長校正誤差の及ぼす影響

TADPOLE 参照位相補正実験では，位相をいかに正確に測定するかが重要である事は直感的にも理解できる．SI 測定の正確性がどの程度パフォーマンスに影響を与えるかを示す．特に分光

器の波長校正の問題に着目する．SI 測定に類似する SPIDER 測定に置いて最近分光器の波長校正誤差が重大な測定誤差を生むことが指摘されつつある^{3, 4)}．それは分光器に存在するグレーティングの高次分散の影響であり，それは Fig. 2.2 に示した現象と等価である．この高次分散のために仮に信号光と参照光の位相差が存在しなくても，見かけ上フリンジ間隔が周波数面で等間隔でなくなり，線形チャープが存在するように見える．SI においても分光器の波長校正誤差が存在する場合，参照光の時間遅延を変化させると信号光の位相が線形にチャープするように測定される⁵⁾．その波長校正誤差はわずかであっても測定結果に重大な影響を与える．

本スキームにおいてもスペクトル位相誤差がシステムパフォーマンスに直接影響を与える．問題は，測定器に波長校正誤差があった場合に，本スキームはその誤差を補償する方向に進むのかあるいは誤差を積算させるのかを明らかにする必要がある．

単純なモデルをたて，位相補正スキームの誤差について考察する．ターゲット波形のスペクトル位相を $\Phi_{\text{target}}^{\text{out}} = (\phi_0, \phi_1, \phi_2, \phi_3, \phi_4, \dots)$ と離散化して定義する．初期入力パルスはフーリエ限界パルスと仮定し， $\Phi_0^{\text{in}} = (0, 0, 0, 0, 0, \dots)$ とする．TADPOLE によって測定されるスペクトル位相を Φ^{out} とし，測定毎に微小なカリブレーションエラーに起因する誤差が加わるものとする．この誤差をスペクトル n の位相 ϕ_n に位相誤差 $\Delta\phi_{n+1}$ を加わるものとモデル化した．また，初期整形マスクは $\Phi_1^{\text{in}} = (\phi_0, \phi_1, \phi_2, \phi_3, \phi_4, \dots)$ と表す．

本モデルを適用すると 1 回目の TADPOLE 測定によって得られるスペクトル位相は，

$$\Phi_1^{\text{out}} = \begin{pmatrix} \phi_0 \\ \phi_1 + \Delta\phi_0 \\ \phi_2 + \Delta\phi_1 \\ \phi_3 + \Delta\phi_2 \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (6.7)$$

となる．モデルを単純化するために，CPA の分散は考慮しない．補正ループは $\Phi_1^{\text{out}} - \Phi_{\text{target}}^{\text{out}}$ を Φ_1^{in} から減算する．

そのため 2 回目の入力パルスのスペクトル位相は $\Phi_2^{\text{in}} = (\phi_0, \phi_1 - \Delta\phi_0, \phi_2 - \Delta\phi_1, \phi_3 - \Delta\phi_2, \dots)$ となる．再び，測定される位相は波長校正誤差によって

$$\begin{aligned} \Phi_2^{\text{out}} &= \begin{pmatrix} \phi_0 \\ \phi_1 - \Delta\phi_0 + \Delta\phi_0 \\ \phi_2 - \Delta\phi_1 + \Delta(\phi_1 - \Delta\phi_0) \\ \phi_3 - \Delta\phi_2 + \Delta(\phi_2 - \Delta\phi_1) \\ \vdots \end{pmatrix} \\ &\approx \begin{pmatrix} \phi_0 \\ \phi_1 \\ \phi_2 - \Delta^2\phi_0 \\ \phi_3 - \Delta^2\phi_1 \\ \vdots \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (6.8)$$

だけ変化する．ここで誤差は $\Delta(\phi_a + \Delta\phi_b) \simeq \Delta\phi_a + \Delta^2\phi_b$ と線形演算可能であると仮定した．位相誤差項 $\Delta^2\phi_n$ が， $\Delta\phi_n$ と比較して小さい場合には，2 回目のループにおける整形パルスの特クトル位相 Φ_2^{out} のターゲットスペクトル位相からのズレは，1 回目のループにおける整形パルスのスペクトル位相 Φ_1^{out} における場合よりも小さくなる．しかしながら，本補正ループを繰り返していく場合には本誤差は単純に減少するわけではない．3 回目のループにおける出力パルスの位相は，

$$\Phi_3^{\text{out}} \simeq \begin{pmatrix} \phi_0 \\ \phi_1 + \Delta\phi_0 \\ \phi_2 + \Delta\phi_1 + \Delta^2\phi_2 \\ \phi_3 + \Delta\phi_2 + \Delta^2\phi_3 + \Delta^3\phi_4 \\ \vdots \end{pmatrix} \quad (6.9)$$

と表される．明らかに，ターゲット位相からの誤差は 2 回目のループにおける誤差よりも大きくなっており，さらに 1 回目のループにおける誤差と比較しても悪化する．

本モデルは実験結果と一致する．Fig. 6.11 は補正ループ毎に示した整形パルスの波形を示す．ターゲット波形にはフーリエ限界パルスを設定した．はじめに SI に用いる分光器の波長対 CCD のピクセルの波長校正を 0.1436 nm/pixel とした．このときのループ毎のパルスの整形の様子を Fig. 6.11 (a) に示す．一方，より正確な波長校正值 0.1336 nm/pixel を用いた場合のループの様子を Fig. 6.11 (b) に示す．本実験では SI 分光器の波長校正は以下の手順で行なった．はじめに大まかに CCD のピクセルと波長の関係を商用のスペクトルアナライザを用いて波長校正した．このカリブレーションでは 0.01 nm の分解能までしか正確に求まらない．0.001 nm の波長分解能は実際にループを実行して求めた．波長校正值をわずかにずらすと Fig. 6.11 (b) で示されるように非常に安定した値を発見することができる．

わずかな位相誤差はモデルから明らかのように中心周波数からスペクトルの端に向かって発展していき，周波数の裾では積算される．そのため，波長校正值が誤っている場合には 3 回ループを行なう Fig. 6.11 (a) で示されるようになりにターゲット波形からずれる．分光器が 0.1346 nm/pixel と波長校正された場合でも，明らかな波形の乱れが観測される．

このように，本手法においては分光器の波長校正は非常に重要な問題であり，慎重に行なう必要がある．

6.3.3 本節のまとめ

本節では，位相変調のみによる TADPOLE 測定位相誤差補正スキームによる再生増幅器前置き型波形整形システムについて述べた．わずかに数回マスクを書き換えるのみで，ターゲット波形に非常に近い波形を得ることができた．また，TADPOLE 参照による分光器のアライメントのもたらす技術的な問題点を指摘することで，本システムを実装する際の注意点を明らかにした．さらに，TADPOLE 参照による実験結果を FROG 参照適応制御波形整形実験と比較することによっ

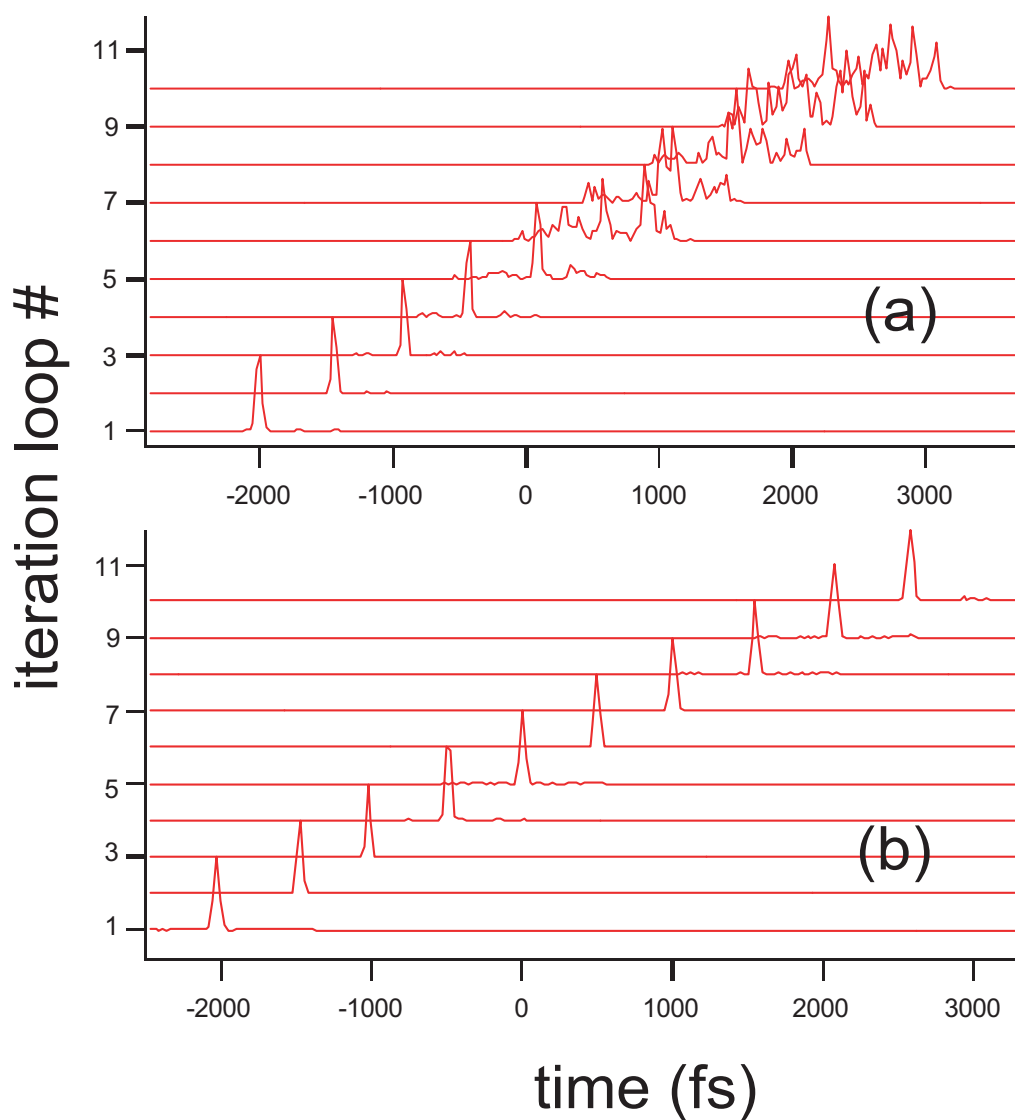


Fig.6.11 (a) The pulse shape evolution in respect to the iteration number when the spectrometer is slightly miss-calibrated. (b) The pulse shape evolution in respect to the iteration number when the calibration of the spectrometer is almost perfect. Target pulse is a transform-limited pulse.

て、TADPOLE スキームによる精度向上を示した。

6.4 AOPDF を用いた振幅位相補正による閉ループ波形整形システム

6.4.1 実験セットアップ・原理

実験セットアップ

実験セットアップは、波形整形器に AOPDF を用いる以外は Fig. 6.2 と同一である。但し、TADPOLE 測定法を用いるスキームでは $4f$ 波形整形器を用いる場合に対して多少の注意が必要である。AOPDF には Fig. 2.30 で示されるように、時間ジッターが存在するために、パルス毎にフリンジが揺れる。そのため、SI はシングルショット計測する必要がある。SI に用いる CCD は再生増幅器の 1 kHz の信号と同期を取り、1 パルスを計測する必要がある。実際には SN を向上させるために複数ショットを測定したいが、フリンジデータのまま信号を積算することはできない。そこで、ショット毎 (毎回のデータ取り込み毎) にフリンジから波形を再構築し、そのスペクトル振幅と位相を保持する。次のショットにおいては再び FFTM によって波形を再構築する。その再構築された波形を前回保持しておいた波形と平均化する。この際にスペクトル位相の取り扱いに注意する必要がある。スペクトル位相の定数倍の変化は包絡線内の CEP のスリップに対応するが、ここではその精度で議論しないので無視できる。そこで、スペクトル位相の定数倍の変化はキャンセルした後に平均化する。

一方、スペクトル位相の傾きは時間遅延であるがこの時間遅延もキャンセル可能である。ただしこのキャンセルの取り扱いは注意が必要である。位相の傾きをキャンセルすることは即ちレーザのジッターを無視することに対応する。多くのコヒーレント制御では、パルス毎での現象を問題にする。つまり、レーザシステムの繰り返しでは現象は閉じている。ジッターが問題になるのはレーザからの出力パルスの一つ前のパルスとのコヒーレンスを議論する場合にほぼ限られるが、こうした応用は今のところほとんど見あたらない。一般にはジッターの情報が含まれるスペクトル位相の時間遅延はキャンセルしても良い。ただし、レーザシステムからの繰り返しで出力する 1 パルスを、ポンプとプローブの 2 つに分け、ポンププローブ実験に用いる場合では状況が異なる。ポンプ光とプローブ光のコヒーレンスが重要な多くの分子制御実験においては波長の周期のジッターでさえも致命的と成りかねない。例えばポンプのみを AOPDF を用いて波形整形することはできない。こうした場合には、時間遅延をキャンセルして測定することは妥当ではない。ただし本研究では AOPDF のジッターはレーザシステムの繰り返しにしか影響を与えないので、位相を積算する際には位相の傾きを 0 とした。位相 0 及び傾き 0 とする点は代表値として中心波長とする。

振幅位相補正スキーム

位相のみ変調した場合には，増幅器内での時間振幅波形は摂動を受けるだけである．それは，パルスストレッチャーで大きな正分散が加わるので，スペクトルが時間にマッピングされるからである．位相の変調量が限られている場合には，CPA は位相に関して線形伝搬する．

しかしながら，スペクトル振幅に複雑な変調を加えることは，共振器内での時間波形を大きく変化させることになるので，一般には増幅器を線形システムと仮定した制御法は用いることができないと思われていた．増幅器内での支配的な光学非線形効果は SPM であり，その効果は Eq. (4.3) に示されるように急峻な時間振幅の変化を示す時，スペクトル位相を変調する．SPM の効果はスペクトル位相に現れる．本研究ではこの効果のことを AM-PM 変換と呼ぶことにする．

増幅器内で時間波形が変化すると，スペクトル位相は CPA への入力スペクトル波形に依存して，非線形に変化する．しかしながら，スペクトル位相は多少の非線形性が存在するもののほぼ線形伝搬するので，振幅変調によって変化を受けたスペクトル位相は独立にスペクトル位相の補正が行えるはずである．結果，振幅変調によって擾乱された位相成分は線形補正を行える．

そこで，振幅位相補正スキームとして，以下のシステムを構築する．位相は Eq. (6.2)-(6.4) に示す手順によって補正する．振幅補正は，ターゲット振幅を $A_{\text{target}}(\omega)$ ， n 回目に波形整形器に加えるマスクを $A_{\text{mask}}^n(\omega)$ ， n 回目に測定される振幅を $A_{\text{measure}}^n(\omega)$ とすると， $n+1$ 回目に補正すべき誤差は， $A_{\text{err}}^{n+1}(\omega) = A_{\text{target}}^n / (A_{\text{measure}}^n + \Delta)$ である．ここで Δ は測定されたスペクトル A_{measure}^n の裾の部分において値が無限大に発散しないためにわずかに加えている定数項である． $n+1$ 回目に加えるマスク関数は $A_{\text{mask}}^{n+1}(\omega) = A_{\text{mask}}^n(\omega) A_{\text{err}}^{n+1}(\omega)$ である．

6.4.2 実験結果及び考察

シード光の振幅変調・位相変調の及ぼす影響

はじめに増幅器前置き型波形整形システムの位相変調及び振幅変調の及ぼす影響について考察するために以下の実験を行なった．今ターゲットスペクトル波形を Fig. 6.12 (a) に示す．Fig. 6.12 (b) にターゲットスペクトル波形の時間波形を示す．はじめにこのターゲット波形のスペクトル振幅のみを取り出して波形整形器に加えた．その結果が Fig. 6.12 (c) , (d) である．振幅のみを波形整形器に加えているので理想的には位相はフラットのまま変化しないはずである．実際には AM-PM 変換による位相変調が観測され，その量は中心波長付近では，0.3 rad 程度，スペクトルの裾では 0.4 rad から 0.5 rad の大きさである．一方 Fig. 6.12 (e) , (f) に示すのが位相のみを波形整形器に加えた際の増幅器後に得られるスペクトル強度及び時間波形である．スペクトル振幅に変調が加わるのは波形整形器の有限の時間窓の影響による．スペクトル位相には 2π 不定性は観測されるものの，位相の急峻な変化が良く再現されている．

Fig. 6.12 (c) , (d) に示す結果は増幅器前置き型波形整形システムにおいて AM-PM 変換が起き

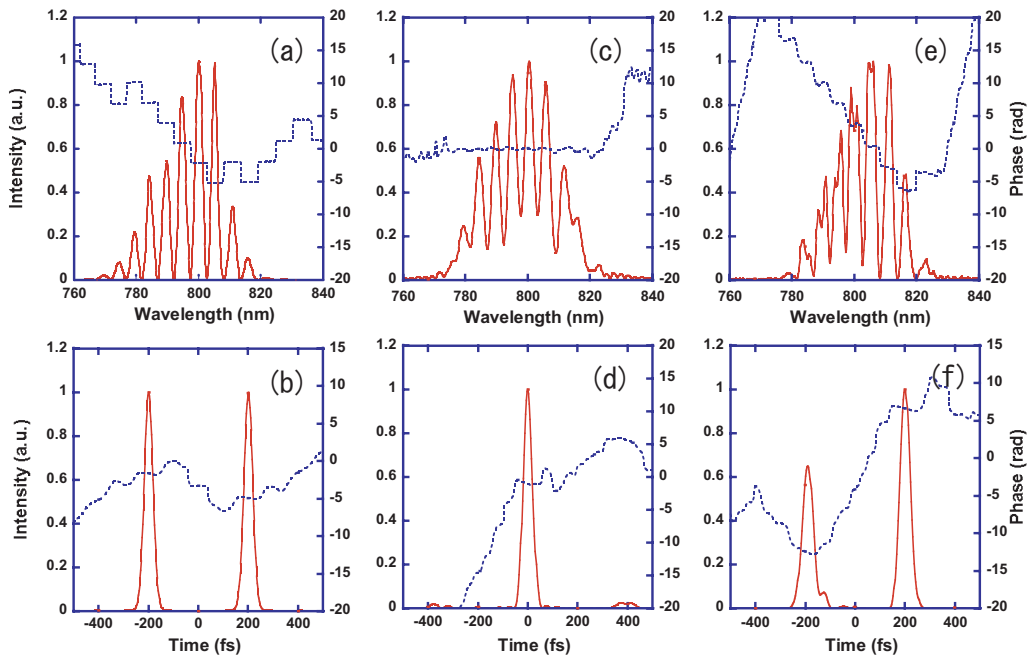


Fig.6.12 Phase modulation only and amplitude modulation only experiments to analyze the CPA transmission function by measuring the output pulse. (a) Target spectrum; (b) Target waveform; (c) Shaped spectrum when only the amplitude is compensated for; (d) Temporal waveform of (c); (e) Shaped spectrum when only the phase is compensated for; (f) Temporal waveform of (e).

るもののその量は位相を 0.3 rad 変調する程度である．そのことから、振幅位相の補正スキームが目的に添った動作をすることが期待される．

300 fs ダブルパルス設計

振幅と位相の両方を整形することによって 300 fs のダブルパルスを設計した．実験結果を Fig. 6.13 に示す．わずか 2 回マスクを書き換えるのみで Fig. 6.13 の波形が得られた．位相のみのフィードバック制御と比較しても書き換え数はほとんど変化ない．それは AM-PM 変換が Fig. 6.12 (c), (d) で示されるようにそれほど大きくないことと、その位相変調は位相の線形補正によって補正されるからであると考えられる．AM-PM 変換による位相のズレは 2 回目のループにおいてかなり精度良く補正される．

再生増幅器利得狭窄化が補償された 300 fs ダブルパルス設計

振幅変調を加える利点の一つには Fig. 5.25 に示したように、シード光のスペクトル振幅を整形することによって、増幅器の利得狭窄化の補償をおこなえる点がある．そこで、本実験では利得狭窄化の補償を行ないつつ、同時に波形整形を試みる．整形結果を Fig. 6.14 に示す．細線で示しているのは、スペクトルの狭窄化の補償を行なわない時の整形波形である．スペクトルの狭窄

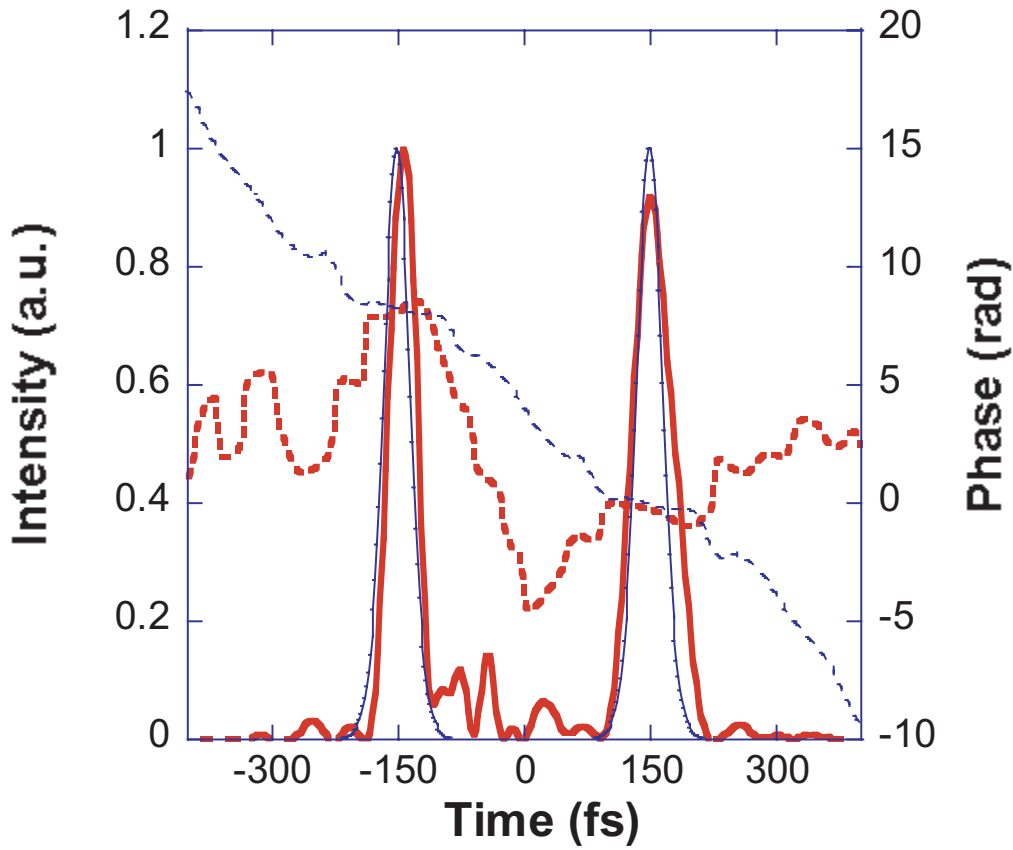


Fig.6.13 Double pulse shaping experiment by modulating both amplitude and phase at the pulse shaper. The error in the shaped pulse from the target pulse is corrected by the scheme described in the text. Thin line represents the target pulse. Thick line represents the shaped pulse. Pulses are shaped in two loops.

化の補償を行っていないパルスと比較するとダブルパルスの各パルスのパルス幅が短くなっていることがわかる。ピーク強度の非対称性はスペクトル振幅が左右非対称に広がったためであり、そのフーリエ変換であるダブルパルスの時間強度波形が非対称に得られた。Fig. 6.15 にダブルパルス実験のターゲット波形及びマスク関数を表示する。Fig. 6.13 の波形のターゲットスペクトル振幅及び位相が Fig. 6.15 (a) に示されており、その波形を得るために AOPDF で加えた振幅及び位相マスクが Fig. 6.15 (b) である。Fig. 6.15 (c) には CPA の利得狭窄化を補償するときのターゲットスペクトル振幅及び位相、Fig. 6.15 (d) には Fig. 6.14 が得られたときのマスク関数を使用している。Fig. 6.15 (d) のマスク関数から波形整形器が、ダブルパルスを整形すると同時に、シード光の中心波長付近の透過率を低下させることによって、再生増幅の利得狭窄化を補償していることがわかる。本補正ループスキームによって、振幅位相の両方が効率的に整形可能であることが示された。

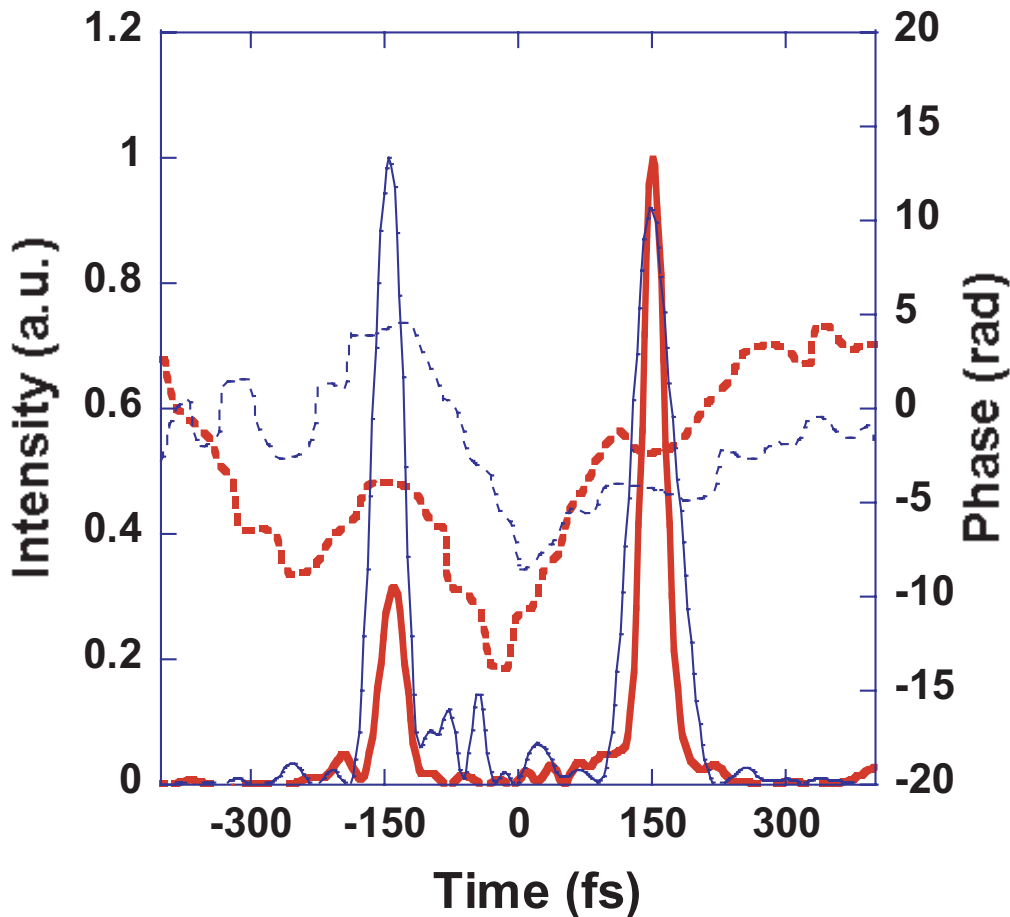


Fig.6.14 A 300 fs double pulse shaping with amplitude and phase modulation. The thick line represents the shaped double pulse with gain narrowing compensated. The thin line represents a shaped pulse with a normal bandwidth as in Fig. 6.13. The pulse width (FWHM) of the left and right hand side pulse of the thin line are, 39.1 fs and 56.7 fs respectively, while the pulse width (FWHM) of the thick line are 33.2 fs for left and 30.2 fs for right pulse.

2 波長 300 fs ダブルパルス設計

次に中心波長の異なるダブルパルスの設計を示す．直感的に理解しやすいようにスペクトルグラム表示する．ターゲット波形を Fig. 6.16 (a) に，整形波形を Fig. 6.16 (b) に示す．中心波長の異なるダブルパルスが精度良く得られる．Fig. 5.23 と比較して，ピーク強度の比が若干正確に得られていることがわかる．しかし，それでもなお，非対称性が観測されるのは，スペクトル振幅を変調すると，増幅器の非線形性が大きく，左右のスペクトルの広がりターゲット波形からずれるからである．一般にスペクトル振幅を複雑に変調した場合には，本補正スキームを用いた場合でも，スペクトル振幅の非対称性によって，時間強度波形に非対称性が観測されるようになる．

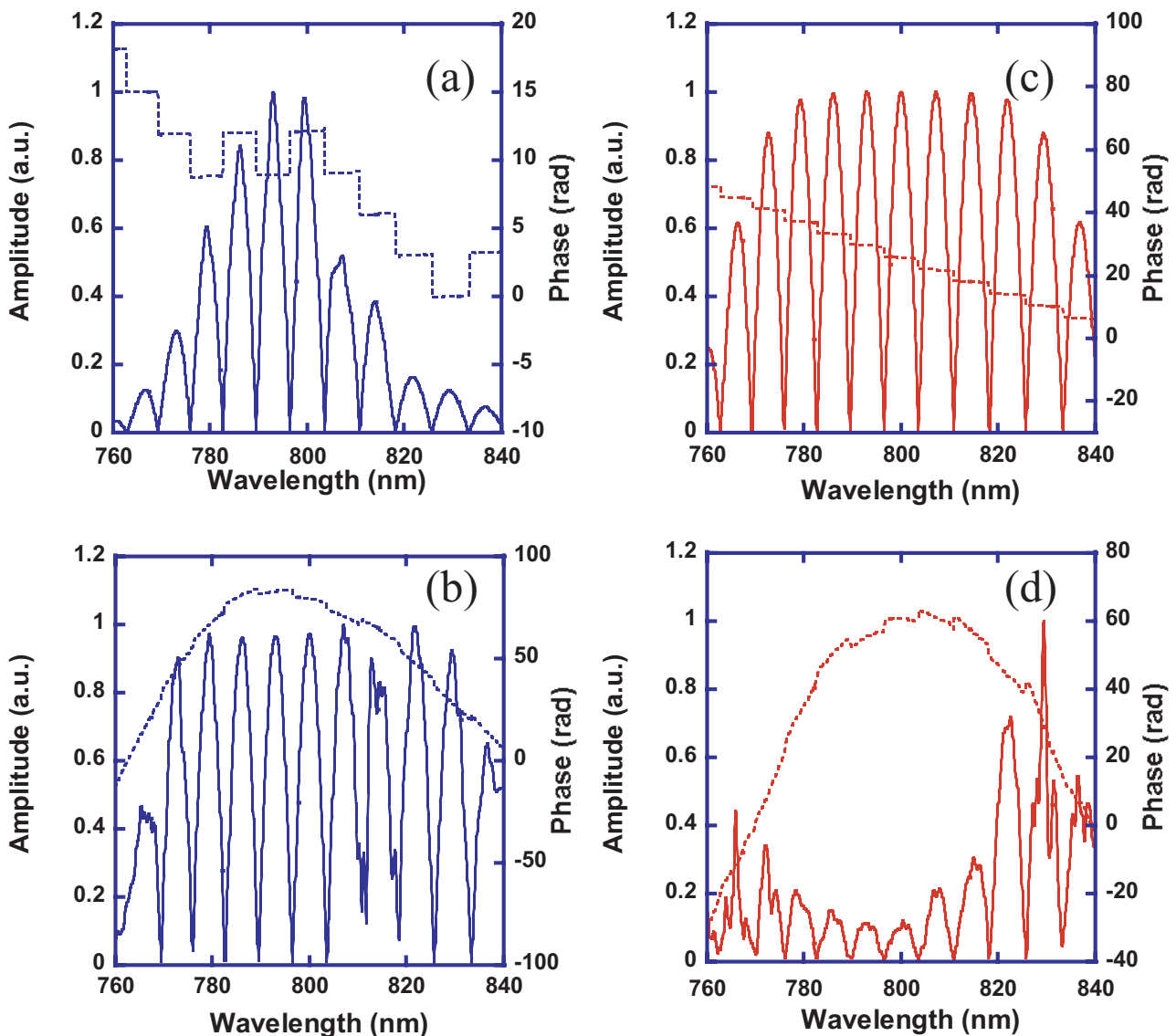


Fig.6.15 (a) The amplitude and phase mask function of the target pulse. Target pulse is a ordinal double pulse; (b) Mask function applied to the AOPDF after two iterations corresponding to (a); (c) The amplitude and phase mask function of the target pulse. Target pulse is a broad bandwidth double pulse; (d) Mask function applied to the AOPDF after two iterations corresponding to (c).

コヒーレント制御応用に向けた再生増幅器前置き型振幅位相高精度波形整形実験

ここでは、本システムを用いた高精度波形整形システムの実行例を示すため、波長域及び時間域で複数のピークを持ち、その両方の軸に細かい構造を持つ複雑なターゲット波形の設計例を示す。実験結果を Fig. 6.17 に示す。スペクトルの細かい構造まで綺麗に再現されることがわかる。こうした複雑なターゲット波形が設計できるのは、振幅及び位相の両方を任意に整形可能である

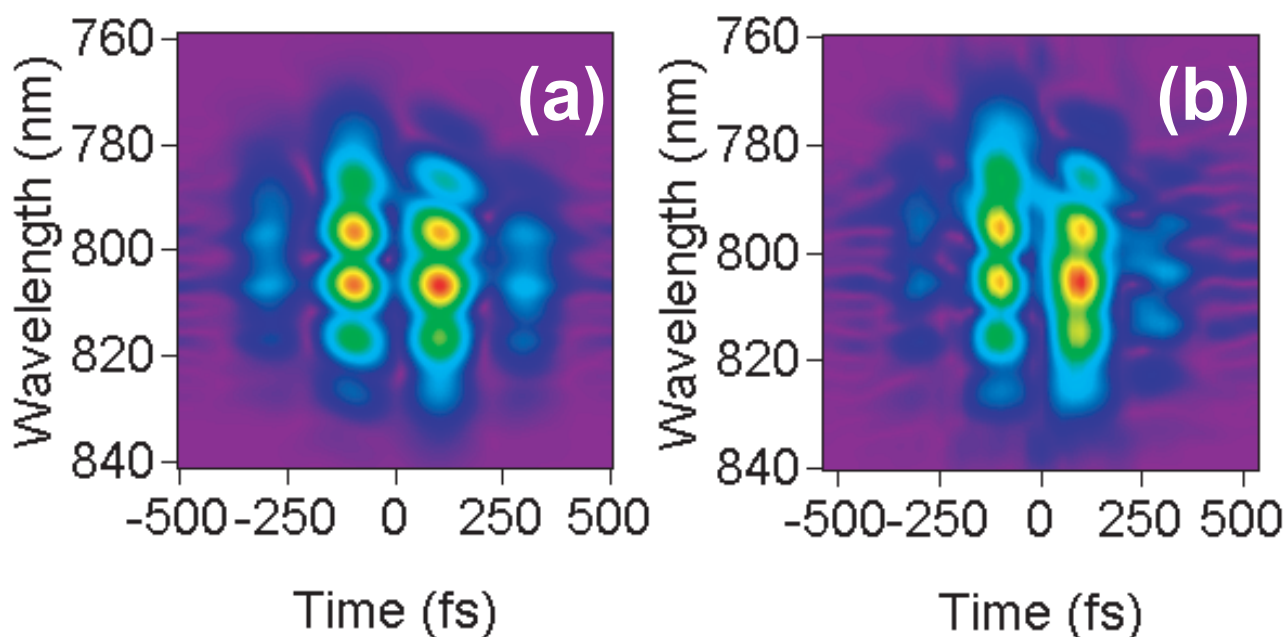


Fig.6.16 (a) and (b) are spectrograms of the target and shaped pulses. The center wavelength differs by 10 nm and the pulse interval is 300 fs. The shaped pulse was obtained in two loops.

からである。Fig. 6.17 (c), (d) は数 ps のパルス幅を持ち、振幅は ~ 100 fs で振動している。これは本研究で求めているシステム性能の ~ 10 fs 間では到達しないものの、これまでの波形整形実験中で最も複雑な波形整形例である。本システムは、時間周波数積の大きい複雑なターゲット波形を増幅器後に高精度に再現する能力を有していることが本実験結果から言える。

6.4.3 本節のまとめ

本節では、AOPDF 波形整形器を用いた増幅器前置き型波形整形の振幅位相変調実験をおこなった。ターゲット波形からの誤差を補正信号として用いて、波形整形器に補正マスクを加えた。波形整形器に加えるマスクは約 2 回更新することによってターゲット波形にかなり近い波形がえら得られることがわかった。こうした高速な収束性やリアルタイム性は、超高速コヒーレント制御において、あるパラメータのみを変化させたような光パルスを連続して欲しい場合に特に有効である。さらに、超高速コヒーレント制御で理論的に計算された波形を用意し、その波形を用いて物質の励起を偏在化できればインパクトは大きい。例えば分子制御では、OCT 等の量子化学計算によって振幅位相が複雑に変調され、その精度は数 ps で数 10fs の波形が理論的に要求されている。本システムは振幅位相の両方を整形でき、十分な時間窓を持ち、数 100 fs の精度で整形することができる。チャレンジングな目標である理論波形を実験室内で再現するためには、さらなる、波長領域の拡大、時間分解能の向上などが課題として挙げられるが、本システムを用いると、

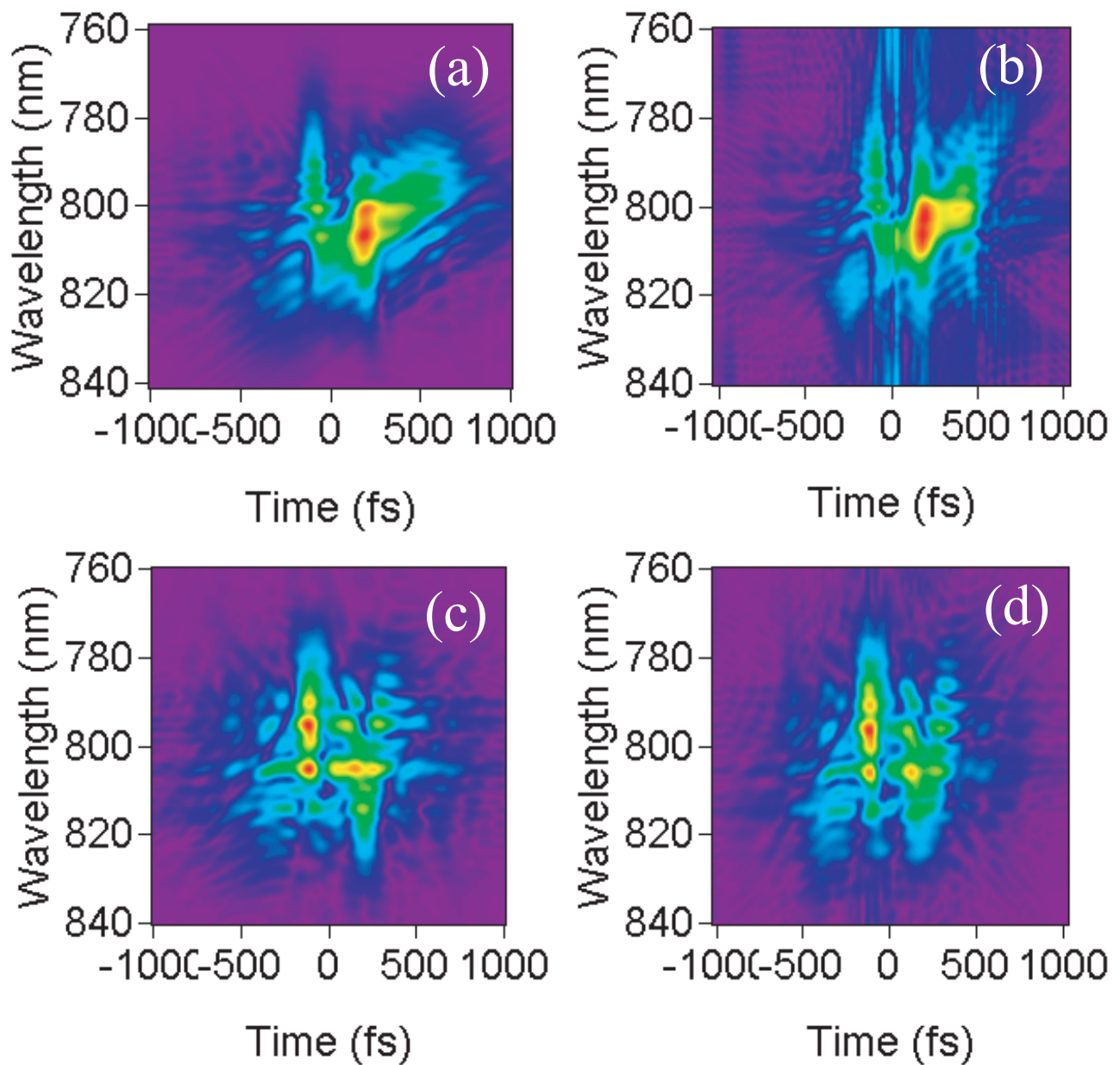


Fig.6.17 (a) and (c) are spectrogram of the target complex pulses; (b) and (d) are spectrograms of the shaped pulses obtained in two loops. (b) corresponds to (a) and (d) corresponds to (c).

最も複雑で高精度な振幅と位相の両方が整形された波形を得ることができる。

6.5 本章のまとめ

本章では TADPOLE 測定手法を用いて、誤差信号を波形整形器に補正するスキームのシステムを構築した。本システムを用いて数回マスクを更新することによって高速に整形波形が得られる

事を示した。ここで示した高速性，リアルタイム性は超高速コヒーレント制御に整形波形を用いる場合に重要である。特に，ターゲットのハミルトニアンが不明であり，様々な光波形を照射して，それぞれでの応答を調べることによって物質のハミルトニアンを明らかにする実験では，目的波形を高速に得たいであろう。

また，位相変調のみではターゲットとして選択可能な波形に限られる。そこで本システムの高速度・高精度という性質を保ったまま，振幅変調を加えられる事が望まれる。振幅及び位相の両方を変調することによって，ターゲット波形としてより自由度の高い波形を選択可能になる。そこで，振幅位相の変調を行なうために AOPDF を用いて，時間周波数積が大きい複雑な波形を設計できることを示した。本波形整形システムを用いて，実際に得られた波形のスペクトルグラムはターゲット波形のスペクトルグラムとほぼ同一であった。この整形波形は約 1 ps の時間窓，時間振幅は ~ 100 fs で変化する非常に複雑な波形であり，こうした振幅位相整形は今後の超高速コヒーレント制御応用において特に重要である。

参考文献

- [1] D. N. Fittinghoff, J. L. Bowie, J. N. Sweetser, R. T. Jennings, M. A. Krumbügel, K. W. DeLong, and R. Trebino, “Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses”, *Opt. Lett.*, **21**, 884–886, (1996).
- [2] S. Kane and J. Squier, “Fourth-order-dispersion limitations of aberration-free chirped-pulse amplification systems”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**, 1237–1244, (1997).
- [3] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. D. Silvestri, and O. Svelto, “Adaptive pulse compression to 3.7 fs of a cascaded hollow fiber supercontinuum”, In *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2003)*, Technical Digest, Postconference Edition, (Optical Society of America, Washington DC), CFI3, (2003).
- [4] C. Dorrer and I. A. Walmsley, “Accuracy criterion for ultrashort pulse characterization techniques: application to spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 1019–1029, (2002).
- [5] C. Dorrer, “Influence of the calibration of the detector on spectral interferometry”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**, 1160–1168, (1999).

第 7 章

波形整形システムの光プロセス及び超高速コヒーレント制御への応用

7.1 はじめに

本章では、フェムト秒レーザー増幅器前置き型波形整形システムの光プロセス及びコヒーレント制御への応用例を示す。

はじめに、増幅器前置き型波形整形システムを用いて Si 基板への光プロセス応用を述べる。SI を応用することで、全コンピュータ制御で、機械的な操作をすることなしに周期加工パターンを変化させる光プロセスを実現した。

次に、増幅器前置き型波形整形システムを用いた閉ループコヒーレント制御の応用として、閉ループ制御による蛍光色素の蛍光強度の最適化実験を示す。蛍光は光パルスが通り過ぎた後の励起された電子から放出される自然放出光なので、その光強度を最大化する様な励起光パルス波形を探索するということは、光が通り過ぎた後の物質の終状態が最も励起されている最適励起光パルス波形を探索する事に他ならない。コヒーレント制御に波形整形を用いる場合、空間プロファイルが各パルス毎に変化してしまうのでは時間空間の影響が励起に影響を与えてしまい、問題が複雑化する。しかし、本研究で構築した増幅器前置き型波形整形システムを用いると、ビームプロファイルを一定に保ったまま波形整形が行えるので、時間域の効果のみを考察することが可能である。一光子吸収と多光子吸収励起最適化実験を行ない、その最適励起時間波形を考察することによって、励起過程の物理を明らかにすると共に、こうした実験に本システムが用いることができる事を示す。

最後に、増幅器前置き型波形整形システムを用いた高強度光電場中でのエタノール分子の光解離反応制御実験を行なう。本実験でははじめにチャープ変化による光解離反応依存を調べ、簡単な物理モデルを構築する。物理モデルとの対応関係を考慮しつつ、チャープの係数を変数とした適応制御実験、及びスペクトル位相を 128 ピクセルを用いて制御した適応制御実験を行なう。

7.2 周波数制御による Si 表面の周期パターン光プロセス応用

7.2.1 はじめに

AOPDF による超短光パルス制御技術を用いた光プロセス応用を行なった。

フェムト秒レーザーパルスを用いたアブレーションなどの光加工は光プロセスの可能性を広げている。フェムト秒レーザーを用いて、透明物質の内部改質や、金属・誘電体の表面のアブレーション加工が行える。フェムト秒レーザーのパルス幅が誘電体物質の熱拡散時間よりも短いために、非常に綺麗な熱的損傷の少ない加工断面を得ることができる^{1, 2)}。フェムト秒レーザー加工はフェムト秒レーザー技術の中でも近年特に産業界から注目されている。例えば、多光子吸収を用いると透明誘電体物質中にサブマイクロ領域の回折限界よりも小さな微細加工を施すことができる事に着目したマイクロリアクター作成技術応用³⁾、多光子吸収ポリマー化を利用した微細 3 次元形成⁴⁾を利用したフォトニック結晶作成技術応用⁵⁾等、研究が盛んに行なわれている。

また、近年サファイヤ基板やダイヤモンド内に周期構造を持つホログラフィックを形成した報告がなされている^{6, 7)}。この報告では光の空間的な干渉効果を用いているので、2 つのビームの入射角度を変化させたり、一方の波面を整形することによって周期構造を変化させている。

もし、機械的に光軸を動作させることなしに周期パターンを変化させることができれば、安定性が高い機能的な光プロセスシステムを構築することができる。そこで、本節では波形整形器を用いると、機械操作なしに機能的にフリンジの周期パターンを変化させることができることに着目し、波形整形技術を光プロセスに応用する。しかし、加工応用に用いる光強度で波形整形器を直接使用したのでは波形整形器が光学的に損傷してしまう。そこで、本研究で構築した増幅器前置き型波形システムを用いる。

波形整形器には AOPDF を用いて、AOPDF でスペクトル振幅変調を加える。光加工はフーリエ面で行なうために、周波数整形がそのまま周期パターンの加工として転写される。

7.2.2 原理及び実験セットアップ

実験システムを Fig.7.1 に示す。波形整形器には AOPDF を用いて、スペクトル振幅位相変調を加えた。AOPDF において時間的ダブルパルスを整形することによって増幅器後のスペクトルにフリンジパターンを得ることができる。2 つのパルスの遅延及び位相差は AOPDF の音響波を設計することによって変化させた。SI 装置を改良し、そのフーリエ面にサンプルを配置した。SI は $f = 20$ mm のフーリエレンズ、グレーティングにはブルー周期 $d^{-1} = 600$ line/mm を用いて、入射角 8° 、回折角 55.17° に設置した。SI への入射ビーム径が 3.07 mm、スペクトル幅が 30 nm の時にサンプル上でのスポットサイズは 2.42 mm \times 4.6 μ m となる。入射パルスエネルギーが 0.5 mJ の時にフーリエ面でのフルエンスは 4.5 J/cm² となり、Si ターゲットのアブレーション

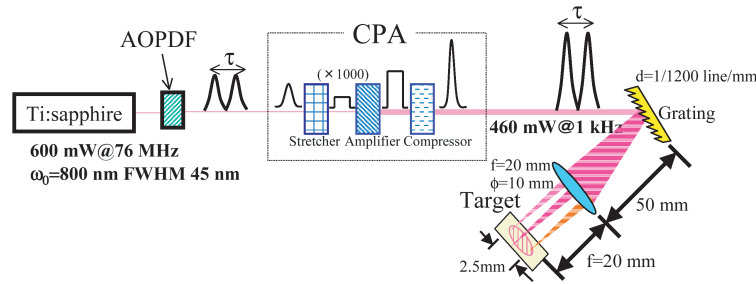


Fig.7.1 Schematic of experimental setup. Spectral interference of pair of pulses generated by AOPDF on sample placed at Fourier plane in SI setup.

閾値を超える．Si のアブレーション閾値は，25 fs の時に 0.17 J/cm^2 ，400 fs で 0.28 J/cm^2 である⁸⁾．

フーリエ変換レンズにおいて f - f の構成をとるのは，焦点距離が短いレンズを用いたために簡単ではない．しかし，レンズからサンプル表面までの距離がレンズの焦点距離 f に保たれていれば，グレーティングとレンズ間の距離は自由に設定してもかまわない⁹⁾．本実験セットアップではグレーティングとレンズ間の距離は 5 cm とした．

はじめにフーリエ面での光電界の時間空間表示を行なう．サンプル表面での光電界表示は SI が $4f$ 波形整形器と似た光学構成を取ることを考慮すると，§ 2.2.2 (p. 52) で導いた手法をそのまま用いることができ，

$$e_{\text{samp}}(x, t) = -\frac{2\pi}{\sqrt{\beta\lambda f}} \int \tilde{E}_{\text{in}} \left(\frac{2\pi x}{\beta\lambda f} + \frac{\gamma\Omega}{\beta}, \Omega \right) d\omega \quad (7.1)$$

と示される．ここで変数は § 2.2.2 (p. 52) たものと同一である．従ってサンプル表面での空間プロファイルは

$$I(x) = \left[\int_{t=0}^{t=T} e_{\text{samp}}(x, t) dt \right]^2 \quad (7.2)$$

で表される．また Eq. 7.1 の $k = 2\pi x/\beta\lambda f + \gamma\Omega/\beta$ の関係式より，

$$x = \frac{\lambda f}{2\pi} (\beta k - \gamma\Omega) \quad (7.3)$$

が導出される．この式はサンプル表面でのスペクトル分解能を与える．スペクトル分解能は本スキームの光プロセスにおける空間分解能に対応する．そこでスペクトル分解能を向上させると，サンプルのある点における入射スペクトル幅が狭まる．フーリエ変換の関係 (Eq. (1.1)) を思い出せば，それは空間分解能を向上させると，サンプル表面における光パルス幅が伸張することである．Eq. (7.3) より，サンプル表面上でのパルス幅と空間分解能の関係は，

$$\Delta x = \frac{f\lambda^2}{cd \cos \theta_d(\omega_0)} \frac{1}{\Delta T} \quad (7.4)$$

で与えられる．ここで Δx は空間分解能， ΔT はサンプル表面上でのパルス幅である．本セットアップでは光の分散する方向への空間分解能は $8.0 \mu\text{m}$ と見積もられ，Eq. (7.4) に従うと，パルス幅は 9.4 ps と見積もられる．空間分解能と，パルス幅の関係を Fig. 7.2 に示した．空間分解能

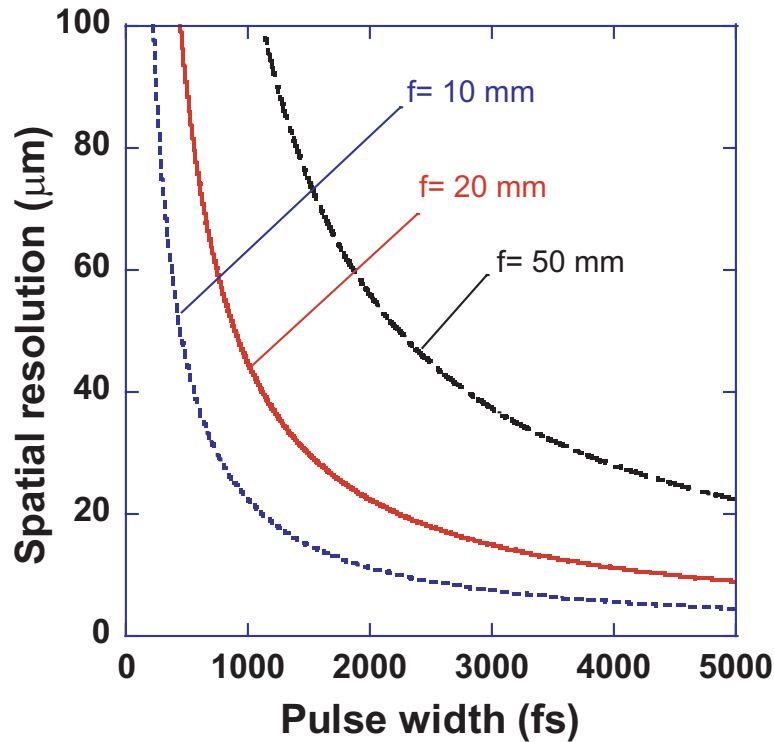


Fig.7.2 Relation between spatial resolution and effective temporal pulse width of pulse at sample calculated for various Fourier lens focal lengths. In our setup, focal length was $f = 20 \text{ mm}$. Other parameters of SI setup are described in text.

を向上させるとパルス幅が伸びるが，十分短いフーリエレンズを用いれば，物質の熱拡散時間よりも短く設定する事が可能である．

7.2.3 実験結果

ダブルパルス整形

はじめに AOPDF で 600 fs 間隔のダブルパルスを整形した．2つのパルスの位相関係は零に保った．サンプルに照射する前に，サンプル面に CCD カメラを配置して，フリンジパターンを観測した (Fig. 7.3 (a))．フリンジ周期は $161 \mu\text{m}$ であり，パルス間隔 600 fs に対応する．Eq. (7.2) を用いて計算したフリンジ波形を Fig. 7.3 (c) に示す．この波形を用いて，Si サンプル上に光を照射した．レーザーシステムは 1 kHz の繰り返しであるので， $1/8 \text{ s}$ 光シャッターを開けて 125 パルスをサンプルに照射した．サンプルに光照射を行なった結果 Fig. 7.3 (b) に示されるような周期パターンがサンプル表面に得られた．CCD 画像でフリンジを測定したときと比較するとコント

ラストが改善された．これは物質には固有のアブレーション閾値が存在するので，ある一定のパルスエネルギー以上の光のみがアブレーションに大きく関与するためである．

同様の実験で，AOPDFで1200 fsの時間遅延をつけてアブレーションした結果を Fig. 7.3 (a)，(b)，(c) に示す．フリンジ周期は $96 \mu\text{m}$ であり，その周期で Si 基板の上にアブレーションパターンが得られていることがわかる．

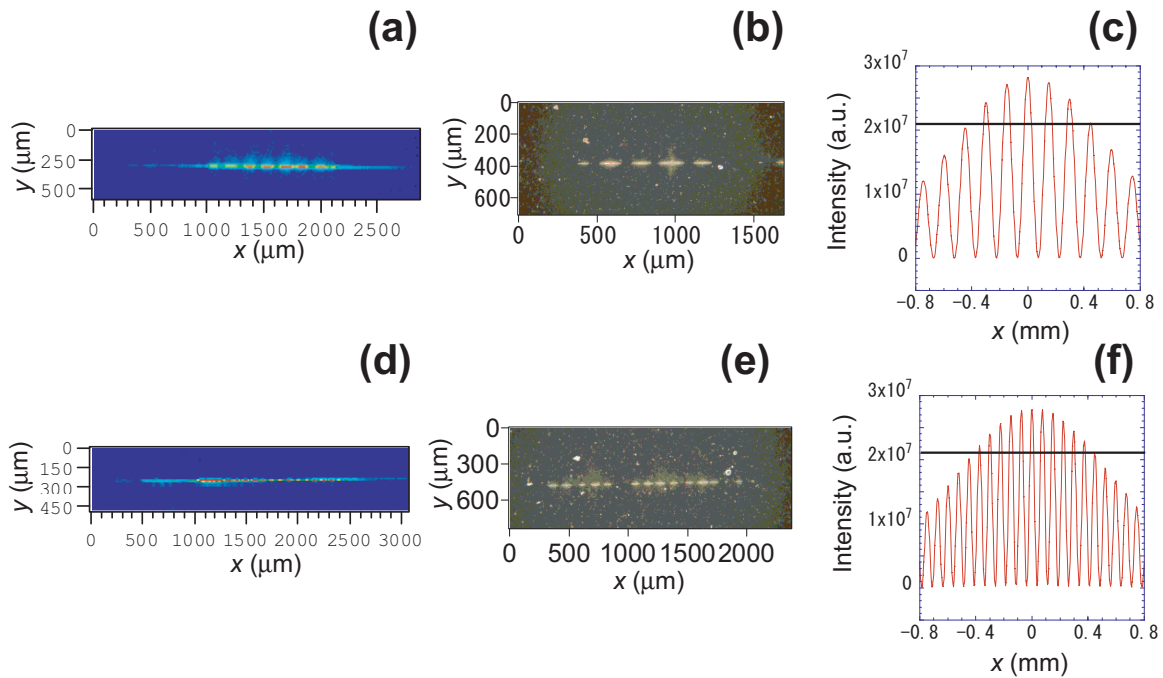


Fig.7.3 Figures in upper row ((a), (b), (c)) are experimental results when two pulses are separated by 600 fs delays, and lower row ((d), (e), (f)) show when pulses are separated by 1200 fs. (a) and (d) are measured CCD image at Fourier plane of SI. (b) and (e) are written patterns on silicon wafer surface observed through optical microscope. (c) and (f) are numerically calculated patterns on Fourier plane with given parameters. Horizontal lines in (c) and (f) are rough estimates of ablation threshold

チャープしたダブルパルス整形

次に2つのパルスのうちの片方にスペクトル位相整形し，エッチングパターンを観測した．片方のパルスに $1.9 \times 10^4 \text{ fs}^2$ の2次分散を加え，2つのパルスの時間遅延は0とした．実験結果を Fig. 7.4 に示す．位相変調を加えることによって，アブレーションの周期に変化が観測される．

ディスカッション

本システムを用いてエッチングされた Si 上のパターンの電子顕微鏡写真が Fig. 7.5 である．サンプル上での縦方向のスポットサイズは $4.6 \mu\text{m}$ と見積もられ，Fig. 7.5 (a) の変調領域はスポッ

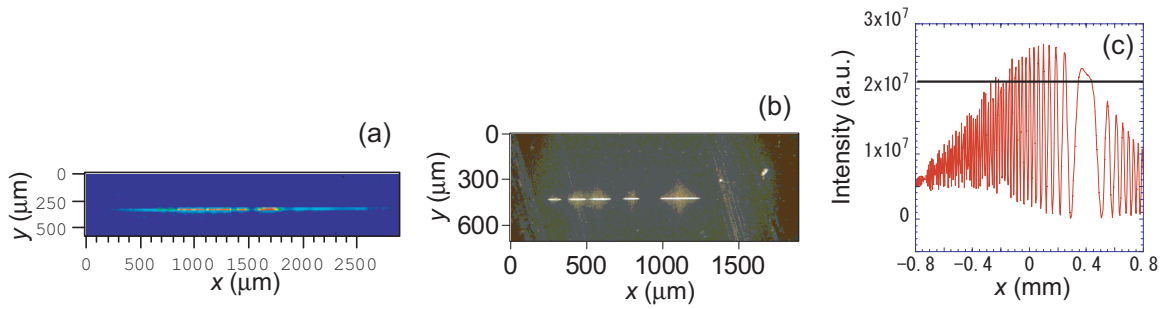


Fig.7.4 Experimental results when linear chirp is added to second pulse. Delay between these two pulses is set to 0 fs. Measured CCD image on Fourier plane of SI is in (a). Optical microscope image of ablated silicon wafer sample is in (b). (c) is calculated intensity profile on Fourier plane.

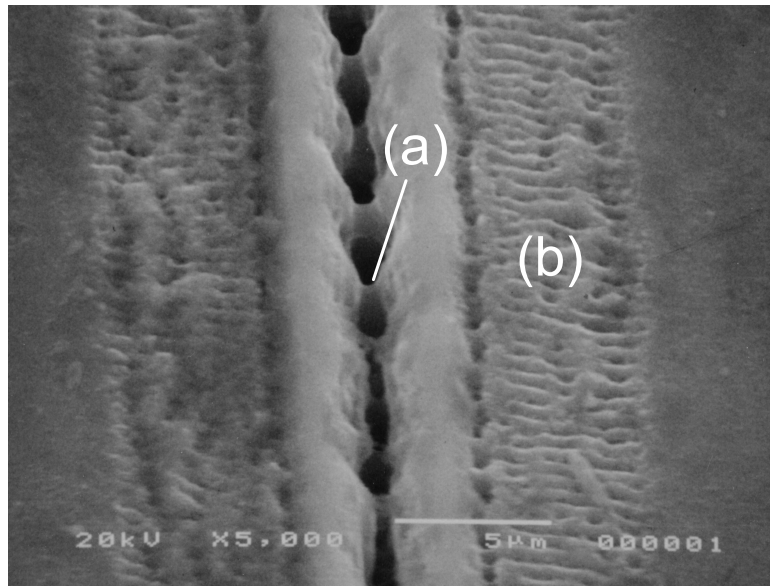


Fig.7.5 Scanning electron micrograph of etched silicon wafer. Thermal effect can be observed.

トサイズに対応する。Fig. 7.5 (b) の領域には熱の効果による表面の周期的な変調が見られる。この効果は加工面で光パルスが比較的長い幅を持つ影響と共に、1 kHz の繰り返し周期で 125 パルスの積算を行なっているために、熱が積算する影響である。熱効果を最小限にとどめるためには、光子系への緩和時間よりも短い幅のパルス幅が得られる条件を Fig. 7.2 より見つけ出し、シングルパルスをサンプルに照射することが有効である。

Si サンプルは表面が酸化し SiO₂ 膜を形成しやすい。SiO₂ は Si と比較するとアブレーション閾値が高い。本実験でもより小さなパルスエネルギーを用いると、サンプル表面にアブレーションパターンが加工されない現象が観測された。そのために、通常の Si で必要なフルエンスよりも高い値で作業を行なったが、Fig. 7.5 において、当初の予想以上の熱的な効果が見られたのはその

効果が影響している。

また、より微細なアブレーション加工を行なうためには、物質のアブレーション閾値を正確に把握してそのアブレーション閾値付近で作業する必要がある²⁾が、本スキームではスペクトルが空間的に横に分散しているために、スペクトル中心付近では大きくアブレーション閾値を超えてしまう。スペクトル中心と裾の両方でアブレーション閾値をわずかに超えるようなパルスを設計するためには、Fig. 6.15で行なったようなスペクトル振幅整形を行なう必要がある。

7.2.4 本節のまとめ

型波形整形を増幅器前に設置することによって、波形整形器の光損傷閾値を超えることなく光プロセスを行なった。本システムを用いることによって機械的な動作をすることなく Si サンプル上のホログラフィックパターンを変化できることを示した。但し、サンプル上ではパルス幅が伸張するために、熱的な影響を受けやすいがため、SI に用いるレンズの焦点距離を短くするなど熱拡散時間よりも短いパルス幅が得られるように設計する必要がある。

7.3 蛍光色素励起の適応制御

7.3.1 はじめに

閉ループ制御による蛍光色素の励起最適化実験を行なう。

フェムト秒レーザーの広帯域性と超高速性を用いて、ターゲット物質を効率的に励起する実験はこれまで数多く行なわれてきた¹⁰⁻¹²⁾。その中でも、ターゲット物質の相互作用ハミルトニアンが記述できない時にでも物質を目的とする量子状態に至らしめるために、最適化アルゴリズムを取り入れた適応制御がこれまでも数多く報告されている¹³⁻¹⁵⁾。

仮にターゲット物質をある励起状態へと制御することによって超高速光制御やその他の応用への展望が開けることがわかっている場合には、本手法は工学的に非常に興味深い。一例を挙げれば、蛍光顕微鏡で色素の高効率な励起が可能になれば多くの利益を受けられる。蛍光顕微鏡はターゲットとする生体のラベリングに色素を用いて、その色素を光励起し蛍光させることによって細胞の機能等を観測する顕微鏡である。特に多光子吸収蛍光顕微鏡はバックグラウンド信号の無い3次元イメージを得られる利点がある。しかし、この蛍光顕微鏡で使用される蛍光タンパク等の蛍光色素は非常に褪色が早いという問題点がある。褪色を押しやるためには小さな光エネルギーを用いて効率的に色素を励起する必要がある。超短光パルスレーザーを用いた効率的な励起波形の設計は有効な解である¹⁶⁾。

一方、物理的にも適応制御を用いた励起の最適化は興味深い。ターゲット自体はブラックボックス化して制御しても、最適励起波形からその内部構造を読みとることができると期待されるからである。近年、最適励起波形から物理を読みとることは、実際には非常に難しいことがわかってき

た^{17, 18)}ために、適応制御のみではなく複合的な手法を用いる必要性が指摘され始めている^{19, 20)}。それでも、比較的記述が簡単な原子分子においては適応制御の結果を物理と照らし合わせる事が可能である^{21, 22)}。本節で用いるような蛍光色素は一般には非常に複雑な構造を持つ分子であるので、分子振動を直接励起するような場合には最適励起波形が非常に複雑になり²³⁾、一般的には最適励起波形から物理を読みとることは簡単ではない。しかしながら、励起光の強度が比較的強い領域においては、励起過程が adiabatic passage モデル^{24, 25)}や、STIRAP モデル²⁶⁻²⁹⁾等によって比較的簡潔に示される可能性がある。

そこで、本節では一光子吸収及び二光子吸収蛍光色素の高効率励起波形を求めるために、蛍光強度を指標に用いた適応制御を行なう。増幅器前置き型波形整形システムを用いるので、励起光にはCPA後の増幅したパルスを用いている。本システムを用いることによって、波形に依存せず恒に一定のエネルギーで励起され、また時間空間結合効果も起こらないために、光が物質相互作用するボリュームが恒に一定に保てる。最適化制御によって、その結果から物理を読みとる試みを行なうと共に、本波形整形システムが、光物質相互作用を指標としたパフォーマンス参照適応制御に用いることができる事を示す。

7.3.2 実験セットアップ

レーザシステム

実験セットアップは、Fig. 7.6 に示した。但し蛍光強度を正確に測定するために、ロックインアンプ (Stanford Research 社製 SR810) を用いて信号を同期した。波形整形器には LC-SLM を用

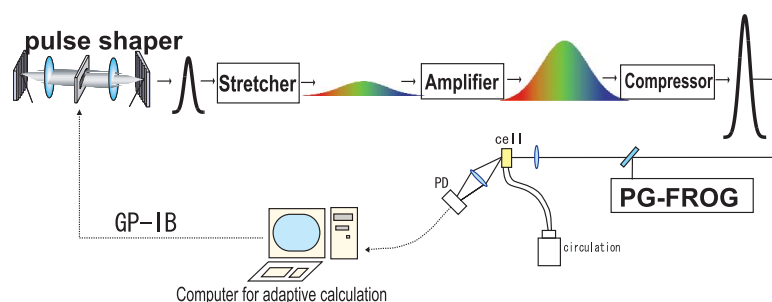


Fig.7.6 Experimental setup for dye pump coherent control. Pulse shaper is installed before the regenerative CPA. The fluorescence is monitored with photo diode and the signal is accumulated with lock in amplifier.

いた位相変調 $4f$ 型波形整形器を用いた。蛍光強度を適応制御信号の指標とし、アルゴリズムには SA を用いて、蛍光強度を強めるように最適化を行なった。

色素

励起蛍光の観測にはレーザ色素は Exciton 社製シアニン色素 IR140($C_{39}H_{34}N_3O_4S_2Cl_3$) を用いた。また, IR140 色素の上準位寿命は 165 ps である³⁰⁾。他の物性値を Tab. 7.1 に, 構造式を

Tab.7.1 Physical paramters of IR140

IR140	
分子式	$C_{39}H_{34}N_3O_4S_2Cl_3$
分子量	779.21
最大吸収波長	823 ^S nm
最大蛍光波長	882 ^S nm
融点	250–252 C°

Fig. 7.7 に示す³¹⁾。

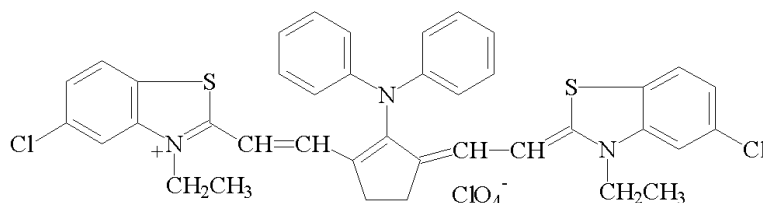


Fig.7.7 Chemical structure of IR140 (5,5'-dichloro-11-diphenylamino-3,3'-diethyl-10,12-ethylenethiatricarbocyanine perchlorate) dye.

IR140 色素をエタノール 1 l に 1×10^{-4} mol/l の濃度で希釈しポンプを用いて宇翔社製フローセル (光路長 1 mm, 幅 10 mm, 高さ 20 mm, 全長 50 mm) 中を巡回させた。

励起光強度は 1.7 GW/cm^2 の光密度で色素に照射した。IR140 の光飽和強度 $I_s = h\nu/\sigma\tau$ は濃度 6×10^{-6} mol/l において 4 MW/cm^2 である³⁰⁾が, パルス繰り返し 1 kHz, パルス幅 < 1 ps での励起であるので, 飽和エネルギー E_s が問題となる。ここで, ν, σ, τ はそれぞれ周波数, 誘導放出断面積, 上準位寿命である。 $I_s = 4 \text{ MW/cm}^2$ 及び $\tau = 165$ ps から $E_s = h\nu/\sigma = 6.6 \times 10^{-4} \text{ J/cm}^2 = 20.6 \text{ GW/cm}^2$ となるので, 実験での照射強度は飽和強度を超えない。

7.3.3 実験結果及び考察

蛍光スペクトル

初めに色素 IR140 の蛍光を確認した．励起光と色素の発光スペクトルを Fig. 7.8 に示す．分光器は相馬光学社製小型マルチチャンネル分光計 S-2600 を使用した．測定範囲 300–1050 nm，分解能 3.6 nm，波長正確さ ± 0.5 nm である．励起光の中心スペクトルが 800 nm に対して，蛍光

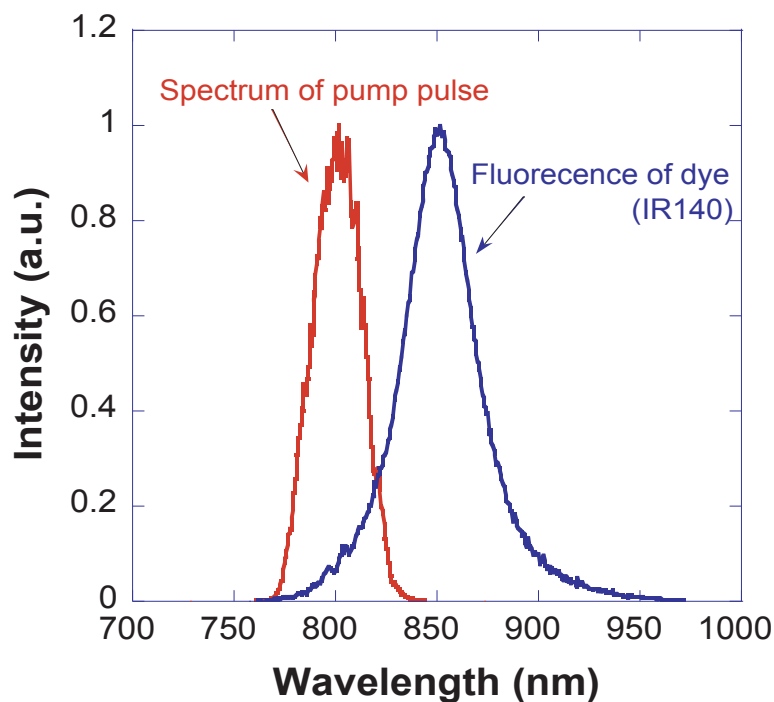


Fig.7.8 Fluorescence spectrum from IR140 dye

スペクトル中心はストークスシフトし 860 nm であり，励起光と蛍光スペクトルが十分識別可能であることを確認した．またこの蛍光スペクトルは励起光の進行方向から見て $\sim 90^\circ$ の位置からファイバ分光計にて測定した．

蛍光スペクトルの方向依存

蛍光スペクトルに蛍光方向依存があることが観測された．蛍光スペクトルを Fig. 7.9 に示す．それぞれ，励起光の進行方向に対して $\sim 45^\circ$ ， $\sim 90^\circ$ ， $\sim 135^\circ$ の方向から蛍光スペクトルを観測した．

これはフローセルの構造に原因がある．光はほとんど集光していないので，光励起を受ける体積はディスク状の形をしている．蛍光を観測する方向によって，測定器に到達するまでに蛍光が試料中を伝搬する距離が異なる．吸収スペクトルは，蛍光スペクトルに対して短波長側にあるの

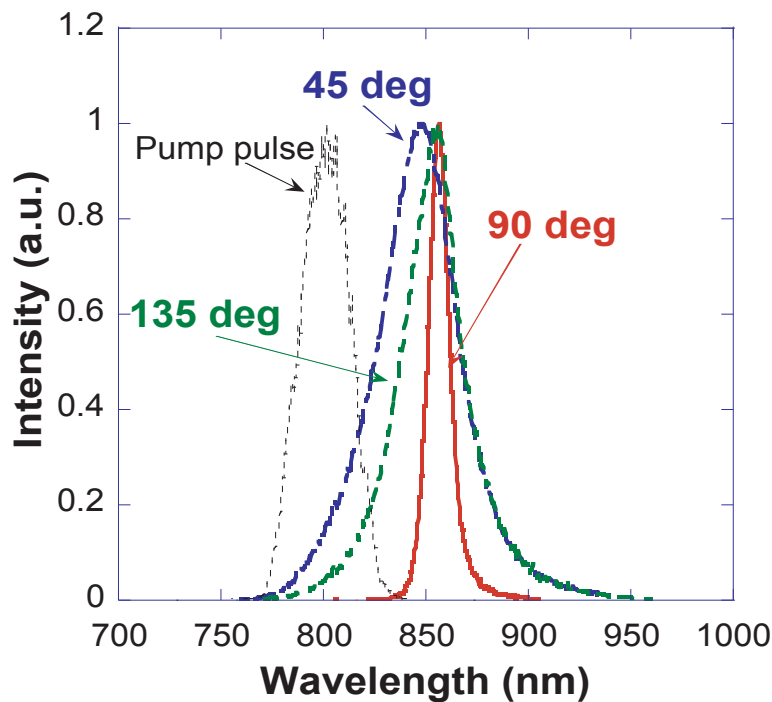


Fig.7.9 Fluorescence spectra of dye from different observation directions.

で，励起ボリュームに対して，蛍光が試料中をより多く伝搬する方向から観測すると，蛍光の短波長側は試料を再び励起するのに使用されるために，長波長側がより強く観測されるようになる． 90° から観測した場合が最も励起ボリュームまで遠いため，蛍光スペクトルは長波長側しか観測されない．

一光子励起蛍光強度最適化実験

蛍光強度の最適化実験は以下の手順で行った．蛍光強度は励起光に対して $\sim 90^\circ$ の位置に浜松フォトニクス社製 S5972 シリコン PIN フォトダイオードを設置し観測した．フォトダイオードの信号はロックインアンプによって同期検波され，その信号はオシロスコープを介して PC に取り込まれる．SA を用いた最適化制御ではマスクの書き換えによる変化を検出できるので，こうしてロックインアンプを用いた SN の向上は特に重要な技術的な要素である．信号強度を強めるように SA 法によってマスク関数を変化させて励起パルスを最適化した．

初期励起パルス波形は PG-FROG をモニターしつつ LC-SLM の変調を変化させ，2 次及び 3 次分散を加えることによって CPA の分散補償を行い，フーリエ限界パルス (32 fs) を設計したものとした．このときのマスクを初期マスク関数として LC-SLM にバックグラウンドとして印加して最適化を開始した．このときの SA のパラメータはグレーレベル $G = 2\pi/32$ rad，初期温度 $T_{ini} = 5.0 \times 10^{-2}$ ，温度冷却係数 $\eta = 9.995 \times 10^{-1}$ であった．最適化の様子を Fig. 7.10 に示す．コスト関数の増加及び，システム温度を表示している．コスト関数はロックインアンプからの電

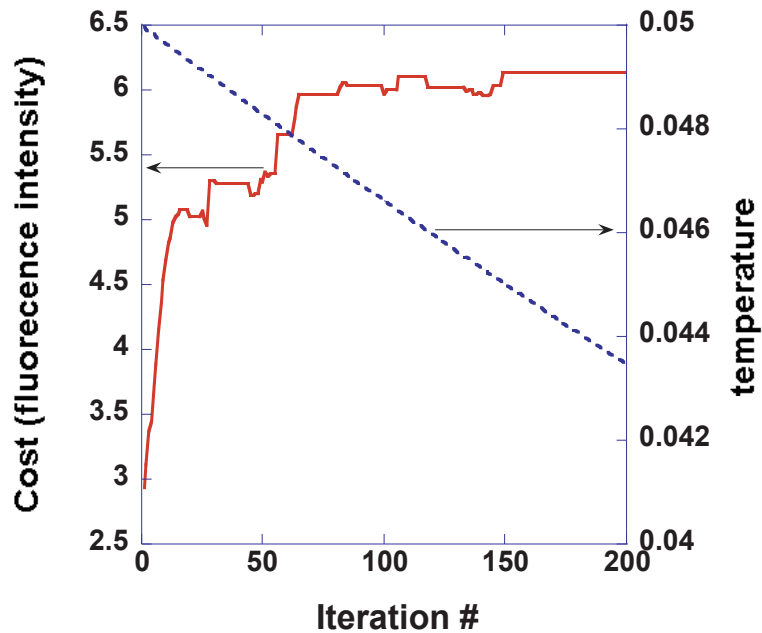


Fig.7.10 Dye fluorescence intensity in respect of iteration number.

圧値をオシロスコープで読み取った値であるが，零点校正をおこなわなかったために縦軸には不明な量のバイアスが存在する．したがってコスト関数の上昇率が直接光強度の増加倍数に対応するわけではない．

200 回最適化後の場合の蛍光スペクトル強度を Fig. 7.11 に示す．Regular , Reject , Accept はそれぞれ 36 , 149 , 15 であった．点線はフーリエ限界パルスの初期波形で励起したときのスペクトル強度を示し , 実線は最適化後のスペクトル強度である．蛍光強度がフーリエ限界パルスで励起した場合と比較して約 2.8 倍強められた．この最適化された励起パルスのマスク関数を Fig. 7.12 に実線で示す．横軸はマスクのピクセルであり波長に対応する．最適化されたマスクはスペクトル中心付近において正の線形チャープ構造を取る事がわかった．これは蛍光強度を強める励起パルスとして周波数領域で正の線形チャープを持っているものがよいことを示唆している．

そこで , Fig. 7.12 における点線は $9.26 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$ でフィッティングした線形チャープであり , その変調をマスクに加えた励起パルスで励起した時の蛍光スペクトル強度を Fig. 7.11 の破線で示す．ここで , 周波数面で扱う場合に正のチャープパルスは , 逆フーリエ変換を行なうと時間軸ではその複素電界の , 位相のチャープの向きは負になっていることに注意する．周波数面で正にチャープしたパルスはフーリエ限界パルスを用いて励起している場合と比較して , 3 倍以上の蛍光励起強度が達成された．最適化によって得られるマスクの端のピクセルが正のチャープに最適化されないのは , マスク両端のピクセルはそれぞれ 750 nm , 850 nm に対応し , CPA 後の波形においてはこの波長のスペクトル強度はほぼ零であるのでマスクの端のピクセルが多少変化してもそれは励起パルスにはほとんど影響を与えない為と考えられる．

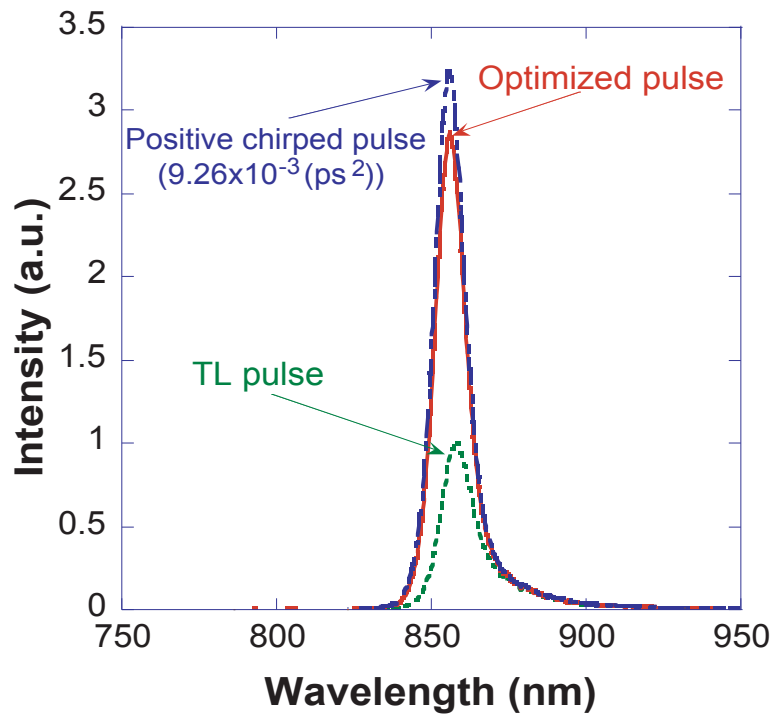


Fig.7.11 Fluorescence spectra of a laser dye pumped with transform limited pulse (dotted), optimized pulse (solid), and positive chirped pulse (broken).

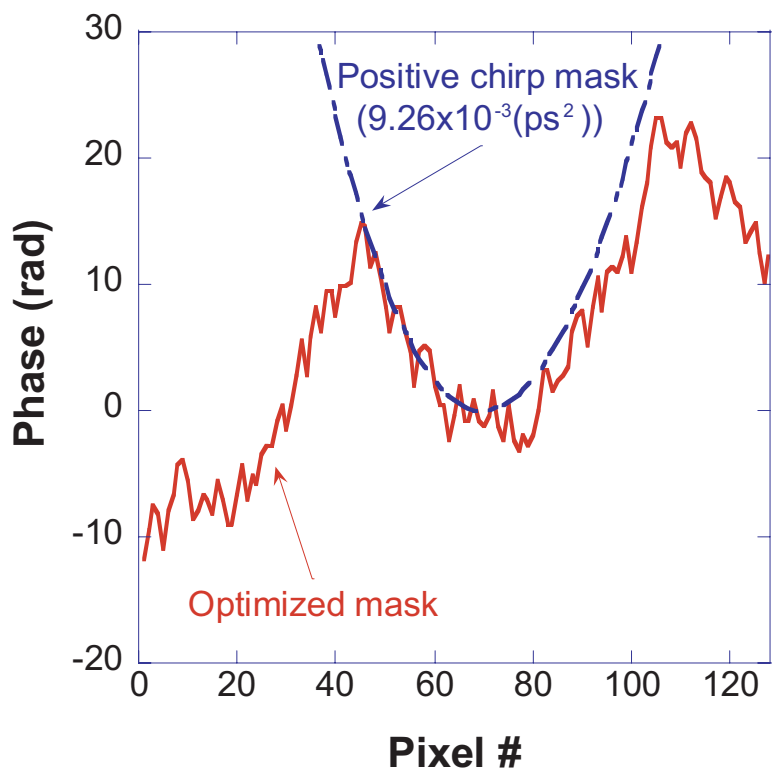


Fig.7.12 Mask function of the pumping pulse at the optimized fluorescence.

さらに，チャープの向きが蛍光強度に依存することを確認するために LC-SLM に印加するチャープを正と負で変化させ，そのときの蛍光強度を測定した．このときの蛍光スペクトル強度を Fig. 7.13 に示す．この結果，正にチャープを加えた時のみに，蛍光強度が強まることがわかった．

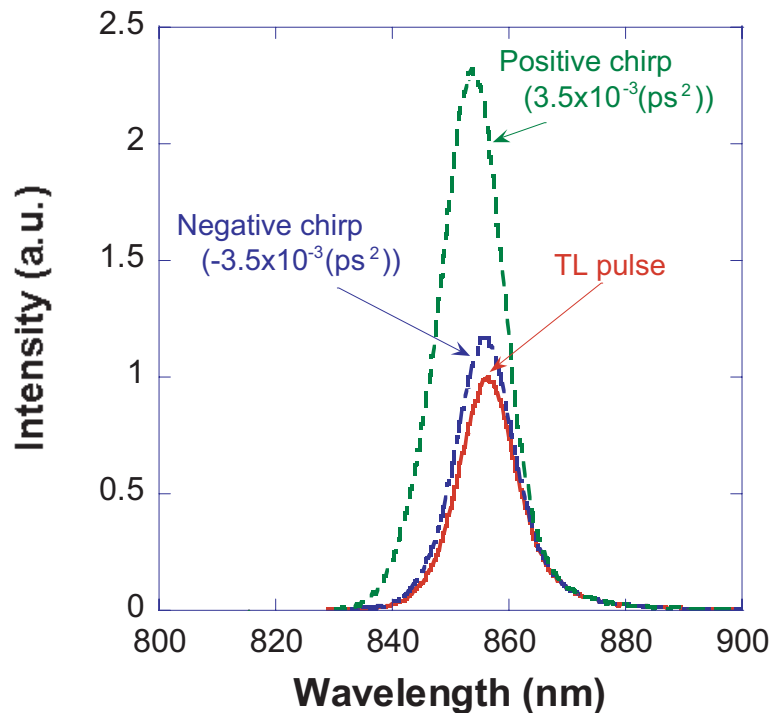


Fig.7.13 Fluorescence intensity with chirp direction dependence.

今回の実験では増幅パルスを用いているために，その光強度は GW/cm^2 レベルと比較的強い．こうした領域においては光子のエネルギーと分子の固有値を結合したドレスド状態で原子分子を記述する必要がある．今単純のために，2準位系原子のドレスド状態のエネルギーダイアグラムを Fig. 7.14 に示す²⁴⁾．正に線形チャープした光は，時間的には周波数が低い成分から，周波数が高い成分まで，時間に対して線形に掃引するパルスである．そこで，電子と光子のエネルギー準位を時間をパラメータとして表示すると，時間に対して線形にエネルギーレベルが傾く．Fig. 7.14 には1光子で共鳴する基底準位 $|a\rangle$ ，上準位 $|b\rangle$ がそれぞれ $|n+1\rangle$ ， $|n\rangle$ のフォトンとカップリングしている様子を示した．実線が透熱エネルギー，破線で断熱エネルギーカーブを表わした．光の周波数が Bohr 周波数 $h\nu$ と一致する点で断熱エネルギーカーブは交差する．光子のやりとりのため，非交差エネルギーが形成される．これが断熱エネルギーカーブであり，ここで光電場の周波数をゆっくりと掃引していくと，断熱エネルギーカーブに沿って，Landau-Zener 遷移とも呼ばれる断熱遷移 (adiabatic passage) が生じる³²⁾．この adiabatic passage を用いると非常に効率的な励起が達成される．さらには遷移モーメントの許されていない準位間でも，遷移が可能である．

今回の実験結果で得られた $9.26 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$ の線形チャープはパルス幅に換算すると約 660 fs

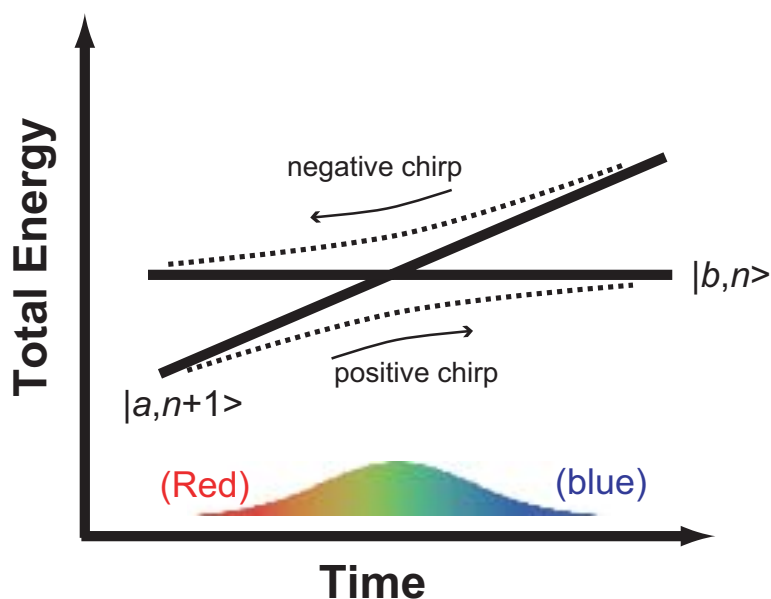


Fig.7.14 Schematic image of adiabatic passage. The dressed eigenstates cross when the field frequency is swept.

に対応する。こうした比較的長い時間パルスで adiabatic passage による電子励起が起きていると考えられる。

こうした2準位系で adiabatic passage の考えに基づくと, Fig. 7.14 に示すように, 光子場は周波数の高い方から低い方へも, またその逆でも効率的に励起が達成される。即ち, チャープの方向に励起は依存しないはずである。実際に D. Maas 等は, 励起光の強度が弱い領域では負のチャープを用いた場合のみ効率的に励起されていたのが, 強い励起を行なうと正負のチャープに依存が見られなくなることを報告している²⁵⁾。一見 Fig. 7.13 の結果は adiabatic passage モデルに反している様に見える。しかし, 実際には IR140 は複数の振動・回転準位が存在し不均一にエネルギー帯が広がっているために, Fig. 7.14 に示すような2準位系で単純にモデル化することはできない。J. Melinger 等は回転準位幅が狭い場合にはチャープの方向に依存しないものの, 回転準位の幅が広い場合に正のチャープのみが良く励起する事を理論的に示した¹²⁾。それは, 青から赤へ掃引する方向(負の線形チャープ)の場合には, 基底準位の最も低い回転準位が, 掃引が終わった後の基底準位の高い回転準位と交差するため, 光が通り過ぎた後には励起波束の一部が基底準位に再び戻されてしまっているからである。IR140 が広いエネルギー準位広がりを持っている事を考慮すると, Fig. 7.13 はこの理論を非常に良く裏付ける実験結果である。

多光子励起蛍光最適化実験

同様の閉ループ制御による励起偏在化実験をレーザ色素 Coumarin515 を用いて行なった。レーザ色素 Coumarin515 の物性値を Tab. 7.2 に示す。Coumarin515 はエチレングリコールに

Tab.7.2 Physical parameters of Coumarin 515.

Coumarin515	
分子式	$C_{21}H_{21}N_3O_2$
分子量	347.42
最大吸収波長	412 nm
最大蛍光波長	478 nm

$1 \times 10^{-3} \text{ mol/l}$ の濃度で溶解した。励起レーザーは中心波長 800 nm, 光強度 1.6 GW/cm^2 で照射した。IR140 の場合と異なり, Coumarin515 の吸収スペクトルは照射する光の波長とは重ならない。そのため励起過程は非共鳴な遷移である二光子吸収過程が支配的になる。蛍光強度が弱いいため蛍光をレンズで集光してフォトダイオードで測定した。

フーリエ限界パルスからはやや位相が乱れた波形を初期波形として, 最適化ループを開始して蛍光強度を強めた。その様子を Fig. 7.15 に示す。最終的に蛍光強度は約 1.5 倍強められた。最適

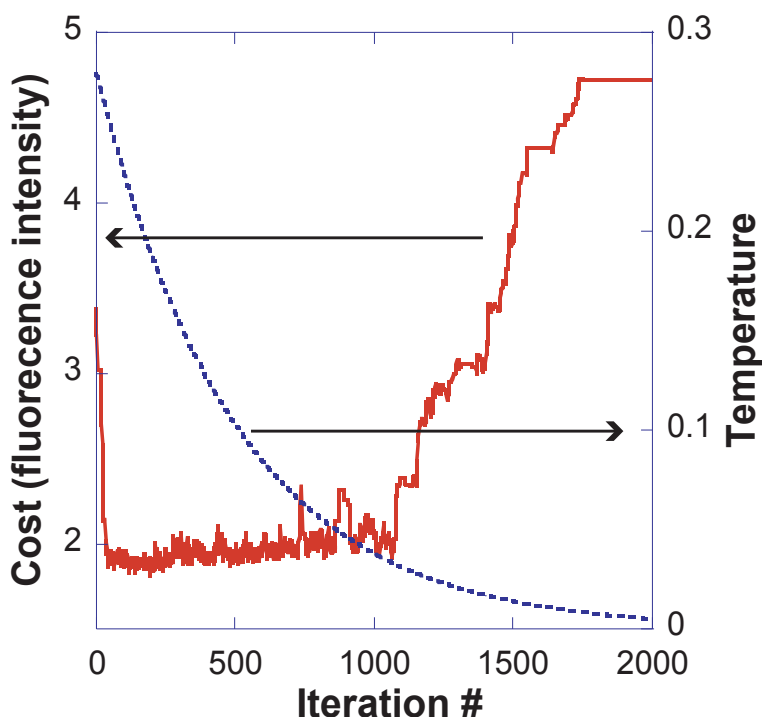


Fig.7.15 Cost function of the two photon excited fluorescence. The cost is directly calculated from the fluorescence intensity.

化前の初期波形及び最適化されたパルス波形をそれぞれ, Fig. 7.16 中に示した。

非共鳴な二光子吸収過程では, エネルギー準位が均一広がりで見られる場合には, フーリエ限

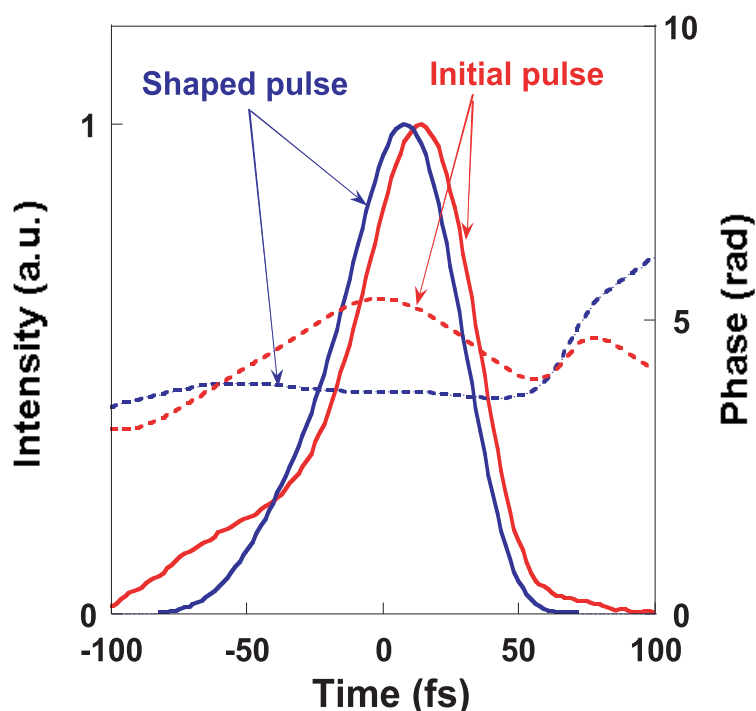


Fig.7.16 The waveform of the initial pulse and optimized pulse. Transform limited pulse is obtained as a optimized pulse.

界パルス以外であってもスペクトル位相が奇関数形で表わされれば，フーリエ限界パルスと同等の励起が達成されることが，理論でも実験でも照明されている³³⁾．一方，こうした不均一一広がりをもつターゲットにおいては，二光子吸収確率は単純に $S_2 = \int_{-\infty}^{\infty} I^2(t)dt$ で与えられ³³⁾，フーリエ限界パルスが最も高効率な励起を達成する．

7.3.4 本節のまとめ

理論的に計算される波形を設計可能であれば非常にインパクトは大きいものの，実際には物性のハミルトニアンが不明な場合が多い．そこで，閉ループ制御を用いて，最も最適な励起波形の解を実験室内で得る手法が取られる．これらの報告例にはいずれもその空間プロファイルが議論されていない．実際には，空間プロファイルは各波形によって異なるはずであり，Fig. 2.16 の様に最悪のケースにおいてはパルスの空間的な重なりが保証されない本研究で新しいのは波形整形器を増幅器の前に設定することによって，増幅器後の空間プロファイルを恒に一定に保ちつつ，時間領域のみを変化させることが可能であり，純粋に時間領域の整形のみで議論が可能になった点である．

一光子吸収励起蛍光実験では，蛍光強度を最大化する最適化制御を行なう事によって，正に線形チャープしたパルスが最も効率的に分子を励起することがわかった．これは，断熱遷移モデル

による励起を非常に良く説明する．一方多光子吸収励起蛍光実験ではターゲット色素が不均一に広がっているために，フーリエ限界パルスが最も高効率に分子を励起した．これらの実験は，本システムが光と物質の相互作用を指標とした制御実験に用いることが可能であることを示すと共に，適応制御の実験結果がある程度の情報を我々に与えてくれることを示している．

7.4 エタノール光解離制御実験への応用

7.4.1 はじめに

本節ではエタノール光解離制御実験を行なう．

従来，分子の化学結合を光によって操作する場合，分子の振動モードや，電子励起準位に共鳴する光を用いてきた．しかし近年，高強度な光電場を用いると分子の光による操作性が向上することが，指摘されている³⁴⁾．それは，非常に高強度な電場中では分子の電子状態と光電場が結合したドレスト状態を形成するからである．ドレスト状態の本質は交流電場での Stark 効果 (AC-Stark) 効果である．AC-Stark 効果は，S. Autler と C. Townes によって示されるように³⁵⁾ 半古典論で説明される．ただし，より詳しい解析を行なうためには，密度行列による取り扱いが必要な場合がある．Stark 効果によるエネルギー準位のシフトを記述するためには，系を表わすハミルトニアン中の相互作用ハミルトニアンによる非対角成分を，ユニタリー変換を用いて物質系のハミルトニアンのように対角化する作業を行なう．この変換は定性的には，系の量子状態を表わす波動関数を異なる直交基底で捉えることによって，物質が電場とカップリングした状態での物質系の見かけのエネルギー固有値を求めていることに対応する．ここで，光電界は交流電場であるので，この Stark 効果を光電場に適用して実際に系の状態を記述するためには，時間依存のハミルトニアンを含む波動関数を解かなくてはならない．そこで J. Shirley は，交流電場を時間平均するためにフロケの定理を³⁶⁾ 用いて時間に依存するハミルトニアンをフーリエ級数展開して時間に依存しない Floquet ハミルトニアンを導出した．さらに，光子数 N が大きい条件下で場の量子化も行ない，物質の電子系と交流電場が結合した状態を記述した³⁶⁾．これがドレスト状態^{37, 38)} であり，分子の場合にこのドレスト状態での描像を行なうと分子の PES が高強度な光電場によって変形する光ドレストポテンシャル曲面 (Light-Dressed potential energy surface: LDPEs) の状態を取ると解釈される．Fig. 7.17 にその状態を示したが，光電場を適切に制御することによっては，LDPEs を光によって直接操作することができるので，分子の核波束を大きな自由度で操作可能なることが期待されている．こうした高強度電場中での分子の制御は始まったばかりであり⁴⁰⁾，今後の展開に注目される．高強度光電場を作り出すためには，フェムト秒パルスレーザが良く用いられているが，こうしたパルスレーザを用いる場合には，光パルスの振幅が時間的に変化するので，Floquet ハミルトニアンの準定常状態を考える必要がある⁴¹⁻⁴³⁾．

また，高強度場中の原子分子ではクーロンポテンシャルが外部電場によって歪められて電子のトンネルイオン化が起きたり，その電子が電場からエネルギーを供給されて再び核と衝突するこ

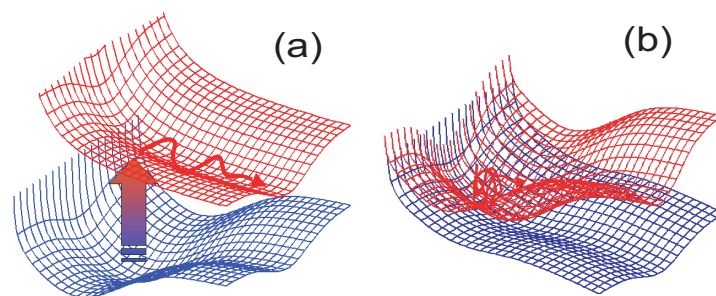


Fig.7.17 (a) Schematic of a molecule potential energy surface when the intensity of the external electrical field is weak. (b) Light dressed picture of a molecule potential energy surface coupled with intense laser field.³⁹⁾

とによる閾値イオン化 (above threshold ionization: ATI)^{44, 45)}が起きることや、又は分子の構造変形に伴うイオン化促進 (Enhanced Ionization)^{46, 47)}等、従来では起きえなかった様々な物理現象が観測され、それらをよりよく理解し制御することが可能になれば、理学的・工学的利益は大きいと考えられる。

このような研究を進めるために高強度整形電場が求められており、増幅器前置き型波形整形システムを用いれば整形波形を TW/cm^2 を超える光強度で得ることが可能である。波形整形器を増幅器後に設置したのでは、たとえ波形整形器のオプティクスを工夫したとしても、得られる光パルスの強度の限界はかなり低く (p. 107), GW/cm^2 から多くても TW/cm^2 を得るのがやっとである。さらには、時間空間結合の波面の歪みによってスポットにおける光密度が波形毎に変化する。

本節では、増幅器前置き型波形整形システムを用いることによって、こうした問題に直面することなしに、高強度な整形された光電界を作りだし、それを用いて化学反応制御に用いた実験例を示す。

本研究で構築した高精度波形整形システムを用いると、光パルスのある一つのパラメータのみを独立に変化させることが可能である。超高速コヒーレント制御においてこうして、光パルスの特定のパラメータ反応分岐に与える影響を系統的に調査することは、内部物理を理解するために重要である。そこで、本実験ではエタノール $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ の光解離反応のチャンネル分岐比が光パルスの線形チャープを変化させると変化することを利用して²⁰⁾、本波形整形システムがこうした系統的な実験に用いることのできるパフォーマンスを持っていることを示す。

また、光解離反応を指標とした閉ループ制御実験を同時に行なえば、系統的な実験によって得られた知見を更に深めることが可能である。そこで本実験系においても、閉ループ制御による光解離反応の最適化制御が行えることを示す。

7.4.2 線形チャープ変化による系統的な光解離制御実験

実験セットアップ

実験セットアップを、Fig. 7.18 に示す。再生増幅器前波形整形システムによって整形された

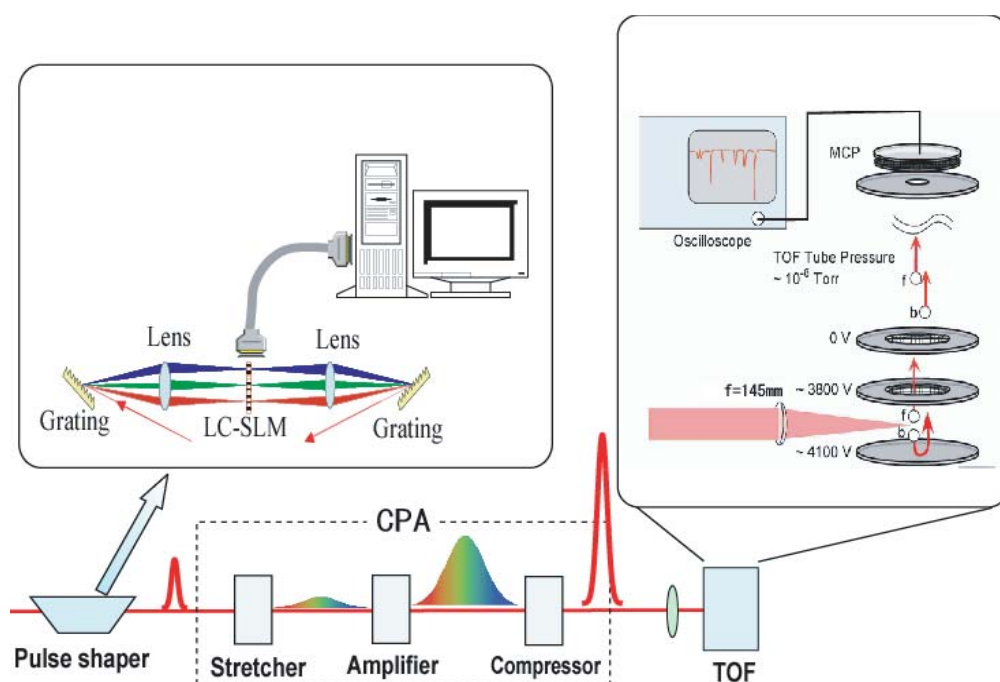


Fig.7.18 Experimental setup of ethanol molecular photo dissociation experiment. Linear chirp is systematically applied to the LC-SLM.

フェムト秒レーザーパルスを用いて Wiley-McLaren 型飛行時間測定質量分析装置 (Time of Flight Mass Spectrometer: TOF-MS) に入射させる⁴⁸⁾。

TOF-MS ではターボ分子ポンプを用いて 10^{-8} Torr 程度まで真空に引いたチャンバー内にマイクロシリンジからサンプル分子のガスを流し込むことで、2枚の電極間に分子ビームを作りだしそこでレーザーと相互作用させる。本実験ではレーザーの偏光方向は TOF 軸に平行とした。2枚の電極板間にはそれぞれ ~ 4100 V と ~ 3800 V の電圧がかかっているため、そこでイオン化された分子は2枚の電極板の電圧の低い方向へ運動力を付加され、チューブ内を飛行する。その後イオン化分子は MCP (Micro Channel Plate) で検出される。同じ価数のフラグメントイオンの分子の場合には、電極板の電界によって与えられるエネルギーは等しいので、質量の差によって受ける運動量が異なるため、MCP に到着する時間が異なる。本実験では、チャンバー内に残留する H_2O および、最も質量の大きいエタノールの親イオン $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ の2つのスペクトル信号を指標として、時間-生成比として得られる TOF スペクトルを、質量スペクトルに変換する。ある時間

t に到着したスペクトルに対応する分子質量 m は、

$$m = \left\{ \sqrt{m_{\text{water}}} + \frac{\sqrt{m_{\text{parent}}} - \sqrt{m_{\text{water}}}}{t_{\text{parent}} - t_{\text{water}}} (t - t_{\text{water}}) \right\}^2 \quad (7.5)$$

によって求めることができる。ここで、 $m_{\text{water}} = 18$ は H_2O^+ の分子質量、 $m_{\text{parent}} = 46$ は $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$ 親イオンの分子質量、 t_{water} 、 t_{parent} はそれぞれ H_2O^+ 、 $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}^+$ の到着時間である。TOF の原理より、直接測定可能なのは、イオン化した分子である。即ち本実験装置を用いたのみでは、中性分子の様子をうかがい知ることはできない。本節での実験結果も全て 1 価にイオン化した分子の振るまいを示すものである。

石英ガラス製の MS-TOF 窓直前に焦点距離 $f = 145$ mm のアクロマティックレンズを配置しビームスポットを $20 \mu\text{m}(1/e)$ まで集光した。窓材での非線形光学効果の影響によって、分子のフラグメント化が進むことも報告されているので⁴⁹⁾、集光レンズを窓直前に置くことによって、窓材での非線形光学効果の影響を最小限にとどめることができるように注意を払った。窓における光強度は 10^7 W/cm² 程度と見積もられ、非線形効果が生じる閾値からは十分低く抑えられている。焦点では、フーリエ限界パルスにおいてピーク強度は 4×10^{15} W/cm² のオーダーに達すると計算される。

実験結果及び考察

フーリエ限界パルスを入射すると Fig. 7.19 に示される TOF スペクトルが得られる。本実験で

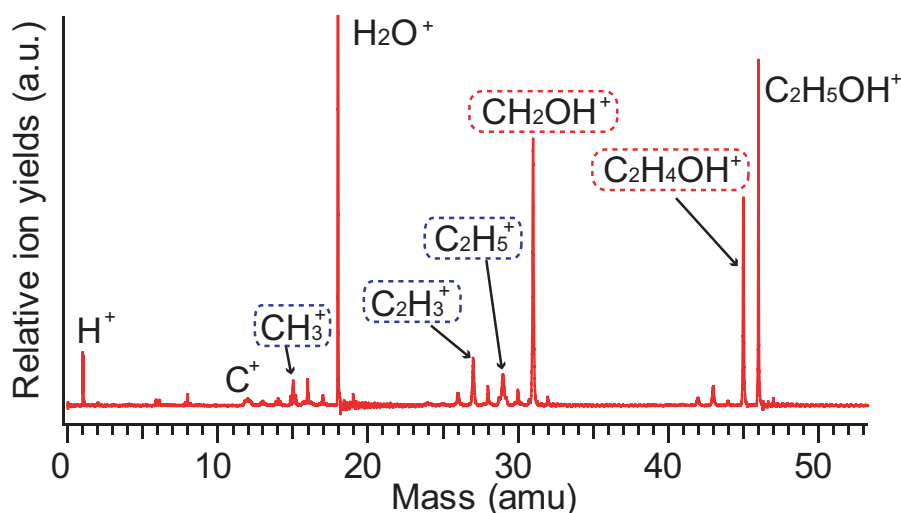


Fig.7.19 Time of flight spectrum of ethanol molecule when pumped with transform limited pulse.

はレーザーパラメータとして線形チャープの係数に着目し、波形整形器でシステマティックに線形チャープの係数のみを変化させた。チャープは $\pm 2.5 \times 10^{-2}$ ps² の範囲で変化させ、チャープによるエタノールの光解離反応のチャンネル分岐比に着目した。

チャープの係数を横軸にとり，各チャープパルス照射時のイオン比を縦軸に取りプロットしたのが Fig. 7.20 である．なお本実験では，フーリエ限界パルスのイオン比を 1 に規格化してある．Figs. 7.20(a) , (b) , (c) ではチャンネル分岐比にチャープ依存性が見られないのに対して (d) では

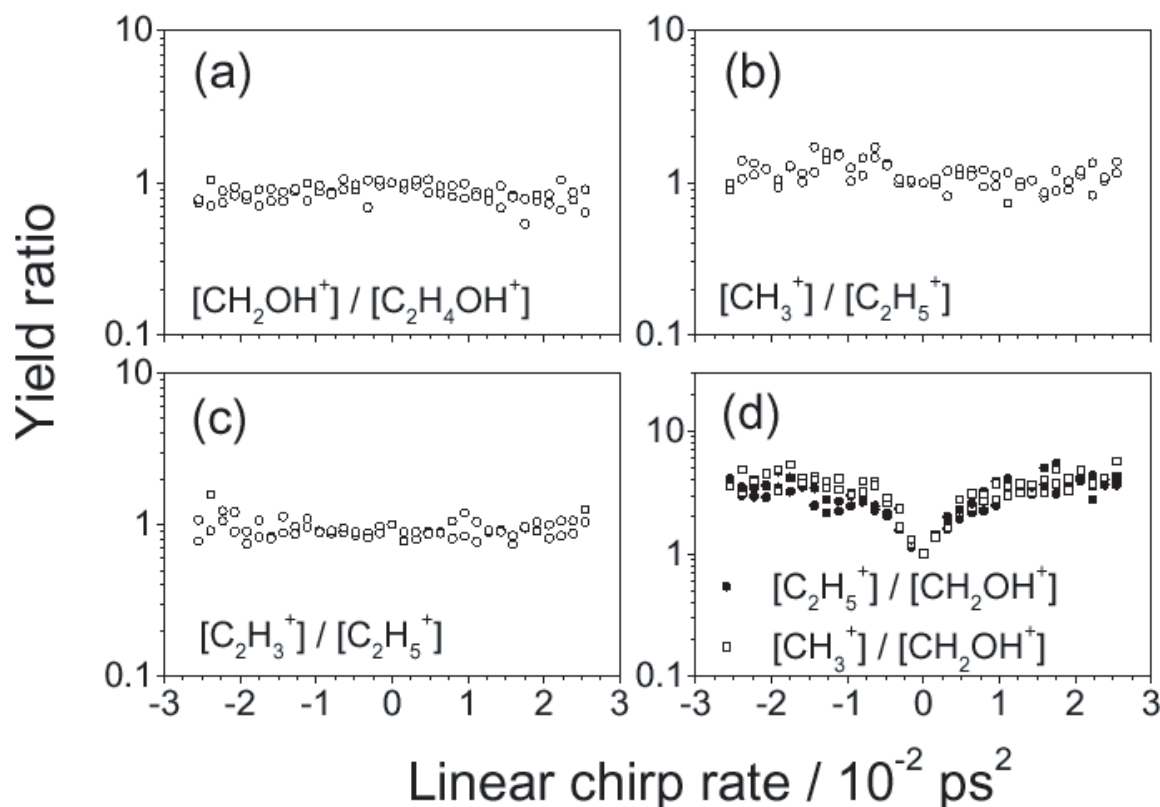


Fig.7.20 Chirp dependence of the relative ion yields in respect of linear chirp rate. The ion yield is shown in logarithm scale.

チャープの分岐比に依存が見られる．Figs. 7.20(a) , (b) , (c) で比に変化が生じないという事実は，それぞれのグラフで比較している分母・分子の反応チャンネルが，LDPES の同じ方向に位置している事を示している．エタノール分子の光解離を大きく C-C 及び C-O 結合の光解離の 2 つに分けて実験結果を理解すると，Fig. 7.20(a) は分子及び分母の両方のフラグメントイオンが，C-C 結合が解離する方向への反応経路をたどった結果生成したと考えられる． CH_2OH^+ に反応が進むか， $\text{C}_2\text{H}_4\text{OH}^+$ へ反応が進むかの選択は，光パルスが通り過ぎた後に光電界には依存せずに行われている．同様に，Figs. 7.20(b) , (c) は分母・分子共にいずれも C-O 結合が解離する方向に進む反応の結果生成したフラグメントイオンの比に着目していると理解される．それに対して，Fig. 7.20(d) で比較しているイオン比は，C-C 結合及び C-O 結合の光解離の比を測定している事になる．このイオン比がチャープに対して大きく変化するという事は，LDPES 上の核波束が C-C 結合解離，又は C-O 結合解離のどちらかに進むかは光が照射している間に決定されることを示している．このイオン比が大きな値であればあるほど，C-O 結合解離が促進されている．

チャープを変化させることは即ちパルス幅を変化させることに対応するので，本実験結果からエタノール分子の 1 価イオンの LDPEs 上の光解離反応過程の運命が電界の存続時間に大きく依存することが示された．こうしたドレスド状態にある分子の光解離がパルス幅に大きく依存することは Na_2^+ の光解離において理論的に示されており⁵⁰⁾，本実験はこうした物理を裏付けた．本実験のより詳細な，物理的に重要な議論は R. Itakura 等によって示されているが²⁰⁾，波形整形技術からの観点としては，このように光パルスの特定のパラメータのみを独立に，容易に変化させることが可能になったことによって，光解離過程の最も重要なパラメータを探索し，その光応答を調査するような実験が行えるようになった点が重要である．

7.4.3 適応制御による光解離最適化実験

実験システム

レーザシステム及び，TOF-MS 検出器は引き続き同じ設定で実験を行なった．但し，本システムを適応制御に用いるためには高い SN で信号を高速に取得する必要があるので，Fig. 7.21 に示される実験システムブロックを構築した．従来の実験では MCP から信号を測定するために直

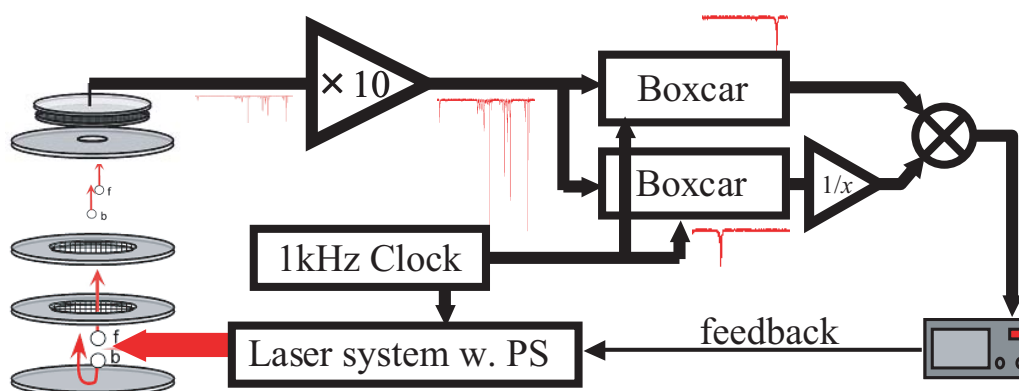


Fig.7.21 Experimental diagram of adaptive dissociation control of ethanol molecule. PS denotes a $4f$ pulse shaper with phase only LC-SLM.

接，デジタルオシロスコープを用いていたが，それでは信号の積算に時間がかかる．そこで，アナログ回路である BoxCar アベレージャー (Stanford Research Instruments 社製 SR250 Gated Integrator) を用いた．但し，MCP から信号は数 mV と微弱なために，BoxCar に直接信号を入力すると，BoxCar 内部で発生する信号ノイズ源が問題となったために，電圧プリアンプ (エヌエフ回路設計ブロック社製 BX-31A) を MCP 直後に配置して，実験条件に応じて信号を 10 倍又は 100 倍に増幅した．2 台の BoxCar はレーザシステムと同期をとり，それぞれ分子量が 29 及び 31 に対応する信号を時間ゲートをかけて取り出して，積算しその信号を元に C-O 結合解離と C-C 結合解離の反応比を最適制御した．BoxCar の信号積算時間は 0.3 ms 即ち 300 パルスを積算する設定にした．

分散係数を制御パラメータとした場合

はじめに行なった最適化制御実験では波形整形器で加える位相変調を 2 次分散から 5 次分散に限った．光パルスの分散 β を

$$\beta(\omega) = \frac{1}{2!}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{3!}\beta_3(\omega - \omega_0)^3 + \frac{1}{4!}\beta_4(\omega - \omega_0)^4 + \frac{1}{5!}\beta_5(\omega - \omega_0)^5 \quad (7.6)$$

と 5 次の分散係数までテイラー展開を行ない， β_2 から β_5 までの係数を変化させた．

その実験結果を Fig. 7.22 に示す．Fig. 7.22 の縦軸は BoxCar からされる信号強度から求めた

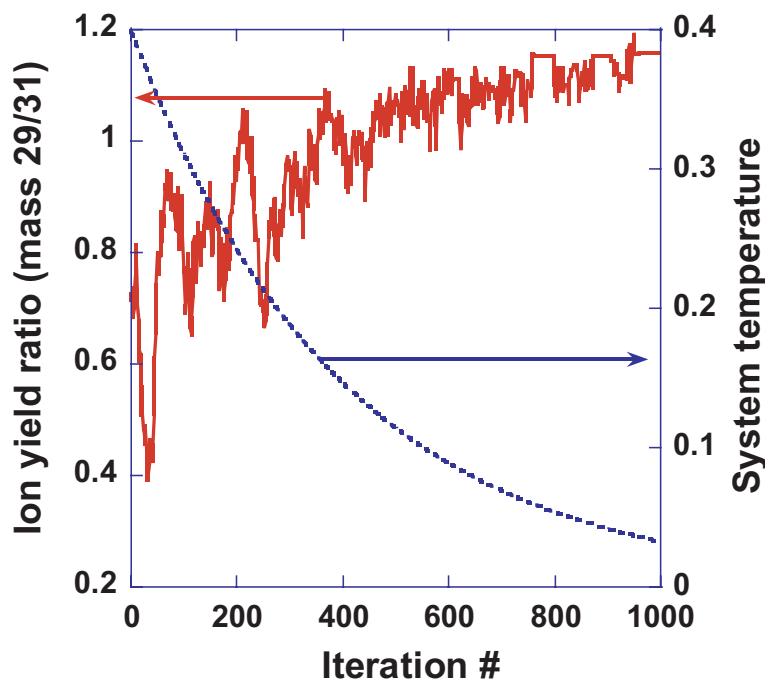


Fig.7.22 The solid line represents the ion yield (mass 29/31) with respect to iteration number, when the dispersion coefficient from β_2 to β_5 are optimized. Mass 29 corresponds to fragment ions produced by C-O bond breaking and 31 to C-C bond breaking. The initial coefficient parameter are $\beta_2 = 5 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$, $\beta_3 = \beta_4 = \beta_5 = 0$. The ion yield when $\beta_2 = 0$ (Fourier transform limited pulse) is 0.47.

29/31 のイオン比であり，最適化制御を用いてこの信号強度比を最大化した．これは C-O 結合の解離がより起きやすくなる光パルスを探していることに対応する．フーリエ限界パルス時のイオン比が 0.47 であったので，フーリエ限界パルスを照射した場合と比較すると，約 2.5 倍反応比が最適化されたことになる．

このときの SA のパラメータは，初期温度 $T_{\text{ini}} = 4.0 \times 10^{-1}$ ，温度下げ率 $\eta = 9.975 \times 10^{-1}$ であり，分散値の 1 iteration 毎の変化量は， $\Delta\beta_2 = 1 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$ ， $\Delta\beta_3 = 1 \times 10^{-5} \text{ ps}^3$ ， $\Delta\beta_4 = 1 \times 10^{-7} \text{ ps}^4$ ， $\Delta\beta_5 = 1 \times 10^{-9} \text{ ps}^5$ とした．このとき，Regular, Reject, Accept はそれぞれ

れ 352, 338, 315 であり, 最適化後の各分散値は $\beta_2 = 2.49 \times 10^{-2} \text{ ps}^2$, $\beta_3 = 1.40 \times 10^{-4} \text{ ps}^3$, $\beta_4 = 1.54 \times 10^{-6} \text{ ps}^4$, $\beta_5 = 1.49 \times 10^{-8} \text{ ps}^5$ であった. この分散パラメータに対応する位相マスク関数を Fig. 7.23 に示す. この位相マスク関数の形状から, 最適化された分散パラメータは大

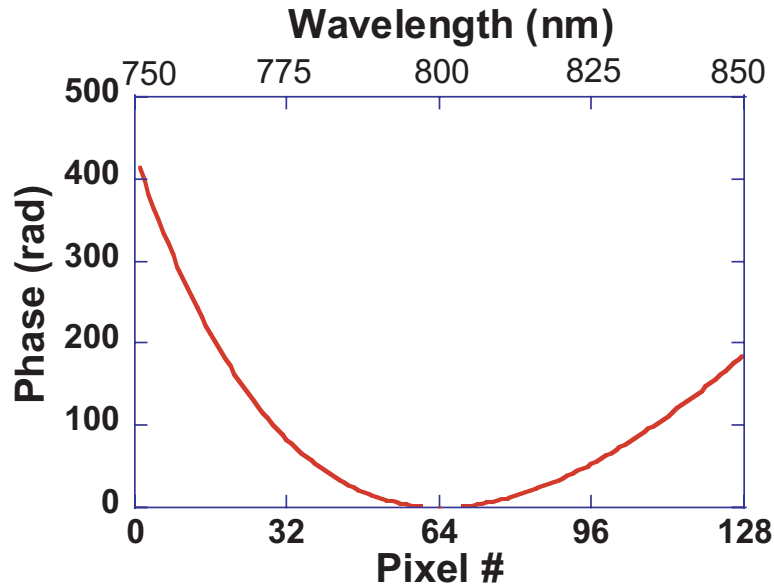


Fig.7.23 Optimized mask function when dispersion coefficients are changed with adaptive optimization algorithm. Large second order dispersion (β_2) and small high order dispersion is observed from this mask.

きな 2 次分散を持ち, 高次分散の値は比較的小さいことがわかる.

各分散係数とイオン比 (コスト) との関係を知るために, それぞれの分散係数と最適化中のコストとの相関を調べた図が Fig. 7.24 である. この図は iteration には関係なく, 横軸に分散係数とそのときに得られたコストをプロットした. Fig. 7.24 において, β_3 以上はほとんど相関が見られないのに対して, β_2 とイオン比の関係を示す Fig. 7.24(a) には明確な相関が見られる. ところで, この実験を行なったときには, 初期マスクとして $\beta_2 = 5 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$ の正チャープを加えていた. それは, フーリエ限界パルス照射した場合の TOF 信号強度と線形チャープが値を持ったときの信号強度の変化が大きいため, プリアンプのダイナミックレンジが不足している影響で, 途中で設定を変更しなくては正確に信号を測定できなくなることを防ぐための技術的な理由からである. ここで, Fig. 7.24(a) で示す β_2 の値が, 正の値しか取らないのは, 本実験を開始する際の初期 β_2 に正の値を与えたからである. すでに, 線形チャープを変化させた実験において, チャープ量が大きいほど 29/31 のイオン比が増加することが判明している. 即ち正の 2 次分散をスタートとすれば, そこからフーリエ限界パルス ($\beta_2 = 0$) を乗り越えて負の方向に最適化するためには, かなり初期温度を高く設定し, 温度もゆっくりと冷却する必要がある.

実際に, Fig. 7.25 に初期チャープ値以外は全く同一条件で実験を行なった結果を示す. この

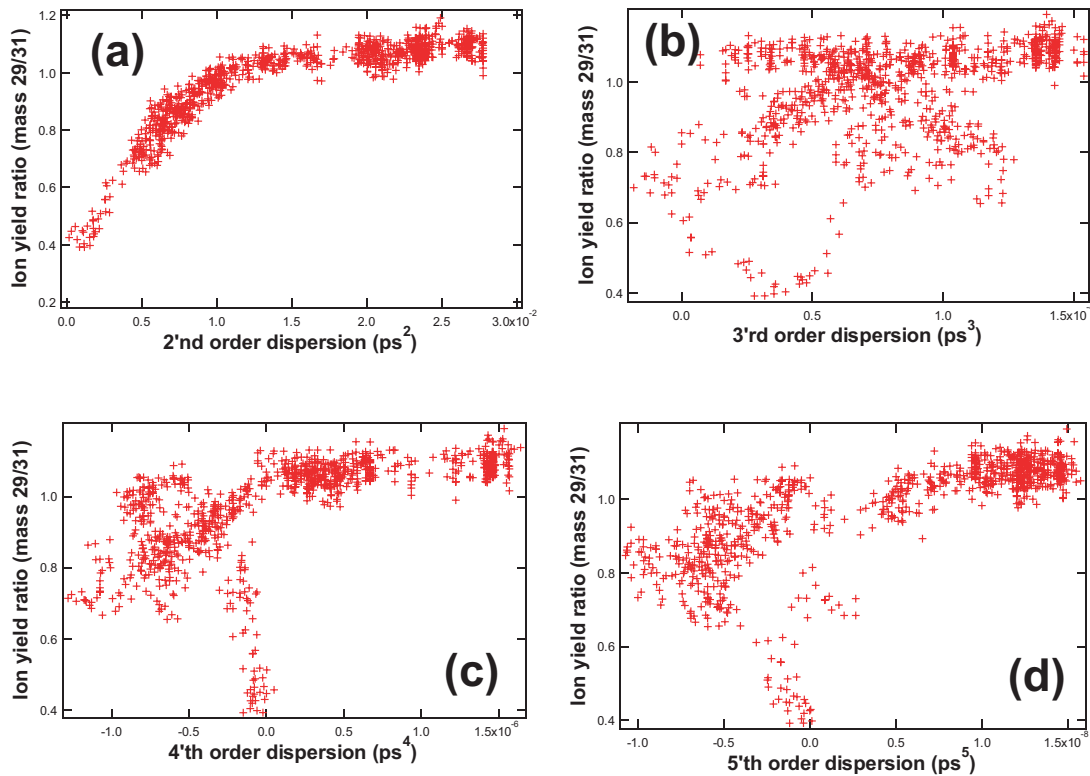


Fig.7.24 The ion yield ratio (mass 29/31) in respect to dispersion coefficient. (a) Second order dispersion, (b) third order dispersion, (c) fourth order dispersion, (d) fifth order dispersion. A correlative relation is observed between second order dispersion and ion yield ratio.

ときには初期マスクに $\beta_2 = -5 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$ を与えた。このときには, Regular, Reject, Accept はそれぞれ 347, 347, 310 であり, 最適化後の各分散パラメータは $\beta_2 = -2.21 \times 10^{-2} \text{ ps}^2$, $\beta_3 = 1.37 \times 10^{-4} \text{ ps}^3$, $\beta_4 = 2.98 \times 10^{-7} \text{ ps}^4$, $\beta_5 = 1.31 \times 10^{-8} \text{ ps}^5$ であった。Fig. 7.26 (a) で示されるように, 今度は β_2 が負になる方向に最適化が進んだ。

なお, Fig. 7.22, Fig. 7.24 の縦軸は, 29/31 の信号の強度 (面積) 比であるが, Fig. 7.20 と比較する場合には, フーリエ限界パルスでの反応比で規格化する必要があるので, 0.47 で割ればよい。一方, Fig. 7.25, Fig. 7.26 で示した実験の時のフーリエ限界パルス時の 29/31 の信号比は 0.374 であったので, その値で割ればよい。

分散係数を適応制御のパラメータとした場合でも, 線形チャープを変化させた場合のイオン比とさほど違いは観測されなかった。また, ここでの結果はパルス幅に大きな影響を与える β_2 とイオン比には関係が認められたものの, パルス形状に大きく影響を及ぼす特に β_3 や β_5 等の奇数次の分散係数とイオン比の間には特に相関は認められなかった。この実験からも, エタノールの光解離において, LDPES 上の波束を C-O 結合解離方向に流入させるための最も重要な要素は, LDPES が核波束が移動するために十分な長さ存続する事だと確認された。

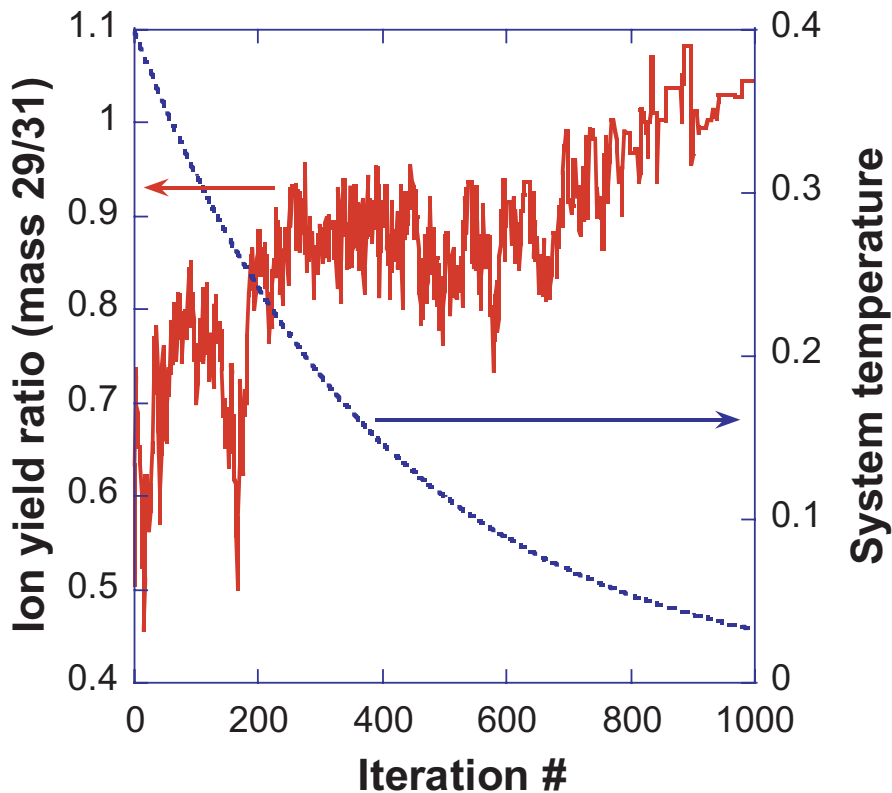


Fig.7.25 The solid line represents the ion yield (mass 29/31) with respect to iteration number, when the dispersion coefficient from β_2 to β_5 are optimized. Mass 29 corresponds to fragment ions produced by C-O bond breaking and 31 to C-C bond breaking. The initial coefficient parameter are $\beta_2 = -5 \times 10^{-3} \text{ ps}^2$, $\beta_3 = \beta_4 = \beta_5 = 0$. The ion yield when $\beta_2 = 0$ (Fourier transform limited pulse) is 0.37.

スペクトル位相を 128 ピクセル化した場合

次に位相分散係数を波形制御のパラメータとするのではなく、波形整形器がより広い解空間を探索することができるように、LC-SLM の 128 ピクセルを独立に動作させて、スペクトル位相を最適化した。実験は同じシステム上で行なった。アルゴリズムに与えた実験パラメータは、グレーレベル $G = 2\pi/512 \text{ rad}$ 、初期温度 $T_{\text{ini}} = 4.0 \times 10^{-1}$ 、温度下げ率 $\eta = 9.975 \times 10^{-1}$ であった。また、この実験では、1 iteration 毎に変化させるピクセル数を 16 に固定し、また 1 iteration 毎に変化可能な最大位相変調量を $\Delta\phi_{\text{max}} = \pm 2\pi/16$ に設定した。アルゴリズム上ではグレーレベルは非常に細かく設定したが、LC-SLM を駆動するドライバの印加電圧分解能によって決定する位相分解能が $2\pi/220$ であるために、これが本実験の位相分解能を決定した。

最適化の様子を Fig. 7.27 に示す。初期マスクはほぼ限界パルスを与える Null マスクに設定した。Iteration 開始後数回は信号強度が強すぎ測定機器がオーバーロードするが、数回マスクを書

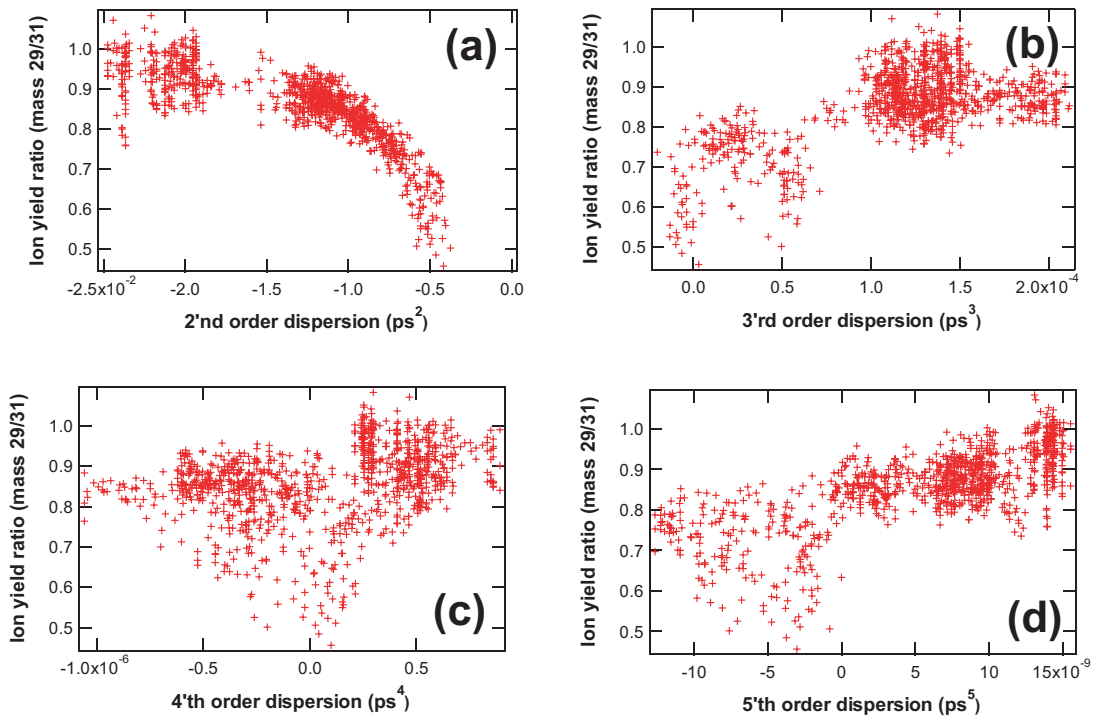


Fig.7.26 The ion yield ratio (mass 29/31) in respect to dispersion coefficient. (a) Second order dispersion, (b) third order dispersion, (c) fourth order dispersion, (d) fifth order dispersion. A correlative relation is observed between second order dispersion and ion yield ratio.

き換えると信号強度が低下し正しいイオン比を測定可能となる。

Fig. 7.27(a) の実験結果より Mass 29/31 のイオン比がアダプティブ開始直後では 0.2 であったところ約 5 倍近くまで最適化されていることがわかる。Fig. 7.20 で示されるチャープ実験と比較するためには、Fig. 7.27(a) の縦軸を 0.2 で割れば良い。本実験では、コスト関数が比較的ゆっくりと上昇している。これは、1 iteration 毎に変化可能な位相変調量を小さく設定したことと、1 回に変化させる位相ピクセル数を固定したからである。実際に 1 iteration 毎のマスク変化量を大きく設定すると、数 100 回の iteration でコストが急激に上昇する。本実験でマスクをゆっくりと変化したのは、解が急速に最適値に近づくことによって局所解に陥る危険性を嫌ったからである。

Fig. 7.27(b) には、最適化された位相マスク関数を表示した。

さらに、Fig. 7.28 に最適励起波形を TADPOLE 測定した結果から再構築した波形のスペクトルグラムを表示した。時間振幅はかなり複雑に振動している。一方、周波数は時間に対してほぼ均一であり、チャープの情報などは読みとることはできない。但し、最適パルスの電界持続時間は 1 ps を超えている。本スペクトルグラムは試行毎に異なる分布が得られる。但し上記に挙げた ps を超える時間窓や時間振幅の複雑な変動という特徴は例外なく毎回得られる。このことから、C-O 結合の解離方向へ核波束が流れるためには、十分に長い電界持続時間が必要であることがわ

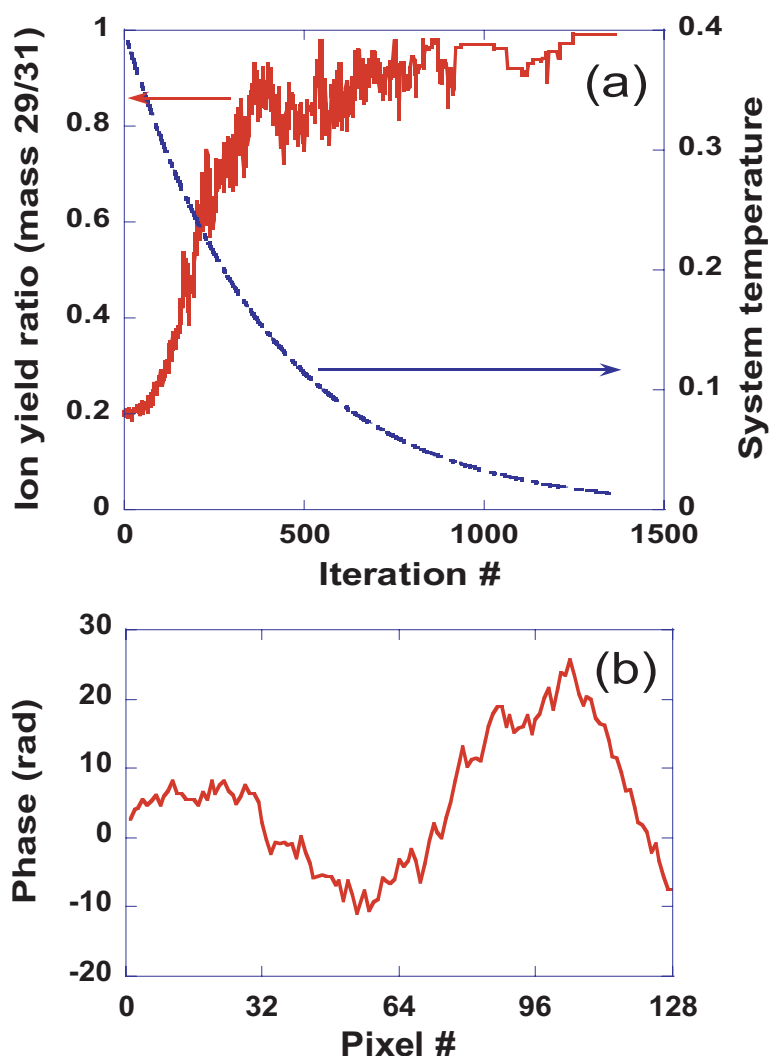


Fig.7.27 (a) Cost function in respect of iteration number. The ion yield (mass 29/31) is enhanced, where the C-O bond dissociation is maximized in respect to C-C bond dissociation. The optimized ion yield is roughly same as maximum ion yield obtained from chirp experiment shown in Fig. 7.20.

かった。

フロケ理論によって導出されたドレスト状態では、光電界包絡線はキャリア振動に対して変化が十分にゆっくりであることが請求されている。Fig. 7.28 の実験結果からは一見ドレスト描像が成り立たないようにも思われるが、M. Kovalkov と B. Schmidt によれば、数サイクルパルスにおいてもかなり高い近似でドレスト描像が成り立つことが理論的に示唆されている⁵¹⁾。スペクトルグラムで現われる時間振幅振動はフーリエ限界パルス以上の細かな構造を取ることはないので、そのことからこの実験結果は LDPES の描像内で議論できる。そこで本実験結果を LDPES 上の波束の流れとして理解すると、電界の存在によって分子が LDPES を形成している時間が十分

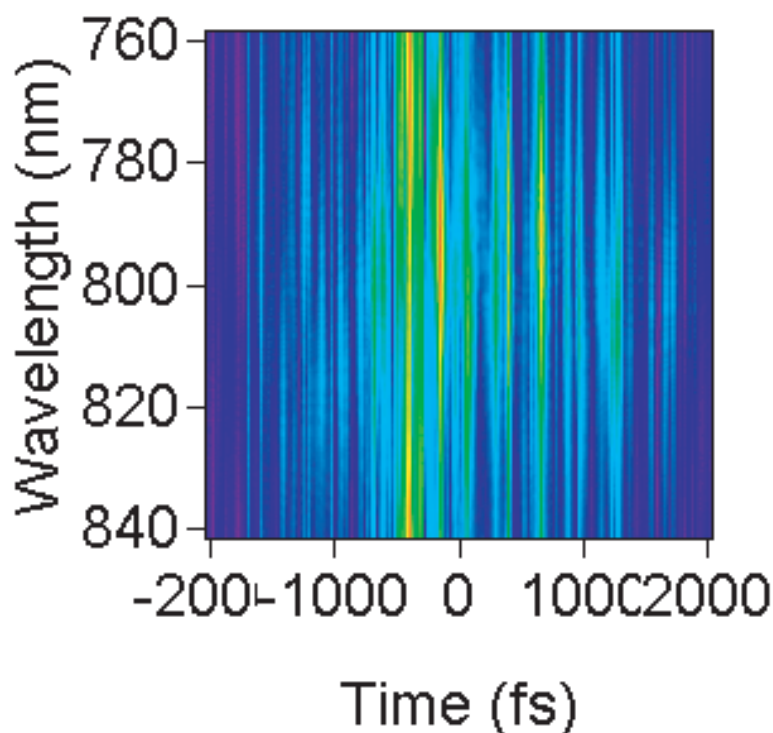


Fig.7.28 Spectrogram distribution of the optimized waveform reconstructed from TADPOLE measurement. Abrupt amplitude modulation can be observed, while no particular characteristics in wavelength can be observed. The electrical field lasts over 1 ps.

長いことが、波束を C-O 解離に流す重要な要素になっているものと予想できる。

7.4.4 本節のまとめ

再生増幅器前置き型波形整形システムを用いることによって波形整形器を損傷することなく TW/cm^2 オーダーの時間波形整形場が得られ、これは高強度光化学分野に多大な貢献をする。また増幅器前に波形整形器を設置することによって空間プロファイルの変調無しに変調させることが可能である。

本来、目的とする分子システムのハミルトニアンが記述できるときにはその波形を用意することが可能であれば非常にインパクトがあるので、その目的のためにも本研究の高精度波形整形システムは貢献する。しかしながら一般にはそのハミルトニアン自体が知られていなく、それを解明するために整形波形を照射しその光応答を調べる方が一般的である。高精度波形整形システムが、こうした実験を遂行する上で重要な貢献をすることをエタノールの光解離制御実験を通じて明らかにした。他のパラメータを変化させることなくシステムティックにパルスの一つのパラメータのみを変化させることが可能なシステムを用いることによって、そのパラメータの解離過

程への及ぼす影響を考察することが可能になる。

さらに本節では、光物質相互作用の結果である、光解離のイオン比を閉ループの指標として最適励起波形を求めた。最適励起波形の時間幅は 1 ps を超える程度の長さを持つことがわかった。但し、この閉ループ制御実験のみを行なったのでは、その実験結果から、時間幅が重要であるという知見を得ることは困難である。この電界の持続時間という着眼点は線形チャープを変化させる実験を併用することによって初めて得られるものであり、こうした複合的な実験を行なうことはこうした分子システムでは特に重要である。

本実験はエタノール分子の強電場中での振る舞いを明らかにしたのみではなく、こうした実験手法の重要性を示した。これからの波形整形システムにはこうした様々な実験手法を与える能力が備わっている必要がある。こうしてあるパラメータに着目してその依存性を観測する手法と閉ループ制御は共に今後のコヒーレント制御科学における重要な位置を占める。

7.5 本章のまとめ

本章では、光プロセス及びコヒーレント制御への本波形整形システムの応用例を示した。

始めに、Si サンプルへのアブレーション実験を通じて本波形整形システムで得られる光パルス強度が光プロセスを行なうのに十分であることを確認した。また、波形整形システムをスペクトルホログラフィック光加工に用いることによって、機械的な動作をさせることなく、時間波形を変えるのみで加工パターンを変化できることを示した。

次に、フェムト秒レーザーパルスを色素に照射して光物質相互作用の結果である蛍光強度を観測し、それを閉ループの指標とした適応制御実験を行ない、本システムが閉ループ制御に用いることができることを示した。コヒーレント制御においては純粋に波形のみを変化したい場合がほとんどであるので、波形整形器の時間空間結合効果を緩和させる前置き型波形整形システムは特に有効である。本実験は単純に本システムの適用例としてのみ興味深いだけに限らず、こうした一光子あるいは多光子蛍光励起過程は蛍光励起顕微鏡において生体サンプルを測定するのみ用いられているために工学的にも興味深い。多光子蛍光励起顕微鏡は生体のバックグラウンドフリーの 3 次元画像を得ることができ非常に有用なツールであるが、光を当て続けることによる色素の褪色は問題である。より効率的に蛍光が観測される励起波形を見つけることが可能であれば褪色の問題が改善されることが期待される。

一方、エタノールの光解離反応制御実験では光パルスのチャープあるいはパルス幅をパラメータとして変化させることによって、チャンネル分岐のパラメータ依存性を観測した。こうした、特定のパラメータのみを高精度にシステムティックに変化させることの可能なシステムを開発することが、本例で示したように物理モデルの解明に特に貢献することを初めて実証した。さらに、光物質相互作用を閉ループの指標とすることによって、光解離を最適化する実験を行なった。得られる波形は複雑であり、この実験結果単独では物理現象を解明するには至らないが、光をパラ

メータ化した光応答実験と合わせると、物理現象を明らかにできる。本章ではこうした実験手法の有用性をエタノールの光解離反応制御実験を通じて明らかにした。

本研究で構築した波形整形システムをさらに発展させ、現在よりもさらに自由に光パルスを設定することが可能になれば、分子の光による操作性は更に向上し、従来では起きえなかった新たな反応経路を発見するようになるかもしれない。この場合には、ファインケミカルの分野に大きく貢献することが期待され、波長選択性や整形パルスの時間分解能の向上など本波形整形技術のさらなる向上がこれからも求められる。

参考文献

- [1] X. Liu, D. Du, and G. Mourou, “Laser ablation and micromachining with ultrashort laser pulses”, *IEEE J. Quantum Electron.*, **33**, 1706–1716, (1997).
- [2] F. Korte, J. Serbin, J. Koch, A. Egbert, C. Fallnich, A. Ostendorf, and B. N. Chichkov, “Towards nanostructuring with femtosecond laser pulses”, *Appl. Phys. A*, **77**, 229–235, (2003).
- [3] M. Masuda, N. Aoki, Y. Cheng, K. Sugioka, K. Midorikawa, K. Toyoda, M. Kawachi, and K. Shihoyama, “3-D microfabrication in photosensitive glass by femtosecond laser”, *Proc. SPIE-Int. Soc. Opt. Eng.*, **4830**, 576–580, (2003).
- [4] S. Kawata, H. B. Sun, T. Tanaka, and K. Takada, “Finer features for functional microdevices”, *Nature*, **412**, 697–698, (2001).
- [5] J. Serbin, A. Egbert, A. Ostendorf, B. N. Chichkov, R. Houbertz, G. Domann, J. Schulz, C. Cronauer, L. Frölich, and M. Popall, “Femtosecond laser-induced two-photon polymerization of inorganic-organic hybrid materials for application in photonics”, *Opt. Lett.*, **28**, 301–303, (2003).
- [6] K. Kawamura, T. Ogawa, N. Sarukura, M. Hirano, and H. Hosono, “Fabrication of surface relief gratings on transparent dielectric materials by two-beam holographic method using infrared femtosecond laser pulses”, *Appl. Phys. B*, **71**, 119–121, (2000).
- [7] K. Kawamura, N. Sarukura, M. Hirano, and H. Hosono, “Holographic encoding of fine-pitched micrograting structures in amorphous SiO₂ thin films on silicon by a single femtosecond laser pulse”, *Appl. Phys. Lett.*, **78**, 1038–1040, (2001).
- [8] H. O. Jeschke, M. E. Garcia, M. Lenzner, J. Bonse, J. Krüger, and W. Kautek, “Laser ablation thresholds of silicon for different pulse durations: theory and experiment”, *Appl. Surface Science*, **197–198**, 839–844, (2002).
- [9] T. Tanabe, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Spatiotemporal measurements based on spatial spectral interferometry for ultrashort optical pulses shaped by a fourier pulse shaper”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**, 2795–2802, (2002).
- [10] D. J. Tannor and S. A. Rice, “Control of selectivity of chemical reaction via control of

- wave packet evolution”, *J. Chem. Phys.*, **83**, 5013–5018, (1985).
- [11] B. Kohler, V. V. Yakovlev, J. Che, J. L. Krause, M. Messina, K. R. Wilson, N. Schwentner, R. M. Whitnell, and Y. Yan, “Quantum control of wave packet evolution with tailored femtosecond pulses”, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3360–3363, (1995).
- [12] J. S. Melinger, S. R. Gandhi, A. Hariharan, D. Goswami, and W. S. Warren, “Adiabatic population transfer with frequency-swept laser pulses”, *J. Chem. Phys.*, **101**, 6439–6454, (1994).
- [13] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, “Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses”, *Science*, **282**, 919–922, (1998).
- [14] J. Kunde, B. Baumann, S. Arlt, F. M. Genourd, U. Siegner, and U. Keller, “Optimization of adaptive feedback control for ultrafast semiconductor spectroscopy”, *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**, 872–881, (2001).
- [15] S.-H. Lee, K.-H. Jung, J. H. Sung, K. H. Hong, and C. H. Nam, “Adaptive quantum control of dcm fluorescence in the liquid phase”, *J. Chem. Phys.*, **117**, (2002).
- [16] H. Kawano, Y. Nabekawa, A. Suda, Y. Oishi, H. Mizuno, A. Miyawaki, and K. Midorikawa, “Attenuation of photobleaching in two-photon excitation fluorescence from green fluorescent protein with shaped excitation pulses”, *Biochem. and Biophys. Research Comm.*, **311**, 592–596, (2003).
- [17] T. Hornung, R. Meier, and M. Motzkus, “Optimal control of molecular states in a learning loop with a parameterization in frequency and time domain”, *Chem. Phys. Lett.*, **326**, 445–453, (2000).
- [18] T. Brixner, B. Kiefer, and G. Gerber, “Problem complexity in femtosecond quantum control”, *Chem. Phys.*, **267**, 241–246, (2001).
- [19] H. Rabitz, “Shaped laser pulses as reagents”, *Science*, **299**, 525–526, (2003).
- [20] R. Itakura, K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, and F. Kannari, “Dissociative ionization of ethanol in chirped intense laser fields”, *J. Chem. Phys.*, **119**, 4179–4186, (2003).
- [21] T. Hornung, R. Meier, D. Zeidler, K. Kompa, D. Proch, and M. Motzkus, “Optimal control of one- and two-photon transitions with shaped femtosecond pulses and feedback”, *Appl. Phys. B*, **71**, 277–284, (2000).
- [22] T. Ando, T. Urakami, H. Itoh, and Y. Tsuchiya, “Optimization of resonant two-photon absorption with adaptive quantum control”, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 4265–4267, (2002).
- [23] C. M. Tesch, K.-L. Kompa, and R. V. Riedle, “Design of optimal infrared femtosecond laser pulses for the overtone excitation in acetylene”, *Chem. Phys.*, **267**, 173–185, (2001).

- [24] J. P. C. Kroon, H. A. J. Senhorst, H. C. W. Beijerinck, B. J. Varharr, and N. F. Verster, “Rabi oscillations in the optical pumping of a metastable neon beam with a cw dye laser”, *Phys. Rev. A*, **31**, 3724–3732, (1985).
- [25] D. J. Maas, C. W. Rella, P. Antonie, E. S. Toma, and L. D. Noordam, “Population transfer via adiabatic passage in the rubidium quantum ladder system”, *Phys. Rev. A*, **59**, 1374–1381, (1999).
- [26] U. Gaubatz, P. Rudecki, S. Schiemann, and K. Bergmann, “Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated Raman scattering with partially overlapping laserfield. A new concept and experimental results”, *J. Chem. Phys.*, **92**, 5363–5376, (1990).
- [27] Z. Chen, M. Shapiro, and P. Brumer, “Incoherent interference control of two-photon dissociation”, *Phys. Rev. A*, **52**, 2225–2233, (1995).
- [28] B. W. Shore, K. Bergmann, A. Kuhn, S. Schiemann, and J. Oreg, “Laser-induced population transfer in multistate systems: A comparative study”, *Phys. Rev. A*, **45**, 5297–5300, (1992).
- [29] K. Bergmann, H. Theuer, and B. W. Shore, “Coherent population transfer among quantum states of atoms and molecules”, *Rev. Mod. Phys.*, **70**, 1003–1025, (1998).
- [30] C. Pan and N. P. J. Shieh, “Dynamic pulse buildup in continuous-wave passively mode-locked picosecond Ti:Sapphire/DDI and Ti:Sapphire/IR140 lasers”, *Chinese J. of Phys.*, **37**, 361–379, (1999).
- [31] <http://www.sigma-aldrich.com>.
- [32] H. Nakamura, “Theoretical studies of chemical dynamics: Overview of some fundamental mechanisms”, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **48**, 299–328, (1997).
- [33] D. Meshulach and Y. Silberberg, “Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse”, *Nature*, **396**, 239–242, (1998).
- [34] K. Yamanouchi, “The next frontier”, *Science*, **295**, 1659–1660, (2002).
- [35] S. H. Autler and C. H. Townes, “Stark effect in rapidly varying field”, *Phys. Rev.*, **100**, 703–722, (1955).
- [36] G. Floquet, “Sur les équations différentielles linéaires à coefficients périodiques”, *C. R. Acad. Sci. (Paris)*, **91**, 880–882, (1880).
- [37] C. C. Tannoudji and S. Reynaud, “Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multi-level atom in an intense laser beam”, *J. Phys. B*, **10**, 345–363, (1977).
- [38] A. D. Bandrauk, “Molecules in Laser Fields”, Marcel Dekker Inc. (New York), (1993).
- [39] A. D. Bandrauk, Y. Fujimura, and R. J. Gordon, editors, “Laser Control and Manipu-

- lation of Molecules”, Oxford University Press, 1 edition, (2002).
- [40] R. J. Levis, G. M. Menkir, and H. Rabitz, “Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses”, *Science*, **292**, 709–712, (2001).
- [41] S. I. Chu, “Generalized floquet theoretical approaches to multiphoton and nonlinear optical processes in intense laser fields”, *Advances in Chemical Physics*, **73**, 730–799, (1989).
- [42] D. Telnov and S. I. Chu, “Floquet formulation of time-dependent density functional theory”, *Chem. Phys. Lett.*, **264**, 466–476, (1997).
- [43] S. I. Chu, “Recent developments in semiclassical Floquet theories for intense-field multiphoton processes”, *Adv. At. Mol. Phys.*, **21**, 197–253, (1985).
- [44] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and P. N. Rahman, “Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms”, *Phys. Rev. Lett.*, **42**, 1127–1130, (1979).
- [45] A. G. Suzor, X. He, O. Atabek, and F. H. Mies, “Above-threshold dissociation of H_2^+ in intense laser fields”, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 515–518, (1990).
- [46] J. H. Posthumus, A. J. Giles, M. R. Thompson, and K. .Coldling, “Field-ionization, Coulomb explosion of diatomic molecules in intense lase fields”, *J. Phys. B*, **29**, 5811–5829, (1996).
- [47] T. Seideman, M. Y. Ivanov, and P. B. Corkum, “Role of electron localization in intense-field molecular ionization”, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 2819–2822, (1995).
- [48] W. C. Wiley and I. H. McLaren, “Time-of-flight mass spectrometer with improved resolution”, *Rev. Sci. Instrum.*, **26**, 1150–1157, (1955).
- [49] A. M. Müller, B. Witzel, C. J. G. J. Uiterwaal, J. Wanner, and K. L. Kompa, “White-light-induced fragmentation of toluene”, *Phys. Rev. Lett*, **88**, 023001, (2002).
- [50] M. Machholm and A. S. Weiner, “Pulse length control of Na_2^+ photodissociation by intense femtosecond lasers”, *J. Chem. Phys*, **105**, 971–978, (1996).
- [51] M. V. Korolkov and B. Schmidt, “Quantum molecular dynamics driven by short and intense light pulses: Towards the limits of the Floquet picture”, *Comp. Phys. Comm.*, (2003). (submitted).

第 8 章

本研究のまとめ

8.1 はじめに

フェムト秒レーザーパルスは物質の超高速現象をとらえるフラッシュとしての役割に加えて、その超高速性と広帯域性を活用し振幅位相を制御すると物質の励起過程を制御し、過渡応答や終状態を光制御することができる。フェムト秒レーザーパルスはその高速性故、直接制御することは簡単ではなく制御技術の進展が重要となる。本研究では振幅と位相の両方を高精度に波形整形するシステムを構築した。特に波形整形器を増幅器前に設置することによって、光のエネルギーも空間プロファイルも一定に保つことが可能な増幅パルスの波形整形システムを構築した。本章では本研究を通じて各章で得られた重要な知見をまとめ、総括を行なう。

8.2 各章のまとめ

8.2.1 波形整形器とその時間空間結合作用 (第 2 章)

第 2 章では、 $4f$ 波形整形器の時間空間特性について詳細に議論した。本時間空間結合効果の物性応用に与える影響を示し、時間と空間を同時に考察することの重要性を指摘した。時間空間結合効果は空間域に大きな影響を与えることを超短光パルスを用いた Cr サンプルの光プロセスを用いて示した。時間空間結合効果は空間フィルタを用いることによって低減可能であるが、その場合でもスペクトル領域にも重大な影響を与えるために、仮に時間域のみを問題にする応用においても波形整形器の時間空間結合効果は恒に考慮してはならないことを示した。時間空間結合効果のスペクトル域に及ぼす影響は増幅器前置き型波形整形システムではシード光の帯域を削減する可能性があるので特に注意を払わなければならない点である。また本章で、時間と空間の同時測定が 2D-SSI を用いて可能であることを提案し、整形波形のフェムト秒オーダの時間空間プロファイルを初めて実験的に測定した。この時間空間結合効果の直接的な解決は与えてないものの、空間フィルタを適用することによってその効果を緩和させることが可能であることを

提案した .

8.2.2 適応制御波形整形 (第 3 章)

第 3 章では , 適応制御波形整形システムを構築する際にどの最適化アルゴリズムが適しているかを明らかにした . 位相変調のみによる時間振幅波形の整形をモデルとして GA 及び SA の両方についてそのパフォーマンスを調べた . その結果 , SA を用いた場合には整形波形のターゲット波形との誤差がより少ないことが計算によって経験的に明らかになった . その結果本システムでの最適化アルゴリズムには SA 法を使用する .

8.2.3 増幅器前置き型波形整形 (第 4 章)

第 4 章では , オープンループ型の増幅器前置き型波形整形実験を行なった .

はじめに増幅器前及び増幅器後のビームプロファイルを測定することによって , 増幅器によって時間空間結合が緩和することを示した . それは再生増幅器は共振器の構成を取ることで , 空間フィルターの作用を果たすためである . この知見は整形波形を超高速コヒーレント制御応用に用いる際に特に重要となる .

次に波形整形器に理論的なマスクを加えるオープンループ増幅器前置き型波形整形実験を行なった . 増幅器の高次分散の影響によって , 理論的な変調を波形整形器に与えても , 増幅器の高次分散が補償されていない場合には , 増幅器後の波形はかなり精度が悪い . 増幅器の高次分散は波形整形器自体で取り除くことができ , その場合のオープンループ波形整形はある程度の性能を示したものの , 測定誤差や非線形効果が存在するために , さらに高精度な波形整形を行なうためには , 閉ループ制御システムを構築する必要があることが判明した .

また , 波形整形器に振幅変調を加えると , より自由度高くターゲット波形を設定可能であることを示した . 本章ではシード光にスペクトル振幅関数を与えることによって CPA の利得の狭窄化の効果を補償し , CPA からの出力パルスを通常動作している場合よりもより短くすることも可能である事を示した .

8.2.4 FROG 画像参照適応制御波形整形 (第 5 章)

第 5 章では , FROG 画像を参照することによって , 振幅位相の波形整形を行なった . FROG 画像には振幅と位相の両方の情報がすでに含まれているので , FROG 画像を最適化の指標にすることによってその両者を最適化制御した . この点が本システムで特に新しい .

本章の前半では LC-SLM を用いた $4f$ 波形整形器による位相変調のみの波形整形のパフォーマンスを議論した . このように仮にスペクトル位相変調器を用いた場合でも , FROG 画像は振幅位相の両方の情報が含まれているため , 振幅と位相の両方を同時にターゲットに取りうる . 本シス

テムは FROG 画像を参照することによって増幅フェムト秒レーザーパルスの振幅位相の両方を最適化するはじめてのシステムであるが，FROG 測定を用いたのでは測定波形の精度の確保に限界があり，さらなる高精度化は難しいことも明らかにした．

本章の後半では AOPDF 波形整形器を用いた振幅位相変調による波形整形システムのパフォーマンスを議論した．振幅変調を加えることができるためにターゲット波形がより自由に設定可能になった．但し，増幅器へ入射させることが可能なスペクトル幅には下限があるために，長いパルス幅をターゲット波形とすることはできない．

8.2.5 TADPOLE 参照補正波形整形 (第 6 章)

第 6 章では，TADPOLE 測定を用いてシステムの高精度化に取り組んだ．また本測定は直接，振幅位相情報が得られるので，その情報を元に補正信号を波形整形器に加える閉ループを構築した．本章の前半では位相の補正ループのスキームによる TADPOLE 参照波形整形システムについて述べた．本補正ループを用いることによってわずか 2~3 回程度の補正で目的波形が得られることがわかった．また本補正信号は波形依存であり，増幅器の非線形性を補償している事を示した．後半ではスペクトル振幅位相の補正ループのスキームによる波形整形システムについて述べた．スペクトル振幅を補正すると CPA の増幅器での時間波形が変化するので，増幅器の自己位相変調効果によって AM-PM 変換が起きる．しかし位相変調はほぼ線形伝搬するので本システムは十分適用可能である．従って振幅位相変調のスキームにおいても 2, 3 回程度の補正によって目的波形が得られた．

本章では，時間領域，スペクトル領域共に複雑な構造を持つパルスの設計を試み，数 ps の時間窓を持ち， ~ 100 fs で振幅が変動する時間周波数積の大きなパルスの設計を実現した．

8.2.6 波形整形システムの光プロセス及び超高速コヒーレント制御への応用 (第 7 章)

第 7 章では，高精度波形整形システムを用いた光プロセス応用及び，超高速コヒーレント制御応用を示した．増幅器前置き型波形整形システムを用いると空間プロファイルを変化させることなく時間波形のみを変化させることが可能である．始めにスペクトルホログラフィーを用いた Si 表面への光プロセス応用を示した．その結果，機械的操作なしで，加工パターンを変化させることができることを示した．

超高速コヒーレント制御実験への適用例として，色素の励起最適化実験及びエタノール分子の光解離実験を行なった．色素の励起の最適化実験では，色素の最適励起波形がわからなくとも，光物質相互作用の結果を最適化の指標とした閉ループ制御を適用することによって，最適励起波形を実験室内で求める事が可能であることを示した．波形整形システムは十分に精度が高く最適励起波形にどのような特性が必要であることを明らかにすることが可能であり，本システムを用いた

閉ループコヒーレント制御がターゲットシステムの解明に有用な情報を出力する事を示した。その結果、一光子吸収過程においては線形チャープパルス照射した場合に、二光子吸収過程においてはフーリエ限界パルス照射した場合に、最も蛍光強度が最大化されることがわかった。

エタノールの光解離反応制御実験では、光物質相互作用を指標とした閉ループを用いることなく物性モデルを解明した。本実験では光パルスの特定のパラメータのみを正確に制御することによって、光解離反応のパラメータ依存性を解明した。本例では線形チャープをパラメータとしてその光解離への依存性を調べた。エタノール分子の C-C 結合及び C-O 結合の光解離に着目したときに、その解離がチャープに依存して変化することを示した。またチャープの正負には依存性が見られないことから、どの光解離のチャンネルが開くのかはパルス幅に依存することがわかった。こうして、光パルスのあるパラメータのみ正確に制御できることによって、複雑な分子においても、単純なモデルによって物理を記述できるようになった。一方、光解離の結果得られるフラグメントイオン比を直接閉ループの指標とすることによって、C-O 結合解離に必要な最適励起波形を求めた。その実験結果単独では物理を読みとることは難しいが、光パルスのパラメータ化の実験と合わせることによって、波束の制御に必要な光パルスの特徴が明らかになった。本実験を通じて波形整形システムが様々な実験応用に十分適用できることを示した。

8.3 総括

本研究では増幅器前置き型波形整形システムを構築した。振幅位相の両方を正確に測定することによってその両方をターゲットとして増幅フェムト秒レーザーパルスを整形するシステムを構築した。本研究で行なった特に重要な項目を挙げると、

1. 波形整形器の時間空間結合効果の定式化とそのコヒーレント制御への影響の考察
2. 適応制御による FROG 画像参照 増幅パルスの振幅・位相波形整形
3. 誤差を補正するスキームによる TADPOLE 参照 増幅パルスの振幅・位相波形整形
4. 本波形整形システムの超高速コヒーレント制御への応用

である。これらの実験を通じて確認されたことは、

1. 増幅パルスの振幅及び位相の両方の閉ループ制御による整形の実現
2. 増幅器前置き型波形整形システム構成を取ることによる、
 - (a) 波形整形器の時間空間結合効果の影響の緩和
 - (b) 得られる光パルスの光強度の向上
3. 約 1 ps の時間窓を持ち、数 100 fs で振幅が変調する増幅パルスの振幅位相波形整形の実現

である。

本波形整形システムを用いると、光パルスのパラメータを正確に制御することができ、その光応答を調べる様々な超高速コヒーレント制御に用いることができる。これを蛍光色素の励起最適化制御やエタノールの光解離実験を通じて明らかにした。現在は分子構造が簡単でない限り、ターゲット物質の相互作用ハミルトニアンを記述することは難しい。物質の内部構造は、入力を変化させた時の出力の変化から伺い知るしかない。本研究でのコヒーレント制御応用では、実際にパルス幅（線形チャープ）という光の特定のパラメータに着目してそれをシステムティックに変化させた。光解離反応の応答が大きく変化することがわかり、その結果から内部物理モデルを構築できた。こうした光パルスのパラメータ制御による物理解明の手法は超高速コヒーレント制御では始まったばかりであり、本波形整形システムの構築はこうした内部物理の解明の手法に具体的な実験手法を与えた。より多面的に物理モデルを解明するためにはパルスの立ち上がり時間、立ち下がり時間、中心波長、光強度、スペクトル幅やパルス幅など様々なより複雑なパラメータを制御できる必要がある。本研究で構築した波形整形システムがこうしたいずれの光パラメータの制御にも対応できるようにその性能を向上させ続けることは今後も重要である。特に、波長の選択性はまだ不十分であり、今後の改善が望まれる。

コヒーレント制御での究極の目的としては、ターゲット物質のハミルトニアンを正確に記述しその物質の量子状態を理論通りに正確に制御することであろう。これが実現されると、様々な工学応用が開けると期待される。物理的にはハミルトニアンが記述されている時に理論的な波形を照射して目的とする量子状態を作り出すことは理論の確認でしかないが、その作り出した量子状態が量子計算機や光・光制御などに用いることができるのなら工学的には最も興味深い。そのためには理論的な励起波形を忠実に再現できなくてはならない。光物質相互作用の結果を最適化の指標として実験制約条件内で最適波形を求める試みはこれまでも行なわれてきているが、理論的な波形を積極的に設計することを目指した波形整形システムを構築する試みは、これまでほとんど行なわれて来ていない。フェムト秒レーザーの波形整形システムは、従来は時間振幅のみをターゲットとして波形整形していたが、本研究で構築した波形整形システムは、増幅パルスの時間振幅と位相の両方を高精度に波形整形できることから、最も忠実にターゲット波形を再現可能なシステムであり、そのために当該レーザーシステムで最高の性能を示している。このように理論的な波形を実現可能なシステム構築を実現する事は重要であり、それは、本研究で達成したような時間周波数積の大きなパルスの高精度波形整形の延長線上にある。現時点でのシステム性能では量子化学計算で予想されている波形を寸分の狂いもなく再現することはまだ難しいが、時間分解能の向上、周波数選択性の向上がシステム全体で実現すれば、こうした波形が設計可能になる日も近いであろう。

フェムト秒レーザーシステムの高精度波形整形システムによって、フェムト秒レーザーパルスが単なる光源から、より機能的な道具になることは確かである。本システムは、超高速コヒーレント制御応用に用いてその威力を発揮する。光物質応答を手がかりに物質のハミルトニアンを解明し、究極的にはハミルトニアンが記述されるターゲットに対して理論的な励起波形が実験的に再現す

ることができるようになれば，ファインケミカル精製や量子コンピュータの実現のために量子ゲートの初期化，超高速光・光スイッチング応用など様々な工学的応用が開けると期待する．

謝辞

本研究は、慶應義塾大学理工学部電子工学科教授 神成文彦博士の御指導のもとで行なわれました。本研究を遂行するにあたり筆者に研究の場を与えてくださり、研究の全体を通じて貴重な助言をして頂いた神成文彦博士に心から感謝の意を表します。研究活動を通じて物事のとりえ方、考え方、発表の仕方など多くのことを学ぶことができました。また、筆者がこうして複数回国際学会で発表する機会に恵まれたのも日頃より貴重な御助言を頂いていたためであり、その他にも共同研究の機会、海外研修の勧めなど数多くの貴重な御助力や機会を提供して頂きました。本研究を通じて学び経験した事項は筆者がこれからも研究を続ける上で特に重要になると考えています。

本論文を執筆するにあたり祖筆を丁寧にみて頂き、本論文を査読して頂いた、慶應義塾大学理工学部電子工学科教授 梅垣真祐博士、同大学理工学部システムデザイン工学科教授 大森浩充博士、同大学理工学部電子工学科助教授 津田裕之博士には心から感謝申し上げます。梅垣真祐博士には筆者が研究を開始した当初から光物理に関する貴重な知識を与えて頂きました。大森浩充博士には本研究をシステム理論の観点から見て頂き、ディスカッションを通じて筆者は新たなことを学ぶことができました。津田裕之博士には本研究を遂行中に高価な実験機器を快く提供して頂きました。心から感謝申し上げます。

さらに、筆者は共同研究を通じて研究の幅を広げることができました。東京大学大学院化学科教授 山内薫博士に感謝申し上げます。非常にダイナミックでエキサイティングな物の見方や、一見混沌としていて、重要ではなさそうに思われる実験結果から、深層に隠れている物理を解き明かされるのを目の当たりにしてとても感銘し、また非常に勉強になりました。お忙しい中矢上キャンパスまで毎日のように足を運んで頂き、物理化学の理論面のイロハから丁寧に解説して頂いた東京大学大学院化学科助手 板倉隆二博士には深く御礼申し上げます。§ 7.4.2 のエタノールの線形チャープによる光解離実験を開始した時期は、筆者はフェムト秒レーザー技術以外の研究を並列に進めていたため、数々のご迷惑をおかけしました。そうした中でも実験がスムーズに運び、非常に興味深い実験結果が得られました。ご迷惑をお詫びすると共に、心より感謝致します。共同研究を通じて筆者にとっては様々な新しい理論と知識を学ぶことができました。ここで御教授して頂いた様々な知識は、本論文を執筆中、至る所で筆者を助けてました。さらに、エタノールの光解離反応の実験を通じて、本研究で構築した高精度波形整形システムの意義を示せたことは筆者にとって非常に嬉しいことでした。

本研究は筆者一人の力でなしえるたものではありません。筆者が本研究に携わる以前から研究の基礎を築いてきて方々のおかげで、筆者は研究の方向性を決定することができました。研究の基盤を築いた高砂一弥博士(サイバーレーザ株式会社)をはじめとする研究室の諸先輩方には感謝申し上げます。佐藤正学氏(慶應義塾大学大学院理工学研究科後期博士課程)は筆者が研究を始めた時同じチームで研究を行っており、本研究の初期における方向性を決定する上で重要な存在でした。

田名部宏氏(日本空港株式会社)からは研究を始めた当初に波形整形器の理論的扱いについて多くの事を学びました。特に波形整形器の時間空間結合効果の理論面から筆者に多くの指針を与えて頂きました。本研究を進めていく過程で時間空間結合の重要性を認識し、実験結果を理論と照らし合わせながら進めることができたのも氏に多くのご助言を頂いていたからです。寺村友一博士(富士写真フィルム株式会社)にはフリンジ解析プログラムの基礎を教えて頂きました。本プログラムには筆者がその後様々なシステムを構築した際に重要となるアルゴリズムが含まれています。

筆者が研究を開始した当初、レーザの取り扱いなど多岐にわたり非常に細かいところにいたるまで丁寧に御指導していただいた三浦泰祐博士(株式会社メガオプト)には深く感謝いたします。さらに武井信達氏には筆者の研究を始めた際の学士時代に実験を丁寧に手伝って頂き、また研究に対する姿勢などを示していただきました。かさねて御礼申し上げます。また、日頃からディスカッションなどを通じて研究の面白さ、奥深さを示してくださった武岡正裕博士(独立行政法人通信総合研究所)には厚く御礼申し上げます。さらに、拓殖大学工学部助手 内田淳史博士の研究に対する姿勢は筆者に強い印象を与えました。両氏の研究に対する取り組み方は学ぶところが多く、今後も筆者の研究者としてのお手本とさせていただきます。大塚京さん(株式会社リクルート)、鈴木重成氏(日産自動車株式会社)とは同じチームのメンバーとして研究のディスカッションをすることができました。非力な筆者を支えてくださった諸先輩方に感謝申し上げます。

森島淳氏(全国朝日放送株式会社)、藤島大輔氏(株式会社 NTT DoCoMo)、島村嘉秀氏(住友商事株式会社)、持田晴夫氏(株式会社日輝)とは同輩として友人として、又何かわからないときの良き相談相手としてお世話になりました。また、本研究を遂行するにあたり筆者を励ましてくれた同輩、友人の皆様にお礼を申し上げます。

大野公久氏(東海旅客鉄道会社)、藤井康孝氏(三菱電機株式会社)、山崎智孝氏(慶應義塾大学理工学研究科修士課程)、岡本達佳氏(慶應義塾大学理工学研究科修士課程)、山中美緒さん(慶應義塾大学理工学研究科修士課程)、中村和義氏(慶應義塾大学理工学研究科修士課程)、矢澤洋紀氏(慶應義塾大学理工学部学士課程)、多田潤二氏(慶應義塾大学理工学部学士課程)の後輩諸君とは共に実験を行い共にディスカッションを行いました。この研究も彼らの協力なしには完成いたしませんでした。心から感謝申し上げます。特に、大野公久氏は § 4.4.3 及び、§ 5.4 の実験の重要な部分を共にあるいは独自に行ないました。適応制御波形整形プログラムを AOPDF で動作可能なように改良を加えるシステム構築、中心波長の異なるダブルパルス設計手法のアイデアの

提案など，彼の貢献は特に重大であります．本節は本研究の中でも重要な位置を占めております．彼の献身的な貢献がなければ本研究がこれほどにもスムーズにはいかなかったはずです．重ねて感謝申し上げます．また，岡本達佳氏，山中美緒さん，矢澤洋紀氏の3名は筆者が不在中にもエタノール分子の光解離制御アダプティブ実験を根気強く続けて頂きました．彼らの貢献によって，多くの実験ノウハウが蓄積されました．深く感謝致します．また，実験をする上で大事な清掃，整理をはじめとする雑事に積極的に協力してくれた後輩諸君には感謝致します．

電気回路設計など実験を遂行する上で非常に重要な助言，サポートしていただきました小向康夫氏（慶應義塾大学電気系実験準備室）には深く感謝いたします．また，橋本浩平氏（慶應義塾大学修士課程）にも電気回路作成時や機械加工時に良き相談相手になってもらいました．

石井清美さん（富士通株式会社）とは一部共に研究を行なった時期がありました．フェムト秒波形整形以外の分野にも触れることができ，レーザ技術について共に学ぶ良い機会になりました．筆者は本論文の完成間近に不運にもコンピュータ内のデータを喪失しそうになりました．その際には多くの方々に奔走して頂き，最悪の事態を免れることができました．特に Montien Tienprateep 氏（慶應義塾大学理工学研究科後期博士課程），には感謝申し上げます．更に氏からは，ファイバーの非線形光学効果の取り扱いについての興味深い話しをして頂きました．

また Dr. Pierre Tournois 氏（Fastlite）には AOPDF の詳細な議論と資料提供をして頂きました．感謝致します．

本論文を執筆中筆者はドイツ Hannover に滞在しており，Laser Zentrum Hannover e.V.(LZH) にて研究活動を行なっておりました．LZH では筆者は多くの光技術に触れることができ，研究の幅を広げることができました．LZH での受け入れ研究者となって頂いた Prof. Dr. Boris Chichkov 氏には感謝申し上げます．本滞在は慶應義塾大学 21 世紀 COE プログラム（アクセス網高度化光・電子デバイス技術）の援助の元を実現しました．派遣の実現には慶應義塾大学理工学部電子工学科教授 真壁利明博士（COE 拠点リーダー）をはじめとする多数の先生方のご協力がありました．重ねて御礼申し上げます．また忘れてはいけないのは，滞在先での共同研究者の Dr. Frank Korte 氏，Dipl. Jürgen Koch 氏の存在です．両氏には筆者の訪問前から，オプティクスの整備，住居の確保などに奔走して頂きました．

大学在籍中の筆者を資金面で支えてくださった，田村淳記念奨学基金，慶應義塾大学奨学金，日本育英会には感謝致します．なお筆者は 2002 年 11 月より 2004 年 3 月まで 21 世紀 COE プログラム（アクセス網高度化光・電子デバイス技術）の RA でありました．関係各位に感謝申し上げます．また筆者は慶應義塾大学大学院高度化及び先端研究費の研究援助を受けました．さらに，国際学会参加の渡航費の援助をしていただいた財団法人慶応工学会，株式会社 NTT DoCoMo には感謝申し上げます．最新の研究成果や様々な研究者と触れ合い，筆者の知識の幅を広げることができました．

最後に，本研究を遂行するにあたり，恒に理解を示して頂いた家族に感謝致します．こうしてこの研究を完遂することができたのも両親，家族の支えがあったからです．特に，恒に献身的な

援助をしてくれた愛妻あずさには心から深く感謝致します。私が研究活動に集中できるようにと数多くの事を我慢してくれたであろうと考えると本当に感謝の気持ちで一杯になります。辛いときには励まし、嬉しい時には喜びを共感し、気が緩まりそうになれば叱咤激励し、と恒に心から支えてくれました。特に本論文執筆中には妻には多大なストレスをかけてしまいました。そのためか、そのころに体調を崩してしまいました。それにもかかわらず、私のわがママを最後まで聞いてもらい、本研究をこうしてまとめることができました。妻の、心の寛大さ、勤勉さ、誠実さ、我慢強さは私がこれまで出会ったどの人よりも広く強いものだということを本論文を執筆中に改めて認識しました。妻の体調が少しずつ回復することを願いつつ、本研究を無事に遂行することができたことを心から感謝申し上げます。

2004年2月1日

田辺 孝純

T. Tanabe

略語一覽

A

AO (Acoustic-Optical)	3
AOM (Acoustic Optical Modulator)	7
AOPDF (Acoustic Optical Phase Dispersion Filter)	10
ATI (Above Threshold Ionization)	191
AWG (Arrayed Waveguide Grating)	12

B

BBO (Beta Barium Borate)	8
--------------------------------	---

C

CCD (Charge Coupled Device)	57
CEP (Carrier Envelope Phase)	84
CPA (Chirped Pulse Amplification)	5, 108
CPM (Colliding Pulse Mode-locking)	3
CW (Continus Wave)	3

D

DFM (Differential Frequency Mixing)	12
---	----

E

EA (Evolutionary Algorithm)	93
EO (Electrical-optical)	44

F

FE-CDMA (Frequency-Encoded Code Division Muxplex Access)	12
FFTM (Fast Fourier Transform phase retrieval Method)	60
FROG (Frequency Resolved Optical Gating) ..	14, 126
FWHM (Full Width at Half Maximum)	46
FWM (Four Wave Mixing)	9

G

GA (Genetic Algorithm)	19, 93
GPIB (General Purpose Interface Bus)	131
GRENOUILLE (GRating-Eliminated No-nonsense Observation of Ultrafast Incident Laser Light E-fields)	14
GS (Gerchberg-Saxton)	11
GVD (Group velocity dispersion)	4

H

HHG (High Harmonic Generation)	22
--------------------------------------	----

I

IA (Immune Algorithm)	93
IRIS (Iterative pulseform Reconstruction from Interferometric Signals)	14
ISRS (Induced Stimulated Raman Scattering) ..	20
IT (Information Technology)	1

L

LC-SLM (Liquid Crystal SLM)	7
LD (Laser Diode)	111
LDPES (Light-Dressed PES)	20, 190

M

MCP (Micro Channel Plate)	192
MEMS-SLM (Micro-Electro-Mechanical Systems-SLM)	12
MIR (Mid Infrared Radiation)	11

N

NIR (Near Infrared Radiation)	2
-------------------------------------	---

O

OCT (Optical Coherence Tomography)	22
OCT (Optimal Control Theory)	6, 18
OPA (Optical Parametric Amplifier)	5

P

PAL-SLM (Parallel-Aligned Nematic Liquid Crystal Phase-Only SLM)	7
PCF (Photonic Crystal Fiber)	22
PES (Potential Energy Surface)	20
PG-FROG (Polarization Gating FROG) ...	14, 126
PICASSO (Phase and Intensity from Cross correlation and Spectrum Only)	15
PSTM (Photon Scanning Tunneling Microscope) ..	57

S

SA (Simulated Annealing)	8, 98
SFM (Sum Frequency Mixing)	15
SHG (Second Harmonic Generation)	8
SHG-FROG (Second Harmonic Generation FROG)	14
SI (Spectral Interferometry)	15
SLM (Spatial Light Modulator)	6

SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electrical-field Reconstruction)	15
SPM (Self Phase Modulation)	9, 117
SR-FROG (Spatial Resolved FROG)	57
SRS (Stimulated Raman Scattering)	9
SSI (Spatial Spectral Interferometry)	57
STIRAP (Stimulated Raman Adiabatic Passage) . . 17	
STRUT (Spectrally and Time Resolved Upconversion Technique)	11

T

TADPOLE (Temporal analysis, by dispersing a pair of light e fields)	11, 150
TOF-MS (Time Of Flight Mass Spectrometer)	19, 192
TROG (Time-Resolved Optical Gating)	15

U

UV (Ultra Violet)	12
-------------------------	----

X

X-FROG (Cross FROG)	14
---------------------------	----

著者論文目録

本研究に関するもの

原著論文

1. T. Tanabe, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Spatiotemporal measurements based on spatial spectral interferometry for ultrashort optical pulses shaped by a Fourier pulse shaper”, *Journal of Optical Society of America B*, Vol.19, No. 11, pp. 2795-2802, (2002).
2. K. Ohno, T. Tanabe, and F. Kannari, “Adaptive pulse shaping of phase and amplitude of an amplified femtosecond pulse laser by direct reference to frequency-resolved optical gating traces”, *Journal of Optical Society of America B*, Vol.19, No. 11, pp. 2781-2790, (2002).
3. T. Tanabe, T. Okamoto, and F. Kannari, “Spectrum-holographic formation of fine etching patterns on a silicon surface with pulse-shaped femtosecond laser pulses”, *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 42, Part 1, No. 9A, pp. 5594-5597, (2003).
4. T. Tanabe, M. Yamanaka, T. Okamoto, and F. Kannari, “Compensation for a transfer function of a regenerative amplifier to generate accurately shaped ultrashort pulses in both the amplitude and phase”, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, (2004), (in press).
5. T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, “Feedback control for accurate shaping of ultrashort optical pulses prior to chirped pulse amplification”, *Japanese Journal of Applied Physics*, (2004), (in press).

その他の論文

1. 大野公久, 田辺孝純, 神成文彦, *F. Petit, *F. Verluise, *P. Tournois, (Keio Univ., *BMI)
“レーザー技術ノート：光音響分散フィルタによるフェムト秒レーザー再生増幅パルス群遅延

- 分散補償と波形整形”, レーザー研究, vol. 29, no. 8, pp. 527-531 (2001).
2. *R. Itakura, *K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, F. Kannari, (*Univ. of Tokyo, Keio Univ.), “Dissociative ionization of ethanol in chirped intense laser fields”, Journal of Chemical Physics, Vol. 119, No. 8, pp. 4179-4186, (2003).
 3. T. Yamazaki, T. Tanabe, F. Kannari, *Y. Shida, and *S. Fushimi, (Keio Univ., *NEC), “Fiber delivery of ultrashort optical pulses pre-shaped on the basis of a backward propagation solver”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 42, Part 1, No. 12, pp. 7313-7317, (2003).

国際会議発表

1. T. Tanabe, N. Takei, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Measurement for the Space and Time coupling of a Frequency Domain Pulse Synthesizer”, The 7th International Workshop on Femtosecond Technology (FST2000), p. 126, Tsukuba, June 29-30 (2000).
2. T. Tanabe, N. Takei, H. Tanabe, and F. Kannari, “Simultaneous two-dimensional Space and Time Measurement of Ultrashort Optical Pulses based on Spatial-Spectral Interferometry”, The 12th International Conference on Ultrafast Phenomena, pp. 128-130, Charleston, July 9-13 (2000): (Ultrafast Phenomena XII, Springer Verlag, T. Elsaesser *et al.* eds., Chemical Physics, pp. 138-140 (2000)).
3. T. Tanabe, N. Takei, H. Tanabe, Y. Teramura, and F. Kannari, “Measurement of Space and Time Profile of Shaped Ultrafast Optical Pulses using Spatial-Spectral Interference”, European Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe'00), p. 137, Nice, September 10-15 (2000).
4. T. Tanabe, M. Sato, K. Ohno, and F. Kannari, “Feedback controlled pulse shaping referring PG-FROG traces”, The 8th International Workshop on Femtosecond Technology, (FST2001), p. 115, Tsukuba, June 28-29 (2001).
5. K. Ohno, T. Tanabe, M. Sato, and F. Kannari, “Flexible femtosecond pulse shaping with an acousto-optic programmable dispersion filter”, The 8th International Workshop on Femtosecond Technology, (FST2001), p. 112, Tsukuba, June 28-29 (2001).
6. T. Tanabe, K. Ohno, M. Sato, H. Mochida, and F. Kannari, “Delivery of femtosecond pulses shaped in phase and amplitude through an amplifier or optical fibers with feedback control”, 2001 OSA Annual Meeting/ILS-XVII, MZ3, Long Beach, July 23-26 (2001).
7. K. Ohno, T. Tanabe, and F. Kannari, “Ambiguity-free adaptive CPA laser pulse shap-

- ing in phase and amplitude by directly referring FROG traces”, 2001 OSA Annual Meeting/ILS-XVII, MZ6, Long Beach, July 23-26 (2001).
8. T. Tanabe, M. Sato, K. Ohno, and F. Kannari, “Amplified ultrashort laser pulse shaping with feedback control referring PG-FROG traces”, The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim’01), vol. II, pp. 522-523, Makuhari, July 15-19 (2001).
 9. K. Ohno, T. Tanabe, M. Sato, and F. Kannari, “Femtosecond pulse compression and shaping for a regenerative CPA system with an acousto-optic programmable dispersion filter”, The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim’01), vol. II, pp. 188-189 Makuhari, July 15-19 (2001).
 10. K. Ohno, T. Tanabe, and F. Kannari, “Adaptive pulse shaping of amplified femtosecond pulse laser in phase and amplitude by directly referring frequency resolved optical gating traces”, The 13th International conference on Ultrafast Phenomena, pp. 202-203, Vancouver, May12-17 (2002). (Ultrafast Phenomena XIII, Springer Verlag, R. D. Miller *et al.* eds., Chemical Physics, pp. 232-234 (2002)).
 11. T. Tanabe, T. Yamazaki, K. Ohno, and F. Kannari, “Arbitral pre-shaping of amplified ultrashort laser pulse before chirped pulse amplifier or optical fiber”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/QELS 2002), CWA60, Long Beach, May 19-24 (2002).
 12. T. Tanabe, T. Okamoto, F. Kannari, *R. Itakura, and *K. Yamanouchi, (Keio Univ., *Univ. of Tokyo) “Dissociative ionization of ethanol by intense chirped laser pulses”, International Symposium in Control of Molecules in Intense Laser Fields, P-54, Tokyo, September 9-10 (2002).
 13. T. Tanabe, K. Ohno, and F. Kannari, “Feedback Control Schemes of Amplified Ultrashort Pulse Shapes in both Amplitude and Phase”, International Symposium in Control of Molecules in Intense Laser Fields, P-55, Tokyo, September 9-10 (2002).
 14. T. Tanabe, K. Ohno, T. Okamoto, and F. Kannari, “Highly accurate adaptive pulse shaping before chirped pulse amplifier referring FROG trace and TADPOLE”, OSA Annual Meeting, TuL61, Orlando, September 29-October 3 (2002).
 15. T. Yamazaki, T. Tanabe, M. Tienprateep, K. Ohno, and F. Kannari, “Pre shaped ultrashort optical pulse propagation through single mode fiber”, OSA Annual Meeting, TuL62, Orlando, September 29-October 3 (2002).
 16. T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, F. Kannari, *R. Itakura, and *K. Yamanouchi, (Keio Univ., *Univ. of Tokyo) “Dissociative ionization of ethanol by intense shaped laser fields”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO’03), CFI2, Baltimore,

- June 1-6 (2003).
17. T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, “Accurate pulse shaping with feedback control in amplitude and phase for amplified femtosecond pulses”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO’03), CThM6, Baltimore, June 1-6 (2003).
 18. T. Tanabe, M. Yamanaka, T. Okamoto, F. Kannari, *R. Itakura, K. Yamanouchi, (Keio Univ., *Univ. of Tokyo) “Fragmentation in dissociative ionization of ethanol molecules with shaped intense ultrafast laser pulses”, European Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Europe’03), ED1-5-THU, Munich, June 23-27 (2003).
 19. T. Okamoto, M. Yamanaka, T. Tanabe, F. Kannari, *R. Itakura, and *K. Yamanouchi, (Keio Univ., *Univ. of Tokyo) “Dissociative Ionization of Ethanol by Intense Femtosecond Pulses Shaped in Amplitude and Phase”, The 10th International Workshop on Femtosecond Technology (FST’2003), p. 176, Chiba, July 16-17, (2003).
 20. T. Yamazaki, K. Nakamura, T. Tanabe, and F. Kannari, “Fiber delivery of intense femtosecond pulse in normal dispersion regime”, The 10th International Workshop on Femtosecond Technology (FST’2003), p. 188, Chiba, July 16-17, (2003).
 21. M. Tianprateep, T. Yamazaki, T. Tanabe, and F. Kannari, “Control of Supercontinuum Generation in Photonic Crystal and Tapered Optical Fibers by Shaped Laser Pulses”, The 10th International Workshop on Femtosecond Technology (FST’2003), p. 189, Chiba, July 16-17, (2003).
 22. T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, “Accurate pre-shaping before a regenerative chirped amplifier in amplitude and phase for intense femtosecond pulse control”, The 10th International Workshop on Femtosecond Technology (FST’2003), p. 190, Chiba, July 16-17, (2003).
 23. *R. Itakura, *K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, and F. Kannari, (*Univ. of Tokyo, Keio Univ.), “Dissociative ionization of ethanol in chirped intense laser fields”, XXIII International Conference on Photonic Electronic and Atomic Collisions, Tu039, Stockholm, July 23-29, (2003).
 24. *R. Itakura, *K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, (*Univ. of Tokyo, Keio Univ.) “Reaction dynamics of ethanol in chirped intense laser fields”, XXIst International Conference on Photochemistry, WS4, Nara, July 26-31 (2003), (invited paper).
 25. *R. Itakura, *K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, and F. Kannari, (*Univ. of Tokyo, Keio Univ.), “Ionization and fragmentation of ethanol in chirped intense laser fields”, International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 2, Quebec, September 27-29 (2003).

26. K. Nakamura, T. Yamazaki, M. Tianprateep, T. Tanabe, and F. Kannari, “Fiber delivery of shaped femtosecond pulses in normal dispersion regime for controlling multiphoton excitation of fluorophores”, The 87th OSA Annual Meeting: Frontiers in Optics, WLL4, Tucson, October 5-9, (2003).
27. T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, F. Kannari, “Precise femtosecond pulse shaping before amplifier for study of molecular dynamics in intense laser field”, The 87th OSA Annual Meeting: Frontiers in Optics, ThDD4, Tucson, October 5-9, (2003).

国内会議発表

1. 田辺孝純, 武井信達, 寺村友一, 神成文彦, “2次元周波数分解干渉法を用いた超高速光波形整形における時間空間結合の測定”, 第47回応用物理学関係連合公演会, 28a-ZD-1, 東京, 平成12年3月28日~31日.
2. 武井信達, 塩澤真理子, 佐藤正学, 田辺孝純, 神成文彦, “装置内フィードバックによる最適化を用いたフェムト秒パルスの前置アダプティブ波形整形”, 28a-ZD-2, 東京, 平成12年3月28日~31日.
3. 佐藤正学, 田辺孝純, 大野公久, *F. Petit, *F. Verluise, *P. Tournois, 神成文彦, (慶大理工, *BMI), “音響光学分散フィルタによるフェムト秒パルス波形整形システム”, レーザー学会学術講演会第21回年次大会, 31pII9, 東京, 平成13年1月30~31日.
4. 田辺孝純, 持田晴夫, 佐藤正学, 大野公久, 神成文彦, “音響光学フィルタを併用した増幅器前波形整形”, レーザー学会学術講演会第21回年次大会, 31pII10, 東京, 平成13年1月30~31日.
5. 大野公久, 持田晴夫, 田辺孝純, 佐藤正学, 神成文彦, “音響光学分散フィルタを用いたフェムト秒パルス再生増幅器の分散補償と波形整形”, 第48回応用物理学関係連合講演会, 30p-YB-1, 東京, 平成13年3月28~31日.
6. 田辺孝純, 大野公久, 佐藤正学, 持田晴夫, 神成文彦, “FROG波形を指標とした増幅器前置き型フィードバック波形整形実験”, 第48回応用物理学関係連合講演会, 30p-YB-2, 東京, 平成13年3月28~31日.
7. 田辺孝純, 大野公久, 藤井康隆, 神成文彦, “ファイバ伝送フェムト秒パルスの前置フィードバック波形整形”, 第62回応用物理学学術講演会, 11p-P2-11, 豊田, 平成13年9月11~14日.
8. 岡本達佳, 田辺孝純, 神成文彦, “超短光パルス波形整形技術のリアルタイム処理への応用”, 第49回応用物理学関係連合講演会, 28p-YC-4, 東海大学, 平成14年3月27日~30日.
9. 大野公久, 田辺孝純, 神成文彦, “音響光学分散フィルタを用いたフェムト秒パルス再生増

- 幅後の周波数分解光ゲート参照アダプティブ波形整形”，第 49 回応用物理学関係連合講演会，27p-ZE-2，東海大学，平成 14 年 3 月 27 日～30 日。
10. 山崎智高，田辺孝純，大野公久，神成文彦，“逆伝搬解に基づく整形された超短パルスの光ファイバ伝搬”，第 49 回応用物理学関係連合講演会，27p-ZE-1，東海大学，平成 14 年 3 月 27 日～30 日。
 11. 田辺孝純，岡本達佳，神成文彦，*板倉隆二，*山内薫，(慶大理工，*東大院理)，“高強度チャープレーザーパルスによるエタノール分子の解離性イオン化”，レーザー学会学術講演会第 23 回年次大会，31aIV5，浜松，平成 15 年 1 月 30 日～31 日。
 12. 中村和義，山崎智高，ティエンプラティープ・モンティエン，田辺孝純，神成文彦，“正常分散領域における高強度フェムト秒光パルスのファイバ伝搬”，第 50 回応用物理学関係連合講演会，28p-YQ-7/III，横浜，平成 15 年 3 月 23 日～30 日。
 13. 山中美緒，岡本達佳，田辺孝純，神成文彦，*板倉隆二，*山内薫，(*東大院理，慶大理工)，“位相及び強度変調されたフェムト秒光パルスを用いたエタノール分子の解離性光イオン化”，第 50 回応用物理学関係連合講演会，29a-YR-9/III，横浜，平成 15 年 3 月 23 日～30 日。
 14. *板倉隆二，*山内薫，田辺孝純，岡本達佳，神成文彦，(*東大院理，慶大理工)，“チャープパルスを用いた強光子場中エタノールの解離性イオン化”，日本物理学会第 58 回年次大会，28pXE-7，仙台，平成 15 年 3 月 28 日～31 日。
 15. *板倉隆二，*山内薫，田辺孝純，岡本達佳，神成文彦，(*東大院理，慶大理工)，“チャープ強レーザー場中のエタノールの解離性イオン化反応”，日本化学会第 83 春季年会，1J2-45，東京，平成 15 年 3 月 18 日～21 日。
 16. *板倉隆二，*山内薫，田辺孝純，岡本達佳，山中美緒，神成文彦，(*東大院理，慶大理工)，“パルス波形整形によるエタノールの強レーザー場誘起解離性イオン化反応”，第 19 回化学反応討論会，3A10，仙台，平成 15 年 6 月 11～13 日。
 17. 山中美緒，田辺孝純，岡本達佳，神成文彦，*板倉隆二，*山内薫，(慶大理工，*東大院理)，“高精度波形整形されたフェムト秒パルスを用いた強光子場におけるエタノールの解離性光イオン化反応”，第 64 回応用物理学学術講演会，福岡，30p-ZB-4，平成 15 年 8 月 30～9 月 2 日。

その他のもの

原著論文

なし。

その他の論文

1. M. Sato, M. Suzuki, M. Shiozawa, T. Tanabe, K. Ohno, and F. Kannari, “Adaptive Pulse Shaping of Femtosecond Laser Pulses in Amplitude and Phase Through a Single-Mode Fiber by Referring to Frequency-Resolved Optical Gating Patterns”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 41, Part 1, No. 6A (2002).

国際会議発表

1. K. Otsuka, S. Suzuki, T. Tanabe, Y. Fujii, and F. Kannari, “Femtosecond pump-probe spectral interferometry with high spatial resolution using the solid immersion lens”, The 4th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim’01), vol. II, pp. 174-175 Makuhari, July 15-19 (2001).

国内会議発表

1. 大塚京, 鈴木重成, 田辺孝純, 神成文彦, “Solid Immersion Lens を用いた高空間分解フェムト秒 Pump-Probe 計測法”, レーザー学会学術講演会第 21 回年次大会, 30aII8, 東京, 平成 13 年 1 月 30 ~ 31 日 .
2. 石井清美, 橋本浩平, 田辺孝純, 神成文彦, “希土類イオンドープ YAG ホスト結晶の青色光励起蛍光分光”, レーザー学会学術講演会第 23 回年次大会, 30aIII2, 浜松, 平成 15 年 1 月 30 日 ~ 31 日 .