

ディビジョン番号	1
ディビジョン名	物理化学

大項目	1. 分子分光学および分子集合体の構造
中項目	1-5. 強光子場分子科学
小項目	1-5-4. 振幅・位相特性を高精度に整形された超短パルスレーザー

概要（200字以内）	
<p>モード同期レーザー発振器から発生するフェムト秒レーザーパルスのスペクトル振幅・位相を詳細にコンピュータ制御によってプログラムすることで時間域の振幅・位相・偏光を整形できる技術は、フェムト秒レーザーパルス波形整形法と呼ばれ、超高速な光と物質の相互作用を制御しうる手法として広く利用されつつある。いかに高精度に所望のパルス特性に整形するかが重要であるとともに、最適なパルス特性とは何かをいかに把握するかという課題と常に表裏一体である。</p>	<ol style="list-style-type: none"> 1. フェムト秒パルスレーザー波形整形技術の現状 2. 自己学習型閉ループ波形整形による分子制御の現状と課題 3. 整形されたパルスの波長域拡大 4. 近接場光学への展開 5. 電界波形整形と分子制御
現状と最前線	
<p>一般的な市販の液晶空間光変調器(SLM)を用いることで、レーザー発振器出力の帯域幅に対応する時間分解能をもって、通常<2 ps程度の時間範囲で自由にフェムト秒レーザーパルスの周波数チャープ、パルス幅、パルス列などをシンセサイズすることが可能である。さらに、複数のSLMを用いることで、パルスの振幅と位相を独立に細かく整形することが可能であり、4台のSLMを用いると偏光波形も自在に整形できる。高強度光電界(>10¹⁵ W/cm²)における分子のイオン化、解離特性等の研究には、整形された光パルスを増幅し補正することで対応できる(ただし偏光波形は困難)。一方、物質との相互作用において、最適な光パルス特性は情報として得られていないのがほとんどの場合である。そこで、この波形整形技術と最適化アルゴリズムを組み合わせ、装置内に形成された波形整形器→相互作用計測→コンピュータ→波形整形器の閉ループ制御系によって最適なパルス波形を探索する手法が利用されている。分子の解離チャンネル、蛍光蛋白の2光子吸収蛍光効率、分子内エネルギー輸送、高次高調波発生、等がこの自己学習制御法によって最適化実験が実現できている。理想的には、最適化されたパルス波形から相互作用の物理を解読できれば本手法が非常に強力な道具になることは疑いのないところであるが、現状では容易ではない。最適化過程における光パラメータと制御性能の推移から重要な制御パラメータを抽出する試みが行われている。数多くの計測データから制御パラメータを決定するような工夫も今後は重要であり、ブレークスルーの余地は残されている。</p>	

フェムト秒レーザー波形整形法は、波長変換と組み合わせることで、整形された近赤外光パルスの中赤外さらにはテラヘルツ波、短波長側では紫外域まで拡張することが可能である。長波長域では分子の振動、回転運動にアクセスできるだけでなく、高いポデラモーティブエネルギーが実現できるため強光電界下での原子、分子、電子のダイナミクス制御への応用が期待できる。広帯域光パラメトリック増幅、差周波数発生技術と合体した技術開発が望まれる。



図1 自己学習制御型パルス波形最適制御の概念図

波長 800 nm、パルス幅 100 fs の光パルスの帯域幅はわずかに 20 nm である。物質の複雑なエネルギー準位における波束干渉効果を用いたコヒーレント制御を行うには、制御された多くの周波数モードが必要である。最近、波長域が数 100nm におよぶ白色光の発生が可能であり、この白色光に対しても同様の波形整形法が応用できるので、多くの周波数リソースを制御することで複雑なエネルギー準位系を操作できる可能性も生まれてくる。

さらに、これらの技術は、近接場光学系にも展開できるので、ナノスケールにおいて超高速物理を操作することも夢ではない。金属針のようなプラズモン増強近接場光は偏光特性によってその空間分布が変化することは周知である。波形整形によってフェムト秒近接場を空間制御することで、高速な空間的エネルギー緩和、移動を計測するような将来の展開も期待できる。

分子ダイナミクスは、キャリア周波数よりも十分に遅いので、光パルスの絶対位相特性による制御は難しい。しかし、相対位相がロックされた基本波と 2 倍波パルスを重畳することで光電界波形をベクトル的に非対称に整形することが可能となり、配向制御された分子をこの非対称光電界によって励起できれば、分子構造と電界ベクトルによる相互作用の制御が可能になる。さらに、整形された 2 色パルス重畳によってさらに制御の可能性は広がるであろう。

将来予測と方向性

- ・ 5 年後までに解決・実現が望まれる課題
 - 中赤外波長帯、極端紫外～軟 X 線域でのフェムト秒レーザーパルス整形を用いた分子制御
 - 完全に任意波形を発生できる偏光波形整形とその近接場光学応用
 - 2 色パルスによる電界波形整形による配向分子との相互作用制御
- ・ 10 年後までに解決・実現が望まれる課題
 - 軟 X 線波長域での高強度アト秒レーザーパルス整形を用いた内殻電子制御
 - 自己学習制御法で得られた最適パルス波形からの逆散乱問題解による相互作用物理の解明

キーワード

フェムト秒レーザー波形整形、自己学習制御型波形整形法

(執筆者： 神成 文彦)