

機関番号：12605

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2008～2010

課題番号：20686006

研究課題名（和文） 分子ダイナミクス制御へ向けた中赤外任意波形発生システムの開発

研究課題名（英文） Development of mid-IR pulse shaping system for manipulating molecular dynamics

研究代表者

芦原 聡 (ASHIHARA SATOSHI)

東京農工大学 大学院工学研究院・准教授

研究者番号：10302621

研究成果の概要(和文)： 様々な周波数の光を準備し、それらの位相を揃えて重ね合わせると、超短パルス光を生成できる。各周波数成分の位相を自由に制御できれば、光の電場波形を自由に操ることができる。また、そのスペクトルを広げることができれば、波形整形の自由度が向上する。本研究では、中赤外光のスペクトルを広帯域化する技術、および、光電場波形を整形するシステムを開発した。この技術は、分子反応ダイナミクスの観察と反応制御に役立つと期待される。

研究成果の概要(英文)： Ultrashort optical pulses are formed as a coherent superposition of various frequency components. Arbitrary waveform synthesis of such ultrashort pulses is enabled by controlling the phase of each frequency components independently. In this project, we have developed a technique to broaden the optical spectrum and a system which enables arbitrary pulse shaping in the mid-infrared range. This technique provides powerful tools in observing/controlling molecular structural dynamics.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	6,400,000	1,920,000	8,320,000
2009年度	7,200,000	2,160,000	9,360,000
2010年度	5,000,000	1,500,000	6,500,000
年度			
年度			
総計	18,600,000	5,580,000	24,180,000

研究分野： 量子エレクトロニクス, 光物性

科研費の分科・細目： 応用物理学・工学基礎／応用光学・量子光工学

キーワード： 超短パルスレーザー, レーザー制御

1. 研究開始当初の背景

(1) 分子科学研究における

中赤外パルスの有用性

①中赤外領域に現れる分子の振動スペクトルは、分子の構造・運動状態・周囲環境を鋭敏に反映する。そのため、中赤外非線形分光法を用いれば、分子の振動状態や構造の変化を時間分解観察できる。中赤外超短パルスは、こうした“分子構造のスナップショットを撮るためのプローブ”として有用である。

②非線形分光法の一つである多次元分光法は、タンパク質の立体構造や揺らぎなど、通常の赤外分光法では得られない情報を与える。利用する中赤外パルスの電場波形を自由にコントロールできると、思惑の構造・ダイナミクスを観察する上での感度が向上する。

③中赤外光が一光子過程で分子振動を励起する側面に注目すると、中赤外パルスを反応制御に役立てる可能性が着想される。分子振動励起によって電子的基底状態での振動が

テンシヤルの山を乗り越えるよう、分子の状態を誘導する試みである。これは、コヒーレント制御の一つであるが、過去に研究されてきた電子遷移による制御法とは一線を画す。赤外コヒーレント制御の特徴は、分子に吸収させるフォトンエネルギーが小さいこと、電子の基底状態で分子反応を誘導することである。また、電子遷移を利用したコヒーレント制御が光化学反応を対象とするのに対し、赤外コヒーレント制御の対象は熱的反応である。このように、新しい反応制御ツールとして期待できる一方で、過去の研究例は極めて少ない。その大きな理由は、中赤外光波の制御技術が成熟していなかったことにある。

(2) 中赤外光波の制御技術

可視～近赤外域では、自己位相変調効果によるスペクトル広帯域化技術と液晶空間光変調器を利用した波形整形技術が早くから確立された。それに対し、中赤外域ではそうした技術が未開拓であった。過去には近赤外域で作られたパルス波形を波長変換で中赤外光に伝達する手法が提案されたが、波形が忠実に伝達されない、という問題があった。

2. 研究の目的

本研究の目的を以下の通りに設定した。

(1) 中赤外波長域においてスペクトルを広帯域化する技術を開発する。また、それを利用してパルス中の光電場が数周期しか存在しないような超短パルス発生を実現する。

(2) 中赤外波長域において、精密な波形整形および波形評価システムを構築する。

3. 研究の方法

(1) 中赤外コヒーレント白色化と分散補償半導体材料の自己位相変調効果を利用して、中赤外光パルスのスペクトルを超広帯域化する手法を開発する。GaAs 単結晶の非線形屈折率効果は、シリカガラスと比べ1万倍以上大きい。そのバルク結晶を利用してスペクトルを広帯域化し、さらに分散補償を行った。

(2) 波形整形および波形評価

音響光学変調器によってスペクトル振幅・位相を独立に変調する中赤外パルスシェイパーを開発する。中赤外光はフーリエ面でのブラッグ回折を通して周波数ごとに振幅と位相が変調された後、再びフーリエ合成される。波形制御された中赤外光パルスの振幅および位相を精密に評価するシステムを構築する。パルス波形の評価は、スペクトル領域での電場相互相関法を用いた。

4. 研究成果

(1) 中赤外コヒーレント白色化と分散補償
①中心波長 5 μm , 時間幅 100 fs, の中赤外光パルスをもつ GaAs 結晶に集光して自己位相変調を起こした。図 1 に示す通り、オリジナルパルスのスペクトル幅 540 nm (振動数幅 220cm^{-1}) を、2060 nm (910cm^{-1}) へ広帯域化することに成功した。このスペクトルから計算されるフーリエ限界パルスの時間幅は 28 fs (光電場振動 1.7 サイクル) である。

②GaAs 結晶中の分散性伝播と自己位相変調の結果、広帯域化したパルスは正チャープを伴って 200 fs に伸張する。負の二次分散をもつ CaF_2 窓を利用して二次分散補償を行った結果、時間幅 50 fs まで短パルス化することに成功した。図 1(b) はこのときの干渉性強度自己相関信号である。得られた時間幅は、光電場振動に換算すると 3 サイクルに相当する。

③本成果は、自己位相変調効果の中赤外パルスの極短パルス化に活用した、オリジナリティーの高い成果である。本手法は非共鳴な非線形性を利用するため、動作波長を選ばない。そのため、材料が透明な波長域 2-20 ミクロンでスペクトル広帯域化、極短パルス化を行う上で広く有効な手法であると期待できる。

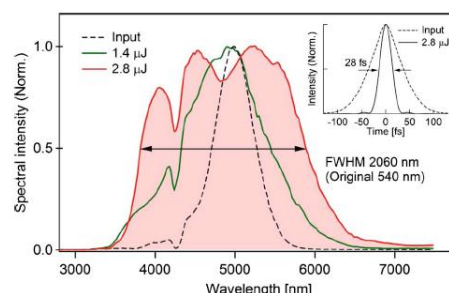


図 1 中赤外スペクトル広帯域化結果 (挿入図は計算されたフーリエ限界パルス)

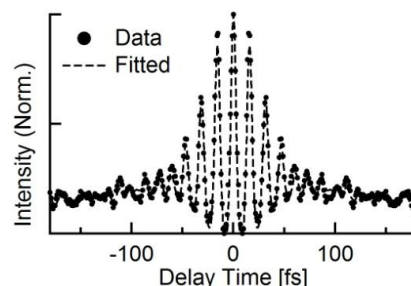


図 2 分散補償を施した広帯域化パルスの干渉性強度自己相関信号

(2) 波形整形および波形評価

①われわれは、図3に示す通り、音響光学素子を振幅・位相変調器とする波形整形器を構築し、精密な振幅・位相変調を実現した。図4に示す通り、中赤外パルスの高次分散を補償し、 240 cm^{-1} 以上の範囲にわたって誤差が 0.2 rad. 以下となるまでスペクトル位相を平坦化することに成功した。さらには、ステップ状の位相変調をほぼ設計通りの形状および振幅で付加することができた。構築した波形整形器の振幅変調および位相変調の周波数分解能は約 6 cm^{-1} であった。

②電場相互相関干渉法を利用することにより、安定かつ正確にスペクトル位相を計測するシステム、ひいては正確に波形整形と波形計測を実現するシステムを確立した。この安定性・正確性こそ、多次元分光計測およびコヒーレント制御に活用する上で重要である。

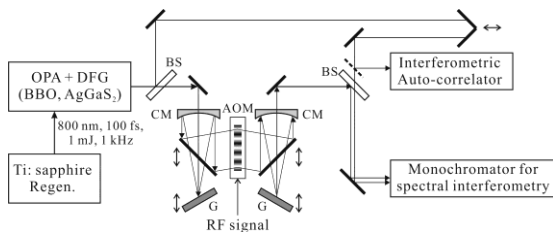


図3 中赤外波形整形システムの概念図

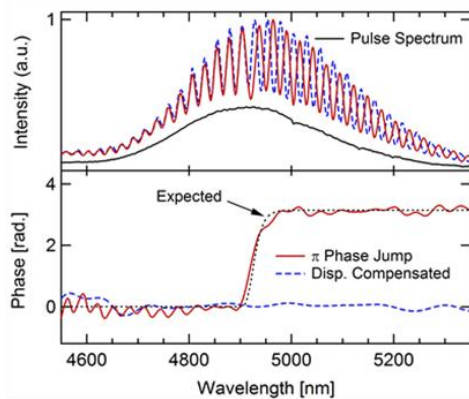


図4 電場相互相関干渉スペクトルおよびそこから再構築されたスペクトル位相。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計14件)

●英文原著論文 (以下全て査読有)

1. S. Enomoto and S. Ashihara, “Comparative study on light-induced absorption between MgO: LiNbO₃ and MgO: LiTaO₃,” J. Appl. Phys. 110, 063111 (2011).
2. S. Ashihara, K. Shibuya, and S. Fujioka “Temperature dependence of vibrational relaxation of the OH bending mode in liquid water,” Chem. Phys. Lett. 502, 57-62 (2011).
3. T. Satoh, Y. Toya, S. Yamamoto, T. Shimura, K. Kuroda, Y. Takahashi, M. Yoshimura, Y. Mori, T. Sasaki, and S. Ashihara, “Generation of mid- to far-infrared ultra-short pulses in 4-dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate (DAST) crystal” J. Opt. Soc. Am. B 27, 2507-2512 (2010).
4. S. Ashihara and Y. Kawahara, “Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in GaAs,” Opt. Lett., 34, 3839-3841 (2009) ; Selected for Virtual Journal of Ultrafast Science 9, Issue 2 (2010).
5. X. Zeng, S. Ashihara, Z. Wang, T. Wang, Y. Chen, and M. Cha, “Excitation of two-colored temporal solitons in a segmented quasi-phase-matching structure,” Opt. Exp., 17, 16877-16884 (2009).
6. S. Ashihara, T. Mochizuki, S. Yamamoto, T. Shimura, and K. Kuroda, “Generation of sub-50 fs mid-infrared pulses by optical parametric amplifier based on periodically-poled MgO: LiNbO₃,” Jpn. J. Appl. Phys. 48, 042501 (2009).
7. Y. Hayashi, S. Ashihara, T. Shimura, and K. Kuroda, “Simultaneous separation of poly-disperse particles using a symmetric non-periodic optical stripe pattern,” Appl. Opt. 48, 1543-1552 (2009).
8. S. Sasamoto, J. Hirohashi, and S. Ashihara, “Polaron dynamics in lithium niobate upon femtosecond pulse irradiation: influence of magnesium doping and stoichiometry control,” J. Appl. Phys. 105, 083102 (2009).
9. X. Zeng, S. Ashihara, T. Shimura, and

d K. Kuroda, "Two-color pulse compression in aperiodically-poled lithium niobate," *Opt. Commun.* 281, 4499-4503 (2008).

●和文解説論文 (以下全て査読あり)

10. 芦原聡, "水分子の高速ダイナミクスを追跡する ~中赤外フェムト秒パルスによる非線形分光計測~, " *応用物理*, 80, 0894-0897 (2011).
11. 芦原聡, "中赤外非線形分光法による水分子ダイナミクスの時間分解観察," *日本光学学会誌「光学」極短パルスレーザーを用いた分光生体計測*, 40, 409-414 (2011).
12. 芦原聡, "中赤外フェムト秒パルスによる水分子ダイナミクスの追跡," *レーザー研究*, 38-2, 101-105 (2009).
13. 芦原聡, "赤外高速分光法による水の束縛回転振動ダイナミクスの観測" *分子シミュレーション研究会会誌「アンサンブル」* 11, 20-24 (2009).
14. 芦原聡, "中赤外高速分光法で観る水の分子振動緩和現象" *分光研究* 57-6, 288-293 (2008).

[学会発表] (計 51 件)

●国際会議

1. S. Ashihara, T. Arakaki, K. Enomoto, "Control over Two-dimensional Vibrational Trajectory," *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2012*, JW 2A.12 (San Jose, 2012.05.09).
2. (招待講演) S. Ashihara, "Spectral broadening and phase shaping of mid-IR pulses," *2011 Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific-Rim (CLEO/PacificRim)*, (Sydney, 2011.08.30).
3. S. Ashihara, S. Fujioka, "Temperature dependence of vibrational relaxation of the OH bending excitations in liquid H₂O," *Time-resolved vibrational spectroscopy XV*, (Ascona, 2011.06.21).
4. S. Ashihara, S. Enomoto, "Pulsed-light-induced absorption in LiNbO₃ and LiTaO₃ crystals with MgO-doping," *2011 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO/EUROPE)*, EF.P.13 (Munich, 2011.05.25).
5. S. Ashihara, Y. Hirasawa, K. Enomoto, "Precise phase shaping and characterization of mid-infrared femtosecond pulses," *2011 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe (CLEO/EUROPE)*, CF.5.4 (Munich, 2011.05.23).

6. S. Ashihara, "Spectral broadening and dispersion compensation of mid-infrared femtosecond pulses," *IEEE the Photonics Society 2010 Annual Meeting (Denver, 2010.11.10)*.

7. (招待講演) S. Ashihara, "Generation and shaping of broadband mid-infrared optical pulses," *The fifth Workshop of the Stimulated Brillouin Scattering and Phase Conjugation (Chiba, 2010, Aug. 25-27)*.
 8. (招待講演) S. Ashihara, "Ultrafast vibrational relaxation and structural dynamics in liquid water," *The 6th Asian Conference on Ultrafast Phenomena (Taipei, 2010.01.10-13)*.
 9. S. Ashihara and Y. Kawahara, "Spectral broadening of mid-infrared femtosecond pulses in semiconductor materials," *Nonlinear Optics, JWA21 (Hawaii, 2009.07.12-17)*.
 10. (招待講演) S. Ashihara, "Broadband pulse generation and pulse shaping in the mid-infrared," *Advanced Lasers and Their Applications 2009*, pp.52-53 (Jeju, 2009.05.07-09).
 11. Y. Toya, S. Yamamoto, T. Satoh, T. Shimura, K. Kuroda, S. Ashihara, Y. Takahashi, M. Yoshimura, Y. Mori, T. Sasaki, "Generation of Mid-Infrared Ultrashort Pulses in DAST," *Advanced Solid-State Photonics TuB2 (Denver, 2009.02.03)*.
 12. S. Ashihara, S. Sasamoto, and J. Hirohashi, "Transient optical absorption upon femtosecond pulse irradiation in lithium niobate crystals," *SPIE Photonics West*, 7197-37 (San Jose, 2009.01.29).
 13. S. Ashihara and Y. Kawahara, "Self-phase modulation of mid-infrared femtosecond pulses in semiconductor materials," *SPIE Photonics West*, 7197-44 (San Jose, 2009.01.27).
- 国内会議・シンポジウム招待講演
14. 芦原聡, "中赤外域の波形整形と分子コヒーレント制御への展開"「相変化材料における電子・フォノン励起過程と構造変化」ワークショップ(慶応大学, 2012.03.12).
 15. 芦原聡, "中赤外領域の波形整形を利用した分子振動波束の制御" *応用物理学会量子エレクトロニクス研究会「非線形光学50年 その基礎と材料・デバイスおよび応用」*

- (軽井沢, 2011. 12. 10).
16. 芦原聡, “中赤外超短パルスで見る水の高速ダイナミクス,” 放射光学会第3回若手研究会 (姫路, 2011. 08. 18).
 17. 芦原聡, “中赤外超短パルスによる分子ダイナミクスの観測と制御,” 第58回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム「光科学の未来を拓く -10年先の新規研究領域開拓のために-」24p-BX-15 (神奈川工科大学, 2011. 03. 24).
 18. 芦原聡, “アンチサイト欠陥のない分極反転材料で起こる光誘起吸収” 第58回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム「非線形光学50周年に分極反転はどこまで来たか?」25p-BF-3 (神奈川工科大学 2011. 03. 24).
 19. 芦原聡, “フェムト秒赤外非線形分光法による水の分子振動緩和現象,” 日本分光学会 年次講演会 日本分光学会奨励賞受賞記念講演 (京都大学, 2010. 11. 19).
 20. 平澤雄太, 榎本薫里, 芦原聡, “振動コヒーレント制御へ向けた中赤外光波の波形整形,” 日本光学会年次学術講演会 Optics and Photonics Japan, シンポジウム「中赤外レーザーの新展開」(中央大学, 2010. 11. 09).
 21. 平澤雄太, 榎本薫里, 芦原聡, “音響光学素子を用いた赤外光波の波形整形〜赤外コヒーレント制御へ向けた取り組み〜.” 日本分光学会 先端レーザー分光部会「先端的レーザー分光の若手シンポジウム」(学習院大学, 2010. 10. 02).
 22. 芦原聡, “分子レベルの水のダイナミクス,” 第17回理研理事長ワークショップ「水を意識した科学研究のあり方」(伊豆, 2010. 02. 11-12).
 23. 吉村政志, 森勇介, 北岡康夫, 斗内政吉, 芦原聡, “有機非線形光学結晶の開発と中赤外・テラヘルツ波発生への応用,” 第四回赤外ラマン分光部会シンポジウム (大阪市, 2009. 12. 10).
 24. 芦原聡, “振動遷移による分子振動のコヒーレント制御へ向けて,” 「超高速過程における量子コヒーレンスの観測と制御」〜量子情報処理から固体・生体分子ダイナミクス〜 (東北大学, 2009. 12. 03-04).
 25. 芦原聡, “水分子の振動緩和とダイナミクス,” 理研シンポジウム『動的水和構造と分子過程研究会』(播磨市 Spring-8, 2009. 11. 24-25).
 26. 芦原聡, “LNにおける高強度光誘起吸収のメカニズム,” (財) 科学技術交流財団『ジャイアントマイクロフォトニクス』(名古屋, 2009. 07. 22).
 27. 芦原聡, “赤外サイクルパルス光波による分子振動ダイナミクスの追跡” 第56回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム「光科学の未来を拓く -Frontier and New Prospects in Optical Science-」(筑波大学, 2009. 03. 31).
 28. 芦原聡, “広帯域赤外パルス発生と波形整形技術” 先端光量子科学アライアンスセミナー「フェムト秒レーザーパルス波形整形技術の基礎と新しい応用展開」(慶応義塾大学, 2009. 03. 29).
 29. 芦原聡, “超短光パルスによる水分子ダイナミクスの計測” 第109回微小光学研究会 (東京, 2008. 10. 09).
 30. 芦原聡, “中赤外高速分光法による分子振動緩和現象の追跡,” 強光子場科学研究懇談会 平成19年度第三回懇談会 (東京農工大, 2008. 7. 25).
- 国内会議一般講演
31. 榎本薫里, 芦原聡, “中赤外パルスの波形整形を利用したカルボニル化合物のコヒーレント制御,” 第59回応用物理学関係連合講演会, 18a-E9-1 (早稲田大学, 2012. 03. 18).
 32. 草史野, 芦原聡, “Au ロッドを利用した中赤外域での電場増強特性,” 第59回応用物理学関係連合講演会, 16p-GP1-5 (早稲田大学, 2012. 03. 16).
 33. 榎本聖, 芦原聡, “MgO を添加した LiNbO₃ と LiTaO₃ の光誘起吸収特性” 日本光学会年次学術講演会 OPJ2011, 29G3 (大阪大学, 2011. 10. 29).
 34. 榎本薫里, 芦原聡, “中赤外フェムト秒パルスの精密位相変調を利用した分子振動励起の制御,” 第5回分子科学討論会, 2p021 (札幌コンベンションセンター, 2011. 09. 21).
 35. 新垣寿弥, 榎本薫里, 芦原聡, “可視域のスペクトルシアリング干渉による中赤外光波形評価,” 第72回応用物理学会学術講演会, 30p-ZH-8 (山形大学, 2011. 08. 30).
 36. 榎本薫里, 平澤雄太, 芦原聡, “中赤外フェムト秒パルスの精密位相制御とその評価,” 第72回応用物理学会学術講演会, 30p-ZH-7 (山形大学, 2011. 08. 30).
 37. 芦原聡, 藤岡幸, “水分子の変角振動のエネルギー緩和とその温度依存性,” 平成22年度日本分光学会年次講演会 (京都大学, 2010. 11. 19).
 38. 藤岡幸, 渋谷和憲, 芦原聡, “中赤外超高速分光法による水の分子振動緩和現象とその温度依存性の測定,” 第71回応用物理

- 学会学術講演会, 16p-D-16 (2010. 09. 16).
39. 榎本薫里, 平澤雄太, 藤岡幸, 芦原聡, “中赤外コヒーレント制御へ向けたカルボニル化合物の分子振動ダイナミクスの測定,” 第 71 回応用物理学学会学術講演会, 16p-D-15 (長崎大学, 2010. 09. 16).
 40. 榎本聖, 廣橋淳二, 芦原聡, “タンタル酸リチウム結晶におけるフェムト秒光誘起吸収特性,” 第 71 回応用物理学学会学術講演会, 16a-G-11 (長崎大学, 2010. 09. 16).
 41. 平澤雄太, 河原勇介, 芦原聡, “振動量子制御へ向けた中赤外パルスの波形整形,” 第三回分子科学会, 3P041 (名古屋大学, 2009. 9. 23).
 42. 藤岡幸, 芦原聡, “中赤外ポンプ・プローブ分光法による水の分子振動緩和現象の観測,” 第三回分子科学会, 2P035 (名古屋大学, 2009. 9. 22).
 43. 平澤雄太, 河原勇介, 芦原聡, “音響光学素子による中赤外超短光パルスの波形整形,” 第 70 回応用物理学学会学術講演会, 11a-B-6 (富山大学, 2009. 09. 11).
 44. 河原勇介, 芦原聡, “半導体非線形結晶による中赤外フェムト秒パルスのスペクトル広帯域化,” 第 70 回応用物理学学会学術講演会, 11a-B-5 (富山大学, 2009. 09. 11).
 45. 笹本賢, 廣橋淳二, 芦原聡, “MgO:LiNbO₃における紫外線照射と分極反転電界の関係,” 第 70 回応用物理学学会学術講演会, 11a-P8-36 (富山大学, 2009. 09. 11).
 46. 遠矢祥弘, 山本俊介, 佐藤琢哉, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, 高橋義典, 吉村政志, 森勇介, 佐々木孝友, “有機結晶 DAST を用いた中・遠赤外超短パルスの発生 (III),” 第 56 回応用物理学関係連合講演会, (筑波大学, 2009. 03. 30).
 47. 笹本賢, 廣橋淳二, 芦原聡, “ニオブ酸リチウムにおける超高速キャリアダイナミクス (II)” 第 69 回応用物理学学術講演会, (中部大学, 2008. 09. 04).
 48. 遠矢祥弘, 山本俊介, 佐藤琢哉, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, 高橋義典, 吉村政志, 森勇介, 佐々木孝友, “有機結晶 DAST を用いた中・遠赤外超短パルスの発生 (II),” 第 69 回応用物理学学術講演会, (中部大学, 2008. 09. 02).
 49. 河原勇介, 芦原聡, “自己位相変調効果による中赤外超光パルスのスペクトル広帯域化” 第 69 回応用物理学学術講演会, (中部大学, 2008. 09. 02).
 50. 遠矢祥弘, 山本俊介, 佐藤琢哉, 芦原聡, 志村努, 黒田和男, 高橋義典, 吉村政志, 森勇介, 佐々木孝友, “有機結晶 DAST を用

いた中・遠赤外超短パルスの発生,” 第 55 回応用物理学関係連合講演会, (日本大学, 2008. 03. 28).

51. 笹本賢, 河原勇介, 廣橋淳二, 芦原聡, “ニオブ酸リチウムにおける超高速キャリアダイナミクス,” 第 55 回応用物理学関係連合講演会, (日本大学, 2008. 03. 30).

[その他]

ホームページ等

<http://www.tuat.ac.jp/~ashihara/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

芦原 聡 (ASHIHARA SATOSHI)

東京農工大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：10302621

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし