

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 17 日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24244064

研究課題名(和文) 可視域位相制御ファイバー光源を用いた実時間動的分子構造制御

研究課題名(英文) Real-time control of molecular conformational dynamics using phase-programmed fiber laser system in the visible

研究代表者

三沢 和彦 (MISAWA, Kazuhiko)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80251396

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、「利得狭窄補償フィルター」をレーザー装置内に組み込むことにより、65フェムト秒、0.1マイクロジュール(パルス圧縮前0.3マイクロジュール)という高強度超短パルスを3MHzの高繰り返し周波数で発生することを可能とした。65フェムト秒というパルス時間幅は、イッテルビウムファイバーレーザーから「直接出力される超短パルス」としては世界最高性能に匹敵する。本成果は、有機分子の光異性化などに代表される光誘起構造変化を、光位相の操作により波形整形したパルス光をトリガーとして制御する「コヒーレント制御実験」に活用するための光源として活用できる。

研究成果の概要(英文)：Ultrashort pulses are widely used for investigating ultrafast phenomena in a variety of molecules by utilizing its ultrashort pulse duration. Yb-doped fibers have attracted attention owing to the high pumping efficiency and broad fluorescence bandwidth. However, pulse duration is limited to >100 fs because of the gain-narrowing effect during energy amplification.

We have developed a broadband chirped pulse amplifier system at 1  $\mu\text{m}$  with a gain-narrowing compensator. We designed filters made of multiple dielectric layers. The amplified pulses had broad (1020-1080 nm) bandwidth by effective compensation of the gain-narrowing effect. The dispersion of the output pulse was measured by two-dimensional spectral shearing interferometry and compensated by the grating pair and spatial light modulator. The two-stage amplification system with filters generated 65-fs, 100-nJ, and 3-MHz pulses directly from the amplifier, allowing ultrafast spectroscopy at 1  $\mu\text{m}$  and frequency-doubled 500 nm.

研究分野：超高速光科学

キーワード：超高速ファイバーレーザー 可視域位相制御光源 コヒーレント制御 利得狭窄補償

### 1. 研究開始当初の背景

今世紀初頭から、フェムト秒パルスを用いて単に光物性を測定するだけでなく、パルス照射によって、物性を制御することが可能となった。特に、有機分子の光異性化などに代表される光誘起構造変化を、光位相の操作により波形整形したパルス光をトリガーとして制御する手法をコヒーレント制御と呼んでいる。

従来、フェムト秒領域の光誘起構造変化を測定する方法として、チタンサファイア再生増幅器およびパラメトリック増幅器からの出力が用いられてきた。実験に励起パルスとして用いる場合、典型的には、パルスの繰り返し数が kHz、1パルスあたりのパルスエネルギーが数  $\mu\text{J}$  程度である。多くの場合は、これ以上励起エネルギーを下げるとデータの質が著しく低下する。しかしながら、励起エネルギーが高すぎると、多光子過程が競合し始め、目的の光異性化反応だけでなく、試料の損傷すなわち分解反応も進行してしまう。

一方、本研究代表者らは、わずか数 nJ のパルスエネルギーで、光誘起構造変化のダイナミクスを測定できる、画期的な高速掃引波束分光計を独自に開発した。さらに、この装置は、励起エネルギーが数桁低いにも関わらず、従来は数時間必要としていた測定が1分程度で完了できるため、世界で初めて、量子波束ダイナミクスを直接観察しながら、多数の波形整形パラメータを網羅的に探索することを可能にした。

本研究計画では、光ディスク記録材料として多くの種類があるシアニン系色素分子に加えて、近年、光応答性 DNA などにも応用されているアゾベンゼン系分子の構造を任意にスイッチングする励起パルス条件を調べるために、高速掃引波束分光計を可視領域に拡張することである。

高速掃引波束分光計と組み合わせる可視領域超高速光源としては、チタンサファイアレーザーをポンプ光として光パラメトリック増幅器(OPA)、光パラメトリック共振器(OPO)で波長変換して得る方法が一般的であった。また近年、蛍光帯域が  $1\mu\text{m}$  のイッテルビウム(Yb)を利得媒質としたレーザーが注目されており、既にパルス幅が  $< 100\text{ fs}$ 、パルスエネルギーが  $> 50\text{ nJ}$  の仕様のレーザーが市販されている。しかし、まだ現在のところチタンサファイアレーザーのようにパルス幅:数十 fs、パルスエネルギー:数十 nJを両立したものは少なく、片方を改良しようとするともう片方が悪化するトレードオフの関係にある。これらを両立させることが出来れば、波長  $500\text{ nm}$  帯域の超短パルス光源を Yb 系レーザーの第2高調波として高パルスエネルギー、高パルス繰り返し、広帯域なスペクトルで得ることができる。

### 2. 研究の目的

高速掃引波束分光計の適用範囲を可視域へ拡張し、より反応性の高い有機分子を対象に、光誘起構造変化のコヒーレント制御を実践するために、高速掃引波束分光計と組み合わせる光源として、MHz 繰り返しの可視域 Yb ファイバーレーザーを新規に開発し、そこにコヒーレント制御実験のための位相制御装置を組み込むことを本研究の目的とする。この新規位相制御光源は、現在普及しているチタンサファイアレーザーに置き換わるべきものであり、レーザー分光学に対する波及効果は極めて大きい。

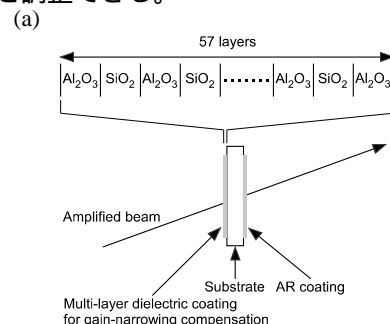
具体的には、本研究では Yb を利得媒質とした  $1\mu\text{m}$  帯域の光源としてパルス幅:数十 fs、パルスエネルギー:数十 nJ を両立させることを目指した。具体的な仕様としては、第2高調波帯域( $500\text{ nm}$ )での実用的な超高速分光光源を目指し、 $1\mu\text{m}$  帯でパルス幅は  $< 45\text{ fs}$ 、パルスエネルギーは  $> 100\text{ nJ}$  の光源を目標とした(超高速分光の先行研究 [1] を参考にした)。また、パルス繰り返しについても数 MHz 以上を目指した。

### 3. 研究の方法

#### 3.1. 利得狭窄補正

広帯域光のパルスエネルギー増幅を行う際、増幅に用いる媒質の利得帯域によるスペクトルの狭窄化が問題となる。広帯域光が増幅媒質の利得帯域よりも広いスペクトルを持つ場合、増幅すればするほど元のスペクトルから増幅媒質の利得帯域に近づき、狭窄化していく。スペクトルの狭窄化はパルスの時間幅が伸長することを意味している。従来 Yb ファイバーレーザーでは、 $100\text{ fs}$  を超えるパルス幅が一般的であった。

この効果を打ち消すため、本研究では誘電体多層膜フィルターを使用した。誘電体層の厚さと増幅媒質の利得ピークの波長を対応させ、そのピーク前後の光のみを反射、それ以外の帯域の光は透過させることでスペクトル狭窄化の補正を行う。図 1(a)は本研究で使用した誘電体多層膜フィルターの模式図で、図 1(b)がフィルターの透過特性である。フィルターへの入射角  $40^\circ$  で Yb の利得ピークとフィルター透過率最低のピークの波長が合うようになっている。フィルターへの光ビームの入射角度を変えることで透過特性を調整できる。



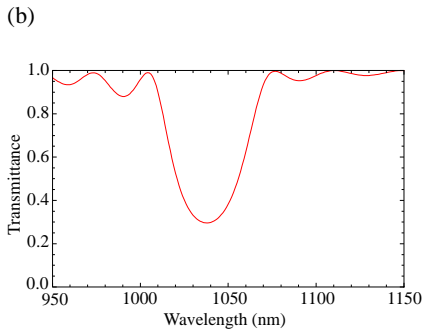


図 1 : (a)誘電体多層膜フィルターの模式図、  
(b) 誘電体多層膜フィルターの透過特性

### 3.2. ファイバー増幅器

本研究で用いた光学系が図 2 である。広帯域化前のシード光としてはレーザーダイオード直接励起 Yb 添加 KYW ( potassium yettrium tangstate ) レーザーを用いた。このレーザーの平均強度は 700 mW、パルスエネルギーは 10 nJ、パルス繰り返しは 70 MHz、パルスの半値全幅(FWHM)は 230 fs、スペクトルは 1036 nm 中心で半値全幅が 7.1 nm である。この発信器出力ではパルス幅、パルスエネルギーが目標に達していないため、パルス圧縮、エネルギー増幅の両方を行う必要がある。そこでまず、このシード光を ND

フィルターにより光強度調整を行い、フォトニック結晶ファイバー( PCF )に入射し、パルス圧縮のための波長スペクトルの広帯域化を行う。

広帯域化後、増幅時の Yb ファイバーへのダメージの軽減や余計な非線形効果の排除のため光パルスを実用パルスストレッチャーファイバーに入射し、パルス幅を伸長、ピークパワーを低下させる。また同じように光学素子へのダメージを防ぐため、音響光学素子 ( AOM )を用いてパルス繰り返しを目標の範囲内で落とす。そして1段目のファイバーアンプに光を導入し、パルスエネルギーの増幅を行う。このときファイバーに添加された Yb によりスペクトルの利得狭帯が起る。その補正のため誘電体多層膜フィルターを複数枚用いて Yb の利得にあたるスペクトル成分を削る。

補正後、2 段目のファイバーアンプで目標のパルスエネルギーまで増幅を行う。高次分散の影響が顕著であるため、液晶空間光変調器を用いた分散補償器を2段目のファイバーアンプの直前に組み込んである。2 段目の増幅ののちに回折格子対を用いてパルスを圧縮する。

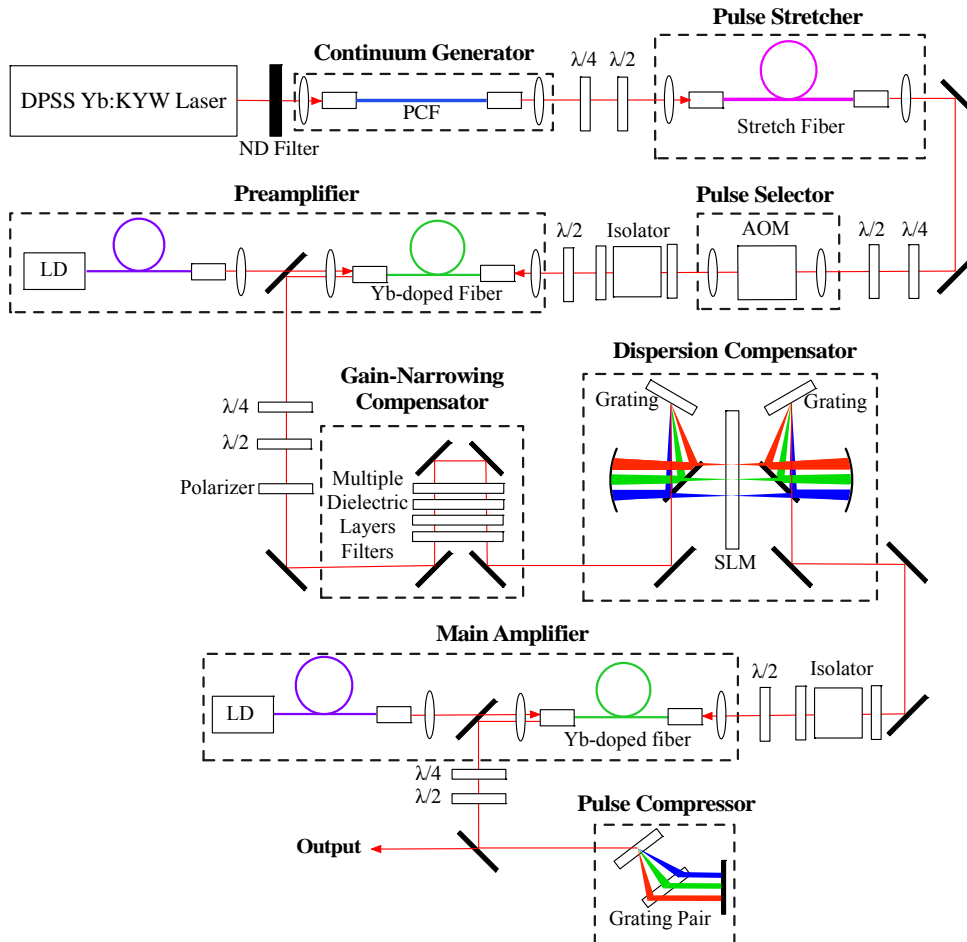


図 2 : Yb ファイバー増幅システムの全体構成図

### 3.3. スペクトル位相測定

利得狭窄補正を行った場合の出力パルスのスペクトル位相を two-dimensional spectral shearing interferometry (2DSI) 装置を用いて評価した。ここで測定したスペクトル位相の結果に基づいてパルス伸長・圧縮器の分散を最適化した。

図 3 は 2DSI の実験配置である。ビームスプリッターにより入射パルスを 2 つに分ける。透過したパルスを回折格子対でチャープさせ、さらにもう 1 枚のビームスプリッターで 2 つのビームに分ける。それら 2 つのチャープパルスには数 ps の遅延時間を与え、さらにその遅延時間をピエゾトランスデューサーで変調する。元のビームスプリッターで反射されたチャープしていない光と合わせて計 3 本のビームを非線形光学結晶に集光する。チャープしていない光とチャープした光との和周波信号のスペクトルを分光測光器で測定する。分光測光器には干渉スペクトル波形が記録され、その干渉波形からパルスのスペクトル位相が決定できる。

測定されたスペクトル位相に基づき、液晶空間光変調器を用いたスペクトル位相制御器を用いて、高次にわたる分散補償を行う。

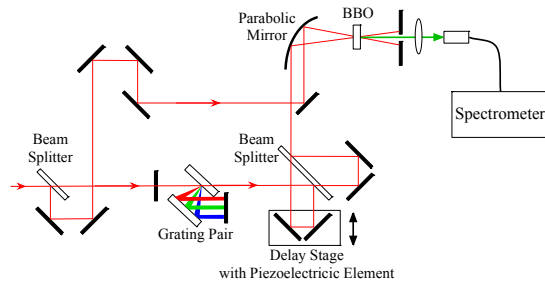


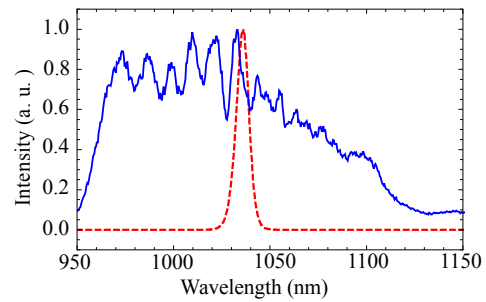
図 3: Two-dimensional spectral shearing interferometry (2DSI) の実験配置図

### 4. 研究成果

図 4 (a) に、Yb 発振器から出力されたパルスのスペクトルと、エネルギー 3.3 nJ のパルスをフォトニック結晶ファイバ (PCF) に入射したときに得られた出力スペクトルを示す。スペクトル帯域幅は、PCF における自己位相変調と群速度分散の複合効果により、950 から 1150 nm まで広がった。パルスストレッチファイバ及びパルス選択のための AOM を通過した後、パルスエネルギー、長さ 1.6 メートルの Yb ドープファイバにより 60 nJ まで増幅した。1030-1050nm 付近の Yb<sup>3+</sup> が有するゲイン帯域幅のスペクトル成分は増幅されたが、より長い波長成分で増幅が不十分であり、より短い成分は Yb<sup>3+</sup> 自体に吸収されてしまっている (図 4 (b) 参照)。フィルターを 8 回透過させた後には 1030nm の周りのスペクトルピークは顕著に減少した。フィルター透過後のパルスエネルギーは 2 nJ であった。光パルスは、分散補償器を通過して 2m の Yb ドープファイバメインアンプによ

り増幅した。パルスエネルギーは、メインアンプで増幅後 300 nJ であった。メイン増幅器における励起 LD のパワーを増加させると、パルスエネルギーは、300 nJ 以上に増加したが、スペクトル帯域幅は、300 nJ 以下の場合よりも狭くなる。40mm の間隔をもつ格子対を使用することにより、増幅されたパルスは、数百フェムト秒まで圧縮された。一方、パルスエネルギーは 30% の透過効率で 100 nJ まで減少した。

(a)



(b)

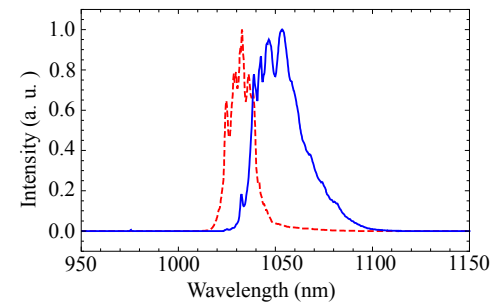


図 4 (a) は、発振器出力のスペクトル (点線) と、フォトニック結晶ファイバ (実線) からの出力、および (b) 利得狭窄補償前 (点線) と補償後 (実線) のスペクトル

図 5 には、システム全体から出力されるパルスのスペクトルと、2DSI で測定された高次分散補償前および補償後のスペクトル位相を示す。スペクトルから計算されるフーリエ変換限界パルス幅は 60 fs である。スペクトルに 2 つのピークがあるために、時間波形でも裾に構造が乗っている (図 5 挿入図)。サブパルスの強度はメインピークの 10 % 以下である。スペクトル位相には 3 次分散の影響が主に見て取れる。そこで、液晶空間光変調器を用いた位相制御器を動作させ、2DSI で測定されるスペクトル位相が平坦になるように調整した。測定されたスペクトル位相をもとに光周波数ごとの位相変調量を数回にわたってフィードバック制御したところ、1020 から 1080 nm までの範囲でスペクトル位相を揃えることができた。

図 6 には、位相制御をかけたパルスに対して実測された自己相関波形を示す。スペクトルから計算されるフーリエ変換限界パルスの自己相関波形も重ねて描いてある。最終的

にはパルス幅 65fs のほぼ最適化されたパルス出力が得られた。

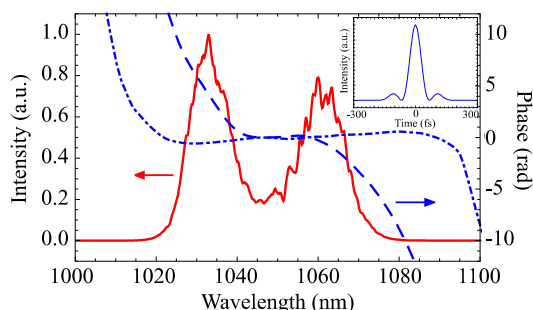


図 5 システム全体から出力されるパルスのスペクトル(実線)と、2DSI で測定された高次分散補償前(破線)および補償後(一点鎖線)のスペクトル位相。挿入図はスペクトルから計算されるフーリエ変換限界の時間波形

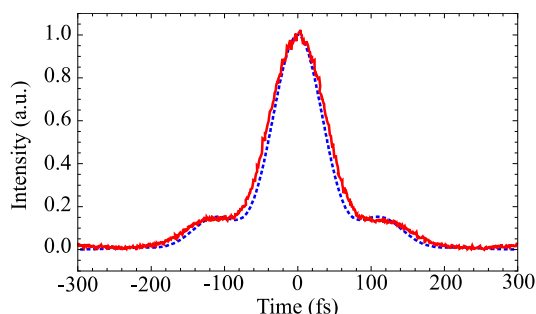


Fig.6. 位相制御をかけたパルスに対して実測された自己相関波形(実線)とスペクトルから計算されるフーリエ変換限界パルスの自己相関波形(点線)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- 1) Y. Chiba, H. Takada, K. Torizuka, and K. Misawa, "65-fs Yb-doped fiber laser system with gain-narrowing compensation" *Optics Express*, 23, 5, 6809-6814 (2015) doi: 10.1364/OE.23.006809 (査読あり)
- 2) Y. Obara, T. Katayama, Y. Ogi, T. Suzuki, N. Kurahashi, S. Karashima, Y. Chiba, Y. Isokawa, T. Togashi, Y. Inubushi, M. Yabashi T. Suzuki, and K. Misawa, "Femtosecond time-resolved X-ray absorption spectroscopy of liquid using a hard X-ray free electron laser in a dual-beam dispersive detection method" *Optics Express*, 22(1), 1105-1113 (2014) doi: 10.1364/OE.22.001105 (査読あり)
- 3) 千葉 雄平, 高田 英行, 鳥塚 健二, 三沢 和彦, 「可視域超高速分光を目指した 1 $\mu$ m 帯超短パルス光源の開発」, 信学技報,

Vol.114, No.46, LQE2014-10, pp.43-47, (2014) (査読なし)

〔学会発表〕(計 2 件)

- 1) Y. Chiba, H. Takada, K. Torizuka, and K. Misawa, "Broadband Yb-doped Fiber Laser System with Gain-Narrowing Compensation" Conference Paper in Advanced Solid State Lasers, AM5A.50 Shanghai, China (November 17, 2014)
- 2) 千葉 雄平, 高田 英行, 鳥塚 健二, 三沢 和彦, 「可視域超高速分光を目指した 1 $\mu$ m 帯超短パルス光源の開発」, レーザ・量子エレクトロニクス研究会, 福井大学 文京キャンパス, 2014 年 5 月 23 日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕  
出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

- 新聞報道(計 2 件)  
「高強度で超短パルス ファイバーレーザー装置開発 東京農工大」日刊工業新聞 2015 年 3 月 19 日  
「東京農工大、高強度と超短パルスを両立させた高速ファイバーレーザー装置開発」日刊工業新聞(WEB) 2015 年 3 月 19 日

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者  
三沢 和彦 (MISAWA Kazuhiko)  
東京農工大学大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 80251396

(2) 研究分担者  
高田 英行 (TAKADA Hideyuki)  
独立行政法人産業技術総合研究所  
電子光技術研究部門・主任研究員  
研究者番号: 50357357

鈴木 隆行 (SUZUKI Takayuki)  
明治大学理工学部・准教授  
研究者番号: 80539510

鳥塚 健二 (TORIZUKA Kenji)  
独立行政法人産業技術総合研究所  
電子光技術研究部門・グループ長  
研究者番号: 30357587

(3) 連携研究者  
なし