

学位論文題名

液体におけるフェムト秒時間域非線形

光学応答とその応用に関する研究

学位論文内容の要旨

フェムト秒パルスレーザー技術は、衝突パルスモード同期法、光ファイバーパルス圧縮法、光ソリトン、分散補償法など新しい発生法、制御技術が考案され、衝突パルスモード同期リング色素レーザーによって 22 fs、さらに色素増幅器と光ファイバー圧縮器を用いて 6 fs の時間幅を持つ超短光パルスまで得られるようになった。このような超短パルス発生技術の発達は、多彩な非線形光学現象の観測を可能とし、新しい物理現象を次々に解明してきた。また光産業においては、21 世紀のマルチメディア社会に向けて、超短光パルスを用いた超高速・大容量の光情報処理の実用化のための研究を加速してきた。

超高速・大容量光情報処理の実現のためのキーテクノロジーのひとつに、超高速光制御素子(光スイッチ等)があげられる。これは、光学材料の超高速非線形光学応答を利用し、光を所定の方向に曲げたり、光の位相を制御したり、光の偏光面を回転させたりするもので、それをフェムト秒光パルスで駆動することによって超高速光制御素子が可能となる。そのためには、大きな非線形性と短い応答時間を持つ光学材料の開発、およびそれらのフェムト秒領域における非線形光学応答の精確な評価が重要となってくる。

本研究の目的は、第一に非線形光学材料のフェムト秒領域での光学応答特性を測定する装置を試作し、これを用いて CS_2 の過渡応答特性を明らかにすることである。さらに、その応答特性に基づいて、遅延応答を持つ媒質中におけるフェムト秒光パルス非線形伝搬特性を明らかにし、それによって得られた知見から遅延応答を持つ材料を利用した光学素子の例として新光パルス圧縮法を提案し、その実現性を明確にすることである。

本論文は 7 章から構成されている。

第 1 章では、本研究の背景と目的を述べる。

第 2 章では、本研究の中心課題である物質の非線形光学応答について述べている。ここでは、量子力学的な摂動理論を用いて、光に対する物質の非線形な応答である非線形分極を導出している。特に、物質系に液体などの凝縮系を考え、非線形分極を瞬時に応答する電子分極による部分と分子の運動による応答の遅れの部分とに分けて、遅延応答による効果を明確に記述している。非線形光学効果のひとつである非線形屈折率効果についても説明し、非線形分極と非線形屈折率 (n_2) の関係を明らかにしている。また、光の偏光方向の違いによって非線形屈折率に独立な二つの成分 ($n_{2//}$: 光の偏光方向と同じ方向の屈折率変化の光の強度に対する比例係数, $n_{2\perp}$: 光の偏光方向に対して垂直な方向の屈折率変化の光の強度に対する比例係数) が存在することを示し、それらと非線形分極の関係についても述べている。

第 3 章では、本研究で試作した光学材料のフェムト秒領域での非線形光学応答特性を評価する装置である、noncollinear 型フェムト秒時間分解干渉計について述べる。従来の非線形光学応答特性評価装置では、原理的に $n_{2//}$ と $n_{2\perp}$ とを分離して高精度に測定することができなかったが、本研究で試作した noncollinear 型フェムト秒時間分解干渉計は、干渉によって非線形屈折率効果による屈折率変化を直接測定するために、光の偏光方向を変

えるだけで $n_{2//}$ と $n_{2\perp}$ を独立に測定できる。また、測定によって得られる信号は屈折率変化に比例しているために、従来の方法では不可能であった非線形屈折率の符号の評価も可能である。さらに、本研究では、従来の方メートル秒時間分解干渉計を noncollinear 型配置に改良し、ポンプ光をプローブ光に対して斜めに入射させることによって、ダイナミックレンジの向上が達成された。これによって、ポンプ光の強度を低減することが可能となり、試料にダメージを与えることなく正確な評価を行うことが可能となった。また、この章では、フェムト秒光パルス発生装置であるチタンサファイアレーザーとフェムト秒光パルスの特性を評価する SHG 自己相関計についても述べている。

第4章では、試作した noncollinear 型フェムト秒時間分解干渉計を用いて測定した CS_2 の非線形屈折率 $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ の応答時間特性について述べている。この測定結果により、試作した noncollinear 型フェムト秒時間分解干渉計が高精度な測定装置であり、材料の非線形光学特性の時間応答評価に極めて有用であることが明らかとなった。また、 CS_2 の非線形屈折率 $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ を電子分極、双極子誘起・双極子分極 (DID) 分極、配向分極の各成分に分解し、それぞれの符号を含めた値および時定数を精度良く求めた。この結果から、 $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ のそれぞれの DID 分極起因成分間の関係を、初めて定量的に明らかにしている。さらに、 CS_2 希釈溶液の測定結果についての分子ダイナミクス解析から、双極子誘起・双極子分極に起因する分子運動が分子間並進運動であること、および、この双極子誘起・双極子分極には分子間2体相互作用が大きな役割を果たしていることを明らかにした。この結果より、DID 分極起因成分は媒質中の任意の分子とその最隣接分子からなるクラスターの分極の重ね合わせによって生じていると解釈するクラスターモデルを提案し、このクラスターモデルを用いることによって、先に実験的に明らかにした $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ のそれぞれの DID 分極起因成分間の関係をうまく説明できることを示した。

第5章では、本研究で明らかとなった CS_2 に対する $n_{2//}$ と $n_{2\perp}$ の応答時間特性を用いて、フェムト秒光パルスの伝搬特性を支配する非線形伝搬方程式を導出している。これまで、光学材料のフェムト秒領域での応答時間を正確に評価することが困難であったため、遅延応答を有する光学材料中のフェムト秒光パルスの伝搬特性は、材料の応答関数を近似したものをを用いて評価していた。しかしながら、この章で導出した、実測した応答関数をあらわに含んだ非線形伝搬方程式を用いることによって、より正確にフェムト秒光パルスの伝搬特性を評価することが可能となった。

第6章では、 CS_2 遅延応答による負の非線形屈折率を利用した新規光パルス圧縮法を提案し、その動作特性を評価するために行った数値計算結果について述べている。この新光パルス圧縮法は、従来の光パルス圧縮法において光パルス波形のひずみを生じさせる要因であるとされてきた非線形屈折率の遅延応答成分を積極的に利用したものである。さらに、 CS_2 遅延応答による非線形屈折率は負の値を示すので、従来の方法では不可能であった、正常分散領域における外部位相補償を行わない光パルス圧縮が可能となり、装置の小型化、操作性の向上などが期待される。また、遅延応答成分を利用した光学素子という考えは、これまでにはなかった視点であり、今後の非線形光学材料の開発に対して、新しい指針を与えるものである。すなわちここでは、ポンプパルスとプローブパルスの遅延時間に着目し、第5章で導出した非線形伝搬方程式を用いて、圧縮された光パルス波形変化の遅延時間依存性を明らかにした。これに基き、遅延時間を最適化することによって、従来の光パルス圧縮法で発生していた遅延応答による波形のひずみを最小限に押さえることが可能となることが明らかとなった。さらに、ポンプパルス強度による圧縮された光パルス波形の変化より、 CS_2 ファイバーのパルス圧縮に寄与する実効的な非線形屈折率の値とその圧縮効率を評価した。これらの結果を基にして、新光パルス圧縮法の効率の向上のために求められる、新規非線形光学材料の開発指針についても議論している。

第7章では、本研究を総括する。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 山 下 幹 雄
副 査 教 授 大 塚 喜 弘
副 査 教 授 大 場 良 次
副 査 助 教 授 森 田 隆 二

学 位 論 文 題 名

液体におけるフェムト秒時間域非線形 光学応答とその応用に関する研究

超高速・大容量光情報処理の実現のためのキーテクノロジーのひとつに、超高速光制御素子（光スイッチ等）があげられる。これは、光学材料の超高速非線形光学応答を利用し、光を所定の方向に曲げたり、光の位相を制御したり、光の偏光面を回転させたりするもので、それをフェムト秒光パルスで駆動することによって超高速光制御素子が可能となる。そのためには、大きな非線形性と短い応答時間を持つ光学材料の開発、およびそれらのフェムト秒領域における非線形光学応答の正確な評価が重要となってくる。

本研究の目的は、第一に非線形光学材料のフェムト秒領域での光学応答特性を測定する装置を試作し、これを用いて CS_2 の過渡応答特性を明らかにすることである。さらに、その応答特性に基づいて、遅延応答を持つ媒質中におけるフェムト秒光パルス非線形伝搬特性を明らかにし、それによって得られた知見から遅延応答を持つ材料を利用した光学素子の例として新光パルス圧縮法を提案し、その実現性を明確にすることである。

本論文は7章から構成されている。

第1章では、本研究の背景と目的を述べる。

第2章では、本研究の中心課題である物質の非線形光学応答について述べている。特に、物質系に液体などの凝縮系を考え、非線形分極を瞬時に応答する電子分極による部分と分子の運動による応答の遅れの部分とに分けて、遅延応答による効果を明確に記述している。非線形光学効果のひとつである非線形屈折率効果についても説明し、非線形分極と非線形屈折率 (n_2) の関係を明らかにしている。また、光の偏光方向の違いによって非線形屈折率に独立な二つの成分 ($n_{2//}$: 光の偏光方向と同じ方向の屈折率変化の光の強度に対する比例係数, $n_{2\perp}$: 光の偏光方向に対して垂直な方向の屈折率変化の光の強度に対する比例係数) が存在することを示し、それらと非線形分極の関係についても述べている。

第3章では、本研究で試作したフェムト秒領域での非線形光学応答特性を評価する装置である、noncollinear型フェムト秒時間分解干渉計について述べる。従来の非線形光学応答特性評価装置では、原理的に $n_{2//}$ と $n_{2\perp}$ とを分離して高精度に測定することができなかったが、本研究で試作した noncollinear型フェムト秒時間分解干渉計は、光の偏光方向を変えるだけで $n_{2//}$ と $n_{2\perp}$ を独立に測定できる。また、測定によって得られる信号は屈折率変化に比例しているために、従来の方法では不可能であった非線形屈折率の符号の評価も可能である。さらに、本研究では、従来のフェムト秒時間分解干渉計を noncollinear

型配置に改良し、ポンプ光をプローブ光に対して斜めに入射させることによって、ダイナミックレンジの向上が達成された。これによって、ポンプ光の強度を低減することが可能となり、試料に損傷を与えることなく正確な評価を行うことが可能となった。

第4章では、試作した noncollinear 型フェムト秒時間分解干渉計を用いて測定した CS_2 の非線形屈折率 $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ の応答時間特性について述べている。この測定結果により、試作した noncollinear 型フェムト秒時間分解干渉計が高精度な測定装置であり、材料の非線形光学特性の時間応答評価に極めて有用であることが明らかとなった。また、 CS_2 の非線形屈折率 $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ を電子分極、双極子誘起・双極子 (DID) 分極、配向分極の各成分に分解し、それぞれの符号を含めた値および時定数を精度良く求めた。この結果から、 $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ のそれぞれの DID 分極起因成分間の関係を、初めて定量的に明らかにしている。さらに、 CS_2 希釈溶液の測定結果についての分子ダイナミクス解析から、DID 分極に起因する分子運動が分子間並進運動であること、および、この DID 分極には分子間2体相互作用が大きな役割を果たしていることを明らかにした。この結果より、DID 分極起因成分は媒質中の任意の分子とその最隣接分子からなるクラスターの分極の重ね合わせによって生じていると解釈するクラスターモデルを用いることによって、先に実験的に明らかにした $n_{2//}$, $n_{2\perp}$ のそれぞれの DID 分極起因成分間の関係をうまく説明できることを示した。

第5章では、本研究で明らかとなった CS_2 に対する $n_{2//}$ と $n_{2\perp}$ の応答時間特性を用いて、フェムト秒光パルスの伝搬特性を支配する非線形伝搬方程式を導出している。これまでは、光学材料のフェムト秒領域での応答時間を正確に評価することが困難であったため、遅延応答を有する光学材料中のフェムト秒光パルスの伝搬特性は、材料の応答関数を近似したものを用いて評価していた。しかしながら、この章で導出した、実測した応答関数をあらわに含んだ非線形伝搬方程式を用いることによって、より正確にフェムト秒光パルスの伝搬特性を評価することが可能となった。

第6章では、 CS_2 遅延応答による負の非線形屈折率を利用した新規光パルス圧縮法を提案し、その動作特性を評価するために行った数値計算結果について述べている。この新光パルス圧縮法は、従来の光パルス圧縮法において光パルス波形のひずみを生じさせる要因であるとされてきた非線形屈折率の遅延応答成分を積極的に利用したものである。さらに、 CS_2 遅延応答による非線形屈折率は負の値を示すので、従来の方法では不可能であった、正常分散領域における外部位相補償を行わない光パルス圧縮が可能となる。また、遅延応答成分を利用した光学素子という考えは、これまでにはなかった視点であり、今後の非線形光学材料の開発に対して、新しい指針を与えるものである。すなわちここでは、ポンプパルスとプローブパルスの遅延時間に着目し、第5章で導出した非線形伝搬方程式を用いて、圧縮された光パルス波形変化の遅延時間依存性を明らかにした。これに基き、遅延時間を最適化することによって、従来の光パルス圧縮法で発生していた遅延応答による波形のひずみを最小限に押さえることが可能となることが明らかとなった。さらに、ポンプパルス強度による圧縮された光パルス波形の変化より、 CS_2 ファイバーのパルス圧縮に寄与する実効的な非線形屈折率の値とその圧縮効率を評価した。

第7章では、本研究を総括する。

これを要するに、著者は、工夫されたフェムト秒時間分解干渉装置を試作し、これを用いて、液体の非線形屈折率の超高速応答特性を高い精度で明らかにするとともに、その超高速応答非線形性を利用した新しい光パルス圧縮法を提案し、その実現性を定量的に示したものであり、超高速光エレクトロニクスおよび応用物理学の進歩に寄与するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。