

Rainbow Stars : 極限の超短パルス光発生に挑む

Imasaka, Totaro
Faculty of Engineering, Kyushu University

<https://hdl.handle.net/2324/4060746>

出版情報 : ぶんせき. 2005 (10), pp.583-586, 2005. 日本分析化学会
バージョン :
権利関係 :

ぶんせき

別刷

No. 10

2005

Rainbow Stars—極限の超短パルス光 発生に挑む

今坂 藤太郎

社団法人 日本分析化学会

東京都品川区西五反田1丁目26番2号 五反田サンハイツ304号



Rainbow Stars—極限の超短パルス光発生に挑む

今坂 藤太郎

Prologue：七色のレーザー光線

1987年に虹色レーザーを見出し、これをRainbow Starsと名付けました。その様子は、本誌の「創案と開発」欄（1992年9月号750ページ）に掲載されています。Rainbow Starsを用いて超短パルス光を発生するには、フェムト秒レーザーを用いて本現象を起こす必要があります。幾つもの偶然に助けられ、遂に、フェムト秒レーザーを用いて本現象が発生できることを実証しました。その様子は、続編（2001年2月号93ページ）に掲載されています。しかし、実際に超短パルス光を発生することはできませんでした。

New Idea!：超短パルス光が発生可能か？

1992年に“アイデア”が浮かびました。位相同期レーザーでは、等周波数間隔の縦モードの位相を同期させ、周期的に短パルス光を発生させます。レーザーのスペクトル領域が広いほど、短い光パルスが得られます。Rainbow Starsでは、等周波数間隔の発振線が紫～近赤外域で得られるので、光による極限の超短パルスが発生できるようになります。早速、その考えを*Optics Communications*に投稿しました。専門誌に投稿すれば、その妥当性について意見が伺えると考えたからです。もし審査員から、

「大変ユニークな提案で、興味を持って読ませていただきました。しかし、そのようなことは、実際には起こりません。しかし、貴方の勇気ある提案に敬意を表します」と言うコメントが返ってきたら、筆者も学生と笑いながら、

「やっぱりねー。世の中、そんなに甘くないねー」と言い、本稿を執筆することもなかったでしょう。しかし、編集者からは、いきなりゲラ刷りが送られてきました。こんな論文を出して、研究者生命が絶たれることはないのか？と不安でした。でも、何かあったら、このように言えばいいか……。 「いやー、済みません。こちらは分析化学が専門で、レーザーはシロウトなんです。どうも、ちょっと勘違いしてすみません……ハハハ。これから気をつけますから。ハイ」

Phase Lock vs. Mode Lock：位相整合と位相同期は同じか？

Rainbow Starsで超短パルス光が得られるか否かは、発振線の位相が同期するかどうかによります。図1に示すように、筆者は、位相が自動的に同期し、超短パルス光が発生すると主張しました。しかし、他の研究者が認めるところとはなりません。「もし、そう思うのであれば、位相が同期することを証明しては？」と言う人もいました。そこで周波数分解光ゲート法（FROG）に基づくパルス幅測定装置を自作し、これを実証することにしました。フーリエ変換・自己無撞着場による計算値と測定値の偏差を低減していく本法は、開発した装置が正しく動作しているか否かをチェックするのさえ容易ではありません。一方、超短パルス光を発生するには、第2稿で紹介したチャープパルスではなく、フーリエ限界パルスを用いてラマン光を発生する必要があります。しかし、尖頭出力が高くなるので、自己収束や自己位相変調などが優先的に生じ、ラマン光が発生しなくなります。図2は*Analytical Sciences*に掲載した結果です。基本光、第1ストークス光、微弱な第2ストークス光が観測されていますが、150 fs程度のパルス包絡線内に、辛うじてビート波形が観測されているに過ぎません。

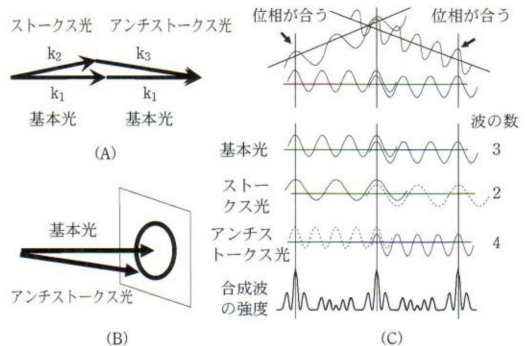
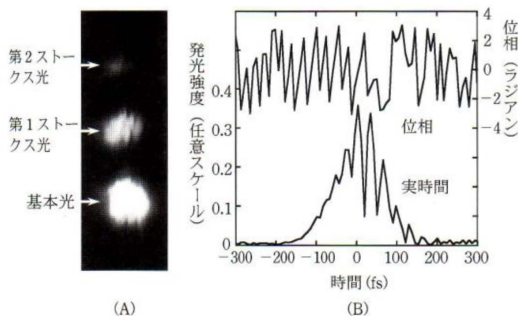


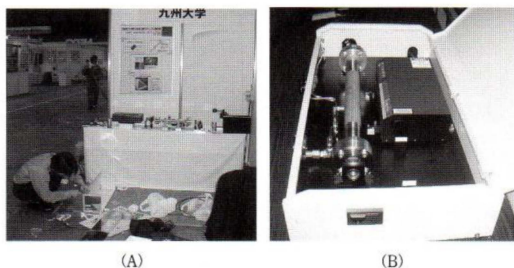
Figure 1. Rainbow Stars generation process. (A) Phase matching is required. (B) This is the experiment where the anti-Stokes light is observed in a down-conversion type. (C) This shows the periodic phase locking and the start of phase locking (as claimed by the author).

“Rainbow-Stars”: Generation of an Ultrashort Optical Pulse!

図1 位相整合と位相同期



(A) スペクトル, (B) FROG による測定結果 (上: 位相, 下: 時間波形)
 図2 ラマン光の測定結果[Anal. Sci., 17 (Supplement), i1165 (2001)より引用]



(A) 技術フェアで準備中の写真, (B) 市販化装置
 図3 開発した虹色レーザー

Light! : 我に光を!

Rainbow Stars を用いて超短パルス光を発生・計測するには、自己収束や自己位相変調が起こらないビーム質が良好なレーザーと、時間分解能が高いパルス幅計測装置が必要です。これらを購入するには大型研究資金が不可欠です。筆者は、総額100億円以上も申請書を出しましたが、いずれも不採択でした。そのうちに大学院生は少なくなり、指導していたスタッフも転出しました。そして、フェムト秒レーザーを動かせる人材もいなくなりました。

Young Boy! : 新しい技官さんが来た!

2000年4月、新しい技官が研究室に着任しました。工業高校の電気科出身です。

「やー。18歳ですか。すると、大学の入学生と同じ年齢ですね」

「初めての社会人生活です。よろしくお願ひします」

「18歳とすると、あっ、まだ飲酒はいけませんよね。研究室は、すべて20歳以上ですが、私が見ている前では、飲酒はなしということをお願いします」

「わかりました。熊本出身なので、家では時々飲んでいるのですが……」

この技官の方には、虹色レーザーの実用化、展示会への出品などを担当していただきました。図3(A)は、国際技術フェア2001で実演準備中の写真です。(B)は、ある機関から補助を

頂いて試作した製品化モデルです。この研究予算で、パルス幅を測定するオートコリレーターを購入することができました。多色レーザーの研究に直接関係する装置ではないので気になりましたが、研究費をいただいた機関のトップの方から、「気にすることはありません。どうぞ、その装置を買って、超短パルス光の発生を実証して下さい」と激励されました。とてもいたたまれない気持ちでした。

Education? : 教育とは?

研究室に4年生のD君が来ました。(よく言えば)自主独立の気概を持った学生でした。そこで、経験を積ませるため、卒業後に1か月間ベトナムの研究所に派遣しました。開発途上国における研究の現状を見れば、将来の研究において得るところがあると考えたからです。しかし、第1日目に励起光源に付属するために持参したBBO結晶を落として破損し、その後“ピロリ菌にやられ”(路地で買った生ヨーグルトを食べたのが原因との説もある)国際病院に入院するなど、各方面にご迷惑をお掛けしました。なかなか、期待どおりには、行かないものです。

Impatience : データは、まだ出ないか?

大学院生になったD君は、フーリエ限界パルスを用いてラマン光を発生させ、私達の使用条件では最高性能の市販オートコリレーター(時間分解能20 fs)を用いてパルス幅を測定することにしました。しかし、以前と同様、パルス幅の包絡線内でビート波形が観測されるだけでした。位相同期を証明するには、時間波形がインパルス的になることを示さなければなりません。それ以前に、フーリエ限界パルスを用いると、ラマン光を安定に出すこと自体が困難で、時間ばかりが経過して行きます。

Surprise! : 驚愕! 神は我を見捨てたか?!

2000年、遂に、Max Born 研究所から、水素の回転ラマン光を利用して超短パルス光が発生することが報告されました。この報告を見て、私達は愕然としました。その後、3.8 fsの単一超短パルスが得られることも報告されました。2001年、今度はStanford 大学から、振動ラマン光を利用して超短パルスが発生することが報告されました。最近の論文では、1.6 fsの光パルスが発生できることも報告されています。私達のRainbow Stars 技術により、今までの記録(2.8 fs)を大幅に更新する超短パルス光が得られたのです。

Last Chance! : 私達にも、最後のチャンスが!

研究費がなく手も足も出なかった私達にとって、ようやく朗報がありました。我々の技術により外国で超短パルス光が発生したと記載すると、申請書が採択されたのです。そこで、新しいフェムト秒レーザーを購入することにしました。D君とは、研究の進め方について十分打ち合わせました。ラマン媒質として水素を用いる場合には、57 fs ごとに光パルスが生じますが、ビート波形しか観測されず、その幅も20 fs 近くにまで狭くなっています。したがって、超短パルスが発生しても、購入したオートコリレーターでは分解能が不十分で、パルス幅が

測定できない可能性があります。そこで、ラマン媒質として重水素を用いることにしました。この場合には、ラマンシフト周波数が小さく、パルス間隔とパルス幅が広がります。したがって、購入したオートコリレーターを用いてもパルス幅が測定できるようになります。しかし、物理の研究者も観測したことがない可視域の $J=0 \rightarrow J=2$ 回転ラマン遷移を利用する必要があります。これを実現するには、高圧のラマンセルを液体窒素で冷却し、重水素を $J=0$ の状態に保持する必要があります。

Hydrogen vs. Deuterium : 水素か、重水素か？

第2稿で紹介したA君の液体窒素で冷却するラマンセルの研究が、ここで役に立ちました。以前は動作が不安定でしたが、問題点はわかっていましたので、早速ラマンセルを改良しました。ナノ秒パルスレーザーを液体窒素温度に冷却したラマンセルに集光すると、いきなり $J=0 \rightarrow J=2$ のラマン遷移が観測されるではありませんか。ついで、現有のフェムト秒チタンサファイアレーザーを用いて、回転ラマン光を発生することにしました。D君から、

「チャープにより多少パルス幅は広がっていますが、回転ラマン光は発生しています」

と報告を受けました。

「よし！今度は、オートコリレーターでパルス幅を測るんだ！」と指示しました。以下は、その後のD君との会話です。

「パルス波形を測っているんですが、以前のビート波形と大差はありません」

「いや。そんなに簡単に超短パルス光が測れるはずはない。測定できると、到着を待っている新しいレーザーが無駄になる。これから勝負だ！」

そして、いよいよビーム質がよい新しいレーザーが来ました。

1日目

「D君、結果は、どうかな」

「まだ、ちょっと、よくわかりません」

2日目

「D君、なかなか大変なようだね」

「今、やっているところです」

「まあ、そんなに簡単にデータが出るはずはないだろう」

3日目

「D君、やっぱり、難しいのか」

「……………」

Miracle! : そして奇跡が！

2002年12月19日

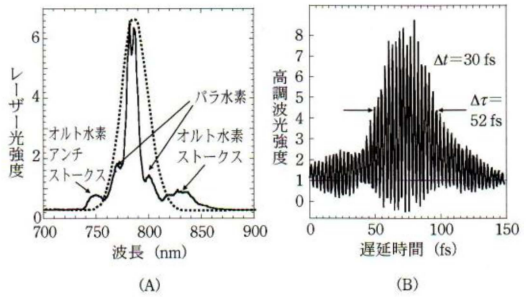
「D君、まだデータは出ないのか？」

「やっぱり、重水素では無理みたいです。そこで、水素に変えてみました」

「えっ!! 何で、そんなことをしているんだ。水素の場合、購入したオートコリレーターではパルス幅が測定できない、だから重水素を使っているんじゃないか。今、データが出なくて苦しいと思うが、僕の経験から言って、ここが我慢のしどころだ！」

「でも、先生、水素にしたら超短パルスが出ました」

「えっ!!!」



(A) スペクトル, (B) オートコリレーショントレース

図4 超短パルス光の測定結果

Ultrashort Optical Pulse! : 超短パルス光の発生！

「先生、僕を信用していませんね。今、実験していますけど、見ますか？」

「(見ないでどうする!) いったい、どれを見ればいいんだ!」

「このパソコンの画面にラマン光のスペクトルが出ています。今、基本光の偏光方向を変えてみます。すると、ラマン光のスペクトルが変わるのがわかります。短波長のアンチストークス線が出るのが重要なんです」

「あー、なるほど、確かに偏光方向を調整すると、アンチストークス線が出るようだ」

図4(A)に示すように、画面にはオルト水素のストークス線とアンチストークス線が観測されています。

「オートコリレーターは、これです。画面を見て下さい。ほら、超短パルスが出ているでしょう。アンチストークス線が出るとき、この超短パルスが出るんです」

画面には、図4(B)のようなデータが観測されています。パルス幅が30 fs程度まで狭くなっているようです。しかし、D君を疑うわけではありませんが、横軸のスケールを間違えている可能性があります。そこで、フリンジ数をカウントして見ました。フリンジ間隔は2 fs程度なので、大凡のパルス幅が直ちに計算できます。すると、D君が言っていることは、やはり正しいのです。

Phase Locking? : 位相は同期しているか？

30 fsの光パルスを得るには、図4(A)の波線に示すスペクトル幅が必要で、かつ光の位相が同期してはなりません。したがって、ラマン光発生において位相が自動的に同期することが、ここに証明されたのです。なお、後日の研究により、基本光のスペクトルピーク近傍に観測されている小さなピークは、1/4の割合で存在するパラ水素の回転ラマン光によるものであり、このために単一の超短パルスが発生・計測できたことがわかりました。その後、ラマンセルを2台用いることにより、17 fsの光パルス発生にも成功しています。また、紫外域において、7 fsの光パルス発生を示唆する結果も得ています。

表1 Rainbow Starsを用いる超短パルスレーザー

	パルス幅	エネルギー	長所	短所
Max Born	3.8 fs	0.3 μJ	単一パルス	エネルギーが小さい
Stanford	1.6 fs	<0.1 μJ	短パルス世界記録	櫛状のパルス
筆者	17 fs	300 μJ	高エネルギー	パルス圧縮が不十分

Toward a Dream! : 夢に向けて!

表1は、これまでの研究成果をまとめたものです。Max Born 研究所は、単一の超短パルスを発生させています。Stanford 大学は、ナノ秒パルスの包絡線内に櫛状ではありますが、世界最短の光パルスを獲得しています。私達は、エネルギーが1000倍大きな超短パルス光を発生させています。どれがよいかは見解が分かれるところと思いますが、私達は、多光子イオン化など分析化学においては、エネルギーが最も重要な因子であると考えています。最近では、1 fs 以下の極限の単一超短パルス光を発生・利用する「アット秒化学」の夢に向かって研究を進めています。そのような研究では、どのようにパルス幅を測定するか、応用例をどのように構築するか、が重要になります。すなわち、1 fs の光パルスは、試料や光学素子を通すことはもちろん、空気を1 cm 伝搬させるだけで1.8 fs に広がりますので、パルス幅の測定と応用は、もはや不可分のものと考えなくてはなりません。

Epilogue : 分析化学か?

Rainbow Stars の研究は、分析化学か否か? これは、すべての読者が考えている疑問だと思います。図5は *Analytical Chemistry* に掲載された Rainbow Stars の紹介記事です。この疑問に答えるため、Katzman と Zubrisky の見出しの言葉を引用しましょう。

「分析化学は、あなたを未知の世界に誘います。恐らく、それ



図5 Rainbow Stars の紹介記事 [“Rainbow Stars: A Spectrum of Possibilities”, Sandra Katzman and Elizabeth Zubrisky, *Analytical Chemistry*, 357 A, July 1, 2001 より引用]

はアット秒の壁を越えて!」



今坂藤太郎 (Totaro IMASAKA)

九州大学工学研究院 (〒812-8581 福岡市東区箱崎6-10-1)。九州大学大学院工学研究科応用化学専攻博士課程修了。工学博士。<現在の研究テーマ>レーザー並びにレーザーを用いる科学計測の研究。<趣味>水泳, テニス, 読書 (最近はハーレクインロマンス)。

E-mail : imasaka@cstf.kyushu-u.ac.jp