

連続光を用いたコヒーレントラマンサイドバンド発生

Imasaka, Totaro
Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering, Kyushu University

<https://hdl.handle.net/2324/4060752>

出版情報：応用物理. 76 (2), pp.164-168, 2007-02-10. 応用物理学会
バージョン：
権利関係：

I 連続光を用いたコヒーレントラマンサイドバンド発生

今坂藤太郎

九州大学大学院 工学研究院 応用化学部門

〒819-0395 福岡市西区元岡 744 番地

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

分類番号 : 6.2, 7.7

II Generation of coherent Raman sidebands using a
continuous-wave laser source

Totaro IMASAKA

Department of Applied Chemistry, Graduate School of
Engineering, Kyushu University (744, Motooka,
Nishi-ku, Fukuoka 819-0395)

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

Category : 6.2, 7.7

和文要旨

レーザーを水素分子に集光すると、ラマン現象により等周波数間隔で、多数の発振線が得られる。これらの発振線は、位相が自動的に同期し、超短パルス光が発生する。連続発振レーザーを高フィネス共振器中の水素に集光すると、等周波数間隔の連続発振レーザーが得られる。これらの発振線の重ね合わせにより、高繰り返し光パルス列が発生する。このレーザーは、将来、周波数標準や超高速光通信のための光源へ応用が期待されている。

英文要旨

When a laser beam is focused into molecular hydrogen, multifrequency laser emission with equal frequency spacing is generated by a phenomenon based on Raman scattering. These emission lines are automatically phase-locked to generate an ultrashort optical pulse. When a continuous-wave laser is focused into molecular hydrogen in a high-finesse cavity, a continuous-wave multifrequency laser emission with equal frequency spacing can be generated, leading to a train of pulses caused by coherent superposition of the emission lines. This laser has the potential to be used as a standard-frequency light source as well as in ultrafast optical communication.

Key Words:

Raman scattering, four-wave Raman mixing, molecular hydrogen, multifrequency laser emission, ultrashort optical pulse, high-finesse cavity, continuous-wave Raman laser

1. まえがき

1987年、筆者は、誘導ラマン効果を用いてレーザー波長を変換しているとき、虹色に輝くレーザーを見出し、これを“Rainbow Stars”と名付けた。私事で恐縮であるが、後日、米国の科学博物館内の売店において、紫外線を当てると星型のプレートが光る“Rainbow Stars”と言う玩具が販売されていることを知り、大変驚いた。添付の説明によると、この玩具の名称は、1997年に商標登録されているとのことである。筆者は、1989年にRainbow Starsの名称を論文で用いていたので、その使用について他を排斥することはできないが、この名称を公に用いることはできる。実は、このRainbow Starsの名称を付けたことについては、紆余曲折があった。最初の論文において、本現象を報告したときにこの名称を付けたところ、編集者からこの名称を削除するように求められ、論文掲載を優先するためその指示に従った。しかし、図中にRainbow Starsの表記があったのを、うっかり消し忘れていたことに、後日気付いた。そこで、筆者は、折に触れ、この表現を用いている。なお、この虹色レーザーの発見の様子、研究の苦悩と新展開については、他誌に報告されている¹⁻⁴⁾。

2. 虹色レーザーの起源

後日、本現象は水素の回転ラマン線が多数発生したことに起因することが分かった。論文の審査員から「回転ラマン光は、角運動量保存則のため、直線偏光では発生しない。したがって、何らかの光学素子を通過したことによって、

励起光が円偏光になっているはずである。また、円偏光を用いた場合も、長波長側のストークス光だけが発生するはずであり、短波長側のアンチストークス線が発生している理由が理解できない」とコメントを頂いた。当方も、的確に回答することができず「とくに円偏光にするための光学素子を通過させてはいない」と記載して、掲載許可を頂いた。しかし、その後の研究により、レーザー並びにその調整不良のため、偶然水素の回転ラマン遷移周波数だけ周波数が異なる2つの波長でレーザー発振していたため、高次回転ラマン線が四波混合により効率よく発生していたことが判明した。なお、レーザー製造元のニュースレターにおいて「当社のレーザーの欠陥により、この新現象が発見された！」と紹介して頂き、大変恐縮している。なお、この虹色レーザーについては、1987年に特許を出願し、登録している。しかし、出願後20年余を経、この特許技術は現在広く開放されている。

3. “光”の定義

“光”の定義については、筆者は、必ずしもよく理解していない。が、一般人の常識から言えば、“可視光”を光と言うのではないだろうか。ただし、“紫外光”もワイシャツに当てると紫色に光るし、日焼けなどでも日常生活に馴染みが深い。一方、“赤外光”も可視域に近いものは“光線”と言うこともある。したがって、少し広めに考えた場合には、紫外域から近赤外域における電磁波を“光”と言えるのではないだろうか。

4. “極限”の超短パルス光

本現象を用いれば、紫外から近赤外の“光”の全波長域において、等周波数間隔で、多数の発振線を得ることができる。この現象、すなわち誘導ラマン散乱とそれに引き続く四波ラマン混合過程では、自動的に位相が同期することは自明であると主張したが、他研究者の賛同するところとはならなかった。しかし、長年の労苦の結果、ようやくそれを実証することができた^{3,5)}。よく知られているように、短い光パルスを発生するには、広いスペクトル領域の光を、位相を揃えて重ね合わせる必要がある。光の全領域で位相の揃った光を発生できる本現象を用いれば、光で発生可能な“極限の”、言い換えると“最短の”光パルスを発生できることになる。このようなラマン現象を用いることにより、現在、1.6 fsの光パルスが発生されており、光を用いる世界最短の光パルスが得られている⁶⁾。ただし、現在のところナノ秒パルスの包絡線の中で光パルス列を発生させており、単一光パルスではない。

現在、極端（真空）紫外域において、高次高調波によりアト(10^{-18})秒パルスが発生されている。欧米では、これを用いて原子を対象とする研究、すなわち“アト秒物理”の研究が提唱されている。上記のラマン現象を用いる方法は、光の領域におけるアト秒パルスの発生が期待できる。このような光源を利用すれば、化学において重要な芳香族化合物を始め多数の分子に対して、極限の時間分解能で超高速現象を解明することができる。このため、筆者は、本現象

を用いる“アト秒化学”の新分野を提唱している。なお、このラマン現象を用いて超短パルス光を発生する方法は、すでに筆者により特許出願、登録されている。

5. 連続発振レーザーを用いる誘導ラマン光の発生

連続発振レーザーを用いて、本現象を起こすことができれば、光波の重ね合わせにより高繰り返し光パルス列が発生できる。たとえば、オルト水素の回転ラマン光の場合には 17 THz の光パルス列が得られる。しかし、本現象は、非線形光学現象の一つであり、励起光強度が大きい場合にしか観測されない。したがって、光源には、一般にパルスレーザーが用いられる。最近、水素を共振器内に入れることにより、連続発振レーザーを用いても、ラマン光を発生できることが示されている。しかし、複数のラマン線を効率よく発生することは、実現していなかった。筆者は、複数のラマン線を発生させるための条件を提示し、発振線の位相同期により高繰り返し光パルス列が得られることを提案した。この方式については、すでに国際特許を出願、登録している。

本研究紹介欄では、上記のアプローチにより、高次回転ラマン線が発生できること、またパルス列が発生していることを検証した結果について紹介する。

6. 動作原理とシミュレーション

このラマン現象に基づく方法によれば、オルト水素の場合には 587 cm^{-1} の周波数間隔でレーザー発振線が得られる。連続発振レーザーを光源とする方法では、水素を共振器内

に入れ、励起光並びにラマン光の強度を増大させる必要がある。共振器内では、縦モードの周波数に等しい周波数の光だけが伝搬できるので、励起光、ラマン光の周波数と共振器の縦モードの周波数を厳密に一致させる必要がある。表 1 は、共振器長が $17.04 \mu\text{m}$ のときの縦モードの周波数間隔を求めた結果である⁷⁾。この場合、励起レーザーとして 792.6 nm で発振するチタンサファイアレーザー(基本波)と、波長が 587 cm^{-1} シフトしたラマン光のいずれもが共振することがわかる。したがって、共振器中では、基本波とラマン光の強度が増大し、共振器から出射することができる。実際には、レーザーと水素の相互作用長を長くするため、共振器長をその整数倍、たとえば 5000 倍に設定しており、共振器長は 8 cm 程度になる。この場合には、 $587 \text{ cm}^{-1}/5000$ 毎に共振する周波数が存在し、 $17.04 \mu\text{m}/5000$ 毎に共振する共振器長があることになる。図 1 (A) は、シミュレーションにより回転ラマン線の発生を確認した検討した結果である⁷⁾。図 1 (B) は、そのときの時間波形を求めたもので、 57 fs 毎にパルス幅 12 fs の光パルスが発生することを示唆している。

7. 実験装置

図 2 は、連続発振レーザーを共振器内に充填した水素に集光してラマン光を発生させる実験装置である⁸⁾。配置は、連続発振ラマンレーザーを実現した Carlsten らの装置を参考にしている⁹⁾。励起光源には、出力 100 mW 前後の狭帯域発振チタンサファイアレーザーを用いている。励起光と

共振器の横モードを合わせるため、ビームエキスパンダーを挿入している。また、励起光と共振器縦モードの周波数が一致するように、ピエゾ素子を用いて共振器長を Pound-Drever-Hall 法により制御している。チタンサファイアレーザーの波長を走引することにより、ラマン光の周波数を共振器縦モードの周波数と一致させ、ストークス光を発生させる。

8. 2 波長発振レーザー

図 3 は、水素の回転ストークス線が発生したときのスペクトルである⁸⁾。ラマン光は、基本波の出力光と同程度まで増強されている。光電子増倍管の陰極材料の 2 光子応答を利用したオートコリレータを製作して時間波形を求めたところ、図 4 のようなフリッジ分解自己相関波形が得られ、光強度が変調されていることが確認できた。各フリッジの間隔は、2 色光の搬送波の周波数により決まっており、約 2.7 fs である。大きな山の間隔は、基本波とラマン光とのビートにより決まっており、その周波数間隔である 587 cm^{-1} をフーリエ変換して得られる 57 fs となっている。このようにラマンセルを用いることにより、光強度を超高速変調することができる。筆者が知る限りでは、光強度変調器としては、世界最速のものではないかと思われる。

9. 多波長発振レーザー

前節で示した単一ラマン線の発生では、強度が正弦波に変調されるのみであり、インパルス波形を得ることはできない。インパルス発生には、少なくとも 3 つの発振線が必

要である。図 5 は、ラマン共振器に用いた鏡の反射率曲線である。上記の実験では、アンチストークス線も共振器内で共振させることを考えて、チタンサファイアレーザーの波長を 792 nm に設定した。しかし、アンチストークス線はラマン散乱現象ではなく四波ラマン混合により起こり、その効率はアンチストークス線自体の強度には依存しない。また、後述するように、水素の分散によりアンチストークス線と共振器縦モードの周波数には僅かなずれが生じ、とくに高フィネス共振器を用いた場合には、このずれは顕著な損失をもたらす。そこで、逆にアンチストークス線の波長における共振器の反射率を低下させ、フィネスを下げて光の透過バンド幅を拡大し、透過光強度を増大させることにした。そこで、チタンサファイアレーザーの波長を 770 nm にシフトさせたところ、アンチストークス光の発生が認められた。また、水素の圧力を低下させるに従って、その強度は増大する傾向が見られた。これは水素の分散の影響が低下したためと推察される。しかし、アンチストークス線の強度は、当初予定していたほど強くはならなかった。

図 5 の透過率曲線から分かるように、チタンサファイアレーザーの波長を 770 nm にシフトすると、第 1 ストークス線だけでなく、第 2 ストークス線の波長においても、共振器の反射率が増大する。図 3 でも分かるように、第 1 ストークス線の強度は、基本波とほぼ同程度まで大きくなるので、この第 1 ストークス線のラマン散乱により第 2 ストークス線が発生すると期待される。そこで、チタンサファイ

レーザーの波長を変化させると、第1ストークス光、第2ストークス光の何れもが共振器縦モードの周波数と一致する条件があり、図6に示すように3波長発振レーザー光が得られた。これは、ラマン共振器長を8 cm程度に設定すると、共振器縦モードの間隔がラマンゲインバンド幅と同程度になり、ラマン光が比較的容易に縦モードと一致して共振するためである。スペクトルを詳細に検討すると、3次ストークス線の発生も認められたが、十分な強度を得るには至らなかった。これは、鏡の反射率が低かったこと、基本波を含めて4波長が共振する条件を探索することが困難であったこと、に起因していると推察される。

10. パルス列の発生と計測

図7は、上記の3波長発振レーザー光に対して、オートコリレータを用いてフリンジ分解自己相関波形を測定した結果である。図4のような正弦波ではなく、3波長の光の重ね合わせによるパルス列が観測されている。遅延量から計算すると、パルス列は57 fsの周期、すなわち17 THzで発生していることがわかる。また、この自己相関波形は、シミュレーションにより求めた結果と一致しており、3波長レーザー光の重ね合わせにより生じていることがわかった。なお、波形がインパルス状ではなく歪があるのは、オートコリレータ中にあるビームスプリッターの分散のためである。

図6におけるラマン光は、ストークス側にのみ発生している。このことは、発振線が位相同期する四波混合ではな

く、ラマン散乱により発生していることを示唆している。したがって、これらの発振線は位相同期していない可能性がある。これは、水素の分散のため、基本波と第1ストークス線、並びに第1ストークス線と第2ストークス線の周波数間隔が厳密には一致せず、ラマンゲインバンド幅内で僅かに異なった周波数間隔の縦モードでレーザーが発振しているためである。したがって、短時間であればパルス列が発生しているが、長時間になると発振線の位相がずれ、パルス波形が崩れているものと推察される。このような問題点を解決するには、(1)共振器にチャープ鏡を用いて分散を補正する、(2)分散の影響が無視できるまで水素圧を下げる、(3)共振器の反射率を下げて共振条件を緩和する、などの対策が有効と考えられる。これが実現すれば、位相の完全な同期が実現し、長時間規則正しい 17 THz の光パルス列が発生すると予測される。

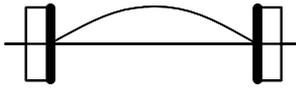
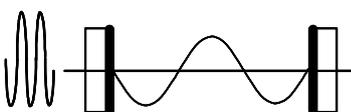
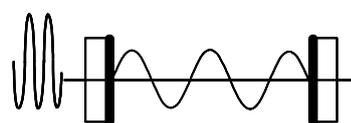
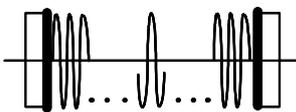
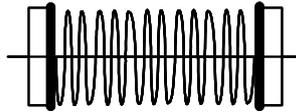
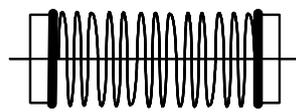
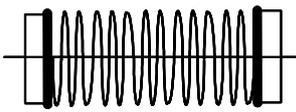
1 1 . 展望

本現象を用いれば、超高速光パルス列が容易に発生できる。たとえば、オルト水素の場合は 17 THz、パラ水素は 10 THz の繰り返し周波数が得られる。低温のパラ重水素を用いれば、5 THz に繰り返し周波数を低下させることもできる^{10,11)}。一方、水素の振動ラマン現象を用いると、125 THz (8 fs 間隔)の超高速光パルス列が得られる。このような超高速繰り返し光パルス列は、光パルスの繰り返し周波数標準、超高速現象の解明、光通信用光源などへの応用が期待される。

文献

- 1) 今坂藤太郎: ぶんせき (6), 750 (1992).
- 2) 今坂藤太郎: ぶんせき (2), 93 (2001).
- 3) 今坂藤太郎: ぶんせき (10), 583 (2005).
- 4) S. Katzman and E. Zubritsky: Anal. Chem. 73, 357A (2001).
- 5) S. Otsuka, T. Uchimura, and T. Imasaka: Opt. Lett. 29, 400 (2004).
- 6) M. Y. Shverdin, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin, and S. E. Harris: Phys. Rev. Lett. 94, 033904 (2005).
- 7) K. Shinzen, Y. Hirakawa, and T. Imasaka: Phys. Rev. Lett. 87, 3901 (2001).
- 8) K. Ihara, C. Eshima, S. Zaitso, S. Kamitomo, K. Shinzen, Y. Hirakawa, and T. Imasaka: Appl. Phys. Lett. 88, 074101 (2006).
- 9) J. K. Brasseur, K. S. Repasky, and J. L. Carlsten: Opt. Lett. 23, 367 (1998).
- 10) H. Otsuka, S. Zaitso, T. Uchimura, and T. Imasaka: Appl. Phys. B, 78, 745 (2004).
- 11) H. Otsuka and T. Imasaka: Opt. Commun. 237, 417 (2004).

表1 共振器における縦モードの間隔と共振波長

n	m		λ_n	$\nu_n = \frac{1}{\lambda_n}$	λ [nm]	ν [cm ⁻¹]
1	$\frac{1}{2}$		$\frac{l}{\frac{1}{2}} = 2l$	$\frac{1}{2l}$	34080	293.4
2	$\frac{3}{2}$		$\frac{l}{\frac{3}{2}} = \frac{2}{3}l$	$\frac{1}{\frac{2}{3}l}$	11360	880.2
3	$\frac{5}{2}$		$\frac{l}{\frac{5}{2}} = \frac{2}{5}l$	$\frac{1}{\frac{2}{5}l}$	6816	1467
n	$\frac{2n+1}{2}$		$\frac{l}{\frac{2n+1}{2}} = \frac{2}{2n+1}l$	$\frac{2n+1}{2l}$		
n + 1	$\frac{2(n+1)+1}{2}$		$\frac{l}{\frac{2(n+1)+1}{2}} = \frac{2}{2(n+1)+1}l$	$\frac{2(n+1)+1}{2l}$		
2 0	$\frac{2 \times 20 + 1}{2}$		$\frac{l}{\frac{2 \times 20 + 1}{2}} = \frac{2l}{41}$	$\frac{41}{2l}$	831.2	12030
2 1	$\frac{2 \times 21 + 1}{2}$		$\frac{l}{\frac{2 \times 21 + 1}{2}} = \frac{2l}{43}$	$\frac{43}{2l}$	792.6	12620
2 2	$\frac{2 \times 22 + 1}{2}$		$\frac{l}{\frac{2 \times 22 + 1}{2}} = \frac{2l}{45}$	$\frac{45}{2l}$	757.4	13200

共振器長が17.04 μmの場合

図注

- 図 1 シミュレーションの結果 (A) 高次回転ラマン光のスペクトル (B) 時間波形 破線は計算に用いた共振器の鏡の反射率曲線
- 図 2 連続発振レーザーを光源に用いるラマン光発生装置
- 図 3 2 波長発振レーザーのスペクトル F ; 基本波 : S 1 ; 第 1 ストークス線
- 図 4 2 波長発振レーザーのフリッジ分解自己相関波形
- 図 5 ラマン共振器に用いられた鏡の反射率曲線 F ; 基本波 : S 1 ; 第 1 ストークス線 : S 2 ; 第 2 ストークス線 : A S 1 ; 第 1 アンチストークス線 基本波 : 丸 ; 792 nm : 四角 ; 770 nm
- 図 6 3 波長発振レーザーのスペクトル F ; 基本波 : S 1 ; 第 1 ストークス線 : S 2 ; 第 2 ストークス線
- 図 7 3 波長発振レーザーのフリッジ分解自己相関波形