

分子光学変調器を用いる超高速繰り返しモード同期 レーザ

Imasaka, Totaro
Division of International Strategy, Center of Future Chemistry, Kyushu University

<https://hdl.handle.net/2324/4060753>

出版情報：応用物理. 86 (1), pp.41-44, 2017-01-10. 応用物理学会
バージョン：
権利関係：



応用物理学会依頼原稿「研究紹介」

題名：分子光学変調器を用いる超高速繰り返しモード同期レーザー

和文要旨：

水素を封入した共振器に連続発振レーザーを集光すると、四波ラマン混合により水素の回転及び振動ラマン光が多数発生する。これらの発振線の位相同期により安定な光パルス列が生じる。その繰り返し周波数はラマンシフト周波数に比例し、水素の分子振動を利用すれば極限の高繰り返しモード同期レーザーが実現できる。

1. まえがき

デジタル情報通信において限られた時間に多くの情報を伝送するには、信号パルスの繰り返し速度を増大する必要がある。このため繰り返し速度が高い位相同期レーザーの開発が進められており、すでに 100 GHz 程度の高繰り返しレーザーが開発されている。位相同期レーザーのパルス間隔は共振器を往復する時間で決まるので、レーザーの共振器をできるだけ短くする必要がある。しかし、レーザー物質や位相同期素子の長さを短くすることには自ずと限界がある。本稿では、水素の四波ラマン混合を利用して極限の繰り返し速度の光パルスが発生する方法について紹介する。この方法は燃焼ガス成分の濃度を計測するために用いられるコヒーレントアンチストークスラマン分光法(CARS)と類似している。¹⁾ この方法では、励起光により分子を誘起し、振動エネルギーだけ長波長側にシフトしたプローブ光を導入し、短波長側に生じるアンチストークス光を検出する。非線形感受率が高い水素分子は大きな信号を与えるが、加圧した水素を用いて波長変換する研究の提案は著者が知る限りではなかった。

2. 分子光学変調器

執筆者は、近赤外域においてアンモニアの熱レンズ吸光分析の研究を行っていた。この分子は近赤外域に吸収バンドがあるので、近紫外レーザーを水素に集光して近赤外域で発生する高次振動ラマン散乱光を利用することにした。この実験を行っているとき、多数の回転ラマン光が同時に発生する現象を偶然見出した。レーザーの発振線が全可視域において数 10 本に及ぶため、この現象を Rainbow Stars と名づけた。この現象は非線形光学現象の一種であり、光強度が大きな場合にのみ生じる。筆者は、あるとき共振器の中では定在波が生じ、その周波数間隔が同じになることに気付いた。すなわち多数の回転ラマン光が同時に共振できる条件がある。図 2 のように共振器長を 17 μm (あるいはその整数倍) にすると、縦モードの間隔が回転ラマン光の周波数間隔(587 cm^{-1})と一致する。反射率が高い誘電体鏡を共振器に用いると、共振器内では光強度が飛躍的に増大する。そこで連続発振レーザーを用いて Rainbow Stars の現象を起こせないかと考えた。このアイデアを 2001 年に学術誌に報告し、国際特許(PCT)を出願、登録した。^{2, 3)} これが本研究の発端である。

反射率が 99.98%の誘電体鏡を用いると、 10^4 程度の高フィネス共振器が構成できる。その中に水素を入れて 100 kHz 程度のライン幅の連続発振レーザーを集光すると、光は共振器

を透過し、共振器内では光強度が増大して非線形光学効果の一種である誘導ラマン散乱が生じる。しかし、鏡の反射率が高い場合にはレーザと共振器のモードを一致させることが難しい。すなわちレーザ波長とラマンゲインバンドを共振器縦モードに正確に一致させ、かつレーザの焦点位置とビーム径を精密に合わせる必要がある。これらが僅かでも一致していないとレーザは共振器を通過せず、条件の最適化に着手できない。これを解決するための方策はなく、結局は実験者の根気と頑張りだけが頼りである。このため 5 年後にようやく誘導ラマン光の発生を確認できた。図 3 (A) は、当時製作したラマンセルである。³⁾ 一方、連続発振回転ラマン光の重なりにより生じる低尖頭出力の超高速繰り返し光パルス列の波形を測定する装置が必要である。そこで近赤外域における光電子増倍管の 2 光子応答を利用したパルス幅計測装置 (オートコリレータ) を開発した。⁴⁾ これらの装置を用いて励起光と同程度の強度のラマン光を発生させ、図 3 (B) のような光ビート波形を観測した。⁴⁾ この装置は連続光を入射させると、その光強度が正弦波に変調される。現在まで、光変調器として音響光学変調器 (Acousto-optic modulator, AOM)、電気光学変調器 (Electro-optic modulator, EOM) などが知られているが、それらの最大の変調周波数は動作原理上 100 MHz 及び 10 GHz 程度に制限される。これに対して開発した光変調器は分子の動きを利用しており、その変調周波数は分子固有の定数であるラマンシフト周波数に相当する数 THz まで増大できる。そこで、この装置を“分子光学変調器”と命名し、“Molecular-optic modulator (MOM)”と題する論文を 2006 年に報告した。⁵⁾

3. 超高速光パルス列発生

正弦波ではなく光パルス列を発生させるには、少なくとも 3 本のスペクトル線が必要になる。前述のように共振器中でラマン光を発生させるには、励起レーザとラマン光の周波数差が、共振器の縦モードの周波数差の整数倍に一致しなければならない。ラマン散乱には数 GHz の許容バンド幅があり、その幅内に縦モードが 1 本入るように共振器の長さを 8 cm 程度に調整している。しかし、3 本のスペクトル線を得るには、励起光、第一ストークス光、第二ストークス光の全てについて、バンド幅内で縦モードを一致させる必要がある。実験条件を探索した結果、3 本の発振線をほぼ等強度で発生できた。そのときの波形をオートコリレータで測定し、光パルス列の発生を確認した。その繰返し速度は 17.6 THz で、筆者が知る限りでは世界最高速度であった。^{6, 7)} ラマン媒体としてオルト水素ではなくラマンシフト周波数が 354 cm^{-1} であるパラ水素を用いると、繰返し速度は 10.6 THz になる。また、重水素 (179 cm^{-1}) を用いると、5.37 THz まで繰返し速度を低減できる。

4. 分散補正ラマン共振器

励起光と高次ストークス光を用いる方法は、厳密には等周波数間隔にならない。すなわち共振器中の水素は波長により屈折率が異なるため、周波数間隔がわずかに異なる。このため光パルス波形が、時間の経過と共に変化する。この問題を解決するには、コヒーレントな過

程である四波ラマン混合により発生するアンチストークス光を用いればよい。しかし、共振器内の分散のためアンチストークス光の位相は徐々に変化する。このため発生するアンチストークス光が互いに打ち消しあって、十分な強度までラマン光が増大しない。これを克服するには水素を封入した共振器全体の分散をゼロにすればよい。水素は正の分散をもつので、負の分散をもつ誘電体鏡を用いれば、全体として分散がない共振器を実現できる。これが“分散補正ラマン共振器”である。分散が -10 fs^2 前後の鏡は市販品として入手できる。しかし、レーザ光、ストークス光、アンチストークス光の波長において分散特性を精密に設計した鏡を製作することは困難である。したがって、水素の圧力を調整する、さらに水素と分散特性が異なるキセノンを添加して全体の分散を調整する。ただし、位相整合する波長が存在するか否かは、実験を実際にやってみなければ分からない。

実験では、まず共振器長を調整して、励起光が共振器を通過できるようにする。次いでストークス光のラマンゲイン幅と縦モードを一致させて励起光とストークス光の両方が共振するところを探す。共振器長の最適点に向かうときは自動的に負帰還により系が安定するが、最適点を少しでも通過すると負帰還が外れる。⁸⁾ その場合には再度同様の操作を繰り返さなければならない。そのときアンチストークス光が発生しない場合は、レーザ波長を“わずかに”変化させ、またストークス光が強くなる場所を探す。そこでアンチストークス光の発生の有無を確認する。生じなければレーザ波長をさらに変化させて、この操作を繰り返す。チタンサファイアレーザの全波長域を走引してもアンチストークス光が観測されない場合は、3波長で共振できる点がなかったことになる。次に、水素の圧力を“わずかに”変化させて、上記の操作を繰り返す。0-10気圧の間でアンチストークス光が観測されない場合は、水素の圧力調整では分散補正ができなかったことになる。その場合は、分散特性が異なるキセノンを“わずかに”添加する。そして上記の全ての操作を繰り返す。長い年月の末に、位相整合条件を見出すことができた。図4(A)に示すように、キセノンの分圧を0.14 MPaに設定し、かつ水素の圧力を $530 \pm 5\text{ kPa}$ に調整したとき、アンチストークス光が発生することがわかった。⁹⁾

前述のように、アンチストークス光は励起光及びストークス光の位相と同期している。したがって、波形が変化しない安定な光パルスが発生できる。図4(B)はオートコリレータを用いてパルス波形を測定した結果である。最近では、発生した超短パルス光の位相同期とパルス波形を干渉法とオートコリレーション法により検証している。四波ラマン混合の場合、ストークス光、励起光、アンチストークス光間の周波数差は厳密に一致し、もしわずかでも伝播速度が異なって位相不整合が生じると、光強度が周期的に変化して十分な強度のアンチストークス光が得られない。言い換えると、アンチストークス光の強度を最大にすることにより、安定な波形及び周波数の光パルス列が得られる。すなわち、アンチストークス光の位相($\phi_{\text{anti-Stokes}}$)はレーザ光の位相(ϕ_{laser})及びストークス光の位相(ϕ_{Stokes})とは、厳密な $\phi_{\text{anti-Stokes}} = 2\phi_{\text{laser}} - \phi_{\text{Stokes}}$ の関係があり、位相不整合すなわち左右の項の差が π に近くなるとアンチストークス光が増大しなくなり、繰り返し周波数が不確実になる。最近では、

第 2 ストークスから第 2 アンチストークスに亘る 5 本の発振線を同時に得ている。¹⁰⁾ この四波混合では、理論上、エネルギーの損失はない。また、パルス幅は発生しているラマン光のスペクトル帯域（発振線数）、コントラストはレーザ光のスペクトル幅、位相不整合等により決まる。実験は分散が小さくなる近赤外域の方が容易になる。

5. 縮退四波混合と非縮退四波混合

アンチストークス光がどのような機構で発生するかを明らかにすることは、本現象の本質を明らかにする上で重要である。たとえば、第一アンチストークス光、レーザ光、第一ストークス光に加えて第二ストークス光が発生しているとき、これが第一ストークス光の誘導ラマン散乱により発生するか、レーザ光と第一ストークス光及び第一ストークス光と第二ストークス光の差周波数が一致する非縮退四波混合によるものか否かは、発生するパルスレインの繰り返し周波数の安定性に影響を及ぼすので重要である。レーザの周波数と水素圧力によっては、ほぼ同一のスペクトル形状が得られるが、ラマン光発生の水素圧依存性の閾値を測定すると上記の何れの過程で発生しているかを明らかにできる。¹¹⁾ これまでの研究では 1 つのレーザを用いていたが、2 つのレーザを用いると異なる波長のレーザを非縮退四波混合で発生できる。このような方式は縮退四波混合と非縮退四波混合に関する種々の情報が得られるだけでなく、発生するラマン光の数を増大させる目的にも利用できる。^{12, 13)}

6. 三原色レーザと極限の超高速繰り返しモード同期レーザ

光を用いてどこまで速い繰り返しの光パルスが発生できるであろうか。前述のように光パルス列を発生するには、等周波数間隔の 3 色レーザを用いる必要がある。その周波数間隔が大きいほど、繰り返し速度が増大する。光を“目に見える電磁波”と仮定すると、400 nm から 700 nm の間において等間隔で発振する 3 色のレーザを位相同期させれば、“極限の高繰り返しレーザ”が実現できる。ヤグレーザーの第二高調波(532 nm)を励起光とし、水素の振動に基づくラマン光を発生させると、683 nm のストークス光と 436 nm のアンチストークス光が得られ、その光パルス列の繰り返し速度は、ほぼ極限の 125 THz となる。水素の圧力を 425 ± 2 kPa に調整すると、図 5 のような単一横モードの 3 色レーザ光が得られた。¹⁴⁾ 誘電体鏡の特性上、位相整合は必ずしも十分満たされていないが、励起光出力が 9.2 W のとき、アンチストークス光への変換効率として 4.3×10^{-3} の値が得られた。このような方式は 3 原色レーザを発生する目的に利用できる。重水素をラマン媒体に用いれば、視感度に優れた 459, 532, 632 nm の 3 原色レーザが得られる。位相不整合は、ラマンシフト周波数の 2 乗に比例する。したがって、振動ラマン効果を用いる場合は位相整合を満たすことが難しくなる。しかし、ヤグレーザーの第二高調波を用いて高効率の 3 原色レーザが発生できれば、実用上大変有益である。

7. むすび

本稿で紹介した連続発振レーザと共振器を用いれば、極限の高繰り返し光パルスが発生できる。その応用は多岐に亘るであろう。たとえば時間領域で考えると、光パルスの繰り返し周波数は物質の定数で決まるので、繰り返し周波数の標準として利用できる。一方、周波数領域で考えると、近赤外領域のラマン光は第二高調波発生や和周波数発生により紫外域に波長変換できるので、種々の分光計測へ応用が期待できる。¹⁵⁾ 分散補正共振器の分析化学へ応用も検討されている。¹⁶⁾ 多色あるいは3原色レーザは、プロジェクションマッピングやディスプレイへの応用も考えられる。分散補正のために必要な特性をもつ負分散誘電体鏡が容易に設計・製作できれば、発生効率が大幅に改善されるので、今後の新領域の創生が期待できる。

謝辞

2001年に連続発振レーザと四波ラマン混合を用いる超高速繰り返しレーザの実現を着想したが、最初の研究成果を論文として報告するまでに5年間を要した。安定な光パルス列を発生させるには、さらに4年間の年月が必要であった。研究者にとって短期間に結果が出ないのは当たり前であるとしても、卒業論文や修士論文を執筆して卒業する学部学生や大学院生にとっては大きな苦痛であったに違いない。困難な課題に挑戦して成果を挙げた研究室の学部学生、大学院生の熱意と忍耐力に敬意を表したい。本研究の成果は、当時の平川靖之助手、財津慎一准教授、貴田祐一郎助教が学部学生、大学院生を指導して得たものであり、ここに深甚なる謝意を表する。

文献

- 1) M. D. Levenson and S. S. Kano: Introduction to Nonlinear Laser Spectroscopy (Academic Press, 1988); 非線形レーザー分光学、狩野覚、狩野秀子共訳 (オーム社, 1988).
- 2) K. Shinzen, Y. Hirakawa, T. Imasaka: Phys. Rev. Lett. **87**, 3901 (2001).
- 3) T. Imasaka, Method and Apparatus for Generating Ultrashort Optical Pulses Through Use of a Raman Resonator, PCT/JP00/00535, August 30, 2001, Patent: U.S.6,603,778.
- 4) K. Ihara, S. Zaitzu, C. Eshima, T. Imasaka: Sci. Tech. Adv. Mater. **7**, 711 (2006).
- 5) K. Ihara, C. Eshima, S. Zaitzu, S. Kamitomo, K. Shinzen, Y. Hirakawa, T. Imasaka: Appl. Phys. Lett. **88**, 074101 (2006).
- 6) S. Zaitzu, C. Eshima, K. Ihara, T. Imasaka: J. Opt. Soc. Amer. B **28**, 328 (2007).
- 7) S. Zaitzu, T. Imasaka: Appl. Opt. **49**, 1586 (2010).
- 8) S. Zaitzu and T. Imasaka: IEEE J. Quantum. Electron. **47**, 1129 (2011).
- 9) S. Zaitzu, H. Izaki, T. Imasaka: Phys. Rev. Lett. **100**, 073901 (2008).
- 10) S. Zaitzu, T. Imasaka: Opt. Commun. **285**, 347 (2012).
- 11) S. Zaitzu, and T. Imasaka: Opt. Express **24**, 24298 (2011).
- 12) S. Zaitzu, T. Imasaka: Opt. Lett. **40**, 73 (2015).
- 13) S. Zaitzu, H. Izaki, T. Tsuchiya, T. Imasaka: Sci. Rep. **6**, 20908 (2016).

- 14) J. Takabayashi, S. Zaito, T. Imasaka: Appl. Phys. B Lasers and Optics **117**, 465 (2014).
- 15) R. Niigaki, Y. Kida, T. Imasaka: Opt. Commun. **361**, 36 (2016).
- 16) S. Zaito, T. Imasaka: Anal. Sci. **30**, 75 (2014).

Profile

今坂藤太郎 (いまさか とうたろう)

1978 年九州大学工学研究科応用化学専攻博士課程修了、同年スタンフォード大学博士研究員、79 年九州大学助手、80 年講師、81 年助教授、91 年教授、2009 年主幹教授、16 年特命教授。主なテーマは四波ラマン混合による超短光パルス、高繰り返し光パルス列の発生、レーザーイオン化質量分析の研究。

図注

- 図 1 共振器のモードと共振周波数
- 図 2 (A) ラマンセルと (B) 光ビートの測定波形
- 図 3 分散補正共振器を用いるアンチストークス光の発生 (A) アンチストークス光強度の水素圧依存性 (キセノンを 0.14 MPa 添加) (B) 光パルス列の測定結果
- 図 4 三原色レーザーのビームパターン