

研究課題別評価書

1. 研究課題名

フェムト秒時空間画像計測システムの創成

2. 氏名

栗辻 安浩

3. 研究のねらい

自然科学において時間発展する現象の解明・理解はより短い時間の領域に興味が移っていき、現在はフェムト秒という超高速領域に最先端の注目が集められ、世界的に多くの研究機関で精力的に研究が進められている。これらの研究の殆どが、単にエネルギーのみや分光スペクトルの超高速時間発展を計測しているのみであり、超高速現象の画像情報を記録・撮影できるシステムは世界的に類がない。フェムト秒という極短時間領域で進展する超高速現象を観察できれば、物理学、化学、生物学などの自然科学における未知の現象の解明ができる。人間が物事を観察することには多大な価値がある。例えば、空間における微小領域を観察する技術として電子顕微鏡がある。現在のナノテクノロジー、ライフサイエンスの発展は電子顕微鏡による観察技術の賜物である。時間領域における微小領域すなわち極短時間の世界を観察できれば、極短時間の超高速技術の創成と発展に不可欠な技術になると考えられる。そこで本研究では、Light-in-flight ホログラフィーを用いてフェムト秒時間領域で進展する現象を動画像として記録・観察できるシステムを創成し、さらにそのシステムを高速現象の時間発展特性の計測への応用を試みる。

4. 研究成果

(1) 光が伝播する様子の 3 次元像の動画記録と観察

光パルスが伝播する様子を記録・観察できるこれまでの技術では、伝播する超短光パルスの 2 次元像の時間発展しか記録できていなかった。これは、Light-in-flight ホログラフィーでは伝播する超短光パルスと拡散板との交差部分の様子を記録するという原理に基づいていたからである。そこで、超高速の世界の様子について、より忠実かつ多くの情報を得るために、光が伝播する様子の 3 次元像の動画記録と観察を行った。

光が伝播する様子の 3 次元像の動画を記録するために考案した光学系とその実証のために構築した光学系を図 1 に示す。光パルスの 3 次元像を観察するには、3 次元の拡散体を用いることにより伝播する光パルスの波面全体から拡散光を発生させ、それを物体光とすればよいと考えた。3 次元拡散体としてゼラチンで作製したゼリーを用いた。フェムト秒光パルスは拡大した平行光パルスにして、3 次元拡散体に導入した。光パルスの 3 次元像を明瞭に識別するために、図 1(a)に示すような「光」という文字パターンで光を遮断するフォトマスクを、ガラス容器の光パルスが入射する面に装着した。光源には、持続時間が 224fs、中心波長が 720nm の光パルスを発するモードロック チタンサファイアレーザーを、記録材料には Agfa Holotest 8E75HD 乾板を使用した。

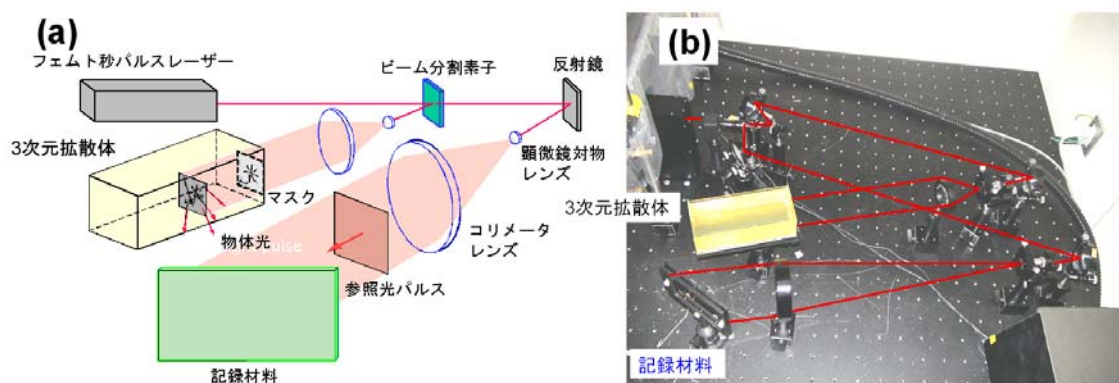


図 1. 光が伝播する様子の 3 次元像の動画記録光学系。(a)概要、(b)構成した光学系の写真。

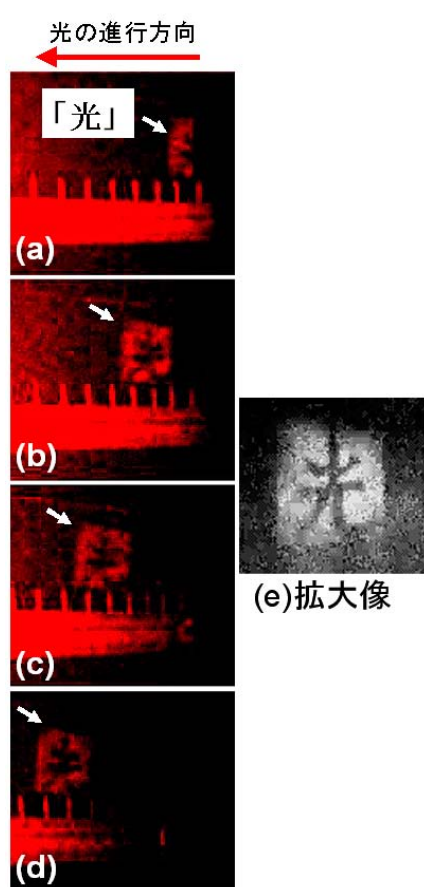


図 2 平行光パルスの伝播の 3 次元像の動画から抽出した 4 コマの画像。

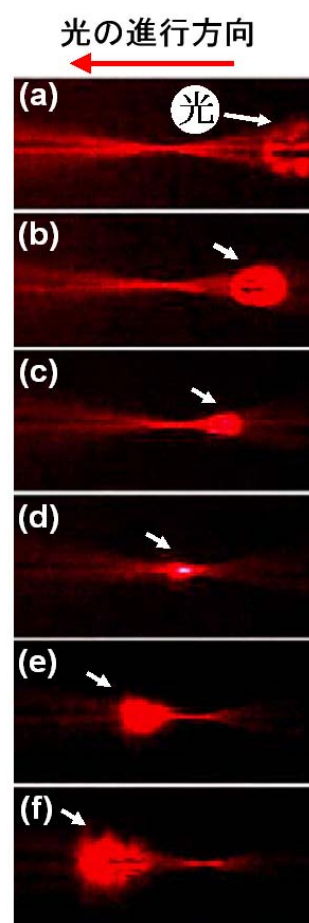


図 3 凸レンズにより収束し集光後、発散する光パルスの 3 次元像の動画から抽出した 6 コマの画像。

実験により光が伝播する 3 次元像を動画として記録・観察に成功した。得られた動画は *Optics Express* のホームページ(<http://www.opticsinfobase.org/oe/abstract.cfm?URI=oe-15-22-14348>)から利用制限無く閲覧できる。その動画から抜き出した 4 コマの画像を図 2 に示す。櫛状のパター

ンは伝播する様子をわかり易いように設けた。櫛の歯の間隔は 1cm である。光パルスは(a)→(b)→(c)→(d)の順に右から左に進んで行く途中である。(e)「光」の部分拡大した像。各画像の時間間隔は 14 ピコ秒で、約 67 μm の薄い光の壁が進んでいく様子の 236 ピコ秒で起こっている現象の記録とスローモーション観察に成功した。

次に、広げて平行光にしたフェムト秒光パルスが凸レンズによって 1 点に集光した後、広がっていく様子の 3 次元動画像記録と観察を試みた。得られた動画は連続した動画として観察できるが、その動画中の 6 シーンを取り出した像を図 3 に示す。(a)→(c)で光パルスは集光していき、(d)ちょうど集光した瞬間、(e)→(f)で広がっていくのを観察できる。「光」という文字が集光した後、上下左右とも反転して進んで行くことも観察できる。各画像の時間間隔は 15 ピコ秒で、得られた動画では 259 ピコ秒で起こっている現象を 3 次元像のスローモーションで観察できた。

次に、通信などの光ファイバに用いられる分布屈折率構造では光パルスが曲がりながら伝播する。分布屈折率構造中を光パルスが伝播する様子の 3 次元像の動画記録と観察を試みた。水とゼラチンで作製したゼリーに連続的な濃度勾配を形成し、屈折率を連続的に変化させることで、この 3 次元拡散体を作製した。記録したホログラムを再生したときに、得られた動画から抽出した写真を図 4 に示す。各写真の中央左から右に延びる輝く曲線は同様のシーンを連続波レーザーで記録した際の再生像であり、フェムト秒光パルスの光路を認識しやすいように、パルス光で記録した像と重ねて表示している。各図は時間間隔を約 52ps ずつ抽出したものである。図 4 の各写真中で矢印の下にそれぞれの動く輝点が撮影に成功したフェムト秒光パルスであり、図 4 の(a)–(d)の順にフェムト秒光パルスが分布屈折率媒質中で連続的に屈折を繰り返して、緩やかに曲がりながら進む様子が記録されたことが、連続波レーザーの像に沿って進んでいることからわかる。

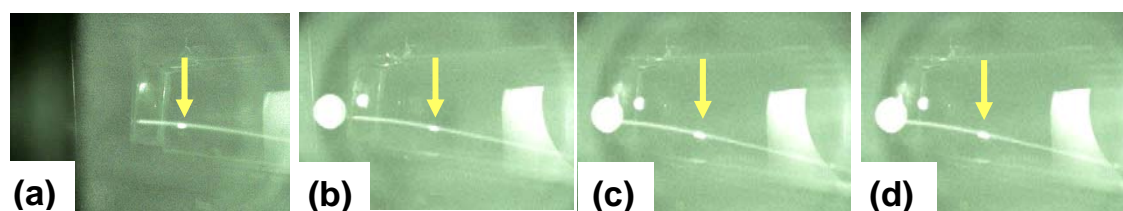


図 4 分布屈折率媒質中を伝播するフェムト秒光パルスの 3 次元動画像から抽出した 4 コマ画像。

(2)フェムト秒光パルスの第二高調波の伝播の動画記録と観察及び書き換え

これまで利用してきたホログラム乾板 Agfa Holotest 8E75HD が製造中止となり、新たな記録材料を用いる必要が生じた。しかしながら現時点で利用可能なホログラム記録材料の殆どは緑色から青色にかけての可視短波長光に感度を持つ。一方、フェムト秒レーザー光パルスの中心波長は 700nm 以上の近赤外域であり、このホログラム記録材料では記録できない。しかも可視のフェムト秒光パルスの伝播を記録・観察した例は報告されていない。そこで、利用可能な記録材料を用いても、フェムト秒時空間画像計測システムを構成できるように、フェムト秒光パルスの第二高調波発生(SHG)を行うシステムを構成した。BBO 結晶を使用し、中心波長 400nm のフェムト秒光パルスの SHG を行った。記録材料にはこの波長に感度があり、解像力が高く入手しやすい乾板である Konica P5600 を用いた。平行光パルスの伝播を被写体として記録し、そのホログラムを再生

した。得られた動画から抜き出した 4 コマの画像を図 5 に示す。伝播する平行光パルスが伝播する様子を横から見たシーンである。青色の部分はホログラムを照明した際に発生する散乱光であり所望の像の背景光に重なっている。矢印の右に弓状の輝線として、フェムト秒光パルスの第二高調波の伝播の動画記録と観察に成功した。

また、新規ホログラム材料として書き換え可能ホログラム材料である光導電性プラスチックホログラム(PPH)にフェムト秒光パルスの伝播の動画記録と観察も行い、記録と観察に成功した。これにより、構成するシステムでは従来ホログラム材料に代わる新しい材料の可能性を示した。

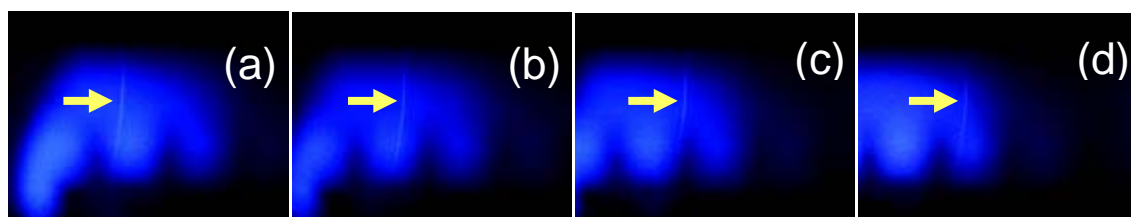


図 5 フェムト秒光パルスの第二高調波の伝播の動画から抜き出した 4 コマの画像。

5. 自己評価

本研究は、従来の方法では速すぎてできなかった、フェムト秒領域での超高速現象を動画像計測・可視化・解析できるシステムの創成を目指して行ってきた。このシステムの全体動作までは至らなかったが、システム構成に必要な各要素として、これまで用いていたが製造中止になったホログラフィック材料に代わる新たな材料に対するフェムト秒光パルスのホログラフィック動画記録、微小領域観察のための顕微鏡システム、デジタル計測システム、レーザー誘起超高速現象の発生システムなどについて検討、設計、試作を行い実験的にそれらの有効性を示すことができた。研究期間中にレーザーが故障しその交換品の納品に 6 ヶ月以上がかかり、想定外の時間が要したがその間は、計算機シミュレーションによりシステム構成の各要素の可能性を示すことができた。

当初の研究計画には無かったが以前から着想していたこととして、目標とするシステムにおいて試料を配置する部分を 3 次元光拡散体にするにより、3 次元超高速動画像観察・計測システムが可能であるということを実証するために、フェムト秒光パルスが伝播する 3 次元の様子を動画像として記録・観察実験を行い、所望の結果が得られた。この結果は、フェムト秒光パルスが伝播する様子を 3 次元動画像として観察したことに世界で初めて成功したというだけでなく、光が伝播する様子を 3 次元動画像として人類が記録・観察に成功したということでもある。この結果により、提案システムの計測機能をさらに空間的に 1 次元分の情報を増やせることを実証した。

現在、最も高性能な超高速カメラの 1 万倍の速度を持つ超高速動画記録・再生が可能な時空間画像計測システムの実現に対する目標としては、計測システムとしての全体動作は達成できなかったものの、動画像速度は達成ができた。

3 次元動画像計測技術であるデジタルホログラフィーを本研究で目標とするデジタル版システムを実現する方法として研究を進めてきた。現在研究中の並列デジタルホログラフィーを細胞の 3 次元動画像計測に有用であると考え、計測法の開発とその装置の原理実験により有効性を確認した。この成果は医療に関する分析技術にも有用と認められ第 4 回堀場雅夫賞が授与された。自

身は応用物理学出身であり、生物や生命科学分野には疎かったが、さきがけの領域会議に参加し幅広い分野の研究発表を聴講し研究者の方々との情報交換をすることにより、この成果を得るための着想となった。

さきがけ研究の当初の課題は完全には達成していないが、研究期間中に達成できた要素や着想したことは、今後の研究を進めて行く上で必要な礎を実現できたというだけでなく、研究の展開や可能性の幅を大きく広げることができたという点から見て、大きな価値があったと認識している。これらの成果は、さきがけ「構造機能と計測分析」領域の領域会議での情報収集や議論に依るところが大きく、研究総括 寺部茂先生、アドバイザーの先生、さきがけ研究者の皆様に感謝申し上げます。

6. 研究総括の見解

超高速度カメラの1万倍の速度を持つ光動画像の計測システムの開発を狙う研究である。フェムト秒レーザーパルスとホログラフィーとを組み合わせたシステムを構築し、超高速現象の可視化に挑戦した。

主たる成果は次の2点である。

①3 次元光拡散体の中を伝播する光パルスの波面全体から拡散光を発生させ、それを物体光とするホログラフィシステムを開発し、これにより光が伝播するという超高速現象を3次元動画として記録し観察することに成功した。

②本計測システムを用いて、凸レンズでの集光や光ファイバー(分布屈折率構造体)の光パルス伝播の3次元動画記録と観察を行い光デバイスにおいて光伝播の可視化が可能なことを実証した。

また、長波長だけでなく可視短波長光に対応したホログラム乾板を用いたシステムで動画記録・観察に成功するなど、このシステムの実用性を高める多面的な努力を積み重ねている。

これらの研究成果は6篇の原著論文、7件の学会招待講演にまとめられている。また平成19年8月に第4回掘場雅夫賞を受賞している。

フェムト秒領域の動画計測に挑む意欲的な研究提案であり、世界で初めてフェムト秒光パルスが伝播する様子を3次元動画像として観察することに成功したことは高く評価できる。この手法は、物理現象の光の計測ツールとして幅広い分野で、新規な現象の発見や解析に貢献すると思われる。今後は、本技術の応用展開を図るとともに、微小領域の光の動きの超高速可視化技術の実現に向かって更に研究を深化させることが期待される。

7. 今後の展開

さきがけの研究期間内でフェムト秒時空間画像計測システムを構成する要素が実現できたとともに、問題点も明らかになった。今後の展開として、まず明らかになった具体的な問題点を解決する方法を検討し、実現していく予定である。また、これまでに実現できた要素を統合してシステムを早期構築し計測システムとして全体動作させることを予定している。

微小領域のフェムト秒動画の記録光学系の構成と動画像記録

高速現象の動画像記録を行うためには、微小領域のフェムト秒パルスの伝播を記録できること

がキーとなる。しかしながら、微小領域のフェムト秒パルスのホログラフィック記録には、物体光パルスと参照光パルスとの光路長を高精度に合わせる必要がある。この高精度調整方法として光路微調整光学系を構成し、さらに干渉縞モニターシステムを構築することにより実現できると考えている。

デジタル版システムの構成

デジタル版システムでは、撮像素子の画素が数 μm であるために参照光パルスをあまり大きな傾き角度で照射することができない。そのために、原理的に所望の像に対して、不要な光が重畳することが原理的に避けることができず、画質や計測精度が低下することが容易に予想される。この不要な光の重畳をデジタル信号処理により除去する方法を検討することが重要な課題である。現在幾つかの新たな方法を考案しその評価を行っており、完全な除去はできていないが、効果的に除去できる方法が明らかになりつつあり、この方法の有効性を実験により確認することを予定している。

超高速現象の動画像観察・計測応用

本システムを超高速現象の動画像観察・計測応用として、まずフェムト秒レーザーパルスを種々の物質に集光した際に発生するプラズマの発生から時間発展を動画として記録することを予定している。

次に、非線形光学材料中や固体発光素子中での光の振る舞いを観察することにより、材料の評価装置への発展を予定している。

実用化に向けてのシステム構成および実装方法の検討

現在構築している実験システムは、大型の光学除震台上に構成しているために、実用システムとしては適した構成や実装がなされていない。汎用かつ実用システムへと発展させるためには、使用するフェムト秒レーザー、光学系の構成や配置等を検討しコンパクト実装を行う必要がある。まずは、市販の医療・バイオ応用の顕微鏡サイズに実装することを目指した光学系の最適設計を行う。

また、超高速現象の時間発展のその場計測、実時間計測を行えるようにデジタル版における電子処理系の高速化、最適設計、専用処理ボードや専用 LSI の開発を検討している。

8. 主な論文等

(A)さきがけの個人研究者が主導で得られた成果

(1)論文(原著論文)発表

論文(国際)

- ・ Y. Awatsuji, M. Sasada, A. Fujii, and T. Kubota, "Scheme to improve the reconstructed image in parallel quasi-phase-shifting digital holography," *Applied Optics* **45**, 968-974 (2006)
- ・ Y. Awatsuji, A. Fujii, T. Kubota, and O. Matoba, "Parallel three-step phase-shifting digital holography," *Applied Optics* **45**, 2995-3002 (2006)
- ・ T. Kubota, K. Komai, M. Yamagiwa, and Y. Awatsuji, "Moving picture recording and observation of three-dimensional image of femtosecond light pulse propagation," *Optics*

Express **15**, 4348–1454 (2007)

(2)特許出願 なし

(3)受賞

・平成 19 年 8 月 第 4 回堀場雅夫賞受賞

(4)学会発表

口頭発表(国際)

- ・ K. Komai, M. Yamagiwa, Y. Awatsuji, S. Ura, K. Nishio and T. Kubota, "Motion picture of three-dimensional image of femtosecond light pulses diffracted by a diffraction grating", 5th International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication, 2006.
- ・ M. Aihara, M. Makino, T. Kakue, A. Kuzuhara, Y. Awatsuji, K. Nishio, S. Ura, and T. Kubota, "Motion picture recording of visible femtosecond light pulse propagation," 13th Microoptics Conference, 2007.
- ・ K. Tosa, M. Aihara, T. Kakue, A. Kuzuhara, M. Makino, Y. Awatsuji, S. Ura, K. Nishio, T. Kubota, "Moving picture recording of femtosecond light pulse propagation with rewritable recording material," International Topical Meeting on Information Photonics 2008, 2008.

ポスター発表(国際)

- ・ T. Kakue, K. Komai, M. Yamagiwa, Y. Awatsuji, K. Nishio, S. Ura, and T. Kubota, "Light-in-flight recording by holography for recording motion picture of magnified image of ultrashort light pulse propagation," 5th International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication, 2006.
- ・ A. Kuzuhara, K. Komai, T. Katayama, K. Nishio, Y. Awatsuji, S. Ura, and T. Kubota, "Motion picture recording of visible femtosecond light pulse propagation," 13th Microoptics Conference, 2007.

(5)招待講演

招待講演(国際)

- ・ Y. Awatsuji and T. Kubota, "Observation of Femtosecond Laser Pulses Propagating in Space and Time," IEEE Laser and Electro-optics Society 19th Annual Meeting (LEOS 2006), 2006.
- ・ Y. Awatsuji and T. Kubota, "Moving pictures of three-dimensional image of femtosecond light pulse propagating in three-dimensional space," Sixth Euro-American Workshop on Information Optics, 2006.

招待講演(国内)

- ・ 栗辻安浩, "フェムト秒光速動画像システム," 日本分析化学会第 55 年会、2006.

- ・ 栗辻安浩, “フェムト秒動画像記録再生機器,” 東京コンファレンス, 2006.

(B) その他の主な成果

(1) 論文(原著論文)発表

論文(国際)

- ・ T. Takaoka, N. Kawano, Y. Awatsuji, and T. Kubota, “Design of a reflective aspherical surface of a compact beam-shaping device,” *Optical Review* **13**, 77–86 (2006)

(2) 特許出願 なし