

研究報告書

「共振器位相整合非線形光学の開拓と新光源への応用」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 21 年 10 月～平成 25 年 3 月

研究者: 財津 慎一

1. 研究のねらい

レーザー光と物質の強い相互作用を研究する「非線形光学」は、レーザーの発明と同時に産声をあげ、光源と歩みを共にしながらその発展を続けてきた。この非線形光学の分野において、それが発現する空間を提供するための新しい仕組みとして、近年大きな2つのトピックがあった。1つは、精巧な光ファイバー作製技術を元にして発明された「中空コアフォトニックバンドギャップファイバー」であり、もう1つは、半導体技術に代表されるナノオーダーの微細加工技術が生み出した「微少光共振器」である。どちらの方法も共に、自由空間中では困難であった種類の光と物質の非線形相互作用を実現し、これまでにない応用を切り開くキーデバイスとして、非線形光学のフロンティアを開拓し続けている。

本研究では、これらのデバイスに匹敵する新しい非線形光学現象発現のための仕組みとして、報告者が独自の発想に基づいて提案する「共振器位相整合非線形光学(Intracavity Phase-Matched Nonlinear Optics)」の開拓を目的とした。これは、群速度分散が厳密に制御された光共振器、「分散補償型高フィネス共振器」を用い、これによって初めて実現される位相整合条件を満たした非線形光学に関するものである。ここで初めて誘起される新規共振器内非線形・量子光学的現象の観測、および、それらのデバイス・光源・計測法としての新しい応用を目指した。

具体的には、この方式を基礎として、全く新しいデバイスである「テラヘルツ分子光変調器」の実現を目指した。これは、「分散補償型高フィネス共振器」内で励起された分子のコヒーレントな運動により、10 テラヘルツを超える周波数で連続発振光に対する光波変調を実現する装置である。また、この変調機構を組み込んだ新しい光源である「分子変調モード同期レーザー」の実現を目指した。さらに、これらの新しいデバイス・光源を利用した新しいタイプの光と物質の相互作用・超高感度極微量物質検出法への展開を指向した。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究では、「非線形光学現象」を実現するための「新しい場」として、「分散補償型高フィネス共振器」を提案し、「位相整合条件」を満たした効率的な非線形光学効果を実現することに成功した。この独自の方法によって、①新しい光源「テラヘルツ分子光変調器」、②新しい機能「テラヘルツモード同期レーザー」、③新しい応用(計測・分析法)「共振器増強位相整合ラマン分光法」の3つの視点に基づいた研究を進め、「共振器位相整合非線形光学」という新しい研究分野を切り開いた。

(2) 詳細

研究テーマA [新しい機能] 世界最高周波数の連続発振光波変調の実現

光変調器とは光の特性を周期的に変化させるためのデバイスであり、高速光通信や基礎科学の広い分野で利用されている。従来の電気光学効果を利用した光変調器の変調周波数は10GHz 程度であり、最近報告されているグラフェンを用いた最新的高速変調器においても100GHz 程度が限界であった。本研究では、この光変調器の運転周波数を飛躍的に拡大し、10THz から100THz の周波数領域での光変調の実現をターゲットとした。

このような高速光変調を実現するための基本原理として、コヒーレント分子運動を利用した光波変調が研究されてきた(図1 参照)。一般的に、分子の回転や振動といった運動の周波数は、テラヘルツ(10^{12} Hz)の周波数領域に存在する。このような分子運動がコヒーレントに励起された場合、このコヒーレント分子運動は、巨視的には分極率の分子運動の周波数に一致する高速な周波数での周期的な変動となって現れる。こ

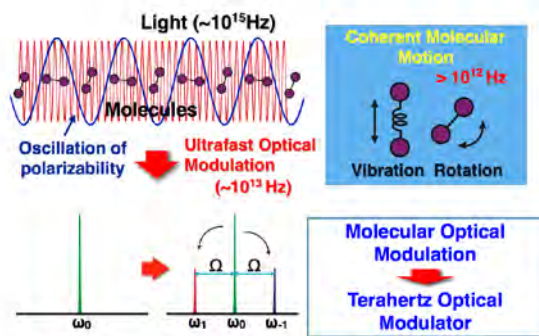


図1. コヒーレント分子運動による光波変調

のような状態の分子集団に 10^{15} Hz程度の周波数である光領域の電磁波を作用させると、この光波は、分子の運動の周波数で周期的な特性の変調を受ける。この現象を周波数領域からみると、長波長側、短波長側の双方に分子の運動周波数だけ離れた位置に新しい周波数成分がサイドバンドとして現れわたることになる。このような分子運動を利用した光変調法は分子光変調とよばれ、テラヘルツという極めて高い周波数領域での光波変調を可能とする。

本研究では、このような分子運動による光波変調を、分散制御された共振器を用いることによって、初めて位相整合条件を満たした高効率条件下で実現した。分散補償された共振器中に運動周波数 Ω の分子を封入し、分子運動の周波数に対応する周波数差を有する2つの異なる波長のレーザー光を入射する。これによって、共振中では共鳴して分子運動が励起され、周波数 Ω での分極率の変化が誘起される。このような状態の共振器に、異なる波長のもう一つのレーザー光を入射すると、共振器内の分子運動と強く相互作用し、入射した光は分子運動に一致した周波数で変調を受ける。この新しい方法は、共振器で光強度を増強するため、瞬間的な光強度の低い連続発振光に対しても光波変調を実現でき、さらに、位相整合条件を満足させることによって、光波変調の効率を劇的に改善できる。

図2に水素分子のコヒーレント回転運動(周波数 17.6 THz)を利用して、位相整合条件下で初めて実現された連続発振光に対する分子光変調の観測結果を示す。共振器への水素の充填圧力を最適化し、変調媒質である水素分子の有する正の分散と、共振器鏡

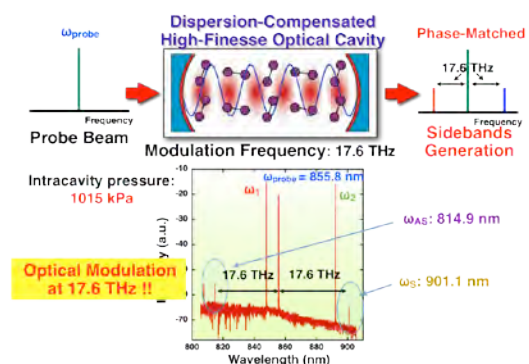


図2. 17.6THz 連続発振光サイドバンド発生

の有する負の分散をちょうどバランスさせた条件下においては、プローブ光のサイドバンドがはっきりと観測された。このサイドバンドと基本波長の周波数差は正確に 17.6THz であり、こ

の結果は、水素分子の回転運動が連続発振光に対して、10THz を超える超高速な光波変調を実現したことを明確に示している。また、最適化された条件下では、サイドバンド強度のプロープ光強度に対する比は、最大で約 50%まで達した。これは効率的な光変調の実現には、非線形相互作用における位相整合条件が本質的な役割を果たしていることを示している。

研究テーマB [新しい光源] 世界最高繰返し周波数(17.6THz)の超短光パルス列の実現

周波数領域で等しい周波数間隔で並んだ多周波数の連続発振光波は、時間領域では、その周波数間隔の逆数の時間間隔で放射される超短光パルス列を構成する。このような超短光パルス列を発生するレーザー光源は「モード同期レーザー」と呼ばれ、この光源の誕生は、超高速科学の学術分野に革新的な進歩をもたらした。一般的なモード同期レーザーは、共振器内に増幅器と変調器を構成要素とし、その繰返し周波数は共振器の長さに変調器の動作周波数で決定される。モード同期レーザーの繰返し周波数を拡大するためには、共振器長を短尺化し、変調周波数を増大する必要がある。しかしながら、例えば 10THz の繰返し周波数を得るためには、15 μm の共振器長で 10THz の周波数で変調する必要がある。従来の方式の延長上ではこのようなモード同期レーザーを実現することは極めて困難であった。

本研究では、このような従来方式の限界を打破し、世界最高の繰返し周波数を有するモード同期レーザーを実現するために、共振器位相整合非線形光学を基礎とした「分子変調モード同期レーザー」の実現に取り組んだ。こい、これを広帯域分散補償型共振器中で励起は、変調器として、コヒーレント分子運動を利用した「分子光変調器」を、増幅器として、分子本来が有する「ラマンゲイン」を利用するという新しい着想に基づいたモード同期レーザーである。水素分子を

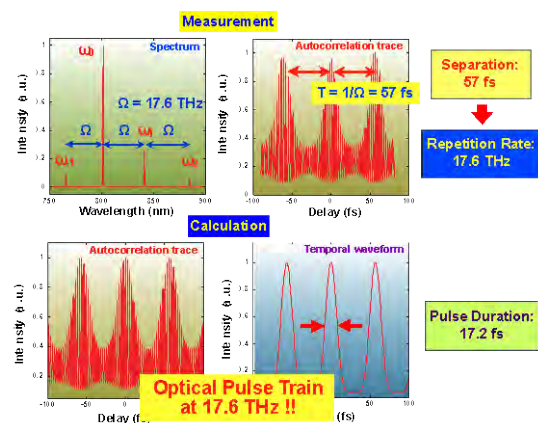


図 3. 17.6THz 繰返し光パルス列の観測結果

ゲインおよび変調媒質として用起することによって、17.6THz 間隔で、70THz の帯域にわたって配置される多周波数レーザー光を得ることに成功した。これは、時間間隔 57fs、パルス幅 13fs という、10THz を超える極めて高い周波数を有する超短光パルス列に相当するものである。本研究では、これら多周波数レーザー間の位相整合を定量的に評価する新しい手法を開発し[6. 主な研究成果リスト(1)論文 4 参照]、非線形検出器を組み込んだ自己相関計によって、このような超高繰返し光パルス列を測定した。図 3 に実際に測定された多周波数レーザー光のスペクトルと時間波形に対応する自己相関波形を示す。この結果は、周波数領域での周波数差に対応した、57fs 間隔 17.6THz 繰返し周波数の光パルス列の発生を強く示唆している。また、得られたスペクトルから計算された自己相関波形は、測定された自己相関波形とよく一致し、これより、時間幅 17.2fs の超高繰返し超短光パルス列の発生が示された。この結果は、報告者の知る限り、現時点でのモード同期レーザーにおける世界最高速の繰返し周波数である。

研究テーマC [新しい計測・分析法] 超高感度極微量分子検出法への展開

従来法として、共振器内で増強されたレーザー光と共振器内に存在する分子とのラマン相互作用を利用して、極微量な分子種の同定を可能とする共振器増強ラマン分光法が広く研究

されてきた。この手法は、高い周波数精度で高感度、高選択性を実現できる特徴を有しており、これまでに、ppm オーダーでの気体分子計測が実現されている。しかしながら、この手法では、分子検出のために、インコヒーレントな過程である自発的なラマン散乱を利用しているために、強いラマン信号を得ることができず、更なる検出感度の向上が難しい状況であった。

このような状況において、本研究では、新しい分析手法として共振器位相整合非線形光学を基礎とした「共振器増強位相整合コヒーレントアンチストークスラマン分光法」を提案した。この手法では、共振器として分散制御された高フィネス共振器を使用し、検出用光源として検出対象とする分子の運動周波数差相当する周波数差を持つ 2 波長のレーザー光を使用する。これによって、検出対象分子におけるコヒーレントな非線形光学効果を共振器中で誘起し、強いアンチストークス光を発生させることが可能となる。共振器分光法の有する全ての特徴を維持しながら、飛躍的な検出信号強度の増強を期待できる。自発ラマン散乱に対して、コヒーレントアンチストークスラマン散乱は、一般的に 5 桁から 7 桁の信号強度の増加が期待できると言われている。共振器位相整合非線形光学を基礎とすれば、これまでは実質不可能であった共振器コヒーレントアンチストークスラマン散乱過程における位相整合条件を満足させることができる。それによって、コヒーレントアンチストークスラマン散乱分光法をポテンシャルを使い尽くした超高感度分析法の実現が期待できる。

ここでは、分子の高感度検出の実現可能性を実証するために、高感度検出のための予備的な実験を実施した。図 4 の左のグラフは位相整合条件が満足されていない状態での共振器内コヒーレントアンチストークスラマン散乱の観測結果を示している。アンチストークス光信号が観測されているが、励起光に対しては十分な強度ではない。これに対して、共振器内圧力を最適化し、位相整合条件を満足させて場合の観測結果(図 4 右)においては、はるかに強い強度のアンチストークス光が観測され、この実験において、その増強率は 6600 倍であった。従って、さらに計測系の高感度化等を実施することによって、このアプローチは ppb から ppt オーダーの検出感度を有する手法へと発展させることができる可能性がある。

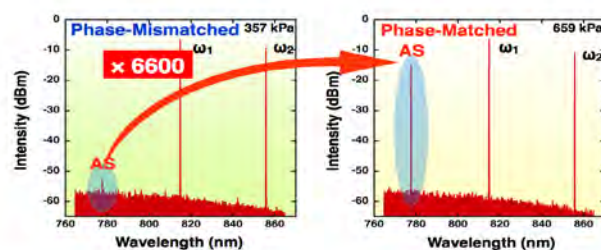


図 4. 共振器位相整合 CARS 分光法の原理実証

3. 今後の展開

光と物質の相互作用を追求する基礎的な研究においては、本研究で実現した超高繰り返し光パルス列が新しい展開をもたらす可能性がある。例えば、パルス列が物質系に作用する場合は、その励起された物質状態の緩和よりも早く次のパルスが到達することになる。このような特異な条件下での光による物質作用や、位相制御により同一の電界形状をもった光パルスの集合が物質に対して効果をコヒーレントに次々と積算させていくことができる「コヒーレントアキムレーション」、さらに、物質の振動や回転等の運動の周期に同期した物質励起による非線形・量子応答を飛躍的な増大等の新しい展開が期待される。

本研究提案で提供した新しい非線形光学の舞台は、位相整合共振器増強コヒーレント反スト

ークスラマン分光法という革新的な計測技術への道を切り開いた。この技術は超高感度ガスセンシングへの応用が容易に展開でき、例えば吸収分光法では検出の困難であった 2 原子分子の高感度検出、特に、放射性トリチウム等の同位体分子の高感度検出や固体表面の分子種の同定等に応用し、安全・安心な社会を実現するための基盤技術として展開していきたいと考えている。

4. 自己評価

本研究では、「共振器増強非線形光学」という光科学における新しい研究手法の開拓という壮大な目標をもってプロジェクトに臨んだ。この目標を達成するために、これまでにない機能・特性を有するデバイス・光源・計測手法を、世界最高記録の性能を持って実現するという戦略を立てた。当初は、多くのアプローチに手を広げすぎて、研究遂行が発散しつつあったが、ある時点で選択と集中を実施し、研究課題を限定することを決断した。その結果、(2)詳細に記した 3 つの成果を得ることができた。このような成果を得たことは、今後の研究者人生において大きな自信になると考えている。しかしながら、本研究プロジェクト期間中においては、自分の研究成果を十分にアピールできたとは言いがたい。今後は、論文・講演会における成果発表を積極的に行い、この領域における第一人者として世界の研究者より認められるような取り組みを進めていく所存である。

5. 研究総括の見解

共振器内の分散を打ち消すように設計した「分散補償型高フィネス共振器」を独自に提案し、最も周波数の高い連続発振光波変調器や最も繰り返し周波数の高い短波光パルス列が得られることを実証した。さらに、「共振器増強位相整合ラマン分光法」を試み、従来法に比べ 1000 倍もの高い感度が得られる事を示した。このようにオリジナリティーのあるアイデアを提案し、実際に実験による実証に成功したことはよろこばしい。この手法が持つ特性、魅力を端的に示す応用、デモンストレーションは今後の課題として残されたのでその実現に尽力してほしい。

6. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. S. Zaitzu and T. Imasaka, “Control of quantum pathways for the generation of continuous-wave Raman sidebands,” Optics Express, Vol. 19, 24298–24307 (2011).
2. S. Zaitzu and T. Imasaka, “Continuous-wave multifrequency laser emission generated through stimulated Raman scattering and four-wave Raman mixing in an optical cavity,” IEEE Journal of Quantum Electronics, Vol. 47, 1129–1135 (2011).
3. S. Zaitzu and T. Imasaka, “Phase-matched generation of high-order continuous-wave coherent Raman sidebands,” Optics Communications, Vol. 285, 347–351 (2011).
4. S. Zaitzu and T. Imasaka, “Quantitative measurement of the phase-locking of highly repetitive ultrashort optical pulses generated by a multifrequency continuous-wave Raman laser,” Applied Optics, Vol. 49, 1586–1592 (2010).

(2)特許出願

該当なし

(2)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 財津慎一、今坂藤太郎、「コヒーレント分子運動による連続発振光波変調」第 60 回応用物理学関連連合講演会、2013 年 3 月 28 日、神奈川工科大学
2. S. Zaitzu, “Development of novel light sources based on intracavity phase-matched nonlinear optics,” Academia Sinica & JST Joint Workshop on “INNOVATIVE USE OF LIGHT AND NANO/BIO MATERIALS,” International Conference Hall, Academia Sinica, Taipei, Taiwan, May 26-27, 2011.
3. S. Zaitzu and T. Imasaka, “Generation of continuous-wave Raman sidebands through degenerate and nondegenerate intracavity four-wave mixing,” Conference on Lasers and Electro-Optics 2011, Baltimore Convention Center, Maryland, USA, May 1-6, 2011.
4. 財津慎一、今坂藤太郎、「分子変調モード同期レーザーによる超高繰り返し光パルス列の発生」第 58 回応用物理学関連連合講演会、2011 年 3 月 27 日、神奈川工科大学
5. S. Zaitzu and T. Imasaka, “Broadband phase-matching of nonlinear optical interaction induced in a dispersion-compensated optical cavity,” Advanced Photonics and Renewable Energy: OSA Optics & Photonics Congress 2010, Karlsruhe-Messe and Kongress, Karlsruhe, Germany, June 21-24, 2010.