

機関番号：17102

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008～2010

課題番号：20245018

研究課題名（和文） 多色・超短パルスレーザーの発生とその応用技術の開発

研究課題名（英文） Generation of Multicolor and Ultrashort pulse laser and development of its applications

研究代表者

今坂 藤太郎（IMASAKA TOTARO）

九州大学・大学院工学研究院・主幹教授

研究者番号：30127980

研究成果の概要（和文）：

本研究では、誘導ラマン効果を基礎とした、連続光・超短パルス光励起新多色広帯域光源の開発とその高感度分析技術への応用を実現した。分散補償共振器を用いた新技術によって、世界最高速の連続発振超高繰り返し光パルス列を発生するために必要な三原色光を発生させた。また、時間幅  $10 \times 10^{-15}$  秒に相当する深紫外広帯域光発生のための新規分子位相変調法を開発し、爆発性化合物の検出感度の飛躍的増大に成功した。

研究成果の概要（英文）：

In this project, we developed novel light sources having a multifrequency/broadband spectrum based on a stimulated Raman effect pumped by continuous-wave (cw) and ultrashort pulse lasers. A three-primary-color emission that could be used for the generation of an extremely highly repetitive cw optical pulse train was generated through phase-matched four-wave mixing process in the dispersion-compensated high-finesse optical cavity. In addition, our newly developed molecular modulation scheme allowed for the generation of broadband deep-ultraviolet radiation that corresponded to a duration of 10 femtosecond and the demonstration of dramatic enhancement of the detection limit of explosive chemical compounds.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	19,000,000	5,700,000	24,700,000
2009年度	11,900,000	3,570,000	15,470,000
2010年度	5,700,000	1,710,000	7,410,000
年度			
年度			
総計	36,600,000	10,980,000	47,580,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：複合科学・分析化学

キーワード：レーザー、非線形光学

1. 研究開始当初の背景

・これまでの研究成果と着想に至った経緯

1987年、申請者は、誘導ラマン効果を用いてレーザー波長を変換していたとき、虹色に輝くレーザー” Rainbow Stars”を発見した（文献 APB '89：特許第 2140882 号）。

1992年、申請者は、本現象を用いて極限の超短パルス光が発生できることを提案した（文献 OptCom '93：特許第 3218706 号）。

申請者はフェムト秒レーザーを用いて多色レーザーを発生する研究を始め、紫外から近赤外に渡り 50 本以上の回転ラマン線を同時

に発生できることを実証した（文献 IEEE J-QE '98）。これらの位相同期により、光の領域における極限、すなわちサブフェムト秒光パルスの発生を提案した。

超高速繰り返し光パルスの発生方法（文献 PRL '01：国際特許 US 6,603,778）は、すでに申請者により実現されており（文献 JOSA '07）、世界最高速(17.6 THz)の光パルス列が得られている。

・国内・国外の研究動向及び位置づけ

申請者の方式は、単一超短光パルス(3.8 fs)、世界最短光パルス(楕状、1.6 fs)、高エネルギー単一超短光パルス(300 mJ)発生に利用されている。この分野においてわが国を代表する2大学、1研究所でも、すでに研究に着手されている。

## 2. 研究の目的

### A 高繰り返し超短パルスレーザーの研究

- ① 高反射率鏡から構成される共振器に水素を入れ、連続発振の緑色レーザーを集光し、誘導ラマン散乱により赤色レーザーを発生させる。引き続き四波ラマン混合により青色レーザーを発生させる。
- ② 重ね合わせにより生じる 8 fs 毎 (120 THz)、3 fs の光パルスを計測する装置を開発する。2光子応答光電子増倍管を用いるフリンジ分解自己相関波形測定装置(オートコリレーター)を試作する。
- ③ 3波長レーザーの分散を補償して 120 THz のフーリエ限界パルスを発生させ、波形を上記装置により測定する。高繰り返し超短パルス光の応用についても研究する。
- ④ 水素の代わりに重水素を用い、パルス発振レーザーで得られたような視感度のよい三原色レーザー(457 nm, 532 nm, 632 nm)を得る。これを用いる高輝度ディスプレイ装置を開発する。

### B 単一超短パルスレーザーの研究

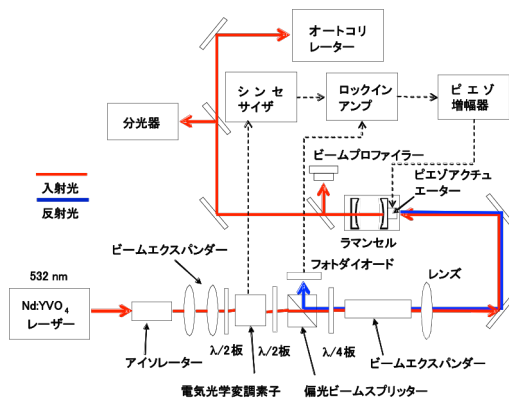


図 1. 高繰り返し超短パルスレーザー実験装置

- ① 超短パルスレーザー(100 fs)を水素に集光し、コヒーレントラマン散乱により、水素分子を同期回転させる。そこに100 fsの光パルスを導入し、多数の回転ラマン光を効率よく発生させる。この際、自己位相変調でスペクトル幅を拡大し、単一超短光パルスを発生する条件を探索して用いる。
- ② 自己回折周波数分解光ゲート装置(SD-FROG)により、発生した光パルスの位相とスペクトルを測定する。分散補正により、光パルスを圧縮する。さらに、検出部に質量分析計を用いるオートコリレーターにより、超短パルス光(数 fs)の波形を測定する。
- ③ 上記質量分析計に過酸化アセトンなどを導入し、“原子が動くことができない時間領域”で超高速光イオン化する新規質量分析を実現する。

## 3. 研究の方法

### A 高繰り返し超短パルスレーザーの研究(図 1)

- ・ 高い反射率(99.5%)と負の分散を有するチャープミラーから構成される共振器を設計、製作した。
- ・ Pound-Drever-Hall法に基づき、共振器長を一定に保つ装置を開発した。
- ・ 正の大きな分散を有するキセノン水素に添加し、共振器中の分散がゼロになるように調整した。
- ・ 高出力の緑色レーザー(532 nm)と水素及び重水素を用い、三原色レーザーを発生させ、基本的な性質を調べた。

### B 単一超短パルスレーザーの研究(図 2)

#### 1) 回転ラマン光の高効率発生

- ・ 既存のチタンサファイアレーザー(800 nm, 100 fs)をアルゴンに通し、自己位相変調によりスペクトル幅を広げた
- ・ 干渉フィルターなどによりスペクトルの形を制御し、水素に集光することにより、分子を同期回転させた。
- ・ ラマンセル中のビーム集光部において第三高調波(紫外光)がフーリエ限界パル

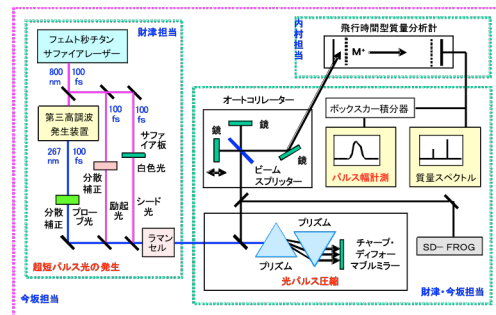


図 2. 単一超短パルスレーザー実験装置

スになるように、予めチャープ量を調整できるシステムを設計・製作した。

- ・ チタンサファイアレーザーの第三高調波を水素に導入し、回転ラマン光を発生できることを実証した。
- ・ チタンサファイアレーザー (800 nm, 100 fs) をサファイア板に通し、白色光を発生させる。これをシード光として用い、四波ラマン混合の効率を高めた。
- ・ ラマンセル中の水素に励起光を集光し、分子の位相を同期して回転させた。
- ・ チタンサファイアレーザー の第三高調波 (100 fs, 267 nm : シード光) を水素に導入し、高次回転ラマン光を効率よく発生させた。

## 2) パルス幅測定装置の開発

- ・ 一酸化窒素 (NO) の 2 光子イオン化に基づくパルス幅測定法を検討する。超短パルスレーザーが発生していることを示し、ラマン光が位相同期していることを確認した。

## 4. 研究成果

### A 高繰り返し超短パルスレーザーの研究

- ① 基本光となる緑色レーザー (532nm) から重水素をラマン媒質とした場合に発生する赤色レーザー (1 次ストークス光 : 632.5nm) と青色レーザー (1 次アンチストークス光 : 459.1nm) を得るために必要な負分散ラマン共振器を設計した。三原色レーザーを発生させるために必要な十分な帯域と負分散値を有する共振器を実現した。
- ② 基本光となる連続発振緑色レーザー (532nm) を、新しく作製した可視全域にわたって分散制御された共振器へ結合するための光学系を構築した。共振器を挿入したチャンバーにラマン媒質となる水素分子を封入し、その状態において最大 13W の基本光を共振器へ入射した。その結果、振動 1 次ストークス光である赤色レーザー (636nm) の発生に成功した。この赤色レーザーの横モードパターン

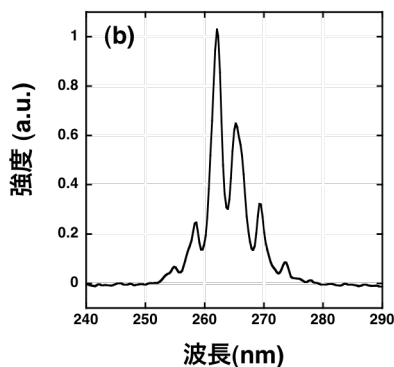


図 3. 深紫外超短パルス光スペクトル

は、共振器の基本モードと同様であることを確認し、水素圧 1MPa 時において発生しきい値は 5W、出力光の 2 成分間の出力比は、最大 11%であった。また、出力光強度の不安定性を観測し、これが非弾性散乱過程に起因する熱発生によるものであることを明らかにした。

- ③ 連続発振緑色レーザー (出力 : 15W, 波長 : 532nm) を、可視全域にわたって負分散を有する高反射ミラー (>99.5%) で構成された水素充填光共振器へ結合し、水素分子との共振器内非線形光学過程 (誘導ラマン散乱) によって、振動 1 次ストークス光に対応する赤色レーザー (波長 : 636nm) を発生させた。さらに、共振器内分散の補償による位相整合四光波混合過程を誘起し、振動 1 次反ストークス光に対応する青色レーザー (波長 : 436nm) を発生させるために、水素圧力を 10kPa ずつ変化させた。その結果、0.45MPa 近傍において、振動 1 次アンチストークス光に対応する青色レーザー (波長 : 436nm) の発生に初めて成功した。

### B 単一超短パルスレーザーの研究

- ① 時間的に変動する偏光を有する光パルスを用いる新しい分子コヒーレンス励起手法を提案し、紫外域において 100THz を超える帯域にわたるラマンサイドバンドの発生に成功した。また、光

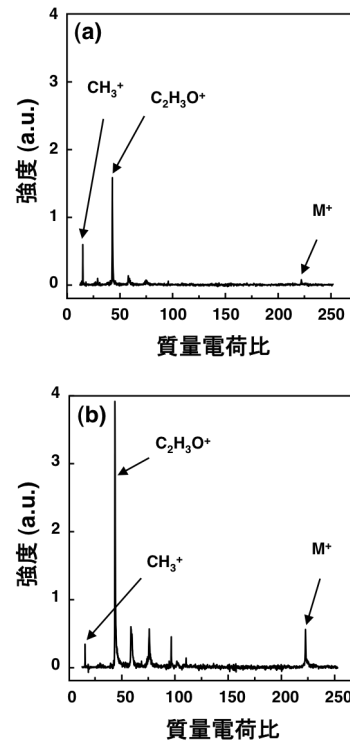


図 4. TATP の質量スペクトル

(a) 260 fs (b) 60 fs

ビートを有する形状に波形整形した励起パルスを用いる独自の手法も実現し、これによって、時間幅 10fs に相当する帯域を有する深紫外超短パルス光の発生を実現した。

- ② 中空キャピラリー導波路を利用した深紫外超短パルス光励起誘導ラマン散乱光の発生を初めて実現した。振動 1 次から 3 次までのストークス光と振動 1 次アンチストークス光を測定した。この際に導波路内でのモード選択に起因すると考えられる振動-回転ストークス光の特異的発生と、ほぼ 100% に達する波長変換効率を初めて観測した。近紫外全領域にわたる振動 1 次から 4 次までのストークス光と振動 1 次アンチストークス光の発生に成功した。この時、円偏光励起光パルスが高次振動ストークス光の発生に寄与することを初めて観測した。誘導ラマン散乱過程の効率化のために、光パラメトリック増幅を利用した近紫外超短パルス光発生光学系を構築した。波長 608nm において、最大 50  $\mu$ J のパルスエネルギーを取得し、その第 2 高調波によって、振動 1 次ストークス光に対応する 304nm 光の発生に成功した。
- ③ 近年世界中で増加している自爆テロで用いられることが多い爆薬であるトリアセトトリペルオキシド(TATP)を、ガスクロマトグラフィー/多光子イオン化/質量分析法を用いることで測定した。イオン化光源として、水素の回転ラマン散乱によってスペクトル拡張後に時間幅圧縮した光パルス(時間幅:60fs)を用いた。あらかじめ、当研究室で開発した NO の二光子イオン化を利用したオートコリレーターを用いてパルス幅を測定した後、干渉計の前でビームを反射し、測定側の質量分析装置へ入射させた。圧縮した光パルスをイオン化源に用いることによって分子イオンピークを確認することに成功した。260 fs の光パルスを用いてもエネルギーが 11  $\mu$ J と低く分子イオンピークをほとんど観測することはできなかった。しかし、同じエネルギーを持つ 60 fs の光パルスを用いることによって分子イオンピークを明瞭に観測に成功した。
- ④ 分子のコヒーレント運動による時間領域変調法によって、深紫外(226nm)における超短パルスのスペクトル拡張の新技术を提案し、その有用性を実証した。具体的には、時間幅 100fs、波長 400nm の励起光と白色光をシード光とする誘導ラマン散乱によって発生した 480nm 光による、光ビート励起法を実現し、この手法によっては初となる振動スト

クス光(300nm)の発生に成功した。また、回転ストークス・反ストークス光の発生に同様の手法を適用し、スペクトル拡張後に圧縮した広帯域(~10nm)超短パルス光を時間分解光ゲート法によって測定することで、20fs の時間幅を有する深紫外超短パルス光の発生を示唆する結果を得た。これは、本研究の目的をなす深紫外領域における超短パルス光の発生に対する有効性を実証する初めての結果である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① Yuki Miyoshi, Shin-ichi Zaitso, Totaro Imasaka, In Situ Third-Order Interferometric Autocorrelation of a Femtosecond Deep-Ultraviolet Pulse, Applied Physics B, 査読有, Vol.102, 2011, in press.
- ② 財津慎一、今坂藤太郎、コヒーレントラマン散乱による超短パルス光の発生とレーザーイオン化質量分析法への応用、化学工業、査読無、第 61 巻、10 号、2010、pp. 761-768
- ③ Totaro Imasaka, Two-Color Stimulated Raman Effect for the Generation of Ultrashort Optical Pulse, Proc. Fifth Asian Symposium on Intense Laser Science (ASILS-5), 査読無, Vol. 5, 2010, pp. 47-54
- ④ Quang Do HOA, Pham LONG, Totaro IMASAKA, A Self-Quenching Picosecond Distributed Feedback Dye Laser Pumped by a Picosecond Laser Pulse, Applied Physics. B, 査読有, Vol.101, 2010, pp. 571-574
- ⑤ Norifumi YASAKA, Yui chiro KIDA, Shin-ichi ZAITSU, Totaro IMASAKA, Generation of High-Order Rotational Raman Sidebands in the Deep - Ultraviolet Region Using Molecular Phase Modulation Induced by an Intensity-Modulated Optical Pulse, Journal of Applied Physics, 査読有, Vol.108, 2010, 056104
- ⑥ Yuka WATANABE-EZOE, Xing LI, Tomoko IMASAKA, Tomohiro UCHIMURA, Totaro IMASAKA, Gas Chromatography/Femtosecond Multiphoton Ionization/Time-of-Flight Mass Spectrometry of Dioxins, Analytical Chemistry, Vol. 82, 査読有, 2010, pp. 6519-6525
- ⑦ Takashi SHIMIZU, Yuka WATANABE-EZOE,

- Satoshi YAMAGUCHI, Hiroko TSUKATANI, Tomoko IMASAKA, Shin-ichi ZAITSU, Tomohiro UCHIMURA, Totaro IMASAKA, Enhancement of Molecular Ions in Mass Spectrometry Using an Ultrashort Optical Pulse in Multiphoton Ionization, Analytical Chemistry, Vol. 82, 査読有, 2010, pp.3441-3444
- ⑧ Totaro IMASAKA, Molecular System of Hydrogens, Science for Future Molecular Systems, Vol.3, 査読無, 2009, pp.37-43
- ⑨ 貴田祐一郎、財津慎一、今坂藤太郎、超高速分子光パルス整形、レーザー研究、査読有、第 37 巻、第 4 号、2009、pp.304-311
- ⑩ Yuichiro KIDA, Shin-ichi ZAITSU, Totaro IMASAKA, Coherent Molecular Rotations Induced by a Femtosecond Pulse Consisting of Two Orthogonally Polarized Pulses, Physical Review A, 査読有, Vol. 80, No. 2, 2009, 021805 (R)
- ⑪ Yuichiro KIDA, Shin-ichi ZAITSU, Totaro IMASAKA, Compression of an Ultraviolet Pulse by Molecular Phase Modulation and Self-Phase Modulation, Ultrafast Phenomena XVI, 査読無, Vol. 16, 2009 pp.816-818
- ⑫ Shoko HIROKAWA, Tomoko IMASAKA, Totaro IMASAKA, The S1 ← S0 0-0 Transition Energies of Polychlorinated Dibenzofurans (PCDFs) Revisited: CIS(D) and MP2 Calculations with Correction for Correlation Energies, Journal of Molecular Structure: THEOCHEM, 査読有, Vol.915, No.1-3, 2009, pp.79-85
- ⑬ Satoshi YAMAGUCHI, Tomohiro UCHIMURA, Tomoko IMASAKA, Totaro IMASAKA, Gas Chromatography/ Time-of-Flight Mass Spectrometry of Triacetone Triperoxide Based on Femtosecond Laser Ionization, Rapid Communications in Mass Spectrometry, 査読有, Vol.23, No. 19, 2009, pp.3101-3106
- ⑭ Yuka Watanabe-Ezoe, Koretaka OHI, Tomohiro UCHIMURA, Totaro IMASAKA, Analysis of Highly Chlorinated Dibenzofurans Using Gas Chromatography/Multiphoton Ionization/Time-of-flight Mass Spectrometry, Organohalogen Compounds, 査読無, Vol. 71, 2009, pp.271-274
- ⑮ Tomoko IMASAKA, Nami NAKAMURA, Yuji SAKODA, Satoshi YAMAGUCHI, Yuka WATANABE-EZOE, Tomohiro UCHIMURA, Totaro IMASAKA, Data Processing Technique in Gas Chromatography/ Time-of-Flight Mass Spectrometry, Analyst, 査読有, Vol.134, No. 4, 2009, pp.712-718
- ⑯ Satoshi YAMAGUCHI, Fumiaki Kira, Yuki MIYOSHI, Tomohiro UCHIMURA, Yuka WATANABE-EZOE, Shin-ichi ZAITSU, Tomoko IMASAKA, Totaro IMASAKA, Near-Ultraviolet Femtosecond Laser Ionization of Dioxins in Gas Chromatography/Time-of-Flight Mass Spectrometry, Analytica Chimica Acta, Vol.632, 査読有, No.2, 2009, pp.229-233
- ⑰ D. Q. HOA, V. DUONG, P. LONG, T. H. NHUNG, Totaro IMASAKA, Generating Short-Pulse Laser by Using a Quenched Distributed Feedback Dye Laser, Journal of Korean Physical Society, 査読有, Vol. 53, 2008, pp.3823-3826
- ⑱ Yuichiro KIDA, Shin-ichi ZAITSU, Totaro IMASAKA, Stimulated Rotational Raman Scattering by a Polarization-Modulated Femtosecond Pulse, Physical Review A, 査読有, Vol.77, 2008, 063802
- ⑲ 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連続発振超高繰り返しパルス列の発生、レーザー研究、査読有、第 36 巻、2008、pp.433-439
- ⑳ Yuichiro KIDA, Shin-ichi ZAITSU, Totaro IMASAKA, Generation of Intense 11-fs Ultraviolet Pulses Using Phase Modulation by Two Types of Coherent Molecular Motions, Optics Express, 査読有, Vol.16, 2008, pp.13492-13498

〔学会発表〕(計 14 件)

- ① 八坂訓史、財津慎一、今坂藤太郎、光ビート励起分子位相変調を用いて発生させた深紫外超短パルス光の測定、レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会、2011 年 1 月 10 日、電気通信大学
- ② Adan Li、Tomohiro Uchimura、Totaro Imasaka、Pesticides Analysis Using Gas Chromatography/Multiphoton Ionization/Mass Spectrometry with a Femtosecond laser、日本分析化学会第 59 年会、2010 年 9 月 15 日、東北大学
- ③ 高林順平、財津慎一、今坂藤太郎、分散補償光共振器を用いた三原色連続発振ラマンレーザー、第 71 回応用物理学会学術講演会、2010 年 9 月 16 日、長崎大学
- ④ 八坂訓史、財津慎一、今坂藤太郎、光ビート励起分子位相変調による深紫外高

- 次誘導ラマン光の発生、第70回応用物理学会学術講演会、平成21年9月8日、富山大学
- ⑤ 釋迦野卓、財津慎一、今坂藤太郎、中空キャピラリー導波路を用いた紫外超短パルス励起高次誘導ラマン散乱光の発生、第70回応用物理学会学術講演会、平成21年9月8日、富山大学
- ⑥ Norifumi Yasaka, Yuichiro Kida, Shin-ichi Zaitzu, Totaro Imasaka, Generation of High -Order Raman Emissions in the Deep Ultraviolet Region Using Molecular Phase Modulation, The 6th Asian Conference on Ultrafast phenomena, 平成 22 年 1 月 12 日, National Taiwan University, Taipei
- ⑦ Totaro Imasaka, The generation of an Ultrashort Optical Pulse Train at the World-Fastest Repetition Rate, The 6th Asian Conference on Ultrafast phenomena, 平成 22 年 1 月 11 日, National Taiwan University, Taipei
- ⑧ 財津慎一、井崎博大、今坂藤太郎、位相整合四光波混合により発生した連続発振ラマンサイドバンドのフーリエ合成、第56回応用物理学関連連合講演会、平成21年3月30日、筑波大学
- ⑨ 井崎博大、財津慎一、今坂藤太郎、位相同期連続発振多波長レーザーによる高繰り返し超短パルス列の発生、第69回応用物理学会秋季学術講演会、平成20年9月2日、中部大学
- ⑩ 釋迦野卓、財津慎一、今坂藤太郎、中空キャピラリー導波路を用いた超短パルス励起紫外ラマン光発生、第69回応用物理学会秋季学術講演会、平成20年9月2日、中部大学
- ⑪ 貴田祐一郎、財津慎一、今坂藤太郎、二色誘導ラマン散乱によるコヒーレント分子運動誘起、第69回応用物理学会秋季学術講演会、平成20年9月4日、中部大学
- ⑫ Yuichiro Kida, Shin-ichi Zaitzu, Totaro Imasaka, Compression of an Ultraviolet Pulse by Molecular Phase Modulation and Self-Phase Modulation, Conference on Ultrafast Phenomena 2008, 平成 20 年 6 月 10 日, Stresa Convention Centre, Italy
- ⑬ Shin-ichi Zaitzu, Hirotomo Izaki, Totaro Imasaka, Continuous-wave phase-matched generation of Raman sidebands in a dispersion-managed optical cavity, Conference on Lasers and Electro-Optics 2008, 平成 20 年 5 月 8 日, San Jose McEnery Convention

Center, California

- ⑭ Yuichiro Kida, Shin-ichi Zaitzu, Totaro Imasaka, Generation of a 12-fs Ultraviolet Optical Pulse Using Two Types of Coherent Molecular Rotations Conference on Lasers and Electro-Optics 2008, 平成 20 年 5 月 8 日, San Jose McEnery Convention Center, California

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称：  
 発明者：  
 権利者：  
 種類：  
 番号：  
 出願年月日：  
 国内外の別：

○取得状況 (計0件)

名称：  
 発明者：  
 権利者：  
 種類：  
 番号：  
 取得年月日：  
 国内外の別：

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

今坂 藤太郎 (IMASAKA TOTARO)  
 九州大学・大学院工学研究院・主幹教授  
 研究者番号：30127980

### (2) 研究分担者

今坂 智子 (IMASAKA TOMOKO)  
 九州大学・大学院芸術工学研究院・教務職員  
 研究者番号：90193721

### (3) 連携研究者

内村 智宏 (UCHIMURA TOMOHIRO)  
 九州大学・大学院工学研究員・助教  
 研究者番号：40346820  
 財津 慎一 (ZAITSU SHINICHI)  
 九州大学・大学院工学研究員・助教  
 研究者番号：90193721