

様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成24年5月22日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21760041

研究課題名（和文） テラヘルツ分子変調モード同期レーザーの開発

研究課題名（英文） Development of terahertz molecular-modulated mode-locked laser

研究代表者

財津 慎一 (ZAITSU SHINICHI)

九州大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：60423521

研究成果の概要（和文）：

共振器内誘導ラマン散乱および四光波混合による連続発振多周波数レーザーを実現した。受動的に安定化した発振条件下において、1次ストークス光、2次ストークス光、および、1次アンチストークス光を発生させた。高感度非線形検出器を用いた干渉型自己相関計測器によって、繰り返し周波数 17.6 THz の強度変調光パルス列の発生を実証した。また、新しい手法によって、多周波数発振線間の位相スリップを定量的に評価した。

研究成果の概要（英文）：

The continuous-wave-based multifrequency laser has been demonstrated through intracavity stimulated Raman scattering and four-wave mixing. Under a passively stabilized condition, the first Stokes, second Stokes and first anti-Stokes emission are generated. A intensity-modulated optical pulse train at a repetition rate of 17.6 THz is observed using an interferometric autocorrelator equipped with a high-sensitive nonlinear detector. In addition, a method proposed in this project allows us to measure a phase-slip between multifrequency emission lines quantitatively.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合 計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総 計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード：レーザー

1. 研究開始当初の背景

2005 年のノーベル物理学賞の根拠ともなった光周波数コム技術は、計量計測科学、精密分光学、アト秒物理学に革新的な飛躍をもたらした。これは、超短パルス内の搬送波包絡線オフセット位相を任意に制御することによって実現される新しい種類の光源であった。この光源では、モード同期パルス列の

「繰り返し周波数」を極限まで制御する技術が基礎となっている。モード同期レーザーにおける繰り返し周波数は、これまであまり顧みられることのないパラメータであったが、光周波数コムレーザーの誕生とともに、この「繰り返し周波数」が、モード同期レーザーにおける新しい主要パラメータとして注目を集めている。しかし、これまでのモード同

期レーザーでは、達成可能な最高の繰り返し周波数は、たかだか数 GHz 程度であった。

もし、繰り返し周波数が従来法よりも 3 桁以上大きい、新しい光源が誕生すればどのような展望が開けるであろうか？このような超高繰り返し光パルス列においては、パルス列を構成するパルスとパルスの間隔は 100fs を切ることになる。このようなパルス列が物質系に作用する場合は、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を、緩和の早い(<1ps)物質において実現できる光源は、これまで存在しなかった。

申請者はこれまでの研究で、高フィネス共振器内で分子の運動と光波の相互作用に基づいた連続発振光変調を初めて実現した [Phys. Rev. Lett., 100, 073901(2008)]。さらに、この原理を基礎に、分子運動と同じ周波数で動作するモード同期レーザーを提案した[レーザー研究, 35, 433 (2008)]。分子の運動周波数は一般的に 10~100THz 程度の周波数帯域に存在するので、これを変調機構として利用すれば、かつてない超高速の繰り返し率で動作するモード同期レーザーを実現することができるであろう。

2. 研究の目的

本研究提案では、上述したような画期的なテラヘルツ繰り返しで動作するモード同期レーザーを実現するために、以下の 3 つを研究課題として設定した。

- ① 分散補償された低損失・高フィネス共振器を用いた高効率分子変調の実現
 - ② 相互作用する光波間の結合方程式に基づく分子内光波変調モデルの構築
 - ③ 発生したサイドバンド光間の位相関係の測定によるモード間位相同期の実証
- これらの課題を遂行し、17.6THz 繰り返し位相同期パルス列(パルス幅<20fs)の初めての実現を目指した。

3. 研究の方法

課題 I：広帯域高フィネス共振器中の高効率連続波四光波混合の実現

本研究で提案する分子運動による新規光波変調方式は、視点を変えると、「連続光波と分子とのラマン共鳴四光波混合によるサイドバンド発生」とみなす事ができる。しかし、ピークパワーの低い連続光波を用いたこのような分子と光波の高効率な非線形相互作用は、これまで実現されていなかった。ここでの本質的な問題点は、励起光と変調によって発生したサイドバンド間の位相整合を如何に効率良く実現できるか、という点に帰着される。本研究では、この問題を解決するための独自の手法を用いて、連続光波の分子変調を実現する。以下にその具体的な手法を

記述する。

[具体的な手法]

- ① 相互作用長を増大させるために、高フィネス共振器(反射率>99.9%)を用いる
- ② 励起光と複数のサイドバンドを共振させるために、広帯域共振器とする($\Delta\lambda \sim 100\text{nm}$)
- ③ 高フィネス共振器の全相互作用長において位相整合を満足するように、共振器内群速度分散を補償する

共振器内での励起光とサイドバンド間の位相は、共振器内媒質のわずかな屈折率の波長依存性によっても、その位相関係がくずれ、コヒーレント距離が制限される(例えば、本研究で用いる水素分子 1MPa では約 2m)。従って、フィネス 15000 の共振器(相互作用長～400m)を用いてもその効率を増大させることはできない。しかし、共振器内分散を適切に制御することによって、共振器の性能を完全に生かした高効率非線形相互作用の実現できる。この新しい方法によって、反ストークス光(短波長側)とストークス光(長波長側)が等強度で発生するような共振器内四光波混合を実現する。この結果得られた出力光は、分子によって 17.6THz(水素の場合)変調された初めての連続光波となる。

[実験装置]

実験のために用いる光学系の配置を次項図 1 に示す。励起光源・共振器制御系・ラマン共振器から構成されている。これらはこれまでの研究[J. Opt. Soc. Am. B, 24, 1037, 2007]で用いた実験系とほぼ共通のものである。

課題 II：分子変調サイドバンド間位相関係の測定

上記、課題 I によって実現された出力光波は、励起光およびサイドバンド間の位相関係がロック(フェイズロック)していかなければ、それは分子変調によって発生した光波とは言えない。従って、本研究で提案する新方式の有用性を実証するためには、そのサイドバンド間の位相関係の測定が必要となる。本研究では、その実証ために、干渉型高感度非線形自己相關計と付加的群速度分散を組み合わせた検証を行った。

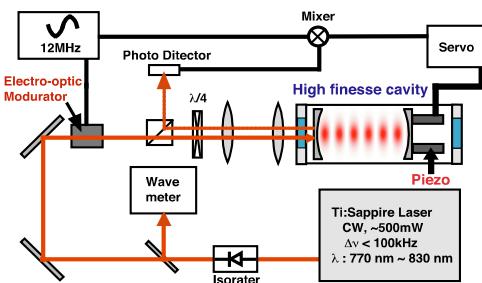


図 1. 実験配置図

[具体的な手法]

- ① 紫外用光電子増倍管の2光子応答を利用した非線形自己相関計測
- ② 共振器鏡の低損失化による総出力パワーの増大

申請者はこれまでの研究で、Sb-Cs を光電面とする光電子増倍管は、連続光波においても非線形検出が可能であることを明らかにした [Appl. Phys. Lett., 88, 074101 (2006)]。しかし、このような非線形検出がどの出力レベルまで実現可能かどうかはまだ明らかになっていた。本研究では、この検出器の非線形検出限界を明らかにし、その限界を超えるパワーの変調光波出力を発生させた。このようにして計測された自己相関信号において、附加的な群速度分散(プリズムペア)によって付与)による変化を観測した。

4. 研究成果

成果 I : 共振器内誘導ラマン散乱/四光波混合による連続発振多周波数レーザーの発生

I-1. 熱的自己安定無制御発振の実現

本研究によって、共振器内誘導ラマン散乱過程による連続発振多周波数レーザーが、一般的に用いられている能動的共振器フィードバック制御を利用することなく、受動的に安定した発振を実現可能なことを見出した。これは、熱発生に伴う共振器内媒質の屈折率変化に起因する現象であり、ラマンレーザーにおいては初めて観測された現象である。

I-2. 共振器内誘導ラマン散乱による高次ストークス光の発生

上述した自己安定共振状態において、1次ストークス光(S1:806.5nm)に加えて、波長846.5nmにおいて2次ストークス光(S2)の高効率発生を実現した。励起光入力パワー200mWに対して、最大出力は、励起光:13.3mW、S1:9.7mW、S2:8.0mWであった。共振器出力に対する発振線パワー依存性の観測によって、1次ストークス光・2次ストークス光の発生に伴う共振器内励起光・1次ストークス光パ

ワーの定常化を見出した。これは、共振器内誘導ラマンレーザーの理論モデルからの予測によく一致する。

I-3. 位相不整合条件下における共振器内四光波混合の観測

上述した1次ストークス光・2次ストークス光に加えて、波長736.7nmにおいて1次アンチストークス光(AS1)の発生を見出した。各ラマン性発生強度の共振器総出力に対する依存性を図2に示す。このAS1の発生しきい値は、パラメトリック過程の性質を反映し、S1の発生しきい値に一致していた。また、S2のしきい値以下においては、共振器出力は1次関数的に、S2発生しきい値以上においては、2次関数的に振る舞うことが明らかになって。これは、共振器内位相不整合四光波混合の理論モデルより予想される結果と一致する。このAS1光の水素圧力依存性を測定した結果、より低い圧力において、強いAS1光の発生を確認した。これは、水素圧力低下に伴う、相互作用コヒーレント長の増大によるものであり、共振器内分散補正によるAS1発生効率の増大を示唆する結果であった。

成果 II : 超高速光パルス列の定量的位相同期測定法の開発

II-1. 非線形検出器を用いた多周波数連続発振レーザーの時間領域観測

高感度非線形検出器(光電子増倍管)を用い、干渉計内分散の対称性を考慮した干渉型自己相関計測器によって、17.6THz間隔の3本の単一周波数発振線を含む多周波数レーザーの時間波形測定を行った。その結果、スペクトル間隔に対応した時間周期(57fs)での光パルス列の発生を観測した。さらに、超短パルス列の周波数位相変調の変化を計測するために、回折格子対による附加的な分散の影響を観測した。その結果、この附加的分散による波形変化は観測されず、超短光パルス列の位相スリップの存在が明らかになった。

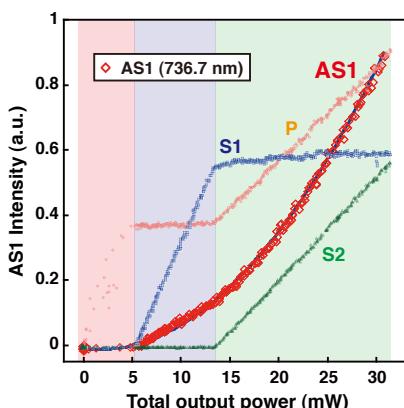


図2. 多周波数発振線の総出力依存性

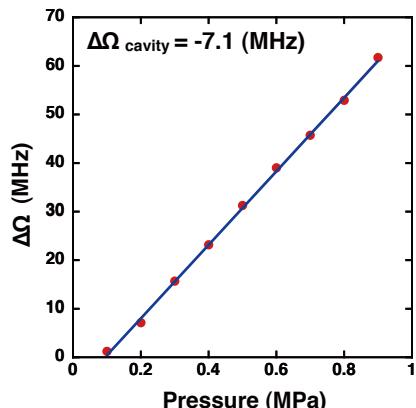


図3. モード間隔周波数の圧力依存性

II-2. テラヘルツ間隔多周波数レーザー発振線間の位相スリップの定量化

上述した多周波数発振線間の位相スリップを定量的に評価するために、非線形検出器出力の周波数成分を観測する新しい評価法を発案した。この新しい方法により、発振線間の位相スリップに対応する周波数差 $\Delta\Omega$ の観測が可能となった。 $\Delta\Omega$ の共振器内水素圧力に対する依存性を図3に示す。観測されたプロットは、傾き75MHz/MPaの直線で近似され、この傾きは、既知の水素分子の屈折率波長依存性から得られる値と一致した。さらに、測定結果は、水素圧力95kPaにおける位相整合条件の存在を示唆しており、共振器内分散の補正によって、高効率な位相同期多周波数連続発振光の発生と、10THzを超える繰り返し周波数を有する超短光パルス列発生を予想する結果であった。

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は下線)

〔雑誌論文〕(計1件)

- ① Shin-ichi Zaitsu, Totaro Imasaka, Quantitative measurement of the phase-locking of highly repetitive ultrashort optical pulses generated by a multifrequency continuous Raman laser, *Applied Optics*, 査読有, Vol. 49, 2010, pp. 1586-1592

〔学会発表〕(計5件)

- ① 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
② 財津慎一、今坂藤太郎、分散補償共振器中の広帯域位相整合四光波混合の観測、第71回応用物理学会学術講演会、2010年9月16日、長崎大学
③ Shin-ichi Zaitsu, Totaro 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
④ 財津慎一、連続発振光励起による共振器位相整合非線形光学、レーザー学会学術講演会第30回年次大会、2010年2月4日、千里ライフサイエンスセンター
⑤ Shin-ichi Zaitsu, Hirotomo Izaki,

Totaro Imasaka, Fourier synthesis of continuous-wave Raman sidebands generated through an intracavity Raman-resonant four-wave mixing, European Conference on Lasers and Electro-Optics 2009, the ICM Center of the New Munich Trade Fair Centre, Munich, Germany, June 14-19, 2009

〔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

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

財津慎一 (ZAITSU SHINICHI)

九州大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号: 60423521

(2)研究分担者

()

研究者番号:

(3)連携研究者

()

研究者番号: