

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：32409

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760048

研究課題名(和文) プラズマ非線形光学による広帯域フェムト秒光源

研究課題名(英文) Generation of broadband femtosecond laser pulse from laser produced plasmas

研究代表者

鈴木 将之 (Suzuki, Masayuki)

埼玉医科大学・医学部・准教授

研究者番号：60622371

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：金属ターゲットにピコ秒レーザーを線集光してターゲット表面に生成するプラズマを非線形媒質に用いて紫外域および極端紫外域において高出力、広帯域のフェムト秒パルス生成を行った。マルチレーザー励起プラズマによる疑似位相整合により高調波の強度増大に成功した。本研究成果はレーザー励起プラズマが波長変換用の非線形光学素子として有用であることを示した。

研究成果の概要(英文)：Broadband femtosecond laser pulse has been generated by using laser produced plasma in an ultraviolet and extreme ultraviolet region. Quasi-phase-matching induced enhancement of harmonics has been successfully demonstrated by multiple laser produced plasmas. This study shows that the laser produced plasma is one of most promising candidates for a nonlinear frequency conversion medium.

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：超短パルスレーザー 広帯域光源 波長変換 高性能レーザー レーザープラズマ

### 1. 研究開始当初の背景

眼科において紫外から赤外領域のフェムト秒レーザーパルスは、新しい光線力学治療や角膜の超微細手術などへの応用が期待されている。これらの応用研究を実用化するためには、多くの臨床試験が必要であり、これを円滑に行うために紫外から赤外領域の波長可変のフェムト秒レーザーの開発が望まれている。現在、眼科において認証されている波長可変レーザーは、光パラメトリック発振を利用した色素レーザーだけである。しかし色素レーザーはレーザー媒質である色素を交換することで波長可変が可能であることから、事実上は単一波長で使用されている。そのため波長可変のフェムト秒レーザーの開発の要望が強い。

申請者は以前所属していた東京大学物性研究所にて金属ターゲットにピコ秒レーザーパルスを照射した際に生成するレーザー励起プラズマ中のイオンを非線形媒質に用いて軟X線領域におけるコヒーレント光源の生成を行っていた。この研究において以下の2つの注目すべき成果を得た。それは(1)高次高調波の特定次数のみの選択的強度増大、(2)多価イオンによる高次高調波の短波長化である。これらの成果は従来のガスを用いた場合には決して観測されていない結果であり、レーザー励起プラズマを用いた場合にのみ観測される新規的な現象であった。これらの研究結果を通してレーザー励起プラズマは、軟X線領域において有益な非線形光学媒質であることを示した。

一方、可視域から近赤外における波長変換技術として、近年は非同軸パラメトリック増幅法(Non Collinear Optical Parametric Amplifier: NOPA)を用いて広帯域かつ極短パルス生成が可能となり超高速分光研究が精力的に進められている。申請者は前所属先である日本原子力研究開発機構にて広帯域増幅のためにBBO結晶を用いてNOPA増幅器を第1段増幅器そしてYb:YAG薄膜ディスク増幅器を第2段増幅器に用いたハイブリッドレーザーの開発を行いNOPAによる高帯域増幅の有用性を示した。

本計画では、レーザー励起プラズマと光パラメトリック増幅の技術を用いて極端紫外から赤外領域における高出力のフェムト秒レーザーパルス生成を行う。レーザー励起プラズマは広い波長範囲で透明かつ、その非線形光学係数はガスと同程度または波長によってはガス以上の値を有する。さらに強いレーザーパルスを入射しても媒質自身の破壊が起こらない。そのため長い相互作用領域を実現することで高出力、フェムト秒レーザー生成が期待できる。特に紫外域では、ほとんどの非線形結晶において、分散(屈折率の波長依存性)が大きくなり、フェムト秒パルス生成に必要な広帯域波長変換が困難となる。また中赤外では励起光と増幅光の波長差が大きく両方の結晶において透明でないため

使用できる結晶に制限がある。このような研究背景から本研究計画を通してレーザー励起プラズマを用いた波長変換技術の確立を行う。

### 2. 研究の目的

本研究では、申請者らが提案実証した金属ターゲットにレーザー光を照射した際に生成するレーザー励起プラズマ中のイオンを非線形媒質に用いた新しい波長変換技術の確立を行い、極端紫外から近赤外域における高出力、超短パルス生成の新しい手法の開発を目的とする。はじめにレーザー励起プラズマ生成装置と計測システムの開発を行う。つぎに開発した装置を用いて波長変換を行う。このときレーザー励起プラズマに用いる金属材料の選択やその形状の最適化、レーザー照射の条件を変化させて、得られる出力の最適化を行う。

### 3. 研究の方法

本研究計画は、金属ターゲットにレーザー光を照射した際に生成するレーザー励起プラズマを非線形媒質に用いた波長変換技術の確立を行う。(1)レーザー励起プラズマを非線形媒質生成装置の開発。非線形媒質のレーザー励起プラズマとは真空容器内に金属ターゲットを設置し、その設置したターゲットにレーザーパルスを照射してレーザー励起プラズマを発生させ、それに含まれるイオンを非線形媒質に用いるものである。はじめに真空チェンバー内に金属ターゲットを設置してピコ秒レーザーを線集光する。つぎに約10-100ns経過後、ターゲット表面に対して水平方向から波長800nmおよび400nmのレーザーパルスをレーザー励起非線形媒質に集光する。このとき非線形過程を経て波長変換されたフェムト秒レーザーパルスが生成できる。この実験を進めるためのレーザー励起プラズマ発生装置の開発を進める。(2)四波混合による第三高調波生成。開発した装置を用いて、波長800nmと400nmのフェムト秒レーザーパルスをレーザー励起非線形媒質に集光して、四波混合による紫外域のフェムト秒レーザーパルスの特性評価を行う。(3)可視域における広帯域シード光を用いたパラメトリック増幅試験。低出力なレーザー光で広いスペクトル生成が可能なフォトニック結晶ファイバー(Photonic Crystal Fiber: PCF)にフェムト秒レーザーを入射してスペクトルの広帯域化を進める。ファイバーのゼロ分散波長と長さの最適化を行い、平滑なスペクトル形状を有する広帯域スペクトル生成を行う。その後、このレーザーをシード光としてパラメトリック増幅を行う。(4)マルチレーザー励起プラズマを用いた疑似位相整合による高出力波長変換。波長による媒質における屈折率差によって生じる位相不整合の補償を行い、高出力波長変換技術の確立を進める。ピコ秒レーザーパルスのビームラ

インにマルチスリットを導入してマルチレーザー励起プラズマを生成による空間的に屈折率変化状態の形成を行う。特性評価の一環として、このマルチレーザー励起プラズマを用いて極端紫外域における波長変換を行い、高出力化を進める。

#### 4. 研究成果

(1) レーザー励起プラズマを非線形媒質生成装置の開発を行った。レーザー励起プラズマの生成用のピコ秒レーザーパルスと波長変換用フェムト秒レーザーパルスの時間差を 10-100ns まで可変できるデレイラインの作成を行った。また得られる光のスペクトルと出力を計測するための計測システムの構築も同時に進めた。

(2) 波長 800nm と 400nm のフェムト秒レーザーパルスをレーザー励起非線形媒質に集光した際に生成する第三高調波生成を行った。その結果、波長 270nm においてスペクトル幅 8nm、出力 5 マイクロジュールの第三高調波生成に成功した。一方、非線形光学結晶の BBO を用いた場合のスペクトル幅は、2.7nm であった。これより従来法と比較して本結果は約 3 倍程度のスペクトル広帯域化に成功した。このスペクトル幅は 1 と 2 の時間差に依存して変化するという新たな知見を得た。これらの成果については現在論文投稿準備中である。

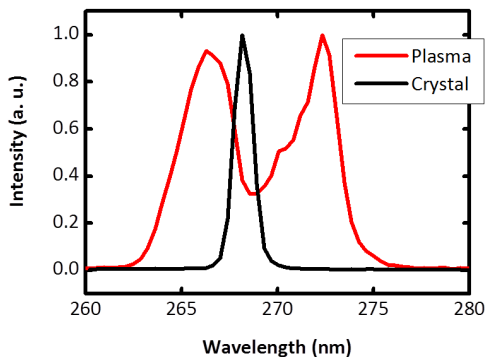


図 1. 第三高調波スペクトル 赤線：プラズマを非線形媒質に用いた場合、黒線：非線形光学結晶 BBO を用いた場合

(3) 広帯域光源発生ためのシード光生成を行った。出力 1W、繰り返し 100MHz、パルス幅 100fs のレーザーパルスを非球面レンズ (NA:0.4) にて長さ約 10cm 程度の PCF に入射して、広帯域光生成を行った。PCF には異なる 3 種類のゼロ分散波長 (853nm と 1039nm、753nm) を有したものを使用した。このとき得られたスペクトルを理論的に検証するためにスプリットステップフリー工法を用いた非線形シュレディンガー方程式解析により実験結果と比較を行った。ゼロ分散波長 853nm の PCF を用いたとき波長域 480-1420nm のスペクトルが得られ、同 1039nm の PCF を

用いたとき波長域 700-1600nm のスペクトルが得られた。通常、ゼロ分散波長と励起レーザーの波長が近接した場合、得られるスペクトルは最も広帯域化するが、今回の実験ではゼロ分散波長と励起レーザーの波長差が 175nm 離れている場合の方が広帯域なスペクトルが得られた。この結果は、非線形シュレディンガー方程式による解析結果も同じ傾向を示している。このときの広帯域化機構は以下の通りである。はじめに PCF に入射した励起レーザーは PCF 中で自己位相変調 (Self Phase Modulation: SPM) により短波長化される。つぎに短波長化されたレーザーの波長がゼロ分散波長と一致すると光ソリトン生成して、急激に短波長化が進む。最後に光ソリトン波と SPM によって広がったスペクトルは複数の非線形効果により広帯域化されたと考えられる。図 2 にゼロ分散波長と励起レーザーの波長差が 275nm のときの実験および計算のスペクトルを示す。

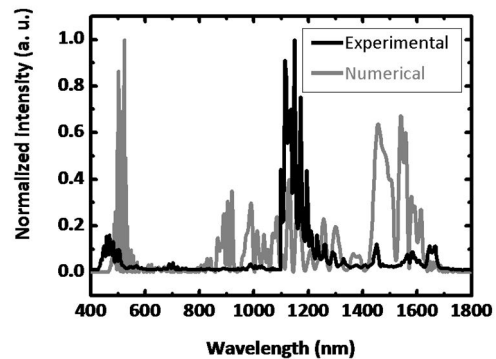


図 2. ゼロ分散波長と励起レーザーの波長差 275nm の PCF を用いたときのスペクトル 黒実線：実験結果、灰色実線：計算結果

得られた広帯域光源のスペクトルは 420nm から 1650nm まで広がり、この値は今回行った実験において最大のスペクトル幅であった。また計算結果も、この結果を再現しており、効率的な広帯域化技術の確立ができたと考えられる。これをシード光としたパラメトリック増幅は現在進行中であり、高出力化には至っていないため、今後の課題としたい。

(4) ピコ秒レーザーのビームラインにマルチスリットを導入してマルチレーザー励起プラズマの生成による疑似位相整合高次高調波生成を行い、高調波の強度増大に成功した。図 3 に結果を示す。長さ 25mm のプラズマと長さ 0.5mm の 5 つのプラズマを用いた高次高調波の強度比較を行った。その結果、0.5mm の 5 つのプラズマを用いた 33 次高調波の強度は、長さ 25mm のプラズマを用いたときの約 13 倍であった。これは基本波と波長変換された 33 次高調波のコヒーレンス長ごとにプラズマを生成させ、空間的に屈折率変

化状態を実現したことで位相不整合の補償ができたためと考えられる。

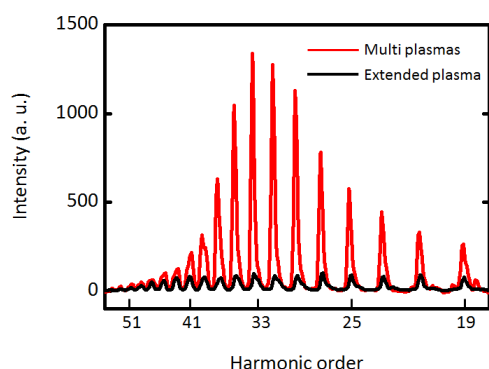


図 3. 疑似位相整合による高調波の強度増大スペクトル、赤線：5つのプラズマを用いた場合、黒線：通常のプラズマを用いた場合

さらに、これを利用して長さ 0.4mm の 8 個のマンガンレーザー励起プラズマを用いたとき、波長 15nm 領域において 40 倍の強度増大を得ることに成功した。これらの結果からプラズマの間隔と個数を調整して強度増大可能な波長を可変化できることを明確にした。つぎに複数のレーザー励起プラズマに 1 と 2 の二色電場フェムト秒レーザーを入射して波長変換特性評価を行った。銀のレーザー励起プラズマを用いたとき、1 と 2 の照射タイミングの最適化と非線形媒質中の強い共鳴効果を利用することで波長 50nm の領域における複数次数の高調波は、通常の場合と比較して約 50 倍の強度増大が観測された。最後にグラフェンとフラーレン、ダイヤモンド状炭素をターゲットとしたレーザー励起プラズマを非線形媒質に用いた波長変換の特性評価を行った。ナノ粒子材料をターゲットに用いたとき、表面プラズモン共鳴吸収が存在する波長域において高次高調波の強度増大が観測された。これは光誘起による双極子モーメントの増大によるものであることを明らかにした。

#### 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には下線)

[雑誌論文](計 10 件)

1. R. A. Ganeev, M. Suzuki, and H. Kuroda, "High-order harmonic enhancement using the quasi-phase-matching in laser plasma," JETP Letters 99 (7), pp. 368-372 (2014). DOI: 10.7868/S0370274X14070029 (査読有り)
2. R. A. Ganeev, M. Suzuki, and H. Kuroda, "Advanced properties of extended

plasmas for efficient high-order harmonic generation," Physics of Plasmas 21(5), 053503/1-7 (2014). DOI:10.1063/1.4875738 (査読有り)

3. R. A. Ganeev, M. Baba, M. Suzuki, and H. Kuroda, "Application of carbon cluster-contained extended plasmas for the high-order harmonic generation of ultrashort pulses," Journal of Applied Physics 115(18), 183101/1-8 (2014). DOI: 10.1063/1.4875681 (査読有り)
4. R. A. Ganeev, M. Suzuki, and H. Kuroda, "Quasi-phase-matching induced enhancement of high-order harmonics during two-color pump of multi-jet plasmas," Journal of Physics B-Atomic, Molecular and Optical Physics- 47(10), 05407/1-8 (2014). DOI: 10.1088/0953-4075/47/10/105401 (査読有り)
5. R. A. Ganeev, M. Suzuki, P. V. Redkin, H. Kuroda, "Quasi-phase-matching of laser harmonics using variable multi-jet plasmas," Journal of Nonlinear Optical Physics and Materials, 23 (1), pp. 1450013/1-10 (2014). DOI: 10.1142/S0218863514500131 (査読有り)
6. R. A. Ganeev, M. Suzuki, and H. Kuroda, "Enhanced harmonic generation using different second-harmonic sources for the two-color pump of extended laser-produced plasmas," Journal of the Optical Society of America B 31 (4), pp. 911-918 (2014). DOI: 10.1364/JOSAB.31.000911 (査読有り)
7. R. A. Ganeev, M. Suzuki, and H. Kuroda, "Quasi-phase-matching of high-order harmonics in multiple plasma jets," Physical Review A 89, 033821/1-6 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevA.89.033821 (査読有り)
8. H. Kuroda, M. Baba, M. Suzuki, and S. Yoneya, "Ultra-high sensitive and high resolution optical coherence tomography using a laser induced electromagnetic dipole," Applied Physics Letters 103 (14), 141118 (2013). DOI: 10.1063/1.4824493 (査読有り)
9. H. Kuroda, M. Baba, M. Suzuki, and S. Yoneya, "A high speed three-dimensional spectral domain optical coherence tomography with <math><2\mu\text{m}</math> axial resolution using wide bandwidth femtosecond mode-locked laser," Applied Physics Letters 102 (25), 251102 (2013). DOI:

10.1063/1.4812342 (査読有り)

10. M. Suzuki, M. Baba, S. Yoneya, and H. Kuroda, "Efficient spectral broadening of supercontinuum in photonic crystal fiber with self-phase modulation induced by femtosecond laser pulse," Applied Physics Letters 101 (19), 191110 (2012). DOI: 10.1063/1.4767143 (査読有り)

〔学会発表〕(計 10 件)

1. 庄司拓平、黒田寛人、鈴木将之、伊吹寿士、馬場基芳、板谷正紀、新家眞、米谷新 "篩状板のブルップ膜面に対する傾斜角度と緑内障および近視との関連" 第 117 回日本眼科学会総会 (2014 年 4 月 4 日、帝国ホテル) 02-056
2. 鈴木将之、黒田寛人、庄司拓平、馬場基芳、板谷正紀、米谷新、"広帯域レーザー光干渉断層計による視神経乳頭における動脈拍動計測" 第 117 回日本眼科学会総会 (2014 年 4 月 3 日、帝国ホテル) 01-011
3. 庄司拓平、米谷新、鈴木将之、馬場基芳、新家眞、黒田寛人、"モードロックレーザー光源を用いた高解像度光干渉断層計による生体視神経乳頭篩状板の観察、" 第 24 回日本緑内障学会 (2013 年 9 月 22 日、京王プラザホテル) 01-31
4. 黒田寛人、鈴木将之、馬場基芳、庄司拓平、新家眞、米谷新、"OCT の基本原理と再理解" 第 24 回日本緑内障学会 (2013 年 9 月 22 日、京王プラザホテル)(招待講演) S2-1
5. 黒田寛人、馬場基芳、米谷新、鈴木将之、庄司拓平、"インドシアニングリーンによる OCT の重畳高感度化、" 第 117 回日本眼科学会総会 (2013 年 4 月 4 日、東京国際フォーラム) P-071
6. 米谷新、庄司拓平、土橋尊志、鈴木将之、馬場基芳、黒田寛人、"高速・高解像度光干渉計による加齢黄斑 Bruch 膜病変描出の可能性、" 第 117 回日本眼科学会総会 (2013 年 4 月 4 日、東京国際フォーラム) 01-71
7. 庄司拓平、米谷新、馬場基芳、鈴木将之、新家眞、黒田寛人、"高速・高解像度光干渉計による光干渉計による視神経乳頭の解剖と病理検索の試み、" 第 117 回日本眼科学会総会 (2013 年 4 月 4 日、東京国際フォーラム) 01-70
8. 馬場基芳、米谷新、黒田寛人、鈴木将之、庄司拓平、"フェムト秒レーザーと広帯域分光器による空中で 2  $\mu$ m 高分解能を有する高速 OCT、" 第 117 回日本眼科学会総会 (2013 年 4 月 4 日、東京国際フォーラム) 01-062
9. 鈴木将之、馬場基芳、庄司拓平、米谷新、黒田寛人、"高感度・高分解能 OCT のた

めの新光源としての超広帯域白色レーザー、" 第 117 回日本眼科学会総会 (2013 年 4 月 4 日、東京国際フォーラム) 01-06

10. 鈴木将之、馬場基芳、米谷新、黒田寛人、"フォトニック結晶ファイバー中におけるフェムト秒レーザーの自己位相変調を利用した広帯域光源生成" レーザー学会学術講演会第 33 回年次大会 (2013 年 1 月 31 日 姫路商工会議所・イーグレ姫路) 30pIV-17

〔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

鈴木 将之 (SUZUKI MASAYUKI)  
埼玉医科大学・医学部・准教授  
研究者番号：60622371

(3) 連携研究者

( )

研究者番号：