

研究課題別評価書

1. 研究課題名

分子光変調による超高繰り返し超短パルス光の発生

2. 氏名

桂川 眞幸

3. 研究のねらい

量子干渉をkeyとする(近共鳴)三準位系の光学過程は、電磁誘起透明化(Electromagnetically Induced Transparency)に始まり、超低速光伝搬や単一光子レベルでの量子コヒーレンス操作など、多くの魅力的な現象を生み出した。一方、このスキームを遠共鳴の三準位系に拡張すると、そこには、広帯域コヒーレント光の同軸発生や超短パルス光の生成など、光源としての様々な応用が開けてくる。

本研究は、この遠共鳴三準位系を基礎として、ほぼ完全にコヒーレントに振動/回転する高密度($\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)分子集団を形成すること、さらに、それを超高周波の光変調器として利用することで、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を生成することを目的とした。研究の開始時において、この原理に基づき、すでに、10 THz繰り返し、パルス幅 12 fs、ピーク強度 $> 2 \text{ MW}$ の超短パルス光列の発生技術が確立されていた。本研究ではこれを発展させ、この超高繰り返し超短パルス光列の光源としての性能を極限化することを目指した。具体的には、次の三点、高強度 10THz繰り返しモノサイクル光の発生、CEO (Carrier Envelope Offset), CEP (Carrier Envelope Phase) の制御、CW領域への拡張を柱として研究を進めた。

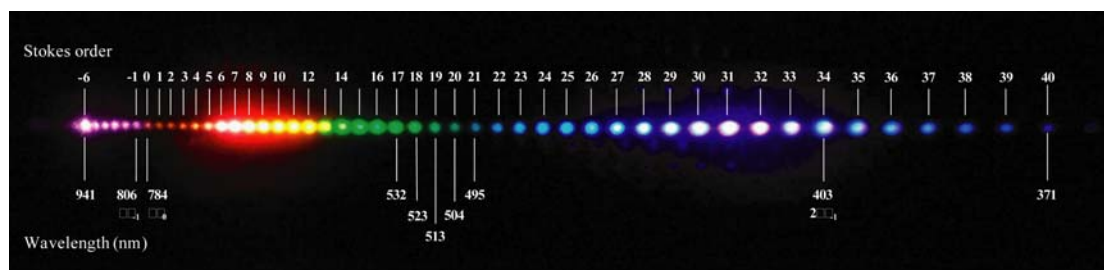
ここでの研究成果が礎となって、Rydberg励起状態の空間的量子局在、単色テラヘルツ波発生など、パルス光列の高精度高繰り返し性という軸での研究領域が切り開かれることを展望している。

4. 研究成果

研究の柱として掲げたテーマについて、それぞれ、その成果の要点を述べる。

1) 高強度 10THz 繰り返しモノサイクル光の発生

このテーマにおいては、生成される超短パルス光が高強度であるという特徴を失うことなく、極限的に短パルス化(モノサイクル)された超短パルス光を生成することを目指した。パルス幅を極限的に短くするためには、生成するコヒーレント光が1オクターブを遥かに超える帯域をもつものである必要がある。この要請を満たすために、ラマン遷移に近共鳴する二波長の基本波を用いる従来の方法から、さらに一方の倍波を加え三波長励起とする新しい方式を試みた。下図は、この方法で生成した 10 THz 間隔のラマンサイドバンド光スペクトルである。基本波の二波長(784 nm, 806 nm)を起点として広がるラマンサイドバンド光と基本波の一方の倍波(403 nm)を起点として広がるラマンサイドバンド光が互いに重なり合い、一オクターブを遥かに超える超広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルを生成できていることがわかる(論文リスト 1: Phys. Rev. Lett. **101** 243602 (2008))。



生成された広帯域ラマンサイドバンド光の一つ一つは、単色の光源として利用できるだけの

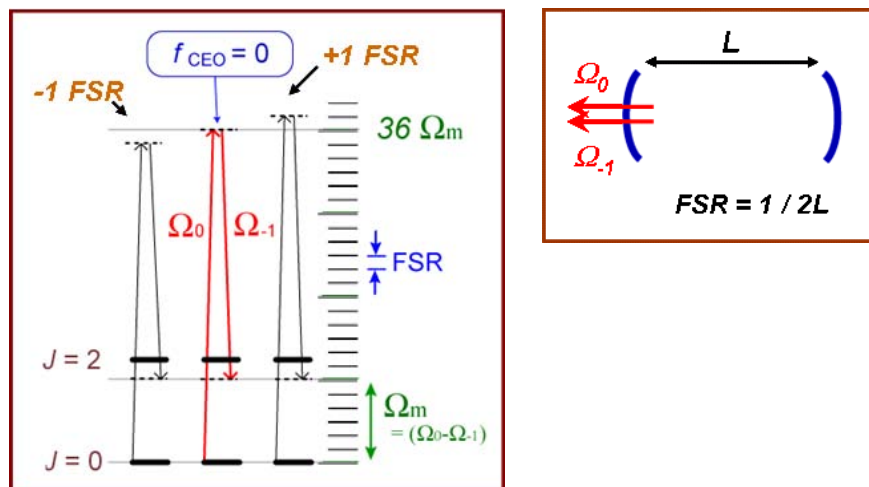
ビーム品質を持っている。また、すでに部分的に確認されているように、それらをフーリエ合成することで超短パルス光を形成することも可能と予想される。ただし、このように、極めて離散的で、かつ広帯域に渡るスペクトルから形成される超短パルス光の評価は、従来の方法では困難である。そこで、これらの要請に耐えうる新しい超短パルス評価法を本研究において開発した。一つは、FROG法の考えを変形した手法(T. Onose, M. Katsuragawa, *et al.*, in preparation)、もう一つは SPIDER 法の考えを変形した手法である(論文リスト 3: Optics Letters, **33**, 2809 (2008); 特許 2:特願 2008-076557)である。

これらの手法の開発によって、生成された広帯域ラマンサイドバンド光のスペクトル位相を定量的に評価することができるようになった。この成果をもとに、離散スペクトルに特有の新しいパルス圧縮法を見出した(T. Suzuki, M. Katsuragawa, in preparation; 特許 3:特願 2009-12229)。このパルス圧縮法は、高い光強度にも耐えうる光学部品で構成され、生成する超短パルス光源を様々な目的に利用する際に、現実的に有用な方法になると思われる。また、ラマンサイドバンド光の発生過程でスペクトル位相がどのように形成されるかを、理論と実験の双方から系統的に研究した。その結果、スペクトル位相が二光子離調、及び、励起強度をパラメータとしてデザイン可能であることを明らかにした。

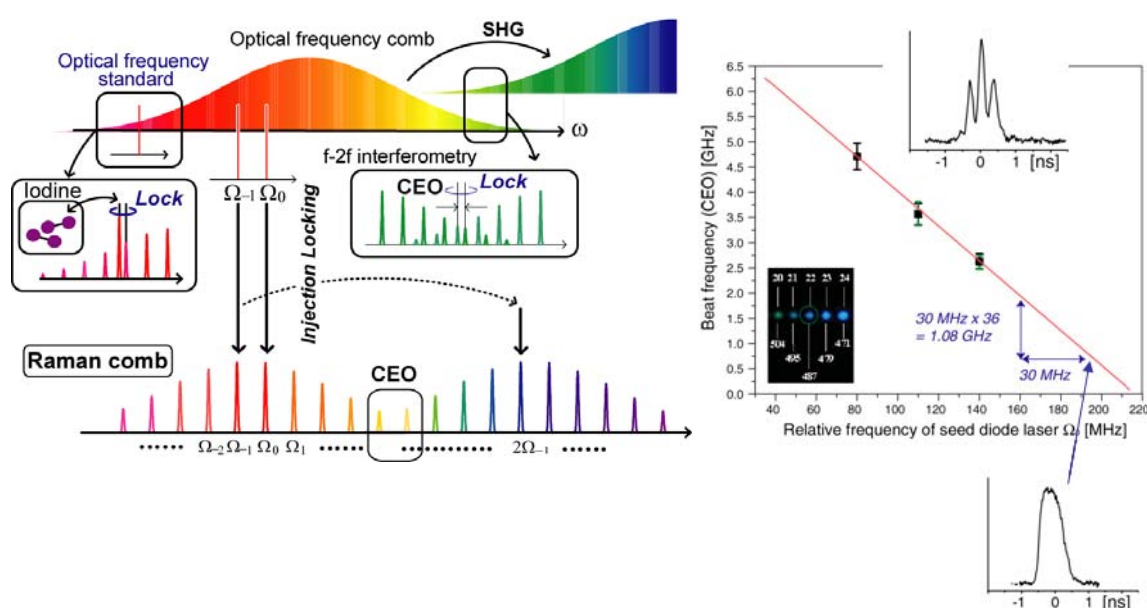
ラマンサイドバンド光の広帯域化とそのスペクトル位相の定量評価法を確立したので、ガラスプレート列空間位相変調器を用いた超短パルスの極限化に取り組んだ。少数のラマンサイドバンド光成分に対して、フーリエ変換限界のパルス形成が可能であることを確認した。この研究は、1オクターブを超えるラマンサイドバンド光の成分(50 コンポーネント)全てに対するスペクトル位相の制御に向けた研究の途上にある。

2) CEO (Carrier Envelope Offset), CEP (Carrier Envelope Phase) の制御

このテーマでは生成した超高繰り返し超短パルス光を単に短パルス化だけでなく、その光振幅波形をも制御することを目指した。そのためには、CEO、及び、CEP を制御することが要請される。まず、最初のステップとして、CEO 周波数を検出することを試みた。下図は、生成するラマンサイドバンド光の CEO 周波数が、離散的に自動制御される様子を示している。これは、励起に用いる二波長の励起光が単一のレーザー共振器から生成される(論文 5: Optics Express **15**, 1600 (2007); Optics Letters. **30**, 2421 (2005))ことによる。光周波数コムの研究において確立した、 $f - 2f$ 自己参照法のコンセプトを応用し、CEO 周波数を時間領域で検出した。下図に示されるように、CEO 周波数が確かに励起レーザー共振器の Free Spectral Range の整数倍に制御されることが確認された(論文リスト 1: Phys. Rev. Lett. **101** 243602 (2008); 特許 1: 特願 2008-076556)。



次に、この技術をさらに極限化し、CEO周波数制御の高精度化と、さらに、CEPを制御することを目指した。下図はその手法の概略を示している。光周波数標準(ヨウ素安定化YAGレーザー、絶対周波数安定度: $> 8 \times 10^{-13}$)に安定化されたフェムト秒レーザー光周波数コムを絶対周波数の“ものさし”とし、広帯域ラマンサイドバンド光にその絶対周波数安定度を転写する概略を表している。二波長の励起光を生成する種光(外部共振器制御半導体レーザー光)を光周波数コムに位相同期し、さらに、それをもとに生成した注入同期ナノ秒パルス励起光としてラマン型光コムを発生させた。種光に用いた二波長の外部共振器制御半導体レーザー光が、ともに 4 mHz以下の精度をもってフェムト秒レーザー光周波数コムに位相同期されることが確認された。また生成されたラマン型光コムのCEO周波数が、種光の光コムへの位相同期ループに組み込まれた局部発振器によって高精度に制御可能なことも明らかになった(Ultrafast Phenomena XIV, *in press*)。CEO周波数の制御精度を上げ、さらにCEPを制御することは、まだ研究の途上にある。



5. 自己評価

断熱ラマン過程を通して生成した広帯域ラマンサイドバンド光をもとに超高繰り返し超短パルス光を生成する技術を発展させ、搬送波位相が制御されたモノサイクル光を実用レベルの質をもって生成するという目標を立てた。この大目標に対して、さらに研究の柱を三つ立て、それぞれの方針に従って研究を進めた。

上記のように、いずれの柱においても、三年間の研究期間において、目標を全て達成するには至らなかったが、当初の計画にかなり近い流れに沿って研究を進めることができた。三年間の研究を通して、当初、立てた研究の狙いとそれへの進め方が、かなり適切に近いものであったということと、遠くない将来に、大目標に至ることができるという確信がもてた点が貴重な成果だと自己評価している。

6. 研究総括の見解

本研究の目的は、遠共鳴三準位系技術を基礎として、ほぼ完全にコヒーレントに振動/回転する高密度($\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$)分子集団を形成すること、さらに、それを超高周波の光変調器として利用することで、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を生成することである。主たる成果は次の3点である。

(1) 実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列において、一オクターブを遥かに超える超広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルの生成。

(2) 離散的・広帯域に渡るスペクトルから形成される超短パルス光の評価法、並びに、広帯域ラマンサイドバンド光スペクトルの位相定量評価法の確立。

(3) 上記評価法により、離散スペクトルに特有の新しいパルス圧縮法の開発。

研究成果は、6編の原著論文、21件の招待講演に纏められ、この研究結果に基づく特許3件を出願している。また、(1)の成果は、高く評価され論文誌(Phys. Rev. Lett.)の表紙を飾っている。

理論的で独創的な研究手法により、超高周波の光変調器を開発し、実用レベルの超高繰り返し超短パルス光列を得るという成果を得た。ここでの研究成果が礎となって、Rydberg 励起状態の空間的量子局在、単色テラヘルツ波発生など、パルス光列の高精度高繰り返し性という軸での研究領域が切り開かれることが期待される。更に、シンセサイザーのように、“光振幅波形”を制御した超短パルス列を単一周波数レーザー光から組み立てる新奇光源の実用化も望まれるところである。

7. 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)

- T. Suzuki, M. Hirai, and M. Katsuragawa, Octave-spanning Raman comb with carrier envelope offset control, Phys. Rev. Lett. Vol. 101, No. 24, 243602 - 243605 (2008). **Selected as a Cover page**
- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Generation of octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, Ultrafast Phenomena XIV. (*in press*) *Invited Paper*
- T. Suzuki, N. Sawayama, and M. Katsuragawa, Spectral phase measurements for broad Raman sidebands by using spectral interferometry, Optics Letters Vol. 33, No. 23, 2809–2811 (2008).
- R. Tanaka, T. Matsuzawa, H. Yokota, T. Suzuki, Y. Fujii, A. Mio, and M. Katsuragawa, Stable confinement of nanosecond laser pulse in an enhancement cavity, Optics Express Vol.16, No. 23, 18667–18674 (2008).
- T. Onose and M. Katsuragawa, Dual-wavelength injection-locked, pulsed laser with precisely predictable performance, Optics Express Vol. 15, No. 4, 1600–1605 (2007).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 3件

国内特許: 3件(未公開)

(3) 解説論文

- 桂川真幸: ラマン過程の断熱操作と超短パルス光発生制御技術への展開, 応用物理、2月号、(解説)、Vol. 76, No. 2, 125 – 132 (2007).
- 桂川真幸: レーザー光の新しい極限化軸と光科学, レーザー研究(レーザー学会誌)1月号、「若手研究者の描く光科学研究の展望」特集号、(解説)、Vol. 37, No. 1, 7 – 10 (2009).

(4)招待講演(国際会議)

- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, 39-th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, PQE-2009, Snowbird, Salt Lake City, Utah, USA, 4-8 January (2009). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, The 8th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, AISAMP2008, the University of Western Australia, Perth, Australia, 24-28 November (2008). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, F. L. Hong, M. Arakawa, and T. Suzuki: Generation of octave-spanning Raman comb stabilized to an optical frequency standard, Ultrafast Phenomena 2008, Stresa, Lago Maggiore, Italy, June 9-13, (2008). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, T. Suzuki, T. Hirai, M. Arakawa, and F. L. Hong: Adiabatic manipulation of Raman process and its application to novel coherent light source, First International Symposium on Interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2008), Summary pp. 3, IL3, EPOCHAL TSUKUBA (Tsukuba International Congress Center), Tsukuba, Japan, March. 13-14(2008). *Invited Paper*
- M. Katsuragawa, T. Suzuki, F. L. Hong, and M. Suzuki: Octave-spanning Raman comb generation with absolute phase control, 38-th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics, PQE-2008, Snowbird, Salt Lake City, Utah, USA, 6-10 January (2008). *Invited Paper*

(5)コロキウム講演 (Invited lecture)

- 桂川眞幸: 量子コヒーレンスの断熱操作と超短パルス光発生への応用、分子研コロキウム、自然科学研究機構 分子科学研究所、2008年3月26日。招待講演

(5)受賞等

- 2007年11月 科学技術の「美」パネル展における優秀作品への表彰; 科学技術館
出品者: 桂川眞幸、鈴木隆行
作品名: 「冷たい水素から放たれる50色のレーザー光」
- 2008年12月 研究成果図が、学会誌表紙図案に選定される。
Physical Review Letters Vol. 101 (2008), No.24

(6)製作装置一覧と共同研究

1. 二波長同時安定化外部共振器制御半導体レーザーシステム
2. SPIDER
3. FROG (農工大三沢教授)
4. 窒素温度 Cryostat (東北大学 理学部工場)
5. オルソ・パラ変換器
6. GHz ビート光注入同期レーザー
7. 光周波数標準と光コム (産総研 周波数標準 G 洪鋒雷博士)

(B)その他の主な成果

なし