

レーザーコンパス

超短パルスレーザーと超高速分光
——ますますの発展を期待する

塩谷 繁 雄*

Shigeo SHIONOYA*

モード同期レーザーによるピコ秒パルスの発生が初めて報ぜられたのは1965年、すなわちレーザーの出現後5年を経た時点で、今年で丁度20年になる。この間における超短パルスレーザーの開発と、それを使つての超高速分光の研究の発展は、他のレーザー科学の諸分野の発展と同様、大へん華やかである。超短パルスの発生はレーザー光のコヒーレンス性に直接基づいている。短パルス性ということは単色性、指向性と共にレーザー光の基本的特徴の一つで、その応用はレーザー科学の重要分野の一つである。

さて20年は長いようでもあり短いようでもあるが、一区切りの年月であることは確かであり、これまでを振り返り今後を展望するよいチャンスである。20年前の1965年頃、私の研究室では $0.1\mu\text{s}$ のフラッシュランプを使って時間分解発光スペクトルの測定をやっていた。これは当時としては最先端の測定技術だった。ピコ秒レーザーの出現は時間分解能を一挙に4~5桁あげることが可能にした。最近では20年前のフラッシュランプの実験と同様の精度でピコ秒の時間分解能での実験が可能となっている。これを考えるとやはり隔世の感がある。

超短パルスレーザーとその応用の20年の発展の軌跡を少し眺めてみよう。1965年からしばらくの間はガラスレーザーと可飽和色素との組み合わせによる、すなわち受動モード同期による単

発振しかできなかった。70年代に入ってYAGレーザーが使えるようになり、やがて繰返し発振が可能になった。同時に色素レーザーや光パラメトリック効果を利用したの波長可変が可能になった。また強制モード同期用の音響光学素子が開発され、アルゴンレーザーなどで連続モード同期が行われるようになった。こうしてピコ秒レーザーはようやく使い物になるレーザーとしての体裁が整った。

ピコ秒レーザーを使つての分光研究はしかし60年代後半に早くも開始されている。この時期におけるBellのRentzepisらのパイオニアワークは大いに評価に値する。1969年夏アメリカで開かれたルミネッセンス国際会議でRentzepisのアズレンのピコ秒分光の招待講演を聞いた。当時ピコ秒分光の手段を自分の光物性研究に取入れられないか、と考えてRentzepisの論文を読んでいた私はこの講演に大いに刺激され、そのすぐ後Bell研にRentzepisを訪ねた。帰国後1年半位さらにRentzepisらの発表をフォローしていたが、ピコ秒分光が将来確実に重要な分光法に発展するであろうという感じがますます強くなったので、意を決して私の研究室でもこれを始めることにした。

70年代前半には上記のピコ秒レーザーの性能向上と相まってピコ秒分光は急速に発展し、多くの研究グループにより多種多様な物質を対象

* 東京大学名誉教授 (〒168 東京都杉並区浜田山1-26-16)

* honorary professor of Tokyo University (1-26-16, Hamadayama, Suginami, Tokyo 168)

として華やかに展開された。私の研究室の半導体のピコ秒分光研究もこの世界的な動きにうまく位相を合わせて乗ることができ、大いに発展した。以後昨年停年で研究室を閉じるまで、半導体の励起子ポラリトン、励起子分子や高密度電子-正孔プラズマについて、幸いにしてピコ秒分光ならではの面白い結果を出すことができた。1971年にピコ秒分光を思切って始めたのはまさしく正解だった。

より短いパルスの発生を、という研究では1974年ローダミン6 Gの色素レーザーの受動モード同期によるサブピコ秒パルスの発生が Bell の Shankらにより報じられた。1981年にはやはり彼らにより衝突パルスモード同期という新たに工夫された方法で90fsのパルスの発生が報じられ、いよいよフェムト秒時代の幕明けとなった。このパルスを光ファイバーとグレーティングの組合わせで圧縮することにより30fsのパルスがつけられた。昨年末にはこの方法による超短パルス発生レコードとして12fsという値が報じられた。ローダミン6 Gからの赤色光波のこの時間内における振動の回数はわずかに6回であるから、これはまさに極限的短パルスである。

ピコ秒レーザーとピコ秒分光を対象としたピコ秒現象国際会議が1978年にアメリカで初めて開かれ、以後2年毎に量子エレクトロニクス国際会議のサテライトとして開かれて来た。3回目の82年の会議は丁度上記のフェムト秒の報告が出た直後で、会議はShankの「ピコ秒からフェムト秒の時間領域へ移る」という題名の招待講演から始まり、フェムト秒パルスが会議の最大の話題になった。これでピコ秒現象という一時華やかだった名称はすっかり色あせてしまい、昨年の4回目の会議は超高速現象会議と改名された。この一連の会議での発表件数をみると、第1回は66件だったが、第4回は135件と倍増し、この分野の着実な発展が裏付けられる。

さて超短パルスレーザーと超高速分光の分野は今後どうなるであろうか、私としては当然ながらそのますますの発展を期待している。超短

パルス発生という点では上記のように可視域ではほぼ極限に到達している。さらにずっと短いパルスを欲すれば、レーザーをずっと短波長化せねばならない。しかしそれは容易なことではなく、いつそのようなことが実現するか、安易な予測はたてられない。当面の問題は目下の所このような超短パルスがローダミン6 G色素レーザーからの赤色パルスに限られているということである。ローダミン6 G以外の色素がいろいろ開発されて、せめて可視全域でフェムト秒パルスが使えるようにならないものであろうか。超短パルスレーザーといえばローダミン6 Gしかないという時代を早く脱却したいものである。

それはともかくとして、これからしばらくの間は上記の超短パルスレーザーの普及と高出力化が行われよう。それによる超高速緩和現象の研究のより一層の発展を期待したい。それは極限的超高速分光、あるいは極限的超短時間物性とも呼ぶべき分野で、何か新しい物理が拓かれることを期待したい。

一方従来からの波長可変ピコ秒パルスを使つての分光研究もますます発展し普遍化することを期待したい。これに関しレーザー自体に望まれることは、より安定化、高出力化、広域波長可変化である。また測定系に関してはストリークカメラなどがもっと使いやすくなり高性能化されることが望まれる。上述の12fsの赤色短パルスのスペクトル端は必然的に $\sim 2400\text{cm}^{-1}$ も広がっている。そこで特定の励起状態を選択的に励起し、その緩和の様相を探る、というような分光研究にこのような短パルスは不必要で、高性能の広域波長可変ピコ秒パルスが重要である。今後より多くの研究者がより多種多様の物質を対象としてピコ秒分光を発展させ、これが分光のふつうの一手段となることを期待したい。これによりこの分野の研究者が超高速現象会議にだんだん集らなくなるようになって、それはそれで結構なことである。

一つにしたいことは、これまでの研究は主として励起状態のエネルギー緩和や光化学変化に関するもので、コヒーレント過渡分光の手段に

よる励起状態の超高速位相緩和の研究は未だ大へん少く、今後はこれが重要だということである。私達は最近励起子ポラリトンと相互作用の強い存在中心の系について位相緩和の研究を行い、このような研究の端緒を開いたつもりであるが、このような研究が今後大いに進み、高速位相緩和の光物性物理が発展することを期待したい。

もう一つの要望は超高速オプトエレクトロニ

クスの発展である。最近半導体レーザーによる超短パルス発生や超短パルスによる超高速スイッチの開発が進んでいる。一方電子デバイス的高速化も進み、GaAs系超格子によるHEMTなどが開発されている。今後この二つの分野が一体化し、発展していくことを期待したい。

以上、巻頭言としては巻頭言らしい格調の高さの大へん乏しいものとなってしまったが、御容赦願いたい。