

平成18年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究終了報告書

◆記入に当たっては、「平成18年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究終了報告書記入要領」を参照してください。

ローマ字	IMASAKA TOTARO					
①研究代表者氏名	今坂 藤太郎		②所属研究機関・部局・職		九州大学大学院・工学研究院・教授	
③研究課題名	和文	極限の多色・超短パルスレーザー光の発生とその最先端科学技術への応用				
	英文	Generation of Multi-Color Ultrashort Laser Pulse and Its Application to the-State-of-the-Art Technologies				
④研究経費 金額単位：千円	平成13年度	平成14年度	平成15年度	平成16年度	平成17年度	総合計
	28,600	19,700	26,900	11,400	0	86,600
⑤研究組織（研究代表者及び研究分担者） *平成18年3月31日現在						
氏名	所属研究機関・部局・職	現在の専門	役割分担（研究実施計画に対する分担事項）			
今坂 藤太郎	九州大学・工学研究院・教授	応用分析化学	四波ラマン混合に関する基礎研究、連続発振超短パルスレーザーの開発、並びに研究の統括			
内村 智博	九州大学・工学研究院・助手	応用分析化学	パルスレーザー励起超短パルスレーザーの開発			
⑥当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）						
<p>申請者は、1989年に虹色に輝くレーザー光を発見し、これを Rainbow Stars と名付けた。また、これが多数の回転ラマン光の発生によるものであることを明らかにした。不確定原理からわかるように、時間幅と周波数幅を同時に小さくすることはできない。すなわち、超短パルス光発生には、広い周波数領域の光が不可欠である。申請者は、フェムト秒チタンサファイアレーザーを用いて、紫外から近赤外の波長領域において40本以上の回転ラマン線を等周波数間隔で発生することに成功した。これらの発振線の位相が同期して超短パルス光が発生することは理論的に示したが、まだ実験的には証明していない。</p> <p>本研究では、以下の研究により、極限の多色・超短パルス光が発生することを実験的に証明すると共に、この多色・超短パルスレーザーの最先端科学技術への応用について研究する。</p> <p>1. 高繰り返し超短パルスレーザーの発生 特定の波長に調整した単色な連続発振レーザーを、水素を充填した共振器に集光し、17 THz(オルト水素)並びに10 THz(パラ水素)の高繰り返し超短パルス光を発生させる。パルス幅の測定には、新方式のオートコリレーターを用いる。</p> <p>2. 高出力超短パルスレーザーの発生 フェムト秒チタンサファイアレーザーを光源として用い、極限の超短パルスレーザー光を発生させる。この場合には、レーザーの尖頭出力が大きく、自己収束、自己位相変調などの非線形光学効果が誘導ラマン効果より優先的に発生する。そこで、水素を冷却し、パラ水素に変換して、超短パルス光を発生する方式を検討する。</p> <p>3. 多色・超短パルス光の応用技術の開発 発生した多色・超短パルス光の応用技術を開発する。たとえば、高繰り返し超短パルス光を用いる光通信技術を開発する。また、多色レーザーディスプレイの応用技術についても研究を行う。一方、発生した超短パルス光を固体表面に集光したときに生じる硬X線などを用いる計測技術についても研究する。</p>						

⑦研究成果の概要 (研究目的に対する研究成果を必要に応じて図表等を用いながら、簡潔に記入してください。)

1. 二色誘導ラマン現象における位相同期の証明

図1, 2に示すように、パルス幅100 fsのチタンサファイアレーザーを用いて4本の回転ラマン線が発生させ、そのパルス幅(30 fs)を測定することにより、これらの位相が同期して単一超短パルス光が発生することを示した。すなわち、30 fsの光パルス発生には、波線(赤)のスペクトル幅以上の光波の位相が同期している必要があることから、二色誘導ラマン現象において自動的に位相が同期し、超短パルスが発生することを明らかにした。

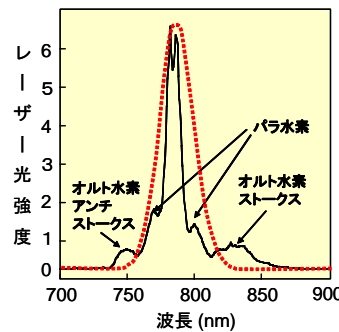


図1 スペクトル

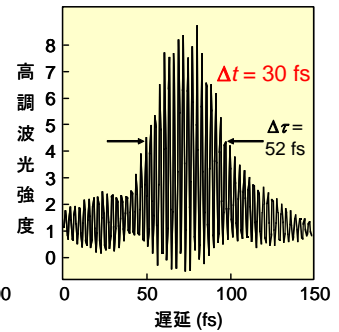


図2 パルス波形

2. 高繰り返し超短パルスレーザーの発生

図3に示すラマン共振器に、連続発振チタンサファイアレーザーを集光し、オルト水素の回転ラマン光を発生させた。光電子増倍管の2光子吸収を利用するオートコレクターを試作し、その過渡波形を測定したところ、図4に示すように17 THzのビート波形が観測された。これは世界最高速の光強度変調器であり、「分子光学変調器」と名付けた。なお、パラ水素のラマン光発生、インパルス光発生については、平成17年度に成果が得られた(「今後の展望等」参照)。



図3 ラマン共振器

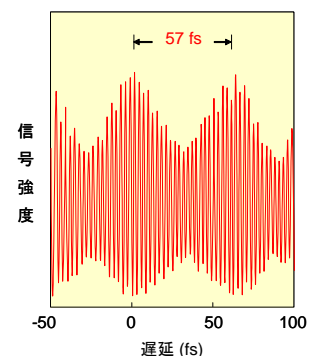


図4 パルス波形

3. 高出力超短パルスレーザーの発生

ラマンセルを2台直列に用いる方式により、17 fsの光パルスが発生させた。一方、パラ水素(587 cm^{-1})よりラマンシフト周波数が小さな重水素(179 cm^{-1})を用い、液体窒素温度に冷却することにより、数100 fsの励起光を用いても単一超短パルスが発生できることを理論的に予測し、実際に22 fsの光パルスを得た。一方、チタンサファイアレーザーの第二高調波(紫外光)の過渡ラマン現象を用いる新方式を考案し、7 fsの光パルス発生を示唆する結果も得た。図5は、自己回折周波数分解光ゲート(SD-FROG)法に基づくパルス幅計測装置を開発し、位相/時間波形を測定したときの生データである(矢印の方向に2種類のチャープがあることが示されている)。

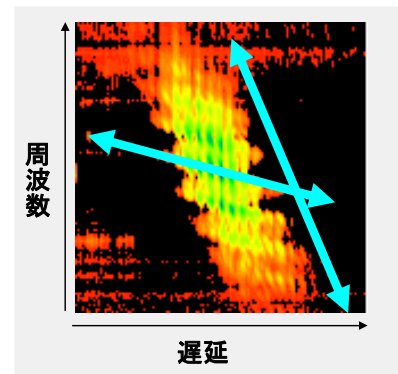


図5 SD-FROG法による測定

4. 多色・超短パルスレーザーの応用技術の開発

虹色ディスプレイへの応用

多色レーザーを用いる虹色ディスプレイについては、学部1年生を対象とした創成型科目「君はピカソを超えられるか？」において、多数の作品を制作した。図6は、空間位相変調フィルターを利用したディスプレイの一例である。さらに、虹色レーザー・ディスプレイ装置の製品化についても検討した。

科学計測への応用

超短パルスレーザーの科学計測への応用に関しては、X線分光の他、図7のような固体表面に光を集光したときに発生するアブレーション現象を利用するレーザー加工、環境汚染物質(ダイオキシン)の超高速光イオン化質量分析などについて検討した。とくに、後者では0.6 pgの検出限界が得られ、日本工業規格(JIS)で制定されている方法に匹敵する感度を得られることがわかった。



図6 虹色ディスプレイの作品例

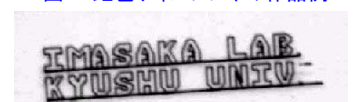


図7 レーザー加工の例

⑧特記事項 (この研究において得られた独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、当該研究分野及び関連研究分野への影響等、特記すべき事項があれば記入してください。)

1. 極限超短パルスの発生について

図1, 2において示したように、本現象では位相が自動的に同期する。申請者は、すでに証明されていた位相整合と位相同期は“同一である”ことを長年主張して来たが、一般には認知されなかった。今回、これが実証されたことになる。

図8に示されているように、フェムト秒チタンサファイアレーザーを用いれば、紫外から近赤外に亘って多数の回転ラマン線が発生できる。もし、上記のように位相が自動的に同期するならば、スペクトルをフーリエ変換して求められた図9のように、1 fs以下の光パルスが発生していたことが強く示唆される。すなわち、1 fs以下の極限超短パルス(光波を用いて発生できる最小の光パルス)が発生されていたことになる。言い換えると、本研究において前人未到のアツ秒“光”パルスが発生できたことを証明したことになる。



図8 ラマン光のスペクトル写真

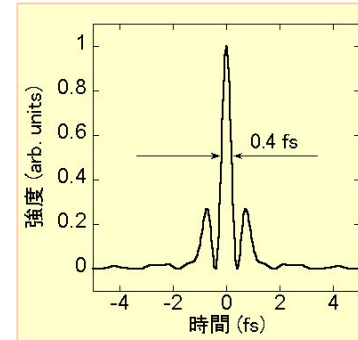


図9 計算により求めたパルス波形

2. 極限超短パルス光発生の実験

実際に1 fs以下の光パルス発生を実証するには、1 fs以下の時間分解能を有するパルス幅計測装置を開発する必要がある。申請者は、図10に示す実験装置により、極限の超短パルス光を発生させ、分子ビーム中に導入したNO、Xe等のイオン化(非線形光学効果)に基づいてパルス幅を計測する方法を提案している。「今後の展望等」で記述しているように、すでに本装置の一部を製作し、フェムト秒レーザーのパルス幅が測定できることを示している。この方式は、上記の気体の代わりに目的とする試料を導入することにより、“直ちに”超高速光イオン化質量分析が行える利点がある。

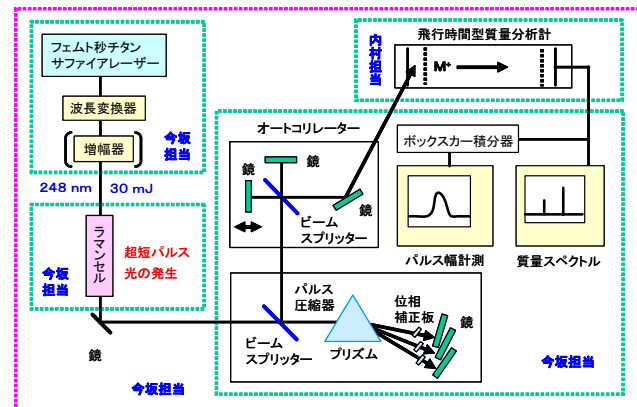


図10 超短パルス光発生・計測装置

3. 開発した技術の商品化

本研究成果については、ベンチャー起業を目指し、九州大学から企業の発起人となる許可を得ている。また、事業計画における損益分岐点が明確でなく、企業を設立するには至っていないが、製造・販売企業の(株)石川鉄工所と特許権等実施許諾契を締結し、虹色レーザー装置の市販化を開始している。図11は、その販売促進用のパンフレットである。一方、本成果を基に、別予算で図12のような虹色レーザーディスプレイ装置を完成させている。これを用いれば、小学生でもパソコンにより1

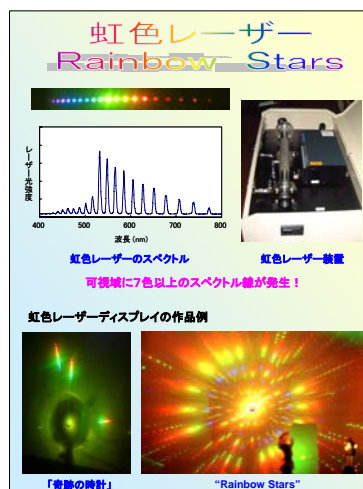


図11 販促進用パンフレット



図12 虹色ディスプレイ装置

~2分間で虹色ディスプレイを制作できる。そこで科学啓蒙活動並びに事業化に向けて検討を進めている。現在、市場規模が大きな3原色レーザー(特許出願中)を開発し、大型表示素子への応用を計画している。また、超短パルス光発生装置に関して、米国の企業と実用化について協議している。

⑨研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(掲載が確定しているものを含む。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会、特許等の発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。)

1. 原著論文

- 1) Emission Spectrum of Hard X-Rays, Generated from Ion, Copper, and Molybdenum Targets by Subpicosecond KrF Laser Pulse, N. Takeyasu, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Appl. Phys. Lett., 78(9), 1195-1197 (2001).
- 2) Elemental Analysis Using Hard X-Ray Emission from a Laser-Produced Plasma, Induced by A Femtosecond Laser Pulse, N. Takeyasu, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Rev. Sci. Instrum., 72(19), 3940-3942 (2001).
- 3) Characterization of Phosphor Materials for Use in A Plasma Display Panel by Time-Resolved Vacuum-Ultraviolet Laser Spectrometry, Y. Hirakawa, K. Nakamura, T. Imasaka, Anal. Chem., 73(22), 5472-5476 (2001).
- 4) Generation of Highly-Repetitive Optical Pulses Based on Intra-Cavity Four-Wave Raman Mixing, K. Shinzen, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Phys. Rev. Lett, 87(22), 223901-4 (2001).
- 5) Extremely Ultra-Short Pulsed Laser Generated by Four-Wave Raman Mixing in Hydrogen Molecules for Chemical Analysis and Communication Applications, Y. Hirakawa, K. Tohnai, T. Imasaka, Anal. Sci., 17 Supplement, i1165-i1167 (2001).
- 6) A Multi-Pass Hydrogen Raman Shifter for the Generation of Broadband Multifrequencies, L. L. Losev, Y. Yoshimura, H. Otsuka, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Rev. Sci. Instrum., 73(5), 2200-2202 (2002).
- 7) Elemental Analysis of Stainless Steel Using Hard X-Ray Emission Arising from A High-Density Plasma Produced by An Intense Femtosecond KrF Laser Pulse, N. Takeyasu, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Appl. Spectrosc., 56(9), 1161-1164 (2002).
- 8) Resonance-Enhanced Multiphoton Ionization Mass Spectrometry Using a Two-Color Laser Beam Generated by Stimulated Raman Scattering, T. Uchimura, H. Kanda, T. Imasaka, Anal. Sci., 19(3), 387-390 (2003).
- 9) Effect of Laser Pulsewidth on the Generation of Multi-Color Laser Emission by Stimulated Raman Scattering and Four-Wave Raman Mixing in a KGd(WO₄)₂ Crystal, M. Matsuse, T. Deguchi, H. Ohtsuka, N. Takeyasu, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Optics Comm., 223(4-6), 411-416 (2003).
- ⑩ Phase Locking in Four-Wave Raman Mixing for Generation of An Ultrashort Laser Pulse, H. Otsuka, T. Uchimura, T. Imasaka, Opt. Lett, 29(4), 400-402 (2004).
- 11) Generation of An Ultrashort Optical Pulse by Four-Wave Raman Mixing in Deuterium Cooled at 77 K, H. Otsuka, S. Zaitzu, T. Uchimura, T. Imasaka, Appl. Phys. B, 78(6), 745-751 (2004)
- 12) Efficient Generation of Rotational Stimulated Raman Emission Arising from the S₀(0) Transition of Cooled Deuterium in the Visible Region, H. Otsuka, T. Imasaka, Optics Comm., 237(4-6). 417-422 (2004).
- 13) Selective Multiphoton Ionization of Coplanar Polychlorophenols Using 266-nm Laser Emission by Gas Chromatography/Mass Spectrometry, T. Uchimura, K. Sakai, T. Imasaka, Anal. Chem., 76(18), 5534-5538 (2004).
- 14) Self-Compression of A Femtosecond Pulse Due to Raman Coherence of Molecular Rotations, S. Zaitzu, Y. Kida, T. Imasaka, Phys. Rev. A, 70(3), 031801 (2004).
- 15) Generation of A Sub-20-fs Single Optical Pulse by Four-Wave Raman Mixing Using Two Raman Cells Filled with Molecular Hydrogen, Y. Kida, M. Matsuse, S. Zaitzu, T. Imasaka, Optics Lett., 29(23), 2809-2811 (2004).
- 16) Autocorrelator Consisting of A Solar-Blind Photomultiplier for Use in the Near-Ultraviolet Region, K. Ihara, S. Zaitzu, T. Imasaka, Rev. Sci. Instrum., 76, 026109 (2005).
- 17) Stimulated Raman Scattering in the Boundary Region between Impulsive and Nonimpulsive Excitation, S. Zaitzu, Y. Kida, T. Imasaka, J. Opt. Soc. Amer. B, 22(12), 2642-2650 (2005).
- ⑬ Molecular-Optic Modulator, K. Ihara, C. Eshima, S. Zaitzu, S. Kamitomo, K. Shinzen, Y. Hirakawa, T. Imasaka, Appl. Phys. Lett., 88(7), 074101 (2006).
- 19) Pulse Compression Based on Coherent Molecular Motion Induced by Transient Stimulated Raman Scattering, Y. Kida, T. Nagahara, S. Zaitzu, M. Matsuse, T. Imasaka, Opt. Express, 14(7), 3083-3092 (2006).
- 20) Efficient Generation of Vibrational Stimulated Raman Emission in the Ultraviolet Region Using A Femtosecond Pump Beam, F. Kira, M. Matsuse, S. Zaitzu, T. Imasaka, Opt. Commun., in press.

- ⑨研究成果の発表状況（続き）（この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文（掲載が確定しているものを含む。）の全著者名、論文名、学協会誌名、巻（号）、最初と最後のページ、発表年（西暦）、及び国際会議、学会、特許等の発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。）

2. プロシーディング等（招待講演）

- 1) “Rainbow Stars” A Multifrequency Laser for Generation of Ultrashort Optical Pulse, T. Imasaka, Proc. SPIE, 6050, 605001 (2005).

3. 総説・解説等

- 1) Rainbow Stars: その後、一回折光学化学センサーへの応用、今坂藤太郎, ぶんせき, (2), 93-96 (2001).
- 2) 超音速分子ジェット分析法の変遷と今後の展望, 今坂藤太郎, ぶんせき, 号外, 117-119 (2002).
- 3) レインボースターズー虹色に輝くレーザーディスプレイ, 今坂藤太郎, 九州大学研究紹介, (20), 481-1-2 (2003).
- 4) Generation of Multi-Color Ultrashort Laser Pulse and Its Application to the-State-of-the-Art Modern Technology, T. Imasaka, Annual Report of Faculty of Engineering, Kyushu University, 74-76 (2003).
- 5) Generation of A Multi-Color Ultimately-Short Optical Pulse and Its Application, T. Imasaka, Annual Report of the Faculty of Engineering, Kyushu University, 47-55 (2004).
- 6) High-Technology Laser Research Core, T. Imasaka, Kyushu University Research Core, 25 (2005).
- 7) 極限レーザーリサーチコア, 今坂藤太郎, 九州大学リサーチコア研究紹介, 51-52 (2005).
- 8) Fusion of Humanity and Technology -From Education in Undergraduate and Graduate Schools, Development of High Technology, to Establishment to Venture Business-, T. Imasaka, Annual Report of the Faculty of Engineering Kyushu University 2004, 68-69 (2005).
- 9) Rainbow Stars-極限の超短パルス光発生に挑む, 今坂藤太郎, ぶんせき, (10), 583-586 (2005).
- 10) ラマン混合を用いる極限超短パルス光の発生, 今坂藤太郎, フェムト秒テクノロジー[基礎と応用]10 章, 87-95 (2005). 化学同人
- 11) Generation of An Ultimately-Short Optical Pulse and Its Application, T. Imasaka, Annual Report of the Faculty of Engineering Kyushu University 2005, in press.

4. 特許

国内

- 1) 多色・超短パルスレーザー装置: 今坂藤太郎: 特願平 4-200707: 平成 4 年 7 月 3 日出願: 特許第 3218706 号: 平成 13 年 8 月 10 日登録
- 2) 超短パルスレーザー用ピンホール板: 今坂藤太郎: 特願平 10-169785: 平成 10 年 6 月 17 日出願: 特許第 3442656 号: 平成 15 年 6 月 20 日登録
- 3) 超高速光通信のための光ファイバーシステム: 今坂藤太郎: 特願 2000-205261: 平成 12 年 7 月 6 日出願: 特許第 3764032 号: 平成 18 年 1 月 27 日登録
- 4) プリズムを用いるマルチパスラマンセル: 今坂藤太郎: 特願 2001-235978: 平成 13 年 8 月 3 日出願
- 5) ラマン共振器を用いる超短パルス光発生方法及びその装置 (PCT 国際特許): 今坂藤太郎: PCT/JP00/00535: 平成 13 年 7 月 31 日出願
- 6) 三原色レーザー: 今坂藤太郎: 特願 2005-198240: 平成 17 年 7 月 7 日出願
- 7) 分子光学変調器: 今坂藤太郎: 特願 2005-364278: 平成 17 年 12 月 19 日出願

国際

- 1) Method and Apparatus for Generating Ultrashort Optical Pulses Through Use of A Raman Resonator, PCT/JP00/00535, Totaro Imasaka, August 30, 2001: Patent NO. 2237957, October 10, 2004 (Russia), Patent: U.S. 6,603,778, UPC.
- 2) Molecular Optical Modulator, Provisional Application, Totaro Imasaka, US60/645,385, January 21, 2005.

- ⑨研究成果の発表状況（続き）（この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文（掲載が確定しているものを含む。）の全著者名、論文名、学協会誌名、巻（号）、最初と最後のページ、発表年（西暦）、及び国際会議、学会、特許等の発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。）

5. アウトリーチ活動：教育・科学啓蒙活動への応用

- 1) 「虹色レーザーの開発とその応用」、産学連携センターデザイン総合部門・施設設備利用促進セミナー、平成17年7月15日
- 2) 「大学の教育と研究－虹色レーザーの研究例を通して－」、修猷館高校・出前講義、今坂藤太郎、平成17年10月22日
- 3) 「創成型科目－君はピカソを超えられるか？－が目指すもの」、工学・工業教育研究講演会第54回年次大会、今坂藤太郎、他、平成18年7月28日受理済



図13 虹色レーザーショー（創成型科目）に集まった観客

6. その他

受賞

- 1) 日本分析化学会 学会賞（平成14年度）「超音速分子ジェット及び近赤外レーザー分光分析の開発と応用（受賞は本課題の内容を含む）」今坂藤太郎
- 2) 日本科学未来館 館長賞（平成14年度）「レインボースターズ－虹色に輝くレーザーディスプレイ－」応用分析化学研究室（今坂研究室）

マスコミによる報道など

- 1) 平成16年8月に実施した公開講座で虹色レーザーディスプレイ実演の様子がTNCからTV放映



- 2) "Rainbow Stars: A Spectrum of Possibilities", Sandra Katzman and Elizabeth Zubritsky, *Analytical Chemistry*, 357 A, July 1, 2001
- 3) 「虹色レーザー」朝日新聞、平成16年5月26日
- 4) 「虹色レーザーの研究と超短パルスレーザーの開発」『日本を元気にする！基礎科学』：小柴昌俊、平成16年8月16日
- 5) 「九大理系研究室」嘉幡久敬著、南方新社、2005年4月1日

