特 集

超 高 速 現 象 雑 感

矢 島 達 夫*

(1987年10月6日 受理)

Some Remarks on Ultrafast Phenomena

Tatsuo YAJIMA*

(Received October 6, 1987)

A free-style essay is presented on such subjects as a historical view of ultrashort pulse generation, coherence of ultrashort light pulses, and studies of ultrafast phenomena not only by ultrashort light pulses.

Key Words: Ultrafast phenomena, Ultrashort light pulses, Coherence

1. はじめに

1988年には我が国で初めて超高速現象国際会議が開催されることになった。今回の特集号は、この会議に因んで、この会議を盛立てることを一つの目的として企画されたもののようである。私がこの分野の研究に比較的長く携っていること及びこの会議で日本側のプログラム委員長 (co-chairman) の一人を務めることになったことによるのか、この主題に関して自由な形式で何か書いて欲しいと依頼された。そこで、この折角の機会を利用して頂いて、ありきたりの解説ではなく、普段考えていることを自由に述べさせて頂こうと思う。

私事になるが、私のレーザー研究は1960年のレーザー登場直後から始まり、そして最初の論文 (1962年) はレーザーパルスを使って初めて

高速度写真を撮影したという“超高速現象”に関するものであった¹⁾。爾来25年有余の間、多かれ少かれ光パルスと超高速現象の問題に関わって今日に至っている。この分野の魅力の一つは、光自体及びその発生、測定、応用のすべての面に亘って、量子エレクトロニクス全般に通ずる非線形とコヒーレンスという二大基礎概念が深く関わっていることにある。そのために極めて多彩で興味ある課題が展開される。これらの諸問題に関わる間に、この分野の諸概念や発展の様相の捉え方、研究に対する姿勢などについて私なりの考え方ややり方が段々と固まってきた。そして他の方々にそれを伝えたいとも思うようになった。こういったことの幾つかを思いつくままに記してみたい。甚だ主観的かつ取りとめのない話で恐縮であるが、この分野の研究に関わる方々に何らかの示唆を与え、今後の発展に

* 東京大学物性研究所 (〒106 東京都港区六本木7-22-1)

* Institute for Solid State Physics, University of Tokyo (7-22-1 Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106)

お役に立つことがあれば幸である。

2. 超短光パルスの発展について

最初に世に現れたレーザーはスパイク状パルス光を発生するルビーレーザーであった。その後レーザーパルスはナノ秒から、ピコ秒、フェムト秒領域へと目ざましい発展を遂げ、レーザー発展史の重要な一断面を示すと共に、超高速現象研究のための光源として中心的な活躍をしてきた。そして、より超高速・超短時間の世界を求めて、短パルス化の極限を追求する努力が絶えず続けられた。

この方向での意識的な開発は、特に1 ps以下のいわゆるサブピコ秒領域に手が届いてから始まったといってよい。ところで、このサブピコ秒パルスはかなり早い時期に実現され、研究が始まったことは案外知られていないようだ。ピコ秒パルスが1965年にルビーレーザーで初めて実現してから僅か3年後の1968年に、TreacyはチャープされたNdガラスレーザーパルスを回折格子対で圧縮して0.4 psパルスを得た²⁾。これが最初である。その後、同じくNdレーザーを1次光源に用い、1971年にベンゼンのラマンレーザーで0.3 ps³⁾、1972年に増幅器一可飽和吸収体の圧縮系で0.7 ps⁴⁾のパルスが得られている。そして、色素レーザーを用いて始めてサブピコ秒(0.5 ps)パルスが得られたのは1974年であり⁵⁾、その後の発展については比較的よく知られている。最近、日本の超短光パルスの専門家といわれる何人かの方々の解説記事や講演に接する機会があったが、皆さんが一樣に、サブピコ秒パルスが始めて実現したのは(圧縮技術も含めて)色素レーザーによってであると云われ、前記の事実にとなたも全く触れられないのには驚いた。この場を借りて、先ずこの誤った認識を正させて頂きたいと思う次第である。また、現在、フェムト秒領域では、光ファイバーを用いたパルス圧縮技術が盛んに利用されている。その基本となる自己位相変調と負の線形分散を組合わせた方法の理論⁶⁾及びCS₂を用いた実証実験⁷⁾もはるか昔の1969年に既に報告されてい

る。このことも周知とはいえないようだ。

私がこんな話をもち出したのは、ある新しい技術が発展し定着するには2種類のbreakthroughが必要で、そのどちらも忘れてはならないことを云いたかったからである。第1種とは、新しい原理の提案とその実証や、ある壁を破る記録の達成などである。第2種とは、これが真にものになるための何等かの技術的な飛躍を意味する。第1種のbreakthroughは概して一般の認識よりははるかに早いことが多く、第2種の発展以降は忘れられたり無視されることも少くない。これはよくないことである。単に先駆者に敬意を表するという意味だけでなく、我々が物まね技術から脱して真に独創的な技術を開発するための教訓として初期の状況を理解することが重要だと思うからである。

一方、前記の主張の裏返しとして第2種のbreakthroughの重要性も見逃してはならない。色素レーザーによるサブピコ秒パルスの実用化は広帯域レーザーのCW動作技術の確立がキーポイントになったといってよいであろう。また、パルス圧縮技術の実用化は光ファイバーの利用によってもたらされたが、ファイバーのもつ様々のすぐれた特性もさることながら、自己位相変調と正の線形分散の組合せによって理想的な直線チャープが実現できるという事実のNakatsukaら⁸⁾による発見が最重要な役割を果たしたといえないだろうか。

現在のフェムト秒時代はCPM(衝突モード同期)という第1種のbreakthroughによってもたらされたといえる。しかし、現在フェムト秒パルスの発生法についてはいろいろな方式が乱立し、将来それらが相補的に発展するのか、どれかが真に実用的な方式として生き残るのか定かではない。CPMが必ずしも本命ともいえないのである。フェムト秒パルスを実にものにするためにここで第2種のbreakthroughを期待したいと思うのは私だけであろうか。そして今後のパルス幅の極限化には従来技術の延長とは全く異なる第1種のbreakthroughが必要なのは多くの人が感ずるのではなからうか。

地味な改良研究も重要ではあるが、研究者としてはやはり第1種または第2種の break-through になり得るようなテーマに積極的に挑んでほしいものである。

3. 超短光パルスとコヒーレンス

「超短光パルスはコヒーレントな光であるのか?」, 「超短光パルスのコヒーレンスはどうか?」, こういった疑問をしばしば耳にする。これに対する私の見解をここで述べようと思う。

コヒーレンスについては普通、時間コヒーレンスと空間コヒーレンスが基礎概念として取り上げられ、理論的にも詳しく論じられている。コヒーレンス時間が長いことは、スペクトル幅が狭い(単色性がよい)ことを意味する。レーザーの場合、これがコヒーレンス性の代表的な現われとして記述される場合が多い。即ち、コヒーレンスのよいレーザー＝単色性のよいレーザーという観念がかなり根強く浸透しているように思われる。最近、主として半導体レーザーの分野で高コヒーレンスレーザーという言葉がしばしば使われるが、これも“高単色性”レーザーを意味している。

この観念に基づいて、スペクトル幅の広い超短光パルスはコヒーレンスのよくない光だと思っている人も少なくない。また、程々にスペクトル幅が狭く、程々にパルス幅も短い、つまり両者のバランスが適度にとれた光を“コヒーレンスのよい超短光パルス”と称する人もいる。これらは何れも物事の一面しか見ない、単純な誤った考え方である。

コヒーレンスの概念は実はもっとずっと広いもので、いろいろな種類のコヒーレンスがある。一般的に言えば、ある物理量(例えば光電場 E)を何らかの“物理領域”内の“場所”の関数として記述した場合の2点間の相関の程度を表わすものということになる。“物理領域”としては時間及び空間の他にそれらのフーリエ変換領域である周波数領域と波動ベクトル領域とがあり、それぞれに固有なコヒーレンス関数(相関

関数)を考えることができる。即ち、時間コヒーレンスと空間コヒーレンスの他に周波数コヒーレンスと波動ベクトルコヒーレンスという新しいコヒーレンス概念が成立つ。

超短光パルスのコヒーレンス特性を適確に表わすのは時間コヒーレンスでも空間コヒーレンスでもなく“周波数コヒーレンス”なのである。周波数コヒーレンスとはスペクトル成分間の相関を表わす概念であって、数学的には周波数相関関数によって記述される。そして、時間相関関数のフーリエ変換が周波数スペクトルになるように、周波数相関関数のフーリエ変換が時間波形となる。超短光パルスでは周波数相関幅が極めて長い、即ち周波数コヒーレンスが極めてよいために、短い時間幅が生ずることになる。この意味で、超短光パルスもやはり一種の“超コヒーレント”レーザーである。

この4種のコヒーレンス概念を用いると、レーザー光がいろいろな物理領域にエネルギーが集中するという基本特性を統一的に記述することができる。この関係をTable Iに示す。

さて、このような考え方は、物事の理解には役立ち、教育的な意義は認めるとしても、超高速現象の研究分野の発展に何か新しい寄与をなし得るかという疑問をもたれる方もあるだろう。これに対して私は次のように考えている。第1表をみると光波の性質が4つの物理量 t , r , ω , k に関して対称的な美しい形で記述されることが分かる。これは波動を表わす因子 $\exp[i(\omega t - k r)]$ の中に、この4つの量が対称的な形で入っていることに起因すると見られる。このことは以下のように一般化される。光波の関与する物理現象には、前記4つの物理領域で記述される様々な過程や性質があるが、それらの間に密接なアナロジーが成立つ場合が少なくない。即ち、見かけ上は全く違った現象が、数学的には同じ形式で書け、従って同じような思考過程によって考察できるということである。この様相は豊富な現象を包含する非線形光学において特に顕著にみられる。このことは現象の理解を助けるのみならず、新しい現象や方法を見つける

Table I Four kinds of coherence and corresponding features of laser light.

光のコヒーレンス性			光のエネルギー集中性		
領 域		相 関 関 数	領域	プロファイル	特 徴
時 間	t	$\langle E^*(t) E(t+\Delta t) \rangle$	ω	$ E(\omega) ^2$	単 色 性
空 間	r	$\langle E^*(r) E(r+\Delta r) \rangle$	k	$ E(k) ^2$	指 向 性
周波数	ω	$\langle E^*(\omega) E(\omega+\Delta\omega) \rangle$	t	$ E(t) ^2$	短パルス性
波動ベクトル	k	$\langle E^*(k) E(k+\Delta k) \rangle$	r	$ E(r) ^2$	集 束 性

ヒントを与えるのに役立つ。

超短パルス光のコヒーレンスに関する前述の性質も、このような普遍性の一つの具体的な現われと見ることもできよう。超短パルス光と超単色光とは対極をなす全く違った光であるが、その極限においては或る意味で共通の性質をもつ光と見做すこともできる。光自体についても、その応用においても、一方で知られた概念や方法を前記のアナロジーを通じて他方に変換することによって、困難な問題の解決や新しい課題の端緒を掴むことができるのではなかろうか。

4. 超高速現象と超短光パルス

超高速現象の研究のためには、できるだけ短い時間幅の光パルスを現象の励起や観測に用いるのが普通の考え方であり、正攻法といえるであろう。事実、大部分の研究がこの線に沿って行われ、我々も同様の努力をしてきた。しかし、その過程で私の頭を常に離れなかったのは、「超短光パルスを使うのが唯一の道であろうか?」、「場合によっては他の光源による方法の方が有利にならないか?」という疑問である。

ピコ秒以下の時間領域の超高速過程は豊富にあるが、サブピコ秒パルスがまだ実用にならない頃、その観測は極めて困難であった。これを克服するために私が先ず考えたのが周波数領域の方法である。各種の動的過程が、そのフーリエ変換として物質の光学スペクトル特性に反映されることはよく知られており、スペクトルから間接的に超高速現象の情報を得る試みは以前からある程度行なわれていた。しかし通常の光

学スペクトルではスペクトルを構成する基本要素（エネルギー緩和、位相緩和、不均一広がりなど）を分離することができず、あまり有用ではない。これらを分離し、かつ一般性ある手法となるためには適当な非線形光学過程の利用が必要である。そこで光波混合の一種である共鳴レーリ型光混合と称するものを考えて理論を展開し、サブピコ秒領域の各種の超高速緩和時間の測定に応用した^{9,10)}。これは3節で述べた時間領域と周波数領域の光学現象のアナロジーに着目し、フォトンエコーからヒントを得て周波数領域の新しい方法として考案したものである。この、光混合を基盤とする周波数領域の研究方法は、その後種々の変形や一般化も行なわれ、超高速現象の解明の一翼を担っている。

さて、やがてフェムト秒時代が訪れてこの分野の技術は更に進展した。しかし、望みのフェムト秒パルスをつくり出し、これを真に使いこなすにはまだ多くの困難がある。これらを克服し、更に、周波数領域ではなく、より直接的な時間領域で超高速現象を観測する新しい方法はないものかと次に考えた。従来、パルス光源を使つて超高速過渡現象を観測する場合、その時間分解能を決めるのはパルス幅や立上がり時間であった。極限的短時間領域になると、これらを短くする困難は急激に増大する。もっと違った物理量が時間分解能を支配するような新しい方法が見出されれば、この困難は解消または減少するのではないか。そこで、思い至ったのが光の相関時間という概念である。

超短パルス光の測定には現在非線形相関法が

広く使われている。初期のピコ秒光パルスの研究でもその一種である2光子蛍光法がよく用いられた。この方法は手軽ではあるが、単一パルスでもインコヒーレントなノイズでも同じ様な単一スパイク状の相関波形を示し、光の実態が何であるかの判定には慎重な検討を要する、という難点がある。このことは、現在ではこの分野の人にとって常識であるが、初期の頃にはその認識不足に基づく誤った報告も幾つかなされている。ここで発想を転換して、この厄介な問題を逆に利用できないかと我々は考えたわけである。相関波形に現われるスパイクの幅は光の相関時間の程度になり、これは光の持続時間には関係なくスペクトル幅の逆数程度の値をもつ。すなわち、相関過程においてはインコヒーレント光が同じスペクトル幅をもつフーリエ限界単一パルス光と同等の役割を果たすことになる。そこで、ある対象物質内の適当な非線形相関過程を利用するならば、インコヒーレント光を用いても、その時間幅よりずっと短い相関時間を時間分解能として、物質内の超高速過程が観測できるのではないかと思いつくに至った。

この着想とそれを裏付ける理論を、4光波混合による超高速緩和の観測という問題に具体化して我々が最初に発表した時¹¹⁾、かなりの方が興味をもって下さったが、大抵は半信半疑であった。その後、この問題は幸いに国内外で理論・実験の両面で発展し、その基本的妥当性は確定されたといえる。光源もインコヒーレント光のみならず、時間幅とスペクトル幅が共に広い一般的な広帯域光が対象となっている。この方法の特徴として、超短パルス光と比べた場合、単にその代替になるだけでなく、原理的には波長領域の選択の自由度が大きいこと、分散による時間分解能の劣化が抑制されるなどの優位性もある。この課題に関しては日本の研究者の寄与が大きいことも喜ばしい。本特集号にもこれに関する他の解説が予定されているが、筆者らによる幾つかのレビュー¹²⁻¹⁴⁾も併せて参照して頂きたい。

このような広帯域光を用いる超高速分光法は

元来時間分解能の極限を目指す動機からスタートしたものである。しかし、更に一般的に言えば、レーザー技術の新しい道を開拓するという意義もあることを申し上げておきたい。従来のレーザー技術が目標としていた超単色性や超短パルス性などは何れも完全なコヒーレンス性をめざすものである。インコヒーレント光その他の広帯域光は、この目標から大きく外れている。とはいっても、レーザー以前の旧式な光源に逆戻りしようというのではない。やはりレーザー技術を基本にして実現しなければならない光である。すなわち、レーザー技術によって、コヒーレンスのよい光をつくり出すばかりでなく、むしろコヒーレンス性を自由に制御した光をつくり出すところに新しい価値観と応用を見いだそうという思想である。

上記の“超短光パルスを使わない”超高速現象研究のいろいろな試みはささやかながらこの分野に一石を投じる役割は果たしたと思う。しかし、これらが超短光パルスによるものと相補的な真に有用な方法として定着し発展していくためには更に一層の努力、または2節で述べたような第2種のbreakthroughが必要かも知れない。その成否はともかくとして、新しい研究の展開をはかるためには、単なる改良や精密化だけでなく、新しい原理や発想に基づく、常識とは違ったアプローチを追求する努力を常に怠ってはならないと思うのである。

5. おわりに

超短パルス技術や超高速分光法の目ざましい発展によって、自然科学の広い分野における超高速現象の知識は著しく増大したし、今後も増え続けることは間違いない。確かに量的発展については疑問の余地はないが、では質的發展についてはどうか。我々の常識や自然観を覆すような新しい発見や、予想もしなかった新しい世界の展開といったことがこの分野でどれだけあったらどうか。また、よく言われることだが、「パルス幅をどんどん短くしていったらどんな画期的なことが分かるのか」という疑問もある。

これらの設問に対しては人によって様々な見方があるが、あまり明快な答えは得られそうもない。真の質的发展といえるものはやはり困難で稀有のものであろう。しかし、この分野をいつまでも魅力的なものに保つためには、こういった方面の意識的な努力が不可欠と思われる。

超短光パルスの技術や超高速分光法は今や成熟期にあり、今後は其の応用が主流だと考える人も少なくないであろう。そして、やがては大部分の実験研究が便利な市販品によって実行可能になり、超高速現象の研究は応用各分野の各論として拡散していつてしまうのだろうか。私にはそうは思われない。特に極限的短時間領域の問題については、更に画期的な技術開発と共に、基本概念の変革が要求されると思うのである。例えば、超高速現象でも、従来の一般的考え方はすべて定常状態を出発点とし、時間変化の現象はその *perturbation* として捉える観念が染み付いている。よく使われる“時間分解分光”という言葉がそのことを如実に表わしている。極限的短時間領域では時間と周波数の立場を逆転させて、時間軸上の挙動をすべての基本として考えなければならないのではなかろうか。こういった問題も超高速現象に共通の基本課題

として追求されることが、この分野の新しい発展のために必要と考える次第である。

参考文献

- 1) T. Yajima, F. Shimizu and K. Shimoda: Appl. Opt. **1** (1962) 770.
- 2) E. B. Treacy: Phys. Lett. **28A** (1968) 34.
- 3) M. J. Colles: Appl. Phys. Lett. **19** (1971) 23.
- 4) A. Penzkofer, D. von der Linde, A. Laubereau and W. Kaiser: Appl. Phys. Lett. **20** (1972) 351.
- 5) C. V. Shank and E. P. Ippen: Appl. Phys. Lett. **24** (1974) 373.
- 6) R. A. Fisher, P. L. Kelly and T. K. Gustafson: Appl. Phys. Lett. **14** (1969) 140.
- 7) A. Laubereau: Phys. Lett. **29A** (1969) 539.
- 8) H. Nakatsuka, D. Grischkowsky and A. C. Balant: Phys. Rev. Lett. **47** (1981) 910.
- 9) T. Yajima and H. Souma: Phys. Rev. **A17** (1978) 309.
- 10) T. Yajima, H. Souma and Y. Ishida: Phys. Rev. **A17** (1978) 324.
- 11) 矢島, 石田, 森田: 東大物性研短期研究会, 「ピコ秒分光による超高速現象の研究」1982年3月18—20日.
- 12) 矢島: 日本物理学会誌 **40** (1985) 519.
- 13) T. Yajima and N. Morita: in *Methods of Laser Spectroscopy* ed. Y. Prior, A. Ben-Reuven and M. Rosenbluh (Plenum Press, 1986) p. 75.
- 14) T. Yajima and N. Morita: in *Ultrafast Phenomena V* ed. G. R. Fleming and A. E. Siegman (Springer-Verlag, 1986) p. 536.