コンファレンスレポート

I Q E C ' 8 8 報 告 I

—光源の物理と工学, 非線形光学と量子光学, レーザー分光と物理—

小 原 實*・横 谷 篤 至**・築 山 光***

Report on IQEC ' 8 8

—Physics and Engineering of Light Source, Nonlinear Optics and
Quantum Optics, Fundamental Laser Spectroscopy and Physics—

Minoru OBARA*, Atsushi YOKOTANI** and Koichi TSUKIYAMA***

1. はじめに

第16回IQEC (International Quantum Electronics Conference) は, 東京, 新宿にある京王プラザホテルにて1988年7月18日~21日の間に開催された。今年は, 米国AnaheimにてすでにCLEO'88が開催されており, 単独開催となったが, 総勢約865人 (うち日本人約615人) の参加者を数え, また 391 件の論文が発表された。IQECはルビーレーザーの発振から10年後の1970年に1度, 京都にて開催されている。

最近のレーザー技術とその応用の高水準化は著しいものがある。高度でかつ微細な物理学に裏付けられたデバイス開発, 微細な測定, 観測なしには, さらに一層の進歩は得られない段階であり, レーザー物理, 量子光学物理に重きを置いているIQECのなす意味は, その高度な学

問, 技術の交換の場として増々大きくなると考える。

会議は, 霜田教授によってIQECの歴史とその時点でのトピックスの流れがレビューされたのを皮切りに, Max PlanckのSchäfer 教授, NBSのHall氏, 山中千代衛教授, Bell研究所のChemla氏のplenaryセッションで始まった。4つの口頭発表が並行して進み, 大変良く組立てられ, かつサービスの良い会議であったと思う。特に, Proceeding, Post-Deadline論文集の質は従来の CLEO/IQEC にはないもので, また, コーヒーブレイクのコーヒーも, 日本ならではの感があった。

会議の Subject Indexを掲載し, この報告集がレーザー研究者に良い刺激を与えられることを願って, 緒言といたします。

* 慶應義塾大学理工学部電気 (〒223 横浜市港北区日吉3-14-1)

** レーザー技術総合研究所 (〒550 大阪市西区靱本町)

*** 理化学研究所 (〒351-01 埼玉県和光市広沢)

* Department of Electrical Engineering, Faculty of Science and Technology, Keio University (3-14-1, Hiyoshi, Kohoku, Yokohama, 223)

** Institute for Laser Technology (Utsubohommachi, Nishiku, Osaka, 550)

*** Institute of Physical and Chemical Research (Hirosawa, Wako, Saitama 351-01)

I. Physics and Engineering of Light Sources

Frequency Up-conversion I, II
Laser Plasma and X-ray Generation I, II

XUV and Free Electron Laser I, II
New Solid State Lasers I, II
High Power Gas Lasers
High Power Excimer Lasers

II. Nonlinear Optics and Quantum Optics

Nonlinear Materials
Bistability
Four-wave Mixing I, II
Squeezed States I, II
Second Harmonic Generation on Surface

Chaos I, II

Short Pulses and Soliton

Cavity Quantum Electrodynamics
Nonlinear Optics I, II

III. Fundamental Laser Spectroscopy and Physics

Laser Spectroscopy, I, II, III
Fundamental Physics I, II
Highly Excited States I, II
Laser Cooling and Trapping
Laser Cooling and Other Laser-Induced Effects

IV. Optical Interaction with Condensed Matter and Ultrafast Phenomena

Ultrashort Pulse Generation and Spectroscopy
Ultrafast Spectroscopy I, II
Low Dimensional Materials
Transient Spectroscopy
Physics of Quantum Wells
Confinement Effects in Quantum Wells and Microcrystallites I, II

V. Physics and Device Aspects of Semiconductor Lasers and Optoelectronics

Extention of Semiconductor Laser Performance I, II

Quantum Well and Superlattice Devices I, II

Semiconductor Lasers

Nonlinearity in Semiconductor Lasers

VI. Optical Communications, Information Processing and other Novel Applications

Optical Computing and Neural Network I, II

Coherent and Soliton Optical Communications I, II

Biomedical Applications

Nonlinear Guided Wave Devices and Applications I, II

(小原 實)

2. 光源の物理と工学

光源の開発に関するセッションは、レーザー生成プラズマによるX線発生、XUVレーザー実験を含めた短波長変換と、FEL、固体、そして気体レーザー開発の2つのグループに分けられる。関連するセッションと発表件数を以下にまとめてみた。

MA Symposium on Frequency Up-Conversion 6件

TuD Laser Plasmas and X-ray Generation 9件

WE Symposium on XUV and Free Electron Lasers 8件

WK New Solid State Lasers 7件

ThD High Power Gas Lasers 5件

ThF High Power Excimer Lasers 4件

他に、ポスターセッションでも約30件ほど、光源そのものの物理及び工学に関する発表があった。気体レーザーのみで70件以上の発表があった今年のCLEO'88に比べると、デバイス開発に関する発表が少なかったが、近ごろのトピックスを十分に網羅し、かつ、up-to-dateのデータ

が発表され、プログラム委員の方々の努力の跡が垣間見られた。

短波長変換のセッション(MA)は、Hannover大学のWallenstein教授の高次光混合による50~200nm領域の光源に関する招待講演で始まった。希ガスやHg中での3次を4次の和、差周波発生、3次、5次の高調波発生が発表された。BBOにより約5%の効率でダブリングされた216nm光と色素レーザーによるKr中での2光子共鳴光混合により70~200nmの光を 10^{-4} ~ 5×10^{-3} の効率で得ている。又、Ar中での5次の共鳴光混合の結果を示し、ArあるいはNe中での6光波混合による46~72nm光の発生の可能性を述べた。希ガス中での4光波混合による短波長生成については、電総研の宮崎等(MA2)、及び九州大の前田等(MA3)によっても報告された。BBOにより色素レーザーから基本波を作り、Kr、Xeの2光子共鳴を用いた4光波混合で72~92nmの領域の光を得ている。前田等は、初めてArFレーザーの193nm光を基本波としてKrの2光子励起を行なった。また、H₂ガス中での反ストークス散乱による、115~136nm領域での高出力光の生成についても述べ、1nsのXeClレーザーを6atmのH₂ガス中に集光して12次の反ストークス光(121.5nm)を得た。この高出力VUV光を希ガスの4光波混合に用いて短波長化が可能である。現在、前田等はXeClレーザー励起高出力色素レーザー増幅システムを建設中であり、高調波、光混合、反ストークス散乱により、45nmから赤外に到る、かつ部分的に連続波長可変な光源の開発を行なっている。特にXUVの領域は、シンクロトロン放射に比べて1桁~2桁高い輝度(photon/sÅ)が得られる可能性があり、原子、分子の高分解分光への応用が期待される。Water-WindowでのXUVレーザー、極短パルスによるpump-probeシステムと並んで、道具としてのレーザーのあるべき姿のひとつであろう。

Sandia研究所のSmithは、Spectra Techに委託開発中のHg蒸気中での4光波混合による、出力1mJの130nmVUV光の発生システム

を発表した(MA4)。CW色素レーザー発振器の出力を色素、Ti:Sapphire増幅器で増幅し、高調波を混合して変換効率5%で約1mJ、平均出力2mWを得ている。Hg中で、ビームは集光せず、コリメート・ビームを用いて高効率を達成している。近々、シングル・モードのTi:Sapphire発振器が色素に取って代えられるそうである。また、130nmでのMgF₂/Al鏡のダメージ閾値は、1mJ/cm²と報告された。

光解離によって生成された励起原子(Se, Tl, In等)を用いたエキシマレーザーの反ストークスレーザーは、開発されて久しいが、CWイオンレーザー媒質を用いたCWストークスレーザーがHannover大学のWellegehausen等によって報告された(MA6)。共鳴遷移を用いた反ストークス過程は、非パラメトリック過程であるので、インデックス整合の条件がなく、また、長寿命の準安定準位を利用できる。Ar⁺レーザー媒質により、648nmの色素レーザーが437.5nmに変換され、同様の仕組で、Cd⁺レーザーの利用が提案された。彼等は、レーザー生成プラズマからの軟X線によって内殻励起された媒質による反ストークスラマンレーザーの研究も進めており、CrIIを用いて698nmを1404nmの基本光から得ている。さらに短波長を得るために、CaIII, LiII, HgIII等を提案しているが、十分な反ストークス利得を得られるかどうかが鍵であろう。

レーザー核融合に関する報告は、plenaryセッションにおける山中千代衛教授の講演(MM3)を初め、阪大核融合研究センター(TuD1, 2, 4) Lawrence Livermore研究所(TuD3)からあった。阪大からは、有機のフォームシェルに液化重水素をしみ込まして冷却した冷却固化燃料の爆縮実験結果を示した。実用炉での固体燃料ペレットの爆縮に一步近づいたと言えよう。また、ランダム位相光を用いた照射均一性の向上と、爆縮の均一性が示された。中井教授の招待講演においては、これらの結果より、照射、ペレットの均一性が非常に重要であることが強調され、現在の技術をもって100kJのブルー(3 ω)レーザーにより、イグニッションが可能であると報告さ

れた。一方、Livermore研究所は、レーザーを一旦X線に変換して爆縮する間接照射に力を注いでおり、ここにおいても、ISI方式による均一なレーザーの照射により、X線の変換効率が1.5倍に上昇し、かつ高速電子の発生が50%抑えられることが報告された。

高出力極短パルスレーザー開発は、近頃のトピックスのひとつであろう。多光子イオン過程での多価イオン生成とXUVレーザーへの応用が、その興味の原点であろうが、この会議では、ガラスレーザーを用いた発表が1件、エキシマを用いた発表が4件あった。まずRochester大学のMourou等により、周波数チャープしたパルスのガラスレーザーによる増幅が報告された(TuD5)。1.3kmのファイバーのSPM (Self Phase Modulation)とGVD(Group Velocity Dispersion)により、パルスを55psから300psに引き延ばし、かつ周波数をチャープする。パルスは、非平行のグレーティング対の正のGVDでさらに1nsまで引き延ばされた後、ガラスレーザーで1Jレベルまで増幅され、平行グレーティング対の負のGVDによって0.8psまで圧縮されている。この時の出力は、0.6Jである。Mourou等は、このスキームをNovaシステムで動作させる提案をしており、その場合、ピコ秒kJレーザーパルス($\sim 10^{21}$ W/cm²)が達成可能としている。ホログラフィック・グレーティングの破壊閾値が数J/cm²であるが、圧縮用のグレーティングの大きさは巨大なものになる。講演では、サブピコ秒でのチャープパルス増幅も、帯域幅の広いAlexandriteを用いて達成され、3mJ、300fsの出力が得られたと報告があった。 ~ 1 J、ピコ秒程度の出力を考えると、この固体レーザーを用いたチャープパルス増幅システムは、そのサイズがエキシマレーザーを用いたシステムより1桁以上小さくなりうる。この点から、エキシマレーザーに代表される気体レーザーによる極短パルスレーザーの開発は、高い効率での短波長の基本波を、いかに高出力で、かつ高繰返しで得るかの点に絞られてくるであろう。

そのエキシマレーザーを用いた高出力極短パ

ルスレーザー開発は、plenaryセッションでのMax Planck研究所のSchäfer氏による発表を初め、Rutherford研究所、東大物性研究所、Los Alamos研究所からあった。Schäfer等は、エキシマレーザー励起の色素レーザー、可飽和吸収体、波長可変DFDLにより、サブピコ秒レーザーを発生し、2倍波をエキシマ増幅器で増幅して、10mJ(5mJ)を248nm(308nm)を得ている(MM1)。最短パルスは、45fs(170fs)を得ている。さらに、45mm×45mmの増幅器で19mJまで増幅している。発表では、この短パルス領域では、光学系によるパルスフロントの遅延が、ターゲット照射時に問題となることが指摘された。

Rutherford研究所のShaw等は(TuD6)、大口径電子ビーム励起KrFレーザーシステムによる、Angular Multiplexed増幅をピコ秒パルスで行っており、さらに、CH₄の振動ラマンを用いて、dimultiplexingするシステムを計画している。ラマン過程を用いる事により、エキシマレーザーは、光励起レーザーのフラッシュランプの役割をし、ビーム品質に対する要求が緩和される。また、導波管を用いた前方ラマン散乱を用いることにより、均一な励起を達成し、パルスの若干の圧縮も見込まれている。計画では、3.5psの7ビーム(総エネルギー15J)によって励起し、10Jのラマン出力が得られる。彼等は、12パルス×12ビームのパルス列によるMultiplexing-ラマン combiningにより7kJ(~ 750 TW)をターゲットに照射するSuper-Spriteという野心的プロジェクトを計画している。

物性研の遠藤、渡部等は(ThF-2)、開発中であった高出力サブピコ秒KrFレーザーシステムに最終段電子ビーム励起増幅器を組み込んで、出力1.5Jを390fsのパルス幅で得た。この出力約4TWは、現在の世界最高記録である。スペクトル幅は $\Delta\lambda=0.37$ nmで電子ビーム励起増幅器の前後で変化していない。248nmにおいては、溶融石英窓での2光子吸収が10GW/cm²領域で著しい事が、この会議で話題になったが、彼等は、大口径のCaF₂を用いており、32GW/cm²のレー

ザー出力に対して透過率は95%と高い。また、パルス幅を単ショットで測定するために、Xeの3光子励起を用いたXeFのC→A (480nm) 蛍光が利用された。解像度は20fsである。

Los Alamos研究所でも小規模ながら同様のサブピコ秒エキシマレーザーシステムが開発されており (ThF3), 最終増幅段の前までで、700fs, 25mJのKrFレーザーが得られている。10cm×10cm径の最終増幅器は、KrFにおいての動作特性が悪く、やむなく全システムをXeClレーザーに変換して、308nmにおける1J, 1Hzサブピコ秒システムを計画している。こういったサブピコ秒システムでは、最終段増幅器の大口径放電励起技術、電子ビームを用いた場合はその繰り返し度、また、ASEを抑えるために、利得を落とさなくてはならない点、そして取り出し効率がデバイスとして見た時に、さらに研究が必要な点であろう。

高出力サブピコ秒エキシマレーザーと物質の相互作用の実験もすでに行なわれている。

Schäfer等は、Al, C等に照射し、プラズマからのX線放射スペクトルを観測しており、同様にLANLでも (TuD7), 25mJ, 700fsのKrFレーザー出力をAlのターゲットに集光して、H, He-様の~2 keVの放射が観測されている。エキシマレーザーを用いたXUVレーザーも考えられており、Schäfer等は、テーブルトップのX線レーザーとして、7 μm 、7mmのファイバー状のターゲットを進行波励起するスキームを提案した。興味を引かれたのは、固体ターゲットと短パルスレーザーの相互作用そのものの物理的研究であり、これについては、Bell研究所と西独のGHS-Essen大学より報告があった。Bell研のTom等は (TuD8), 2本の100fs, 610nmのレーザーを遅延してTaのターゲットに入射させ、X線の発生を調べた。このような短パルスレーザーを用いると、物質のイオン化より早く、レーザーは電子と相互作用し、電子エネルギーが加熱されてからイオン化が始まる。長パルスでは、アブレーションした気体と相互作用するのと対照的である。当然、短パルスでは、

X線発生効率は低く、X線も短パルスにはならない。まだ始まったばかりの分野であり、今後の進歩が期待される。

新しい固体レーザーとしては、Naval Research研究所から (WK2), レーザーダイオード励起用としてEr³⁺, Tm³⁺, Ho³⁺等、希土類が紹介された。YAGにTm³⁺とHo³⁺をドープし、Alexandrite レーザーによって励起を行うと、励起されたTm³⁺によるHo³⁺への励起が起こり、4準位系のCWレーザーが得られており、レーザーダイオードによる励起の可能性が示された。IBMのMacfarlane等は (WK3), 黄色の可視色素レーザーとIRを用いて20Kの温度下で、LaF₃:Nd³⁺, YLiF₄:Nd³⁺を励起し、それぞれ380nm, 413nmの短波長を得ている。高調波発生用の非線形結晶に関しては、西独のRegensburg大学から5psのNd:ガラスレーザーを用いて、5×10¹⁰W/cm²の入力に対して1%の効率で3 ω がBBOを用いて得られた報告があった (MP23)。5psでのBBOの破壊閾値は>10¹²W/cm²と見積られている。また、相馬等により、Ar⁺レーザーの共振器内でのBBOによる高調波発生が報告された (PD-7)。

大型ガラスレーザーシステムを用いたX線レーザー開発については、Livermore研究所と阪大から報告があった。Livermoreは、電子衝突励起によるNi様Ybの50.5Åでの利得生成を発表し、Ni様Wでの43Åレーザーの可能性を示した (WE1)。阪大は、再結合過程に伴う反転分布を利用して、AlXIIIの38.8Åで利得生成が得られたと報告した (MM3, WE2)。波長100Å近辺では、再結合過程の方が励起効率は高そうである。今後、核融合用レーザーを用いた媒質探究レースから、研究室サイズのX線レーザー開発への移行が期待される。その1例として、理研の原等により、Li様Cの再結合レーザーの研究が報告された (WE4)。

FELに関しては、パリ大学のOrtege等からバンチングされた電子の作る格子構造による高調波発生の仕組みが説明され、現在Orseyのストレーリングにて、200~50nmで波長可変のV

UV源を建設中との報告があった(WE5)。阪大の今崎等からは、誘導加速器の開発と、可視領域でのFELの研究が報告された(WE6)。

ガスレーザーのセッションでは、理研の緑川等により(ThD2)、 H_2 ラマン媒質の横緩和時間より短い時間スケールで励起 CO_2 レーザーの偏光方向を変えることにより、分極の有限な緩和時間内に60%という高効率で、14MWの反ストークスパルス($7.5\mu m$)を得たという報告があった。理論的には、95%まで効率は上昇するという。また、同じ理研グループより、ダイオード・レーザーの出力をラマン散乱の種として入力することにより、約4桁のストークス出力の増大が得られたと発表された。米国ではいまだに、Blue-Green領域のレーザー開発に力が注がれているが、Rice大学のグループより、電子ビーム励起XeFの $C \rightarrow A$ 遷移内で470~500nmの領域で波長選択できることが発表された(ThD3)。放電励起で効率が上がれば、XeCl/Pbラマン方式と対抗できるであろう。エキシマレーザー関連では、電総研の大和田野等により、29cm ϕ の大口径、電子ビーム励起KrFレーザーのエネルギー取出しの実験結果が報告された

(ThF4)。30nsの2本のパルスにより、150Jずつが取り出され、ASEの抑制等について発表された。現在のところ、710J(95ns)、150J $\times$ 2(30ns)、1.9J(6ps)のモードで出力を取り出せる。また、松本等から、同装置の出力を励起パルスとして用いた、パルス幅圧縮用のラマン増幅の基礎実験の結果も報告された(MP45)。電通大新形レーザー研からは、宅間教授により500Jの実験的出力が、励起を弱めてサイズを上げ、かつパルス幅を延ばすことにより、500kJの増幅器としての意味を持つとの発表があった(ThF1)。ガスレーザー関連では、ポスターセッションにおいて、扶間等により、電子ビーム予備電離KrFレーザーの特性が発表され(MP-8)、同じく電総研の山田等より、100mJ、 F_2 レーザー(157nm)の発表があった(PD-3)。Lamda Physik社からは、1kWの平均出力を達成するための高速繰り返しXeClレーザー

が開発が報告された。励起回路の1次スイッチとしてサイラトロンを4台並列に使用し、可飽和インダクターを出力スイッチに用いている。現在、UV予備電離を用いて、0.5kWを300Hzで得ている。効率は1%であるが、X線予備電離を用いて、効率を2倍にして1kWを狙っている。又、最終的に500Hz動作の予定である。この開発は、EUREKAプロジェクトの一環であるが、日本の大プロのエキシマ開発でも、短パルスのアバランシェ放電励起のみならずパルス幅の長い(この場合80ns, FWHM)放電技術も必要と思われる。

中身の濃い発表が多かったにもかかわらず、紙面の関係で、十分に紹介しきれなかった点を最後におわびいたします。

(小原 實)

3. 非線形光学と量子光学

非線形光学、量子光学に関連した分野では Nonlinear Optics I, II (8件)
Nonlinear Materials (4件)
Four Wave Mixing I, II (19件)
Second Harmonic Generation on Surfaces (5件)
Bistability (5件)
Squeezed States (9件)
Chaos I, II (11件)
Short Pulse and Soliton (5件)
Cavity Quantum Electrodynamics(3件)
などのセッションが設けられ、基礎物理課程の研究から、高効率波長変換等の応用に密接した特性の評価まで幅広い分野にわたって報告があった。またポスターセッション、ポストデッドライン論文中にもこれらに関する報告が多く見られ、この分野の研究が精力的に行われていることがうかがえる。ここでは非線形光学に関する報告を中心に筆者の目にとまった報告についてその内容を紹介する。

3.1 非線形光学材料

新しい非線形光学結晶としては、福建物質結

Fig.1 Transmission curve of LBO.

Table I. Properties of LBO.

* Space Group: Pna2₁

* $a=8.48\text{\AA}$, $b=7.38\text{\AA}$, $c=5.13\text{\AA}$

* Transparent Range: $160-2.6\mu\text{m}$

* SHG Coefficient: (10^{-9}esu)

$$d_{33}=0.15$$

$$d_{31}=d_{15}=-2.75$$

$$d_{32}=d_{24}=2.97$$

* Refractive Indices ($\lambda:\mu\text{m}$)

$$N_x^2 = 2.4517 - \frac{0.01177}{0.00921 - \lambda^2} - 9.600 \times 10^{-3} \cdot \lambda^2$$

$$N_y^2 = 2.5279 + \frac{0.01652}{0.005459 + \lambda^2} - 0.01137 \cdot \lambda^2$$

$$N_z^2 = 2.5818 - \frac{0.01414}{0.01186 - \lambda^2} - 0.01457 \cdot \lambda^2$$

(b)

Fig.2 (a) Phase matching angle of second harmonic generation in LBO.
(b) Angular tuning curves along the directions θ and ϕ .

Fig. 3 (a) Scheme of the ring four-wave oscillator.
(b) Experimental variation of $\omega_+ - \omega_-$ as a function of I_2/I_1 .

構研究所のC. Chen教授よりLiB₃O₅ (LBO) 結晶の報告(招待講演)があった(ThI-1)。LBO結晶の特長をTable Iに示す。この結晶は、IQEC'84で報告された β -BaB₂O₄ (BBO) よりも短波長(約160nmまで透明であり比較的良質な結晶を得やすいという利点をもっている。また d_{eff} はBBOより少し小さいが、位相整合の許容角が大きいと、増幅されたガラスレーザーの様に程度発散を持つビームの高調波変換ではBBOよりも高い変換効率を得られたとのことであった。LBOの紫外透過率をFig. 1に位相整合角と角度Tuning CurveをFig. 2(a)(b)に示す。ただ高調波発生 の角度位相整合が555nm位までの波長に対してしか取れないため、160nm迄透明であるという利点を生かした応用は、今後、開発が期待される所である。

米国リバモア研究から LAP (L-Arginine Phosphate Monohydrate) の水素を重水素で置換したd-LAPの報告があった(MP-27)。LAPは核融合レーザーのような大型大出力ガラスレーザー用波長変換素子として開発が期待され、最近各国で研究が行われている結晶である。d-LAPとすることにより、ガラスレーザーの基本波長付近に有る素子製作には支障をきたしていた吸収(20%cm⁻¹程度)を1%cm⁻¹とすることができたとのことであった。

また阪大レーザー研(MP-26)より育成溶液から有機不純物を光分解により取り除いた状態

で育成されたKDPの1 μ m, 1nsレーザーパルスによる光損傷閾値が従来の2~3倍の値(約20J/cm²)にできることが示され、従来は低いと思われていた無機水溶性結晶材料の損傷閾値の原因が有機不純物であったとの報告があった。

有機分子性結晶では、DIVA(Dicyano Vinyl Anisole)の報告があった(MP-37)。この種の分子性結晶は良質な結晶を育成することが難しいものが多いのに対し、気相もしくは液相から10 $\times$ 10 $\times$ 5mm³程度の良質の透明結晶が育成できる。YAGレーザーの2倍高調波の位相整合実験により水晶の d_{11} の41倍程度 d_{eff} が得られていた。

その他バルク結晶以外ではJ. R. Heflinら(MD-4)により共役炭素直鎖(—C=C—C=C— $\cdots$)の長さとも分子の3次感受率 γ_{ijk} の関係について、スタンフォード大(ThI-4)よりフォトレジスト技術により導波路の作成が可能であるというポリシラン薄膜($\chi^{(3)} \sim 10^4$ 石英)の報告があった。また、光学ガラス(GG495, OG515, OG530, OG570, RG645)(MD-2), や光学ガラス(RG630)を微結晶化したもの(MD-5)などの吸収特性を生かし蛍光スペクトルや4光波混合実験から非線形課程の解析が行われていた。

3.2 4光波混合

3次以上の非線形感受率を利用した4光波混

合の研究は非常に盛んで、「Laser Spectroscopy」等他のセッション、ポスタ、ポストデッドライン論文でも多くの報告があった。位相共役波の発生が中心であり、G. Grynberg ら (TuF-1) は、Fig. 3 のような 3 鏡リングキャビティ中の Na, He 蒸気セルに同波長の 2 光波を入射し、互いに逆方向に発生した位相共役波をリングキャビティ内に閉じ込めることにより光ジャイロ発振器を試作、そのビート波を観察した。また R. Trebino ら (TuF-3) は、炎 (Na Seeded Flame) に Na の D_1 線に近い 590nm レーザーを入射し $\chi^{(5)}$ による 6 波混合、 $\chi^{(7)}$ による 8 波混合の観察を行っている。その他、光学ガラス (SF59) を用いたリングキャビティ (TuF-4)、レーザーダイオード中で発生する位相共役波 (TuF-7, 9)、 CO_2 レーザーと SF_6 ガス (TuF-5)、量子井戸 (TuF-8) 等多種多様な報告があった。強い位相共役波の発生は物理として興味深いのは勿論、レーザービームパターンの改善や計測手段等極めて多くの応用が考えられるため、今後高効率な相互作用を行える結晶材料等を用いた研究への発展が期待される。

3.3 物質表面での 2 倍高調波発生

バルクでは 2 次の非線形感受率を持たない物

質でも表面や界面で 2 倍高調波が発生する現象は、新しい物理現象としての解析と共に、物質の表面構造を探る測定手段としての開発が期待され、活発に研究されている様である。J. Reif ら (ThA-3) により BaF_2 , CaF_2 など立方晶の表面構造の 2 次元対称性と発生する 2 倍高調波の 2 次元強度分布 (Fig. 4) との対応が示され、X 線回折と列ぶ構造解析手段としての可能性が検討された。J. Stehlin ら (ThA-2) は GaAs の表面の原子層レベルでのクリーン度と発生する 2 倍高調波の強度関係を報告し、蒸着面等の状態の解析手段として有用であるとした。また R. Superfine (ThA-5) らは、 CCl_4 , メタノール, 単層 OTS (Octadecyltrochrolo-Silane), 石英の固/液界面での 3 光波混合の特性を調べ石英表面に OTS 膜が形成されるのをリアルタイムでモニターできると報告した。そのほか金属表面での高調波発生 (ThA-5), 水/空気界面での高調波発生 (PD-28) 等興味深い報告があった。

IQEC'88 にて報告のあった非線形光学関係の論文のうちいくつかを紹介した。上記以外の興味深い報告、その他の興味深いセッション等も多かったが紙面の都合上、網羅仕切れなかったことをご容赦戴きたい。

Fig. 4 Polar plot of the second harmonic yield from the (111) surface of alkaline earth fluorides as a function of azimuthal orientation of the electric field vectors (angle of incidence and observation 45° , fundamental: 532nm). (a) BaF_2 , both fields s-polarized, (b) BaF_2 , both fields p-polarized, (c) CaF_2 , both fields p-polarized (inner plot) and both fields polarized at 45° to the plane of incidence (outer plot).

レーザーの高効率化、小型化、短波長化は、近年のレーザー研究の極めて活発な動向であり、そのために非線形デバイスの開発、性能向上は不可欠である。最近の非線形光学では、物理現象の解析とデバイスの開発が車の両輪であり、基礎研究と応用が極めて密接な関係を保ちながら進められている。今回の報告では多少デバイス関係の報告が少なかったようだが、それに対する聴衆は非常に多く、熱心な討論がされていた。今回報告された物理課程や特性が引金となり、高機能非線形デバイスの発展に関する研究が数多く行われると思われる。

(横谷篤至)

4. レーザー分光と物理

1988年7月18日より四日間、新宿京王プラザホテルにおいて IQEC '88 が開催された。この国際会議はその名が示すように Quantum Electronics すなわち化学よりはずっと物理・応物サイドの学会だから我々化学出身者はきつと肩身のせまい思いをするに違いないと思いつつ、今回初めてこの会議に参加した。

初日は午前中の Plenary Session I および II に続いてポスターセッションがあり、その後各部門にわかれて本格的な講演と討論がおこなわれた。本稿では、Fundamental Laser Spectroscopy and Physics 部門で第二日・三日目に発表された講演の概要を紹介し、私個人の受けた印象を述べてみたい。私は、初日、本部門と並行しておこなわれていた Symposium on Frequency Upconversion I 部門の講演を聞いていたので残念ながら Laser Spectroscopy I および II については発表を聞くことができずここで紹介することができない。Upconversion I 部門では、パルス色素レーザーの周波数混合による真空紫外光の発生についての講演が続いていた。短波長レーザーは最近原子・分子の高励起状態の研究にさかんに使われだしており、短波長レーザー光発生メカニズムや特に技術的な工夫についての発表は我々 chemical physicist にとって大変ありがたいものである。非線

形媒質として金属蒸気を用いた周波数混合に代わり、今回の発表では取り扱いが容易な為であろうか希ガスをを用いたものがほとんどであった。

二日目の Laser Spectroscopy III のセッションでは TuC-1: Optical double resonance studies of molecular rovibrational energy transfer, B. J. Orr (Macquarie Univ.), TuC-2: High resolution spectroscopy of Van der Waals complexes in the middle IR region, Y. Matsumoto et al. (RIKEN), TuC-3: Ionic excimer excited by laser produced plasmas, R. Sauerbrey et al. (Rice Univ.) の三講演があった。最初の講演は pump and probe すなわち、ポンプレーザーで特定の原子あるいは分子を選択的に励起し、その後の系の変化をプローブレーザーによってモニターする方法で、このような pump and probe の手法は TuC-5 や翌日の WC-1, WC-5, WC-8 の発表でも用いられており、原子・分子のダイナミクス研究するうえで極めて広範囲に应用されていることがうかがわれた。2 番目の講演では、超音速パルスジェット中に存在するファンデルワールス分子の赤外レーザー分光に関する発表で RG-BF₃ コンプレックスとアセチレンダイマーについての結果が報告された。

続く Laser Spectroscopy IV のセッションではまず TuC-4: Formation of KrF excimer by two-photon process in Kr/F₂ mixtures, K. Hakuta et al. (Univ. of electro-communications) において Kr・F₂ collision pair のレーザー誘起ハーブニング反応についての発表がなされた。続く TuG-5~7 において、表面から desorb された、あるいは散乱された分子の内部状態（並進、回転、振動分布）に関する講演がありこれらは極めて興味深いものであった。TuC-5: Energy distribution of molecules thermally desorbed from a surface, J. A. Prybyla et al. (IBM), TuC-6: Laser investigation of the dynamics of molecular surface interaction: Nitric oxide scattered from diamond, H. Kuze

et al. (Max Planck Institut), TuC-7: Laser stimulated interaction of choline with GaAs (100) surface, Q. Qi-zong et al. (Fudan Univ.). 最初の講演では, Pd (111) 表面から Laser induced thermal desorption された NO 分子の内部状態分布について報告があった。ここでも pump and probe の方法が利用されていた, すなわちポンプレーザー (YAG レーザーの三倍波: 532nm) で表面をたたき, でてくる NO の内部状態をプローブレーザーでモニターするわけである。この場合, 振動回転分布を REMPI で, 並進エネルギーをポンプとプローブレーザー間の時間差を変えることによって見積もっている。Desorption 時間内における表面の温度が $\sim 1100\text{K}$ であるのに対し, desorbed NO の振動・回転・並進エネルギーはそれぞれボルツマン温度で 1150, 756, 716K であった。この事実, すなわち回転と並進が冷えているということを彼らは表面近傍での回転と並進の強いカップリングの結果であるとしている。次の講演は, ダイヤモンド (111) 表面で散乱された NO 分子の角度・回転および速度分布の測定に関するものであった。彼らは超音速 NO 分子線の入射方向によって散乱角度分布が異なることや散乱された NO 分子に速い成分と遅い成分があり, それぞれについて回転温度が異なること等を初めて見出し, ダイヤモンド (111) の表面構造との関連を議論した。以上述べてきたような表面と分子との相互作用を研究するためには, 超高真空チャンバー, 表面の洗浄度等を評価するための種々の装置 (LEED, オージェ等), さらに超音速分子線源, 色素レーザー, TOF や Q-mass 等の機器が必須であるため, どこででもできるという実験ではないが, 今後の laser science や chemical physics の一つの方向を示していると思われる。

お昼からはポスターセッションがおこなわれ, 発表件数はおよそ 60 件であった。

三日目に Highly Excited States I および II のセッションがおこなわれた。WC-1: Pico-second time-dependence in photoionization,

L. D. Noordam et al. (FOM), WC-2: Laser spectroscopy of high lying doubly excited state of Ca, N. Morita et al. (IMS), WC-3: Coherent excitation of potassium Rydberg states, R. Beigang (Univ. Hannover), WC-4: XUV laser Stark spectroscopy of Xenon autoionizing Rydberg series, W. E. Ernst (Stanford Univ.), WC-5: Progress in optical - optical double resonance MPI Spectroscopy, G. Sha et al. (CAS), WC-6: Intermode coupling in vibrationally highly excited SO_2 as studied by stimulated emission pumping and dispersed fluorescence, K. Yamanouchi et al. (Tokyo Univ.), WC-8: Double resonance spectroscopy in pulsed regime for investigation of highly excited vibrational states of molecules, Y. Matsuo et al. (Tokyo Univ. and IMS).

WC-5 は, 本質的に TuC-1 と同じ方向である。WC-8 は pump and probe の手法を用いたものであるが, 振動基底状態からほとんど遷移確率のない高振動励起状態の挙動を追跡できるという点で新味がある。WC-4 ではパルス色素レーザーの通倍によって生じた波長可変 XUV レーザーを用いた Xe の自動イオン化系列の一光子高分解能シュタルクスベクトルについての報告があった。冒頭で記したように, 真空紫外レーザーを光源とする高励起状態の研究は今後ますます発展していくものと思われる。

当日私にとって最も新奇で興味深かったのは, WC-1 および WC-3 の講演であった。特に WC-1 は招待講演でもあり講演時間が 30 分と長く (一般講演は討論含めて 15 分), なじみのない学術用語等最初のほうで丁寧に説明されたせいもあってなかなか分かり易かった。これらふたつの発表はいずれもリードベルグ状態の波動関数のダイナミクスに関するものである。主量子数が大きい ($n > 20$) リードベルグ状態では電子の orbit time は数十ピコ秒のオーダーである。一方リードベルグ状態の波動関数は広がってはい

るけれども、核に近い部分だけが光の吸収に関与する。従ってリードベルグ状態を経る二段階イオン化を考える場合、共鳴イオン化はレーザーパルス幅内に波動関数が核付近に戻って来ることができる場合に限って enhance される。この系にピコ秒レーザーを用いた pump and probe の手法を導入するとさらに高度な実験が可能となる。すなわちピコ秒レーザーで原子をリードベルグ状態にいったん励起した後適当な時間差をおいてピコ秒のプロブレーザーを導入し原子をイオン化させる場合、時間差が電子の

orbit time と一致する時にのみイオン化が enhance されることになる。実験結果においても実際にそのような enhancement が認められ、定性的な説明ではあるが上述の概念の正しさを立証している。

以上 Physical Chemist としての立場から私の専門に近い発表についてレポートした。この会議に出席して、やはり自分の所属する学会だけでなく他分野の発表にも耳を傾けることも刺激になりとても大切なことであると思った。

(築山光一)