超高速科学用途レーザの遺産と進歩

ジョン・ウォレス

超高速レーザのフェムト秒スケールパルス幅は科学用途に最適であり、通常は速すぎて計測できないような自然現象や生体内作用を捉えることができる。

超高速（ピコ秒およびフェムト秒）レーザは今日、産業分野、医療分野（例えば、産業用途ではスマートフォンスクリーン用のマッチングガラス、医療用途ではレーザ眼科手術）で用いられているレーザの最も重要な領域であるが、そのようなレーザが真の色（true colors：真価）を――文字通り色のこともあるが――示すのは研究における超高速レーザの利用である。まさしく科学は、このタイプのレーザが始まった場所である。と言うのは最初の超高速レーザそのものが研究プロジェクトだったからである。

超高速科学レーザのタイプには、発振器と増幅器が含まれ、そのいずれかはバルク、あるいはファイバベースのコンポーネント（または両方）で組み立てることができる。ファイバを利用するとより小型で、しっかりした超高速科学レーザができるが、ファイバには上手に扱わなければならない固有の問題もある。ファイバが経験する高いピークパワーと、その結果としての高強度は光損傷、あるいは非線形光学効果に帰着する。とは言え、非線形効果は、場合によっては、うまく利用することも可能である、際立った例はスーパーコンティニウム光源である。これはファイバの非線形性を利用して高輝度広帯域光を生成する。

超高速科学レーザのカテゴリでは、最短フェムト秒パルスを生成できるレーザが市販されている。そのようなレーザは、高度な技術に依存して高品質のパルス、例えばキャリアエンベロープ位相（CEP）安定化などを生み出す。これにより、個々の少サイクルパルスが正確にパルスエンベロープに整列されることが保証される。増幅器のコンポーネントに損傷を与えない、高エネルギー増幅フェムト秒パルスを作るには、パルスが増幅器に入る前にチャープパルス増幅器（CPA）が、分散素子を使ってシードパルスを時間的に引き伸ばす、増幅後、高エネルギーパルスは、続いて時間的に圧縮される。

長年にわたる超高速レーザの進化は、ファイバベース超高速レーザメーカー、独トプティカ社が提供するチャートで見ることができる。最初の超高速レーザは、色素利得媒体をベースにしたものだが、これは高価であり、信頼度が低かった。一方、チタンサファイア（Ti:Sapphire）のような固体利得媒体、光ファイバをベースにしたレーザタイプは、高信頼であり、商用レーザとしてのコストも適切である（**図1**）。

超高速ファイバレーザ

「トプティカ社は、イッテルビウム（Yb）とエルビウム（Er）利得ファイバをベースにしたパッシブモードロックファイバレーザをピコ秒とフェムト秒域で製造している」と同社社長、ヴィルヘルム・ケンダーズ氏は語っている。「当社は、偏波保持ファイバと飽和吸収技術を長年使用しており、今では当社のファイバソリューションの一部では、寿命が3万時間を超えている」。トプティカ社のレーザは、780、1030、1064、1550nmで発振する。

ケンダーズ氏によると、同社のレーザの高い連続動作時間によって、科学

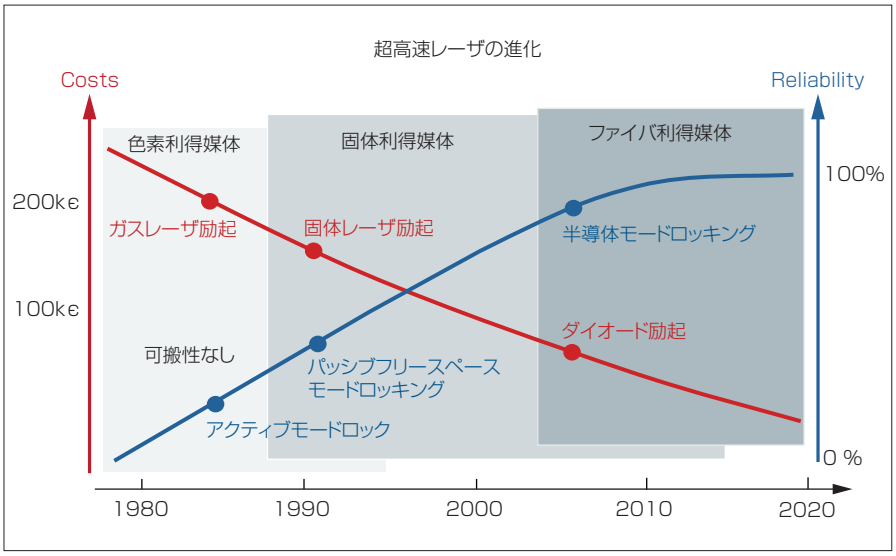

図1　図は、初期の色素レーザから最近の固体レーザとファイバベースのレーザまでの超高速レーザの進化を示す（資料提供：トプティカ社）。

アプリケーション用として信頼性の高い発振器になっている。例えば、テラヘルツ生成、マルチフォトン顕微鏡、2光子重合(特にここでは、研究用にフォトニック微細構造作成に用いることができる)、タイミング配分の精密光クロックとして使われる。こうしたレーザは、パス幅40fs～10psまでのパルスを生成することができる、さらにアクティブ繰り返しレート同期も可能。これは周波数コムの作製にとって特に有用な品質。周波数コムの多くの科学的利用には、プラズマ殺菌測定、太陽系外惑星の発見、超精密時報伝達、微量気体検出、絶対距離計測干渉計が含まれる。

コンパクトであることから、超高速ファイバレーザは、Ti:サファイアの優れた種光源になる。例えば、米コンティニウム社が作製したQ-Light-PMは、18.4×15.7×6.5㎝の小型で頑丈な筐体に、エルビウムドープファイバレーザを収めている。このファイバレーザは、780nmの直線偏光周波数逓倍波長を放射し、ビーム品質(M^2)は1.2、あるいはそれ以上に優れている。繰り返しレート、30～40MHzでパルス幅110fs以下、平均出力は10mW以上。筐体には、電子制御装置も含まれている。Ti:サファイア増幅器の種光源に加えて、そのレーザは画像処理や生体医療研究にも用いることができる。

Ti:サファイア

他のレーザ利得材料と比較して、Ti:サファイアは680～1100nm以上に広がる非常に大きな利得帯域を持っている。さらに、スペクトル帯域とパルス幅間のフーリエ関係により、広い帯域は超短パルス生成に必要なものである。結果として一般に、Ti:サファイアレーザによって最短パルスが生成される。

米コヒレント社は、3タイプの超高速科学レーザを製造している。発振器、増幅器、マルチフォトン顕微鏡に特に最適化した発振器、それとともにこうした機器の出力をカスタマイズするための付属部品、例えば可変光パラメトリック発振器および増幅器、高調波発生器、他の周波数シフト法がある。同社のシニア製品ラインマネージャー、ナイジェル・ガラハー氏はこのように語っている。

同氏は、産業用Ti:サファイアレーザの開発が、超高速科学レーザにどのように役立ったかを説明する。「伝統的に、語られてはいないが一般に受け入れられているトレードオフが、パフォーマンスと操作の簡潔性／信頼性の間に存在する。最先端のパフォーマンスが欲しいなら、超高速レーザとの間に実践的な(hand-on)――まさに手を出すような(hand-in)関係を持たなければならない」と言う。「ところが、過去2、3年で、これは本当に変わってしまった。ついに究極的なパフォーマンスと産業グレードの簡便さ、信頼性の合流がはっきりと見えるようになっている。コヒレント社は、これをウルトラファスト科学における産業革命と言っている。この産業革命で重要な側面は、他の業界で長年採用されている最終試験手順を通して、厳しい高度な加速寿命テストと加速ストレススクリーニング(HALT/HASS)開発の実施である」。

例としてガラハー氏は、標準的な製品、Vitara UBB超高速発振器がパルス幅が8fs以下であることを挙げている。これは、ユーザーが介入することなく、何千時間も連続動作するハンズオフパッケージで提供される最先端のパフォーマンスである。

同社のAstrella Ti:サファイア増幅器は、別の例である、とコヒレント社の製

品ラインマネージャー、ヨゼフ・ヘンリッヒ氏は言う。「これは、当社のワンボックス増幅器製品コンセプトの最新作である。キロヘルツレベルの繰り返しレートで、高度に増幅されたパルスを生成するための全てが、1つのパッケージに収められている。これに含まれるのは、Vitaraシード発振器、ストレッチャー-コンプレッサ、当社最新のアンプ用励起レーザと再生増幅器そのものである。Astrellaは特に興味深い。と言うのは、当社初のワンボックスを設計し、上述の厳しいHALT/HASS手順を用いて徹底的にテストしたからである」。その増幅器のCPAストレッチャー-コンプレッサは、封止筐体に収容されており、ユーザーの介入は不要となっている。

同増幅器は、M^2<1.25で6mJ/パルス、パルス幅は<35fsまたは100fsが選択できる。35fsパルス幅は、ピークパワーが約170GWとなり、これはTi:サファイア利得結晶のTECなしで達成された数字である。典型的なアプリケーションは、様々なタイプの分光計だ。振動、電子、テラヘルツ研究、内核電子のX線研究さえもある。X線研究は、高調波発生を利用するもので、これはアト秒光パルスを生成する技術である。

Astrella増幅器は、例えば、2D赤外分光学で用いられる。「従来の赤外吸収スペクトルは、通常はフーリエ変換赤外(FTIR)で得られる」とヘンリッヒ氏は言う。「個々のピークは、異なる分子振動に対応しているが、振動と振動との関係を示す情報はスペクトルに存在しない。2D IRは、2つの独立した波長(ポンプとプローブ)を用い、2波長データを直交軸上にグラフ描画することで、これらの関係が明らかになる。2D IRスペクトラルが混合の記録であるなら、同種のものからのピークペアは非対角の交差ピークも生み出す」。

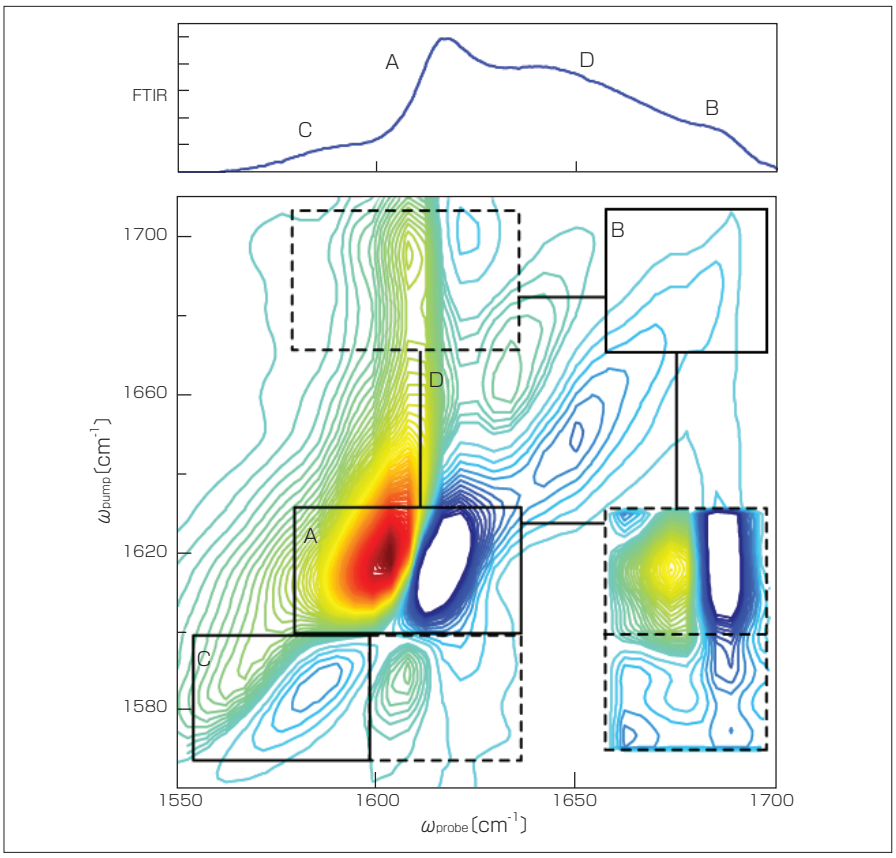

図2 2DQuickでは、米フェーズテック・スペクトロスコピィ社の2D IRは、コヒレント社のAstrellaのような増幅器であるが、これは光パラメトリック増幅器(OPA)の励起に用いられる。OPAは、差周波生成(DFG)により2.6～11μmで可変できる広帯域IRパルスを生成(>150㎝-1)する。ここでは、FTIRがタイプ2型糖尿病(上)関連のアミリンポリペプチドのIRスペクルとを捉えた。それに対して、2D IRスペクトル(下)はさらに多くの情報を示している、ペプチド二次構造に対応する地域はボックスで強調している。ピークCは、Ala-13同位体標識で作られている。Dではなく、AとBへのその交差ピークから、それがファイバのβシートに存在することが明らかになっている(資料提供:ウィスコンシン大マディソン校とフェーズテック社の社長、マーチン・ヅァニ氏)。

ヘンリッヒ氏によると、2D IRはライフサイエンスでは非常に有用なツールであることが分かってきているという。生物分子間の関係や相互作用を調べる独自の能力があるからだ。例えば、タンパク質酵素結合、タンパク質の折り畳みと展開が挙げられる(**図2**)。

CEP殺菌

オーストリアのフェムトレーザーズ社は、CEP殺菌を同社の超高速発振器と増幅器の主要特性にした。同社は、第3世代CEP技術を開発したと言う。これによってCEPを稼働日は一日中固定しておくことができる、それに対して従来の第1世代CEP技術は数10分しか固定稼働できない。いわゆる「ダイレクト・フィードフォワード」アプローチを用い、第4世代に取り組んでいると同社は言う。第4世代ではCEPは無制限に固定稼働できる。アトサイエンス(Attoscience)の研究者やその他の高調波発生に携わる実験者にはメリットがある。

米スペクトラフィジックス社は、超高速レーザをフルラインで製造する。これには、発振器、増幅器、単一波長レーザが含まれる。同社のInSight DS+

システムは、生体内マルチフォトン顕微鏡のような科学応用を目的としている製品であり、非常に広範囲の680～1300nmでギャップフリーチューニングができる。長波長側に拡張した範囲のエンドで体内最深イメージングができる。分散前置補償器により、サブ100fsパルスが保証される。これらのパルスは顕微鏡により、検査中のサンプルに送達される。

工業基準にしたがって設計、製造されるレーザシステムも、二重同期ビームを出力できる。目的は、異なるタイプの蛍光色素分子を、同一時間に第二高調波、第三高調波で同時イメージングすること、また2つの同期出力ビームにより様々な蛍光色素分子（例えば、GFP/YFP、mCherry）の同時イメージングが可能になる、SHG/THGイメージング、さらにはアンチストークスラマン分光（CARS）や誘導ラマン散乱（SRS）のような先進的なイメージング技術も可能になる。

同社のシングルボックスMai Tai DeepSee超高速Ti:サファイアレーザも生体内蛍光イメージングにとって有益であり、これはハンズフリーレーザで、平均出力が2.4W、690～1040nmの可変範囲を持ち、超安定再生モードロッキング技術を採用している。このレーザは、OCTや非線形分光学にも用いられる。

スイスのタイム・バンドウィズプロダクツ社は、チューリッヒ工科大（ETH）のスピンオフで、現在はJDSU社の所有となっている。同社はダイオード励起Ti:サファイアや他の固体超高速レーザを生産している。これらは、SESAM技術を用いるパッシブモードロック技術を採用しており、セットアップによって異なるが、パルス幅はフェムト秒、ピコ秒の範囲にある。

同社のTiger Ti:サファイアレーザは、シングルショット4.1MHzから25nJを超えるエネルギーで、150fsを生成する。ビームのM^2は1.1で、化学応用には、ポンプ・プローブ実験、マルチフォトン顕微鏡は、非線形オプティクス実験、時間分解分光法がある。

多様な超高速オプション

しかし科学用超高速固体レーザは必ずしもTi:サファイアである必要はない。例えば、タイム-バンドウィズプロダクツ社は、ネオジウムガラス（Nd:ガラス）レーザも作製しており、これは1058nm域（1053～1064nm可変）で、平均パワー400mW、トランスフォーリミッテド200fsのパルスを出す。ユーザ定義、固定パルス繰り返しレートは70～150MHzの範囲で可能。これはTi:サファイア科学用レーザと同じ目的の一部で有用である。加えて、同社はYbベースの超高速レーザを生産している。このレーザは1030～1040nm域でサブ200fsのパルスを出し、バイオイメージングに適している。

非Ti:サファイア超高速レーザに関しては、コヒレント社のガラハー氏が「業界の別の興味深いトレンドは、ついにYbベースのレーザが成熟してくることだ。このレーザは、Ti:サファイアの最初の代替となる」と言っている。実例として、同氏は同社が持つChameleon Discoveryレーザを挙げている。「このレーザは、Ti:サファイアレーザよりも遙かに広い680～1300nmの可変性を持つ。また、固定1040nmに二次出力があるので、2つの超高速個別波長を必要とすることがよくある光遺伝学顕微鏡実験にとって、これが理想的なソリューションになる」。

米KMLabs社（Kapteyn-Murnane Laboratories）も、バルクYbベース超高速レーザを含むように自社の技術を拡張しようとしている。とは言え、同社は伝統的にTi:サファイアレーザで知られており、その多くは科学用途だった。例えば、同社のワイバーン（Wyvern）再生Ti:サファイア増幅器は、50Kまで極低温冷却するので、熱レンズがなく、パワー処理能力は2ケタ向上する、と同社は説明する。

同社のXUUS（eXtreme Ultraviolet Ultrafast Source）高調波発生システムは、中空コア導波路を使って超高速IRパルスを極紫外（EUV）、あるいは軟X線域まで変換する。同社のYbレーザへの進出の成果は高ピークパワーファイバレーザY-Fiとなっている。Y-Fiは、チャープスペクトルパルスのクリーンパルス完全正常分散（ANDi）シェーピングをベースにしている。これは、同社が米コーネル大からライセンスを受けた技術である。

Wyvern-500の最新バージョンは、XUUS高調波発生システムと組み合わせるように最適化されている。30kHzで、Wyvern-500-HHGは、サブ45fs、300μJ（平均パワー9W）パルスをXUUSキャピラリ導波路に出す。それにアルゴンガスで加圧してフォトンエネルギー最大43eVのコヒレントEUVパルスが生成される。このEUVパルスは、光電子分光法に最適である。この分光法を利用して物質内の電子動力学を調べることができる。

スーパーコンティニウム生成

スーパーコンティニウム光源では、超高速レーザ（通常はファイバレーザ）と光ファイバとを組み合わせる。その光ファイバは、マイクロストラクチャファイバ、またはフォトニック結晶ファイバ（PCF）で、意図的に非線形光学効果を起こしてスーパーコンティニウム生

成となるようにコア径は非常に小さい。スーパーコンティニウムは、2スペクトルオクターブを超えて広がる。

英フィアニウム社は、200mW～20Wまでの光出力範囲を持つ一連のスーパーコンティニウムレーザを製造している。「ローパワーシステムは、予算を気にする広帯域分光応用から需要があり、一方ハイパワーシステムは、より大きな出力を必要とするアプリケーション向けの計測ツールとなっている」と同社の営業技術のグレッグ・タフト氏は言う。同氏によると、最近開発された平均出力10WまでのOEM光源は、400～2400nmのフルスペクトラル成分を持つローコストバージョン。フィアニウム社は、UVまたはIRに最適化されたスペクトル成分もオプションとして提供している。また、広帯域レーザを高い可変性を持つ単一波長光源に変えるために使用する可変フィルタアレイも提供している。

用途には、蛍光イメージング、蛍光寿命イメージング顕微鏡、OCT、フローサイトメトリ、超解像顕微鏡、ナノフォトニクス特性評価、広帯域分光測定が含まれる。

タフト氏によると、20Wでは、フィアニウム社のWhiteLase SC480-20は、市場で最も強力なスーパーコンティニウム白色ファイバレーザである。「これは非常にハイパワーが出せるので、新しいアプリケーション領域が出てきている。例えば、特にチューナブルフローサイトメトリやNIR分光法だ。こうしたアプリケーションは、これまでは短波長光源に限られていた。また、直ぐに入手できると言うことで、理想的でないスペクトラル領域に限られることもあった。480～2500nmのスペクトル領域にわたり10mW/nm以上の出力のレーザが開発されたことで、こうしたアプリケーションは、もはや単一波長光源に限定されることはなく、真にチューナブルであり、このスペクトルの全ての部分が使えるようになった」。

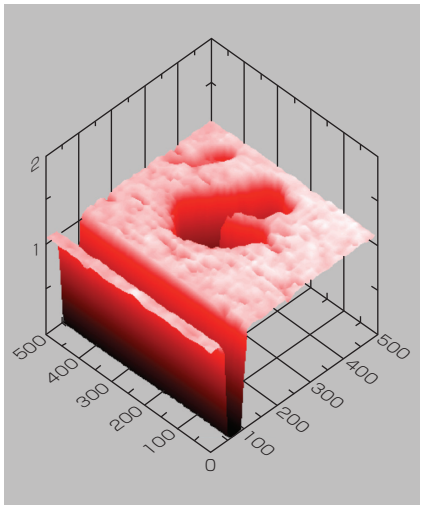

図3 CIGS（銅、インジウム、ガリウム、セレン）薄膜PVセルの電流マップが、グリッド線、損傷スポット、表面変化の特徴を描き出している。このマップは、10μmの分解能を持つ、NISTのスーパーコンティニウムベースの太陽シミュレータを、PVサンプル全体にスキャニングし、その結果生成された電流を記録することで作成した。中央の欠陥は、ピンポイントスクラッチで、これはデモ目的で最上位層の膜に作製したものである（資料提供：フィアニウム社）。

米NISTがフィアニウム社のスーパーコンティニウム光源を利用して開発したソーラシミュレータによって、ダイナミック照射スペクトルを生成できるので、前例のない太陽電池特性評価ができるようになった。タフト氏の説明では、このシミュレータは、時刻、時期、地理的位置、天候状態の変化を模擬することができる（**図3**）。ランプベースのシミュレータと異なり、その照明（単一横モードビーム品質の鮮やかなホワイトスポット）は、太陽のような、コリメートされた出力を提供し、顕微鏡のマイクロメートルスケールのスポットに焦点を結ぶこともできる。この点照明の能力によって研究者たちは、開発中の光起電力（PV）機器の高解像度2D効率マップを作成することができる。

任意にスペクトルや小焦点をプログラムできることは特に、多接合集光式太陽電池のテストに適している。タフト氏によると、パフォーマンスを最適化するために個々のジャンクションを個別に調べる必要があるからである。集光式太陽電池は、500sunsを超える照明でNISTにおいてテストされた。

デンマークのNKTフォトニクス社は、スーパーコンティニウム光源だけでなく、円筒形アルミニウムデバイスも製造している。これは平行移動ステージに容易にマウントでき、同社独自の分散設計をした非線形PCFの短いセグメントを含んでいる。ユーザーは、femto WHITEデバイスと、所有する超高速レーザを組み合わせてスーパーコンティニウムを生成することができる。デバイスには2つのタイプがあり、1つはオクターブの広がりをもつ白色光出力、もう1つは特にCARSアプリケーション用に調整されたダブルピーク出力を持つ。

同社のSuperK Extremeスーパーコンティニウムレーザは、そのままで完全なユニットであり、これも多様な出力スペクトラルを持つバージョンで提供される。Blueシリーズは、450nm以下の波長を必要とするアプリケーション向け、Whiteシリーズは460～2400nmに広がり、可視の光出力を必要とするアプリケーション向け、Redシリーズは、生体内イメージングやOCTアプリケーション向けに近赤外で最強となる光源。Violet SuperK Extremeは、400～2400nmで発光する。加えて、UVスペクトラル拡張ユニットは、270～400nmレンジの深紫外（DUV）を提供する。これによってタンパク質の固有蛍光励起などの利用、UV励起蛍光プローブの利用が可能になる。 LFWJ