

理学博士霜田光一君の「レーザーの物理とそれに基づく

分子分光学の研究」に対する授賞審査要旨

一、レーザーの物理的研究

レーザー（メーザーを含む）は分子による電磁波の誘導放出を利用して、周波数、方向性の均一度高く、強度の大きいコヒレントな電磁波を出す光源として、光学を量子光学に脱皮させ量子エレクトロニクスを産む等学術上大きい意義をもつが、霜田光一君は、C・H・タウンズらによってマイクロ波領域でのメーザーが作られた直後、タウンズらとの協力により(1)、また独立して、メーザーの諸特性、発振の理論、超微細構造が発振に与える影響、等を実験及び理論の両面から詳しく研究した(2)(3)。

赤外レーザーが出現した直前にも、霜田君はレーザーに関する現象論的理論を精しく展開し、ことに気体レーザーについては、問題となるあらゆる波長領域、実験条件の下で、レーザー発振のしきい値を与える具体的な式を導出している(4)(5)。これらの式はその後レーザーの設計の上で頻繁に利用されている。

レーザーの内部の強い電磁場では、誘導放出、吸収を支配する電場Eの2次以上、高次の現象（非線形現象）を取り扱う必要がある。飽和現象はその例であるが、気体レーザーでは発振管に沿う方向の分子の速さ v によって分子の吸収、放出する光の周波数にドブラー効果による差を生ずるため、 v によって飽和の程度が異なりうる。そのため、

レーザー発振光の同調スペクトルがドブラー効果による幅をもつ中で、その中央部分 ($\Delta\omega_0$ の分子の関与する部分) がとくに飽和度が高く、同調スペクトルにくぼみを生ずることがある。このくぼみの幅はドブラー効果による幅よりはるかに小さいので、これを利用してレーザー分光の分解能を著しく高めることができる。霜田君はこのくぼみの意義に着目し、この形をEの高次(9次)まで計算して求め(6)、特別の条件では蔽密解が得られることを示し(7)、飽和分光学に対し重要な貢献を行った。このほか、減衰しない緩和発振の機構を非線形吸収の効果として説明する等の先駆的業績がある(8)。

早期のレーザー研究の中で高橋秀俊、タウンズ両氏との共同での「レーザー増幅器におけるゆらぎの理論的研究」(9)は特筆に値する。一般にレーザーでは電磁波のゆらぎは量子雑音として重要であるが、霜田君らは光子が吸収される、他の光子を誘導する、あるいは新しい光子が生れるという確率を仮定し、レーザーの増幅あるいは吸収過程における光子数のゆらぎを計算し、量子雑音の理論の基礎を与えている。近年、非線形性を取り入れ、あるいは光子数を主軸形にして取り扱えないコヒーレンス等の考慮、さらには熱浴を入れて、量子統計力学的な研究が理論物理学者によって展開されたが、霜田君らの上記の研究はその源泉を作ったものと見られる。

さらに霜田君は気体レーザーの発振周波数の安定化について緻密な研究を行った。安定化に非常に重要なのはフーパー・ペロー型の共振器の安定であるが、霜田君は、共振器の鏡の位置を低周波で振らせ、光の出力に現われる変調の基本波、二倍波、三倍波を検出し、これによって鏡の傾き、レーザーの励起レベル、鏡の位置を自動的に修正する巧妙な考案を採用し、二つの独立な He-Ne レーザーの一方に ^{20}Ne 、他方に ^{22}Ne を入れ、その光のビートを

とって長時間にわたっての 10^{-6} 程度の安定性を確認した(10)―(12)。しかし、周波数を全くきまなかった値に固定させる絶対安定化のためには、メタン分子の $3.39 \mu\text{m}$ 付近の振動回転状態間遷移に当るスペクトル線が環境条件により影響されることが少なく(13)、しかも He-Ne レーザーの発振光同調スペクトルの幅内の周波数をもつことに注目し、He-Ne レーザーの発振周波数に対して固定することを試み、 10^{-11} 以上の精度が得られることを示した(14)。

しかし、霜田君の理論的に評価した安定度の限界(15)にはまだ距離があつたが、わが国の計量研究所において霜田君の指導により安定度を高める研究が行われる(16)一方、米国、ソ連等においても霜田君の提案を基とする研究が行われ、二、三年のうちに $10^{-11} \sim 10^{-12}$ の程度にまで改善されていった。現在、光速度の最も精度の高い決定法はメタンに安定化された He-Ne レーザー線の周波数と波長を同時に測定するものである。このようにこの研究は物理学の基本定数の決定、標準の設定などにつながるものであり、メトロロジ―等精密測定分野に及ぼす影響は著しいものである。

二、レーザー分光学の研究

レーザー光のように単色性、強さのすぐれた光を分光学に利用できれば分解能、検出感度を著しく向上させうる。しかし、このためには、レーザーの発振周波数がある範囲で可変にするか、または分子の遷移の周波数を変化させることが必要である。

(周波数可変レーザーによる分光)

一九六〇年代前半には世界的に周波数の可変性がよいレーザーはできていなかったが、霜田君は、原子レーザーに磁場をかけて発振周波数を変化させることを試み(17)(18)、技術的困難を克服して $3.5 \mu\text{m}$ の付近で 1 cm^{-1} 程度の周波

数の変りうるレーザーを作成した。これは狭い範囲であるが C-H 結合をもつ多くの分子 H_2CO , CH_4 , HDClO , HCOOH 等の振動回転スペクトルが測定され、その解析により分子の振動励起状態での諸定数が高精度で決定された。

(レーザーシュタルク分光)

これは調べようとする分子に電場をかけ、分子遷移がレーザー線に共鳴するのを観測するもので、ラジオ波を固定した磁気共鳴実験に似ている。このアイデアを最初に実現したのは、霜田君の D_2O 遠赤外レーザーを用いた NH_3 の回転遷移の観測である(19)。その後、カナダ、英国、フランス、米国等で相次いで研究が始められたが霜田君のグループの研究は常にそれらに先行している。 CO_2 , N_2O レーザーを用いた 10 cm^{-1} 帯での NH_3 , NH_2D 分子の ν_2 振動回転遷移では、各々の分子について数千本の共鳴線が観測され、その解析から振動の基底及び励起状態の諸定数が求められている(20)。精度は在来の赤外分光法によるものより確実に2桁はよい。また測定感度も著しく高く高次の禁制遷移も多く観測され、分子定数の決定に役立っている。

(二重共鳴分光)

霜田君はまだ二重共鳴法が認識されていなかった時期に、レーザーの実験の中でそのアイデアを実現している(21)。これは NH_3 レーザー遷移の強度がその上下の準位における超微細構造準位の間でのマイクロ波遷移によって著しく変化することを利用したもので、これにより弱い超微細構造衛星線を非常によい S/N 比で観測した。これは二重共鳴分子分光の起りと見る事ができる。

赤外等のレーザーが出現して以来、二重共鳴法はひろく分光学の諸分野で使われるようになったが、二重共鳴法は一般に分子を二種類の光の場の中に置き、一方の光（飽和光と呼ぶ）の周波数がある範囲で変化させるとき、その特定の周波数において他方の光（検出光と呼ぶ）の吸収強度に現われる変化を検出することにより、飽和光の遷移に係する分子の準位についての情報を得ようとするものである⁽²⁾。このためには、飽和光と検出光とが遷移において共通の準位をもつ場合が通常であるが、そうでない場合（4準位系）もある。二重共鳴法は（一）複雑なスペクトルの中から特定の遷移だけを抜き出して観測する、（二）測定不可能なほど弱い遷移を他の強い遷移と結合させて観測する、さらに4準位系では、（三）状態間の衝突誘起遷移を観測するなどの効用がある。

二重共鳴は非線形現象であり、その理論的解釈には、関係状態の各々への分子の分布（占有率）だけでなく、状態間のコヒーレンスの変化（密度行列表現では非対角要素の変化）をも考慮に入れなければならない。また、飽和光強度がある値より大きくなると検出光に現われる信号の符号が逆転する現象は、霜田君らによって、状態間の高次の摂動までを考えて、はじめて理解できることが示されている⁽³⁾。

霜田君はその協力者とともに、二重共鳴法を多くの有機分子に適用して活発な研究を行ってきた。例えば He-Ne レーザーの赤外光を検出光としマイクロ波を飽和光として行った HCOOH 分子の振動回転遷移についての実験では、二重共鳴法をとるにより検出感度が著しく向上し、また4準位系と見られる遷移も観測された⁽⁴⁾。これにより、通常の分光法で観測不可能な振動励起状態での回転遷移をかなり一般的に測定する道がひらかれ、振動励起状態での分子構造を基底状態の場合にほぼ匹敵するほどの精度で決定しうることが示された⁽⁵⁾。

霜田君らはさらにこの方法を HCCCHO 分子の ν_2 振動状態の解析に適用し、回転定数、遠心力歪定数を求め、振動励起状態の回転準位構造が振動回転相互作用で受けている歪などを明らかにしている。

上述のように霜田君はレーザーの開発に初期から携わり、そこに現われる物理的現象を深く追究した世界の小数の科学者の一人であり、それ以後レーザーの物理、その物理的標準への応用およびそれを巧みに応用した新しい手法による精度の高い分子分光学研究の途を開拓し、自らその分野の研究を進め世界におけるこれらの領域の学術の進歩に顕著な貢献をしている。

なお、霜田君は、この分野において数編の優れたレビュー論文、著書を執筆し、レビュー論文集の編集にも当っており、他方量子エレクトロニクスの国際会議を開催し、また国際純粹及び応用物理学連合の量子エレクトロニクス分科会委員をつとめる等、国際的に研究推進のための活発な活動を行っている。霜田君はその研究業績に対し、一九七三年に東レ科学技術賞を受け、一九七九年には米国光学会よりシース賞を受けている。

一、主要な論文目録

1. Further Aspects of the Theory of the Maser; K. Shimoda, T. C. Wang and C. H. Townes, Phys. Rev., **102** (1956) 1308
2. Characteristics of the Beam Type Maser I, II; K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jpn., **12** (1957) 1006, **13** (1958) 939
3. Characteristics of an Ammonia Beam Maser; K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jpn., **16** (1961) 1728
4. Theory of Masers for Higher Frequencies; K. Shimoda, Sci. Papers I. P. C. R., **55** (1961) 1

5. Threshold Condition of Masers for Higher Frequencies; K. Shimoda, *Appl. Opt.*, **1** (1962) 303
6. Fifth-, Seventh-, and Ninth-Order Calculations of the Lamb Dip in Lasers and Saturated Absorption; Koichi Shimoda and Kiyoji Uehara, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **10** (1971) 460
7. Exact Solutions in the Semi-Classical Theory of a Gas Laser for two Special Cases; Kiyoji Uehara and Koichi Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **10** (1971) 623
8. Amplitude and Frequency Variations in Ruby Optical Masers; K. Shimoda, *Proc. PIB Symposium 1963*, April 16-19 pp. 95
9. Fluctuations in Amplification of Quanta with Application to Maser Amplifiers; K. Shimoda, H. Takahasi and C. H. Townes, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **12** (1957) 686
10. Stabilization of the He-Ne Maser on the Atomic Line Center; K. Shimoda, *J. Opt. Soc. Am.*, **54** (1964) 560
11. Frequency Stabilization of the He-Ne Maser; K. Shimoda, *IEEE Trans. Instr. Meas.*, Dec. (1964)
12. Stabilization of the He-Ne Maser on the Atomic Line Center; K. Shimoda and A. Javan, *J. Appl. Phys.*, **36** (1965) 718
13. Stark Effect of the Absorption Line of Methane Observed by the 3.39 μm He-Ne Maser; Kiyoji Uehara, Katsumi Sakurai and Koichi Shimoda, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **26** (1969) 1018
14. Absolute Frequency Stabilization of the 3.39 μm Laser on a CH₄ Line; Koichi Shimoda, *IEEE Trans. IM-17* (1968) 343
15. Ultimate Stability of Methane-Stabilized Lasers; Koichi Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **12** (1973) 1222
16. Frequency Stabilization of the 3.39 μm Laser on a CH₄ Line; Toshiharu Tako, Misao Ohi, Yoshiaki Akimoto, Akira Sugiyama and Koichi Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **9** (1970) 1535

17. High Resolution Spectroscopy of Formaldehyde by a Tunable Infrared Maser; K. Sakurai and K. Shimoda, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **21** (1966) 1838
18. Tunable Infrared Maser Spectrometers; K. Sakurai and K. Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **5** (1966) 938
19. Stark Effects of the Rotational Lines of Ammonia Observed by a Far-Infrared Laser; Tadao Shimizu, Koichi Shimoda and Arimichi Minoh, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **24** (1968) 1185
20. Infrared Laser Stark Spectroscopy; Yoshifumi Ueda and Koichi Shimoda, in "Laser Spectroscopy", eds. S. Haroche *et al.* (Springer, Heidelberg, 1975) pp. 186-197
21. New Method for the Observation of Hyperfine Structure of NH_3 in a "Maser" Oscillator; K. Shimoda and T. C. Wang, *Rev. Sci. Instrum.*, **26** (1955) 1148
22. Double-Resonance Spectroscopy of Molecules by Means of Laser; Koichi Shimoda, Topics in Appl. Phys. vol. 2 "Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules", ed. H. Walther (Springer, Heidelberg, 1976) pp. 197-252
23. Pressure Dependence of Infrared-Microwave Double Resonance in Formaldehyde; Koichi Shimoda and Michio Takami, *Opt., Commun.*, **4** (1972) 388
24. Microwave Spectrum of HCOOH in the $\nu_{\text{OH}}=1$ Vibrational State Observed by Laser-Microwave Double and Triple Resonance; Michio Takami and Koichi Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **13** (1974) 1699
25. Microwave Spectroscopy of the Vibrationally Excited State of Molecules by Infrared-Microwave Double Resonance; Michio Takami and Koichi Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **12** (1973) 608
26. Infrared-Microwave Double Resonance of Propynal by Using the 3.51 μm He-Xe Laser; Michio Takami and Koichi Shimoda, *J. Mol. Spectrosc.*, **59** (1976) 35

27. On the Motion of Positive Ions in the Geiger-Müller Counter; K. Shimoda and I. Ogawa, Proc. Phys. Math. Soc. Jpn., **25** (1943) 445
28. A Symmetrical Six-arms Waveguide Circuit for Microwave Bridge; K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jpn., **5** (1950) 255
29. The Hyperfine Structure of Sodium by a Microwave Absorption Method; K. Shimoda and T. Nishikawa, J. Phys. Soc. Jpn., **6** (1951) 512
30. Atomic Clocks and Frequency Standards on an Ammonia Line, I, II, III; K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jpn., **9** (1954) 378, 558, 567
31. Ammonia Maser on the 3, 2 Line as a Frequency Standard I; K. Shimoda and N. Kohno, Jpn. J. Appl. Phys., **1** (1962) 5
32. Radio Frequency Spectroscopy Using Three-Level Maser Action; K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jpn., **14** (1959) 954
33. The Three-Level Gas Maser as a Microwave Spectrometer; T. Yajima and K. Shimoda, J. Phys. Soc. Jpn., **15** (1960) 1668
34. Beam-Type Masers for Radiofrequency Spectroscopy; K. Shimoda, H. Takuma and T. Shimizu, J. Phys. Soc. Jpn., **15** (1960) 2036
35. Proposal for an Electron Accelerator Using an Optical Maser; K. Shimoda, Appl. Opt., **1** (1962) 33
36. High-Speed Photography Using a Ruby Optical Maser; T. Yajima, F. Shimizu and K. Shimoda, Appl. Opt., **1** (1962) 770
37. Gain, Frequency Shift, and Angular Distribution of Stimulated Raman Radiations under Multimode Excitation; K. Shimoda, Jpn. J. Appl. Phys., **5** (1966) 615

38. Self-Trapping of White Light and the Redshift by Nonlinear Optical Effects in a Stellar Plasma; Koichi Shimoda, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **24** (1968) 1380
39. Self-modulation and Picosecond-Pulse Generation by Stimulated Raman Scattering; Koichi Shimoda, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **8** (1969) 1499
40. Optical Third Harmonic Generation by Molecular Vibration; Yoshifumi Ueda and Koichi Shimoda, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **28** (1970) 196
41. Nonlinear Spectroscopy of Molecules; Koichi Shimoda and T. Shimizu, in *Progress in Quantum Electronics*, eds. J. H. Sanders and S. Stenholm (Pergamon, Oxford 1972) vol. 2, pp. 43-139

他九八編