

Title	極限超短光パルスを目指して
Author(s)	木下, 修一; 有吉, 哲夫; 北野, 博史
Citation	大阪大学低温センターだより. 1997, 99, p. 13-20
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/5981">https://hdl.handle.net/11094/5981</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

# 極限超短光パルスをめざして

理学研究科 木下修一、有吉哲夫、北野博史 (内線5366)

E-mail: skino@phys.sci.osaka-u.ac.jp

## 1 はじめに

パルスレーザーを扱った人ならば、光パルスはどこまで短くなるものだろうと一度は考えたことがあるに違いない。我々もこの20年間レーザーに携わってきたが、ご多分にもれずレーザーの最短パルスの報告には常に興味を持ってきた一人である。一昔前ならば、「ピコ秒 ( $10^{-12}$ 秒)」ということばは超短パルスの代名詞みたいなものだったが、いつのまにか、「サブピコ秒」ということばに置き換わり、いまやレーザーの研究に携わっている人以外でも「フェムト秒 ( $10^{-15}$ 秒)」という単位を平気に使えるようになってきている。事実、これまでレーザーを使っていなかった研究室でも気軽に「フェムト秒」レーザーを扱えるようになってきているのは大いなる驚きである。これほど広くフェムト秒レーザーが普及したのはチタンサファイアレーザーが開発されたことに負うところは大きい。我々の研究室でも市販のいろいろなタイプのチタンサファイアレーザーがあるが、いったいこのレーザーがどこまで短いパルスを発生できるのかというのは、つね日頃の関心の的であった。このような単純な動機から超短パルスレーザーの限界を調べてみたくなり、それではということで自分たちでレーザーを作ってみることになった。この雑誌のタイトルの「低温センターだより」ということばにはあまりなじまないかもしれないが、分光や光学測定のためのフェムト秒の光源がこんなに簡単に作れて、なおかつ、チタンサファイアレーザー自体が完成されたものでなく今後の発展性も含んでいるんだということを知っていただきたくこの文章をしたためてみた。

チタンサファイアレーザーからフェムト秒パルスが発生したのはわずか数年前の1991年のことで、Spenceらによって60fsの超短光パルスを発生させることに成功したのが初めてである<sup>[1]</sup>。このレーザーはすべて固体素子で構成されているため、以前に普及した色素レーザーなどに比べると遥かに安定で使いやすいものであった。今日では、パルスレーザーとしてだけでなく、利得のある波長領域が700–1000nmと広いため波長可変レーザーとしても、スペクトル幅の狭い単一モードレーザーとしても、また、増幅器を用いた高出力レーザーの光源としても広く利用されている。パルス光源として現在市販されているチタンサファイアレーザーのほとんどが60–100fsの時間幅をもち、出力も1W程度と大きいが、結構高価であり、まだ簡単に研究室で買えるというものではないようである。そこでアルゴンレーザーなどの励起源だけがあるという方のために、わずか100万円弱の出費をするだけで市販のものよりもはるかに性能のよいレーザー (パルス幅10fsくらい) をつくることができるという話を紹介したい<sup>[2]</sup>。

## 2 チタンサファイアレーザーの製作とパルス発振の原理

図1に製作したレーザーの構成を示すが、このレーザーは非常に単純な造りをしている。わずかに4枚の鏡、2個のプリズム、それと、レーザー媒質であるチタンサファイア結晶だけからできている。図の左側から励起源であるアルゴンレーザーを結晶に焦点を結ぶようにレンズで入射する。M3はアルゴンレーザーからの光（青から緑色）は透過し、発振する赤色は反射するようにした鏡で、また、M1は3-10%くらい赤色が透過できるようにした出力鏡である。いずれも市販の鏡をそのまま使うことができる。チタンサファイア結晶からでた光はプリズムを二つ通ってM4の鏡で反射され、再び結晶を通して今度はM1で反射されるが、このとき内部のパワーの幾分かを出力するようになっている。励起する光は一定強度の光を発生するアルゴンレーザーであることを考えると、この共振器のどこにフェムト秒というような短いパルス光を発生する機構があるのか不思議に思うかもしれないが、実はパルスにする機構はレーザー自身もっているのである。

一般にレーザーでパルスをつくるには、励起する光だとか電流をパルスにすることによって作る方法と、励起する光や電流は一定だが、共振器の利得や損失に光の一往復にあわせて周期的な変調を加えてつくる方法がある。前者の場合パルスになるのは当然と思われるが、後者の方は次のように考えると分

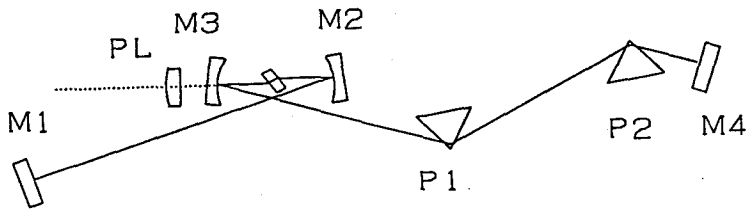


図1 自作したフェムト秒チタンサファイアレーザーの構成

かりやすい。レーザーは共振器の鏡の間を光が往復しているわけだが、この中で安定な光が存在するためには共振器一往復の距離が光の波長の整数倍になる特定の波長に限られている。これを（縦）モードと呼ぶが、レーザーでは利得の範囲内でこの条件を満足するいろいろなモードで発振することができる。通常、これらのモードで発振した光は位相がバラバラなため、全体としての強度は少し変動するが平均としては一定の強度を保つような連続発振をしている。周期的な変調はこれらの発振モード間の位相を揃えて、ちょうどフーリエ合成するようにパルスを作り出すのである。言い換えれば、位相を揃えてパルスをつくることにより、周期的な利得や損失変調に対してもっともレーザー出力が高くなるようにレーザー自身が調整していることになる。これをモード同期と呼んでいる。いったんパルスになるとパルスの前半部分はレーザー媒質から利得を多くもらえ、後半部分はその分少なくなるので、後ろが削られパルスは前へ前へと移動していく。しかし、周期的な変調のせいで前に行きすぎると今度は利得が少なくなったり損失が多くなったりで、前がつかえてしまうため、結果的に後ろが削られていきパルスは先鋭化していく。したがって、レーザーそのものの性質からパルスはどんどん狭くなり、原理的には不確定性関係によって利得の波長幅できまる時間幅にまでなっていくのである。

ここで製作したレーザーでは、この変調を外部から加えることなしに自動的に起こしてしまっているため、実に簡単な構成になっているのである。ここで起きているモード同期はカーレンズモード同期という方法である。一般に物質の屈折率は強い電場を加えると変化するが、このうち電場の2乗に比例し

た変化をカー効果と呼んでいる。等方的な物質では電場に比例した項は対称性のために消えてカー効果が最低次の効果になる。光の電場により起きるカー効果を特に光カー効果と呼んでいるが、ここではこの効果によりモード同期が起きている。すなわち、発振が可能なだけの大きい利得が得られているときにたまたま強い光が発生するとチタンサファイア結晶中では、光カー効果により屈折率変化がおきる。このとき、光はビームの中心付近では強く周辺部では弱いため、中心付近で大きな屈折率変化を生じる。この屈折率変化が正であると光ビームの中心付近で光はより遅れるためちょうど凸レンズを通ったときのように波面が曲がる。つまり、発生した光が強いときだけ共振器内に凸レンズをいれたようなものである。この様子を図2に示す。共振器の調整を凸レンズが入ったときにもっとも損失が少なくなるようにあらかじめ調整しておくと、たまたまパルスになるとそれがもっとも有利なので、持続して発振することになる。実際には共振器にスリットなどを入れ、強い光が発生したときに発振ビームの径が狭くなるようにしておくことが良くやられている。ここでつくった共振器の場合は特にスリットをいれなくてもモード同期は安定して起きるが、その原因についてはよくは分かっていない。このように、このタイプのレーザーでは光パルスが共振器内を往復して結晶中を通ることそれ自身が周期的な変調の役割を果たしている。チタンサファイアレーザーは利得の波長幅が非常に広いので、このような機構だけでフェムト秒の光パルスになることができるのである。

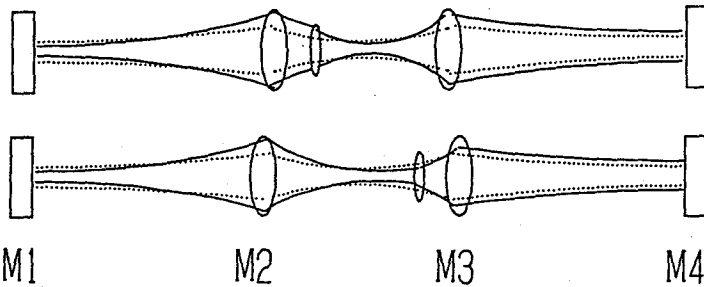


図2 カーレンズモード同期の機構

以上のようなモード同期機構から明らかなように、このタイプのレーザーをパルスで発振させるためには、共振器の調整が非常に重要になる。そこで、共振器を組んだ後、鏡の位置と結晶との相対位置をいろいろと変化させ、どの位置でパルス発振が起きるのかを細かく調べてみた。その結果を図2に示す。図の◎は安定してモード同期がかかった位置、○はパルスの幅が広いあるいは不安定なモード同期だった点、△はほんの一瞬だけパルス発振する位置、×は全くパルス発振しなかった位置を表している。また、矢印で示した領域は発振した全領域を示している。このように発振領域に飛びがあるのは、共振器をチタンサファイア結晶に対して非対称にしているからで、4つの境界はそれぞれM1、M4の鏡の位置でレーザーが平行ビームになる場合と焦点を結ぶ場合で、これをはずれると安定共振器にはならないことが共振器の安定性の考察から理解できる。また、パルス発振する領域がこのように限られているのは、図2に示すような発振ビームのビーム径が狭くなるのがカーレンズ効果が結晶の左端で起きるときと右端で起きるときの二つの場合に限られているからである。

光パルスの時間幅が狭くなるにつれ、当然ながら波長幅が広がって行く。この広がりには10fsくらいの幅の光パルスでは100nm近くにもなる。このように、スペクトル幅が広がってくると今まであまり考

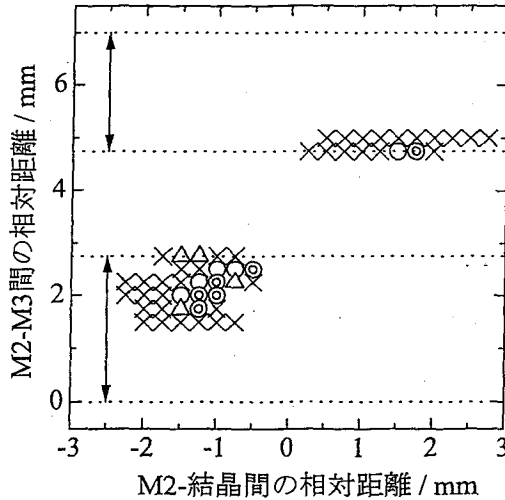


図3 共振器の鏡と結晶との相対距離を変化させたときのチタンサファイアレーザーの発振特性

慮にいれなくてもよかった屈折率の分散の効果が大きな影響を与えることになる。すなわち、一般に物質の屈折率は紫外域に吸収を持つ関係で、波長が短くなるにつれ大きくなる（正常分散）。そこで物質中を光が通過すると短波長の光は長波長の光より遅れてしまい、結果として時間幅が広がってしまう。これを群速度分散と呼んでいるが、フェムト秒領域の光を扱う上で常に考慮に入れておかななくてはならないことがらである。共振器の中でも同じことで、利得を与えるチタンサファイア結晶自身が逆に分散を与えるもっとも大きな原因となっているのは皮肉なことである。これを防ぐには逆符号の分散をもつような光学系を挿入すればよいが、二つのプリズムを逆に配置したプリズム対がそれにあたる。原理は第1のプリズムで分散した光は短波長の方が大きく屈折されるが、2番目のプリズムではその分だけプリズムの中を通る距離が短くなり遅れも小さい。逆に長波長の光は屈折が小さい分、プリズムの中を長く通って遅れるようになる。第2のプリズムを光ビームに垂直に動かして光ビームがプリズムの中程を通るように挿入させていくと、プリズム対による逆分散の効果に加え、厚さの異なるガラス板を透過させた正常分散の効果が加わる。そこで、あらかじめ逆分散の方が大きくなるように余分にプリズム対の間隔を設定してやると、プリズムを少し挿入することで結晶での分散をちょうど打ち消すような最適条件を得ることができる。屈折率の分散のうち時間幅の変化に効くのは2次以上の分散であり、プリズム対はこのうち2次の分散だけを補償することができる。3次以上の分散は現在のところ補償することはかなりむづかしいので、3次以上の分散の効果が出きる限り小さくなるように工夫するのが短いパルスを得るポイントとなる。ここではチタンサファイア結晶を通常の1/10の厚さの2mmとして分散の効果を極力小さくし、そのかわり波長分散は小さいが3次以上の分散も小さい熔融石英をプリズム対に用いることによりこの問題をある程度まで解決している。

### 3 自作したフェムト秒レーザーの発振特性と分光への応用

図4は安定してモード同期がかかる状態に共振器を調整して、プリズム対を少しずつ挿入していった時に、群速度分散の補償がうまくいってパルスがだんだん狭くなると同時にスペクトルが広がっていく

様子を示している。パルスの時間波形は光を二つに分けて一方の光を少しずつ距離を変えながら二つの光を $\text{KH}_2\text{PO}_4$ などの非線形結晶に重ねて入射し、二つのパルス光が重なったときにだけ発生するような第2高調波発生という現象による強度自己相関法を用いて測定している。図5は光パルスがもっとも狭くなるように調整した時の強度自己相関波形で、パルスの時間波形を $\text{sech}^2$ 型の波形であると仮定してフィットさせると時間幅10.3fsが得られた。プリズムを更に挿入するとサイドパルスが発生するが、この状態では7.7fsという非常に短いパルスが得られることが分かった。このように、チタンサファイアレーザー自身は非常に単純な構成になっているにも拘わらず、共振器の調整によりフェムト秒という狭いパルスを発生できるのは驚異である。この時の出力は数百mW程度であり、さまざまな分光法に用いるには十分である。実際に物質の光カー効果の測定をした結果を図6に示すが、市販の90fsくらいの幅をもつチタンサファイアレーザーでは分離しなかったような物質中の電子雲による応答と核の応答が見事に分かれて見えるのが分かる。

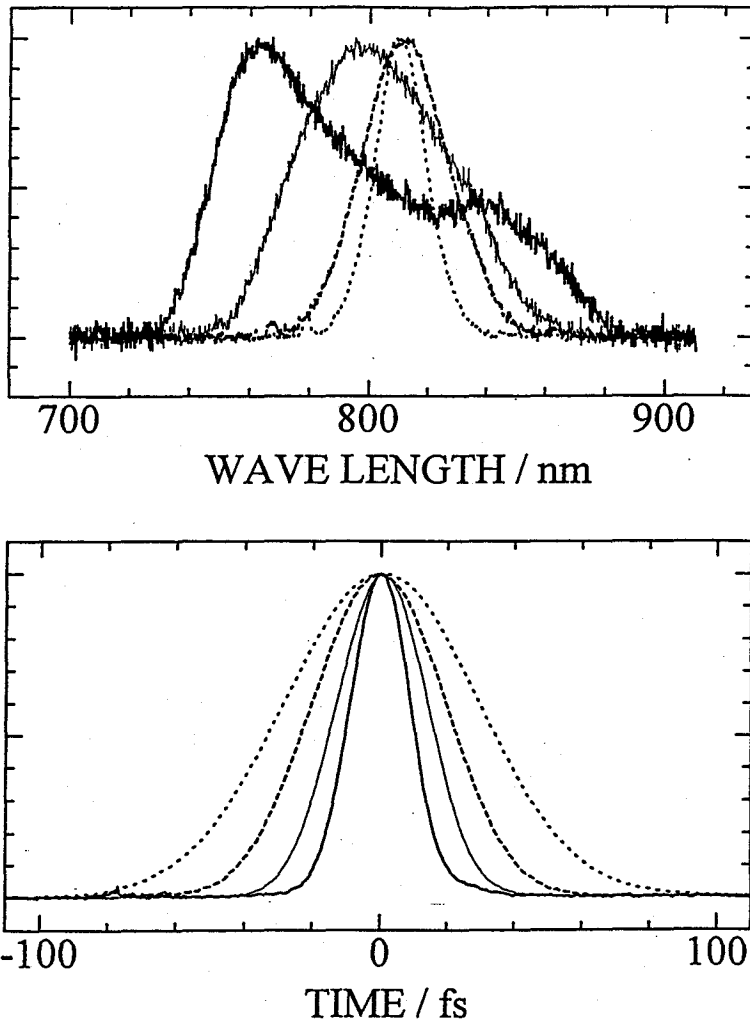


図4 共振器内のプリズムを挿入していった時のレーザーのスペクトルと強度自己相関波形の変化

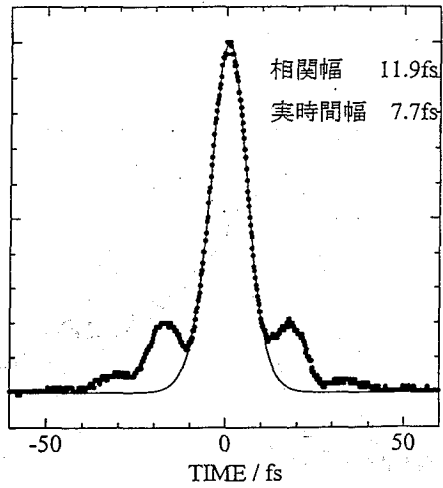
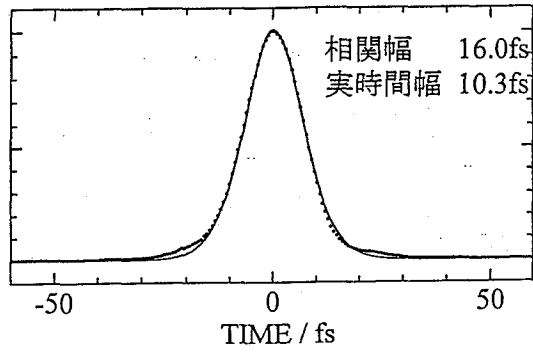


図5 パルスの時間幅が狭くなったときの強度自己相関波形

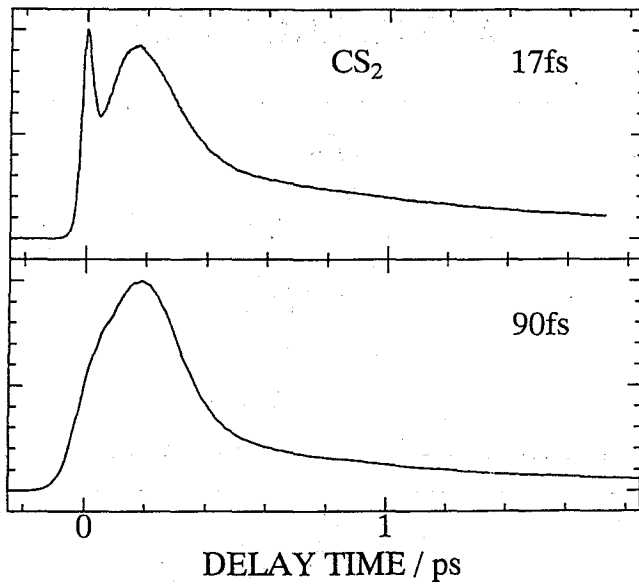


図6 時間幅17fsと90fsの光パルスを用いた時の液体CS<sub>2</sub>の光カー効果の測定結果の比較

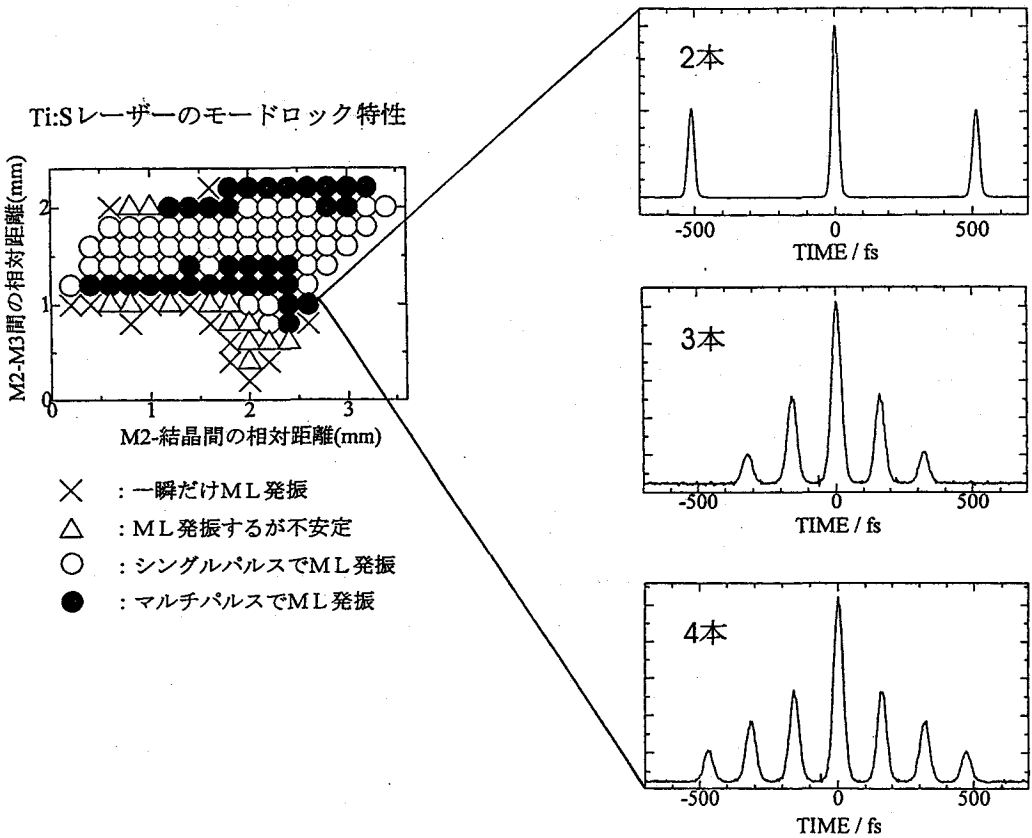


図7 共振器の鏡と結晶との相対距離を変化させたときのマルチパルス発振の様子（強度自己相関波形）

#### 4 今後の展望

以上のように $\sim 8$  fsもの短い光パルスがこのレーザーから発生することが分かったが、このときのレーザーのスペクトルは不確定性の限界からははるかに広く、原理的には3fsほどのパルスがでてよいはずである。この限界を与えているものは、チタンサファイア結晶やプリズム対、および、鏡の反射における3次以上の位相分散の効果が補正できていないことが原因であると考えられる。結晶を薄くすることはその分だけチタンの含有量を増やさなければならないため現在の技術では難しい。そこでチタンサファイアでこれ以上の発展はないように思われていたのだが、ひょんなことで面白い現象が発見された。それは、共振器の鏡の位置を変化させパルスになる条件を探しているとき、場合により何本ものパルスが発生する現象が見られたことである。図7に共振器の条件とパルス列の状態を強度自己相関関数として測定した例を示すが、単一パルスでモード同期がかかる領域の周辺にマルチパルスで発振する領域が存在することが分かる。このとき場合により図に示すように、パルスは2本、3本、4本になったりさまざままで最高6本まで発振することが確認できた。パルス間隔は場合により100–500fsとばらばらだが、等間隔に発振することもまた間隔にばらつきが見られることもあった。いずれにしてもパルスの本数が少ないときにはそれぞれの状態でかなり安定であることがわかった。こうした面白い振る舞いの原



因はまだ分かっていないが、マルチパルス発振をしているときは時間波形に対応するような変調が周波数領域にも現れている。そこで、この変調によりいくつもの区分された周波数領域で、お互いに位相がランダムな状態で発振すると広い時間幅を与えるが、モード同期のようにお互いどうして位相がロックされるとパルス列を与えるとするとは何となく説明が付くのではと考えている。いずれにしても、100–500fsの短い時間間隔すなわち10THz程度の周期でパルス幅の狭いパルスの列がレーザーから直接に発生しているので、何か応用に使えないかと夢を膨らませている毎日である。

#### <参考文献>

- [1] D.E. Spence, P.N. Kean and W. Sibbett, *Opt. Lett.* 16 (1991) 42.
- [2] 有吉哲夫、木下修一、*分光研究* 46 (1997) 101.