

# 最近の技術から

## 有機ファイバーによるフェムト秒レーザーパルス圧縮

山下 幹雄

北海道大学工学部数物系共通講座 〒060 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

### 1. はじめに

超短光パルスのスペクトル幅を線形チャープにより広げた後、その時乱れた位相を逆の群速度分散素子によりチャープ補償することによって、スペクトル幅の逆数近くまでパルス幅を狭くすることができる<sup>1)</sup>。線形アップチャープは、シングルモードファイバーに被圧縮パルス(瞬時強度  $I_{in}(t)$ ) を伝播させ、3 次の非線形光学現象の一つである非線形屈折率効果 ( $\Delta n(t) = \bar{n}_2 I_{in}(t)$ ;  $\Delta n(t)$  屈折率変化,  $\bar{n}_2$  非線形屈折率) と正の群速度分散  $\bar{k}$  とが協調しあって可能となる。圧縮後のパルス幅は、 $\bar{n}_2$  と  $I_{in}$  の平方根に比例して狭くなり、 $\bar{k}$  の平方根に比例して広がる。また、被圧縮パルス幅がフェムト秒と狭くなると、線形チャープを維持するための最適ファイバー長は短くなり、必要な  $I_{in}$  も急激に増加する。このため、 $\bar{n}_2$  の小さい石英ファイバーを利用してフェムト秒レーザー出力パルスを圧縮するには、高増加可能な光増幅システムが必要となる。しかしこの増幅パルスは、安定性が悪く繰返し周波数も落ちるため、実用性に問題がある。

レーザー出力パルスを増幅せず直接圧縮するには、 $\bar{n}_2$  が大きくてフェムト秒光パルスに応答し、かつ吸収のない非線形光学材料が必要である。我々は最近、非共鳴域で電子分極により生じる非線形性を有する結晶は、3 次の非線形光学感受率が、2 次の非線形光学感受率の 2 乗に比例して大きくなることを理論的に指摘した<sup>2)</sup>。したがって、最近の 2 次非線形性の大きい有機結晶は、フェムト秒光パルス圧縮材料として最適であると考えられる。以下に有機結晶をコアとした非線形ファイバーによるフェムト秒レーザーパルス圧縮の我々の研究について概説する。

### 2. 有機結晶コアファイバー

フェムト秒光パルス圧縮素子としての有機結晶コアフ

ァイバーの条件は、既述の条件に加えて、①数 mm 長以上のシングルモードファイバーである、②ファイバー伝播軸に対して垂直な面近くに非線形軸がある、③ $\bar{k}$  が小さい、④ファイバー結合損失および伝播損失が小さい、⑤光パルスによる損傷ダメージしきい値が高い、ことである。これらを考慮し、住友電工の協力を得て、4-(N, N-dimethylamino)-3-acetamido nitrobenzene (DAN) をコア結晶として、高屈折重フリントガラスをクラッドとしたファイバー<sup>3)</sup> を検討した。ファイバーは、ブリッジマン・ストックバーガー法により直径 2~4  $\mu\text{m}$ <sup>4)</sup> クラッド用キャピラリー管内に結晶成長させ、作製された。DAN は、 $\text{N}(\text{COOCH}_3)_2$  および  $\text{N}(\text{CH}_3)_2$  の電子供与基で置換された、緑色まで透明な(吸収バンドは 370 nm 付近)、分子内電荷移動型ニトロベンゼン誘導体である、その 2 次非線形光学定数  $d_{33}^{23}$  は 40 pm/V<sup>5)</sup> で、非線形軸は、ファイバー断面近くにある。ファイバー長 3~7 mm、クラッド径 $\sim$ 2 mm で、630 nm 付近でシングルモードである。また、ファイバー端面が結晶へき界面に一致している。

このファイバーのフェムト秒応答非線形屈折率  $\bar{n}_2$  DAN 値の測定が次のように行われた<sup>4)</sup>。衝突パルスモード同期連続発振色素 (CPM) レーザーを、1 kHz 繰返しエキシマレーザー励起 2 段増幅器で高出力化する。その 250 fs $\cdot$ 625 nm 増幅パルスをファイバーに伝播させる。分散とあいまって自己位相変調により生じる出射スペクトルの拡がり、1 kHz に同期したマルチチャンネルスペクトル光瞬時観測装置により測定される。結果は、DAN ファイバーに対しては、小さな  $I_{in}=500$  W パルス (入射スペクトル幅 3.3 nm) で 12.1 nm のスペクトル拡がり観測されたのに比べ、石英ファイバーに対しては、1000 倍大きい  $I_{in}$  で 19.8 nm の拡がり観測された。

ファイバー中の非線形パルス伝播の結果生じるスペクトル拡がり、非線形シュレディンガー方程式<sup>1)</sup> を基にして評価できる。十分な入射強度の線形チャープ域で

は、同一入射光パルス条件（強度のみ異なる）とファイバー条件に対して、2種のファイバーの出力スペクトル半値幅の比  $\Delta\nu_{\text{DAN}}/\Delta\nu_{\text{G}}$  は、次式で与えられる<sup>1)</sup>。

$$\frac{\Delta\nu_{\text{DAN}}}{\Delta\nu_{\text{G}}} = \left[ \frac{(n_{2,\text{DAN}} \times I_{\text{in,DAN}}) / (n_{0,\text{DAN}} \times \bar{k}_{\text{DAN}})}{(n_{2,\text{G}} \times I_{\text{in,G}}) / (n_{0,\text{G}} \times \bar{k}_{\text{G}})} \right]^{1/2}$$

ただし、 $I_{\text{in,DAN}}$ ,  $I_{\text{in,G}}$ ;  $n_{2,\text{DAN}}$ ,  $n_{2,\text{G}}$ ;  $n_{0,\text{DAN}}$ ,  $n_{0,\text{G}}$ ;  $\bar{k}_{\text{DAN}}$ ,  $\bar{k}_{\text{G}}$  は、それぞれ DAN ファイバーと石英ファイバーに対する入射光強度、非線形屈折率、線形屈折率、群速度分散である。625 nm での  $n_{0,\text{DAN}} = 1.22 \times n_{0,\text{G}}$ ,  $\bar{k}_{\text{DAN}} = 36.7 \times \bar{k}_{\text{G}}$  と、上述の結果とを上式に代入すると、 $n_{2,\text{DAN}} = 1.7 \times 10^4 \times n_{2,\text{G}}$  となる。したがって、DAN ファイバーの  $n_{2,\text{DAN}}$  は、 $2.7 \times 10^{-17}$  (m/V)<sup>2</sup> である。この値は、同族分子のニトロベンゼンの非線形屈折率のフェムト秒応答成分の約100倍大きい。

### 3. フェムト秒レーザー出力パルスの直接圧縮実験

DAN ファイバーを用いて、39 fs・1.4 kW (～625 nm, スペクトル幅 11.1 nm) 色素レーザー出力パルスを、増幅システムを用いることなく直接圧縮する実験が行われた<sup>5)</sup>。左右両回りの等価な2出力光の一方のパルス幅を自己相関器でモニターし、他方のパルスを 3.6  $\mu\text{m}$  コア径、5 mm シングルモード DAN ファイバーに伝播させた。この時のファイバー透過率は18%であった。ファイバー出力光の一部は、スペクトル拡がりモニターするため、スペクトル観測装置により検出された。一方、主パルス部は回折格子対に入射され、チャープ補償を行った後、第2の自己相関器により圧縮後のパルス幅が測定された。この結果観測されたスペクトル拡がりは、17.9 nm、圧縮パルス幅は22 fsであった。これは、レーザー出力パルスを増幅することなく圧縮されたこれまでのパルスのうちで最短のパルスであると共に、有機ファイバーを用いたパルス圧縮としては初の成功例である。

### 4. 今後の課題

非線形有機結晶ファイバーを用いて、ピコ秒半導体レーザーを増幅することなく直接フェムト秒光パルスに圧縮することは、高汎用性の高時間分解分光光源への応用、光情報技術への応用にとって大きなインパクトを与える。このことを DAN ファイバーに対して定量的に検討するために、非線形パルス伝播シュレディンガー方

程式<sup>1)</sup>を用いて小さな  $I_{\text{in}}$  のピコ秒パルス（波長 830 nm）について計算機シミュレーションを試みた<sup>6)</sup>。その結果、 $I_{\text{in}} = 10$  W, 5 ps パルス光に対して、最適ファイバー長 3.7 cm の時、66 fs フェムト秒パルス発生が可能であることがわかった。

また、 $I_{\text{in}}$  が数 kW を超えると、100  $\mu\text{m}$  以下の最適ファイバー長で 10 fs 以下のパルス列発生が可能である結果も得た。すなわち、入力パワーが大きくなると、非線形有機結晶膜でフェムト秒パルス圧縮が可能となる。このことは、結晶膜の利用のしやすさ、製作の容易さから注目すべきことである。この結晶膜によるフェムト秒パルス圧縮の手法を、CPM 色素レーザーより数十倍大きい瞬時強度のフェムト秒パルスチタンサファイアレーザーに応用すれば、10 fs 以下の高繰り返し極限パルス列の発生が可能となる。

最後に、今後解決すべき有機結晶ファイバー作製の課題について列挙する。有機粉末試料の高純度化、結晶成長の最適化をはかり、①ファイバー透過効率の改良、②ファイバー損傷しきい値の耐光強度性の改善、③ファイバー長の長尺化を行う必要がある。

### 文 献

- 1) J. Herrman and B. Wilhelmi: *Lasers for Ultrashort Light Pulses* (North-Holland, 1987) p. 253; G.P. Agrawal: *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, 1989).
- 2) R. Morita and M. Yamashita: "Relationship between second- and third-order nonlinear optical susceptibilities due to electronic polarization," *Jpn. J. Appl. Phys.*, 32 (1993) L 905.
- 3) T. Uemiyu, U. Uenishi, Y. Shimizu, S. Okamoto, K. Chikuma, T. Thoma and S. Uemegaki: "Nonlinear optical properties of materials," *Proc. SPIE*, 1148 (1989) 207.
- 4) M. Yamashita, K. Torizuka and T. Uemiyu: "Femtosecond-response, highly third-order nonlinear 4-(N, N-dimethylaminomethyl)-3-acetamido nitrobenzene crystal cored fiber," *Appl. Phys. Lett.*, 57 (1990) 1301.
- 5) M. Yamashita, K. Torizuka, T. Uemiyu and J. Shimada: "Compression of nonamplified femtosecond pulses using nonlinear organic fiber," *Appl. Phys. Lett.*, 58 (1991) 2727.
- 6) M. Yamashita: "Organic crystalline fiber for efficient compression of femtosecond laser pulses," *Ultrafast Phenomena VIII*, ed. J.-L. Martin, et al. (Springer-Verlag, 1993) p. 313.

(1993年8月12日受理)