

解 説

超短パルス発生技術

渡部 俊太郎

東京大学物性研究所 〒106 東京都港区六本木 7-22-1

(1995年4月17日受理)

Ultra Short Pulse Technology

Shuntaro WATANABE

Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, 7-22-1, Roppongi, Minato-ku, Tokyo 106

1. はじめに

可視光の1周期は2 fs (fs: 10^{-15} 秒) 程度である。現在までに得られた最短パルスが6 fs であるから¹⁾、パルス幅は光の1周期と同程度である。これ以上短いパルスを得るには中心波長と同程度の波長幅の可視光か、短波長光を使わざるを得ない。

図1に短パルス化の歴史を示す。数年前までは色素レーザーが主流で、衝突パルスマード同期 (colliding pulse modelocking) が到達点であった。発振器単独で得られたパルス幅が最短27 fs²⁾、ファイバーを用いたパルス圧縮器を附加して6 fs が得られた。最近の話題は Ti: サファイアレーザーに代表される固体レーザーである。光カーラー効果による自己モード同期 (カーレンズモード同期) により、発振器単独で8.2 fs が得られた³⁾。共振内の適当な分散補償により一種のソリトンが形成されると考えられ、非常に安定である。倍波やパラメトリック発振により、波長域を拡大し、今では色素レーザーにとって変わりつつある。この解説では、(1) フーリエ一限界パルス、(2) 分散とチャープ、(3) 各種モード同期法、(4) 分散補償とパルス圧縮、(5) チャープパルス増幅 (CPA) を用いた增幅法について述べる。

2. フーリエ一限界パルス

時間領域の振幅 $E(t)$ と周波数領域の振幅 $E(\omega)$ は互いにフーリエ変換の関係にある。今、時間的な位相変化のないガウス形パルス

$$E(t) = \frac{E_0}{\tau} \exp(-t^2/2\pi^2) \exp(-i\omega_0 t) \quad (1)$$

を考える。ただし ω_0 は中心周波数、 τ はパルス幅に対応する。このスペクトル $E(\omega)$ は

$$\begin{aligned} E(\omega) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp(i\omega t) dt \\ &= E_0 \exp(-\tau^2/2)(\omega - \omega_0)^2 \end{aligned} \quad (2)$$

となり、中心周波数 ω_0 のガウス形となる。各々強度を $I(t) = E(t)E^*(t)$, $I(\omega) = E(\omega)E^*(\omega)$ とし、その半値全幅をパルス幅、スペクトル幅とすると、各々

$$\Delta t = 2\tau \sqrt{\ln 2} \quad (3)$$

$$\Delta\omega/2\pi = \sqrt{\ln 2}/\pi\tau \quad (4)$$

となり、その積は

$$\Delta t \Delta\omega/2\pi = 0.441 \quad (5)$$

となる。一般には式(1), (2)で一定でない位相項 $\exp(i\phi(t))$, $\exp(-i\phi(\omega))$ がかかり、式(5)の左辺は右辺より大きい。式(5)のように等号の成り立つ場合、フーリエ一限界と呼ぶ。式(5)の右辺の数値はパルス波形によって決まる一定値で例えば $\text{sech}^2(t)$ パルスでは 0.315 である。

3. 分散とチャープ

フーリエ一限界パルスが媒質を通過すると周波数に依存した位相変化 $\phi(\omega)$ を受ける。通過後のパルス振幅 $E'(t)$ は

$$E'(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega) \exp(-i\phi(\omega)) \exp(-i\omega t) d\omega \quad (6)$$

と表せる。ここで $\phi(\omega)$ を ω_0 を中心にティラー展開すると

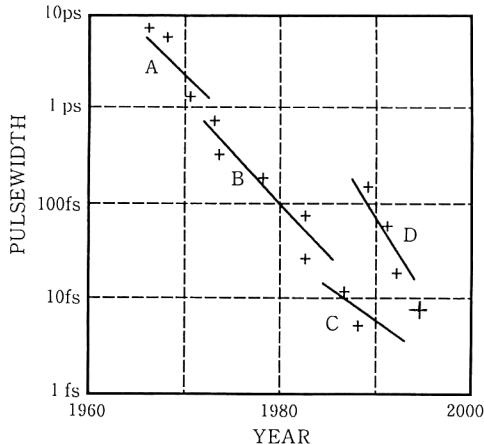


図1 短パルス化の歴史

A: フラッシュランプ励起 Nd: ガラスおよび色素レーザー, B: CW モード同期色素レーザー, C: CW モード同期色素レーザー+パルス圧縮, D: チタンサファイアレーザー。

$$\begin{aligned}\phi(\omega) = \phi_0 + \frac{d\phi}{d\omega}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \frac{d^2\phi}{d\omega^2}(\omega - \omega_0)^2 \\ + \frac{1}{6} \frac{d^3\phi}{d\omega^3}(\omega - \omega_0)^3 + \dots\end{aligned}\quad (7)$$

となる。 ϕ_0 は一定で、周波数に依存した位相変化には無関係である。第2項はパルスの群遅時間 $t_d = d\phi/d\omega$ を与える量で、パルス波形は変化しない。第3項以降がパルス波形の変化や位相変化に関与する項であり、第3項を群速度分散と呼ぶ。第3項のみを考え $\delta = d^2\phi/d\omega^2$ と置き、時間幅 $\tau_c = \sqrt{|\delta|}$ を定義すると、式(6)より

$$E'(t) = \frac{E_0}{\sqrt{\tau^2 + i\delta}} \exp(-t^2/2\tau'^2) \exp[i\phi(t) - i\omega_0 t] \quad (8)$$

$$\tau' = \tau \sqrt{1 + \frac{\tau_c^4}{\tau^4}}, \quad \phi(t) = \frac{\delta}{\tau^2} \left[\frac{t^2}{2\tau'^2} \right] \quad (9)$$

を得る。 τ' はもとの幅 τ より広がる。また式(8)の全位相は $-i\{\omega_0 - (\delta/\tau^2)(t/2\tau'^2)\}t$ と表され、周波数が ω_0 を中心として時間とともに変化する。これをチャーブと呼ぶ。第4項以上の分散は、パルス幅が短くなるにつれ、重要となる。

4. モード同期

フーリエ限界パルスは位相が時間や周波数によらず一定のパルスであることを述べた。またパルス幅は帯域に反比例することを述べた。問題は広い帯域にわたり、いかにして位相を揃えるかである。その方法がモード同期である。

モード同期法には、強制モード同期、受動モード同期、同期励起モード同期、衝突パルスマード同期、結合

共振器モード同期、カーレンズモード同期やこれらの結合したもの、あるいは派生したものがある。以下簡単にその原理と特徴を述べる。

強制モード同期では、レーザー共振器の中に損失もしくは位相の変調器を置く。その変調周波数を縦モード間隔に合わせ、隣り合うモード間の位相を次々と同期する⁴。この方法では広いバンド全域で同期するためには時間がかかり、あまり帯域幅の広いレーザーではうまくいかない。したがって現在 Nd:YAG, YLF や Ar イオンレーザーなどの帯幅の狭いレーザーで使われ、パルス幅は数十 ps 程度である。ただし安定性が良く、同期励起を用いた色素レーザーの光源として用いられる。

受動モード同期では、共振器内に変調器の代りに可飽和吸収体を入れる。パルスの先端部分は吸収体によって、後端部分はレーザー媒質の飽和によって削られ、超短パルスが得られる。そのため可飽和吸収体の吸収断面積とレーザー媒質の誘導断面積の比が重要な役割を果たす⁵。可飽和吸収体の上準位寿命は ns 程度であり、これがシャッターとしての時間応答であるにもかかわらず、100 fs 程度のパルスが得られる理由は、利得の飽和である。この方法は単純ではあるが、安定性に欠ける。

同期励起色素レーザーでは、色素レーザーの共振器間隔を、励起用のモード同期レーザーのパルス間隔に合わせモード同期を得る。励起用レーザーとしては Ar レーザーか YAG レーザーの 2 倍波が用いられる。パルス幅は励起パルス幅の 1/3 乗に比例して短くなる。YAG レーザーにファイバー圧縮器を付加した励起源 (2ω で 3.5 ps) を用いて広い波長域で 100 fs パルスが得られる。また可飽和吸収体や分散補償用のプリズムを共振器に入れることにより、数十 fs のパルスが得られる。このタイプのレーザーは従来のレーザーに比べ安定で高出力が得られるため、市販され、広く用いられた。

さらに発展したモード同期法が衝突パルスマード同期 (CPM) である。その構成図を図2に示す。リング共振器である。共振の中を逆向きに周回する 2 つのパルスがちょうど可飽和吸収体で衝突するタイミングで発生する。2 つのパルスが可飽和吸収体の中で衝突するとき損失が減るからである。レーザー媒質と可飽和吸収体の自己位相変調によるチャーブをプリズム対で補償することにより最短 27 fs のパルスが得られた。このとき、ローダミン 6 G の波長幅のほぼ全域を使っており、極限的パルスであった。この後ファイバー圧縮器を用いて 6 fs が得られたが、このパルス幅は今でも記録である。この方法は調整が難しく、利用は一部専門家に限られた。

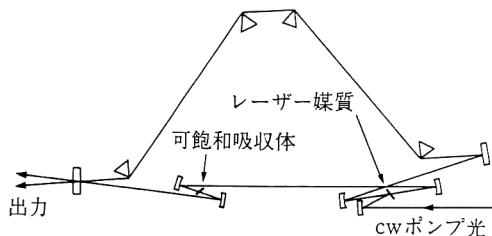


図2 衝突パルスモード同期の配置図

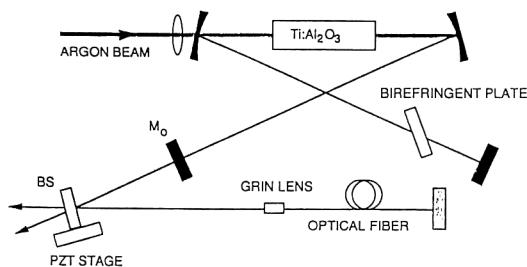


図3 結合共振器モード同期の配置図

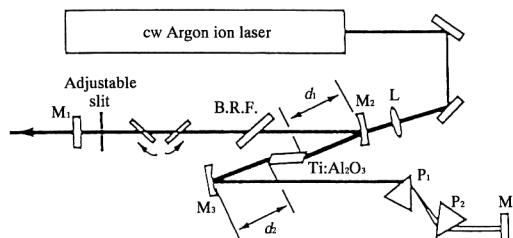


図4 カーレンズモード同期の配置図

このように色素レーザーでは種々な色素を用いることにより広い波長域で超短パルスが可能となった。ところが、固体レーザーでは飽和エネルギーが大きく、共振器内で利得が飽和することがなく、可飽和色素のような遅いシャッターでは超短パルスは得られなかった。

最近、additive pulse モード同期(APM)と⁶⁾カーレンズモード同期(KLM)が考案され⁷⁾、固体レーザーでも超短パルスが可能となった。APM 法の配置図を図3 に示す。レーザー共振器とファイバーをもつ外部共振器が共通のミラーを介して結合している。そのため結合共振器モード同期とも呼ばれる。ミラーを通過したパルスはビームスプリッター、ファイバー、全反射ミラーを通った後、再びレーザー共振器にフィードバックされるが、このときファイバーにより自己位相変調(SPM)を受ける。位相シフトを適当に選ぶことにより、パルスのピークで強め合い、裾で弱め合う干渉が起こり、パルス圧縮される。ファイバーの自己位相変調はパルス幅に比べ十

表1 代表的超短パルスレーザー

	波長 (nm)	バンド幅 (THz)	パルス幅 (限界)(fs)	パルス幅 (実測)(fs)
Ti : Al ₂ O ₃	790	120	3	8.2
Cr : LiSAF	850	91	4	33
Cr : Mg ₂ SiO ₄	1,280	35	12	25
Cr : YAG	1,450	30	12	60
Nd : Glass	1,053	7.5	42	40
色素(Rh6G)	600	40	10	27

分に早く、いわば超高速の可飽和吸収体の役割を果たす。この方法でガラスレーザーでも 40 fs が得られる⁸⁾。ただしこの方法では電場干渉を使うため、波長よりはるかに精度よく共振器長を制御する必要があり、安定性に難がある。

Ti : サファイアレーザーではさらにドロスチックな進展がみられた。Self-start の自己モード同期で 60 fs が得られ⁹⁾、当初マジックモード同期と呼ばれた。ほぼ同時に共振器内に可飽和色素を導入することにより、50 fs のパルスが得られた¹⁰⁾。後者もまた従来の理論では説明できない。これらは実は Ti : サファイア結晶内で起こるカーレンズ効果に拠ることがわかった。図4 に KLM の配置図を示す。パルスのピークではカーレンズ効果でスリットを通して、裾では広がって通過しない。この過程を繰り返しつつ、パルス圧縮される。共振器内の群速度分散が正しく補償されるとソリトンのように自己安定状態となる。共振器内の色素も、外部じょう乱も実はスタートの手段に過ぎず、自己モード同期が基本である。Ti : サファイアレーザーでは自己安定状態かモード同期がはずれるかのどちらかで、中間の不安定状態がないのが特徴である。色素レーザーと違い非常に安定である。このモード同期法は直ちに Cr : LiSAF¹¹⁾、Cr : フォレスティライト¹²⁾、Cr : YAG レーザー^{13,14)}に適用され、成功した。表1 に代表的な超短パルスをまとめると。

5. パルス圧縮

超短パルスが媒質を透過するとき、分散により位相歪を受けすることは式(7)で示した。一般に媒質は正の群速度分散をもち、周波数は時間とともに増加する、いわゆるアップチャーブを起こす。もとのパルスがフーリエ限界パルスであれば、負の群速度分散を与えるものとのパルス幅に戻る。負の群速度分散を与えるものにグレーティング対またはプリズム対がある。グレーティング対の与える群速度分散は

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{-4\pi b\lambda}{A^2\omega_0^2} \left\{ 1 - \left(\sin \theta_i - \frac{\lambda}{A} \right)^2 \right\}^{-1} \quad (10)$$

である。ここで、 b : グレーティング間隔、 θ_i : 入射角、 A : グレーティング溝間隔である。色収差の補正のため 2 パスする関係で 2 倍してある。Ti: サファイアレーザーのように十分に波長幅が広く、フーリエー限界に近いパルスでは、分散補償のみで 10 fs 程度のパルスに戻せる。ただし 3 次以上の位相歪も同時に補償する必要がある。波長幅で制限されたパルスをさらに短パルス化するためにはファイバーを用いる。強い超短パルスがファイバー中を通過すると、カーポロ効果により屈折率が

$$\Delta n = n_2 I(t) \quad (11)$$

だけ変化する。ここで n_2 は非線形屈折率。位相シフトは $\Delta\phi = (2\pi\Delta n l)/\lambda$ (l : ファイバー長) であり、角周波数の瞬時値の変化は

$$\Delta\omega(t) = \frac{-2\pi n_2 l}{\lambda} \frac{\partial}{\partial t} I(t) \quad (12)$$

となる。この効果により波長幅が広がり、ファイバーの群速度分散によりほぼ線形チャーブする。可視域ではアップチャーブであるから、プリズム対やグレーティング対を用いてパルス圧縮することができる。この方法で 6 fs が得られたことは前に述べた¹⁾。前述の分散補償とは異なり、非線形効果であるため制御が難しく、線形チャーブからずれる部分はパルスのペデスタルとして現れるため、Ti: サファイアレーザーなどもともとスペク

トル幅が広く、フーリエー限界パルスに近い場合、あまり用いられない。

6. 超短パルスの増幅

色素レーザーやエキシマレーザーのように上準位寿命が短く、飽和フルーエンスの小さいレーザーでは、出力

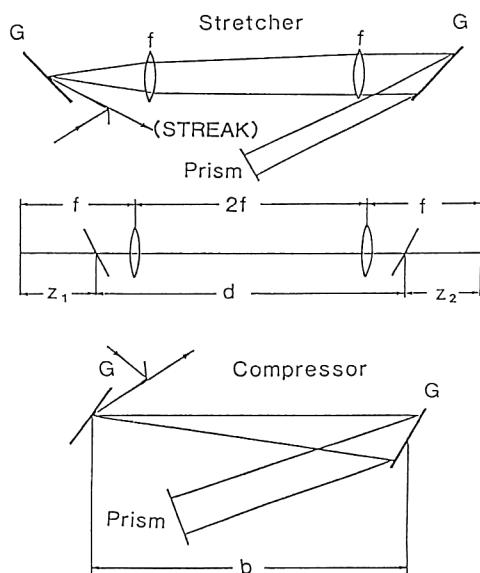


図 5 パルスストレッチャーとコンプレッサー

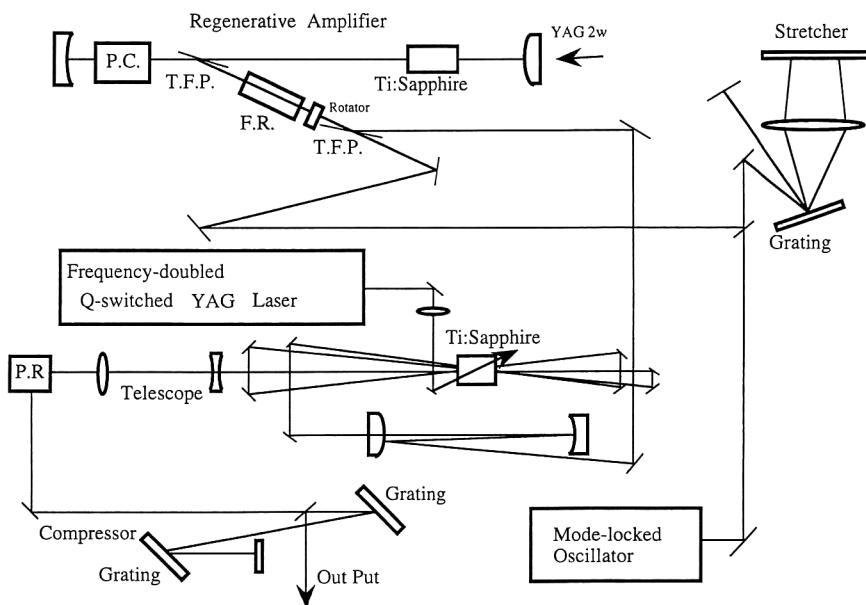


図 6 チャーブパルス増幅を用いた高出力チタンサファイアレーザーシステム

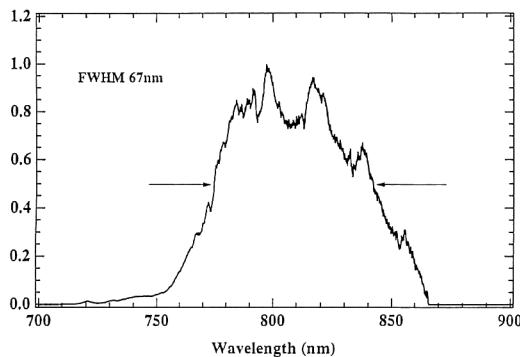


図7 カーレンズモード同期を用いた発振器のスペクトル

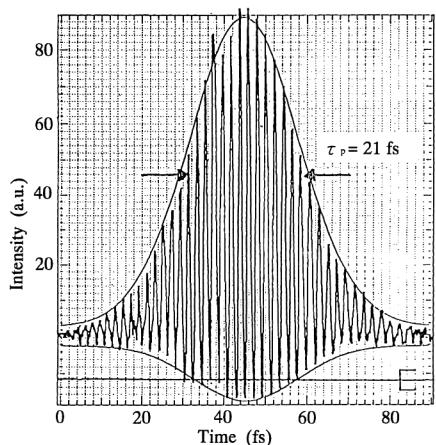


図8 発振器のフリンジ分解SHG自己相関

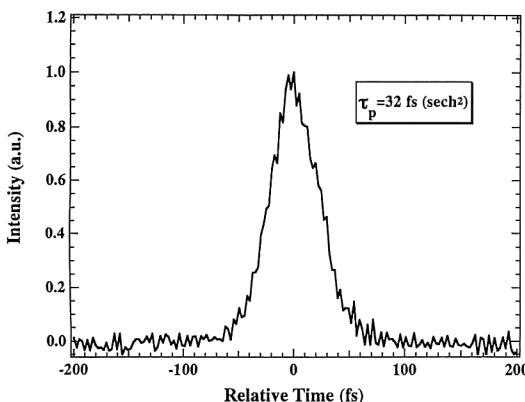


図9 最終出力パルスの単一ショット自己相関

エネルギーは低く、自己収束などの非線形効果は起きないため、超短パルスをそのまま増幅した後、分散補償すればよい。

ところが固体レーザーのように飽和フルーエンスの大

きいレーザーでは本来エネルギーは取り出せるにもかかわらず、自己収束による媒質の破壊によりピーク出力が制限される。大体 10 GW/cm^2 程度である。この問題を解決したのが Mourou による chirped pulse amplification (CPA) であった¹⁵⁾。原理は簡単である。発振器から発生した超短パルスに正の群速度分散を与え、チャーピさせてパルス幅を延ばす。このパルス幅で増幅し、最後に負の群速度分散を与え、パルス圧縮する。パルス幅の拡大（ストレッ칭）が 1,000 倍であれば、原理的に 1,000 倍のピーク出力が可能となる。パルスストレッチャーとパルスコンプレッサーを図 5 に示す。パルスストレッチャーの群速度分散はコンプレッサーのそれ（式(10)）と符号が逆で、 $b = z_1 + z_2$ とおけば良い。図 6 に CPA を用いたマルチテラワットシステムを示す。発振器から出たパルスは 100 ps 程度にストレッヂした後、再生増幅器、4 パス増幅器で増幅し、最後にパルス圧縮する。図 7, 8 に発振器のスペクトルとフリンジ分解 SHG 自己相関、図 9 に単一ショット SHG 自己相関を示す。スペクトル幅の減少がみられ(22 nm)、ほぼフリエー限界に近い 32 fs のパルス（ピーク値 2.7 TW）が得られている。

7. 展望

超短パルスの発生技術は色素レーザーとともに発展し、広い波長域で 100 fs 級のパルスが安定して得られた。CPM リングレーザーとファイバーを用いたパルス圧縮で 6 fs が得られ、ほぼ固定したかにみえた。しかしチタンサファイアレーザーのカーレンズモード同期の出現により状況は一変し、広範な分野の研究者にとって超短パルスが身近なものとなり、各々の分野の発展に大きく貢献している。今後、超短パルス化はアト秒(10^{-18} 秒)やモノサイクル化へ向っている。この場合、白色光源か短波化が必要である。実用的には広域波長可変化、安定化、高出力化などの努力がなされるであろう。超短パルスは從来の波動光学の波数ベクトルと空間ベクトルを周波数と時間に置き換えて考えればよい場合が多く、optics の一分野である。

文 献

- 1) R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker and C. V. Shank : Opt. Lett., **12** (1987) 483.
- 2) J. A. Valdmanis, R. L. Fork and J. P. Gordon : Opt. Lett., **10** (1985) 131.
- 3) A. Stigl, M. Lenzner, C. Spielmann, F. Krausz and R. Szipöcs : Opt. Lett., **20** (1995) 602.
- 4) D. J. Kuijenga and A. E. Siegman : IEEE J. Quantum

- Electron., **QE-6** (1970) 694.
- 5) G. H. C. New : Opt. Commun., **6** (1972) 188.
- 6) J. Goodberlet, J. Jacobsen, J. Wang, J. G. Fujimoto and T. Y. Fan : Opt. Lett., **14** (1989) 1125.
- 7) L. Spinelli, B. Couillaud, N. Goldblatt and D. K. Negus : *Tech. Dig. of CLEO* (OSA, Washington DC, 1991) paper CPD p. 7-8.
- 8) A. J. Schmidt : *Tech. Dig. Ultrafast Phenomena Conf.* (France, 1992) paper MA4.
- 9) D. E. Spence, P. N. Kean and W. Sibbet : Opt. Lett., **16** (1991) 42.
- 10) N. Sarukura, Y. Ishida and H. Nakano : Opt. Lett., **16** (1991) 153.
- 11) N. H. Rizvi, P. M. W. French and J. R. Taylor : Opt. Lett., **17** (1992) 1605.
- 12) A. Seas, V. Petricevic and R. R. Alfano : Opt. Lett., **17** (1992) 937.
- 13) Y. Ishida and K. Naganuma : Opt. Lett., **19** (1994) 2003.
- 14) A. Sennaroglu, C. R. Pollock and H. Nathel : Opt. Lett., **19** (1994) 390.
- 15) D. Stickland and G. Mourou : Opt. Commun., **56** (1985) 219.