

# 超短パルスレーザーによるコヒーレント 白色光の発生

西岡 一・植田 憲一

レーザー光は集光性、干渉性、超短パルス性といった熱光源や放射光に比べ、分析、計測、精密加工面で優れた性質をもっている。その反面、その波長はレーザー媒質に依存し、被測定・加工対象を厳しく制限してしまう。最近では、光パラメトリック増幅器等が実用化され可視領域<sup>1)</sup>での制限は緩和されつつあるが、依然、紫外・真空紫外域や遠赤外領域<sup>2)</sup>では光源が乏しい<sup>3)</sup>のが現状である。これらの波長域では、自由電子レーザー等の開発が待たれているが、装置の巨大さ、コスト、効率等の新たな課題もある。

近年、超短パルス・超高強度レーザーは著しい発展を続け、テラワット ( $10^{12}$  W) 級の光強度が卓上のレーザー装置から安定に発生可能になった。このような高強度レーザーは、固体や液体に比べ著しく密度が低く、かつ非線形性の小さい気体媒質中でも目に見える非線形性を誘起できる。特に、アルゴンやクリプトン等の希ガスは真空紫外に至る光波長域すべてで「透明」であり、いうまでもなく光化学的に完全に安定である。このようなイオン化エネルギーの高い材料の隠れた非線形性を有効に利用すると、超広帯域かつ超高強度のコヒーレント光(レーザー光)の安定な発生が可能になる。

ここでは、超高強度レーザー電界がもたらす気体媒質の屈折率変化を空間・時間の2つの方向からレーザー光の位相変調に応用した、高効率・超広帯域の波長変換法とその応用分野について紹介する。

## 1. コヒーレント白色光の発生原理

一口にコヒーレント光と言ってもその具体的な性質は

電気通信大学レーザー極限技術研究センター (〒182 調布市調布ヶ丘 1-5-1)

様々である。集光性能は光のもつ空間的な位相の揃い方「空間コヒーレンス」を示しており、また、単色性は位相の変化が時間的に一定である(過去の波形と今の波形に相関がある)「時間コヒーレンス」を表している。一般にはあまり議論されないが、異なる周波数成分間での位相の揃い方「周波数コヒーレンス」もパルス光の発生には重要な概念で、異なる縦モード間の位相を揃えたのがモード同期レーザー、すなわち超短パルスレーザーである。

これから述べる白色光は、集光性、フェムト秒の短パルス性を備えた空間的・周波数的にコヒーレントな光であり、いわば白色レーザー光である。単色ではないが、時間的に位相が連続した光(チャープ光)であり、時間コヒーレンスがないとはいきれない側面をもっている。真空紫外から赤外のあらゆる波長の超短パルスレーザーを同時に発生させたような光をイメージするとその性質に最も近い。

簡単に表現すれば、超短パルスレーザー光の周波数(位相)変調波がこの白色光である。一般に変調というと、もとの周波数の周りの小さな周波数偏倚を想像するが、ここで問題とする周波数偏倚は、もとの光周波数の4倍 ( $1.6 \text{ PHz} = 1.6 \times 10^{15} \text{ Hz}$ ) にも達する、相対量、絶対量ともに極端な変調である。

### 1.1 光 Kerr 効果

物質の性質は電場により変化する。光の位相速度を決める媒質の屈折率も伝搬する光自身のもつ電場の関数で、光強度によって非線形に変化する。これは光 Kerr 効果と呼ばれる。吸収が十分に小さいほとんどの媒質の非線形屈折率は正であり、光強度とともに屈折率は増加する。屈折率が変化すると光の位相速度が変わり、その

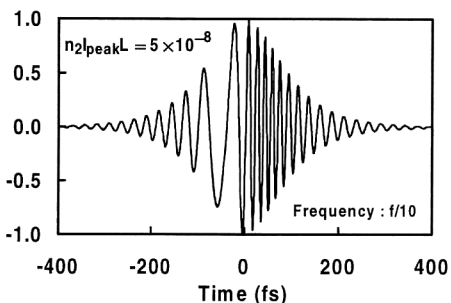


図1 自己位相変調を受けた超短パルス光の瞬時電界波形（パルス幅 100 fs、波長 800 nm、周波数はわかりやすいように 1/10 にして表現してある）。

波の間隔（位相）も変化する。光が伝搬により自ら位相変調されるこの現象は自己位相変調（SPM：self-phase-modulation）と呼ばれている。

例えば、レーザービーム断面に光強度分布があると、光強度の高い部分の屈折率が大きくなり、位相速度が減少して、光は光強度の高い方に向かって屈折する。よく知られるこの自己収束も自己位相変調の一種である。一方、超短パルス光のように時間方向に強い光強度の勾配がある場合、位相変調は時間軸方向、すなわち、周波数変化となって現れる。この様子を図1に示す。パルスの前後に対してパルスのピーク付近の位相が遅れるために、パルスの前半では波長が長くなり、後半では短くなってスペクトルが広がる。媒質の吸収が十分小さければ、変調に伴う損失はほとんどなく、非常に効率の高い変調方式である。

この自己位相変調は1967年に清水によって自己収束したQスイッチレーザーパルスのスペクトル広がりの説明に用いられた<sup>4)</sup>。その後精力的に研究がなされ<sup>5)</sup>、フェムト秒領域の超短パルス光の発生に欠くことのできない技術となった<sup>6)</sup>。同時に、超広帯域光の発生技術としてもほとんどすべての透明な固体・液体媒質中で実験が行われ<sup>7)</sup>、0.3 PHz 程度の広がり<sup>8)</sup>が得られることが示された。この広帯域光は super-continuum と呼ばれている。しかし、後に示すようにレーザー波長から離れるにつれて急激にスペクトル強度が低下するために、実用光源として使用できる波長範囲が数十 nm 程度の幅に制限される問題があった。

スペクトルの広がりをもう少し定量的に考察してみよう。媒質の非線形屈折率が主にレーザー電界の2次の効果であると仮定し、これを  $n_2$  とおくと屈折率  $n$  は微弱光に対する屈折率  $n_0$  に対して

$$n = n_0 + n_2 E^2 \quad (1)$$

と書ける。

光電界  $E$  による屈折率の時間変化  $\Delta n(t)$  はレーザーの光強度を  $I(t)$  とした場合、

$$\Delta n(t) = n_2 E^2 = n_2 \cdot \sqrt{\frac{\mu_0}{n_0^2 \epsilon_0}} I(t) \quad (2)$$

と表される。波長  $\lambda$  のレーザー光が長さ  $L$  の媒質中を伝搬したときに与えられる周波数変化  $\Delta \omega(t)$  は位相変化  $\Delta \phi(t)$  の時間変化であるから、

$$\begin{aligned} \Delta \omega(t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \Delta \phi(t) = -\frac{2\pi n_2 L}{\lambda} \frac{\partial}{\partial t} |E(t)|^2 \\ &= -\frac{2\pi n_2 L}{\lambda} \sqrt{\frac{\mu_0}{n_0^2 \epsilon_0}} \frac{\partial}{\partial t} I(t) \end{aligned} \quad (3)$$

である。 $\Delta \omega(t)$  は媒質の長さ  $L$ 、光強度の時間勾配  $\partial I(t)/\partial t$  に比例することがわかる。パルス幅の短い、高い強度の光を長距離伝搬させることが、大きなスペクトル広がりを得る鍵になる。

光強度を上げるためにレンズでレーザービームを光 Kerr 媒質に集光すると、初期のビーム断面は一樣な強度であっても、回折により焦点付近ではビームの中心の光強度は高く、周辺部では指数的に低くなる。ビーム中心では広いスペクトル広がり得られても、周辺部ではほとんど変調が得られず、レーザー波長付近に留まる。ビーム広がり二次元的であるから、周辺部部分は強度は低くても面積積分したエネルギーは大きな部分を占める。スペクトル形状はこの焦点付近のエネルギー分布を反映したものとなり、上記のようにレーザー波長付近では強く、波長が離れるにつれて急速に低下する。

一樣な強度で光を閉じこめ、長距離伝搬させるためには光ファイバーが有効である。零分散ファイバーや、負の群速度分散をもつファイバーを用いれば、超短パルス光を長距離伝搬させることも可能である<sup>9)</sup>。しかし、伝搬につれ自己位相変調によってスペクトルが広がりはじめると、そのすべての波長域で群速度分散を抑えることが困難になる。結果としてパルス幅は広がり  $\partial I(t)/\partial t$  値が減少して、一定以上の伝搬距離を経るとそれ以上有効な変調は行われなくなる。光ファイバーを用いた実験で、スペクトル領域が赤外・可視域に限られる<sup>10)</sup>のはこのためである。

## 1.2 自己トラップを用いたビーム伝搬

気体、特に希ガスは真空紫外領域まで透明である。群速度分散もきわめて小さく、広いスペクトルをもった超短パルス光を長距離伝搬できる。一方、非線形屈折率は気体媒質は固体材料に比べ4~5桁小さいため、それを補償する高い光強度が求められる。

上記の自己収束現象は高い光強度を得るには有効であるが、一般に制御が難しく、いったん収束をはじめると媒質が破壊するまで収束を続ける。しかし、何らかのビームを発散させる物理機構と平衡させることによって、光ファイバーのように一定のビーム径を長い距離にわたって保つことができる<sup>11)</sup>。このような伝搬状態は自己束縛 (self-trapping) といわれる。

自己収束をもたらす空間的な位相遅れは、次のよく知られる  $B$  積分により与えられる。

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n_2 I(z) dz \quad (4)$$

ここで、 $L$  は媒質長、 $\lambda$  は媒質中の波長である。例えば、Gauss 様ビームの中心で  $B = 2\pi$  であれば、ビーム中心の位相は周辺部に対して 1 波長分位相が遅れている状態である。 $B$  積分は光強度に比例するから、ビームが一定のエネルギーをもつならば、ビーム径の 2 乗に反比例する。

一方、発散が回折による場合、ビーム中心の位相の進み  $\varphi$  は伝搬距離  $z$  に対して、

$$\varphi = \tan^{-1} \frac{z}{z_R} \approx \frac{z}{z_R} \quad (z < z_R) \quad (5)$$

で与えられる。ここで、 $z_R$  はレイリー長 (ビーム径が  $\sqrt{2}$  倍に広がるまでの伝搬距離) でビーム径  $w_0$  に対して

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (6)$$

の関係がある。ビーム広がり角が微小角の場合、回折効果も収束効果同様、ビーム径の 2 乗に反比例する。

もし、初期条件として自己収束と回折が釣り合っていれば、ビームは一定の径で伝搬する。しかし、はじめから自己収束が勝っている条件では、ビーム径が減少しても常に自己収束は回折よりも強く、ビームは永久に収束を続ける。光強度が過度に増加すると、非線形吸収等が起こり媒質の破壊が生ずる。破壊せずとも、強い吸収が生ずると非線形屈折率は負に転ずるのでビームは発散する。自己束縛を実現するには、はじめから両者を釣り合わせる事が望まれる。実際には自己収束が回折をほんのわずかに上回る初期条件を設定して、長い距離を伝搬させてゆっくりとビームを自己収束させる。微小な多光子吸収等の非線形吸収を用いてビーム中心の光強度を制限して安定な束縛条件に移行させることが必要である。

超短パルス光の自己束縛は動的である。フェムト秒の時間に応答する光 Kerr 効果は電子分極によるもので、屈折率の変化は増減ともに瞬時光強度に応じたものとなる。このため、束縛チャンネルの径はパルスのピーク付近

で細く、その前後では比較的太くなる。この動的な空間変調の結果、自己束縛されたパルスは時間的に先鋭化する。式 (3) に示したように周波数変調は光強度の時間勾配  $\partial I / \partial t$  値に比例するため、動的な自己束縛はより効果的な周波数変調をもたらす。

## 2. 白色光のスペクトルとコヒーレンス

実際に超短パルスレーザー光を希ガス中に自己束縛させて発生させた白色光<sup>12)</sup>の性質を紹介する。実験に用い

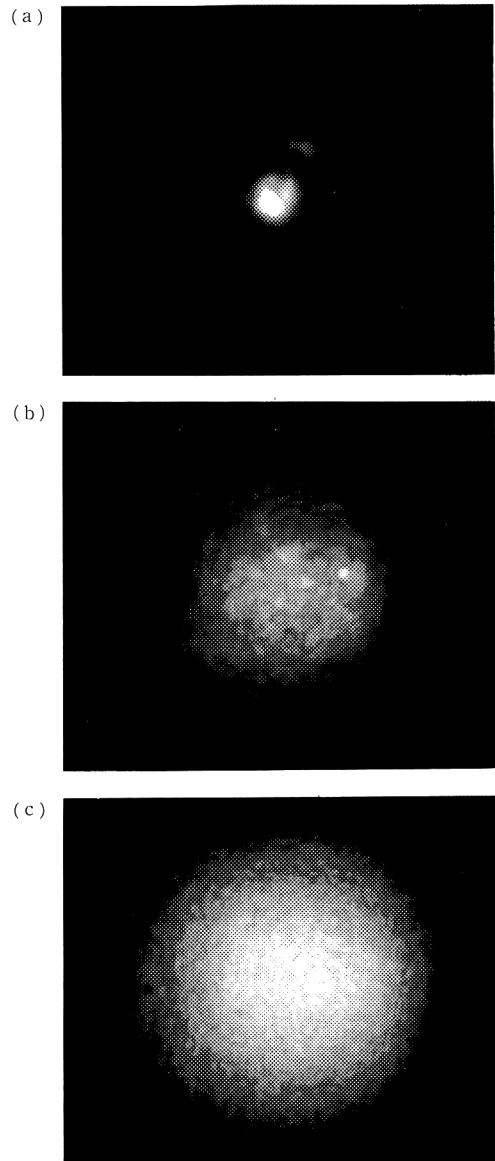


図2 大気中で自己束縛したレーザービームパターン。レーザー出力は(a)0.17 TW, (b)0.52 TW, (c)1.6 TW。

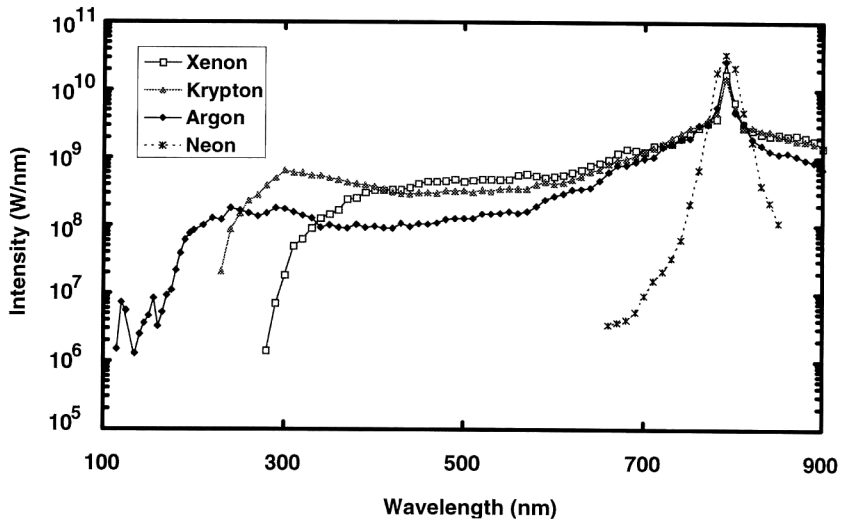


図3 大気圧，希ガス中で得られた白色光スペクトル．レーザー波長 791 nm，パルス幅 125 fs，出力 1.6 TW.

たレーザーは波長 791 nm のチタンサファイアレーザーで，再生増幅器と 4 パス増幅器を備えパルス幅 125 fs で 2 TW の出力を発生する．直径 4 cm の出力ビームの光強度は  $160 \text{ GW/cm}^2$  に達するため，空気中でも自己収束によりビーム断面の細かい強度ゆらぎが増幅され，数 m 伝搬するとビームは数百の細かいビームを束ねたような状態になる．この出力ビームを希ガス中にゆっくりと集光し，多チャンネルの自己束縛に移行させる．希ガスは長さ 9 m のパイプ状のセルに大気圧で封入しており，レーザービームを焦点距離 5 m のレンズでセル中央に集光している．図 2 に自己束縛したビームの断面図を示す．自己束縛の閾値付近では(a)のようにビーム中心に 1 本のチャンネルが現れる．レーザー出力を増すに従ってその数は増加し，出力 1 TW 以上では(c)のようにビーム断面は多数のチャンネルによってぎっしりと満たされる．

白色光のスペクトルは図 3 に示すように赤外域から紫外域に及び，Ar では真空紫外域に達している．自己束縛を用いていない場合に比べ，平坦なスペクトル形状が得られている．レーザー波長から 150 nm の真空紫外端までの帯域は 1.6 PHz である．158 nm と 113 nm の 2 つのピークはレーザー光の第 5 次および第 7 次の高調波で 264 nm の第 3 次高調波は白色光に隠れている．Xe, Kr, Ar, Ne の順にイオン化エネルギーが大きくなるが，共鳴端からレーザー波長が離れるために非線形屈折率は小さくなる．Ne では自己収束が弱いために自己束

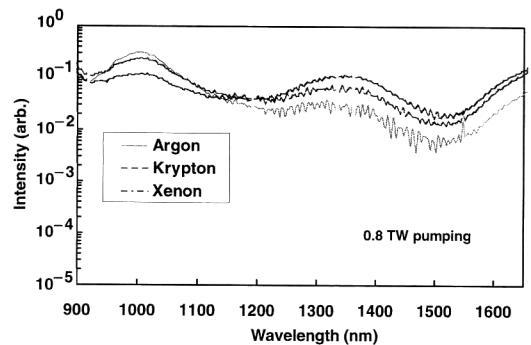


図4 赤外領域のスペクトル強度．

縛が起こらず，白色スペクトルは得られない．可視域では非線形屈折率の大きさに依存したスペクトル強度を示している．非線形屈折率が大きな媒質では自己収束が強く，自己束縛チャンネル中の光強度が高くなる．同時に，イオン化エネルギーが小さいことが影響して多光子吸収<sup>13)</sup>が起こりやすくなる．このため，紫外域の遮断波長，スペクトル強度の順序は可視域と逆になる．一見，紫外・真空紫外の super-continuum を得るためには，紫外レーザーを用いた方が効果的であるようにみえるが，紫外レーザーを用いると励起レーザーの多光子吸収のために非線形屈折率が低下もしくは負になり，自己位相変調を妨げるのでスペクトル広がりには小さくなる．

InGaAs マルチチャンネル検出器を用いて測定した赤外域のスペクトルも図 4 に示すように測定範囲でほぼ平坦

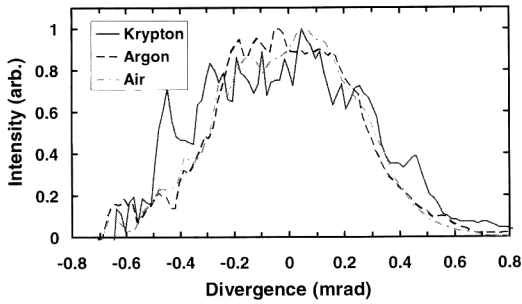


図5 白色光の遠視野像、波長300~750 nmの積分像である。ビーム広がり角1 mradが得られている。

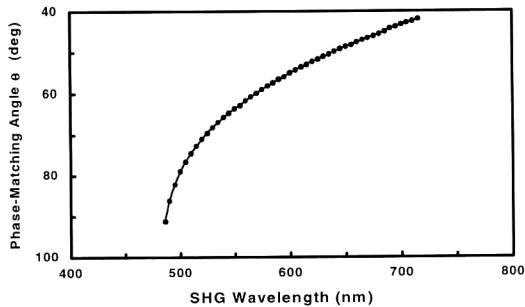


図6 赤外スペクトルで測定した非線形光学結晶  $Gd_2(MoO_4)_3$  の位相整合角。

である。いうまでもなく、希ガスは振動・回転吸収をもたないから遠赤外域まで完全に透明であり、誘導ラマン散乱などによる損失も生じない。

図5は300 nmから750 nmの波長成分の遠視野像を測定した結果である。ビーム全体の広がり角は1 mrad程度で他のレーザーと同等である。多チャンネルのビーム<sup>14)</sup>であるが十分な空間コヒーレンスを示しており、チャンネル間の位相関係が保存されていることがわかる。集光性能を示す一例として非線形光学結晶  $Gd_2(MoO_4)_3$  の位相整合角の測定例<sup>15)</sup>を示す。アパーチャーとフィルターにより数十 $\mu J$ の赤外成分を取り出し  $f=500$  mmのレンズを用いても結晶上に集光した。100 $\mu m$ 程度の集光径が得られ、結晶を回転させるだけで図6に示すように連続的に任意波長の第2高調波が発生する。

周波数コヒーレンスを表すパルス幅とチャープ量を相互相関法を用いて評価した<sup>16)</sup>。図7はKr中におけるパルス幅125 fsの種レーザーパルスとの間の相互相関関数である。相関波形には非対称性がみられるが、 $\text{sech}^2$ 型を仮定してパルス幅に換算すると150~200 fsである。Krガスの分散による周波数チャープが観測されている。回折格子対等を用いてチャープを補償してさらに

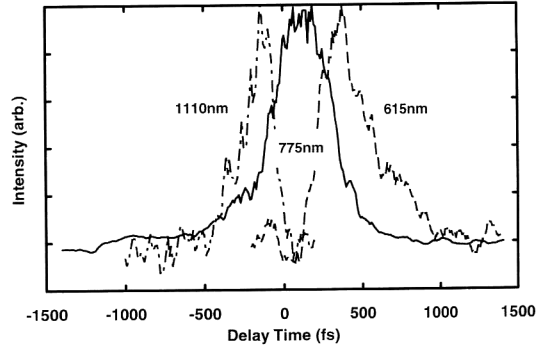


図7 レーザーパルスと各波長成分の相互相関関数。150 fs前後のパルス幅が得られている。

短パルス化することも可能である。

以上のように、この白色光は、光波長域全体で超短パルスレーザー光としての性質を備えている。

### 3. フッ化物結晶を用いた紫外コンティニューアの発生

固体材料は非線形屈折率が高いために、 $\mu J$  オーダーの微小エネルギーでも自己束縛可能である。液体に比べ光学的均一性に優れ、吸収やその音波による気泡の発生(cavitation)がないなどの実用上の利点がある。このため、低エネルギー、高繰返し分光用レーザー装置と整合性が高い。特に、サファイアは非線形屈折率が大きく自己束縛が容易であるため、しばしばフェムト秒レーザーと組み合わせて赤外・可視白色光源として用いられ、装置として市販もされている。しかし、上記のXeとArの比較で明らかのように非線形屈折率の大きな媒質は紫外光発生には向いていない。希ガスの実験結果を固体に適用し、バンドギャップが大きく、分散、非線形屈折率の小さい材料を用いて紫外光の発生を試みた結果を図8に示す。サファイアでは紫外光は発生できないが、 $CaF_2$ や $MgF_2$ を用いると2光子吸収限界の250 nm程度までの短波長化<sup>17)</sup>が期待できる。

固体では群速度分散が大きく、また、物理的にも試料の長さが限られるため、気体の場合のように長焦点光学系を用いてゆっくりと自己束縛に移行させることが難しい。このため、ビームの中心では自己収束によって光強度が過剰になり多光子吸収が起こりやすい。一方、ビーム周辺は自己収束が未だ不十分でスペクトル広がり小さい。図3と図8を比較すると明らかのように固体材料では短波長になるに従いスペクトル強度の低下が起こる。また、収束が不十分でレーザー波長付近に残留して

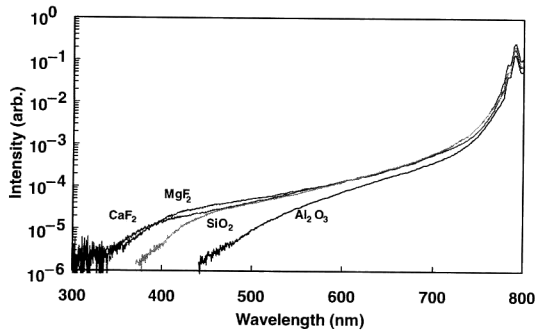


図8 固体中で発生させた白色光スペクトル。バンドギャップの大きいフッ化物結晶は紫外光発生に適している。

いるエネルギーも多い。しかし、あらかじめ入射レーザービームに空間的な位相変調あるいは強度変調を与え自己収束の閾値を下げることによって、多光子吸収を避けることができる。この原理の有効性はすでに実験的に確認しており1桁以上の紫外光強度の増加が得られている。

#### 4. コヒーレント白色光の応用分野

本光源の特徴をまとめると、①超広帯域（紫外，真空紫外光），②超短パルス，③レーザーと同等の集光性能，④超高出力，⑤高繰返し可能・安定であることである。

光パラメトリック発振器（OPO: optical parametric oscillator）や和・差周波混合によってレーザー光の波長可変範囲は飛躍的に拡大したが，200 nm以下の紫外域では波長可変レーザーはほとんどない。一方，赤外・遠赤外域では被測定試料のみならず，非線形光学結晶の振動吸収やそのオーバートーンが現れOPOの波長可変範囲も不連続である。本白色光源は特に，紫外域で放射光と比べ8桁高いスペクトル強度をもち，繰返し周波数を考慮しても同等以上実用性が期待できる。また，帯域幅はレーザー周波数の4倍に達しているため，この高調波もまた切れ目のない連続スペクトルになり，極短波長域を連続的にカバーできるであろう。高調波を発生せずとも，多光子吸収スペクトルによって極端紫外域の情報が得られる。

時間的にはそのままでも150 fs程度のコヒーレント過渡分光に応用可能で，位相補償によってさらに短い分解能が期待できる。フーリエ関係から1.6 PHzの帯域幅がもたらす相関時間は0.2 fs，空間に換算して60 nmになる。インコヒーレント分光法を併用すれば極限的な時間分解計測や超精密位置計測が可能になるであろう。

また，試料の「色」を二次元に高時間分解能で計測可能であることから，有機・生体試料など広い吸収帯をもち，高速に緩和する試料の計測に適していると思われる。

以上思いつくままに列挙したが，筆者の視野の外にさらに多くの応用があるであろう。特に，光エコーをはじめとする広帯域コヒーレント過渡現象の分野におもしろい応用があるように思えてならない。

#### 文 献

- 1) T. J. Driscoll, G. M. Gale and F. Hache: "Ti:sapphire second-harmonic-pumped visible range femtosecond optical parametric oscillator," *Opt. Commun.*, **110** (1994) 638-644.
- 2) J. D. Kafka, M. L. Watts, J. W. Pieterse and R. L. Herbstr: "Mid-infrared pulse generation using a sub-picosecond OPO," *Appl. Phys.*, **B60** (1995) 449-452.
- 3) D. T. Reid, M. Ebrahimzadeh and W. Sibbett: "Ti:sapphire-pumped femtosecond optical parametric oscillators based on  $\text{KTiOPO}_4$  and  $\text{RTiOAsO}_4$ ," *Appl. Phys.*, **B60** (1995) 437-442.
- 4) F. Shimizu: "Frequency broadening in liquids by a short light pulse," *Phys. Rev. Lett.*, **19** (1967) 1097-1100.
- 5) N. Bloembergen and P. Lallemand: "Complex intensity-dependent index of refraction, frequency broadening of stimulated Raman lines, and stimulated Rayleigh scattering," *Phys. Rev. Lett.*, **16** (1966) 81.
- 6) R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P. C. Becker and C. V. Shank: "Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation," *Opt. Lett.*, **12** (1987) 483-485.
- 7) 例えば, R. R. ed: Alfano *The Supercontinuum Laser Source* (Springer-Verlag, New York, 1989).
- 8) R. Alfano and S. Shapiro: "Emission in the region 4000-7000 Å via four-photon coupling in glass," *Phys. Rev. Lett.*, **24** (1970) 584.
- 9) L. F. Mollenauer, R. H. Stolen and J. P. Gordon: "Experimental observation of picosecond pulse narrowing and solitons in optical fibers," *Phys. Rev. Lett.*, **45** (1980) 1095-1098.
- 10) Y. Ishida, T. Yokizaki and T. Yajima: "High-repetition-rate amplification of tunable femtosecond pulses with a Q-switched CW Nd: YAG pumping laser," *Opt. Commun.*, **68** (1988) 295-300.
- 11) A. Braun, X. Liu, G. Korn, D. Du, J. Squier and G. Mourou: "Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 73-75.
- 12) H. Nishioka, W. Odajima, K. Ueda and H. Takuma: "Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terawatt Ti: sapphire laser pulses," *Opt. Lett.*, **20** (1995) 2505-2507.
- 13) H. Nishioka, W. Odajima, Y. Sasaki and K. Ueda: "Ultra-broad-band continuum generation by a self-trapped ultra-short Ti:  $\text{Al}_2\text{O}_3$  laser pulse," *OSA TOPS on Advanced Solid-State-Lasers*, Vol. 1 (1996) pp. 242-247.
- 14) H. Nishioka, W. Odajima and K. Ueda: "Intense coherent VUV radiation from a self-trapped ultra-short laser pulse," *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **80** (1996) 263-266.

- 15) A. A. Kaminskii, H. Nishioka, Y. Kubota, K. Ueda, H. Takuma, S. B. Bagaev and A. A. Paylyuk: "New manifestations of nonlinear optical interactions in KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> and KGd(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser crystals," Dokl. Akad. Nauk (Russia), **346** (1996) 33-36.
- 16) H. Nishioka, W. Odajima, Y. Sasaki and K. Ueda: "Super-wide-band coherent light generation of tera-watt Ti:sapphire laser pulses," Prog. Cryst. Growth Charact., **33** (1996) 237-240.
- 17) 佐々木祥匡, 西岡 一, 植田憲一: "固体中の自己位相変調を用いたフェムト秒紫外光発生", 第57回応用物理予稿(1996) 8 p-ZV-3.

(1996年10月1日受理)