

超短パルス光の発生

石 田 祐 三

レーザー光の特徴のひとつは、従来の純エレクトロニクスでは不可能な超短パルス発生ができることである。レーザーが発明されて以来、超短光パルスの発生・制御技術の発展はめざましく、現在 5 fs (1 fs = 10^{-15} s) を切る超短パルスが近赤外領域で実現されている。物理量の基本単位のひとつである時間領域で極限の世界をみることができ。特に、信頼性・制御性に最もすぐれたフェムト秒チタンサファイア固体レーザーの出現によって、かつてないブレイクスルーがもたらされた。これまで困難であった物質内の超高速現象の解明や超高速光通信・光計測などへの分野に大きく貢献しているばかりでなく、新しい基礎科学から産業応用にわたる広範な分野に浸透しつつある。21 世紀が始まるとともに、“超高速量子エレクトロニクス” という分野が定着しつつある。

本稿では、最も大きなインパクトを与えたレーザー光源を紹介し、超短光パルスの発生法とその動作機構に重点をおき議論を進めていく。

1. 超短光パルスの発生・制御法

1.1 光パルスの不確定性関係

超短パルスを発生させる基本原理として、ハイゼンベルグの不確定性原理 $\Delta E \Delta t \geq \hbar/2$ の要請がある。ここで、 ΔE 、 Δt はそれぞれエネルギーと時間の広がりを示す。これから、光強度のパルス幅 t_p (半値全幅: FWHM) とスペクトル幅 $\Delta\nu$ (FWHM) の間には、

$$t_p \cdot \Delta\nu \geq k \quad (1)$$

の関係が成立する。これは時間と周波数の間のフーリエ変換関係を示している。k はパルス波形に依存した 1 に近い定数である。これから、短パルス化には広いスペクトル広がりをもつことが必要になる。

ここで、時間領域の光電場を $E(t) = A(t) \exp[i\Phi(t)] \exp(-i\omega_0 t)$ と表すと、位相項 $\exp[i\Phi(t)]$ を含む振幅 $A(t)$ が包絡関数 (slowly-varying envelope) であり、中心角周波数 ω_0 に比べてゆるやかに変化する量として扱われる。光強度は $I(t) = |E(t)|^2 = A^2(t)$ で与えられる。もし、位相が 2 次関数 $\Phi(t) = \beta t^2$ で変化するような場合、瞬時周波数 $\omega_0 - d\Phi(t)/dt$ は時間に比例して変化する。このような状態にあるパルスを線形チャープ (linear chirp) とよんでいる。1 次関数ならチャープは生じない。この包絡関数をフーリエ変換したものを $e(\omega) = a(\omega) \exp[i\phi(\omega)]$ と表すと、パワースペクトル (分光器等で測定される量) は $i(\omega) = |e(\omega)|^2 = a^2(\omega)$ で与えられる。 $\phi(\omega)$ はフーリエ位相である。

代表的なパルス波形として、ガウス形 $A(t) = A_0 \exp(-\alpha t^2)$ がある。実際、このような波形が得られる場合がある。パルス幅 t_p を光強度 $I(t)$ の半値全幅 (FWHM) で定義すると、 $t_p = \sqrt{2 \ln 2 / \alpha}$ の関係がある。一般的な扱いとして線形チャープの光電場を考え、そのフーリエ変換を行うと、パワースペクトル幅 (FWHM) $\Delta\nu = \sqrt{2 \ln 2 (\alpha^2 + \beta^2) / \alpha} / \pi$ が得られる。ガウス形パルスのフーリエ変換は係数を除けば同じガウス形となる。これより、パルス・バンド幅積 (pulse-bandwidth product) $t_p \cdot \Delta\nu = (2 \ln 2 / \pi) \sqrt{1 + (\beta/\alpha)^2}$ が与えられる。最小パルス幅は無チャープ ($\beta = 0$) 時に得られ、 $t_p \cdot \Delta\nu = 0.441$ となる。後述するように、安定なパルスが得られるフェムト秒固体レーザーでは、sech 形の波形になる。この関数のフーリエ変換はやはり sech 形になる。このときは、 $t_p \cdot \Delta\nu = 0.315$ である。

こうした対称関数波形 $I(t) = I(-t)$ の場合の最小パルス幅は式 (1) の等号時に得られる。このような状態のパルスをフーリエ変換限界パルス (transform-limited pulse) とよぶ。チャープ (周波数変調) のないクリーン

富山商船高等専門学校情報工学科 (〒933-0293 新湊市海老江線合 1-2)

なパルスである。ガウス形のパルス・バンド幅積からもわかるように、正負いずれのチャープであっても式(1)は不等号関係になり、スペクトル幅限界相当の最小パルス幅は得られない。位相特性が直接測定できないとき、この積の値を求めることでパルスがフーリエ限界パルスか、チャープパルスかの目安がつく。なお、パルスやスペクトル波形が非対称の場合、最小パルス幅と無チャープであることは必ずしも対応しない。すなわち、符号によってはチャープ時に最小パルス幅になることもありうる。

1.2 モード同期法による超短パルス発生

式(1)により、超短パルスを得るためには十分なスペクトル広がりとその位相が一定関係にあることが必要である。レーザー発振器からこのような条件を作り出す有効な方法として、モード同期法(mode-locking)がある¹⁻³⁾。

図1(a)はモード同期原理を説明するためのファブリ・ペロー型レーザー共振器の構成図である。基本的には、レーザー媒質(増幅器)とモード同期機能をもつ変調素子で構成される。図1(b)は発振閾値を超えた縦モード分布であり、中心周波数 ν_0 の周りに多数の縦モード(N 個)で発振している。縦モード間隔は共振器長を L とすれば、 $\delta\nu = c/2nL$ で与えられる。 n は共振器内の屈折率である。例えば、共振器長 $L=50$ cm ($n=1$)とすると、 $\delta\nu=300$ MHzとなる。今、 $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ レーザーのスペクトル幅を $\Delta\nu=60$ THzとしたとき、縦モード数は 2×10^5 個となる。もし式(1)の等号条件が成り立つなら、5 fsという短パルス(sech²形)が得られる。しかし、変調素子がない場合は共振器内の縦モードは媒質中の分散やモード間の競合により、各モードの周波数やその位相はわずかずつ異なっている。こうした状態では周期的短パルスは形成されない。

これについてももう少し議論する。 N 番目のモードの光電場 E_N は、中心角周波数を ω_0 、モード間隔を $\Delta\omega (=2\pi\Delta\nu)$ 、位相を ϕ_N として、 $E_N = A \exp\{i[(\omega_0 + N\Delta\omega)t + \phi_N]\}$ と表される。 N 個のモードの合成光電場 $E(t)$ は次式で与えられる。

$$E(t) = \sum_{-(N-1)/2}^{+(N-1)/2} A_N \exp\{i[(\omega_0 + N\Delta\omega)t + \phi_N]\} \\ = A_0 \frac{\sin[N\Delta\omega t/2]}{\sin[\Delta\omega t/2]} \cdot \exp(i\omega_0 t) \quad (2)$$

式(2)の最終項は、すべてのモードの振幅を等しくし($A_N = A_0$)、位相 $\phi_N = 0$ (または一定)とおいたときである。式(2)の関数は次のような性質をもっている。

- 1) $E(t+T) = E(t)$: 周期 $T = 2L/c (= \delta\nu^{-1})$ で繰り返すパルス列である

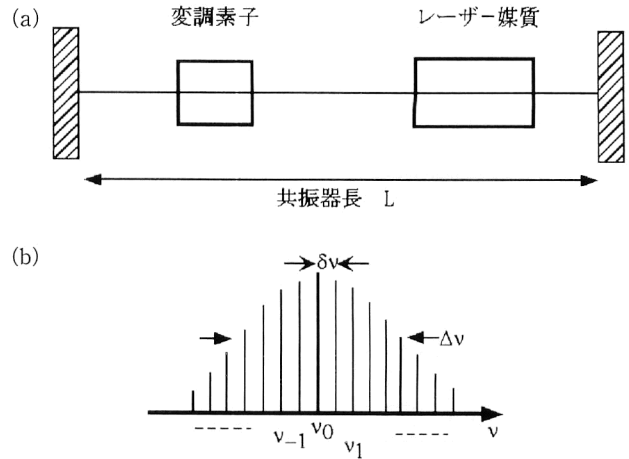


図1 モード同期レーザーの原理, (a) 共振器構成, (b) 発振時の縦モード。

2) $I = |E|^2 = N^2 A_0^2$: 光強度はモード数 N の2乗に比例して増大する。 N が大きくなると、桁違いに鋭い孤立パルスが形成される。もし、位相が完全にランダムに変動している場合($0 \sim 2\pi$)の光強度は $I = N A_0^2$ となり、単にモード数の和に比例するだけになる。自然光がこれに相当する

3) $t_p = T/N = 1/N\delta\nu$: パルス幅は発振バンド幅 $\Delta\nu (= N\delta\nu)$ の逆数に比例する。結局、式(1)の関係式に帰着する

なお、式(2)は時間領域における各モードの位相が固定され、エネルギーが特定時間内に集中される現象である。同様な現象は空間領域でも起こる。多数のスリット(多モードまたはアンテナ群に相当)で形成される回折格子等から出た光はある場所で同位相条件(constructive)になるときに鋭い干渉パターンを示す。空間的モード同期といえる。したがって、干渉強度波形は式(2)と同一表現となる。

1.3 AMモード同期の原理

これまでに振幅変調(amplitude modulation: AM, 共振器の損失を時間的に変化)や周波数変調(frequency modulation: FM, モード周波数を変化)によるモード同期法が数多く開発されてきた。実用上最も普及しているAMモード同期法を分類すると、次の2種類になる。

- 1) 受動モード同期(passive mode-locking): 可飽和吸収体を変調素子として使用
- 2) 強制モード同期(active mode-locking): 音響光学的素子、電気光学素子等を使用

いずれも、モード周波数の近傍に変調による側帯波(sideband)が発生して同期化が起こる。

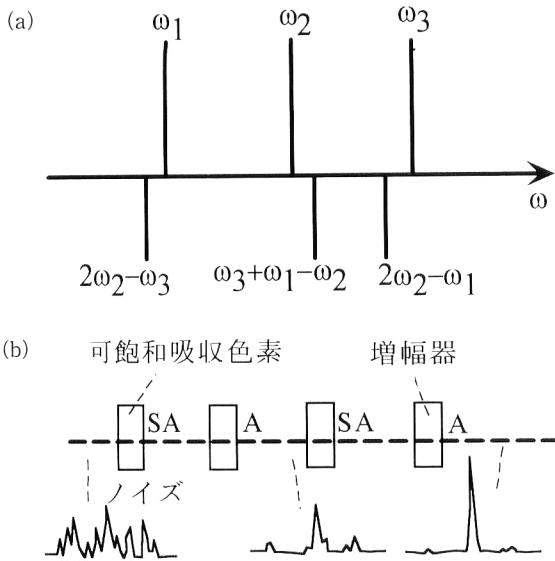


図2 受動モード同期の原理説明, (a) 3つの縦モードで生じる結合調分極によるモード同期, (b) 時間領域におけるモード同期.

1.4 受動モード同期

周波数領域でこのモード同期原理を説明すると次のようになる (図2(a)). 3つのモード角周波数 $\omega = \omega_1, \omega_2, \omega_3$ の光電場 E が可飽和吸収媒質中で相互作用すると, 3次非線形分極 $P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(\omega) E(\omega) E(\omega)$ を通して光混合が起こる. 図中に示すように, 新しい光混合周波数 (結合調分極) $2\omega_2 - \omega_3$ はモード周波数 ω_1 の付近に, 同様に $\omega_3 + \omega_1 - \omega_2$ は ω_2 近傍に, $2\omega_2 - \omega_1$ は ω_1 の近傍に発生する. 通常は共振器内の分散やモード pushing 効果のため, $\omega_3 - \omega_2 \neq \omega_2 - \omega_1$ ($\omega_3 - \omega_2 < \omega_2 - \omega_1$) となっている. 結合調分極による側帯波が十分強いとこれが同期信号光となり, 隣接するモードを引き込む (mode pulling). すなわち, $\omega_3 - \omega_2 = \omega_2 - \omega_1$ となり, 周波数, 位相がともにロックされる. これが周辺モード間に波及しモード同期が実現する.

図2(b) は時間領域でモード同期を説明するための簡単なモデルである. 可飽和吸収体 (saturable absorber: SA) の非線形透過特性は4準位モデルを仮定したレート方程式 (均一広がり, 共鳴時) から導かれる. 入射光 (I_{in}) が媒質中を L だけ伝搬した後 (I_{out}) の定常状態における透過率は次式で与えられる.

$$T (\equiv I_{out}/I_{in}) \cong \exp\left(-\sigma_a \frac{N_0 L}{1 + I_{in}/I_s}\right) \quad (3)$$

ここで, $I_s = \hbar\Omega/\sigma_a T_1$ は飽和強度である. $\hbar\Omega$ は共鳴時の遷移エネルギー, T_1 はエネルギー緩和時間である. N_0 は吸収分子密度である. 多くの可飽和色素のパラメータ値は $\sigma_a = 10^{-15} \sim 10^{-16} \text{ cm}^2$, $T_1 = 10 \text{ ps} \sim 10 \text{ ns}$ の範囲にある.

これから, 飽和強度は $I_s = 0.1 \sim 10 \text{ kW/cm}^2$ となる.

式(3)からわかるように, 光が可飽和吸収体を通るとき, 光強度が弱いときは強い吸収を受けるが, 強度が増大するとほとんど損失なしに透過できる. この選別作用により, 初めランダム雑音 (または幅広いパルス) であっても弱い成分は削り落とされ, 強い成分のみが抽出される. 強い成分はさらにレーザー媒質で増強され, 定常的な鋭いパルスが形成される. なお, 速い可飽和吸収体 (fast saturable absorber, $T_1 < t_p$) を用いたときのパルス幅は緩和時間 T_1 で支配されるが, 色素のように利得飽和が起こりやすい場合 (誘導放出断面積 σ_e 大のため), パルス後半部は利得飽和効果により削られるため, T_1 がパルス幅限界とはならない. モード同期現象は生物界における自然淘汰と類似している.

音響光学的変調器 (acousto-optic modulator: AOM, Bragg 反射領域で動作) を用いた強制モード同期も基本的には受動モード同期と同様に理解できるので省略する.

2. ブレークスルーをもたらしたフェムト秒パルスレーザー

従来の記録を破るような超短パルス発生はモード同期技術を中心とした大きなブレークスルーによって実現されてきた. その中でも最も強いインパクトを与えた2つの cw モード同期レーザーを取り上げる. ひとつは, 衝突モード同期 (colliding pulse mode-locking: CPM) リング色素レーザーである^{4,5)}. もうひとつは Kerr レンズモード同期 (またはソリトンモード同期) チタンサファイアレーザー ($\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$) である⁶⁻⁸⁾. 前者によって安定な 100 fs を切るパルスが実現された. 後者によって初めて共振器から直接 10 fs を切るパルスが発生できるようになった^{9,10)}.

2.1 衝突モード同期リング色素レーザー

色素レーザーは超短パルス発生に適したレーザー媒質として, 早い時期からその開発が進められてきた. 色素の有利な点は, 1) 利得バンド幅が広い, 2) 量子効率が高い, 3) 誘導放出断面積, 吸収断面積が大きい, 4) 材料が豊富 (近紫外-可視-近赤外をカバー) である, などである.

共振器構成にはファブリー・ペロー型とリング型がある. 衝突モード同期 (以後 CPM と略す) 色素レーザーはリング型共振器の特性を積極的に利用したものである. すなわち, なんらかの選択的操作を施さない限り, 右回りと左回りのレーザー光が同時発振する. 本レーザーはモード同期用素子として可飽和色素を使用している. 図3は代表的なローダミン 6G 色素レーザーの共振器構成図である. 共振器内には, 凹面鏡 ($f = 5 \text{ cm}$) の焦点にレーザー色素

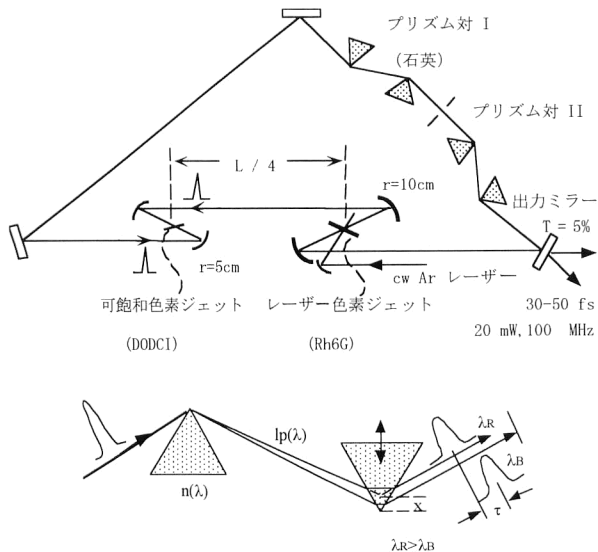


図3 分散補償型衝突モード同期リング色素レーザーとプリズマ・プリズム対位相補償器。

ジェット（ローダミン6G，濃度 1×10^{-3} M/EG，厚さ約 $100 \mu\text{m}$ ）と可飽和色素ジェット（DODCI，濃度 $1 \sim 3 \times 10^{-3}$ M/EG，厚さ約 $10 \mu\text{m}$ ）が図のような位置関係で配置されている。cw 励起であるため，凹面鏡を用いてスポット径を $10 \mu\text{m}$ 前後に絞り，励起密度を上げている。また，レーザー媒質をジェットにして流すのは集光による熱的効果軽減と3重項状態 ($T_1 \rightarrow T_2$) などからの再吸収を防ぐためである。DODCIのエネルギー緩和時間は5 ns前後であるので，緩和が遅い可飽和吸収体になる。ローダミン6G（発振ピーク波長約600 nm）の誘導放出断面積は $\sigma_e = 2 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ ，DODCI（吸収ピーク波長約600 nm）の吸収断面積は $\sigma_a = 1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ である。安定モード同期条件 $\sigma_e < \sigma_a$ を満たす。

CPMリング色素レーザーは2つの特徴がある。ひとつは，光強度の等しい逆周りの2つのパルスが可飽和色素内で衝突（光電場の重畳・干渉）するとき空間的逆折格子が形成され，飽和効果が増強される。実効的吸収断面積の増大化 ($\sigma_{\text{eff}} = 3\sigma_a$) はモード同期の安定領域を拡大する。この状態を作り出すには， $l_{\text{abs}} < l_p$ （可飽和色素ジェット厚さ） $< l_p$ （パルス幅）を満足することである。逆周りのパルスが常に同時刻で重なるためには，可飽和色素ジェットとレーザー色素ジェットの間隔を $L/4$ （共振器長 L ）に選ぶ。

もうひとつの特徴は，分散補償用素子として低損失プリズマ・プリズム対（頂角を互いに逆向きに配置）が用いられていることである（図3¹¹⁾。これによる負分散が共振器内媒質の正分散を打ち消すため，パルス広がりが抑えられる。プリズム間の頂角の距離を l_p ，頂点からの挿

表1 代表的な光学ガラス材料の屈折率と分散パラメーター。

光学ガラスの種類	波長 (nm)	屈折率 n	$dn/d\lambda$ (μm^{-1})	$d^2n/d\lambda^2$ (μm^{-2})
合成石英	620	1.457	-3.059×10^{-2}	1.267×10^{-1}
	780	1.454	-1.813×10^{-2}	4.498×10^{-2}
SF-57	620	1.841	-1.481×10^{-1}	8.018×10^{-1}
	780	1.825	-7.112×10^{-2}	2.742×10^{-1}

入量を x とし，位相を $\phi(\omega)$ としたとき，群遅延分散は次式で与えられる。

$$\frac{d^2\phi}{d\omega^2} = -\frac{2\lambda}{\pi c^2} \left(\lambda \frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \cdot l_p + \left\{ \frac{2\lambda}{\pi c^2} \left(\lambda^2 \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right) \frac{n}{1+n^2} \right\} \cdot x \quad (4)$$

この式から，プリズム間隔を増やせばより大きな負分散量が得られる。表1は合成石英とSF-57ガラスの屈折率，分散パラメーターを示す。例えば，SF-57に対して， $\lambda = 780 \text{ nm}$ ， $l_p = 100 \text{ mm}$ ， $x = 1 \text{ mm}$ のとき， $d^2\phi/d\omega^2 = -1400 \text{ fs}^2$ となる。パルス幅が短くなると，後述するように3次分散 $d^3\phi/d\omega^3$ によるパルス広がりが無視できなくなる。

こうして，分散補償 CPM リング色素レーザーから直接27 fs という超短パルスが初めて得られた⁵⁾。また，従来のファブリー・ペロー型受動モード同期色素レーザーでは容易でなかったフーリエ限界パルス (sech^2 形) が得られるようになった。しかし，色素レーザーでありながら波長可変が容易でないこと，色素劣化による性能低下（パルス幅の増大，発振の不安定性）とそれに伴う装置の保守に労力を費やすなど実用光源としては難点があった。

2.2 共振器内の自己位相変調効果

色素レーザーによるフェムト秒パルス発生の研究過程でいくつかの重要な成果が得られた。そのひとつは共振器内で生じる光 Kerr 効果による自己位相変調 (self-phase modulation: SPM) である^{12,13)}。モード同期がかかった共振器内媒質中のピークパワー密度は数 GW/cm^2 にも達するため，種々の非線形現象が現れる。最低次の非線形過程は2次であるため，反転対称性に欠ける物質（非線形結晶 BBO 等）でないと起こらないが，3次非線形過程はすべての物質（等方的媒質）で起こる^{2,14)}。自己位相変調 (SPM) は3次の分極， $P^{(3)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(\omega) E^*(\omega_0) E(\omega)$ によって起こる過程である。ここで，3次の非線形定数を $\chi^{(3)} = \chi'_{33} + i\chi''_{33}$ とおくと，実数部が分散を，虚数部が吸収・増幅を表す。この実数部から，光強度に依存した屈折率変化 $\Delta n = 2n'_2 |E(\omega_0)|^2 = n_2 I$ が生じる。ここで， $I = 2\epsilon_0 n_0 c |E|^2$ と定義したとき， $n_2 = n'_2 / \epsilon_0 n_0 c$ の関係がある。 n_2 は光強度で定義された3次非線形屈折率である。

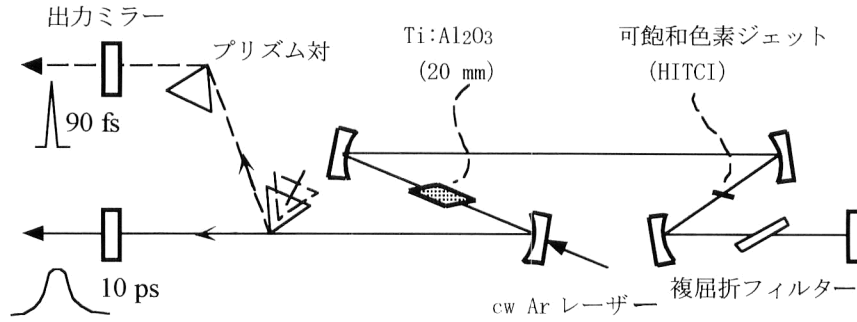


図4 セルフスタート型自己モード同期チタンサファイアレーザーの共振器構成。

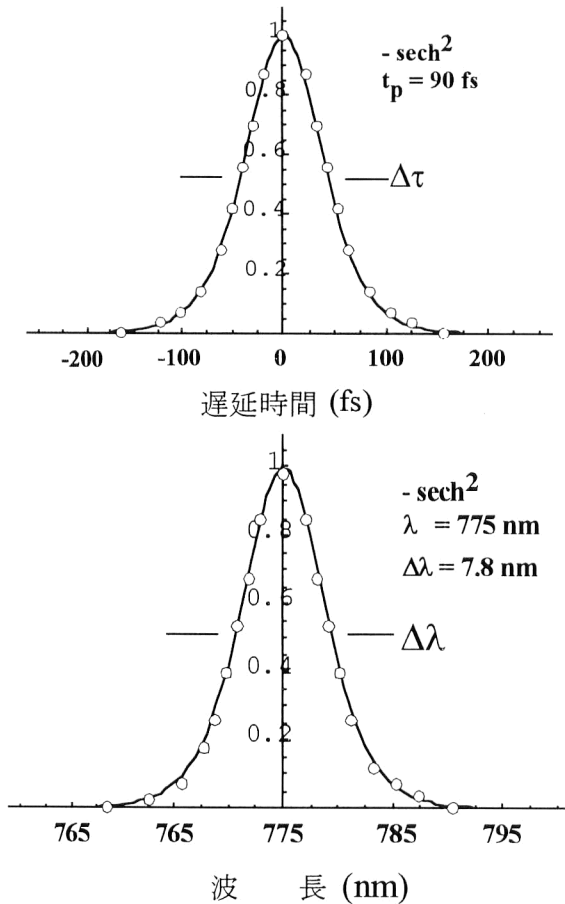


図5 90 fsパルスのSHG自己相関波形とスペクトル(実線はsech形の理論曲線, 丸印は測定値). $\Delta\tau/t_p = 1.54$ (sech²形).

いま, $\omega = \omega_0$ とすると自分自身の光によって屈折率変化が起こる. この光 Kerr 効果によって自己位相変調やビームの自己収束 (self-focusing) が起こる. 等方媒質 (直線偏向) に対して, $n'_2 = (3/4 n_0) \chi'_3$ の関係がある. これから, 位相シフト量 $\Delta\phi = \omega z n_2 I / c$ と周波数シフト量 $\Delta\omega = -d(\Delta\phi) / dt = -(\omega z n_2 / c) (dI / dt)$ が得られる. z は媒質長である. これらの関係式は Kerr 媒質の緩和時間 τ_r がパルス幅 t_p に比べて十分速い場合に成り立つ ($\tau_r \ll t_p$). ガウス波形の場合, 瞬時周波数はパルスの中央付近

ではほぼ時間に比例した正の線形チャープが得られる. 石英ファイバーの場合と同様に, このチャープパルスは負分散光学素子 (回折格子対など) に通して位相補償すると, パルス圧縮 ($\Delta\nu^{-1}$) される¹⁵⁾.

2.3 Kerr レンズモード同期 Ti:Al₂O₃ レーザー

色素に代わる新しいレーザー媒質として Ti:Al₂O₃ 結晶が開発された¹⁶⁾. このレーザー結晶を用いて安定なフェムト秒パルスが定常的に得られる新しいモード同期法が開発され, 超短パルスの発生・制御技術の分野にインパクトを与えた.

Ti:Al₂O₃ 結晶の特徴は, 1) 色素に比べてバンド幅はさらに広帯域 (670~1100 nm) である, 2) 劣化しない, 3) 熱伝導が高い, 4) 色素より高い飽和強度, 5) 高品質結晶作製が可能, 6) エネルギー準位が単純, といったレーザー媒質としてこれまでにないすぐれた特性を備えていることである. Ti:Al₂O₃ の吸収ピークは Ar イオンレーザーの発振波長 488 nm とほぼ一致する. また, 蛍光ピークは 780 nm 付近にある. 吸収・蛍光強度いずれも, π 偏向 ($E \parallel c$) のほうが σ 偏向 ($E \perp c$) より高い値をもつ. 波長可変性は格子振動準位にもとづいているため, フォノン終端 4 準位系レーザー (phonon-terminated laser) とよぶ. 振動・回転準位にもとづく幅広いスペクトルを示す色素と類似している.

図4は筆者らが Ti:Al₂O₃ レーザーで初めて 100 fs を切るパルス発生に成功したときのファブリー・ペロー型共振器構成である^{6,17)}. 共振器内には Ti:Al₂O₃ 結晶 (2 cm), 位相補償用プリズム対 (SF-57 ガラス, 間隔 15~20 cm), 受動モード同期用可飽和色素ジェット (HITCI, 厚さ 5 μ m) が配置されている. 励起には cw アルゴンレーザー (全ラインで 10 W) を用いる. 励起パワー 7 W (発振閾値パワー 3.5 W), 負分散量 -600 fs² にしたとき, パルス幅 90 fs, 出力パワー 450 mW (繰り返し 100 MHz), 発振波長可変範囲 730~805 nm が得られた. 図5はそのときに得られた 90 fs パルス

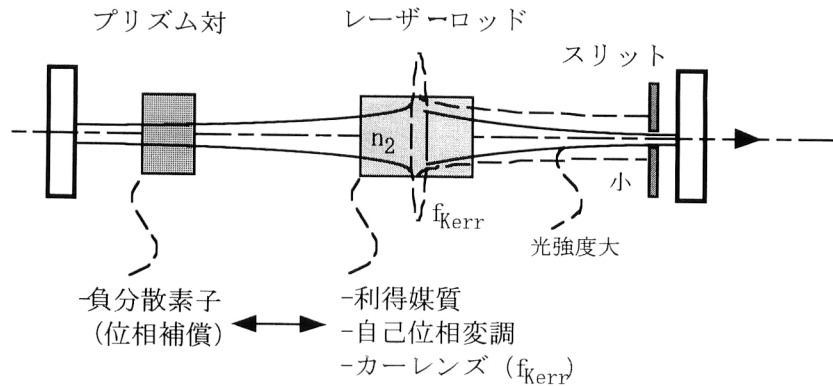


図6 Kerr レンズモード同期レーザーの動作原理 (実線は光強度大のとき、点線は光強度小のときのモード分布)。

(sech² 形) の第二高調波発生 (second harmonic generation: SHG) 自己相関波形とスペクトル (幅 8 nm) である。フーリエ変換限界に近いパルスである。

本レーザーの特徴は、1) 発振閾値付近でしか安定なパルスが得られなかった色素レーザーと違い、励起パワーに対する安定動作範囲が広い、2) 高安定・低ノイズである (<1%rms)、3) パルス波形・スペクトルともに sech² 形、4) フーリエ変換限界パルス ($t_p \Delta \nu = 0.32$) に近い、5) モード同期がかかると可飽和色素は不要、6) 再現性、長時間安定性にすぐれている、などである。従来の超短パルス光源とは比較にならないほど高い信頼性と波長可変フェムト秒パルス発生が得られる。このため急速な発展を遂げることになり、だれでも利用できる実用的光源が確立された。

パルス生成機構はレーザー媒質中の光 Kerr 効果 (自己位相変調, 自己収束) を積極的に利用した自己モード同期法である。外部変調素子を必要としないモード同期なのでこうよぶ。Coherent 社のグループはビームの自己収束作用がモード同期機構であると考え、カーレンズモード同期 (Kerr-lens mode-locking) と命名した¹⁸⁾。原理的には、レーザー結晶 (Kerr 媒質) と負分散特性をもつ位相補償器 (プリズム対) だけでフェムト秒パルスが発生できることから、ファイバー中のソリトン伝搬と類似の現象とみなし、筆者らはソリトン・モード同期 (soliton-like mode-locking) とよんだ⁶⁾。

2.3.1 Kerr レンズモード同期

光 Kerr 効果は光強度に依存した位相シフトを起こすと同時に、光強度に依存したビーム形状の変化をもたらす。レーザー媒質中の屈折率は $n(x, y) = n_0 + n_2 I(x, y)$ で与えられる。 n_0 は線形屈折率である。レーザーパワーを P_L 、ガウス形ビームのビーム径を w として、その空間的光強度分布 $I(r) = (2P_L/\pi w^2) \exp(-2r^2/w^2)$ を 2 次まで展開

すると、屈折率分布は近似的に、 $n(r) = n_0(1 - r^2/2h^2)$ 、 $r^2 = x^2 + y^2$ となる。また、熱レンズ効果を無視すると、 $1/h^2 = 8n_2 P_L / n_0 \pi w^4$ で与えられる。これはパラボリック屈折率分布を示し、実効的に凸レンズ (graded-index) あるいは GRIN レンズが形成されたことになる。その焦点距離 f_{Kerr} が Kerr 媒質長 l より長いとすると、近似的に $f_{Kerr} \approx w^4 / 4n_2 l$ で与えられる。すなわち、Kerr レンズによる焦点距離はレーザー光強度に依存する。例えば、 $w = 75 \mu\text{m}$ 、 $l = 5 \text{mm}$ 、 $n_2 = 3 \times 10^{-20} \text{m}^2/\text{W}$ 、 $I = 150 \text{kW}$ とすると、 $f_{Kerr} = 35 \text{cm}$ となる。このレンズ作用により、光強度に依存したビームスポット径変化が起こる。

また、非線形屈折率にも依存することから、適当な径のアパーチャーを配置しそこを通過する透過光パワーを Kerr 媒質の位置 Z の関数として測定すると、その媒質の非線形屈折率 n_2 が測定できる。これが Z スキャン法とよばれるものである。これは Kerr レンズモード同期原理を共振器外で適用した一例である。

図 6 は Kerr レンズモード同期原理を概念的に示したもので、レーザー媒質中の光強度が高くなると、ガウス形ビームは中心方向に自己収束される。もし、ビーム径が変化する適当な位置にアパーチャーを置くと、強度に依存したビームの空間的变化が振幅変調に変換される。透明媒質中の光 Kerr 効果は非線形電子分極にもとづくため、きわめて高速応答 (数フェムト秒台) する可飽和吸収素子と等価とみなせる。透過率は飽和強度を再定義することにより形式的には式 (3) と同等に扱える。きわめてシンプルなモード同期法によって超短パルスが発生できる。飽和パワー P_s はガウスビームの光線行列を用いて共振器の安定条件を計算すると、 $P_s = -[q_1(w_s)/q_{n1}(w_s)](\partial w/w_0 \partial P_L)^{-1}$ で定義される。詳細については他文献を参照されたい¹⁹⁻²¹⁾。ここで、 q_1 、 q_{n1} はそれぞれアパーチャー径 w_s に依存する線形損失係数、非線形損失係数である。 w_0 は元

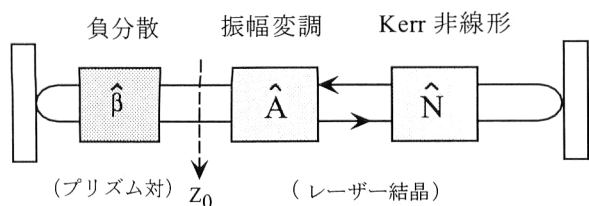


図7 ソリトン・モード同期レーザーの等価的表現。

のビーム径である。計算結果から、集光レンズの間隔、ロッド位置、アパーチャー径に対して実効的吸収断面積 σ_e が敏感に変化することがわかり、 $P_s = 10^4 \sim 10^6$ W の値をとる。ビームスポット径 $w = 50 \mu\text{m}$ に対して、可飽和色素 (数百 W ~ 数 kW) の場合に比べて 1 桁以上大きくなる。低パワー化が今後の課題であるが、この人工的可飽和素子は可飽和色素や半導体素子と違い吸収断面積が自由に制御できるという新しい超高速光・光スイッチ素子といえる。

實際上、飽和強度が高いため、色素レーザーのようにノイズ状態からモード同期が自動的に立ち上がらない。トリガー役として、簡便な moving ミラー法 (FM 変調) や共振器内に変調器を入れた再生モード同期 (SP 社製) などが用いられる。筆者らは受動モード同期用可飽和色素や半導体ドーパガラスなどを用いた。最近では、半導体可飽和吸収ミラー (SESAM 等) も利用されている²²⁾。

2.3.3 ソリトンのパルスの形成

ソリトン (孤立波) は古くから水面、プラズマ、電子回路中などの波動現象のひとつとして研究されてきた。光領域でも、光ファイバー中でソリトンが形成されることが理論的・実験的に明らかにされた^{23,24)}。種々のタイプがあるが、非線形性と分散性が結合して生じる現象である。光ファイバーでは、光 Kerr 効果 (3 次非線形効果) と負分散特性とが結合して安定なソリトンが形成される。非線形シユレーディンガー方程式から、ソリトン解のひとつとして sech 形が知られている。基本ソリトン ($N=1$) のほか、高次ソリトンまで存在する。

図4の自己モード同期 Ti:Al₂O₃ レーザーは図7のように書き直すことができる²⁵⁾。すなわち、共振器はゲインを含む振幅変調素子、Kerr 非線形媒質、負分散素子の要素で表現できる。光ファイバー (受動素子) と異なる点は、ゲイン媒質があること、各物理量が不連続に分布していることである。強い変調により 1 往復する間のパルス変化率は色素レーザーに比べて大きい。各物理量の順序交換によって結果が異なるため、演算子を用いてその振る舞いが記述される。位置 z_0 において、 n 往復後の光電場は $E_{n+1}(t) = \hat{T}E_n(t)$ となる。この伝達演算子は $\hat{T} = e^{\hat{\beta}_2} e^{\hat{A}/2} e^{\hat{N}}$

で与えられる。ただし、 $\hat{\beta}_2 = i(\beta_2/2)d^2/dt^2$ は群速度分散演算子、 $\hat{A} = g - \gamma + \kappa|E|^2$ は振幅変調演算子、 $\hat{N} = i\phi|E|^2$ は Kerr 非線形演算子である。また、 β は伝搬ベクトル (波数) であり、 $\beta_2 (= d^2\beta/d\omega^2)$, g , γ , ϕ , κ はそれぞれ往復時の群速度分散、飽和利得係数、損失係数、Kerr 媒質中の位相係数、Kerr レンズ非線形係数である。定常解は、繰り返し往復した後に一定位相シフト量 ϕ をとるような状態 $E_{n+1}(t) = e^{i\phi}E_n(t)$ に達したとき得られる。ソリトンのパルスが形成される条件は、負分散条件 $\beta_2/\phi < 0$ と、自己位相変調に比べて振幅変調 (受動モード同期) が無視できる条件 $|\hat{A}E| \ll |\hat{N}E|$ が成立するときである。実際、分散量 $- (500 \sim 1000) \text{ fs}^2$, パルスエネルギー $50 \sim 100 \text{ nJ}$, パルス幅 $50 \sim 100 \text{ fs}$ 台が得られるようなレーザー系でシミュレーションした例では、 $\phi \approx 10^{-6} \text{ W}^{-1}$, $\kappa \approx 10^{-7} \text{ W}^{-1}$ の値が得られ、上記の条件を満足している。

2.3.4 高次分散効果とサブ 10 fs パルス発生

パルスが分散媒質中を伝搬すると群速度分散により波形歪みを起こす。Ti:Al₂O₃ レーザーで 50 fs よりさらに短いパルスを発生させるためには、3 次以上の高次分散が無視できなくなる。一般的には 2 次分散と 3 次分散を同時に制御することは容易でない。伝搬媒質中の位相特性を $\phi(\omega)$ とし、これを中心周波数 ω_0 でテイラー展開すると、群遅延時間 $\tau_d(\omega)$ は以下のように表される。

$$\begin{aligned} \tau_d(\omega) &= \frac{d\phi}{d\omega} \\ &= \phi_1(\omega_0) + \phi_2(\omega_0)\Delta\omega + \frac{1}{2}\phi_3(\omega_0)\Delta\omega^2 \\ &\quad + \frac{1}{6}\phi_4(\omega_0)\Delta\omega^3 + \dots \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、 $\phi_n(\omega_0) = d^n\phi/d\omega^n|_{\omega_0}$ ($n=1,2,3,\dots$) である。右辺第 2 項は周波数に比例して変わる群遅延分散 (group delay dispersion: GDD) であり、容易に位相補償される。第 3 項、第 4 項はそれぞれ 3 次分散、4 次分散である。3 次分散がきいてくるとパルスは非対称になる²⁴⁾。もし、群遅延分散 $\phi_3 > 0$ なら $\tau_d > 0$ となるから、パルスの後半に広い裾を引く。逆に、 $\phi_3 < 0$ なら $\tau_d < 0$ となり、パルスの前半に裾を引く。

もうひとつの振る舞いとして、ソリトンが形成されているとき、3 次分散の寄与が大きくなるとソリトンは分散波と結合する^{26,27)}。特に、ソリトンの伝搬ベクトルと分散波の伝搬ベクトル (3 次分散まで考慮) が位相整合条件 ($\beta_s = \beta_d$) を満たす周波数で明瞭な分散波が発生する。例えば、波長 780 nm 付近で $10 \sim 20 \text{ fs}$ のパルスが得られる Ti:Al₂O₃ レーザーの分散パラメーターは、 $\phi_2 \approx -100 \text{ fs}^2$, $\phi_3 \approx -1000 \text{ fs}^3$ 前後の値をとる。この条件では、長波

長側に新たな分散波成分が現れることが理論・実験両面から明らかにされた。

高次分散 (3, 4 次分散) を抑えるために, 低分散光学材料 (石英ガラス) によるプリズム対, 短いレーザーロッド (4 mm 前後), さらに分散補償型広帯域チャープミラー (誘電体蒸着ミラー基盤側から異なる誘電体材料の厚さを徐々に減少させて蒸着) を使用することで, 共振器から直接 6 fs 前後のパルス (約 2 サイクルに相当) が得られている^{10,28)}。極限に迫るレーザー技術とその応用が展開されつつある。

レーザーによる超短光パルスの発生・制御技術の中でも, 古くて新しいモード同期法を中心に議論をした。特に, チタンサファイアレーザーで代表される Kerr レンズモード同期の動作原理やフェムト秒パルスの発生機構について議論した。ここでは十分議論はできなかったが, 超短パルス光源を利用して精密測定を行うには, パルス波形のほか位相特性を正確に計測する必要がある。これらの総合的な解説と議論は別の機会にゆずる^{29,30)}。

この他, 共振器外によるパルス圧縮技術として, 光ファイバー (希ガス中空ファイバーを含む) 中の自己位相変調効果・負分散素子による圧縮法, 負分散波長領域 (>1.3 μm) で動作するファイバーソリトン圧縮, 連続白色光 (white-light continuum) と非線形結晶による広帯域光パラメトリック増幅を利用した圧縮法, 誘導ラマン圧縮法などが開発されてきたが, 本稿では割愛した^{24,31,32)}。

今後の方向として, 時間という基本単位に制限がないならば, X 線領域まで視野に入れた極限短パルス発生・制御と計測法の研究開発はずっと続けられるであろう。また, 次世代光源としてフェムト秒領域で制御性のすぐれた多機能レーザー光源 (光パルスジェネレーター, 光シンセサイザー) の開発が今後の大きな目標である。21 世紀に入ったが, まだ原理的にも技術的にもその方向性は見いだされていない。いずれの場合も, 原理的見直しによる大きなブレイクスルーがない限り実現できそうにない。人の踏み入っていない未知の分野は多くの困難を伴う。それだけに大きな夢と発見がある。創造性豊かな若い研究者・技術者によって新しいルートを切り開いてもらいたい。

文 献

- 1) S. L. Shapiro: *Ultrashort Light Pulses* (Springer-Verlag, Berlin, 1977).
- 2) A. Yariv: *Quantum Electronics*, 3rd ed. (John-Wiley & Sons, New York, 1987).
- 3) A. E. Siegman: *Lasers* (University Science Books, Califor-

nia, 1986).

- 4) R. L. Fork, B. I. Greene and C. V. Shank: "Generation of pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse modelocking," *Appl. Phys. Lett.*, **38** (1981) 671-673.
- 5) J. A. Valdmanis, R. L. Fork and J. P. Gordon: "Generation of optical pulses as short as 27 femtosecond directly from a laser balancing self-phase modulation, group velocity dispersion, saturable absorption, and saturable gain," *Opt. Lett.*, **10** (1985) 131-133.
- 6) Y. Ishida, N. Sarukura and H. Nakano: "Soliton-like pulse shaping in a cw passively mode-locked Ti:Al₂O₃ laser," *Ultrafast Phenomena VII*, eds. A. Mourou and A. H. Zewail (Springer-Verlag, Berlin, 1990) p. 75.
- 7) D. E. Spence, P. N. Kean and W. Sibbett: "60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.*, **16** (1991) 42-44.
- 8) N. Sarukura, Y. Ishida and H. Nakano: "Generation of 50-fsec pulses from a pulse-compressed, cw passively mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.*, **16** (1991) 153-155.
- 9) A. Stingl, C. Spielmann, F. Krausz and R. Szipocs: "Generation of 11-fs pulses from a Ti:sapphire laser without the use of prisms," *Opt. Lett.*, **21** (1994) 204-206.
- 10) D. H. Sutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scherer, G. Angelow and T. Tschudi: "Semiconductor saturable-absorber mirror-assisted Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime," *Opt. Lett.*, **24** (1999) 631-633.
- 11) R. L. Fork, O. E. Martinez and J. P. Gordon: "Negative dispersion using pairs of prisms," *Opt. Lett.*, **9** (1984) 150-152.
- 12) Y. Ishida, K. Naganuma and T. Yajima: "Self-phase modulation in hybridly mode-locked cw dye laser," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-21** (1985) 69-77.
- 13) Y. Ishida and T. Yajima: "Investigation of controlled ultrashort pulse dye laser for femtosecond nonlinear spectroscopy," *Rev. Phys. Appl.*, **22** (1987) 1629-1638.
- 14) N. Bloembergen: *Nonlinear Optics* (W. A. Benjamin, Inc., Massachusetts, 1965)
- 15) H. Nakatsuka, D. Grischkowsky and A. C. Balant: "Nonlinear picosecond-pulse propagation through optical fibers with positive group velocity dispersion," *Phys. Rev. Lett.*, **47** (1981) 910-913.
- 16) P. F. Molton: "Recent advances in transition-metal-doped lasers," *Tunable Solid State Lasers*, eds. P. Hammerling, A. Budgor and A. Pinto (Springer-Verlag, Berlin, 1985) pp. 4-10.
- 17) N. Sarukura and Y. Ishida: "Ultrashort pulse generation from a passively mode-locked Ti:sapphire laser based system," *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) 2134-2141.
- 18) L. Spinelli, B. Couillaud, N. Goldballat and D. K. Negus: "Starting and generation of sub-100 fs pulses in Ti:Al₂O₃ by self-focusing," *Conference on Lasers and Electro-Optics* (Opt. Soc. Am., Washington DC, 1991) p. 583.
- 19) D. Georgiev, J. Herrmann and U. Stamm: "Cavity design for optimum nonlinear absorption in Kerr-lens mode-locked solid-state lasers," *Opt. Commun.*, **92** (1992) 368-375.
- 20) G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magi and L. Pallaro: "Resonators for Kerr-lens mode-locked femtosecond Ti:sapphire lasers," *Opt. Lett.*, **19** (1994) 807-809.

- 21) Y. Ishida: "Development of tunable femtosecond solid-state lasers," *Rev. Laser Eng.*, **23** (1995) 908-921.
- 22) I. D. Jung, F. X. Kartner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, Z. Shi, V. Schener, T. Tschudi and U. Keller: "Semiconductor saturable-absorber mirrors supporting sub-10 fs pulses," *Appl. Phys. B*, **65** (1997) 137-150.
- 23) A. Hasegawa and F. Tappert: "Transmission of stationary nonlinear optical pulses in dispersive dielectric fibers. I. Anomalous dispersion," *Appl. Phys. Lett.*, **23** (1973) 142-144.
- 24) G. P. Agrawal: *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, San Diego, 1989).
- 25) F. Krausz, M. E. Fermann, T. Brabec, P. F. Curly, M. Hofer, M. H. Ober, C. Spielmann, E. Wintner and A. J. Schmidt: "Femtosecond solid-state lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) 2097-2122.
- 26) P. F. Curly, Ch. Spielmann, T. Brabec, F. Krausz, E. Wintner and A. J. Schmidt: "Operation of a femtosecond Ti:sapphire solitary laser in the vicinity of zero group-delay dispersion," *Opt. Lett.*, **18** (1993) 54-56.
- 27) Y. Ishida, K. Naganuma and H. Kamada: "Multi-sideband generation in a femtosecond Cr⁴⁺:YAG laser," *Opt. Rev.*, **6** (1999) 37-41.
- 28) F. X. Kartner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. A. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Schener, M. Tilsch and T. Tschudi: "Design and fabrication of double-chirped mirrors," *Opt. Lett.*, **22** (1997) 831-833.
- 29) 石田祐三: "色素レーザー", 超高速光技術, 矢島達夫編 (丸善, 1990) pp. 47-82.
- 30) 長沼和則: "超短光パルス計測", 光学, **22** (1993) 762-767.
- 31) M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szepocz, K. Ferencz, Ch. Spielmann, S. Sartania and F. Krausz: "Compression of high-energy laser pulses below 5 fs," *Opt. Lett.*, **22** (1997) 522-524.
- 32) A. Shirakawa: "Sub-9 fs pulse generation tunable in visible (550-700 nm) and near-IR (0.9-1.3 μm) by noncollinear phase-matching and pulse front matching," *The Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics* (Opt. Soc. Am., Seoul, 1999) p. 660.

(2001年3月27日受理)