Yb系モード同期レーザーによる高繰り返し光周波数コム

小林 洋平

東京大学物性研究所 (〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5-1-5)

JST-ERATO, JST-CREST

High-Repetition-Rate Optical Frequency Comb by Using Yb-Doped Mode-Locked Lasers

Yohei KOBAYASHI

The institute for solid state physics, University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581

JST-ERATO, JST-CREST

(Received July 21, 2011)

It has passed more than 10 years since an optical-frequency comb was invented. There are some kind of combs such as Ti:sapphire comb and Er:fiber comb, and they have advantages and disadvantages. It is difficult to achieve both good long- and short-term stability. Here we discuss the present status of Yb-doped-laser based optical frequency comb and its prospects. We also discuss about future applications by wavelength expanded frequency combs.

Key Words: Optical frequency comb, Mode-locked laser, Yb-fiber laser, High harmonic generation, Precision measurement

1. はじめに

光周波数コムとはどういうものなのか. 分散のない光共振器で許される縦モード光周波数は $f = m \times c/2l$ (m : 自然数, c : 光速, l : 共振器長) と書けモードスペーシングは等間隔となるが, 実際のレーザー発振器では屈折率が波長依存を示すため, 縦モード間隔は不等となる. ところがレーザーにモード同期を掛けるとレーザーパルスは極めて正確に等間隔で繰り返される. これは, 広いスペクトル内の縦モード間隔が高精度に一致していることを示す. モード同期ではレーザー媒質やミラーによる分散を打ち消すように非線形分散が加わり縦モード間隔をそろえる働きがあるからである. 様々なモード同期の原理があるが超短パルス発生によく用いられるカーレンズモード同期の例で考えると, レーザー媒質中でピーク強度が大きくなるほどカーレンズの働きで共振器の安定状態になりゲインが大きくなるようにできている. このためレーザー共振器はより短パルスになろうとする力が働き, 広い波長域で群速度を一致させようとする. つまり縦モード間隔が広いスペクトルに渡り等間隔になるのである. これはレーザー自身が非線形分散を生み出すことにより実現する. もともと共振器内分散で不等間隔であった縦モードを強制的に等間隔にすると, どこかにひずみが生じる. これがいわゆるオフセット周波数(f_0)である. ここまでの考察でモード同期レーザーの m 番目の縦モード光周波数 f は f_{rep} を繰り返し周波数とすると

$f = f_0 + m \cdot f_{\text{rep}}$ と書けることがわかる. モード同期レーザーの繰り返し周波数はもともと高安定であり制御が簡単なことから, 規則正しい縦モード間隔を得ることはたやすい. もしオフセット周波数の揺らぎが十分ゆっくりで小さいならば, 縦モード間隔よりも縦モードの線幅は狭いことも明らかである. つまり, 通常の100 MHz程度の繰り返しを持つモード同期レーザーの縦モード線幅はcwレーザーで苦労して作りだされる線幅程度に狭い.

T. W. Hänschらは早くからこのモード同期レーザーの性質に目をつけ, 超短パルスレーザーを使った精密分光のデモンストレーションを行った¹⁻⁴⁾. しかしながら実際にはレーザー共振器は機械的揺らぎやポンプの揺らぎなどによりオフセット周波数は不定となるため, 絶対周波数を議論するような使い方はできず, 80年代-90年代は周波数チェーン方式での光周波数測定が先行していた⁵⁾. これは多段の波長変換と光位同期を組み合わせた光周波数をRF周波数にまでつなげる装置である.

事態が大きく変わったのはルーセントテクノロジーとバス大学で同時期に開発されたフォトニッククリスタルファイバを用いた白色光発生の実現による^{6,7)}. この発明により自己参照法と呼ばれる方法でオフセット周波数を制御することができるようになり, モード同期レーザーによる光周波数コムは完成する⁸⁻¹¹⁾.

初期の光周波数コムは全てチタンサファイアレーザーにより実現されたが, 数年後Erファイバレーザーによるコムの研究が始まった¹²⁻¹⁴⁾. Erファイバレーザーコムは

チタンサファイアレーザーコムにくらべフリーランでのオフセットビート線幅が広い問題があるが、後に位相同期の帯域を広げるにより狭線幅に出来るようになった^{15,16)}。

チタンサファイアレーザーコムとErファイバレーザーコムにはそれぞれ長所と短所がある。長所を一言で言うと、前者は短期安定度、後者は長期安定度に優れているということだろう。チタンサファイアレーザーのオフセットビートはフリーランでkHz~10 kHz程度の狭い線幅を持つ。さらに上準位寿命が3マイクロ秒程度なのでポンプ光の変調に対して300 kHzくらいの応答を持つため速いフィードバックループが成り立つ。しかしながら励起光源として数W~10 Wの大型グリーンレーザーが必要のため1日以上 of 長時間運転に難がある。一方ErファイバコムはLD励起かつオールファイバで自己参照法まで作りこめるため、長期間にわたりコムを持続することが出来る。しかも通信波長帯であるためにコムのデリバリにも適している。しかしながら、フリーランで広い線幅を持ち上準位寿命が長いので、ポンプ光の変調によるフィードバックはkHz程度のバンド幅に限られる。このため狭線幅に制御するためには高い技術を要する。

2. Ybファイバコム

第3のコムとして筆者が注目しているのがYb系のコムである。Yb系モード同期レーザーにはファイバと固体の何種類かあるが、驚くべきことにYbファイバレーザーはどのYb系固体レーザーよりも短パルスを生じさせる¹⁷⁾。超短パルスを生じさせるということでタイトなモード同期による縦モードの短期安定度も期待される。ファイバレーザーであるため長期安定度に優れる。また、波長領域が1ミクロン帯であり、多くの光原子時計の時計レーザーの波長域をカバーする。

特にTable 1に示すように、NISTのシングルイオン時計で世界最高峰をいくHg⁺とAl⁺や、香取らが提案した光格子時計¹⁸⁾に重要なSr、YbやHgの時計用レーザーのうち大部分は1ミクロン帯にある。この波長のマッチングのよさもYb系レーザーによる光周波数コムの魅力である。

さらにYbファイバレーザーシステムの最も特徴的な性質として高平均出力化が挙げられる。Ybファイバは976nmのLDで直接励起できる。さらにダブルクラッド構造のファイバを使うことができるため、横マルチモードのLDで励起できる。そのため増幅器の励起に用いる

Table 1 Typical clock laser wavelength.

	¹ S ₀ - ³ P ₀ (clock transition)	Clock laser
Yb	578 nm	1156 nm
Sr	698 nm	698 nm
Hg	265.6 nm	1062 nm
¹⁹⁹ Hg ⁺	282 nm	1126 nm
²⁷ Al ⁺	267 nm	1070 nm

ことのできるLDの平均出力は200 Wを超える。Ybファイバシステムの周辺技術としての励起LDとダブルクラッドファイバ技術は日進月歩であり、年々高出力化がたやすくなっていくのもレーザーの開発および将来性としては非常に重要な要素である。また、ファイバ増幅器は高繰り返しパルス列の増幅に適しており光周波数コムとのマッチングに優れる。現在までにイェナ大学のグループではサブピコ秒でサブkWの平均パワーのシステムが構築されるに至っている¹⁹⁾。我々の研究室でもファイバシステムにおいて200 fsのパルス幅で80 MHz繰り返しにおいて45 Wの増幅ができています。このような高平均出力のフェムト秒パルス列は後述する波長変換による光周波数コムのXUVへの波長領域拡大に重要な技術となる²⁰⁾。

現在までに論文で発表されているYbファイバコムはまだ少ない。最初のYbファイバベースの光周波数コムはJILAとIMRAアメリカとの共同研究において狭線幅を達成したとの報告である²¹⁾。後に我々とNISTとの共同研究で発振器のノイズと縦モードの線幅の議論を行い狭線幅の実現に必要な知見を得ている²²⁾。

Fig. 1に典型的な非線形偏波回転モード同期のYbファイバ発振器構成と発振スペクトルを示す。Ybファイバレーザーは波長が1000-1100 nmの範囲であるため、ファイバ内では正常分散領域である。これは異常分散領域にあるErファイバとは異なり、フリースペースで共振器の分散補償をしなければならない事を意味する。しかも多くの固体レーザーとは違いファイバ長が1-2 mに達するため大きな群速度分散(GDD)を補償しなければならない。メートル級の物質分散を補償するには回折格子ペアを用いる他なく、このため3次の分散(TOD)については物質分散と同じ符号が付与されてしまう。通常の100 MHz程度の発振器において共振器一周で付与される

Fig. 1 Experimental setup of mode-locked Yb-fiber oscillator (upper), and its typical spectrum (lower).

TODは数万～10万fs³にも及ぶ。これでは超短パルス発生は難しい。しかしながら実際に30 fsという超短パルスが発生している (Fig. 2)。良い光周波数コムを実現するには発振器の中で何が起きているかをおおよそ理解する必要がある。我々は発振器内部の各場所でパルス波形や分散の付き方がどうなっているかを詳細に調べた。その結果、発振器内ではある部分でパルスの時間波形が非対称になっていて、その時間波形から生み出される自己位相変調はちょうどTODを打ち消すように働いていることを突き止めた²³⁾。

これを光周波数コムにするためには一オクターブに広げ必要があるが、Erシステムとは異なり残念ながらPCFを使わないことにはスペクトルが広がらない。これもYbが正常分散であることが原因と思われる。100 MHz～200 MHz程度の繰り返しであれば1 Wくらいに増幅したものをPCFに入射してあげるとオクターブに広がる。Fig. 3にこのようにして得られた白色光のスペクトルと各種時計レーザーの波長を示す。

この白色光のうち、1400 nm成分の第二高調波をとり、700 nmの成分とビートを取ることでオフセットを観察する。典型的なフリーラン時のRFスペクトルをFig. 4に示す。このオフセットビートはErファイバのものよりもチタンサファイアレーザーのそれに近い。フリーランのオフセットビート線幅が狭いレーザーは制御性も良く、短時間安定性の良いチタンサファイアレーザーのような光周波数コムが実現する可能性がある。オフセットビートの揺らぎからデジタル位相比較器で誤差

Fig. 2 Temporal profile (solid curve) and phase (dotted curve) of the pulse. The pulse duration is 30 fs.

Fig. 3 White continuum from the PCF. The spectrum covers from 650 nm to 1550 nm. Atoms and ions in graph show the clock-laser wavelengths. Typically 200-mW fundamental light is used for the second harmonic generation (SHG).

信号を作り出し、LDの電流にフィードバックすることにより線幅をスペアナの分解能まで制御した。また、これを周波数カウンタで測定したところ10分で11 mHz程度の揺らぎに抑えることができています。

光周波数測定および光原子時計へ適用するために長時間安定性の改良を進めている段階である。主にはPCFへの打ち込みが温度とともに変化してビートのS/Nが下がる問題であり、チタンサファイアレーザーの場合と同じである。しかしながらシステム全体が励起レーザーも含めて60 cm × 45 cmのボードに収まるため、温調により改善されると期待している。また、現在フリースペースで行っている部分のファイバ化を進めることができればさらなる安定化が見込める。

3. エンハンスメント共振器によるXUVコム

光周波数コムには光周波数計測や光原子時計以外にも様々な応用が考えられるが、コムの波長領域を拡大すると新しい世界が広がる。現在の可視～近赤外領域から短波長側に拡大するには波長変換が必要である。非線形光学結晶が使える範囲であれば比較的小型のレーザーでも波長変換が可能となる。現在の非線形結晶による(位相整合のとれた)波長変換の最短波長記録はKBBFを用いた153.4 nmである²⁴⁾。これよりも短波長のコムを作るためにはガスによる高次高調波発生を用いる必要が出てくる。高次高調波発生には10¹³ W/cm²以上の集光強度が必要となるが、100 MHz程度の繰り返しでこの強度を得るには平均出力の大きなレーザーが必要である。100 フェムト秒のパルス幅でもkW以上の平均出力を要する。このようなパワーはファイバレーザーをもってしても現在の技術では到達困難であるが、2005年にJILAとMPQとでそれぞれ開発されたエンハンスメント共振器^{25,26)}を用いると共振器内出力がkWを超え、高繰り返し

Fig. 4 RF spectrum of the free-running offset beat with the resolution bandwidth of 100 kHz. The repetition rate is 180 MHz.

Fig. 5 Offset beat frequency measurement by 1-s averaged counter for 10 min. The full span is 1 Hz. The standard deviation in 10 minutes is 11 mHz.

しの高次高調波が発生する^{27,20)}。高次高調波のコヒーレンスが十分かはまだ議論の余地があるが、このようにしてXUV領域のコムができる。これからXUV精密分光が立ち上がり、XUV領域の擬cwレーザーもできるかもしれない。Fig. 6に得られた高次高調波スペクトルを示す。

4. 高繰り返し光周波数コムの展望

通常ファイバコムは50 MHz~250 MHzまで、チタンサファイアレーザーコムは100 MHz~1 GHzのモードスペーシングである。応用の大部分は高繰り返しほど都合が良い。理由は大きく二つある。ひとつはモードパワーが上がることであり、光周波数測定などの際にcwレーザーとのビートが強くなるからである。もうひとつはモードの分離がよりたやすくなるからである。コムのモードナンバーを決めるのが簡単になる他、回折格子の分光器でも縦モードが分離できるようになると天文分野などで威力を発揮する。特に近年アストロコムと呼ばれる天文用のコム開発が注目されており、この目的には10~20 GHzの繰り返しが必要となる^{28,29)}。星の分光をする際に天文台の分光器の校正を光周波数コムで行うと、いつでもHzレベルの超高精度で校正が行える。この精度を用いて遠くの星のドップラーシフトを毎日測定することによりその星にどんな惑星があるかが分かる。地球型惑星を見つけることができれば生命の存在も期待できるのである。小さい星を見つけるにはそれだけ小さなドップラーシフトを観測する必要がある。現在のところ250 MHzの繰り返しから出発し、フィルタ共振器を何段か使い10~20 GHzを得る。全てをロックする必要があるためもとのレーザーの高繰り返し化ができれば非常に有用である。ファイバでの高繰り返しには限界があるため、Yb系固体レーザーでの高繰り返しレーザーシステムが面白い³⁰⁻³²⁾。我々はLD励起Yb:KYWで1.3 GHzのカーレンズモード同期発振器を作り、これをYbファイバで20 Wにまで増幅した。パルス幅は200 fs程度である

Fig. 6 Obtained spectrum of the high-order harmonics. The coherent XUV light down to 60 nm is generated. Closed circles represent the wavelengths of each harmonics.

Fig. 7 Experimental setup of the Kerr-lens mode-locked Yb:KYW oscillator and Yb-fiber CPA system. The output power after the compressor is 20 W. DCF, double-clad fiber; LD, laser diode; CM, chirp-compensation mirror; OC, output coupler.

(Fig. 7). この発振器は2 GHz程度まで高繰り返し化が進んでいる。この繰り返しは次世代エネルギー回収型リニアックシステムにもちょうど良い。

また、高繰り返しコムによる分子の精密測定も今後注目すべき分野である。分子の高感度・高精度測定は、呼吸診断など医療分野や環境測定に重要なツールとなるに違いない³³⁾。特に2台のコムによるフーリエ分光と前述の外部共振器との組み合わせ測定は高感度かつ高精度測定が可能である³³⁾。さらに、分子の基本振動に共鳴した中赤外コムを用いることができれば数桁の感度改善が見込める。数年のうちに中赤外コム分光が始まるにちがいない。

また、より長波長になるとテラヘルツに近づく。フェムト秒パルスから変換されるテラヘルツはもともとキャリア位相(CEP)が固定されているわけであるから光周波数コムになっている。高繰り返しテラヘルツのコムとしての側面を使うような応用もありうる。

謝 辞

本研究開発の一部はJST-ERATO, JST-CREST, 文部科学省「光・量子科学研究拠点形成に向けた基盤技術開発 最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」および最先端研究基盤事業の支援による。

参考文献

- 1) R. Teets, J. Eckstein, and T. W. Hansch: Phys. Rev. Lett. **38** (1977) 760.
- 2) J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, and T. W. Hansch: J. Opt. Soc. Am. **68** (1978) 646.
- 3) J. N. Eckstein, A. I. Ferguson, and T. W. Hansch: Phys. Rev. Lett. **40** (1978) 847.
- 4) T. W. Hansch and N. C. Wong: *Metrologia* **16** (1980) 101.
- 5) H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, and G. Zinner: Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 18.
- 6) J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz: Opt. Lett. **25** (2000) 25.
- 7) J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz: Opt. Lett. **25** (2000) 796.
- 8) S. A. Diddams, D. J. Jones, L. S. Ma, S. T. Cundiff, and J. L. Hall: Opt. Lett. **25** (2000) 186.
- 9) S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, T. Udem, and T. W. Hansch: Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 5102.
- 10) D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff: Science **288** (2000) 635.
- 11) R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hansch, J. C. Knight, W. J.

- Wadsworth, and P. S. J. Russell: Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 2264.
- 12) F. Tauser, A. Leitenstorfer, and W. Zinth: Opt. Express **11** (2003) 594.
 - 13) B. R. Washburn, S. A. Diddams, N. R. Newbury, J. W. Nicholson, M. F. Yan, and C. G. Jorgensen: Opt. Lett. **29** (2004) 250.
 - 14) T. R. Schibli, K. Minoshima, F. L. Hong, H. Inaba, A. Onae, H. Matsumoto, I. Hartl, and M. E. Fermann: Opt. Lett. **29** (2004) 2467.
 - 15) W. C. Swann, J. J. McFerran, I. Coddington, N. R. Newbury, I. Hartl, M. E. Fermann, P. S. Westbrook, J. W. Nicholson, K. S. Feder, C. Langrock, and M. M. Fejer: Opt. Lett. **31** (2006) 3046.
 - 16) Y. Nakajima, H. Inaba, K. Hosaka, K. Minoshima, A. Onae, M. Yasuda, T. Kohno, S. Kawato, T. Kobayashi, T. Katsuyama, and F. Hong: Opt. Express **18** (2010) 1667.
 - 17) X. Zhou, D. Yoshitomi, Y. Kobayashi, and K. Torizuka: Opt. Express **16** (2008) 7055.
 - 18) M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi, and H. Katori: Nature **435** (2005) 321.
 - 19) T. Eidam, S. Hanf, E. Seise, T. V. Andersen, T. Gabler, C. Wirth, T. Schreiber, J. Limpert, and A. Tünnermann: Opt. Lett. **35** (2010) 94.
 - 20) A. Ozawa and Y. Kobayashi: in CLEO:2011 - Laser Applications to Photonic Applications, OSA Technical Digest (CD) (Optical Society of America, 2011), paper CThB4.
 - 21) T. R. Schibli, I. Hartl, D. C. Yost, M. J. Martin, A. Marcinkiewicz, M. E. Fermann, and J. Ye: Nature Photon. **2** (2008) 355.
 - 22) L. Nugent-Glandorf, T. A. Johnson, Y. Kobayashi, and S. A. Diddams: Opt. Lett. **36** (2011) 1578.
 - 23) N. Kuse, Y. Nomura, A. Ozawa, M. Kuwata-Gonokami, S. Watanabe, and Y. Kobayashi: Opt. Lett. **35** (2010) 3868.
 - 24) Y. Nomura, Y. Ito, A. Ozawa, X.-Y. Wang, C.-T. Chen, S. Shin, S. Watanabe, and Y. Kobayashi: Opt. Lett. **36** (2011) 1758.
 - 25) C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz, and T. W. Hansch: Nature **436** (2005) 234.
 - 26) R. J. Jones, K. D. Moll, M. J. Thorpe, and J. Ye: Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 193201.
 - 27) D. C. Yost, T. R. Schibli, and Jun Ye: Opt. Lett. **33** (2008) 1099.
 - 28) T. Steinmetz, *et al.*: Science **321** (2008) 1335.
 - 29) C.-H. Li, *et al.*: Nature **452** (2008) 610.
 - 30) S. Yamazoe, M. Katou, T. Adachi, and T. Kasamatsu: Opt. Lett. **35** (2010) 748.
 - 31) P. Wasylczyk, P. Wnuk, and C. Radzewicz: Opt. Express **17** (2009) 5630.
 - 32) Y. Kobayashi, Y. Nomura, and S. Watanabe: *CLEO/QELS*, San Jose, CA, 2010.
 - 33) M. J. Thorpe, *et al.*: Opt. Express **16** (2008) 2387.
 - 34) B. Bernhardt, A. Ozawa, P. Jacquet, M. Jacquy, Y. Kobayashi, T. Udem, R. Holzwarth, G. Guelachvili, T. W. Hansch, and N. Picque: Nature Photon. **4** (2010) 55.

レーザーワード

UVコム (extreme ultraviolet optical frequency comb)

波長領域が極端紫外(XUV)領域にある光周波数コム。XUVコムは直接レーザー発振器から出力させることはできないため可視や赤外の光周波数コムの波長変換により生成する。極端紫外領域であるため波長変換としては希ガスを非線形媒質として用いた高次高調波発生を

用いる。高繰返し高強度レーザーが必要となるためフェムト秒レーザーパルス列をエンハンスメント共振器と呼ばれる外部共振器に閉じ込め、強度を高めた状態の共振器内部で波長変換を行う。共振器内部の超短パルスレーザーの平均強度は数kWになる。(小林 洋平)