レーザー解説

非線形光学有機結晶材料とフェムト秒光パルス圧縮技術の接点

山下 幹雄*・森田 隆二*・曾根 宏靖*

(1993年5月31日 受理)

Nonlinear Optical Properties of Organic Crystals
and Femtosecond Optical Pulse Compression

Mikio YAMASHITA*, Ryuji MORITA* and Hiroyasu SONE*

(Received May 31, 1993)

This article reviews our theoretical and experimental studies on ultrafast third-order nonlinearities of organic crystals, and femtosecond pulse propagation and compression using a nonlinear fiber cored by one of their crystals.

Key Words: Femtosecond optical pulse compression, Third-order nonlinear organic crystal, Nonlinear fiber, Ultrafast nonlinear refractive index.

1. はじめに

非線形光学有機材料は、一般に無機材料に比べて非線形性が大きくかつ半導体材料に比べて応答性が速く透明波長域が広い、種々の光機能材料として注目されている。特に2次の非線形性については、多くの有機結晶が、半導体レーザーの波長変換素子や光変調素子として、開発されている¹⁾。しかし3次の非線形性については、光双安定素子、オールオプティカルスイッチや位相共役素子への応用がはやくから指摘されてきたにもかかわらず、最近になってようやく活発な材料研究が始まった状態である。

我々はかねてから、このような特徴を有する3次非線形光学有機材料が、フェムト秒光パルス制御材料として適していることを指摘してき

た。本論文では、このような視点から進めている非線形有機結晶のフェムト秒光パルス圧縮技術への応用について、最近の研究結果を中心に述べる。

2. 光パルス圧縮の原理と問題点

広いスペクトル幅(その角周波数スペクトル幅 $\Delta\omega \equiv 2n \cdot \Delta\Omega$)内に、多くの光波モード $\omega_{\pm n}$ (モード数 $2n+1$, 例えば $\sim 10^6$; 第 $\pm n$ モード角周波数 $\omega_{\pm n} = \omega \pm n\Delta\Omega$; 搬送波光の中心角周波数 $\omega_0 \equiv 10^{15}$ rad/s)が、等しい角周波数間隔 $\Delta\Omega$ (例えば $\sim 10^8$ rad/s)で存在するととする。それら光波間の相対的な位相が同位相で、各光波が周期的に干渉強度を強めあうと、モード数の増加に伴って(従ってスペクトル幅が $\Delta\nu = \Delta\omega/2\pi$ 拡がるにつれて)、極限

*北海道大学工学部数物系共通講座理学第一講座(〒060 札幌市北区北13条西8丁目)

*Department of Engineering Science, Faculty of Engineering, Hokkaido University (Kita 13-Jyo, Nishi 8-Chyome, Kita-Ku, Sapporo 060)

的なパルス幅 $t_p (\cong 1/\Delta\omega)$ の極短パルス列(パルス周期 $T=2\pi/\Delta\omega$)となる。この時、パルス幅とスペクトル幅との積は、フーリエ変換計算から明かなように、一定値 $k (\cong 1)$ を示し、そのパルスを transform limited パルスという。しかし、各光波モードの位相が異なって乱れている場合には、この積は必ず k より大きい不確定性関係を示す。

従って光パルス幅を狭く(光パルス圧縮)するには、まず①位相変調 $\phi(t)$ などによって、周波数を大きく超高速掃引($\omega(t)=d\phi(t)/dt$; 周波数チャープ)してスペクトル幅 $\Delta\omega_c$ を広げ、より多くの光波モードが干渉しあうようにする。次いで②この時乱れた、スペクトル内の各光波モードの位相を、周波数依存位相シフト $\phi(\omega)$ を与える分散素子(プリズム、誘電体多層膜鏡、回折格子など)によって、同位相にする(チャープ補償)。これにより、パルス幅 $t_{p,out} (=k/\Delta\omega_c)$ の狭くなった transform limited パルスを得ることができる。

位相変調を行うためには、強い光パルスがシングルモードファイバを伝播する時生じる非線形屈折率効果(3次の非線形光学効果の一つで、屈折率 $n(t)$ が光強度 $I(t)$ に比例して変化する $n(t)=n_0+n_2I(t)$ の現象: 以後 n_2 効果と略す)を利用する。即ち、長さ l のファイバを伝播する光パルス電場の位相 $\phi(t)=-\omega_n(t)l/c$ は、自己のパルスによるこの n_2 効果によって、屈折率変化を通して変調され(自己位相変調)、ファイバのもつ正常群速度分散($d^2k(\omega)/d\omega^2=k''(\omega)>0$, $k(\omega)$ はファイバ中の光パルスの波数)とあいまって、ほぼ線形周波数チャープを生じ、スペクトル幅が広げられる。次いで、この時生じる、線形アップチャープによる位相の変化は、異常群速度分散($k''(\omega)<0$) 素子により補償でき、transform limited パルスまでパルス幅を圧縮できる。

シングルモードファイバ中の非線形パルス伝播は、マックスウェルの波動方程式において、分極 P の項に3次の非線形分極の項を加えることによって記述でき、slowly varying envelop 近

似では、非線形シュレーディンガー方程式³⁾となる。これを、正常分散域で、計算機数値解析によって解き、更にチャープ補償計算を行うと、圧縮パルス幅 $t_{p,out}$ は、入射パルス尖頭強度 I_p と非線形屈折率 n_2 の $1/2$ 乗に反比例し、ファイバの群速度分散 k'' の $1/2$ 乗に比例することがわかる。また、被圧縮パルス幅 t_{in} が小さい程、最適ファイバ長 l は短くなり、 I_p は大きくなる。例えば通常の石英ファイバを用いた時には、 $t_{in}=60\text{fs}$ (600nm), $I_p=10^5\text{W}$, $l_{opt}=4.8\text{mm}$ で、 $t_{p,out}=12\text{fs}$ の圧縮パルスが得られることになる⁴⁾。

従って、フェムト秒レーザー出力パルスを極限的に狭くするには、通常大きな光増幅システムにより 10^4 倍程度高出力化する。これは 10fs 以下の信頼性の高い光源として、光パルス圧縮技術を利用することを、以下の理由により、困難なものにしている。即ち①高出力高増幅を行うため、各パルスごとの瞬時強度変動が大きくなり、かつ光ビーム断面の空間的強度一様性が悪化する。②増幅による非線形チャープと高次分散とにより、増幅後のパルス幅が広がる。③パルス列の繰り返し周波数が激減する。④高入射パワーとなるためファイバが損傷する。⑤複雑、微妙で大きな増幅システムが必要である。⑥これらのため、パルス圧縮光学系・パルス幅測定光学系の調整・最適化が困難となる。さらに、⑦繰り返し周波数が減少するため、フェムト秒時間域の超高速現象を高S/Nで測定しなければならないポンプ・プローブ法による応用実験が困難となる。

これらの問題を解決する一つの方法は、高非線形屈折率材料、即ち高3次非線形材料から成るファイバや膜を用いることである。ただしその非線形性は、フェムト秒光パルスに応答し、かつ動作波長域で吸収があってはならない。即ち、その非線形性の起因は、電子分極によるもので(分子配向・エキシトン・電荷分離・熱効果によるものではなく)かつ非共鳴域で大きくなければならない。次節以下に示すように、非線形光学有機結晶はこれらの条件を満たす。

Table I Second-order nonlinear optical coefficient d_{ij} and molecular structure of recent developed organic crystals.

d_{ij} (pm/V): second-order nonlinear optical coefficient		
MNA ¹⁶⁾	$d_{11}=251$ $d_{12}=30$	2-methyl-4-nitroaniline
DAN ⁷⁾	$d_{23}=40$	4-(N,N-dimethylamino)-3-acetamidonitrobenzene
DMNP ¹⁷⁾	$d_{32}=90$ $d_{33}=29$	3,5-dimethyl-1-(4-nitrophenyl)pyrazole
MMONS ¹⁸⁾	$d_{33}=184$ $d_{32}=41$ $d_{24}=71$	3-methyl-4-methoxy-4'-nitrostilbene
NMBA ¹⁹⁾	$d_{11}=155.5$ $d_{33}=1.5$	4-nitro-4'-methylbenzylideneaniline
NPP ²⁰⁾	$d_{21}=82.6$ $d_{22}=30.5$ $d_{\text{eff}}=102$	N-(4-nitrophenyl)-(L)-prolinol
MBANP ²¹⁾	$d_{22}=63$	2-(α -methylbenzylamino)-5-nitropyridine
PNP ²²⁾	$d_{21}=48$ $d_{22}=17$	2-(N-prolinol)-5-nitropyridine
NPAN ²³⁾	$d_{32}=57$ $d_{33}=27$	N-(4-nitrophenyl)-N-methylaminoacetonitrile

3. 有機結晶の非共鳴域での2次 $\chi^{(2)}$ と3次の $\chi^{(3)}$ の非線形光学感受率の関係

最近見いだされている、高い2次非線形感受率 $\chi^{(2)}$ をもつ有機結晶の多くは、ベンゼン環1~2個から成る低有機分子結晶である(Table I)。その非線形性は、側鎖の分子内電荷移動置換基によって高められた、分子内 π 電子雲の偏りにより生じる。かつ350~500nmより長波長の可視域では吸収はない。それらの2次非線形光学定数 d_{ij} は、典型的な無機非線形結晶KDP, ADP, BBOに比べて、約100倍以上大きい(Table I)。本節では、非共鳴域での電子分極によるそれら無機有機非線形結晶の $\chi^{(2)}$ と $\chi^{(3)}$ との間には強い相関があることを理論的に導く

と共に、既に報告されたそれらの測定データと一致することを示そう。

よく知られているように⁵⁾、電子分極による分子系の $\chi^{(i)}$ の一般的な式は、摂動法により、その分子ensemble systemの対応する次数の密度行列演算子 ρ の運動方程式を解き、分極 P の期待値を求めることによって、導かれる。ただし、外場の光電場と分子系との相互作用ハミルトニアンとして半古典的記述に基づく双極子近似を用いる。できるだけ簡単化しかつ定量的議論ができるようにするため、半経験的な実効エネルギー準位因子 $g^{(i)}$ (局所場補正因子を含む) を導入した、2準位系モデルを用いて $\chi^{(i)}$ を求める。光電場の周波数が分子系の共鳴遷移周波数に比べて小さくて無視できる非共鳴域では、

それらは以下のようになる⁶⁾。

$$\begin{aligned}\chi^{(1)} &= 2g^{(1)}N|\mu|^2\epsilon_0\hbar\Omega \\ \chi^{(2)} &= 3g^{(2)}N|\mu|^2\Delta\mu/\epsilon_0\hbar^2\Omega^2 \\ \chi^{(3)} &= 4g^{(3)}N|\mu|^2[(\Delta\mu)^2 \\ &\quad - |\mu|^2]/\epsilon_0\hbar^3\Omega^3\end{aligned}\quad (1)$$

これらの式の $g^{(i)}$ は、無機結晶系に対しては水素原子の、有機結晶系に対してはm-ニトロアニリンの電子遷移双極子モーメント μ 、電子遷移角周波数 Ω を用いて、更にCaF₂の $\chi^{(1)}$ 、 $\chi^{(3)}$ およびADPの $\chi^{(2)}$ を用いて決定され、 $g^{(1)} \cong 10$ 、 $g^{(2)} \cong 1$ 、 $g^{(3)} \cong 10$ となる。ただし、 N と $\Delta\mu$ は、単位体積当たりの分子数および、電子励起状態の双極子モーメントと電子基底状態の双極子モーメントの差をあらわす。3式より $\chi^{(3)}$ を $\chi^{(1)}\chi^{(2)}$ で表すと

$$|\chi^{(3)}| = |8g^{(1)}g^{(3)}[\chi^{(2)}]^2/9(g^{(2)})^2\chi^{(1)} - g^{(3)}\epsilon_0[\chi^{(1)}]^2/(g^{(1)})^2N\hbar\Omega| \quad (2)$$

となる。更に現在興味ある $|\chi^{(2)}| \geq 10^{-12}$ (m/V)の領域では、(2)式は $|\chi^{(3)}| \cong 10^2 |\chi^{(2)}|^2/\chi^{(1)}$ と簡単化でき、Fig. 1の実線で示す傾き2の直線となる。一方、既に報告されている非線形光学無機・有機結晶に対して、非共鳴域での最大成分の $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$ を同図にプロットすると、この理論結果一致することがわかる(次節で測定されるDAN有機結晶の結果もFig. 1に示す)。即ち、非線形性が電子分極のみによる、非反転対象の結晶の $\chi^{(3)}$ は、非共鳴領域では、 $|\chi^{(2)}|$ の2乗に比例して増加する。従って、Table Iに示した2次非線形性の大きい有機結晶は、非共鳴域で大きい3次非線形性を有する可能性があり、フェムト秒光パルス圧縮材料として有望である。次節では、それをコアとして用いた非線形ファイバについて述べよう。

4. 非線形有機結晶ファイバ

4.1 構造

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の条件は、既述の高非線形屈折率、フェムト秒応答、透明に加えて、①数mm

Fig. 1 Relation between second- and third-order nonlinear optical susceptibilities due to the electronic polarization in the nonresonant region for inorganic and organic crystals⁶⁾. The solid line denotes the theoretical result.

長以上のシングルモードファイバである、②ファイバ伝播軸に対して垂直な面近くに非線形軸がある、③群速度分散がなるべく小さい、④ファイバ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。②の条件は、結晶軸と双極子モーメントの方向とが大きく異なる場合の方が満たされやすく、④の低損失条件は、結晶へき開面がファイバ断面と一致する場合満足される。

これらの条件を考慮し、我々は、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、高屈折重フリントガラスをクラッドとしたファイ

Fig. 2 Structure of a 4-(N,N-dimethylamino)-3-acetamido nitrobenzene (DAN) crystal cored fiber.

バ⁷⁾を検討してきた。

ファイバは、融点163℃付近でブリッジマン・ストックバーガー法により直径2~4μm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(Fig. 2)。DANは、 $N(\text{COOCH}_3)\text{H}$ および $N(\text{CH}_3)_2$ 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375nm付近にある)、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 $d_{23}^{\text{eff}} = 40 \text{ pm/V}$ (KDPの約100倍大きい⁷⁾)、非線形z軸は、ファイバ断面近くにある。ファイバ長3~7mm、クラッド径~2mmで、630nm付近でシグナルモードである。ファイバ端面は結晶へき界面に一致している。

4.2 フェムト秒応答非線形屈折率 $n_{2,\text{DAN}}$ の測定

このファイバのフェムト秒応答非線形屈折率 $n_{2,\text{DAN}}$ の測定が以下のように行われた⁸⁾。即ち、被測定ファイバにフェムト秒光パルスを伝搬させ、分散とあいまって自己位相変調により生じるスペクトル広がりを、観測する。同一光源を用いて(入射光尖頭強度のみを変え)、同一長さの非線形屈折率 $n_{2,\text{G}}$ 既知の石英ファイバに対しても同様な測定を行い、両者のスペクトル半値幅や入射パワーなどを比較することによって評価する。

衝突パルスモード同期連続発振色素(CPM)レーザーから1kHz繰り返しエキシマレーザー励起2段増幅器で高出力化してとりだした250fs・~625nmパルス⁹⁾をファイバに伝播さ

せ、実験は行われた。ファイバより出射した光のスペクトル広がり、1kHzに同期したマルチチャンネル光スペクトル瞬時観測装置により測定された。その結果、DANファイバに対しては、小さな入射パワー500Wパルス(入射スペクトル3.3nm)で12.1nmのスペクトル広がりが観測されたのに比べ(Fig. 3)、後者の石英ファイバに対しては、1000倍大きい入射パワーで19.8nm(Fig. 4)の広がりが観測された。

ファイバ中の非線形パルス伝播の結果生じるスペクトル広がり、非線形シュレーディンガー方程式を基にして評価できる。充分な入射強度の線形チャープ域では、同一入射パルス条件(尖頭強度のみ異なる)とファイバ条件に対して、2種のファイバ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^{4,10)}。

$$\frac{\Delta \nu_{\text{DAN}}}{\Delta \nu_{\text{G}}} = \left[\frac{(n_{2,\text{DAN}} \times I_{\text{P,DAN}}) / (n_{0,\text{DAN}} \times \ddot{k}_{\text{DAN}})}{(n_{2,\text{G}} \times I_{\text{P,G}}) / (n_{0,\text{G}} \times \ddot{k}_{\text{G}})} \right]^{1/2} \quad (3)$$

ただし、 $I_{\text{P,DAN}}$, $I_{\text{P,G}}$; $n_{2,\text{DAN}}$, $n_{2,\text{G}}$; $n_{0,\text{DAN}}$, $n_{0,\text{G}}$; $\ddot{k}_{\text{DAN}}$, $\ddot{k}_{\text{G}}$ は、それぞれDANファイバと石英ファイバとに対する入射尖頭強度、非線形屈折率、線形屈折率、群速度分散である。625nmでの $n_{0,\text{DAN}} = 1.22 \times n_{0,\text{G}}$, $\ddot{k}_{\text{DAN}} = 36.7 \times \ddot{k}_{\text{G}}$ と、これらの実験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。従って、DANファイバの $n_{2,\text{DAN}}$ は、 $2.1 \times 10^{-18} \times (\text{m/V})^2$, $\chi^{(3)} = 1.2 \times 10^{-18} (\text{m/V})^2$ である。この値は、同族分子のニトロベンゼン(常温で液

Fig. 3 (a) output spectrum of a 500 W low input pulse in a DAN fiber; (b) its input spectrum⁸⁾.

Fig. 4 (a) output spectrum of a 500 W low input pulse in a glass fiber; (b) its input spectrum⁸⁾.

Table II Third-order nonlinear optical susceptibility and transparent wavelength region of typical media.

materials	phase	$\chi^{(3)}$ (m^2/V^2)	method (λ μm)	non-absorption region	Ref.
fused silica glass fiber	glass	6.1×10^{-23}	SPM(0.514)*	near-IR to UV	R.H.Stolen et al ²⁴⁾
As ₂ S ₃ glass	glass	1.1×10^{-19}	THG(1.9)	near-IR to deep-red	H.Nasu et al ²⁵⁾
nitrobenzene	liquid	1.4×10^{-20}	OKE(0.53)*	near-IR to blue	P.P.Ho et al ²⁶⁾
		9.5×10^{-21}	OKE(0.63)*		W.T.Lotshaw et al ¹¹⁾
		(fastest comp.)			
DAN crystal fiber	crystal	1.2×10^{-18}	SPM(0.625)*	near-IR to green	M.Yamashita et al ⁸⁾
polydiacetylene(PDA-PTS)	crystal	1.2×10^{-17}	THG(1.89)	near-IR to deep-red	C.Sauteret et al ²⁷⁾
polydiacetylene(PDA-PTS)	T.F.crystal	7.0×10^{-18}	DFWM(0.70)*	near-IR to deep-red	G.M.Carter et al ²⁸⁾
polydiacetylene(PDA-PTS)	polycrystal	1.8×10^{-19}	THG(2.1)	near-IR to deep-red	H.Nakanishi et al ²⁹⁾

体)の非線形屈折率のフェムト秒応答成分の値の約100倍大きい¹¹⁾ (Table II)。この差は、DAN分子の電荷移動効果、結晶化による分子集団の同方向配列性と分子高密度性とに起因している。

4.3 非線形性の有限応答効果

DAN結晶ファイバのフェムト秒光パルス非線形伝播に対して、非線形屈折率の有限応答性の影響(以後 T_R 効果と略す)があらわれるかど

うか実験・理論の両面から比較検討された¹²⁾。実験は、4mm長DANファイバ(透過率18%；結合効率と伝播効率の和)へのパルス光入力強度を変えながら、ファイバ出力スペクトルがどのように変化するか観測することによって、行われた。チャープ補償用プリズムの間隔・挿入量を制御して発生された、CPM色素レーザーからのダウンチャープ80fsパルス列(～640nm, 85.5MHz繰り返し)が、NDフィルターで可変減衰された後、DANファイバに伝播された。

Fig. 5 (a) 80-fs input spectrum and (b) ((c)) its output spectrum from a DAN fiber ((b) and (c) are those at the input peak powers of 2,3 and 13 W, respectively).

入力瞬時強度2.3Wの時、2.8nmの長波長シフトが観測された(Fig. 5)。この結果は、非線形屈折率 $n_{2,DAN}(t)$ が、時定数 T_R の指数関数で有限応答すると考えることによって説明できる。

正常分散域の場合群速度座標系 $\xi - \tau$ での非線形パルス伝播方程式は¹³⁾、パルス光の規格化電場振幅 $q(\xi, \tau)$ に対して、以下のようにあらわせる。

$$\frac{\partial q}{\partial \xi} + \Gamma q + \frac{i \partial^2 q}{2 \tau^2} - \beta \frac{\partial^3 q}{\partial \tau^3} = i \left[|q|^2 q + \frac{i2}{\Omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau} (|q|^2 q) - T_R q \frac{\partial |q|^2}{\partial \tau} \right] \quad (4)$$

この式の各項は、左辺第2項から順に、伝播損失(14dB/cmに対応)、群速度分散、3次分散、非線形屈折率効果、パルス急峻効果、非線形屈折率有限応答性をあらわす(Ω_0 は規格化中心角周波数)。この式を用いて、入射パルスを線形チャープ係数 $C = -0.5$ の80fs・2.3Wsech²パルス

と仮定し、DANファイバに対するパラメータ ($\Gamma = 1.01 \times 10^5$, $\beta = 9.99 \times 10^{-6}$, $\Omega_0 = 1.04 \times 10^5$) を代入して、ビーム伝播法により¹³⁾、ファイバ出力スペクトルの T_R 依存性を計算機解析した。その結果、 $T_R = 30$ fsの時、実験と同様な値の長波長シフトが得られた。これより、DAN結晶の $n_{2,DAN}$ 応答時間は、30fs以下と評価される。

更に、この場合の非線形屈折率有限応答性のパルス圧縮への影響を定量的に検討するために、ファイバ出力チャープパルスのチャープ補償パルス圧縮の計算機解析を行った。その結果、2次群速度分散補償ではパルス圧縮率を悪化させるが、この程度の有限応答 T_R 効果は、3次位相分散まで補償すると、その影響を除去できることが確認された。

4.4 フェムト秒レーザー出力パルスの直接圧縮実験

DANファイバを用いて、39fs・1.4kW(~ 625 nm, スペクトル幅11.1nm, 85.5MHz繰り返し)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¹⁴⁾。左右両回りの等価な2出力パルス光の一方のパルス幅を、自己相関器オシロスコープ上に常にモニターし、他方のパルスを40倍対物レンズで集光して、3.6 μ mコア径、5mmシングルモードDANファイバに伝播させた。この時のファイバ透過率は18%であった。ファイバ出力パルス光の一部は、スペクトル拡がりやを常にモニターするため、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や、17.9nm、圧縮パルス幅は22fsであった(Fig. 7)。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、有機ファイバを用いたパルス圧縮としては、初の成功例である。

5. 半導体レーザーパルス圧縮への応用と課題

非線形有機結晶ファイバを用いて、ピコ秒半導体レーザーを、増幅することなく、直接フェ

Fig. 6 Autocorrelation trace of the input CPM-laser pulse to a DAN fiber¹⁴⁾.

ムト秒パルスに圧縮することは、汎用性の高い時間分解分光光源への応用のみならず、光情報技術への応用にとっても大きなインパクトを与える。このことをDANファイバに対して定量的に検討するために、(4)式において、伝搬損失・高次非線形・有限応答性の各項を無視して、小さな入力瞬時強度のピコ秒パルス(波長830nm)についてパルス圧縮の計算機シミュレーションを行った。Fig. 8は、ファイバ出力パルスをチャープ補償(2次位相分散補償のみ)した場合の、圧縮パルス幅の5ps入力光瞬時強度依存性である。入力10W、最適ファイバ長3.7cmの時、66fsのフェムト秒光パルス発生が可能であることがわかった。この確認実験は液体ファイバでも可能であろう。

また、入力光強度が数 kW をこえると、100 μm 以下の最適ファイバ長で10fs以下のパルス列発生が可能である結果も得た。即ち、入力パワーが大きくなってくると、非線形有機結晶膜でフェムト秒パルス圧縮が可能になる。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光パルス圧縮の手法を、CPM色素レーザーより数10倍大きい瞬時出力強度のフェムト秒パルス列を発生するチタンサファイ

Fig. 7 (a) and (b) are autocorrelation trace and corresponding spectrum of the pulse compressed using a DAN fiber¹⁴⁾.

Fig. 8 Calculated dependence of the compressed pulse duration on the 5 ps input peak power to a DAN fiber.

アレーザに應用すれば、10fs以下の高繰り返し極限パルス列の発生が可能となろう。これは、凝縮系原子分子の極限時間域での高S/Nポンプ・プローブ実験の光源として大変魅力的なものとなる。

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

参 考 文 献

- 1) 例えば, Ed. by S. Miyata: *Nonlinear Optics; Fundamental, Materials and Devecas* (North-Holland, 1992).
- 2) M. Yamashita, K. Torizuka and T. Sato: *Opt. Lett.* **13** (1988) 24.
- 3) A. Hasegawa and Y. Kodama: *Proc. IEEE.* **69** (1981) 1145.
- 4) W. J. Tomlinson, R. H. Stolen and C. V. Shank: *J. Opt. Soc. Am. B1* (1984) 139.
- 5) 例えば, Y. R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, 1984).
- 6) R. Morita and M. Yamashita: *Jpn. J. Appl. Phys.* **32** (1993) L950.
- 7) T. Uemiyu, U. Uenishi, Y. Shimizu, S. Okamoto, K. Chikuma, T. Thoma and S. Umegaki: *Nonlinear Optical Properties of Materials* (SPIE, 1989) 1148 207.
- 8) M. Yamashita, K. Torizuka and T. Uemiyu: *Appl. Phys. Lett.* **57** (1990) 1301.
- 9) M. Yamashita, K. Torizuka and T. Uemiyu: *Ultrafast Phenomena VII*, ed. by C. B. Harris et al (Springer-Verlag, 1990) 193.
- 10) J. Herrman and B. Wilhelmi: *Lasers for Ultrashort Light Pulses* (North-Holland, 1987) 253.
- 11) W. T. Lothaw, D. Mcmorrow, C. Kalpouzou and G. A. Kenney-Wallace: *Chem. Phys. Lett.* **136** (1987) 323.
- 12) R. Morita, H. Sone, C. Oshima and M. Yamashita: *Tech. Digest of CLEO '93* (1993) CTHP2.
- 13) G. P. Agrawal: *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, 1989).
- 14) M. Yamashita, K. Torizuka, T. Uemiyu and J. Shimada: *Appl. Phys. Lett.* **58** (1991) 2727.
- 15) M. Yamashita: *Ultrafast Phenomena VIII*, ed. by J. -L. Martin et al (Springer-Verlag, 1993) 313.
- 16) B. F. Levine, C. G. Bethea, R. T. Thurmond and J. L. Bernstein: *J. Appl. Phys.* **50** (1979) 2523.
- 17) A. Harada, Y. Okazaki and K. Kamiyama: *Appl. Phys. Lett.* **59** (1991) 1535.
- 18) L. K. Cheng, J. D. Bierlein, W. Tam and Y. Wang: *Tech. Digest of CLEO '90*, (1990) CTHC3.
- 19) R. T. Bailey, G. H. Bourhill, F. R. Cruickshank, D. Pugh, E. E. A. Shepherd, J. N. Sherwood, G. S. Simpson and C. S. Yoon: *Tech. Digest of CLEO '90*, (1990) CTHC4.
- 20) I. Ledoux, D. Josse, P. Vidakovic and J. Zyss: *Opt. Eng.* **25** (1986) 202.
- 21) K. Sutter, C. Bosshard, W. S. Wang, G. Surmely and P. Gunter: *Appl. Phys. Lett.* **53** (1988) 1779.
- 22) T. Kondo, N. Ogasawara, S. Umegaki and R. Ito: *Nonlinear Optics of Organics and Semiconductors*, ed. by T. Kobayashi, (Springer-Verlag, 1989) 218.
- 23) R. Morita and P. V. Vidakovic: *Appl. Phys. Lett.* **61** (1992) 2854.
- 24) R. H. Stolen and C. Lin: *Phys. Rev. A17* (1978) 1448.
- 25) H. Nasu, K. Kubodera, M. Kobayashi, M.

- Nakamura and K. Kamiya: J. Am. Ceram. Soc. 73 (1990) 1794.
- 26) P. P. Ho and R. R. Alfano: Phys. Rev. A 20 (1979) 2170.
- 27) C. Santeret, J.-P. Hermann, R. Frey, F. Praterre, J. Pcuing, R. H. Baughman and R. R. Chance: Phys. Rev. Lett. 36 (1976) 956.
- 28) G. M. Carter, M. K. Thakur, Y. J. Chen and J. V. Hryniewicz: Appl. Phys. Lett. 47 (1985) 457.
- 29) H. Nakanishi et al: private communications.