フェムト秒固体レーザ内の非線形現象 Nonlinear Phenomena in Femtosecond Solid-State Lasers

石田 祐三 (NTT光エレクトロニクス研究所)
Yuzo Ishida (NTT Opto-electronics Laboratories)

1. はじめに

近年、固体レーザロッド内の光カー非線形性を積極的に利用した新しい自己モード同期法(カーレンズモード同期またはソリトンモード同期)により、従来にない安定な波長可変フェムト秒固体レーザ光源が実現されている。^{1,2)} 注意深い高次分散補償により、現在Ti:Al₂O₃レーザ共振器から直接8fsという利得幅限界に近い極短パルスが得られている。

^{3,4)} また、本光源はシンプルな共振器構成であること、高いピーク強度が得られることなどから共振器内のパルス生成機構や極限パルス発生制御に関する理論的、実験的研究に有効である。特に、高い光電場を有する共振器内では、光カー効果を含むいくつかの非線形過程や高次効果が起こる。これらは短パルス発生に直接寄与するため重要であり、ここではその顕著なものについて取り上げる。

2. 共振器内非線形過程

ここでは、Fig.1のようなブロックダイアグラムで代表される自己モード同期レーザを基に議論を進める。レーザロッドは利得媒質の他にカー非線形素子、正分散素子などの機能を同時に兼ねる。負分散プリズム対は位相補償として、また、ミラー端に置かれたスリットはビーム透過量の制御や波長選択としての機能を持つ。

レーザ発振により十分高い光強度になると、カーレンズ作用とスリットの結合により高速カーレンズスイッチング作用(モード同期)が起こる。また、カー効果による自己位相変

調と負分散の結合によりソリトンのパルスが形成される。更にパルスが短くなり、高いピーク強度になると高次分散効果(3次以上)やこれと非線形性との結合効果、他の高次非線形過程(光強度微分項、誘導ラマン散乱、2光子吸収等)、コヒーレント非線形過渡現象(ラビ振動、自己誘導透過等)などが新たに現れてくる。

Fig. 1 Schematic diagram of a self-mode-locked solid-state laser (S1,S2:slit, M1,M2:output mirror, Z:beam position)

1) 超高速光カーレンズスイッチング

3次非線形過程に基づく高速カーレンズ(凸レンズ)作用は固体レーザの自己モード同期に応用され、その真価が発揮された。今日、カーレンズモードロッキングと呼ばれているものである。⁵⁾ Fig. 2にその4ミラーによる等価的共振器構成を示す。間隔a,bを最適調整することにより、ビームスポット径w₂は光強度に依存して増減する。即ち、透過率は光強度に対して非線形特性を持つ。従来の共鳴型可飽和吸収体を用いた受動モード同期と違って、本モード同期法は非共鳴型非線形過程であるため超高速(<10fs)であること、

波長依存性がないことを特徴とする。また、共振器内に置かれたハードアパーチャの開口径を制御する事により、損失と実効的吸収断面積を広範囲に可変にできるという、新しい機能を有している。欠点として、非線形媒質がレーザロッド自体であるため、低パワー駆動が困難であることである。そのため、cw発振時の小さな揺らぎだけから、自発的にカーレンズモード同期状態に移行させることは難しい。注意深い共振器の調整により、自発モード同期の報告例はある。^{6,7)} 確実な動作のためには、補助的パルス変調作用(ミラー駆動、受動モード同期、強制モード同期など)が別個に必要である。

ガラスより更に高い非線形光学材料($n_2 \geq 3 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$)を共振器内に独立に挿入すれば、そのしきい値は2桁以上下げられるため、大抵の固体レーザ系で自発自己モード同期が可能になるばかりでなく、強い自己位相変調も起こせる。⁸⁾ また、低パワー動作が実現できれば、超高速光・光スイッチング素子として他システムへの応用も可能になる。

Fig. 2 The equivalent Kerr-lens cavity configuration (M₁-M₄:mirrors, K:Kerr-lens in a rod, w₁-w₃ beam waist, w₂:slit radius, L:rod length, f:focal length, p:focal strength due to Kerr-lens effect)

2) 共振器内ソリトン

カーレンズモード同期は従来の高速可飽和吸収体による受動モード同期法に属する。分散効果やカー応答時間の影響が無視できれば、このモード同期法により、原理的にはパルス幅は利得幅の逆数まで狭まる。広い利得帯域と分散を持つ現実の共振器系では、この条件は成立しない。加えてカー効果による自己位

相変調のためパルスは周波数変調を受ける。このため、カーレンズモード同期単独ではフェムト秒パルスは得られていない。逆に、この非線形効果を積極的に起し、素子分散も含めた正チャープを負分散素子で位相補償することにより安定なフェムト秒パルスが形成される。こうして、ファイバソリトン(自己位相変調と負分散の結合)と類似の現象が共振器内で形成される。

ソリトンのパルス圧縮過程が支配的であるときは、高速カーレンズモード同期を用いなくても(起動用低速受動モード同期でよい)フェムト秒パルスが得られる。^{9,10)} カーレンズモード同期は外部擾乱に対してそのソリトンを安定に維持するのに寄与している。実験例としては、負分散量に対するパルス波形の振る舞いから定性的にソリトンモデルでよく説明できている。^{9,10)} 即ち、安定状態の sech^2 形パルス(6桁まで理論値とフィット)は負分散量減少とともに構造を持った不安定なパルスに移行し、再びウイングを持つ安定パルスに達する。これは、基本ソリトン(N=1)から高次ソリトン(N=2 ソリトン)に移行したことを示している。現実の系に即したモデル化とその定量的な比較による議論は今後の課題である。

3) 高次分散効果

石英プリズム対を用いた分散補償自己モード同期 Ti:Al₂O₃ レーザの場合、50 fs 以下になると3次分散(TOD), $\beta_3 = (1/6)d^3\beta/d\omega^3$ によってパルス幅が制限される。更に、10 fs 付近になると4次分散(FOD), $\beta_4 = (1/24)d^4\beta/d\omega^4$ 以上の高次分散で制限される。しかし、プリズム対(あるいはチャープミラー)単独で広帯域にわたり群速度分散(GVD, $\beta_2(\omega_0)$)から高次分散まで独立に制御することは困難である。

TOD や FOD が無視できない領域では、スペクトル波形に特徴的な振る舞いが見られる。¹⁰⁾ プリズム対位置を変えて負 GVD を最適値から 0 に近づけて行くと、中心周波数の短波長シフトが起こる。ある値からは非対称的スペクトル広がりと共に長波長側に新たなピークが現れる。これは短波長シフトにより最適負 GVD を見出し SPM と結合しソリトンパルス形成する。新しいピーク生成は正分散領域の分散波に対応する。これは Fig. 3 に示すように、GVD ($\beta_2 < 0$) と TOD ($\beta_3 < 0$) が同時に存在することで説明される。¹¹⁾ 即ち、ソリトン波数ベクトル $\beta_1 = -\beta_2/2\tau^2L$ と分散波数ベクトル $\beta_d = \beta_2\Delta\omega^2/2L + \beta_3\Delta\omega^3/6L$ の位相整合条件 ($\beta_s = \beta_d$) を満足する周波数 ($\Delta\omega_d$) で効果的にエネルギー移乗が行われる。実測値 $t_p = 18$ fs, $\Delta\omega_d = -0.24$ fs⁻¹, 計算値 $\beta_3 = -800$ fs³ を上記条件に代入すると、 $\beta_2 = -50$ fs² となる。これは実際の石英プリズム対間隔 (59.5 cm) から決まる値 -80 fs² (775 nm) に近い。

波長が 850 nm 付近では、GVD と TOD が

Fig. 3 a) Self-mode-locked spectrum in the presence of group-velocity dispersion (< 0) and third-order dispersion (< 0), b) Dispersion curve for solitary pulse and dispersive wave

ほぼ同時に 0 になることが指摘されている。この場合、FOD ($\beta_4 > 10^3$ fs⁴) が支配的となる。¹²⁾ この位相補償も行うことにより、パルス幅 8.5 fs が 856 nm で得られている。⁴⁾ シミュレーションでは、 $\beta_4 = -120$ fs⁴ のときサテライトパルスを伴う最短パルス幅 5 fs (1.6 サイクル相当) が得られると予測している。プリズム対挿入量を増やしていく過程で、スペクトル波形はダブルピークに変化することが観測されている。この状態では、中心波長で正味正の GVD となりその両側で 0 の値を取るような分散特性が予想される。得られたスペクトル波形をこの分散特性だけから説明するためには、各分散値 $\beta_2, \beta_3, \beta_4, \beta_5$ を実験的にそれぞれ精度よく決定する必要がある。

一方、利得幅限界に近い時間領域にあるため物質系の過渡応答 (カー応答時間 τ_c 、位相緩和時間 T_2) も無視できない。高速 SPM、線形位相特性の仮定が成り立たないため、上記のような単に高次分散補償だけで現象を説明することはできない。

4) コヒーレント過渡現象

ここでは物質の位相緩和時間 T_2 が関与するコヒーレント過渡現象について検討する。これまでの議論がレート方程式近似 $T_2 \ll t_p$ で記述できる現象であったのに対して、コヒーレント現象は $t_p \leq T_2$ の条件下で起こる。光電場 $E(t)$ が十分強くなると、分極 $p(t)$ 、反転分布数 $\Delta N(t)$ は振動的となり、ラビ振動 (ω_R)、自己誘導透過 (SIT) などのコヒーレント過程が関与してくる。^{13, 14)} ここでは、共振器内の光と相互作用する共鳴媒質 (2 準位系) として、レーザー結晶 (Ti:Al₂O₃) を考える。その均一広がりを幅を $\Delta\omega_h \approx 3 \times 10^{14}$ rad/s と仮定すれば、 $T_2 (= 2/\Delta\omega_h) \approx 7$ fs となる。実際の共振器内ピーク強度は $I \geq 2 \times 10^{11}$ W/cm² に達するので、

ラビ周波数は $\omega_R (= \mu_{12} E / \hbar) \approx 5 \times 10^{13}$ rad/s となり、その比は $\omega_R / \Delta\omega_h \approx 0.17 (< 1)$ になる。また、 $t_p \approx T_2$, $\theta = (\mu_{12} / \hbar) \int_{-\infty}^{\infty} E(t) dt \approx \omega_R t_p \approx 0.4$ rad ($< \pi$) となる。ここで、 θ はパルス面積である。これから、10 fs 領域で SIT のような顕著なコヒーレント過渡現象は期待できないにしても、ラビ振動による前駆現象（分極、反転分布の裾付近の振動）は観測可能な条件下にある。従って、双極子モーメントが1桁以上高い媒質（ $\mu_{12} > 3 \times 10^{-29}$ C·m）を選ぶか、低温動作にして $T_2 \approx 100$ fs 台になれば π パルスとなるため、SIT ソリトンなど新しい振る舞いが予測される。いずれにしても、共振器内における極短時間領域の過渡現象であるため、まだ誰も実験的にそれを分離し検証するまでに至っていない。また、定量的な議論を行うためには、 μ_{12} , T_2 の精密測定など超高速分光研究の取り組みが今後必要である。

3. おわりに

超短パルス固体レーザー内で誘起される非線形現象について、最近の成果と問題点を紹介した。今後は更に安定な小型 LD 励起波長可変フェムト秒光源の実現が可能となり、これまでの未解決問題の解明や新しい超高速現象の観測に向けた研究が一層活発になる。これらの成果は再び極限パルス発生制御法の研究や新しい超高速光スイッチング素子開発などへ応用されるであろう。

参考文献

- 1) Y. Ishida, N. Sarukura and H. Nakano, in *Ultrafast Phenomena VII*, C. B. Harris and E. P. Ippen, G. A. Mourou and A. H. Zewail, eds. (Springer-Verlag, Berlin, 1990), p.75., and N. Sarukura, Y. Ishida and H. Nakano: Opt. Lett. **16** (1991) 153.
- 2) D. E. Spence, P. N. Kean and W. Sibbett: Opt. Lett. **16** (1991) 42.
- 3) J. Zhou, G. Taft, C. P. Huang, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn and I. P. Christov: Opt. Lett. **19** (1994) 1149.
- 4) A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann and F. Krausz: Opt. Lett. **20** (1995) 602.
- 5) L. Spinelli, B. Couillaud, N. Goldblatt and D. K. Negus: in *Dig. Conference on Lasers and Electro-Optics*, Washington DC, Opt. Soc. Am., 1991, paper CPDP7.
- 6) G. Gerullo, S. De Silvestri, V. Magni and L. Pallaro: Opt. Lett. **19** (1994) 807.
- 7) M. Lai: Opt. Lett. **19** (1994) 722.
- 8) C. Y. Wang, Y. Ishida and Y. Yamamoto: Opt. Lett. **15** (1990) 965.
- 9) T. Brabec, Ch. Spielmann and F. Krausz: Opt. Lett. **16** (1991) 1961., and F. Krausz, M. E. Fermann, T. Brabec, P. F. Curly, M. Hofer, M. H. Ober, C. Spielmann, E. Wintner and A. J. Schmidt: IEEE J. Quant. Electron. **28** (1992) 2097.
- 10) I. D. Jung, F. X. Kartner, L. R. Brovell, M. Kamp and U. Keller: Opt. Lett. **20** (1995) 1892.
- 11) P. F. Curley, Ch. Spielmann, T. Brabec, F. Krausz, E. Winter and A. J. Schmidt: Opt. Lett. **18** (1993) 54.
- 12) I. P. Christov, M. Murnane, H. C. Kapteyn, J. Zhou and C. P. Huang: Opt. Lett. **19** (1994) 1465.
- 13) J. D. Harvey, J. M. Dudley, P. F. Curley, C. Spielmann and F. Krausz: Opt. Lett. **19** (1994) 972.
- 14) H. Nakano and Y. Ishida: The Review of Laser Engineering **20** (1992) 631.