

## 1.26 $\mu\text{m}$ フェムト秒固体レーザーとその第2高調波発生

### 1.26- $\mu\text{m}$ Femtosecond Solid-state Laser and Its Second Harmonic Generation

挾 間 壽 文

T. HASAMA

A self-mode-locked Cr : Forsterite laser having a 19-mm long crystal in a z-folded cavity has been constructed. The conditions to achieve a stable self-mode-locked oscillation have been investigated through the measurements of mode patterns. It has been found out that a drastic mode-change occurred at a transition of operating regimes from a free-running oscillation to a self-mode-locked oscillation. Optical pulses as short as 35-fs have been produced with an output power of 330 mW and a repetition rate of 80 MHz. The employment of a pair of SF58 prisms, which are featured by high-dispersion property, has enabled the variation of pulse widths of 30 to 70 fs for only 70-mm movement of a prism with the prism insertion constant. Second harmonic generation of femtosecond Cr:Forsterite laser pulses with center wavelengths of about 1260 nm has been demonstrated using a 2-mm long LBO crystal. No deterioration of second harmonic generation responsible for group-velocity mismatching has been observed down to 30-fs pulses.

#### §1 はじめに

固体レーザーによる自己モード同期発振は、1991年 Spenceらによって報告された<sup>1)</sup>。彼らは1980年代初頭に開発された Ti:サファイア結晶と分散補償用プリズムのみを共振器内にもつレーザー装置を使って、60fsのモード同期パルス列を得ることに初めて成功した。フェムト秒レーザーの研究は1970年後半から主として色素レーザーを使って研究が進められたが、1980年代後半には色素レーザーに関する研究はほぼ終了した。これに代わって研究者の関心は、非常に広い帯域でレーザー発振可能な Ti:サファイア結晶によりフェムト秒パルスを得ることに向けられた。この研究の手がかりは、ソリトン領域で動作するカラーセンターレーザーにより 50fs のフェムト秒パルスが得られたとの1987年の報告であった<sup>2)</sup>。Spenceらは固体レーザーと光ファイバーを組み合わせたこの手法を

Ti:サファイア結晶に適用するとともに分散補償用プリズムをレーザー共振器内に挿入することにより、Ti:サファイアレーザーからのフェムト秒パルスを実現した<sup>3)</sup>。彼らはこのような研究の中で偶然自己モード同期発振を見いだしたと言われている。

自己モード同期発振の発見後、発振のメカニズムの解明と Ti:サファイア結晶を使った短パルス化の研究が多くのグループによって進められた。短パルス化への強い意欲は、Ti:サファイア結晶の発振帯域が 5 fs 以下のパルス幅を実現させる程広帯域であったことによる。短パルス化の研究は広いスペクトル帯域全体にわたって如何に群速度分散補償を成し遂げるかの歴史であった。このような努力は、レーザー発振器本体から 5.4fs のパルスを生み出すまでに至っている<sup>4)</sup>。自己モード同期発振のメカニズムは簡単に言えば以下のである。

CW発振中に発生したパルス幅の十分狭いノイズパ

KEYWORDS : Cr:フォルステライトレーザー、自己モード同期、フェムト秒パルス、SF58プリズム、第2高調波、LBO結晶

ルスが、3 次の非線形効果である空間的カー効果による非線形屈折率を誘起するまでに成長することにより、光強度に比例した屈折率分布  $n(r)=n_0+n_2I(r)$  ( $n_0$ : 屈折率,  $n_2$ : 非線形屈折率,  $I(r)$ : パルスの空間強度分布,  $r$  は光軸上からの距離) がレーザー結晶中に発生する。一般に、この屈折率分布は結晶の中心付近で大きな屈折率をもつため、結晶自体が凸レンズのような働きをする。この結果、レーザービームは自己収束し、この自己収束効果により選択的にパルスが成長する。この選択的成長は、結晶中における高強度光のより大きな自己収束による高利得の獲得によって実現される。カー効果はフェムト秒時間領域で高速応答するため以上のような効果は高速過飽和吸収体としての効果と同じである。以上のように、このモード同期はカー効果によって結晶自体がレンズの働きをすることによって達成されることからカーレンズモード同期とも称される。

一方、空間的カー効果と同時に誘起される時間的カー効果(自己位相変調)により広いスペクトルを獲得したパルスは、結晶の群速度分散でパルス幅を広げられるが、このパルスを逆(負)の群速度分散をもつ例えばプリズム対のような光学素子で分散補償すると、パルスは広げられたスペクトルのフーリエ変換パルス幅程度に圧縮される。光パルスはこの過程を共振器の中で繰り返し、自己位相変調によるスペクトルの広がり分散補償光学系で補償できなくなるパルス幅で安定状態となる。この過程は、分散補償できる限り利得帯域全体を覆い尽くすまで進行す

る。

Ti:サファイア結晶の成功はCrドープレーザー結晶の開発を促した。開発はすでに製法の確立した母材結晶にCrをドープする方法と、Crドープ用の新たな結晶を開発することからはじめる2つの方向があった。前者には Cr:YAG, 後者には Cr:フォルステライト, Cr:LiSAF など多くの結晶がある。これらもまた自己モード同期発振が実現された。この中で、本報告の Cr:フォルステライトレーザーは、1992年に自己モード同期発振が報告され<sup>5)</sup>, 翌年には 25fs のパルス幅が得られている<sup>6)</sup>。フェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの発振中心波長は 1260nm 付近にあり、その第2高調波は 630nm と非常に興味ある波長域であるにもかかわらず、第2高調波発生に関してそれ程多くの研究報告がなされていない<sup>7,8)</sup>。また、自己モード同期の発振過程に関する詳しい報告も少ない。

本報告では本研究で行った Cr:フォルステライトレーザーの自己モード同期発振の方法に関して詳細に述べるとともに、これまで用いられなかった新しいプリズム材料を利用したフェムト秒発振特性についても詳述する。また、興味ある応用である LBO結晶を使ったフェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの第2高調波発生の予備的な実験結果についても報告する。

## §2 レーザー装置

Fig.1 に、試作した自己モード同期 Cr:フォルステライトレーザーを示す。レーザー共振器は通常の Z型

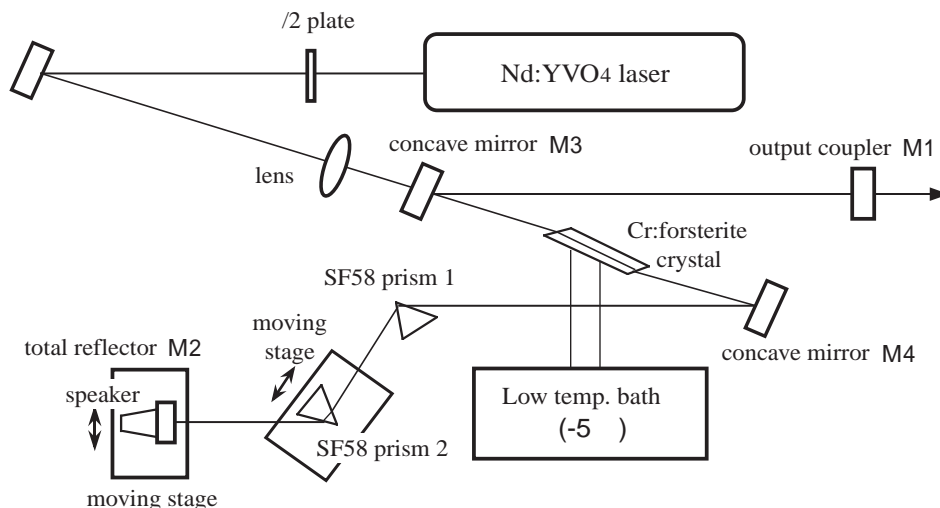


Fig.1 Schematic drawing of self-mode-locked Cr:forsterite laser.

配置であり、レーザー結晶を挟むそれぞれの凹面ミラーから出力ミラー及び全反射ミラーまでの距離が等しい対称型共振器構造を採用した。この構造は非対称型に比べ、安定な自己モード同期発振が得られやすいことが指摘されている<sup>9)</sup>。共振器長は1.88mであり、繰り返し発振周波数80MHzに対応する。出力ミラーM1は透過率6%の平面ミラーである。全反射平面ミラーM2は市販のミニスピーカーに張り付けられている。このスピーカーを商用周波数50Hzで振動させ、CW発振から自己モード同期発振への駆動源とした。共振器を構成する2枚の凹面ミラーM3, M4は曲率半径104mmであり、非点収差補正のために、入射角が15.0°となるように配置した。分散補償用プリズムとしてSF58を使用した。プリズム2と全反射ミラーM2は移動ステージ上に取り付けられており10cmのプリズム間隔の変動が可能である。

レーザー結晶は長さ19mmであり、低温槽との接続により-30℃まで冷却することが可能である。ブリュスターカットされた結晶の吸収係数は、 $0.77\text{cm}^{-1}$ であった。CW発振では結晶の冷却温度の低下とともにレーザー出力は単調に増加したが、今回の実験では、より安定な自己モード同期発振が得られる<sup>5)</sup>で行った。レーザー結晶の励起には、半導体レーザー励起Nd:YVO<sub>4</sub>レーザー(Spectra-Physics T-40)を使用した。励起光はλ/2板を通過後、焦点距離88mmの凸レンズと凹面ミラーM3を通して結晶に集光される。凹面ミラーの透過率は約90%であった。

### §3 自己モード同期パルスの発生とその特性

#### 3-1 自己位相変調と群速度分散

フリーランニング発振時のノイズパルスがモード同期パルスに成長するためには、ノイズパルスが自己位相変調を誘起する程度まで増幅される必要がある<sup>10)</sup>。このような強度に増幅されたパルスは自己位相変調によりスペクトルが広げられるとともに、自己位相変調そのもの及びレーザー結晶の群速度分散により大きくチャープした光パルスとなる。群速度分散によるこの効果はパルスを広げる働きをし、これを補償するために、通常、分散プリズム対かチャープミラーが用いられている。自己モード同期パルスはチャープパルスの補正が可能なパルス幅ま

で狭くなる。

上記のような過程で成長した光パルスが、共振器内で安定に存在するためには、このようなパルス発振(自己モード同期発振)状態がフリーランニング発振よりも十分大きな発振利得の枯渇を引き起こす必要がある。このことを実現するために、フリーランニング発振時に比べ自己モード同期発振時に励起ビームとのモードマッチングがよりよくなるような共振器配置としたり、フリーランニング発振時に損失がより大きくなるような共振器構成がとられている。このような共振器配置や構成は、非線形屈折率効果によるビーム形状の変化(あるいはモードの変化)に基づいている。フリーランニング発振時に損失をより大きくする方法としては、プリズム位置の最適化あるいは共振器内のスリットの挿入等で行われている。しかし、このようなビーム形状あるいはモードの変化に関する詳しい報告はTi:サファイアレーザーを含めて少ない<sup>11)</sup>。

フェムト秒光パルスの発生を引き起こす自己位相変調と分散補償の関係を考えるために、自己位相変調を誘起するまでに成長した光パルスの電場 $E(t,z)$ を、

$$E(t,z)=A(t,z)\exp(i\phi(t,z)) \quad (1)$$

とする。ここで、 $A(t)$ は光電場の振幅のエンベロープ、 $\omega_0$ は中心周波数であり、 $t$ は光パルスとともに移動する座標で測定される。 $z$ は光パルスの進行方向にとられる。自己位相変調は、強い光電場によって媒質の屈折率が瞬時的(フェムト秒領域)に変化することにより起こる。その位相の変調量はパルスの波形が変化しないとして、

$$\phi(t)=n_2L|A(t)|^2/c \quad (2)$$

となる<sup>12)</sup>。ここで、 $n_2$ は非線形屈折率、 $L$ は媒質の長さ、 $c$ は光速、 $A(t)=A(t,0)$ である。従って、光電場の全位相は、

$$\phi(t)=\omega_0 t - n_2L|A(t)|^2/c \quad (3)$$

となる。光の周波数は $\omega(t)$ の時間微分で与えられるから、

$$(t) = -(n_2 L / c) d|A(t)|^2/dt \tag{4}$$

となる。これは、パルスの中心周波数がパルス内で時間的に変化していることを示しており、パルスの前半部では中心周波数より低い周波数で、後半部では高い周波数となっていることが分かる。特に、線形チャープの場合、パルスのスペクトルは広がるが、パルス幅は変化しない<sup>13)</sup>。しかし、波長によって屈折率が異なる分散性媒質を通過する場合、事情は異なる。媒質が正常分散性の場合、周波数の増加とともに群速度が小さくなるため、このような媒質を通過するパルスはパルス幅が広がることになる。このようなパルス幅の拡がりは、プリズム対などの逆の分散特性、すなわち異常分散特性をもつ光学素子により補正が可能となる。

3-2 自己モード同期発振のための共振器条件

3-2-1 凹面ミラー位置の決定

自己モード同期を実現するためには、フリーランニング発振と自己モード同期発振でのビームの変化が必要である。このような変化は共振器の発振領域の安定端で顕著であることが理論的な研究により示されている<sup>14,15)</sup>。まず、この安定端の位置を求めることにした。Z型共振器においては、床面に平行な sagittal 面と垂直な tangential 面では凹面ミラーの実効的な焦点距離  $f_s, f_t$  が異なり<sup>16)</sup>,

$$f_s = R/(2\cos(\theta/2)), f_t = R\cos(\theta/2)/2 \tag{5}$$

となる。ここで、R は凹面ミラーの曲率半径、 $\theta$  は非点収差補償角である。

一方、プリスターカットされたレーザー結晶は屈折率 1 の自由空間中で置き換えた時の実効的な長さが sagittal 面, tangential 面において異なり、実効長はそれぞれ  $d_s = d_L/n, d_t = d_L/n^3$  となる。ここで、 $d_L$  はレーザー結晶の長さ、n は結晶の屈折率である。上記のように sagittal 面と tangential 面では凹面ミラーによる焦点距離が異なるために、共振器の安定領域も異なる。Z型共振器の場合、レーザー発振は凹面ミラー間隔  $D_{s,t}$  が次の関係を満たす場合にそれぞれの面において安定な発振を得ることができる。

$$2f_{s,t} < D_{s,t} < 2f_{s,t} + d_{s,t} \tag{6}$$

ここで、 $d_{s,t}$  は次の式で与えられる安定領域を表す。

$$0 < d_{s,t} < 2f_{s,t}^2/(L-f_{s,t}) \tag{7}$$

ここで、L はそれぞれの凹面ミラーから全反射ミラー及び出力ミラーまでの距離である。Z型共振器の場合、通常安定端は4カ所であるが、対称共振器の場合、安定領域の中間点で縮退している。従って、上記の中間点付近で共振器は不安定になる。ここで、sagittal 面, tangential 面それぞれの安定領域  $d_s, d_t$  と  $D_s, D_t$  を求める。いま、共振器条件  $R=104\text{mm}, L=880\text{mm}, \theta=30^\circ$  とすると、 $0 < d_s < 7.0\text{mm}, 0 < d_t < 6.1\text{mm}$  及び  $107.7 < D_s < 114.7\text{mm}, 100.5 < D_t < 106.5\text{mm}$  が得られる。

ここで、 $D_{s,t}$  は実効的なレーザー結晶長を  $d_s = d_L/n, d_t = d_L/n^3$  とした場合であり、実際の共振器上では、これを  $d_t = 19\text{mm}$  に置き換える必要がある。n=1.63 とすると、両凹面鏡から結晶端までの距離と結晶長を合計した凹面鏡間隔  $D_{sr}, D_{tr}$  は、 $115.0 < D_{sr} < 122.0\text{mm}, 115.1 < D_{tr} < 121.1\text{mm}$  となり、安定領域の最短位置では両者ともほぼ一致するが、最長位置では sagittal 面の安定端が約 1mm 長くなる。また、それぞれの縮退点での安定端は、 $D_{sr} = 118.5\text{mm}, D_{tr} = 118.1\text{mm}$  となる。従って、最も発振が不安定になる位置はこの両者の中間点  $D = 118.3\text{mm}$  と予想される。

Fig.2 は、発振出力が不安定になる付近で M4 ミラーを変化させた時の出力の変化を示している。共振器からのレーザー出力は、すべてパワーメータ (Gentec

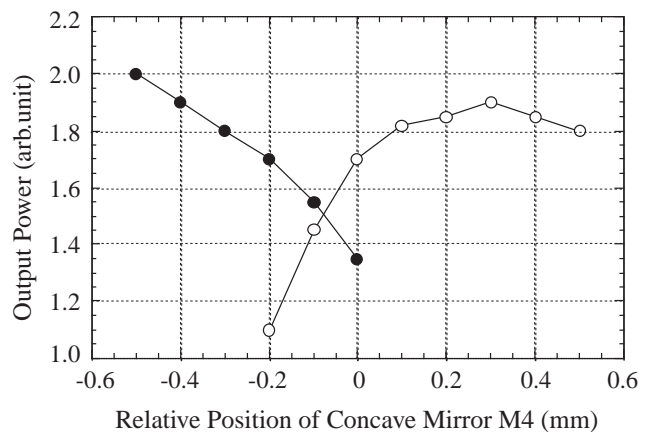


Fig.2 Dependence of output power on relative position of concave mirror M4 shown in Fig.1.

TPM-310) を使って測定した。この図から、 $-0.1\text{mm}$  付近が最も不安定であり、この位置が  $D = 118.3\text{mm}$  に相当するものと判断される。この付近では sagittal 面か tangential 面かのどちらかに合わせた調整で2つの出力をとることになる。また、この結果は、Fig.2の  $-0.3\text{mm}$  付近と  $+0.1\text{mm}$  付近に tangential 面と sagittal 面の中間安定端があることを示している。従って、自己モード同期発振のための条件の1つである M4ミラー位置の最適化を  $-0.3\text{mm}$  付近を中心に行なった。3-3-1節で示すように自己モード同期のための最適位置は  $-0.6\text{mm}$  付近であった。

### 3-2-2 分散補償用プリズム対の配置

すでに述べたように大きな電場強度をもつ光パルスは自己位相変調によりスペクトルを広げるとともにパルス自身チャープする。このチャープパルスは結晶の群速度分散によりパルス幅が広がる。この広がったチャープパルスをチャープフリーのパルスとするためには結晶の群速度分散量と自己位相変調によって発生したチャープ量の両方を符号が逆の分散量をもつ補償光学系により補償しなければならない。パルス幅の短縮とともに広い発振スペクトル領域に渡って群速度分散補償が行われることが必要であり、このためには中心波長における高次分散量に対する補償が必要となる。本研究ではこれらの分散補償をプリズム対で行った。

フェムト秒Cr:フォルステライトレーザーに関するこれまでの報告では、分散補償用プリズム材料としてほとんどの場合 SF6 が用いられている。しかし、SF6 と同程度の分散特性を有する材料は他にも存在し、今回その1つとして SF58 を取り上げた。Fig.3 に、SF6, SF58 プリズム対を利用した時の全共振器内分散量のプリズム間隔依存曲線が描かれている。図には全プリズム挿入量として  $5\text{mm}$  と  $6\text{mm}$  の場合を示している。Cr:フォルステライトレーザー結晶の群速度分散量及び3次分散量として、 $45\text{fs}^2/\text{mm}$ ,  $174\text{fs}^3/\text{mm}$  を使った<sup>17)</sup>。

この図から、全プリズム挿入量  $5\text{mm}$  の時  $-300\text{fs}^2$  の群速度分散を SF6, SF58 で得るためには、プリズム間隔をそれぞれ  $255\text{mm}$ ,  $210\text{mm}$  にすればよいことが分かる。一方、この時の3次分散は、それぞれ、 $1200\text{fs}^3$ ,  $-1100\text{fs}^3$  と符号が反対であるが、絶対値はほぼ同じである。しかし、プリズム間の単位距離当たりの分散量の変化は群速度分散に対してそれぞれ  $11\text{fs}^2/\text{cm}$ ,  $16\text{fs}^2/\text{cm}$ , 3次分散に対して  $16\text{fs}^3/\text{cm}$ ,  $32\text{fs}^3/\text{cm}$  と SF58 の方が大きな分散変化をすることが分かる。一方、全プリズム挿入量では、SF6, SF58 それぞれに対して群速度分散変化  $-340\text{fs}^2/\text{mm}$ ,  $-450\text{fs}^2/\text{mm}$ , 3次分散変化  $-420\text{fs}^3/\text{mm}$ ,  $-480\text{fs}^3/\text{mm}$  である。以上の計算結果は、SF58 を使用しても SF6 とほぼ同程度のフェムト秒発振特性が期待できる一方、SF58 の方がプリズム間隔、プリズム挿入量に対して分散が敏感に変化することを

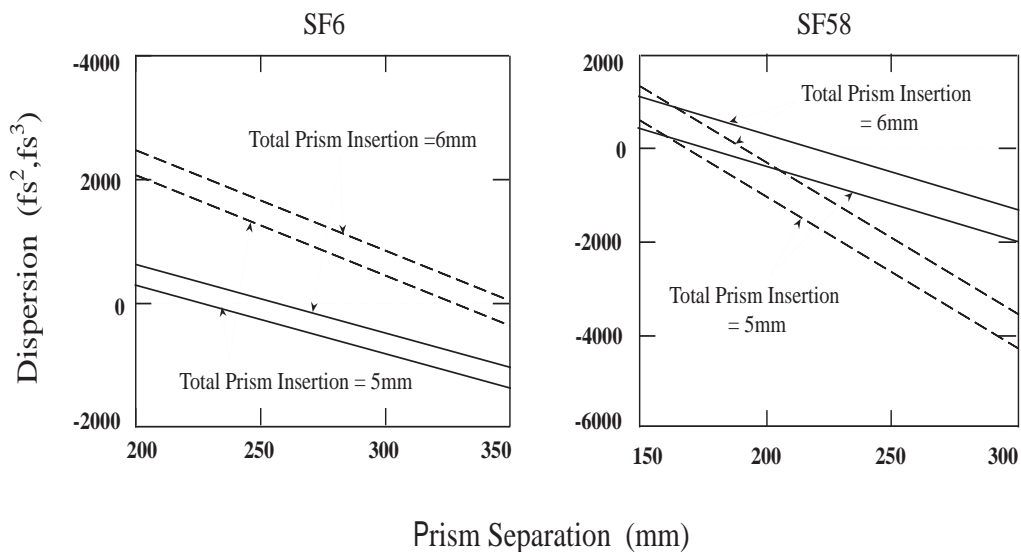


Fig.3 Group-delay dispersions and third-order dispersions of SF6 and SF58 as a function of prism separation at a wavelength of  $1260\text{nm}$  for total prism insertions of  $5\text{mm}$  and  $6\text{mm}$ . Dispersion of mirrors is not considered in the calculation.

示している。また、SF58ではより狭いプリズム間隔でより大きな群速度及び3次分散変化を共振器に与えることができることから装置がコンパクトになると期待できる。

### 3-3 自己モード同期発振

#### 3-3-1 共振器調整

上記考察及び初期実験により、M4ミラーの位置とプリズムの選択及びそのプリズム間隔に対する共振器内群遅延分散量が定量的に求められた。自己モード同期発振を行わせるため、プリズム間隔  $L_p=210\text{mm}$  として共振器調整を行った。まず、最大のCW発振出力とほぼ完全な  $M_{00}$ モードが得られるように両端ミラーの調整とレーザー結晶位置の移動を行った。この時、共振器内プリズムは、ビームが床面に平行になるように、また、ほぼプリュスター角で入射するように調整した。両プリズムは、ビームがプリズム頂角に近い位置にくるように配置した。

レーザー光の評価のために、ビームパターン、発振パルス列、発振スペクトルの観測を行った。ビームパターンの観測は、出力ミラーから約50cm離れた位置に設置された赤外ビジコンカメラ（浜松ホトニクスC2741-03）で得られた画像情報をリアルタイム画像改善装置（浜松ホトニクスDVS-3000）で処理し、ビデオモニターで観測した。光パルス列は高速光ディテクター（New Focus 1611FSM）と1GHzのアナログオシロスコープ（Tektronix 7104）で観測した。一方、スペクトル波形観測には、InGaAsリニアアレイ（浜松ホトニクスG-5880-256）を小型分光器（島津SPG-100IR）に組み込んだ自作のマルチチャンネルス

ペクトラムアナライザを使用した。

共振器を上記のように調整した後、全反射ミラーに取り付けたミニスピーカを動作させながら、レーザー結晶を励起レーザー方向に移動した。この移動に伴うビームパターンと発振出力の変化を測定した。この時の励起パワーは6.4W、結晶の吸収パワーは4.4Wであった。Fig. 4 (a)(b)に、最大発振出力を与える結晶位置及びその位置から2mm離れた位置でのビームパターンを示している。但し、ここに示したパターンはスピーカ停止時のものである。ビームパターンは結晶の移動とともに大きく変化する。また、発振出力も完全なCW発振であるFig4(a)の時の490mWからFig.4(b)の240mWへと急激な減少を示す。Fig.4(b)付近でビームパターンは図に示すような独特な形状を示すようになり、発振形態もCW発振とノイズの多いパルス発振とを重畳した不安定な状態に移行する（Fig.5(a)参照）。この位置で両方のプリズムの挿入量を微妙に変化させるとCW発振に重畳して発振している80MHzのパルス列の中から時折するどいパルスが発生するようになる。M4ミラー、レーザー結晶、プリズム等の厳密な調整の後、少し扁平ではあるがFig.4(c)に示すような  $M_{00}$ モードのビームパターンが得られるようになる。この時発振出力は330mWであり40%近い出力増加を示した。また、この時のパルス幅を求めるために市販のオートコリレータ（Inrad 5-14B）を用いて自己相関波形の測定を行った。得られた自己相関波形は計算で求めた  $\text{sech}^2$ の相関曲線とよく一致した。パルス波形を  $\text{sech}^2$ と仮定した時のパルス幅は35fsであった。

Fig.5に、スピーカを動作させない時のFig.4(b)の

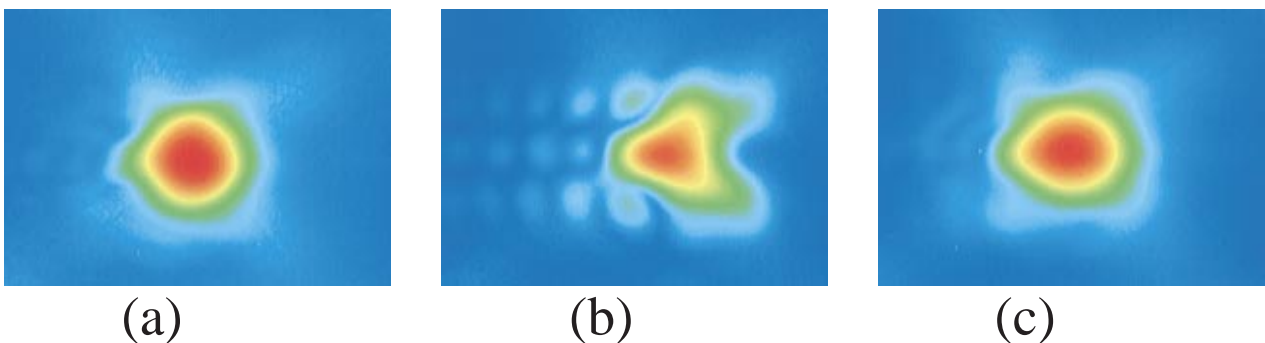


Fig.4 Beam patterns taken with an infrared camera 20 cm away from the output coupler at (a) a position of laser crystal producing the maximum CW power of 490mW, (b) 2 mm away from the initial position, where the output power is only 240 mW, and at (c) the same position as (b), where a stable self-mode-locked operation with an output power of 330 mW is realized by driving the mini-speaker .

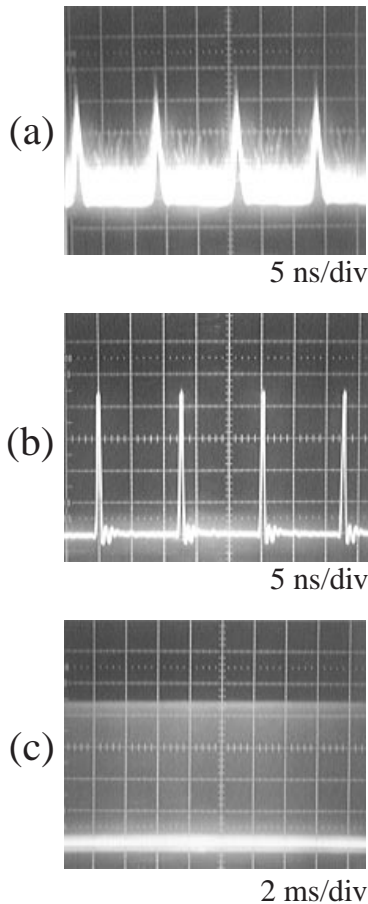


Fig.5 Optical pulse trains at (a) a free-running operation and (b), (c) a self-mode-locking operation for the same laser-crystal position.

位置でのパルス列 (Fig.5(a)) と自己モード同期発振でのパルス列 (Fig.5(b), (c)) を示す。Fig.5 (b), (c) は異なった時間スケールで観測されている。Fig.5(c) から揺らぎのほとんどない非常に安定なモード同期発振が実現されていることが分かる。このようなノイズパルスからモード同期発振への移行の様子を調べるためにオプティカルチョッパーを利用した。チョッパーは出力ミラーとプリズムの間に置かれ、出力ミラーのスピーカーは常に動作状態とした。Fig.6にその時の結果の一例を示す。図から CW 発振後約 1.5ms で自己モード同期発振に移行していることが分かる。この CW 発振開始から自己モード同期への移行時間は  $300\ \mu\text{s}$  から数 ms 後とばらつきがある。このばらつきは恐らく 50Hz で振動しているスピーカーの最大加速付近でモード同期発振が誘起されているためと考えられる。Fig.6でモード同期発振出力が低下しているように見えるが、これもスピーカーの振

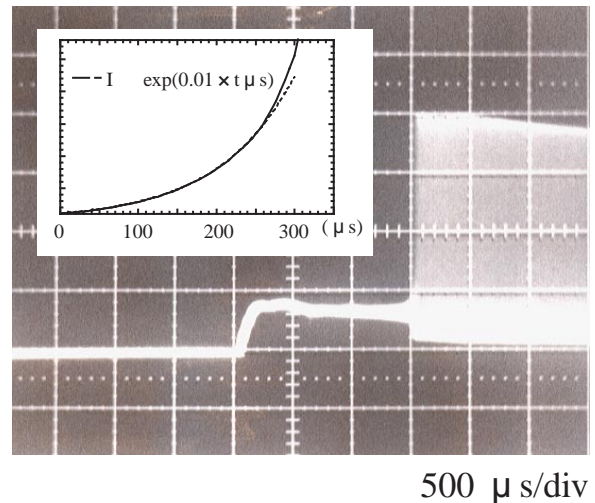


Fig.6 Temporal behavior of optical pulses during a period of transition from a CW to a mode-locking operations. The growth of a seed pulse is shown by a magnified drawing in an inset. A dotted line is the fittest exponential curve for the growth.

動により出力が変調を受けているためである。

Fig.6 の中に CW 発振からモード同期発振へ移行する部分の拡大図を示している。この図は  $t=0$  で CW 発振中に発生したノイズパルスが約  $300\ \mu\text{s}$  でモード同期発振に移行する様子を示している。 $t=250\ \mu\text{s}$  付近まで、発振強度は点線で示された指数関数曲線に従って増加しているが、それ以降はさらに急激に増加している。これは、 $t=250\ \mu\text{s}$  付近以降では、十分成長したノイズパルスが、非線形屈折率を誘起することによりビームパターンの変化を引き起こし、よりよいモードマッチングが加速度的に実現したことによるものと考えられる。この非線形光学効果による自己モード同期形成時間は図から  $50\ \mu\text{s}$  程度と見積もられる。ノイズパルスのエネルギー蓄積時間及び自己モード同期形成時間は、Ti:サファイアレーザーの実験で評価されたそれぞれの時間とほぼ同程度の値を示している<sup>(11,18)</sup>。

先に述べたように、自己モード同期発振への移行には、大きなビームパターンの変化が伴っている。この変化の原因を調べるために、Fig.1の出力ミラーの直前にナイフエッジを配置し、ナイフエッジの挿入方向に対する Fig.4(b) のパターンの変化を調べた。結果を Fig.7 に示す。Fig.7(a) はナイフエッジを Fig.1 の下方から挿入した場合、Fig.7(b) は上方からの場合である。両者の比較から、レーザー発振は2つの独立

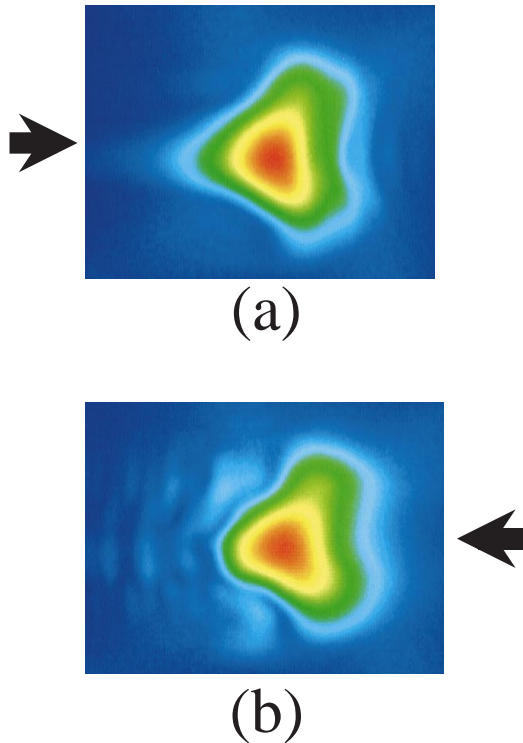


Fig.7 Beam patterns observed with a knife-edge arranged near the output coupler when the resonator is adjusted so that the pattern of Fig.4 (b) is produced. The arrows indicate the directions of insertion of the knife-edge.

したモード，すなわち複雑なモードパターンをもつ  $M_{kl}$ モードと点状に横に広がった  $M_{n2}(n>3)$  モードから構成されているように見える。 $M_{n2}$  モードは左方向に広く広がっているため，Fig.7(a)に示すように  $M_{kl}$  モードだけが残るようにナイフエッジを挿入することができる。一方，Fig.7(b)の右方向からの挿入では， $M_{kl}$  モード， $M_{n2}$  モードともに変調を受ける。これは， $M_{n2}$  モードが  $M_{kl}$  モードにオーバーラップしているためと考えられる。

Fig.8は上記のような発振モードの発生に対して考えられる原因を模式的に示したものである。最初，ほぼ完全な  $M_{00}$  モード発振している状態からレーザー

結晶を集光レンズ方向へ移動させるとレーザー結晶内での励起強度が不均一になる。この図から明らかのように，この不均一性は図の下方に行くほど励起強度が小さくなるとともに励起範囲が広がる。この領域を中心として発振している状態が  $M_{n2}$  モードに対応するものと考えられる。一方，高密度励起領域で発振している  $M_{kl}$  モードは，そのモード内に発生したノイズパルスが非線形屈折率によりビーム形状を変形するまでに成長し，最終的に少し扁平した形状をもつ安定な自己モード同期発振となる。この非線形屈折率によるモード形状の変化は，励起モードとのよりよいマッチングをもたらし，すでに述べたように40%近い発振出力の増大となる。

以上のような発振モードを実現するためには，共振器を構成する光学素子の厳密な調整のみならず励起強度の最適化も必要となる。しかし，共振器構成の最適化はビーム形状をモニターしながら Fig.4(b) になるように共振器を調整することによって比較的容易に実現できる。Table 1 にレーザー結晶，M4凹面ミラー，プリズム1，2の自己モード同期発振のための許容範囲を示す。M4ミラーの最適値はFig.2のおおよそ-0.6mmの位置であった。また，テーブルに示したプリズム挿入量の変化は群遅延分散量の変化をもたらすためパルス幅，スペクトル幅に変化を与える。

本研究で観測されたモード同期発振の条件は，Table 1 に示すようにTi:サファイアレーザーに比べ厳

Table 1 Tolerable ranges of positions of some resonator optics for self-mode-locking operation at a prism separation of 210 mm. Prisms P1 and P2 show a tolerable range of prism insertion.

Laser crystal	Concave mirror M4	Prism P1	Prism P2
=1.5mm	= 0.18mm	= 0.22mm	= 0.28mm

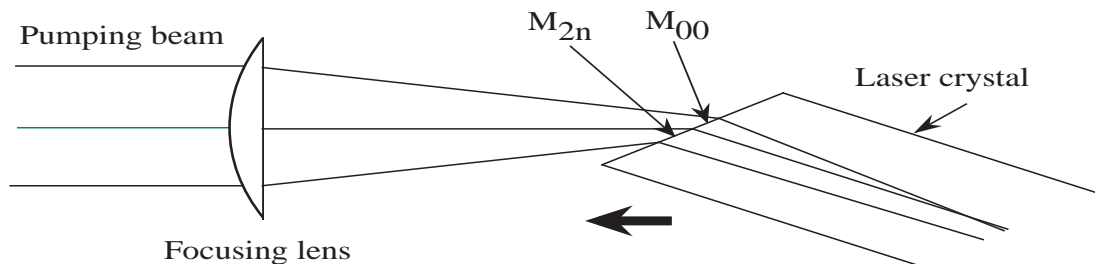


Fig.8 Conceptual drawing to explain the generation of the pattern of Fig.4 (b).

しいように思われる。自己モード同期発振に要求される条件の1つにカーレンズ効果の大きさがある。カーレンズ効果は、非線形屈折率とビーム強度の積で現れる。非線形屈折率の大きさはTi:サファイア結晶で  $3 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}^{(14)}$ 、Cr:フォルステライト結晶で  $2.6 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}^{(6,19)}$  と同程度である。一方、ビーム強度の大きさは共振器内のピークパワー強度が等しい場合、共振器のスポットサイズの大きさで決定づけられる。ここで、Fig.1の共振器配置におけるスポットサイズ  $z_f$  をガウスビームを仮定して求める<sup>20)</sup>。いま、 $D_L = 880\text{mm}$ ,  $f_s = f_t = 52\text{mm}$ ,  $r_s = r_t = 2.8\text{mm}$  とすると発振波長  $\lambda_L = 1260\text{nm}$  に対して、 $2z_f = 50 \mu\text{m}$  となる。一方、発振波長が  $\lambda_L = 800\text{nm}$  のTi:サファイアレーザーに対して  $2z_s = 40 \mu\text{m}$  が得られる。従って、ピークパワーが等しい場合、Ti:サファイアレーザーの方が約1.5倍のビーム強度が結晶内で得られることになる。なお、共焦点パラメータは両者とも3.0mmである。共振器内のピークパワーは出力ミラーの透過率により比較的自由に換えられるため、この程度の集光断面積の差は自己モード同期発振の容易さにはあまり影響しないと思われる。

次に、励起ビームの集光について考える。本研究に使用された励起レーザーの波長  $\lambda_p = 1063\text{nm}$  とレーザー出射口でのビーム直径  $d_p = 0.3\text{mm}$ 、励起用レーザーから集光レンズまでの距離  $D_p = 0.7\text{m}$ 、集光レンズの焦点距離  $f_p = 88\text{mm}$  から、集光ビームの直径は、 $2z_{pf} = 42 \mu\text{m}$

となる。一方、Ti:サファイアレーザーの励起源として、Spectra-Physics Millennium Xを使用するとすれば、 $\lambda_p = 530\text{nm}$ ,  $d_p = 2\text{mm}$ ,  $D_p = 0.7\text{m}$  を使って、 $2z_{ps} = 30 \mu\text{m}$  が得られる。いま、カーレンズ効果による結晶内でのビームの収縮によって<sup>21)</sup>、励起光とのよりよいモードマッチングが可能となるためには初期条件として、 $\rho/z < 0.5$  が必要である<sup>22)</sup>。しかし、Cr:フォルステライトレーザーの場合  $M_f = z_{pf} / z_f = 0.84$ 、Ti:サファイアレーザーでは、 $M_s = z_{ps} / z_s = 0.75$  であり、どちらも  $M_{00}$  モードでは条件を満足しない。このため、自己モード同期直前のCW発振においてマルチモードとすることがどちらのレーザーにおいても必要である。しかし、Ti:サファイアレーザーではCr:フォルステライトレーザーに比べ  $M_s$  が小さく、この分だけ設定条件が緩和されることが期待される。もし、 $f_p = 70\text{mm}$  の焦点距離の集光レンズを使うことができれば、それぞれ、 $M_f = 0.68$ ,  $M_s = 0.60$  となり、条件が緩和される。しかし、この時の共焦点パラメータ  $b_f, b_s$  は  $f_p = 88\text{mm}$  の時の  $b_f = 2.6\text{mm}$ ,  $b_s = 2.2\text{mm}$  から  $f_p = 70\text{mm}$  での  $b_f = 1.8\text{mm}$ ,  $b_s = 1.8\text{mm}$  へと小さくなる。このため、モードマッチングによる効果を効果的に利用するためにはより短い結晶を使う必要がある。

### 3-3-2 発振特性のプリズム間隔依存性

プリズム間隔の変化は群遅延分散の変化をもたらす。Fig.9は、プリズム間隔  $L_p = 210, 230, 280\text{mm}$  の時

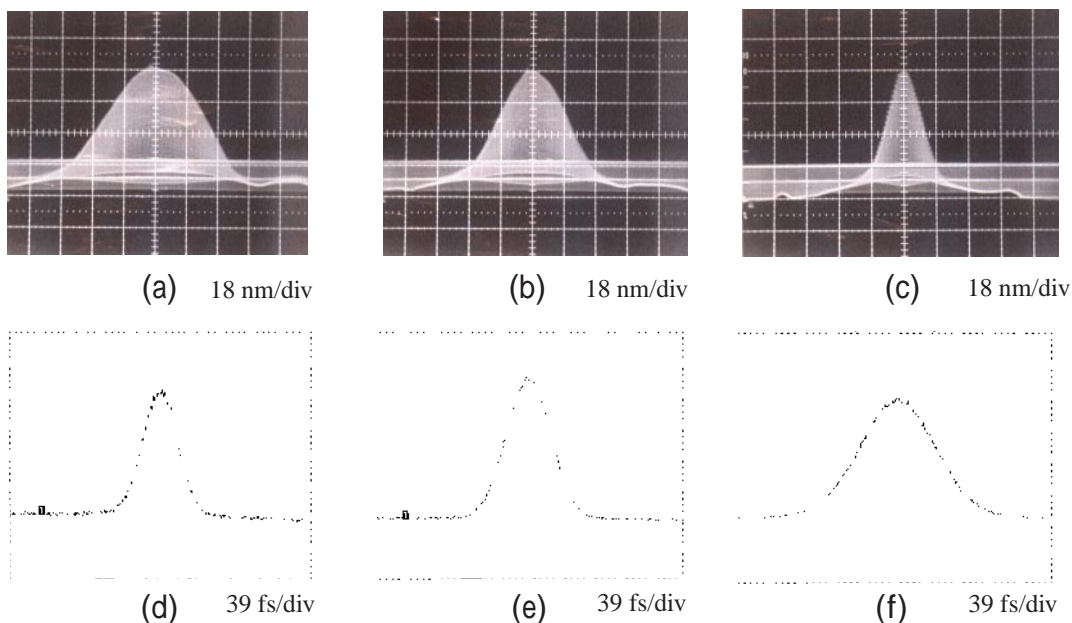


Fig.9 Spectra and autocorrelation traces at different prism separations.

のスペクトル波形と自己相関波形を示している。スペクトル波形はスペクトルアナライザの出力を400MHz デジタルオシロスコープ (Tektronics TDS380P) で測定した。L<sub>p</sub>=210, 230, 280mmの時のsech<sup>2</sup>を仮定して求めたパルス幅はそれぞれ τ<sub>p</sub>=33, 43, 72fsである。

正確なスペクトル波形を求めるために、小型分光器 (島津 SPG-100 IR) をモノクロメータ (分解能 1nm 以下) として使用し、波長掃引によって得られたシグナルをXYレコーダー上に記録した。L<sub>p</sub>=210mmの時の結果を Fig.10 に示す。図には sech<sup>2</sup>の曲線が描かれており、測定結果とよく一致している。この時のスペクトル幅 (半値全幅) は 70nm, 中心波長 1260nm である。このスペクトル幅から、sech<sup>2</sup> を仮定した時のフーリエ限界パルス幅は 24fs であり、この値は実測値より 9fs 狭い。この原因の1つとして、パルスがチャープしていることが考えられる。25fs パルスが得られた実験では、このチャープを取り除くために共振器の外にプリズム対が設置されている<sup>6)</sup>。今回得られたパルスに対しても同様な方法を行うことによりパルスの圧縮が期待できる。

Fig.11 に、L<sub>p</sub> =210mm からL<sub>p</sub> = 280mm の範囲で測定されたスペクトル幅とパルス幅がプロットされている。この中で、L<sub>p</sub> = 240mmでのプロットが直線からはずれているが、これはこの時のプリズム挿入量が変わったためと考えられる。このようにプリズム挿入量が一定のもとで、プリズム間隔を変化させることにより任意のパルス幅を得ることができる。今回分散プリズム材料として SF58 を使用したため、わずか70mm のプリズム移動に対して、40fs のパルス幅変化を安定な発振のもとで得ることができた。

これらのプリズム間隔におけるプリズム挿入量 5.5mm から、共振器内群遅延分散を見積もることができる。これは自己位相変調によって生じたパルス内チャープの補正を行うのに必要な分散量に相当する。Fig.12 に、このようにして求めた群遅延分散の関数とした時のパルス幅を示している。図から、パルス幅が群遅延分散にほぼ比例して増加しているのが分かる。

Fig.12 のパルス幅と群遅延分散の関係から Cr:フォルステライト結晶の非線形屈折率を求めることができる。共振器内群遅延分散 Dと1Wのピークパワーをもつ光パルスが共振器を一往復した時の位相変化

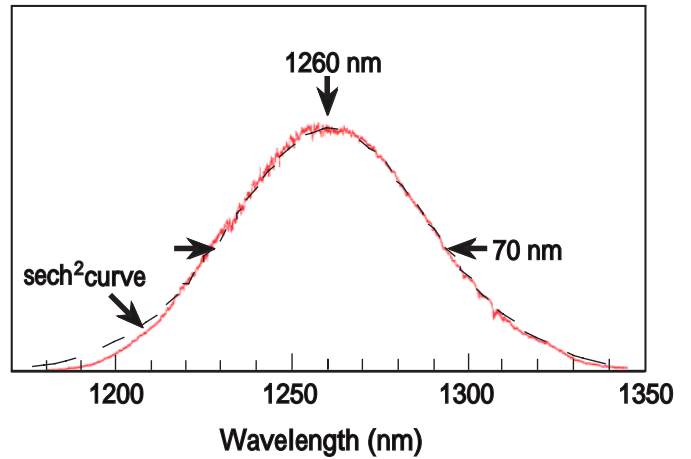


Fig.10 Spectrum observed at a prism separation of 210 mm. A sech<sup>2</sup> curve is depicted in a broken line.

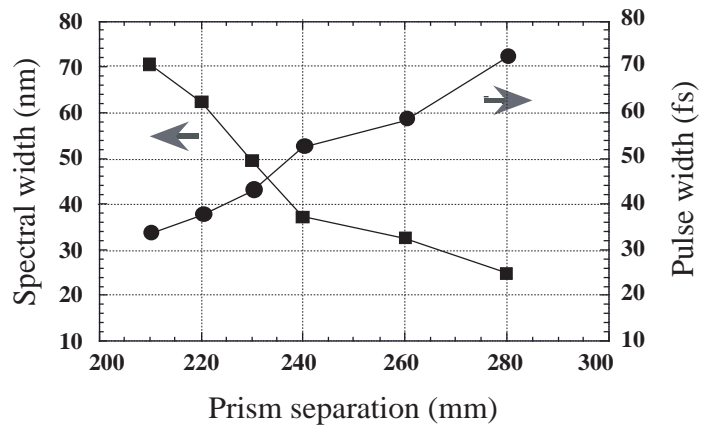


Fig.11 Spectral and pulse widths as a function of prism separation.

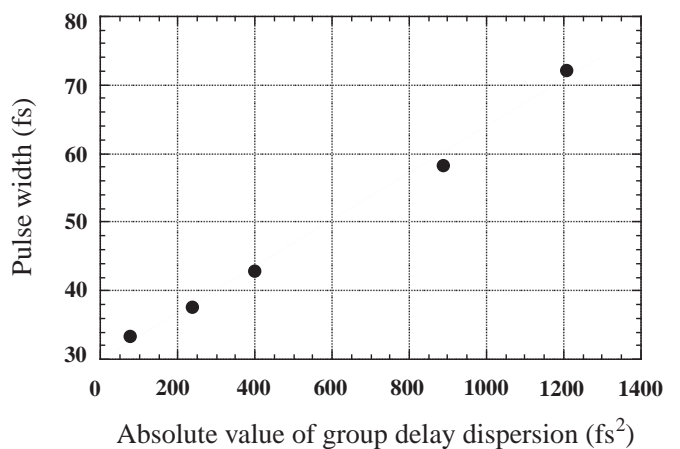


Fig.12 Pulse width as a function of the absolute value of group delay dispersion.

、共振器内のパルスエネルギーE が与えられた時、出力ミラー上でのパルス幅 は、

$$= 3.53 \quad D \quad / \quad E + 0.25 \quad E \quad (8)$$

と表される<sup>23)</sup>。Fig.12 に上式を適用すると  $E \sim 100\text{fs}$  が得られる。共振器内のパルスエネルギーは、発振出力 300mW, 出力ミラー透過率 6%, 繰り返し周波数 80MHz から  $E = 63\text{nJ}$  となる。従って、 $\sim 1.6 \times 10^{-6} \text{W}^{-1}$  が得られる。この と非線形屈折率  $n_2$  との関係は、P をピークパワーとすると、

$$P = 2 \quad n_2 L P / A \quad (9)$$

である。ここで、L は結晶の長さ、A はビーム断面積、 $\lambda$  は発振波長である。結晶中での平均のビーム径を  $60 \mu\text{m}$  とすると、 $n_2 \sim 2.4 \times 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$  が得られる。この値は、これまで報告された  $n_2 = 2 \times 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$ <sup>6)</sup> と  $n_2 = 6 \times 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$ <sup>19)</sup> と同程度の値となっている。

群遅延分散量を減少させてパルス幅を狭くしていくと、Cr:フォルステライトレーザーの自己モード同期発振は次第に難しくなる。 $L_p = 210\text{mm}$  では Table 1 に示すように光学素子の設定許容範囲は狭く、かなり厳密な共振器の調整を必要とする。これに加え、自己モード同期の継続時間も短くなり、 $L_p = 210\text{mm}$  の場合、安定な自己モード同期発振時間は数時間程度である。しかし、プリズム間隔の増加とともに発振の安定度は増加し、 $L_p = 280\text{mm}$  では、自己モード同期発振の持続時間は1日以上になる。また、自己モード同期発振の条件も緩和されるようになり、Fig.4(b)のパターンが得られるような厳密な調整をしなくても自己モード同期発振を開始する。しかし、この場合、厳密な調整を行った時に比べ、発振出力、ビームパターン、安定性ともに大きく劣る。

#### §4 フェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの第2高調波発

今回試作したフェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーは発振ピーク波長が  $1260\text{nm}$  付近にあるため、その第2高調波のピーク波長は  $630\text{nm}$  程度になる。この波長はフェムト秒発振器として広く使用されてき

たローダミン 6G 色素レーザーの発振波長の範囲内にある。さらに、高出力の第2高調波パルスが得られれば、パラメトリック発振器を構成することにより、Ti:サファイアレーザーの発振領域を含む  $700\text{nm}$  以上の広い波長域でフェムト秒パルスを得ることが期待できる。

このような目的の第一歩として、LBO 結晶によるフェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの第2高調波発生特性について調べた。第2高調波の発生には、LBO 以外に一軸結晶である BBO,  $\text{LiIO}_3$  等がよく使用されている。これは、これらの非線形定数が LBO に比べて数倍近く大きいことによる。これらに対し、LBO 結晶は2軸結晶であるため、結晶をX軸に垂直にカットし、温度制御で位相整合させるType I のノンクリティカル位相整合 (NCPM) を採用することができる。特に  $1260 \text{nm}$  付近では常温に近い温度での位相整合が可能であるとともに、X軸入射の時LBO結晶で取りうる最大の非線形定数をもたせることができる。

フェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの第2高調波発生を LBO 結晶で行うことのさらに大きな利点は、基本波と第2高調波との群速度が極めて近いことである。Fig.13 に基本波の z 偏光での群速度と第2高調波の y 偏光での群速度の波長依存性を示す。  $1260\text{nm}$  と  $630\text{nm}$  のそれぞれの群速度が極めて近いことがわかる。これはパルス幅の狭いフェムト秒パルスであっても、長い距離に渡って有効にエネルギー授与

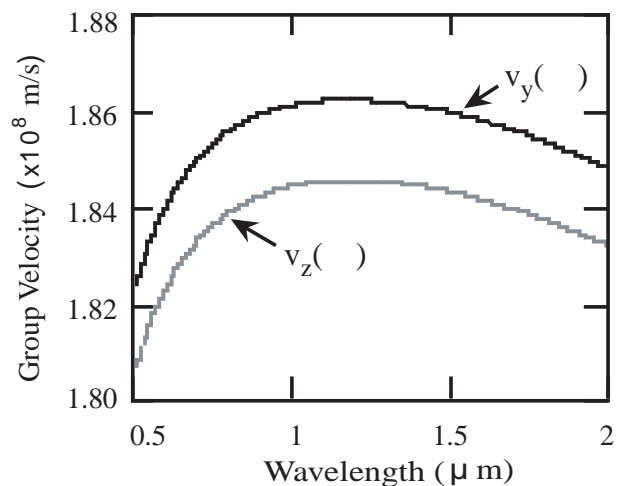


Fig.13 Group velocities of traveling waves polarized in the directions of y- and z-axes of LBO crystal as a function of wavelength.

が可能なことを示しており、高効率な変換が期待できる。 $\lambda = 1260\text{nm}$  のフェムト秒パルスを LBO, BBO,  $\text{LiIO}_3$  で第2高調波を発生させた時の基本波と高調波が1mm結晶を進んだ時の時間差を計算した。ただし、BBO,  $\text{LiIO}_3$  は角度位相整合を仮定した。LBO, BBO,  $\text{LiIO}_3$  のそれぞれの時間差は、8fs, 43fs, 168fsとなり、LBOでの両者の時間のずれがいかに小さいかがわかる。

最初に位相整合温度を調べた。Type I, NCPM で使用できるようにカットした厚さ2mmのLBO結晶を露結しないよう乾燥空気で置換した箱の中に配置し、ペルチェ素子で冷却した。結晶の両面はそれぞれの波長に対する無反射コーティングを施した。結晶は $-20^\circ$  から  $80^\circ$  まで変えることができる。集光レンズには、 $1.15\mu\text{m}$  から  $1.35\mu\text{m}$  まで色収差補正をした焦点距離5cmのアクロマティックレンズを使用した。LBO結晶で発生した第2高調波はフィルターにより基本波と分離した。フェムト秒レーザーからの出力は、ビームプロファイラー、オートコリレータ、スペクトラムアナライザー、パワーメーターでモニターした。

Fig.14 に、第2高調波出力の結晶温度依存性を示す。 $20^\circ\text{C}$  付近で最大出力が得られている。この位相整合温度は、ほぼ同じ実験条件で得られた Petrov らの結果<sup>26)</sup> とは大きく異なり、むしろ Kato の  $\lambda = 1260\text{nm}$  における理論計算値<sup>24)</sup> とよく一致している。Fig.15 に、この温度に設定した時の変換効率のピークパワー依存性を示す。ピークパワーの変化は、結晶への入射

パワーが200mWと一定になるように調整しながら、パルス幅を変化させることによって得た。パルス幅の変化はプリズム間隔を変えることによって行い、図には  $\tau = 34\text{-}83\text{fs}$  の範囲の結果が示されている。

$\tau = 34\text{fs}$ ,  $P = 74\text{kW}$  で最大変換効率14%が得られている。この時の変換出力は28mWであった。各測定点はほぼ原点をとる直線に乗っており、 $\tau = 34\text{fs}$  のパルスにおいても出力の飽和は起こっていない。

ここで、変換効率の理論値と実験結果との比較を行う。変換効率あまり大きくない場合、基本波から第2高調波への変換効率  $\eta$  は、

$$\eta = 8 \frac{d^2}{c^2} \cdot \left(\frac{Ld}{\lambda}\right)^2 / n^3 \cdot \left(\frac{P_0}{\lambda_0^2}\right) \cdot \left(\frac{\sin^2(kL/2)}{(kL/2)^2}\right) \tag{10}$$

と表すことができる<sup>25)</sup>。ここで、 $c$  は光速、 $d$  は誘電率、 $\lambda$  は基本波の波長、 $d$  は LBO 結晶の非線形定数、 $L$  は結晶長、 $P_0$  は入射パワー、 $\lambda_0$  はビームスポットサイズ、 $k$  は基本波と第2高調波の波数ベクトルの差 ( $k = 2k_1 - k_2$ ) である。ここでは完全な位相整合が取れているとして、 $k = 0$  とすると  $(\sin^2(kL/2)/(kL/2)^2) = 1$  である。ここで、 $d = 0.85 \times 10^{-12} \text{m/V}^{26)}$ ,  $L = 2\text{mm}$ ,  $\lambda = 1260\text{nm}$ ,  $n = 1.61^{26)}$ ,  $P_0 = 74\text{kW}$ ,  $\lambda_0 = 30\mu\text{m}$  とすると、 $\eta = 34\%$  と実験値の2倍程度になる。ここで、ビームスポットサイズは、Cr: フォルステライトレーザーの出力ミラー上のビーム径1.2mm、出力ミラーから集光レンズまで

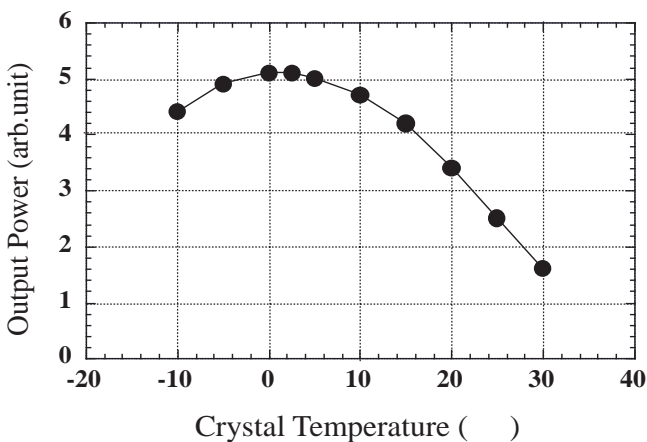


Fig.14 Second-harmonic output power as a function of crystal temperature.

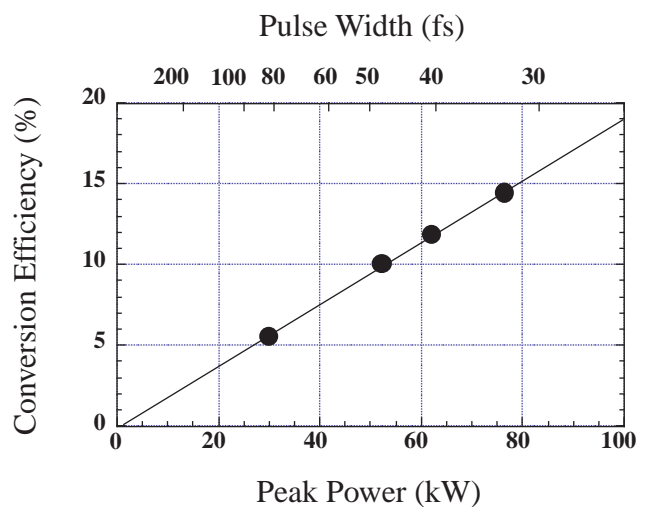


Fig.15 Conversion efficiency to second harmonic as a function of peak power or pulse width. The fundamental power is 200 mW constant. A straight line is depicted for your eyes.

の距離 0.7m を使って求めた。出力ミラー上のビーム径は ABCD 則<sup>14)</sup>を適用して求めた。また、共焦点パラメータは 3.6mm であり、使用した LBO 結晶より十分長い。式 (10) の変換効率は、ビームの集光径に敏感であり、例えば  $w_0=50\mu\text{m}$  を使用すれば、計算による変換効率は実験値とほぼ等しくなる。この式から明らかのように、変換効率は、結晶の長さの 2 乗に比例するとともにピークパワーに比例し、ビーム断面積に反比例する。このパルス幅の範囲では変換効率は飽和していないため、さらに長い結晶を使用することが可能だと思われる。今後、より長尺結晶の使用により高いレーザー出力の実現により、変換効率の一層の高効率化が期待できる。

## §5 まとめ

分散補償プリズム材料として SF58 を採用した自己モード同期 Cr:フォルステライトレーザーにより、パルス幅 35fs、発振出力 330mW、繰り返し 80MHz のフェムト秒パルス列を得た。CW 発振から自己モード同期発振への変化の様子をビームパターンとパルス列の観測により、詳細に調べた。この結果、安定な自己モード同期発振に要求されるビームパターンが存在することを見出し、そのパターンが発生するメカニズムについて考察を行った。

使用した SF58プリズムが従来使われている SF6 プリズムより高分散特性を有することを示すとともに、この特性を利用して、わずか 70mm のプリズム間隔の変化に対して 30-70fs のパルス幅変化を得ることができることを示した。

LBO 結晶によるフェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの第2高調波発生特性を厚さ 2mm の結晶を用いて調べた。入力パルスエネルギー一定の下で、パルス幅を 30-80fs に変化させた時の第2高調波の変換効率を調べた結果、このパルス幅の範囲において変換効率の飽和は観測されず、フェムト秒時間領域における LBO 結晶の優れた第2高調波変換特性が明らかになった。今後、非線形光学用基本波光源としての利用を目指して、フェムト秒 Cr:フォルステライトレーザーの高出力化を進めていく予定である。

## References

- 1) D. E. Spence, P. N. Kean and W. Sibbett : Opt. Lett., Vol. 16, No.1 (1991) 42.
- 2) F.M. Mitschke and L.F. Mollenauer : Ultrashort pulses from the soliton laser, Opt. Lett., **12**, 6, 407, 1987.
- 3) D. E. Spence and W. Sibbett: J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 8, No. 10 (1991) 2053.
- 4) U. Morgner, F. X. Kartner, S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow and T. Tschudi : Opt. Lett., Vol. 24, No. 6 (1999) 411.
- 5) A. Seas, V. Petricevic and R. R. Alfano : Opt. Lett., Vol. 17, No. 13 (1992) 937.
- 6) V. Yanovsky, Y. Pang and F. Wise : Opt. Lett., Vol. 18, No. 18 (1993) 1541.
- 7) V. P. Yanovsky and F. W. Wise : Opt. Lett., Vol. 19, No. 23 (1994) 1952.
- 8) V. Petrov, V. Shcheslavskiy, T. Mirtchev, F. Noack, T. Itatani, T. Sugaya and T. Nakagawa : Electron. Lett., Vol. 34, No. 6 (1998) 559.
- 9) G. Cerullo, S. De Silvestri, V. Magni and L. Pallaro : Opt. Lett., Vol.19, No. 11 (1994) 807.
- 10) F. Krausz, M. E. Fermann, T. Brabec, P. F. Curley, M. Hofer, M. H. Ober, Ch. Spielmann, E. Wintner and A.J. Schmidt : IEEE J. Quantum Electron., Vol. 28, No. 10 (1992) 2097.
- 11) K.W. Sun : Opt. Commun., Vol.132 (1996) 116.
- 12) G. P. Agrawal : Nonlinear Fiber Optics (Academic Press) pp.75-77.
- 13) 山下幹雄：超高速光エレクトロニクス，末田 正，神谷武志共編（培風館，1991年）pp21-22.
- 14) D. Georgiev, J. Herrmann and U. Stamm : Opt. Commun., Vol. 92 (1992) 368.
- 15) T. Brabec, P. F. Curley, Ch. Spielmann, E. Wintner, and A. J. Schmidt : J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 10, No. 6 (1993) 1029.
- 16) H. W. Kogelnik : IEEE J. Quantum Electron., Vol. QE-8, No. 3 (1972) 373.

- 17) Z. Zhang, K. Torizuka, T. Itatani, K. Kobayashi, T. Sugaya and T. Nakagawa: IEEE J. Quantum Electron., Vol. 33, No.11 (1997) 1975.
- 18) N. W. Pu, J. M. Shieh, Y. Lai and C. L. Pan : Opt. Lett., Vol. 20, No. 2 (1995) 163.
- 19) B. Chassagne, A. Ivanov, J. Oberle, G. Jonusauskas and C. Rulliere : Opt. Commun. Vol. 141 (1997) 69
- 20) T. Brabec, P. F. Curley, Ch. Spielmann, E. Wintner and A.J. Schmidt : J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 10, No. 6 (1993) 1029.
- 21) K.-H. Lin and W.-F. Hsieh : J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 11, No. 5 (1994) 737.
- 22) A. J. Alfrey : IEEE J. Quantum Electron., Vol. 25, No. 4 (1989) 760.
- 23) T. Brabec, Ch. Spielmann and F. Krausz : Opt. Lett., Vol. 16, No. 24 (1991) 1961.
- 24) K. Kato : IEEE J. Quantum Electron., Vol. 30. No. 12 (1994) 2950.
- 25) A. Yariv : Optical Electronics, 4th ed. (Saunders College Publishing, 1991) p.277.
- 26) V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan and D.N. Nikogosyan: Handbook of Nonlinear Optical Crystals , 2nd Edition (Springer) pp.68-77.

( 1999.8.27受付 )

## 著者紹介



挾 間 壽 文

Toshifumi HASAMA

光技術部

E-mail : hasama@etl.go.jp

広帯域固体レーザーの高出力フェムト秒発振技術とそれらの非線形波長変換技術の研究に従事。