非線形光学を用いた超短パルス光の位相補償

電子工学専攻 西岡研究室 太田 脩治

1. 序論

光パルスの時間幅は、光電場の1周期に近づいている。このような数サイクル程度の超短パルスは特に広帯 域であるため、群遅延分散の影響を受け易くパルス波形を変化させる。実用的な超短パルスを得るためには、 こうした群遅延分散によるパルス波形の変化を補償する必要がある。回折格子対やプリズム対、チャープ鏡対 といった光学素子は、受動的な群遅延分散補償として用いられている。しかし、このような固定的な光学素子 は、微調整の困難さを伴い、また各次数の分散の独立制御ができない事から、広帯域に渡って高次の分散を含 んだ群遅延分散によって変化している位相を補償するときには適していない。併せて、完全な補償のためには、 正確な分散の評価が必要である。固定的な光学素子に対して適応型位相制御は、スペクトルシェアリング干渉 計[1]などによって出力パルスのフーリエ位相を計測し、空間位相変調器によって繰り返し位相変調し最適化 を図る方法である[2]。

この研究では、パルスの位相を計測する必要が無く、高次までの分散を含んだ群遅延分散補償をパルス光自 身によって行う事を目的としている。その方法として、非線形光学効果を用いており、この報告では、低強度・ 繰り返しパルスについては、2光子誘起フォトリフラクティブ効果による周波数位相共役鏡を構築し、更にそ れを応用した超短パルス光増幅器を実現した事について述べる。一方で高強度・単一パルスについては、パル スの自己位相変調によるフーリエ位相の変動を応用して群遅延分散補償を行った。

2.周波数位相共役鏡を応用した超短パルス光増幅

周波数位相共役鏡は、群遅延分散を受けたパルスについて、時間方向に対して位相構造を反転させるシステムであり、再び同じ分散媒質を伝搬する事で自動的な群遅延分散補償が可能である(図1)。この時間反転波は 周波数領域で見ると、フーリエ位相の共役になっているため、時間反転波を発生させるものを周波数位相共役 鏡としている。ホログラフィック記録による周波数位相共役鏡は、これまで半導体添加色ガラスフィルターや レーザー色素添加樹脂薄膜の2光子吸収を利用して実現された[3]。



図1. 周波数位相共役鏡によるフーリエ位相共役波の発生。[3]

周波数位相共役鏡を形成するとき、一般的なホログラフィック記録とは異なり、パルスの時間情報を記録し なければならないので、強度依存型の記録方法を取っている。時間情報を抜き出すために光強度の高いゲート パルスと、記録する信号パルスとの間の2光子による相互相関記録を行う。図2(a)のように、ゲートパルスと 信号パルスが重なり合っている位置でのみ光強度が高くなって2光子吸収が起こる。従って、空間の屈折率変 調としてその位相構造が媒質に書き込まれ、チャープ屈折率回折格子が形成される。反対側からゲートパルス に相当するパルスを入射させて読み出せば、パルスの位相構造が時間反転することが分かる。図2(b)のように、 チャープした信号パルスを読み出しに用いれば、パルス圧縮が可能である。



図 2.(a)2 光子ゲート法によるパルス時間波形の記録と時間反転波の再生。(b)周波数位相共役鏡によるパル ス圧縮。

群遅延分散を受けたパルスについて周波数位相共役鏡を形成できれば、そのパルスの群遅延分散の補償が可 能であるが、周波数位相共役鏡のパルス圧縮を応用した2光子誘起フォトリフラクティブ超短パルス光増幅器 [4]を考えた。図3のように、増幅される超短パルスと任意の位相歪を受けた励起パルスとの間の、2光子相互 相関波形を空間の屈折率変調としての書き込みをまず最初に実行し、周波数位相共役鏡を形成する。このとき、 記録材料としてフォトリフラクティブ結晶を用いると、書き込まれた屈折率変調の位相構造は、光の干渉縞の 位相構造と、π/2 rad の位相差を伴う[5]。そのため、回折されるパルスはπ rad の位相シフトを自動的に受け る。この結果、周波数位相共役鏡はチャープしたパルスを圧縮すると同時に、種パルスと等しい位相で重ね合 わせるという2つの役割を自動的に果たす事になる。2光波結合による一方的なエネルギー移動が起こり、種 パルスは形を保ちつつエネルギーが高くなっているため、光増幅の役割を実現している。



図3.2光子誘起フォトリフラクティブ超短パルス増幅器の原理図。

フォトリフラクティブ結晶は、入射する光強度が低くても、繰り返しパルスを照射させる事で大きな屈折率 変化を誘起させることが可能である。周波数位相共役鏡を形成する上では、2 光子吸収による屈折率変化を誘 起させているが、パルスの伝搬した全ての位置において屈折率変化を誘起させる線形吸収も同時に起こると、 全体的な屈折率回折格子のコントラストが下がる原因になる。2 光子吸収による屈折率変化が、線形吸収によ る屈折率変化によって打ち消されないために、2 光子吸収量を線形吸収量より大きくする必要がある。2 光子 吸収量は光強度の2 乗に比例するため、2 光子吸収量が線形吸収量より大きくなる臨界の光強度 I_cは、I_c = α/β = $1~10 \text{ MW/cm}^2$ である。ここで、 α は線形吸収係数、 β は2 光子吸収係数である。一般的なフォトリフラクティ ブ結晶において、 β I² > α I となる時の臨界強度 I_cは、数 MW/cm²のオーダーとなっている。これはモード同 期レーザー発振器から直接得られる程度の光強度である。

また、増幅器として用いるときの媒質の利得帯域幅 $\Delta \omega$ は、レーザーのスペクトルの2光子に相当する帯域を使うため、1光子に相当する帯域では吸収が無く、2光子に相当する帯域近傍まで透明になる。すなわち、 利得帯域幅 $\Delta \omega$ は、 $\Delta \omega = 2\omega\omega - \omega = \omega$ となり、最も理想的な条件下で、帯域幅は搬送波周波数に近づく事になり、モノサイクルパルス増幅が原理的に可能である。



図 4. Fe:LiNb0₃の吸収係数 $\alpha(\lambda)$ の測定値とレーザー基本波のスペクトル(ω)、2 光子に相当するスペクトル(ω)。

実験に用いるフォトリフラクティブ結晶についてはその吸収スペクトルを慎重に検討した。実験のパルス光源は中心波長800 nm、帯域幅は全幅で700 nmから900 nmの約200 nmである。この帯域幅の全てで吸収が無く、逆に2光子に相当する波長350 nmから450 nmの帯域では吸収係数が十分に大きな材料が求められる。既存のフォトリフラクティブ結晶について文献から吸収スペクトルを調べ、条件を満たす材料を選択した結果、鉄ドープのニオブ酸リチウム(Fe:LiNbO3)を用いる事にした。

超短パルスのフォトリフラクティブ増幅実験装置の概要図を図5に示す。光源は、パルス幅10fs、中心波 長800 nm、繰返し周期75 MHzのモード同期Ti:Sapphire レーザーである。この光源からのパルスを、強度 比8:1 に分けた。高強度の方のパルスを分散媒質である石英に伝搬させ、パルス幅400fsまで伸張し、励起 パルスとした。低強度のパルスが種パルスとなる。チャープパルスの時間中心においてゲートパルスと干渉す る位置が媒質の中心になるように、遅延光路によって時間合わせを行った。結晶の厚さは1 cmであり、遅延 時間が0の時は、400fsのチャープパルスの時間情報がもれなく書き込まれる。結晶のc軸は、電荷移動の方 向すなわち回折格子の波数ベクトルに平行になるように配置した。これら2つのパルスを結晶中で相互作用さ せ、その出力を観測した。



図 5. 超短パルス増幅実験の装置。

励起パルスからの引き出し効率の測定結果を図 6 に示す。30 s 毎の露光時間をパラメータとしている。引き出し効率は、露光時間 360 s で飽和し、27 %になった。得られた利得帯域幅は 32 THz であり、これは 10 fs のパルスを増幅するためには十分な帯域である。





周波数位相共役鏡によって、励起パルスの位相が補償されていることを確認するため、利得に対するフーリ エ位相の変動をスペクトルシェアリング干渉法により測定した。この結果を図7に示す。ここでは、露光時間 を変化させて利得を増大させた。この結果、50 THz でフーリエ位相の変動はπ/2 rad 以下となった。励起パ ルスの位相歪みが補償され、コヒーレントな増幅を実現した。



図7. (a)利得の増大に対するフーリエ位相の変動。(b)露光時間による利得の増大。

3. 自己位相変調によるフーリエ位相の制御

フォトリフラクティブ結晶を用いた周波数位相共役鏡は、低 強度のパルスでも繰り返し照射する事で実現可能であったが、 高強度の単ーパルスの群遅延の全光学的自動補償の方法として 自己位相変調を導入した。チャープしたパルスが光ファイバー 中を伝搬する事で自動的に位相補償されて、パルス圧縮が起こ る事が報告されている[6]。自己位相変調によるフーリエ位相へ の影響を計算と実験によって確認した。ここでは、自己収束や スペクトル拡大などその他の現象が同時に起こらないように弱 い自己位相変調の領域に注目した。自己位相変調は非線形な屈 折率変化によるものであり、これは光強度に比例し、n(t) = n0 + n2 E²(t)と表される。例えばガウス型の光強度波形の場合、屈折 率変化もガウス型となり、瞬時周波数の変化はその微分形で表 される。ここで、パルスの時間中心において、瞬時周波数は線 形の傾きになり、正の2次群遅延分散が現れる(図 8)。これと対 応して、周波数の折返しの部分では高次の群遅延分散が現れる。



図 8. 非線形屈折率と自己位相変調による瞬時周波数の変化。

実験に用いたレーザーは、発振器、伸張器、増幅器、圧縮器から構成される。圧縮器のパルスは、中心波長 800 nm、パルス幅 120 fs、繰り返し周期 10 Hz、パルスエネルギーが 1 mJ である。このパルスが、厚さ 5 mm の Sapphjre 基板に伝搬すると、自己位相変調は 0.5 rad である。このような弱い自己位相変調でも、正確な フーリエ位相を直接計測できるように、スペクトルシェアリング干渉計を用いた。

図 9(a)に自己位相変調によるフーリエ位相の測定結果を示す。青線はスペクトル強度 I(ω)を示す。黒線は フーリエ位相の測定結果である。赤線は、測定結果に対して、最小二乗法による多項式近似を行った計算結果 $\phi(\omega)$ である。この近似式によると、自己位相変調によって負の3次群遅延分散が生じる事が分かり、これは石 英7mの3次群遅延分散に相当する。実験と同じパルス幅と自己位相変調において、フーリエ位相の変動を 計算した結果を図 9(b)に示す。同様に計算結果から、自己位相変調による負の3次群遅延分散が確認できた。



図9. (a)自己位相変調によるフーリエ位相の変動の測定結果。(b)自己位相変調によるフーリエ位相の変動の 計算結果。

通常のパルスではパルスの時間中心において正の2次群遅延分散が生じるが、これに対して光強度が落ち込んでいる Dark パルスの自己位相変調を用いれば、負の2次群遅延分散が生じる。Dark パルスとして、120 fsのパルスを250 fs離した形を用いた。この Dark パルスに0.4 radの自己位相変調が起こると、この中心の時間において、負の2次群遅延分散が生じることが分かる(図10)。この負の2次群遅延分散を補償するように、

正の2次群遅延分散を与えると、図10(b)のようにパルス波形は圧縮されて1つのパルスになることが分かった。この正の2次群遅延分散量は、例えば石英26cmを伝搬させた時の分散に相当する。



図 10. (a) Dark パルスの自己位相変調による負の2次群遅延分散の発生。(b) 正の2次群遅延分散によるパル ス圧縮。

4. 結論

フォトリフラクティブ結晶を用いた周波数位相共役鏡を応用して、数サイクルパルスの増幅器を実現した。 得られた増幅器の利得帯域幅は 32 THz、引き出し効率は 27 %であった。

一方で 0.5 rad 以上の自己位相変調によって、負の3次群遅延分散が発生できる事を明らかにした。3次 群遅延分散を補償するためには現在はプリズム対を用いるのが主流であるが、自己位相変調を導入すれば光自 身によって3次群遅延分散の補償が可能である。

6.参考文献

[1] L. Gallmann, D. H. Sutter, N. Matuscheck, G. Steinmeyer, U. Keller, C. Iaconis and A. Walmsley, Opt. Lett. **24**, 1314(1999).

[2] E. Matsubara, K. Yamane, T. Sekikawa and M. Yamashita, J. Opt. Soc. Am. B. 24, 985(2007).

- [3] H. Nishioka, H. Tomita, K. Hayasaka and K. Ueda, Opt. Exp. 14, 7447(2006).
- [4] H. Nishioka, K. Hayasaka, S. Ohta, H. Tomita and K. Ueda, Opt. Exp. 15, 4830(2007).
- [5] Pochi Yeh, Introduction to Photorefractive nonlinear Optics (John Wiley & Sons, Inc., 1993).
- [6] L. Shah, Z. Liu, I. Hartl, G. Imeshev, G. C. Cho and M. E. Fermann, Opt. Exp. 13, 4717(2005).