

論文の内容の要旨

論文題目 2次元擬似位相整合素子を用いたフェムト秒光パルスの波長変換

氏名 藤岡 伸秀

フェムト秒光パルスの波長変換は非常に基礎的であるが、重要な光源技術である。なぜなら、高速分光、コヒーレント制御、レーザーアブレーション、光通信といったフェムト秒光パルス応用には、さまざまな波長域のフェムト秒光パルスが必要になるからである。実際、チタンサファイアレーザー（動作する中心波長 ~ 800 nm）をはじめとするフェムト秒レーザーだけで全ての波長域の光パルスを生成することは不可能であり、波長変換は必須の技術なのである。また、フェムト秒波長変換技術は、単に波長を変換するという意義に加え、パルス幅を変える（もう少し正確に言えば、パルスの特性を変える）ことも可能であり、大変興味深い。後者はカスケード2次非線形光学効果と呼ばれる技術で、位相不整合条件下で波長変換を行うことにより、伝搬する光波に非線形位相シフトが付加されることを利用する。つまり、3次非線形光学効果の非線形屈折率効果に相当する効果を2次非線形光学効果で誘起する技術である。フェムト秒カスケード2次非線形光学効果によって、ソリトンパルス圧縮、時空間ソリトンの生成、周波数シフト、群速度制御、数サイクルパルスの発生が可能となる。

このようにフェムト秒波長変換は、多彩な応用が期待されるのであるが、群速度不整合という本質的な問題を抱えている。群速度不整合とは、非線形光学結晶において、波長変換パルスとポンプ光パルスとの群速度が一致しないことである。このため、伝搬にともなって波長変換パルスのパルス幅拡がり起きてしまうのである（周波数領域では、スペクトル狭帯域化が起きることに相当する）。群速度不整合の効果のある状況下では、短いパルス幅をもつ波長変換パルスを得るためには、パルス幅拡がりの起きる前に波長変換を打ち切る以外に方法はなく、したがって、効率の低い波長変換しか行えない。確かに、高い強度で波長変換を行えば、非線形性が大きくなるため波長変換効率の増加が期待される。しかし、フェムト秒波長変換ではピーク強度がもともと十分に大きいケースが多々あり、高い強度を使用することは、むしろ、自己収束による結晶へのダメージ、非線形屈折率効果による位相整合条件のずれや時間プロファイルの劣化、2光子吸収によるロス生成といった新たな問題を引き起こすことにつながる。

そこで本研究では、群速度不整合を補償し、この問題を根本的に解決したフェムト秒波長変換法の開発を目的とした。波長変換素子としては、非線形光学定数の任意のテンソル成分を利用でき、設計の自由度を有する擬似位相整合素子に注目した。この波長変換法を用いることにより、波長変換パルスのパルス幅拡がりがなく、高効率にフェムト秒波長変換を行うことが可能になる。

本論文では、(1) 擬似位相整合素子を用いたフェムト秒第2高調波発生、(2) 2次元擬似位相整合素子を用いたフェムト秒カスケード第3高調波発生、(3) 非平行1次元擬似位相整合素子を用いたフェムト秒カスケード第3高調波発生、以上3種類の波長変換における群速度不整合補償法について、その研究内容を詳細にまとめた。本研究では、これらの方法の原理を提案するだけでなく、これらの方法を使用した場合の波長変換特性についても実験・理論の両面から調べ、高効率に波長変換を行えることを実証した。以下、これら個々の研究内容について、その要旨を述べる。

(1) 擬似位相整合素子を用いたフェムト秒第2高調波発生

本研究における群速度不整合補償法に共通する基本的な考え方は、(非線形結晶において) 群速度不整合により引き起こされる時間ウォークオフの効果を、空間ウォークオフとパルス面傾斜の組み合わせにより実効的に無くすことである。入射基本波パルスの伝搬方向に対して擬似位相整合素子(背景の格子模様)を傾斜して配置すると、基本波と第2高調波パルス間に空間ウォークオフが生じる。このとき、基本波のパルス面に適切な角度の傾斜を与えていれば、第2高調波との時間的なずれは実効的に無くなる。このようにして、群速度不整合を補償する手法を提案した。以上は時間領域における群速度不整合補償の説明であったが、等価的に周波数領域における説明も可能である。ここでは詳細は述べないが、群速度不整合補償は、広帯域な(擬似)位相整合条件と同じことになる。

擬似位相整合素子の材料には、最も広く使用されているニオブ酸リチウムを用いた。周期 $8.9 \mu\text{m}$ の分極反転構造を、電子線リソグラフィと電場印加によって自作した。相互作用長 3.0 mm の素子でフェムト秒第2高調波発生実験を行ったところ、中心波長 $1.55 \mu\text{m}$ の基本波と同程度のパルス幅 100 fs の第2高調波パルスを得ることができ、群速度不整合補償を確認した。また、この実験において、変換効率 50% を達成した。

さらに、数値シミュレーションによって従来の第2高調波発生法との変換効率を比較した。ここで、従来法とは、群速度不整合補償はなされておらず、第2高調波のパルス幅が基本波のそれと同程度になるような、短い相互作用長を用いた場合のことを指す。本手法を用いた場合には、 $1/30 \sim 1/200$ 倍のピーク強度でも、従来法と同程度の変換効率を得られることがわかった。

(2) 2次元擬似位相整合素子を用いたフェムト秒カスケード第3高調波発生

2次元擬似位相整合素子とは、2次非線形光学感受率の符号の反転を2次的に周期的に行った素子のことを言う。このとき、2次元的な周期構造に対応した2つの基本格子ベクトルができ、複数の(擬似)位相整合条件を同時に満たすことが可能になる。一方、カスケード第3高調波発生とは、第2高調波発生および、基本波と第2高調波による和周波発生を同時に行って第3高調波を得るような波長変換のことを指す。本研究では、2次元擬似位相整合素子を適切に設計することで単にカスケード第3高調波発生を行うだけでなく、基本波、第2高調波、第3高調波パルスにおける群速度不整合を全て同時に補償するような波長変換法を提案する。これによって、単一の波長変換素子で2つのフェムト秒波長変換を同時に行うことが可能になり、ディレイや偏光回転の光学系が必要なくなり、非常にコンパクトなフェムト秒カスケード第3高調波発生の光学システムを構築することが可能となる。

フェムト秒カスケード第3高調波発生における群速度不整合補償の原理は、第2高調波発生の際の原理を非常に素直に拡張させたものである。つまり、群速度不整合を補償した第2高調波発生に加えて、第3高調波パルスへも適切な空間ウォークオフを加えることで、3光波パルス間の群速度不整合を全て同時に補償するというものである。

ニオブ酸リチウムを用いた設計と2次元的な分極反転パターンに関する考察を行い、素子を作製した。相互作用長 2.0 mm の素子でフェムト秒カスケード第3高調波発生実験を行ったところ、中心波長 $1.57 \mu\text{m}$ の基本波と同程度のパルス幅 $110 \sim 120 \text{ fs}$ の第2・第3高調波パルスが得

られ、群速度不整合補償を確認した。また、この実験において、第2高調波発生効率 25%、第3高調波発生効率 7%を達成した。

さらに、基本波のパルスエネルギーが nJ レベル以下のような小さい場合には、ピーク強度をできるだけ大きくし、最大の変換効率を得るような最適なビームフォーカスが存在するはずである。第2高調波発生の解析を行った先行研究をさらにカスケード第3高調波発生へ拡張し、最適ビームフォーカスに関する議論をまとめた。

(3) 非平行1次元擬似位相整合素子を用いたフェムト秒カスケード第3高調波発生

1次元擬似位相整合素子、なかでもとりわけ周期分極反転強誘電体素子の作製技術は非常に成熟してきており、商用の製品が手に入るほどである。さきのフェムト秒カスケード第3高調波発生では2次元擬似位相整合素子を使用した。これと同じような波長変換を1次元擬似位相整合素子でも行えないか、というのが本研究の動機である。そして、実際にそれが可能であることを提案した。

原理として、周期分極反転構造の格子ベクトルの1次成分 \mathbf{K} および、その3次成分 $3\mathbf{K}$ を使って第2高調波発生と和周波発生の(擬似)位相整合条件を同時に満たすことを考える。このとき、パルス面傾斜を使うことで3光波パルス(基本波、第2高調波、第3高調波パルス)のうち2光波パルス間の群速度不整合の補償が可能になる。そこで、基本波と第3高調波パルスにおける群速度不整合を補償するようなパルス面傾斜を選んだ。

中心波長 $\sim 1.25\ \mu\text{m}$ のフェムト秒固体レーザーである Cr:Forsterite レーザーのカスケード第3高調波発生を行うことを想定し、ニオブ酸リチウムによる素子設計を行った。数値シミュレーションを行った結果、第2高調波は群速度不整合補償がなされていないためにパルス幅拡がりが見られたが、第3高調波パルスについては、基本波と同程度($\sim 100\ \text{fs}$)のパルス幅が得られ、群速度不整合の補償を確認した。

以上の研究を通して、群速度不整合の問題を根本的に解決した、パルス幅拡がりのない高効率のフェムト秒第2高調波発生法、カスケード第3高調波発生法を確立した。これまで、擬似位相整合素子の2次元的な設計自由度はほとんど活用されることはなかったが、本研究ではその恩恵を生かした、新規なフェムト秒波長変換法の一例を開拓した。本研究を基に、コンパクトなフェムト秒波長変換システムの構築のほか、フェムト秒カスケード第4高調波発生、高次のスペクトル角度分散をも制御した超広帯域フェムト秒第2高調波発生、フェムト秒カスケード2次非線形光学効果を利用したパルス圧縮などの拡張応用への展開が期待される。