

# カスケード2次非線形光学効果 を用いた光ソリトン圧縮

2003 年 4 月

東京大学生産技術研究所

芦原 聡

# 目次

## 第1章 序論

1.1 本研究の背景と目的 .....	1
1.2 本論文の構成 .....	3

## 第2章 非線形光学媒質における超短光パルスの伝搬

2.1 伝搬方程式 .....	5
2.2 2次非線形光学効果 .....	7
2.2.1 第2高調波発生と擬似位相整合 .....	7
2.2.2 カスケード2次非線形光学効果 .....	9
2.2.3 固有モード .....	15
2.2 光カー媒質における光ソリトン .....	20
2.3.1 非線形屈折率効果 .....	20
2.3.2 非線形シュレディンガー方程式とソリトン解 .....	21
2.3.3 ファイバーソリトン圧縮器 .....	23
2.4 2次非線形光学媒質中の光ソリトン .....	24
2.4.1 ソリトン解 .....	24
2.4.2 パルス圧縮への指針 .....	27

## 第3章 BBO 非線形結晶を用いた光ソリトン圧縮

3.1 はじめに .....	29
3.2 実効的非線形屈折率の測定 .....	30
3.2.1 Zスキャン法 .....	30
3.2.2 実験結果 .....	33
3.2.3 群速度不整合の影響 .....	38
3.3 理論解析 1:ソリトン伝搬 .....	41
3.4 理論解析 2:ソリトン圧縮 .....	45
3.5 ソリトン圧縮実験 .....	48
3.6 まとめ .....	53

第4章 周期分極反転  $\text{LiTaO}_3$  を用いたカスケード非線形効果の測定

4.1 はじめに.....	55
4.2 周波数分解2光波混合法.....	57
4.3 真性非線形屈折率およびその異方性の測定 .....	61
4.4 実効的非線形屈折率の測定 .....	65
4.5 考察 .....	68
4.6 まとめ.....	71

第5章 周期分極反転  $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$  を用いた光ソリトン圧縮

5.1 はじめに.....	73
5.2 群速度整合条件.....	74
5.3 非線形位相シフトの測定.....	75
5.3.1 位相シフト測定系 .....	75
5.3.2 位相シフトの算出 .....	77
5.3.3 測定結果 .....	78
5.3.4 考察とまとめ.....	80
5.4 ソリトン圧縮実験.....	82
5.4.1 基本的な考え方 .....	82
5.4.2 実験結果 .....	82
5.5 考察 .....	87
5.6 まとめ.....	94

第6章 非平行擬似位相整合配置を用いた群速度整合法

6.1 はじめに.....	95
6.2 原理 .....	96
6.3 周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶への適用例.....	99
6.4 考察 .....	104
6.5 傾斜パルスの伝搬特性 .....	107
6.6 原理確認実験.....	112
6.7 まとめ.....	115

第7章 総括

付録 A 結合波方程式の導出と数値計算法

A.1 結合波方程式の導出 ..... 121

A.2 数値計算アルゴリズム..... 126

付録 B 周波数分解光ゲート法

B.1 パルス特性評価法 ..... 129

B.2 FROG 法 ..... 130

B.3 再構築アルゴリズム..... 131

B.4 測定系 ..... 133

付録 C 周期分極反転素子の作製

C.1 強誘電体非線形光学材料 ..... 135

C.2 分極反転素子の作製 ..... 137

C.3 電場印加法による分極反転 ..... 141

謝辞

業績リスト

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 本研究の背景と目的

超短光パルスは、非常に短い時間に局在した電磁波の波束であり、電子や原子核の高速ダイナミクスの観測・制御を可能にする最も強力な道具である。また、短い時間幅と高いピーク強度という特徴から、高ビットレートでの光通信・光情報処理、光コヒーレンストモグラフィーなどの光計測、非熱過程での光加工などに有用である。このように基礎から応用の諸分野で超短光パルスのもつ潜在能力は計り知れず、その発生、波長変換、および波形制御技術の重要性は疑う余地が無い。

Spence ら [1] によるカーレンズモード同期の成功は、固体レーザーの超短パルス化にブレークスルーをもたらした。今日ではさらに、カーレンズモード同期  $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$  レーザーにおいて共振器中の分散を緻密に補償することで、約 5 fs パルスの直接発振が実現された [2]。しかしこのような発振器の極短パルス動作は決して容易ではなく、蛍光スペクトルの特に広い  $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$  レーザーにおいてようやく実験室レベルで実現されたに過ぎない。その他のレーザー、例えば  $\text{Cr}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$ ,  $\text{Cr}^{4+}:\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ,  $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$ ,  $\text{Yb}^{3+}:\text{YAG}$ ,  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ ,  $\text{Er}^{3+}:\text{glass}$  など今日ではモードロック化が実現されているが、得られる光パルスの中心波長や最短パルス幅はレーザー媒質の蛍光スペクトルなどから制限を受ける。例えば  $\text{Yb}^{3+}:\text{YAG}$ ,  $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ ,  $\text{Er}^{3+}:\text{glass}$  などから得られるモードロックパルスの典型的なパルス幅は数 100 fs～数 ps である。他方、再生増幅システムにおいてもスペクトル狭帯域化や高次分散などの問題があるため、超短パルスの高エネルギー化も非常に難しい技術である。

発振器や増幅器から出力される光パルスをさらに超短パルス化する強力な手段として、いわゆるパルス圧縮技術が必要である。光ファイバーと回折格子対を用いた、最も一般的なパルス圧縮技術は 1982 年 Schank ら [3] によって提案された。それ以降、これをプロトタイプとしてファイバーや分散

補償の手法に改良が加えられている。例えば、Nisoli ら [4] は中空ファイバーを用いて高エネルギーパルスの圧縮を実現しており、また北大の山下・森田のグループ [5] は液晶空間光変調器を用いた高精度な分散補償による極短パルス化を実現している。しかしこのような自己位相変調効果の蓄積と分散補償を分けたシステムは、分散補償の精度および極短パルス化に優位性を示すものの、系が複雑であること、エネルギーの利用効率が低いことなどの欠点をもつ。実用的なパルス圧縮システムとしては、パルス圧縮比やパルス品質とともに、エネルギー利用効率が重要な性能指標となる。エネルギーロスの極めて小さいシステムとして、光ファイバーソリトン圧縮器がある。これは 1983 年に Mollenauer ら [6] により実現された方法で、光カー効果による自己位相変調効果と線形分散とのバランスを利用している。近年ではファイバーの分散を段階的に制御することで圧縮性能を高める試みが行われている [7]。ただしこのファイバーソリトン圧縮器は、基本的にガラスファイバーの異常分散領域でしか用いることができない。またガラス中の光カー効果は小さいため、一般に高い光強度と長い相互作用長が必要となる。

米国 University of Central Florida の Stegeman 教授のグループは、2次非線形光学効果の多段階過程により実効的に3次の非線形光学効果が得られる、いわゆる「カスケード2次非線形光学効果」を提唱した [8]。このカスケード非線形効果は、非共鳴な光カー効果に比べてはるかに大きな非線形屈折率効果を示し、その符号と大きさが制御可能であり、また原理的に超高速応答である。現在では光スイッチングや空間ソリトン形成などの応用研究へと展開されている [9] が、それらはナノ秒からピコ秒の光パルスを用いたものが主流でありフェムト秒領域での研究は数少ない。近年になり、カスケード非線形位相シフトの蓄積とその後の分散補償によるパルス圧縮や、パルス面傾斜による群速度制御を用いた BBO や  $\text{LiIO}_3$  結晶中の時間および時空間ソリトン伝搬などが報告され始めた [10-12]。また、超短光パルスの第2高調波発生過程における群速度不整合を巧みに利用して、発生する第2高調波をパルス圧縮する手法など興味深いアイデアも提案されている [13-16]。しかし媒質自身の線形分散とカスケード非線形効果のバランスを利用した、よりシンプルかつ実用的なソリトンパルス圧縮システムに関する研究はこれまでなされてこなかった。

本研究では、カスケード非線形効果の高速応答性が最大限に生かされる超短光パルス制御応用にターゲットを絞り、「フェムト秒領域でのカスケード非線形効果の諸特性評価」と「2次非線形ソリトンパルス圧縮の実現」を目的とした。非線形性が大きくその符号が制御可能というカスケード非線形効果の特徴から、2次非線形媒質中ではより低強度で正常・異常分散領域を問わずソリトン効果が発現する、といった推測が可能である。より一般的には、2次非線形ソリトンファイバーソリトンと異なる独特な性質をもち、多彩な振る舞いをする 것도興味深い。本研究ではまず、BBO 非線形結晶を用いてフェムト秒光パルスに対するカスケード非線形効果の特性を評価し、それを用いたソリトン圧縮

を実現した。次なるステップとして非線形光学定数および設計自由度の大きな擬似位相整合素子の利用へと展開した。強誘電体擬似位相整合素子を用いて、カスケード非線形光学デバイスとしての性能を光カー効果や群速度不整合の影響まで含めて明らかにし、群速度整合条件下でソリトン効果による基本波・高調波の同時パルス圧縮を実現した。さらに、2次非線形ソリトン圧縮では群速度のマネジメントが鍵であるという認識から、擬似位相整合素子における新しい群速度整合法を考案しその原理確認実験を行った。

ソリトンの歴史は古く、1834年に Shott Russell が運河を流れる水の波が何キロも形を崩さずに伝搬していることを観察したことによりさかのぼる [17]。そしてそれ以来さまざまな物理現象において観測されている [18]。2次非線形光学媒質中での光ソリトンは、媒質のパラメーターに応じて解の形や安定性などが多彩に変わる。本研究では、物理としても興味深いこの現象が実用的なソリトン圧縮器として有用であることを理論・実験両面から十分示せたと考える。特に第5章の内容は、擬似位相整合素子を用いた時間ソリトン圧縮の実験例としては世界初である。

## 1.2 本論文の構成

本論文の構成は以下のとおりである。

まず第2章では、超短光パルスの伝搬方程式やソリトン伝搬、またカスケード2次非線形光学効果について簡潔にまとめる。第3章では、BBO 非線形結晶を用いたフェムト秒光パルスのカスケード非線形効果測定と光ソリトン圧縮実験について述べる。次に、第4章では周期分極反転タンタル酸リチウム素子の作製とフェムト秒カスケード非線形効果の評価について述べる。第5章では、周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶を用いた通信波長でのフェムト秒光パルスのソリトン圧縮に関する、理論・実験両面からの成果をまとめる。さらに第6章では2次元的な擬似位相整合を利用した群速度整合法の提案とその原理確認実験についてまとめ、最後に第7章で本研究の総括を行う。

なお、本研究の遂行にあたり、数値シミュレーションプログラムの作成、FROG 法解析プログラムの作成および周期分極反転素子の作製を行った。これらの詳細は付録としてまとめた。

## 参考文献

- [1] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, “60-fs pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser,” *Opt. Lett.* **16**, pp.42-44 (1991).
- [2] R. Ell, U. Morgner, F. X. Kartner, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tshudi, M. J. Lederer, A. Boiko, and B. Luther-Davies, “Generation of 5-fs pulses and octave-spanning spectra directly from a Ti:sapphire laser,” *Opt. Lett.* **26**, pp.373-375 (2001).
- [3] C. V. Shank, R. L. Fork, R. Yen, R. H. Stolen, and W. J. Tomlinson, “Compression of femtosecond

- optical pulses,” Appl. Phys. Lett. **40**, pp.761-763 (1982).
- [4] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, “Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique,” Appl. Phys. Lett. **68**, pp.2793-2795 (1996).
- [5] N. Karasawa, N. LM Li, A. Suguro, H. Shigekawa, R. Morita, and M. Yamashita, “Optical pulse compression to 5.0 fs by use of only a spatial light modulator for phase compensation,” J. Opt. Soc. Am B **18**, pp.1742-1744 (2001).
- [6] L. F. Mollenauer, R. H. Stolen, J. P. Gordon, and W. J. Tomlinson, “Extreme picosecond pulse narrowing by means of soliton effect in single-mode optical fibers,” Opt. Lett. **8**, pp.289-291 (1983).
- [7] M. Tsuchiya, K. Igarashi, S. Saito, and M. Kishi, “Sub-100 fs higher order soliton compression in dispersion-flattened fibers,” IEICE Trans. Electron. E85C, pp.141-149 (2002).
- [8] R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele, “Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP,” Opt. Lett. **17**, pp.28-30 (1992).
- [9] G. I. Stegeman, D. J. Hagan, and L. Torner, “ $\chi^{(2)}$  cascading phenomena and their applications to all-optical signal processing, mode-locking, pulse compression and solitons,” Opt. Quant. Electron. **28**, pp. 1691-1740 (1996).
- [10] X. Liu, L. J. Qian, and F. Wise, “High-energy pulse compression by use of negative phase shifts produced by the cascade  $\chi^{(2)}$ :  $\chi^{(2)}$  nonlinearity,” Opt. Lett. **24**, pp.1777-1779 (1999).
- [11] P. D. Trapani, D. Caironi, G. Valiulis, A. Dubietis, R. Danielius, and A. Piskarskas, “Observation of temporal solitons in second-harmonic generation with tilted pulses,” Phys. Rev. Lett. **81**, pp. 570-573 (1998).
- [12] X. Liu, L. J. Qian, and F. Wise, “Generation of spatiotemporal solitons,” Phys. Rev. Lett. **82**, pp.4631-4634 (1999).
- [13] Y. Wang and B. Luther Davies, “Frequency-doubling pulse compressor for picosecond high-power neodymium laser pulses,” Opt. Lett. **17**, pp.1459-1461 (1992).
- [14] A. Umbrasas, J. -C. Diels, J. Jacob, G. Valiulis, and A. Piskarskas, “Generation of femtosecond pulses through second-harmonic compression of the output of a Nd:YAG laser,” Opt. Lett. **20**, pp.2228-2230 (1995).
- [15] A. Dubietis, G. Valiulis, G. Tamosauskas, R. Danielius, and A. Piskarskas, “Nonlinear second-harmonic pulse compression with tilted pulses,” Opt. Lett. **22**, pp.1071-1073 (1997).
- [16] T. Zhang, M. Aoyama, and K. Yamakawa, “Noncollinear chirp-compensated second-harmonic generation with subpicosecond laser pulses,” Jpn. J. Appl. Phys. **39**, pp.1146-1150 (2000).
- [17] J. Shott Russell, Report of 14th Meeting of the British Association for Advancement of Science, York, September, pp.311-390 (1844).
- [18] G. L. Lamb Jr., *Elements of Soliton theory*, John Wiley & Sons, Inc., (1983).



## 第2章

# 非線形光学媒質における 超短光パルスの伝搬

### 2.1 伝搬方程式

非線形光学効果と線形感受率の周波数分散を考慮した場合の超短光パルスの伝搬方程式を示す。なお、本論文を通して物理単位系は MKSA 単位系に統一した。

超短光パルスは光電場  $E(z,t)$ 、またはそのフーリエ変換  $E(z,\omega)$  により記述できる。

$$\begin{aligned} E(z,t) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(z,\omega) e^{+i\omega t} d\omega \\ E(z,\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} E(z,t) e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (2.1)$$

電磁波である光の伝搬はマクスウェル方程式に従う。自由電荷および電流のない媒質において電場ベクトルと電束密度ベクトルが平行 ( $\mathbf{D} // \mathbf{E}$ ) とすると、Maxwell 方程式より  $z$  方向に伝搬する平面波に関する次のような波動方程式が導かれる。

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) E(z,t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(z,t) \quad (2.2)$$

ここで分極  $P(z,t)$  は線形分極および非線形分極の全てを含む。光と物質の相互作用を摂動論で扱うことができる場合、物質の光電場に対する非線形分極は光電場のべき級数に展開できる。ここで、分極は有限の時間応答をもつことを考慮すると、

$$\begin{aligned}
 \mathbf{P}(t) &= \mathbf{P}^{(1)}(t) + \mathbf{P}^{(2)}(t) + \mathbf{P}^{(3)}(t) + \dots \\
 &= \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon_0 \chi^{(1)}(t-t_1) : E(t_1) dt_1 \\
 &\quad + \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon_0 \chi^{(2)}(t-t_1, t-t_2) : E(t_1) E(t_2) dt_1 dt_2 \\
 &\quad + \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \epsilon_0 \chi^{(3)}(t-t_1, t-t_2, t-t_3) : E(t_1) E(t_2) E(t_3) dt_1 dt_2 dt_3 + \dots
 \end{aligned} \tag{2.3}$$

となる。これをフーリエ変換して周波数領域で表すと

$$\begin{aligned}
 \mathbf{P}(\omega) &= \mathbf{P}^{(1)}(\omega) + \mathbf{P}^{(2)}(\omega) + \mathbf{P}^{(3)}(\omega) + \dots \\
 &= \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega, \omega_1) : \mathbf{E}(\omega_1) \\
 &\quad + \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega, \omega_1, \omega_2) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \\
 &\quad + \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega, \omega_1, \omega_2, \omega_3) : \mathbf{E}(\omega_1) \mathbf{E}(\omega_2) \mathbf{E}(\omega_3) + \dots
 \end{aligned} \tag{2.4}$$

となる。ここで、 $n$  階テンソルである  $n$  次非線形感受率は次のように表される。

$$\begin{aligned}
 \chi^{(n)}(\omega, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) \\
 = \int_{-\infty}^{+\infty} \dots \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(n)}(t_1, t_2, \dots, t_n) \exp[-i\omega_1 t_1 - i\omega_2 t_2 - \dots - i\omega_n t_n] dt_1 dt_2 \dots dt_n
 \end{aligned} \tag{2.5}$$

いわゆる2次非線形光学定数  $d_{ijk}$  は、2 次の非線形感受率を用いて  $d_{ijk} = (1/2)\chi_{ijk}^{(2)}$  のように定義される。光電場を複素包絡関数  $A(z, t)$  を用いて表すと、

$$E(z, t) = \frac{1}{2} [A(z, t) e^{i(\omega_0 t - kz)} + c.c.] \tag{2.6}$$

となる。ここで、 $k$  は周波数分散をもつ伝搬定数である。

$$k^2(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2} [1 + \chi(\omega)] = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2} n^2(\omega) \tag{2.7}$$

これを中心周波数のまわりでテイラー展開すると、

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \tag{2.8}$$

と表すことができる。いま、媒質中には基本波とその第2高調波が存在する場合について考える。また、線形感受率の周波数分散(すなわち伝搬定数の周波数分散)に関しては2階微分の項まで、非線形分極は2次および3次の項を考えることにする。波動方程式(2.2)において、基本波の群速度で移動する座標系への座標変換:  $z = z, \eta = t - z/v_{g1}$  ( $v_{g1} = (dk_1/d\omega)^{-1}$ ) を施し、さらに SVE 近似 (Slowly-varying envelope approximation) を用いると、基本波および第2高調波の電場包絡関数  $A_{1,2}(z, \eta)$  に関する次のような結合波方程式が得られる。導出過程は付録 A.1 にまとめた。

$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} = i\xi_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} - i\rho_1 A_1^* A_2 \exp(-i\Delta kz) - i\sigma_1 (|A_1|^2 A_1 + 2|A_2|^2 A_1), \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = -\zeta \frac{\partial A_2}{\partial \eta} + i\xi_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial \eta^2} - \frac{1}{2} i\rho_2 A_1^2 \exp(+i\Delta kz) - i\sigma_2 (|A_2|^2 A_2 + 2|A_1|^2 A_2), \end{cases} \quad (2.9)$$

$$\Delta k = k_2 - 2k_1, \quad \eta = t - \frac{z}{v_1} = t - k_1 z,$$

$$\xi_1 = \frac{1}{2} \ddot{k}_1, \quad \xi_2 = \frac{\dot{k}_2^2 - \dot{k}_1^2 + k_2 \ddot{k}_2}{2k_2}, \quad \zeta = \dot{k}_2 - \dot{k}_1, \quad \rho_i = \frac{\omega_i d_{\text{eff}}}{cn_i}, \quad \sigma_i = \frac{3\omega_i \chi^{(3)}}{8cn_i}.$$

ここで添え字 1, 2 はそれぞれ基本波および第2高調波を、黒点は $\omega$ に関する微分を表す。また、 $d_{\text{eff}}$  は次節で定義する実効的な2次非線形光学定数である。この方程式をもとにして、順に第2高調波発生とカスケード非線形効果、3次非線形媒質中の超短光パルス伝搬、そして2次非線形媒質中の超短光パルス伝搬について論じる。

## 2.2 2次非線形光学効果

### 2.2.1 第2高調波発生と擬似位相整合

反転対称性の崩れた媒質にはゼロでない2次非線形感受率が存在する。簡単のため連続光  $A(z, t) = A(z)$  を仮定し、最も基本的な2次非線形光学現象である第2高調波発生 (Second harmonic generation: SHG) を考える。結合波方程式(2.9)において線形分散を無視 ( $\zeta = \xi_{1,2} = 0$ ) し、3次の非線形効果も無視 ( $\sigma_{1,2} = 0$ ) すると、

$$\begin{cases} \frac{dA_1}{dz} = -i\rho_1 A_1^* A_2 \exp(-i\Delta kz), \\ \frac{dA_2}{dz} = -\frac{1}{2} i\rho_2 A_1^2 \exp(+i\Delta kz), \end{cases} \quad (2.10)$$

となる。変換効率が低いとき ( $A_1 = \text{const.}$ ) の2倍波の強度は、

$$I_2 = 8\pi^2 \mu_0 c \left( \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2} \right) \left( \frac{L}{\lambda} \right)^2 \text{sinc}^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right) I_1^2 \quad (2.11)$$

となる。ここで  $L$  は伝搬長、 $I_1$  は基本波の強度、 $n_{1,2}$  は屈折率である。位相整合条件  $\Delta k L = 0$  が満たされているとき、2倍波の強度は距離の2乗に比例して増大する。位相整合とは、先に発生した伝搬第2高調波と新たに放射される第2高調波との位相関係が、伝搬に際して一定に保たれることを意味する。この位相整合を達成するための手法として複屈折を利用した角度位相整合法や、非線形感受率の大きさや符号を周期的に変調する擬似位相整合法 (Quasi Phase Matching: QPM) [1] などがある。この QPM 法について以下にまとめる。

位相整合条件が満たされていないとき、基本波と第2高調波の間の位相差は伝搬長に比例して増大する。エネルギーの流れはこの位相差に依存するため、伝搬に伴って周期的なエネルギーの移行が起こる。変換効率が小さい極限ではその周期はコヒーレンス長  $l_c = \pi/\Delta k$  の2倍となる。そこで、コヒーレンス長の整数倍の周期で非線形感受率の符号を変えれば、基本波から2倍波への一方的な変換を維持できる。このように非線形感受率を周期  $\Lambda$ 、すなわち波数  $K = 2\pi/\Lambda$  で変調して

$$\Delta k \pm mK = 0, \quad m = 1, 2, 3, \dots \quad (2.12)$$

を満たすよう擬似的に位相整合を取ることを  $m$  次の QPM という。いま、図 2.1 に示すように周期  $\Lambda$  で無限に並ぶ  $\pm 1$  の値をとりプラス領域の幅が  $l$  の矩形関数列

$$S'_\Lambda(x) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} d_l(x - n\Lambda) = \begin{cases} -1 & (l/2 < |x - n\Lambda| < \Lambda/2) \\ 1 & (|x - n\Lambda| \leq l/2) \end{cases} \quad (2.13)$$

を考えることにする。このフーリエ級数展開は、

$$S'_\Lambda(x) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} G_m \exp(iK_m x) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \frac{2}{m\pi} \sin\left(\frac{m\pi l}{\Lambda}\right) \exp\left(i \frac{2m\pi}{\Lambda} x\right) \quad (2.14)$$

となる。実効的な非線形光学定数  $d_{\text{eff}}$  は、変調された非線形光学定数  $d_{ijk}$  にフーリエ係数がかかったものになる。すなわち、 $m$  次の QPM では、

$$d_{\text{eff}} = \frac{2d_{ijk}}{m\pi} \sin\left(\frac{m\pi l}{\Lambda}\right) \quad (2.15)$$

となる。奇数次の QPM では反転デューティー比が 1:1 の時に実効的な非線形光学定数が最大になるのに対し、偶数次の QPM では 1:1 からずらすことによりゼロでない値が得られる。

角度位相整合法は、適度な大きさの複屈折が存在しないと実現できないという制約があるのに対し、擬似位相整合は原理的にはいかなる屈折率分散あるいは複屈折の条件においても分極反転周期を適切に設定することで実現できる。

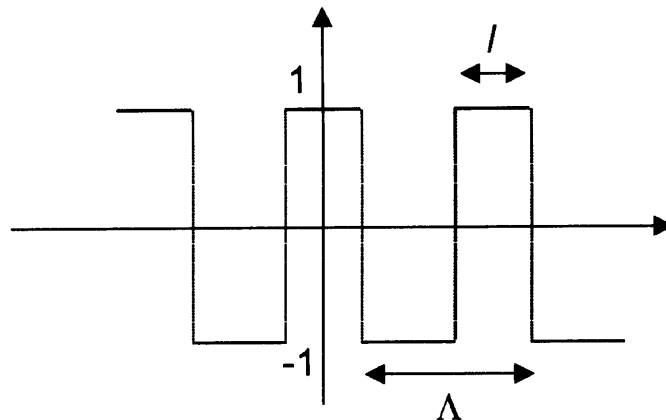


図 2.1 無限矩形波関数

### 2.2.2 カスケード2次非線形光学効果

波長変換の多段過程を通して、大きな非線形位相シフトを生成することが可能である。これがいわゆるカスケード2次非線形光学効果である [2,3]。

結合波方程式(2.10)から  $A_2$  を消去すると、

$$\frac{d^2 A_1}{dz^2} + i\Delta k \frac{dA_1}{dz} - \Gamma^2 \left(1 - 2|A_1/A_0|^2\right) A_1 = 0 \quad (2.16)$$

が得られる。ただし、

$$\Gamma = \frac{\omega_1 d_{\text{eff}} |A_0|}{c \sqrt{n_1 n_2}} \quad (2.17)$$

であり、エネルギー保存:  $n_1 |A_0|^2 = n_1 |A_1(z)|^2 + n_2 |A_2(z)|^2$  が成り立つとした。エネルギーの移行が無視できる場合、 $A_1(z) = |A_1(0)| \exp[-i\Phi(z)] = |A_1(0)| \exp[-i\Lambda z]$  とおくと、式(2.16)より、

$$\Lambda_{\pm} = \frac{\Delta k}{2} \left( 1 \pm \sqrt{1 + \left( \frac{2\Gamma}{\Delta k} \right)^2 \left( 2|A_1/A_0|^2 - 1 \right)} \right) \quad (2.18)$$

が得られる。いま  $\Lambda_-$  に注目し、基本波のみが入射する場合 ( $|A_1(z)| \sim |A_1(0)| = |A_0|$ ) を考えると、

$$\Lambda_- = \frac{\Delta k}{2} \left( 1 - \sqrt{1 + \left( \frac{2\Gamma}{\Delta k} \right)^2} \right) \quad (2.19)$$

が得られる。これより距離  $L$  だけ伝搬した後に基本波に誘起される非線形位相シフトは、

$$\Phi(L) \cong \frac{\Delta k L}{2} \left( 1 - \sqrt{1 + (2\Gamma/\Delta k)^2} \right) \quad (2.20)$$

と書け、さらに  $|\Delta k| \gg |\Gamma|$  の場合には

$$\Phi(L) \cong -\frac{\Gamma^2 L^2}{\Delta k L} \quad (2.21)$$

と近似できる。これより、光カー効果に類似した実効的な非線形屈折率  $n_2^{\text{casc}}$  を

$$n_2^{\text{casc}} = -\frac{4\pi}{c\epsilon_0} \frac{L}{\lambda} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_1^2 n_2} \frac{1}{\Delta k L} \quad (2.22)$$

と定義できる。式(2.22)より、実効的な非線形屈折率の大きさと符号が  $\Delta k$  に依存することがわかる。例えば、 $c = 3 \times 10^8$  m/s,  $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$  F/m,  $n_{1,2} = 2.0$ ,  $\lambda = 1.0$   $\mu\text{m}$ ,  $d_{\text{eff}} = 10$  pm/V,  $\Delta k L = 2\pi$ ,  $L = 10$  mm という典型的な値を代入すると  $n_2^{\text{casc}} \sim 10^{-12}$  cm<sup>2</sup>/W という非常に大きな実効的な非線形屈折率になる。これは近赤外波長域での熔融石英の非線形屈折率  $2.46 \times 10^{-16}$  cm<sup>2</sup>/W と比べて3~4 オーダーほど大きな値である。

非線形位相シフトが生じる過程を現象論的に説明しよう。図 2.2 に示すように、2次非線形媒質に基本波  $E_\omega$  が入射すると、その2倍周波数で振動する分極波  $P_{2\omega}$  が生じる。発生する分極波の位相は、各点(A, B, C, ...)における基本波の位相で決まる。しかしその分極波が源泉となって放射される第2高調波  $E_{2\omega}(A)$ ,  $E_{2\omega}(B)$ ,  $E_{2\omega}(C)$ ...は、それら自身の位相速度で伝搬する。ある伝搬長だけ進むと伝搬してきた第2高調波とその場で分極から放射される第2高調波との位相がずれ、それらは干渉の結果弱められる。同様のことが基本波にも起こり、伝搬基本波とその場で放射される基本波との位相が次第にずれてくる。そしてエネルギー移行が高調波から基本波へという、それまでとは逆の流れになる。この過程で伝搬基本波に位相のずれた成分が足しあわされ、位相シフトが生じるのである。伝搬にともなったこの周期的なエネルギー移行の度に位相シフトが蓄積していく。また、一回の逆変換過程で付加される位相シフトの大きさは第2高調波への変換効率に依存するため、結局位相シフトは入射基本波強度に依存するのである。

このように、非線形位相シフトは波長変換および逆変換の多段過程を通して生成される。カスケード非線形効果はこの意味でノンローカルな現象である。ただし、個々の波長変換プロセスは通常非共鳴であるため、原理的には超高速応答を示すといえる。

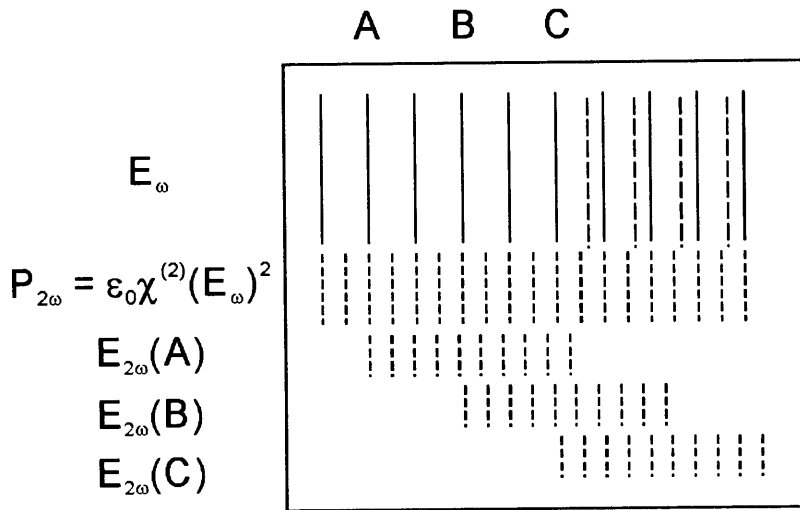
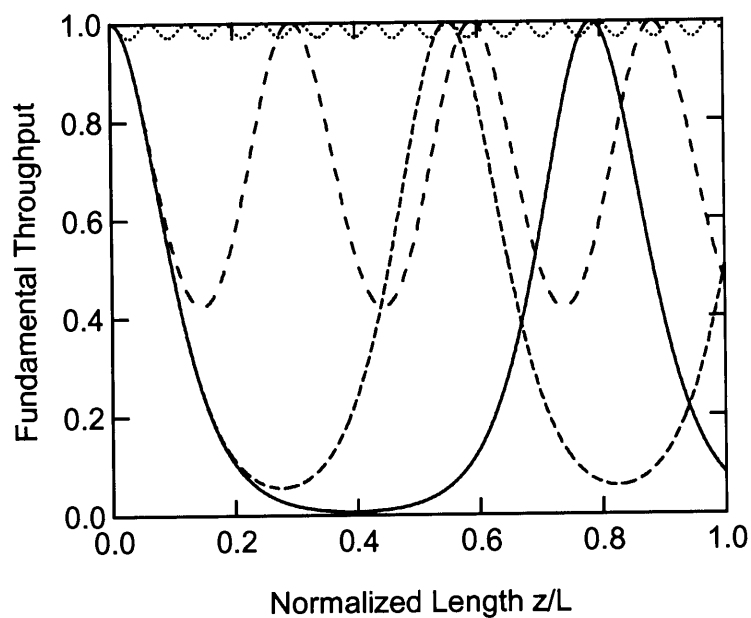


図 2.2 非線形位相シフトが生じる概念図(各線は基本波および高調波の波面を表す)

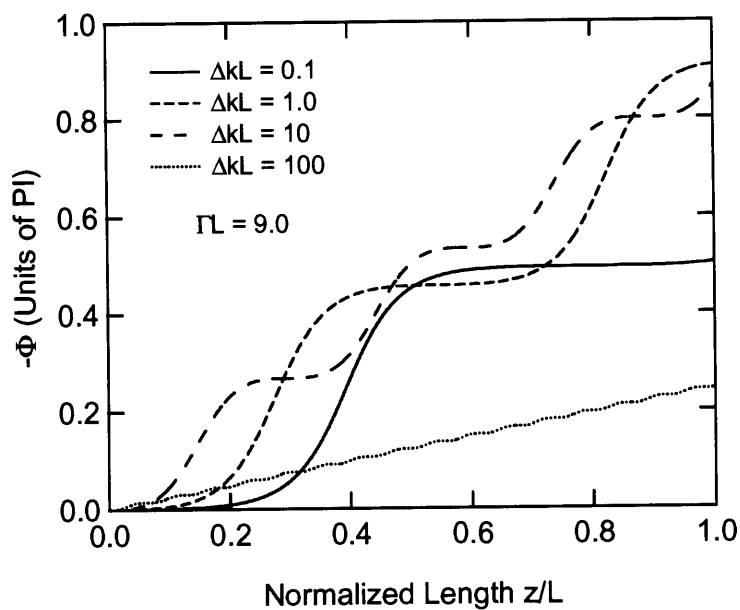
次に、カスケード非線形効果の性質を数値シミュレーションにより詳しく調べてみよう。最も単純なケース、すなわち連続光かつ平面波の場合についての結合波方程式(2.10)を4次の Runge-Kutta 法を用いて数値計算した。計算パラメーターは基本波波長 800 nm における BBO 結晶のタイプ I 角度位相整合配置 ( $d_{\text{eff}} = 2.0 \text{ pm/V}$ ,  $n_{1,2} = 1.66$ ) および相互作用長  $L = 10 \text{ mm}$  を用いた。以下に強度および位相の計算結果を示すが、ここでも位相の符号は  $A_{1,2}(z) = |A_{1,2}(z)| \exp[-i\Phi_{1,2}(z)]$  のように定義した。

図 2.3 (a) (b) にいくつかの位相不整合条件に対する、基本波強度および位相シフトの伝搬長依存性を示す。ここで入射基本波強度は  $2 \text{ GW/cm}^2$  ( $IL = 9.0$ ) とした。変換効率が低い極限では、コヒーレンス長の2倍を周期としてエネルギーの移行が起こるが、変換効率が高くなるにつれてエネルギーの移行する周期はコヒーレンス長の2倍より短くなってゆく。これは、変換効率が高くなるにつれて基本波・高調波の位相が変調され、実効的な位相速度が変化しているからである。エネルギーの移行に同期して基本波に位相シフトが蓄積していく様子がわかる。伝搬長に比例して増える様は光カー効果に似ているが、ステップ関数的に増加するという点で異なる。このときの光振幅・位相を Phasor 表示にて図 2.4 に示す。ここで a と a'、b と b' などにより基本波 (FF) および高調波 (SH) の同時刻における振る舞いを表し、矢印により状態が推移する方向を示した。また、黒丸・白丸はそれぞれ基本波および高調波の初期状態を表す。これらの結果より、基本波・高調波ともに位相不整合条件に応じて振幅を振動させながら位相シフトを蓄積することがわかる。

次に、基本波強度および位相シフトの位相不整合量  $\Delta kL$  依存性を基本波強度  $I_1 = 20, 100, 500 \text{ MW/cm}^2$  ( $IL = 0.90, 2.0, 4.5$ ) の各場合について計算した例を図 2.5(a)(b) に示す。強度が大きくなるにつれて位相整合条件下での変換効率は高くなるが、位相整合許容幅は狭くなる。位相シフトは位相整合条件のまわりで共鳴的な挙動を示し、符号を入れ替える。これがまさにカスケード非線形効果独特の性質である。



(a)



(b)

図 2.3 位相不整合条件での(a)基本波強度および (b)基本波位相シフトの伝搬長依存性



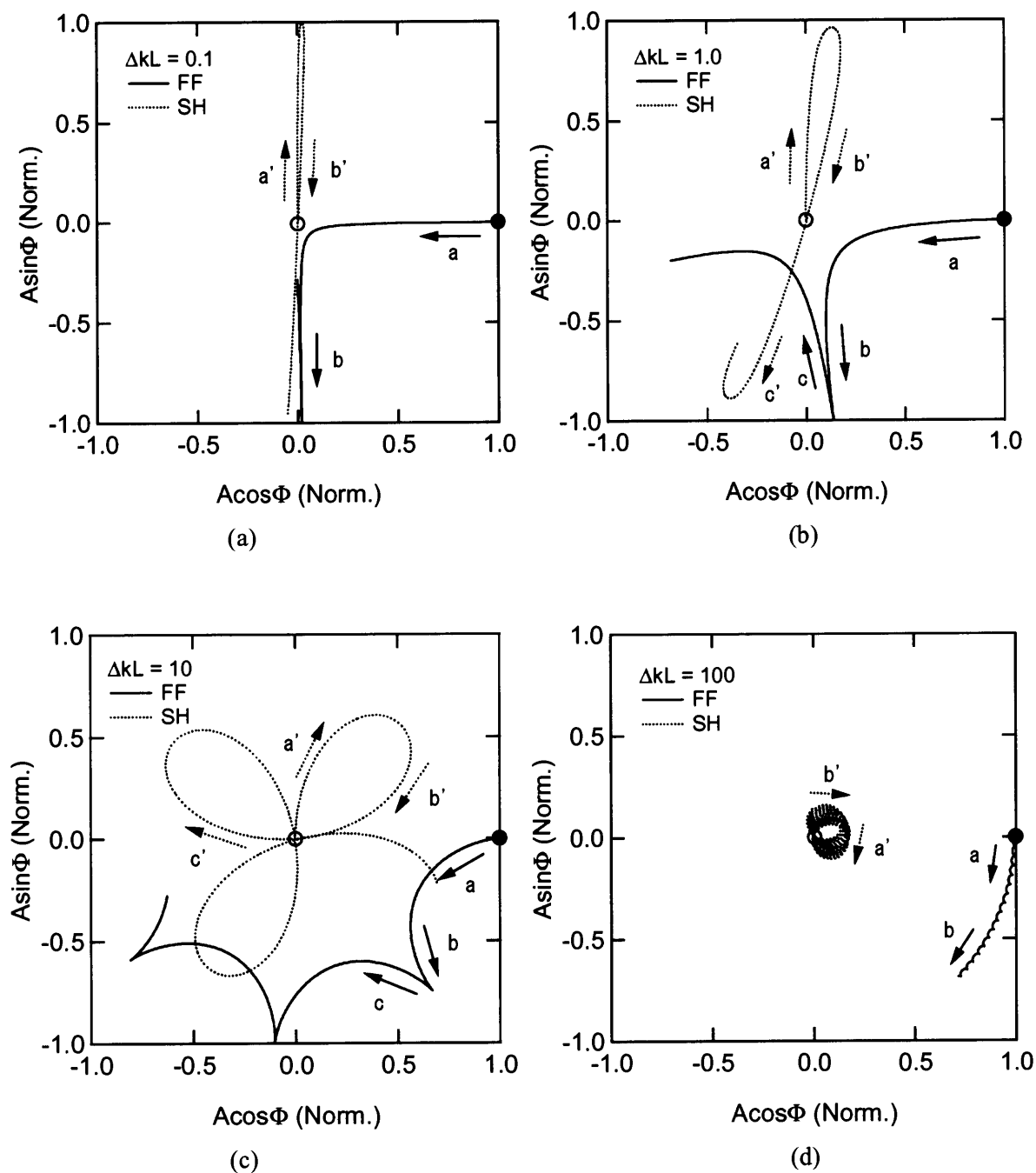
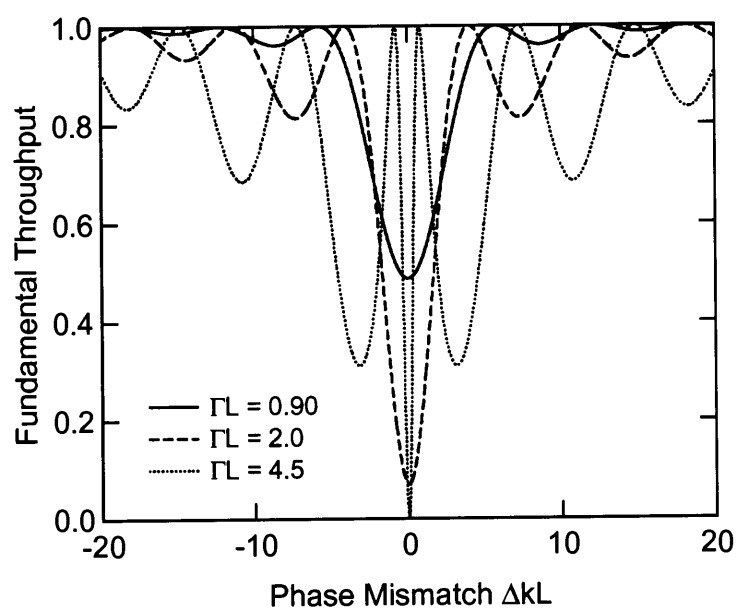


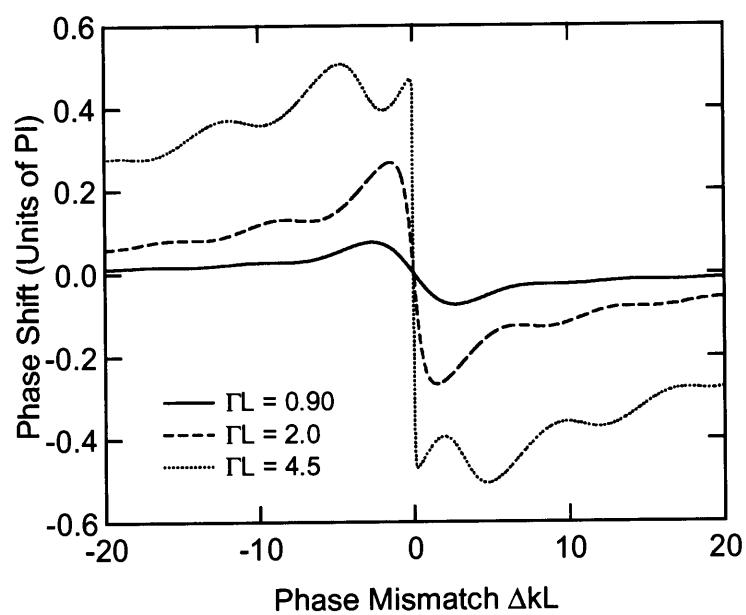
図 2.4 位相不整合条件での電場振幅変化 (Phasor 表示)

 (a)  $\Delta kL = 0.1$  (a)  $\Delta kL = 1.0$  (c)  $\Delta kL = 10$  (a)  $\Delta kL = 100$ 

黒丸・白丸はそれぞれ基本波・高調波の初期状態を表す。



(a)



(b)

図 2.5 (a)基本波減衰および (b)非線形位相シフトの位相不整合量依存性

### 2.2.3 固有モード

これまでは2次非線形媒質には基本波のみが入射する場合を考え、基本波に付加される非線形位相シフトのみに注目してきた。一方、基本波と高調波が同時に非線形媒質に入射する場合にも非線形位相シフトの生成が可能であり、ある特殊な場合には固有モードという興味深い状態を励起できる。

基本波と第2高調波が同時に非線形媒質に入射し、伝搬に際して正味のエネルギー交換がない場合を考える。そこで、結合波方程式(2.10)において  $A_{1,2}(z) = |A_{1,2}(0)| \exp[-i\Phi_{1,2}(z)]$  とおくと次式が得られる。

$$\begin{cases} \frac{d\Phi_1}{dz} = \rho_1 |A_2| \exp[i(2\Phi_1 - \Phi_2 - \Delta kz)], \\ \frac{d\Phi_2}{dz} = \frac{1}{2} \rho_2 \frac{|A_1|^2}{|A_2|} \exp[-i(2\Phi_1 - \Phi_2 - \Delta kz)], \end{cases} \quad (2.23)$$

位相が実数であるためには、

$$2\Phi_1 - \Phi_2 - \Delta kz = 0 \text{ or } \pi \quad (2.24)$$

である必要がある。またこのとき、それぞれの位相は次式のように表される。

$$\begin{cases} \Phi_1(z) = \Phi_1(0) \pm \rho_1 |A_2| z, \\ \Phi_2(z) = \Phi_2(0) \pm \frac{1}{2} \rho_2 \frac{|A_1|^2}{|A_2|} z. \end{cases} \quad (2.25)$$

ここで正号および負号はそれぞれ式(2.24)の値が0および $\pi$ の場合に相当する。 $z=0$ において(2.24)が満たされている場合、伝搬に際して(2.24)を満たし続けるためには、

$$\frac{d}{dz}(2\Phi_1 - \Phi_2 - \Delta kz) = 0 \quad (2.26)$$

であることが必要である。式(2.25)を式(2.26)に代入すると、

$$-2\rho_1 |A_2| + \frac{1}{2} \rho_2 \frac{|A_1|^2}{|A_2|} \pm \Delta k = 0 \quad (2.27)$$

となる。ここでも正号および負号はそれぞれ式(2.24)の値が0および $\pi$ の場合に対応している。以上から、 $z=0$ における初期条件(2.24)と式(2.27)を満足すれば、伝搬に伴って正味のエネルギーのやりとりはないが、位相を変調しあうような固有モードを励起できることがわかる。実際、式(2.27)を解いて式(2.25)に代入することにより次の結果が得られる。

$$\begin{cases} \Phi_1(z) = \Phi_1(0) \pm \frac{\Delta k z}{2} \left\{ 1 + \sqrt{1 + \left( \frac{2\Gamma}{\Delta k} \right)^2 (2|A_1/A_0|^2 - 1)} \right\}, \\ \Phi_2(z) = \Phi_2(0) \pm \Delta k z \sqrt{1 + \left( \frac{2\Gamma}{\Delta k} \right)^2 (2|A_1/A_0|^2 - 1)}. \end{cases} \quad (2.28)$$

ここでも正号・負号はそれぞれ式(2.24)の値が0および $\pi$ の場合である。基本波に関するこの結果は、式(2.18)で求めた $\Lambda_+$ を含んでいる。

固有モードの挙動を数値計算により調べてみよう。前節と同様、計算パラメーターは基本波波長 800 nm における BBO 結晶のタイプ I 角度位相整合配置 ( $d_{\text{eff}} = 2.0 \text{ pm/V}$ ,  $n_{1,2} = 1.66$ ,  $L = 10 \text{ mm}$ ) を用いる。まず、式(2.27)から決まる基本波強度および高調波強度の全光強度に対する割合を $\Delta k$  に対してプロットした結果を図 2.6 に示す。実線と破線はそれぞれ全光強度を 100, 300  $\text{MW/cm}^2$  に固定して計算した結果である。強度および波数不整合量 $\Delta k$  によって、固有モードを生成するための強度比が変化することがわかる。ここでは式(2.24)の値が0の場合について示したが、 $\pi$  の場合はちょうど $\Delta k$  の符号を正負入れ替えた形になる。

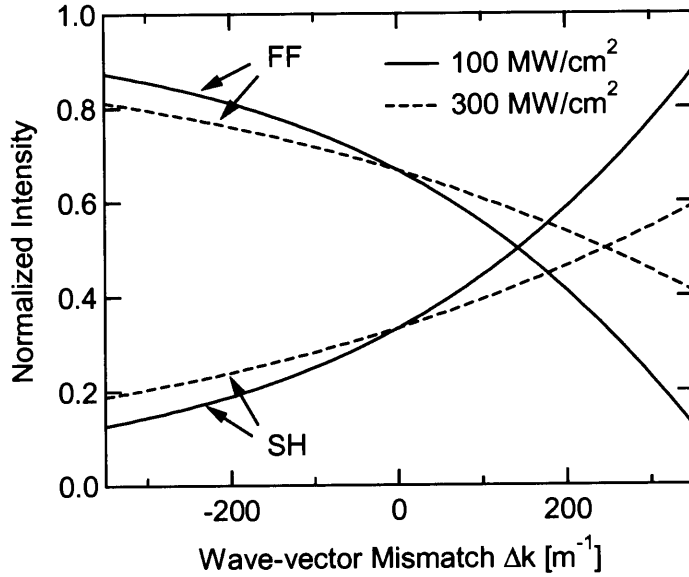
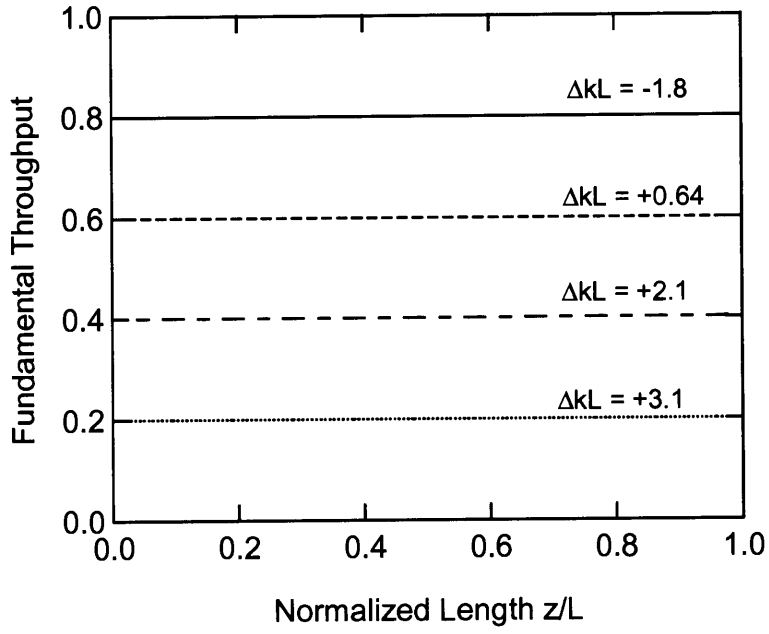


図 2.6 固有モード生成条件における基本波および高調波強度の全光強度に対する比  
(実線および破線はそれぞれ全光強度が 100, 300  $\text{MW/cm}^2$  の場合)

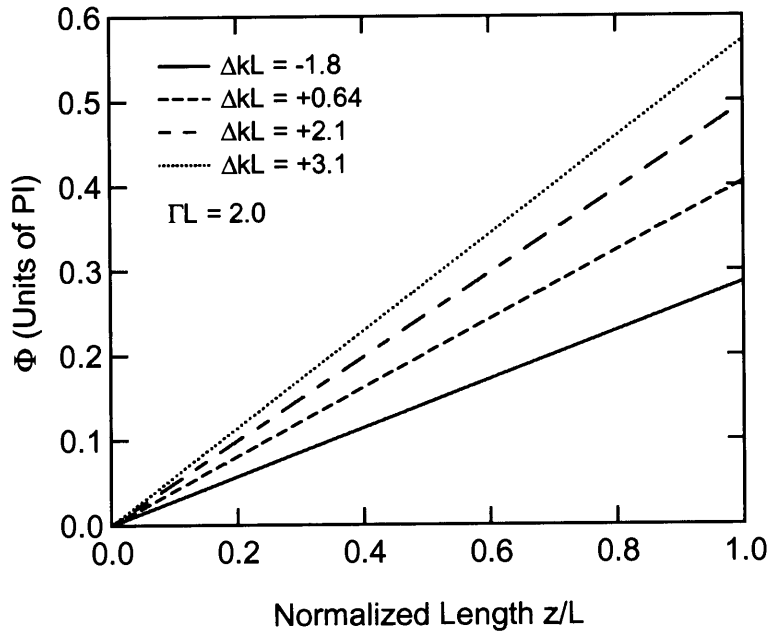
初期位相を $\Phi_1(0) = \Phi_2(0) = 0$ とおき、式(2.27)を満たす初期条件で計算を行った結果を図 2.7 に示す。ここで基本波および高調波の強度の和 $I_0 = I_1 + I_2$ は $100 \text{ MW/cm}^2$  ( $IL = 2.0$ )に固定している。伝搬長に関わらず正味のパワー移行が無いこと、非線形位相シフトは基本波・高調波ともに距離に比例して蓄積していくことがわかる。図 2.8 に示した Phasor 表示では、原点を中心とした円を描く。この状態は、互いにエネルギー交換を行っているため位相シフトを与え合っているが、正味のエネルギー移行はないという状態である。この状態の特徴は、(1)基本波と高調波の振幅の大きさに応じて互いの位相をシフトさせる、すなわち位相速度を変化させること、(2)式(2.25)からわかるように位相シフト量が光強度ではなく光振幅に比例すること、そして(3)位相シフトの符号は $\Delta k$ だけでなく位相関係(2.24)にも依存して変化することである。

2次非線形光学過程におけるこのような固有モードに関しては、Trillo ら [4] あるいは Kaplan [5] によって論じられている。また、より一般的には固有モードでなくとも基本波と高調波の振幅・位相は全光強度、位相関係、そして位相不整合条件に応じて互いに影響しあいながら伝搬する。これら全てを含めて、つまり正味のエネルギーの周期的なやりとりのあるなしに関わらず、実質的にエネルギーを交換して相互位相変調を起こしているものは広義のカスケード非線形効果として解釈できよう。

以上のように、結合波方程式(2.10)において初期条件および位相不整合条件によって、光波の挙動は多彩に変化する。これらの現象は 1962 年に Armstrong ら [6] によって楕円積分の形で示された結合波方程式の一般解に含まれている。しかし 1990 年代に位相変調という側面から光が当てられて初めて、その物理的解釈が深まり、応用を意識した研究が進んだのであろう。



(a)



(b)

図 2.7 固有モードでのカスケード非線形効果 (a)基本波強度 (b)基本波の位相シフト

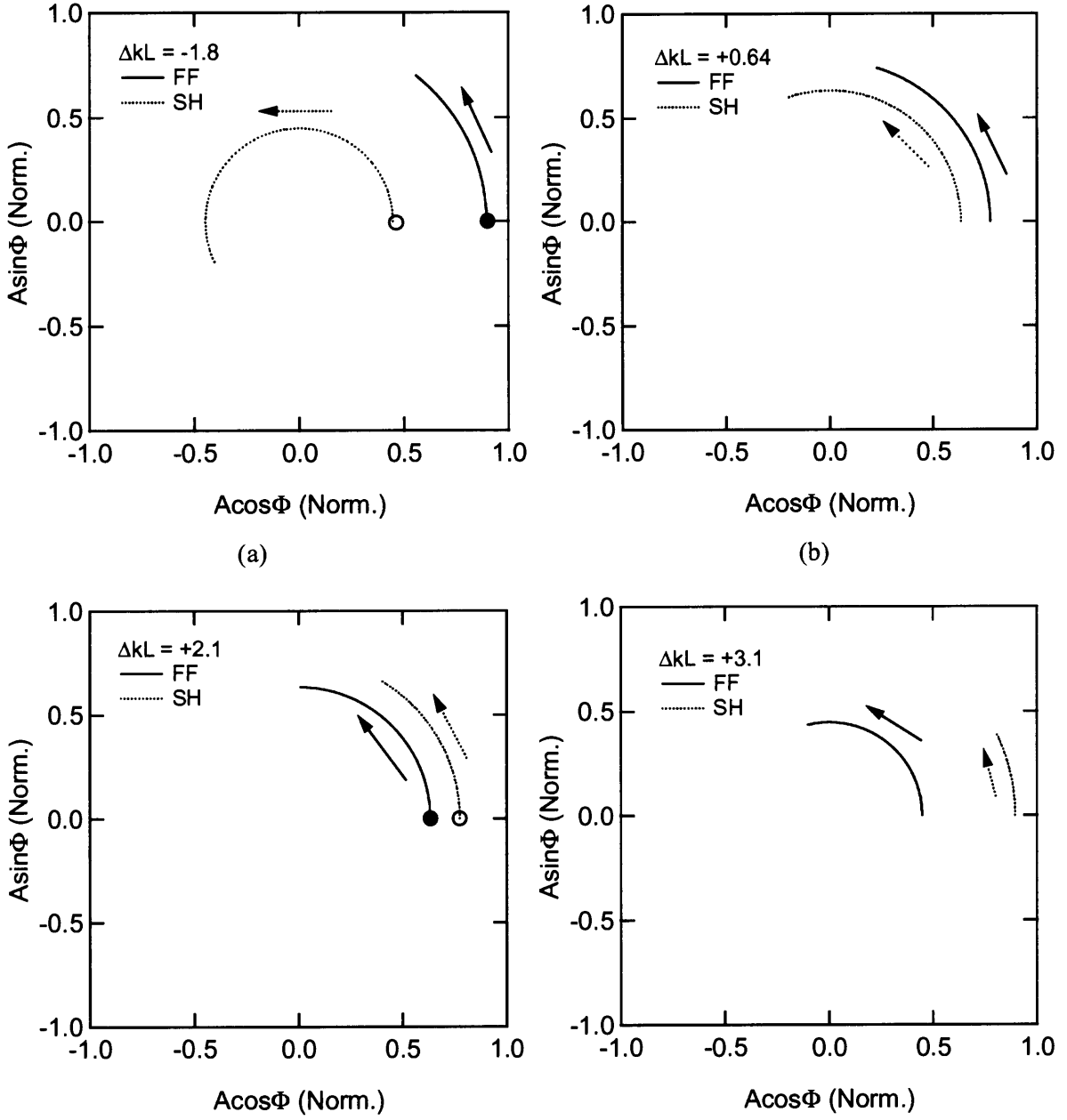


図 2.8 固有モードの Phasor 表示 (a)  $\Delta kL = -1.8$  (b)  $\Delta kL = +0.64$  (c)  $\Delta kL = +2.1$  (d)  $\Delta kL = +3.1$

## 2.3 光カー媒質における光ソリトン

### 2.3.1 非線形屈折率効果

媒質が反転対称性を有する場合に現れる、最低次の非線形分極は3次の項である。この場合の分極応答は

$$P = \epsilon_0 \left\{ \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E|^2 \right\} E \quad (2.29)$$

と書ける。これがいわゆる非線形屈折率効果または光カー効果である。光強度  $I$  のときの屈折率を

$$n = n_0 + n_2 I \quad (2.30)$$

と表したときの  $n_2$  を非線形屈折率と呼び、通常  $\text{cm}^2/\text{W}$  の単位で表される。

非線形屈折率効果は、光の時間的・空間的なプロファイルに応じたセルフアクション、すなわち自己収束や自己位相変調 (Self-phase-modulation: SPM) を引き起こす。これらはカーレンズモード同期やソリトン伝搬、パルス圧縮などの超短光パルス制御に利用されている。

自己位相変調効果により、超短光パルスのスペクトル広帯域化が可能となる。非線形屈折率効果をもつ媒質中を距離  $L$  だけ伝搬する間に誘起される時間位相は、

$$\Phi(t) = k(t)L = \frac{2\pi}{\lambda_0} n(t)L \quad (2.31)$$

である。非線形屈折率効果が光強度にほぼ追従したとすると、パルスの瞬時周波数  $\omega_c$  は、

$$\omega_c(t) = -\frac{d\Phi(t)}{dt} = -\frac{2\pi}{\lambda_0} L \frac{dn(t)}{dt} = -\frac{2\pi}{\lambda_0} n_2 L \frac{dI(t)}{dt} \quad (2.32)$$

となる。瞬時周波数  $\omega_c$  はこのように時間位相の一階微分で与えられるため、例えば2次の時間位相は線形な周波数チャープを引き起こす。

屈折率分散と自己位相変調効果はそれぞれ周波数および時間に依存した位相を誘起するという点で対応している。例えば、2次の周波數位相である群遅延分散は時間領域で時間幅広がり2次の時間位相を誘起する。これに対し、自己位相変調効果による2次の時間位相は周波数領域でスペクトル広がり2次の周波數位相を誘起する。超短光パルスはこの両面を通して物質と相互作用することにより、パルス波形を変化させていく。



## 2.3.2 非線形シュレディンガー方程式とソリトン解

結合波方程式(2.9)において2次の非線形感受率をゼロとおく( $\rho_{1,2} = 0$ )と、基本波に関する伝搬方程式が得られる。

$$i \frac{\partial A_1}{\partial z} = -\frac{\ddot{k}_1}{2} \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} + \sigma_1 |A_1|^2 A_1 \quad (2.33)$$

これは非線形シュレディンガー方程式と呼ばれる。まず、次の規格化パラメーターを導入して波動方程式(2.33)を規格化する。

$$U = \frac{A_1}{\sqrt{P_0}}, \quad z' = \frac{z}{L_D}, \quad \eta' = \frac{\eta}{T_0} \quad (2.34)$$

ここで  $P_0$  は  $|A_1|^2$  のピーク値、 $T_0$  は入射パルスのパルス幅を表す量 ( $T_{\text{FWHM}} = 1.76T_0$ )、 $L_D$  は分散長

$$L_D = \frac{T_0^2}{|\ddot{k}_1|} \quad (2.35)$$

である。バンド幅限界のガウシアンパルスは伝搬長  $0.6L_D$  程度でパルス幅が倍に広がる。規格化の結果、次のように書き換えられる。

$$i \frac{\partial U}{\partial z'} + \frac{1}{2} \frac{\ddot{k}_1}{|\ddot{k}_1|} \frac{\partial^2 U}{\partial \eta'^2} - N^2 |U|^2 U = 0 \quad (2.36)$$

$N$  は次式で定義される。

$$N^2 = \frac{\sigma_1 P_0 T_0^2}{|\ddot{k}_1|} \quad (2.37)$$

さらに  $u = NU$  とおき、異常分散 ( $\ddot{k}_1 < 0$ ) を仮定すると、次のような標準的な非線形シュレディンガー方程式に帰着する。

$$i \frac{\partial u}{\partial z'} - \frac{1}{2} \frac{\partial^2 u}{\partial \eta'^2} - |u|^2 u = 0 \quad (2.38)$$

この式から明かなように、 $u(z', \eta')$  がこの方程式の解ならば  $eu(\epsilon^2 z', \epsilon \eta')$  もまた解である。

非線形シュレディンガー方程式(2.38)はソリトン解をもつことが知られている。その一般的な解法は逆散乱法と呼ばれ、非線形微分方程式を線形問題に帰着させる方法である。ポテンシャルが与えられたときに散乱振幅を計算するのが散乱問題であるのに対し、散乱の仕方がわかっているときにポテンシャルを求めるのが逆散乱法である。逆散乱法では、関連する散乱問題のポテンシャルがソリトン解になる。具体的な導出過程は省略し、文献[7]に沿ってソリトン解とその性質を説明する。

$N = 1$  に対応する基本ソリトン解が次のように得られる。

$$u(z', \eta') = A \operatorname{sech}\{A(\eta' + \alpha z')\} \exp\{i(A^2 - \omega^2)z'/2 - i\omega\eta'\} \quad (2.39)$$

これは、パルス幅と振幅を表す  $A$ 、および中心周波数と速度を表す  $\omega$  に関して任意の値が許される、2パラメーター解となっている。いま、周波数  $\omega$  をある値に固定して省略すると、次のように  $A$  だけの1パラメーター解として表現できる。

$$u(z', \eta') = A \operatorname{sech}(A\eta') \exp(iA^2 z'/2) \quad (2.40)$$

規格化された解は  $u(0,0) = A = 1$  とおくことで得られ、

$$u(z', \eta') = \operatorname{sech}(\eta') \exp(iz'/2) \quad (2.41)$$

となる。この条件で入射した光パルスは長い伝搬長にわたってその波形を変えずに進む。

整数  $N > 1$  に対応するソリトン解は高次ソリトン解と呼ばれる。 $z' = 0$  において

$$u(0, \eta') = N \operatorname{sech}(\eta') \quad (2.42)$$

の形をした  $N$  次ソリトンを励起するために必要なピーク強度は、式(2.37)より基本ソリトンの  $N^2$  倍である。さらにこのような  $N$  次ソリトンは、伝搬長に対し  $z' = \pi/2$  の周期性をもって変動する。 $z' = z/L_D$  を考えると、その周期  $z_0$  は、

$$z_0 = \frac{\pi}{2} L_D = \frac{\pi}{2} \frac{T_0^2}{|\ddot{k}_1|} \approx \frac{T_{FWHM}^2}{2|\ddot{k}_1|} \quad (2.43)$$

となる。周期的な時間波形およびスペクトルの変化はまさに群速度分散と自己位相変調の相互作用の結果である。基本ソリトンではそれらがつりあっているために定常的な伝搬をするのに対し、高次ソリトンでは、その初期段階では自己位相変調が群速度分散に勝ってパルス圧縮が起こり、途中から群速度分散が勝ってパルス伸長が起こる、という現象が繰り返される。例えば、次式に示す2次ソリトン解からも伝搬長に関する周期性が容易にうかがい知れる。

$$u(z', \eta') = \frac{4[\cosh(3\eta') + 3\exp(4iz')\cosh(\eta')]\exp(iz'/2)}{\cosh(4\eta') + 4\cosh(2\eta') + 3\cos(4z')} \quad (2.44)$$

もしも入射するパルスの形あるいはピーク強度が  $N$  次のソリトン解と一致していなければどうなるのであろうか。ピーク強度が式(2.37)で与えられる  $N$  次ソリトン条件と正確には合っていない場合、パルスは伝搬するにつれてその形と幅を変化させながらソリトン状態へと発展していく。この発展過程において、パルスエネルギーの一部は連続光のように時間的に広がっていく。十分長い距離だけ伝搬すると、パルスは入射条件  $N$  から最も近い整数次のソリトンへと発展していく。入射パルスにチャープが付加されている場合にも同様にソリトン解へと発展していく。このように、ソリトンを励起するために入射光パルスの強度や形に要求される条件は厳しくない。これはソリトン解の安定性に起因する[8]。

### 2.3.3 ファイバーソリトン圧縮器

前節までに述べた、高次ソリトンの周期的なパルス幅の変動、あるいはソリトンの安定性を用いるとパルス圧縮を実現できる。

高次ソリトンでは周期的な変動の初期においてパルス圧縮を起こす。そこで適切なファイバー長を選べば圧縮されたパルスを取り出すことができる。一般に  $N > 1$  を満たせば整数ではなくともパルス圧縮が起きる。Mollenauerら[9]は入射条件を変えながら非線形シュレディンガー方程式の数値計算やソリトン圧縮実験を行った。その結果を図 2.9 に示す。ここで、 $z_{\text{opt}}$  はパルス圧縮が最も効率的に起こるファイバー長、 $F_c$  はパルス圧縮比、 $Q_c$  は性能因子と呼ばれ、圧縮パルスの中心部分に含まれるエネルギーの入射エネルギーに対する比として定義される。次数  $N$  が増加するにつれてパルス圧縮比は増大するが、性能因子は低下することがわかる。すなわち、圧縮比とパルス品質の間にトレードオフが存在する。Tsuchiyaら[10]は段階的に群速度分散を減少させた全長 15.1m のファイバー中の多段階高次ソリトン圧縮を用いて、20 fs のパルス圧縮に成功している。

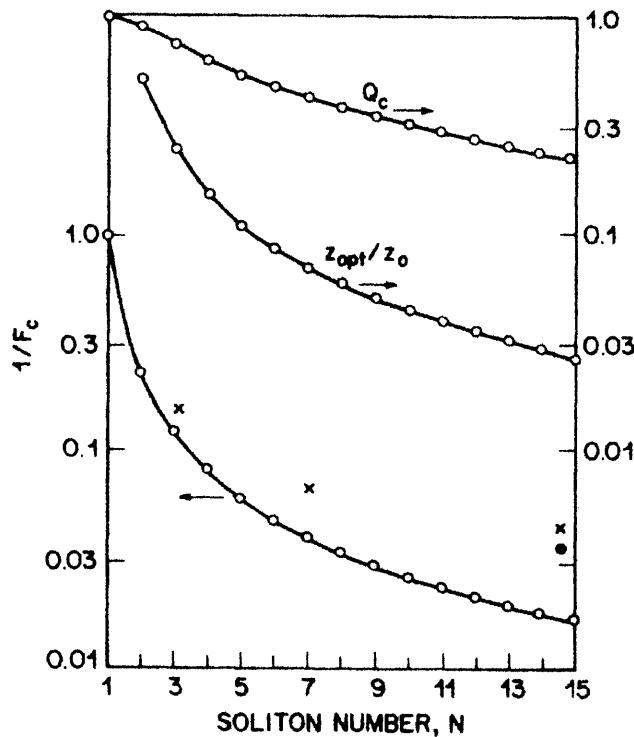


図 2.9 高次ソリトン圧縮器の特性 [9]

$F_c$ : パルス圧縮比、 $z_{\text{opt}}$ : 最適ファイバー長、 $Q_c$ : 性能因子、実線: 数値計算結果、  
 ×: ファイバー長 320 m の場合の実験値、●: ファイバー長 100 m の場合の実験値

ソリトンの安定性を利用しパルス幅の短い基本ソリトンを励起することでパルス圧縮を実現する方法がある [11,12]。基本ソリトン条件でパルスを入射させたとき、光ファイバーの分散が伝搬長にともなって連続的に減少したり、パルスが増幅を受けたりすれば、新しい基本ソリトン解の条件  $N=1$  を満たすようにパルス幅が縮まる。このように、距離に応じて連続的に基本ソリトン条件を変化させることでソリトンの断熱圧縮が可能となる。断熱圧縮法では分散長を目安として緩やかに基本ソリトン条件を変化させるため比較的長い相互作用長を必要とする反面、基本ソリトンのままパルス圧縮が起きるため高いパルス圧縮比と優れたパルス品質を両立させることが可能である。

ファイバーソリトン圧縮器の最大の特徴は小さな有効断面積と長い相互作用長であろう。ガラスの光カー効果自体は小さいが光を狭い領域に閉じ込めたまま長く伝搬させることができるため、効率的なパルス圧縮が可能となる。しかし通常のシングルモードファイバーでは異常分散領域、すなわち  $1.3\mu\text{m}$  より長波長側でしか用いることができないという制限がある。

## 2.4 2次非線形光学媒質中の光ソリトン

### 2.4.1 ソリトン解

2次非線形光学媒質においてもソリトン伝搬が可能である。これは驚くことに1974年にKaramzinとSukhorukovによって指摘されている [13,14]。また1994年にMenyukら[15]は、新しく見つけた解も含めてより一般的な形で解を示している。ここでは本論文に関係する時間ソリトンに限り、文献[15]を参考にしてその解を示す。

結合波方程式(2.9)において、 $B_1 = A_1$ ,  $B_2 = A_2 \exp(-i\Delta kz)$ とおくと、

$$\begin{cases} \frac{\partial B_1}{\partial z} = i\xi_1 \frac{\partial^2 B_1}{\partial \eta^2} - i\rho_1 B_1^* B_2 - i\sigma_1 (|B_1|^2 B_1 + 2|B_2|^2 B_1), \\ \frac{\partial B_2}{\partial z} + i\Delta k B_2 = -\zeta \frac{\partial B_2}{\partial \eta} + i\xi_2 \frac{\partial^2 B_2}{\partial \eta^2} - \frac{1}{2} i\rho_2 B_1^2 - i\sigma_2 (|B_2|^2 B_2 + 2|B_1|^2 B_2), \end{cases} \quad (2.45)$$

と書き直せる。位相不整合量が大きい場合 ( $\Delta kL \gg 1$ )、第2式より  $B_2 \sim -(\rho_2/2\Delta k)B_1^2$  とおけて

$$i \frac{\partial B_1}{\partial z} + \xi_1 \frac{\partial^2 B_1}{\partial \eta^2} + \left( \frac{\rho_1 \rho_2}{2\Delta k} - \sigma_1 \right) |B_1|^2 B_1 = 0 \quad (2.46)$$

となり、光カー媒質の場合と同じ規格化を施すと

$$i \frac{\partial U}{\partial z'} + \frac{1}{2} \frac{\ddot{k}_1}{|\dot{k}_1|} \frac{\partial^2 U}{\partial \eta'^2} + N^2 |U|^2 U = 0 \quad (2.47)$$

ただし、

$$N^2 = \left( \frac{\rho_1 \rho_2}{2\Delta k} - \sigma_1 \right) \frac{P_0 T_0^2}{|\ddot{k}_1|} \quad (2.48)$$

という非線形シュレディンガー方程式に行き着く。すなわち、基本波は光ファイバーソリトンと同様のソリトン解をもつ。前節で議論した通り、それらの解は安定である。より一般的な2次非線形光学ソリトン解は $\Delta k L \gg 1$ という仮定を除いた場合にも存在する。

式(2.9)において3次の非線形項を無視すると、

$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} = i\xi_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} - i\rho_1 A_1^* A_2 \exp(-i\Delta k z), \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = -i\xi_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial \eta^2} - \frac{1}{2} i\rho_2 A_1^2 \exp(+i\Delta k z), \end{cases} \quad (2.49)$$

となる。ここで $\ddot{k}_1 \neq 0$ を仮定しパルス幅パラメーター $\tau$ を導入して

$$\begin{aligned} z' &= \frac{|\ddot{k}_1|}{\tau^2} z, \quad s = \frac{\eta}{\tau} - \frac{\dot{k}_1}{\tau} z, \quad \delta = \frac{(\dot{k}_1 - \dot{k}_2)\tau}{|\ddot{k}_1|}, \quad \alpha = \frac{\ddot{k}_2}{|\ddot{k}_1|}, \quad \beta = \frac{\Delta k \tau^2}{|\ddot{k}_1|}, \\ a_1 &= \frac{|\rho_1 \rho_2|^{1/2} \tau^2}{|\ddot{k}_1|} A_1, \quad a_2 = \frac{\rho_1 \tau^2}{|\ddot{k}_1|} A_2, \quad r = \text{sgn}(\ddot{k}_1) \end{aligned} \quad (2.50)$$

のような変数変換を行うと、

$$\begin{cases} i \frac{\partial a_1}{\partial z'} + \frac{r}{2} \frac{\partial^2 a_1}{\partial s^2} - a_1^* a_2 \exp(-i\beta z') = 0, \\ i \frac{\partial a_2}{\partial z'} - i\delta \frac{\partial a_2}{\partial s} + \frac{\alpha}{2} \frac{\partial^2 a_2}{\partial s^2} - a_1^2 \exp(+i\beta z') = 0. \end{cases} \quad (2.51)$$

のように規格化された結合波方程式が得られる。この結合波方程式は、明るいソリトン・暗いソリトンを含め種々の形をしたソリトン解を有する。特に明るいソリトンは与えられた全光エネルギーおよび位相不整合量に応じて基本波・高調波の強度比およびソリトン解の形が変化する。それらは一般に解析的な記述ができず、ある強度比においてのみ次のような解析解となる。

$$\begin{aligned} a_1 &= C_1 \text{sech}^2(ws - vz') \exp(i\omega_1 s - i\kappa_1 z'), \\ a_2 &= C_2 \text{sech}^2(ws - vz') \exp(i\omega_2 s - i\kappa_2 z'). \end{aligned} \quad (2.52)$$

ただし、

$$\begin{aligned} \omega_2 &= 2\omega_1, \quad \kappa_2 = 2\kappa_1 + \beta, \quad \omega_1 = \frac{-\delta}{2\alpha - r}, \quad v = \frac{r\delta\omega}{2\alpha - r} \\ C_1 &= 3(\alpha r)^{1/2} w^2, \quad C_2 = -3rw^2, \\ \kappa_1 &= 2rw^2 - (r/2)\omega_1^2, \quad w^2 = \frac{1}{4r - 2\alpha} \left( -\beta + \frac{\delta^2}{2\alpha - r} \right) \end{aligned} \quad (2.53)$$

である。これらは自由なパラメーターが1つも存在しない0パラメーター解である。すなわち、光の周波数と材料の屈折率分散、そして位相不整合量を与えてしまえば、その解の形や振幅が決定するのである。解析的記述ができないソリトン解に関しても、その基本波・高調波の強度比は解析計算から、具体的なソリトン解の形も数値計算から得られる [16]。特に興味深いのは、群速度不整合がある場合にも基本波と高調波が互いにトラップしあい、実効的な群速度で伝搬する「歩くソリトン (Walking Soliton)」を形成することである。この「歩くソリトン」についても安定なソリトン解が存在することが示されている [17]。

ここでカスケード非線形光学効果と2次非線形媒質中でのソリトン伝搬との関係を考えてみる。前述したとおり、位相不整合量が大きい極限 ( $\Delta kL \gg 1$ ) では基本波がファイバーと同様の非線形シュレディンガー方程式に従う。この場合はカスケード非線形効果により基本波に誘起された位相変調と、材料分散のバランスによるソリトン効果という明快な理解が可能である。しかし、より一般的なソリトン解は基本波と高調波が同時に存在して定常的な伝搬をする解であり、このソリトン解は 2.2 節で論じた固有モードの、時間あるいは空間プロファイルをもった場合への拡張と理解できる。つまり、基本波と高調波の間で位相関係を一定に保ちながら、正味のエネルギーのやりとりはなしに互いの位相を変調しており、その位相変調が回折あるいは分散の効果とつりあっている状態であると理解できる。2次非線形媒質中では、例えば基本波・高調波ともに正常分散領域の場合、全光エネルギーと基本波・高調波エネルギー比さえ適切に選べば位相不整合量の正負を問わず時間ソリトン解が存在する。これも図 2.8 に示したように、定常モードにおいては位相不整合量の正負によらず、全光強度と基本波・高調波の強度比を変えることで位相変調の符号を制御可能である、という事実から納得できる。

以上、時間領域のソリトン解について述べたが、その結合波方程式(2.51)は空間1次元のプロファイルをもつ連続光の伝搬を記述する方程式と全く同じ形をしている。空間領域では線形な分散効果は回折であるのに対し、時間領域ではそれが群速度分散である。また、基本波・高調波間の空間ワークオフは時間領域でも同様に時間ワークオフに相当する。つまり、時間ソリトンは空間1次元ソリトンと同種の解をもつ。ただし時間ソリトンでは、群速度分散のパラメーターが非線形材料の種類や用いる波長によって変化するため、その影響を受けて2次非線形媒質中では空間ソリトンよりも時間ソリトンの方がより多彩に解が変化するといえる。また、本論文では2次非線形媒質中の時間ソリトンのみを扱っているが、2次非線形光学媒質においてはさらに空間2次元あるいは時間も含めた時空間3次元などの多次元ソリトンが存在し、それらが安定であることも強調しておく。例えば光カー媒質中では空間2次元ソリトンは不安定であることと対照的である。

### 2.4.2 パルス圧縮への指針

2次非線形光学媒質におけるソリトン効果を用いたパルス圧縮法として以下の2つが考えられる。1つ目は、ファイバーソリトンにおける高次ソリトンのような振る舞い、すなわち周期的なパルス幅変化の前半過程を利用する方法である。前に述べた通り、大きな位相不整合条件下では結合波方程式が基本波に関する非線形シュレディンガー方程式に帰着される。すなわち、基本波はファイバーソリトンと同様、入射条件に応じて高次ソリトンのような振る舞いをすることが推測できる。2つ目は、ソリトン解の安定性を利用して適切な入射条件から安定なソリトン状態に収束させることである。Torner ら [18]は初期条件を変化させながら数値計算を行った結果、閾値以上の強度で入射すれば基本波・高調波が互いにトラップしあうソリトン状態に収束していくことを確認し、ソリトンの安定性を数値実験から示唆している。ソリトンの安定性を利用すれば、断熱パルス圧縮も可能になるであろう。この場合、分散や非線形性の大きさを伝搬方向に設計する必要がある。

### 参考文献

- [1] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation: Tuning and Tolerances," *IEEE J. Quant. Electron.* **28**, pp. 2631-2654 (1992).
- [2] R. DeSalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman, E. W. Van Stryland, and H. Vanherzeele, "Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP," *Opt. Lett.* **17**, pp.28-30 (1992).
- [3] G. I. Stegeman, M. Sheik-Bhae, E. Van Stryland, and G. Assanto, "Large nonlinear phase shifts in second-order nonlinear-optical processes," *Opt. Lett.* **18**, pp.13-15 (1993).
- [4] S. Trillo, S. Wabnitz, R. Chisari, and G. Cappelini, "Two-wave mixing in a quadratic nonlinear medium: bifurcations, spatial instabilities, and chaos," *Opt. Lett.* **17**, pp. 637-639 (1992).
- [5] A. E. Kaplan, "Eigenmodes of  $\chi^{(2)}$  wave mixings: cross-induced second-order nonlinear refraction," *Opt. Lett.* **18**, pp.1223-1225 (1993).
- [6] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric," *Phys. Rev.* **127**, pp.1918-1939 (1962).
- [7] G. P. Agrawal, *Nonlinear fiber optics*, 3rd Edition, Academic Press (2001).
- [8] C. R. Menyuk, "Soliton robustness in optical fibers," *J. Opt. Soc. Am B* **10**, pp.1585-1591 (1993).
- [9] L. F. Mollenauer, R. H. Stolen, J. P. Gordon, and W. J. Tomlinson, "Extreme picosecond pulse narrowing by means of soliton effect in single-mode optical fibers," *Opt. Lett.* **8** pp.289-291 (1983).
- [10] M. Tsuchiya, K. Igarashi, S. Saito, and M. Kishi, "Sub-100 fs higher order soliton compression in dispersion-flattened fibers," *IEICE Trans. Electron.* E85C, pp.141-149 (2002).

- [11] S. V. Chernikov and P. V. Mamyshev, "Femtosecond soliton propagation in fibers with slowly decreasing dispersion," J. Opt. Soc. Am B **8**, pp.1633-1641 (1991).
- [12] H. H. Kuehl "Solitons on an axially nonuniform optical fiber," J. Opt. Soc Am B **5**, pp. 709-713 (1988).
- [13] Yu. N. Karamzin and A. P. Sukhorukov, "Nonlinear interaction of diffracted light beams in a medium with quadratic nonlinearity: mutual focusing of beams and limitation on the efficiency of optical frequency converters," JETP Lett. **20**, pp.339-342 (1974).
- [14] Yu. N. Karamzin and A. P. Sukhorukov, "Mutual focusing of high-power light beams in media with quadratic nonlinearity," Sov. Phys. -JETP **41**, pp.414-420 (1976).
- [15] C. R. Menyuk, R. Shiek and L. Torner, "Solitary waves due to  $\chi^{(2)}$ :  $\chi^{(2)}$  cascading," J. Opt. Soc. Am B **11**, pp.2434-2443 (1994).
- [16] L. Torner, "Stationary solitary waves with second-order nonlinearities," Opt. Commun. **114**, pp.136-140 (1995).
- [17] L. Torner, D. Mazilu, and D. Mihalache, "Walking solitons in quadratic nonlinear media," Phys. Rev. Lett. **77**, pp.2455-2458 (1996).
- [18] L. Torner, C. R. Menyuk, and G. I. Stegeman, "Bright solitons with second-order nonlinearities," J. Opt. Soc. Am B **12**, pp.889-897 (1995).



## 第3章

# BBO 非線形結晶を用いた 光ソリトン圧縮

### 3.1 はじめに

本章では、 $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) 非線形結晶のタイプ I 角度位相整合配置を用いた、フェムト秒カスケード非線形効果の測定と光ソリトン圧縮実験についてまとめる。Ti: sapphire レーザーのフェムト秒パルスを入射基本波として用いた場合、BBO 結晶中の SHG 過程においては基本波と高調波の間に大きな群速度不整合が存在する。この群速度不整合は基本波に生成される非線形位相シフトを低減するとともに、その時間プロファイルを歪ませる。時間位相の歪みによる非線形チャープを抑制するため、本章では大きな位相不整合条件でソリトン圧縮を行う、というアプローチをとった。基本波・高調波ともに正常分散領域であるため、位相不整合量を調整して負の非線形屈折率効果を利用した。大きな位相不整合条件では SHG 変換効率が低いため、基本波のソリトン圧縮に焦点を絞った。

第一章で述べたとおり、カスケード非線形効果を利用した時間ソリトン伝搬やパルス圧縮に関する研究が BBO 結晶を用いて行われてきたが、そこでは付加的な群速度分散を導入していた。本章での内容は BBO 結晶自身の群速度分散を利用したソリトン伝搬・圧縮に関する理論・実験両面からの研究である。

## 3.2 実効的非線形屈折率の測定

### 3.2.1 Z スキャン法

カスケード非線形効果に起因する実効的な非線形屈折率効果を Z スキャン法により測定した。Z スキャン法は非線形屈折率効果（光カー効果）や2光子吸収を高感度かつ簡便に測定する方法である[1,2]。その測定法は、レーザー光のビームウエスト付近でサンプルを光軸方向に移動させながら遠視野での開口透過率を測定する、というものである。非線形屈折率効果により自己収束が起こると、ビームの広がり方が焦点前後で大きく変動する。そのため遠視野での開口透過率は図 3.1 のようになるが、この信号の変調度 $\Delta T_{p-v}$ から非線形屈折率を評価するのである。第5章における位相シフト測定法の説明にも必要となるため、ここで丁寧に Z スキャン測定法について述べる。

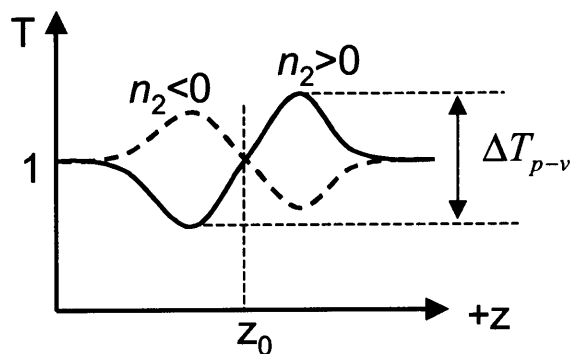


図 3.1 典型的な Z スキャン信号

自己収束効果によりビームウエスト前後で山と谷が現れる。信号の極性は非線形屈折率  $n_2$  の符号に応じて反転する。

TEM<sub>00</sub> のガウシアンビーム（ビームウエスト半径： $w_0$ ）が  $+z$  方向に伝搬しているとき、その光電場は次のように表せる。

$$E(z, r, t) = E_0(t) \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)}\right) e^{-i\phi(z, t)} \quad (3.1)$$

ここで  $w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_0^2}$  はビーム半径、 $R(z) = z(1 + z_0^2/z^2)$  は波面の曲率半径、 $z_0 = kw_0^2/2$  はビームの回折長、 $E_0(t)$  は焦点位置での電場振幅である。誘起される位相シフトは軸対称であるとし、さらに SVE 近似（Slowly-varying envelope approximation）を適用する。

回折や自己収束効果によるサンプル内でのビーム径変化は十分小さい（ $L \ll z_0$  および  $L \ll z_0/\Delta\phi(0)$ ）という仮定の下では、光強度とその位相について次の関係式が成り立つ。

$$\begin{aligned}\frac{d\Delta\phi}{dz'} &= \Delta n(I)k \\ \frac{dI}{dz'} &= -\alpha(I)I\end{aligned}\quad (3.2)$$

ここで  $z'$  はサンプル中の伝搬長、 $\alpha(I)$  は線形・非線形を含めた吸収係数である。吸収が無視できて非線形屈折率効果のみが存在する場合、式(3.2)は位相に関して解くことができる。すなわち、サンプル位置が  $z$  の場合に誘起される位相シフトは、

$$\Delta\phi(z, r, t) = \Delta\phi_0(z, t) \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \quad (3.3a)$$

$$\Delta\phi_0(z, t) = \frac{\Delta\Phi_0(t)}{1 + z^2/z_0^2} \quad (3.3b)$$

である。ここで  $\Delta\Phi_0(z, t)$  は、サンプルが焦点位置にある場合にビーム中心位置に誘起される位相シフトであり、次のように表すことができる。

$$\Delta\Phi_0(t) = k\Delta n_0(t)L = kn_2 I_0(t)L \quad (3.4)$$

ここで  $I_0(t)$  は焦点位置でのビーム中心の光強度である。サンプル直後の複素電場振幅は、

$$E_e(z, r, t) = E(z, r, t) \exp[i\Delta\phi(z, r, t)] \quad (3.5)$$

である。位相シフトが小さい場合、この光電場を位相シフトに関してテイラー展開することにより、種々のガウシアンビームの和として表すことができる。

$$\exp[i\Delta\phi(z, r, t)] = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(z, t)]^m}{m!} \exp\left[-\frac{2mr^2}{w^2(z)}\right] \quad (3.6)$$

このように展開した個々のガウシアンビームを独立に伝搬計算し、開口のある面で再び重ね合わせれば実際の電場振幅が得られる。サンプル入射前のビーム波面の曲率を考慮すると開口面での電場は次のように表される。

$$E_a(r, t) = E(z, r=0, t) \exp\left(-\frac{\alpha L}{2}\right) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(z, t)]^m}{m!} \frac{w_{m0}}{w_m} \exp\left[-\frac{r^2}{w_m^2} - \frac{ikr^2}{2R_m} + i\theta_m\right] \quad (3.7)$$

$d$  をサンプルから開口面までの距離とし、 $g = 1 + d/R(z)$  と定義すると各パラメーターは次のように表される。

$$w_{m0}^2 = \frac{w^2(z)}{2m+1}, \quad d_m = \frac{kw_{m0}^2}{2}, \quad w_m^2 = w_{m0}^2 \left[ g^2 + \frac{d^2}{d_m^2} \right],$$

$$R_m = d \left[ 1 - \frac{g}{g^2 + d^2/d_m^2} \right]^{-1}, \quad \theta_m = \tan^{-1} \left[ \frac{d/d_m}{g} \right].$$

さて、開口透過パワーはこの光電場  $E_a(r,t)$  を空間的に半径  $r_a$  まで積分することで得られ、

$$P_T(\Delta\Phi_0(t)) = c\epsilon_0 n_0 \pi \int_0^{r_a} |E_a(r,t)|^2 r dr \quad (3.8)$$

となる。パルスの時間プロファイルまで考えると開口透過率が次式のように得られる。

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_T(\Delta\Phi_0(t)) dt}{S \int_{-\infty}^{+\infty} P_i(t) dt} \quad (3.9)$$

ここで  $P_i(t) = \pi w_0^2 I_0(t)/2$  は入射光パワーの時間プロファイル、 $S = 1 - \exp(-2r_a^2/w_a^2)$  は線形な場合の開口透過率、 $w_a$  は線形な場合の開口面でのビーム半径である。

Sheik-Bahae らの計算[2]によると、典型的な Z スキャン信号  $T(z)$  は図 3.1 のように焦点前後で山と谷をもつ。そして誘起される位相シフト  $\Delta\Phi_0$  が十分小さいとき、 $T(z)$  の山と谷は焦点からほぼ等距離の位置 ( $z \sim \pm 0.86 z_0$ ) に現れ、山と谷の間の距離は

$$\Delta Z_{p-v} \cong 1.7 z_0 \quad (3.10)$$

となる。また、規格化した開口透過率の山と谷の差  $\Delta T_{p-v} = T_p - T_v$  に関しては、

$$\Delta T_{p-v} \cong 0.405 |\Delta\Phi_0| \quad (3.11)$$

が成り立つ。つまり、開口透過率の山と谷の差  $\Delta T_{p-v} = T_p - T_v$  を測定することにより、生じた非線形位相シフト  $\Delta\Phi_0$  が求まるのである。

以上、連続光近似での議論をパルス光の場合に拡張しよう。屈折率変化の時間平均値は、

$$\langle \Delta n_0(t) \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \Delta n_0(t) I_0(t) dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I_0(t) dt} \quad (3.12)$$

で表され、非線形位相シフトの時間平均は  $\langle \Delta\Phi_0(t) \rangle = k \langle \Delta n_0(t) \rangle L$  である。非線形応答が瞬間的である場合、時間ガウシアンパルスに対してはビーム中心かつパルス尖頭値での位相シフト  $\Delta\Phi_0$  を用いて、

$$\langle \Delta\Phi_0(t) \rangle = \Delta\Phi_0 / \sqrt{2} \quad (3.13)$$

と表される。以上のような関係式を用いることで、Z スキャン測定から非線形位相シフトあるいは非線形屈折率の評価が可能となる。

## 3.2.2 実験結果

実験系を図 3.2 に示す。光源はモードロック Ti: sapphire レーザー (797nm, 80 fs, 82 MHz) を用いた。ND フィルターによりパワーを調整したのち、レンズ (f70) を用いてビームを集光した。サンプルは $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 非線形結晶 (7x7x1 mm,  $\theta = 29 \text{ deg.}$ ,  $\phi = 90 \text{ deg.}$ ,  $d_{\text{eff}} \sim 2.0 \text{ pm/V}$ , 中国 CASIX 社製) である。タイプ I 角度位相整合 (e: o+o) を用いているため、ビームの入射角度に応じてカスケード非線形効果の符号および大きさが変化し、正負の自己収束効果が起こる。ここで注意すべきは、SHG は基本波にとってロスとなり開口透過率を低下させるが、これを純粋な自己収束効果と分離して測定せねばならないことである。そこで、2 光子共鳴近傍での非線形屈折率測定で行われる手法に習い、遠視野での開口透過率と同時に基本波の全透過率も測定した。つまりベースラインとしてのロスを測定しておき、それを差し引いて非線形屈折率の評価を行った。

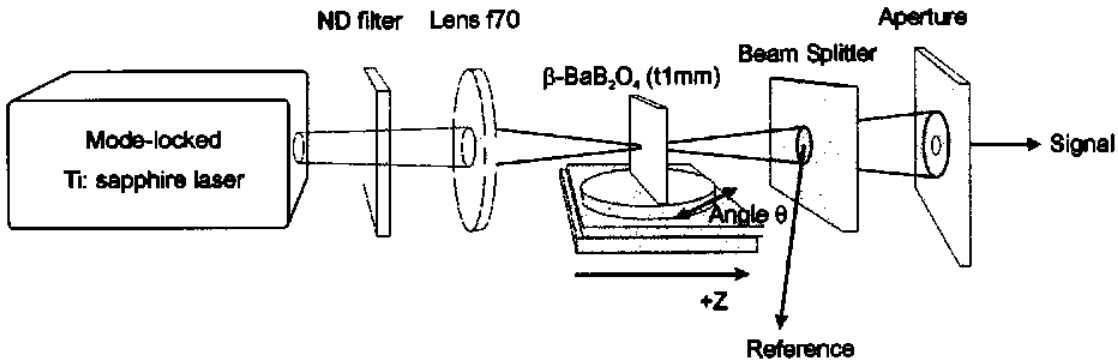


図 3.2 Z スキャン法による非線形屈折率効果の測定系

平均パワー 197 mW および 265 mW に設定し、結晶への入射角を変化させながら Z スキャン測定を行った。パルス幅 80 fs、繰り返し 82 MHz、ビームウエスト半径  $w_0 = 15.1 \mu\text{m}$  (Gaussian,  $1/e^2$  全幅  $2w_0$ ) より、ピーク強度は 5.3 および 7.2 GW/cm<sup>2</sup> である。図 3.3 にいくつかの入射角で測定した (a) 開口透過率および (b) 基本波全透過率の Z スキャントレースを示した。焦点  $z = 0$  付近では光強度が強いため、第 2 高調波への変換効率が增大している。開口透過率を基本波の全透過率で割り算することにより、SHG ロスを差し引いた開口透過率が得られる (図 3.4)。入射角度の違い、すなわち位相不整合条件の違いにより、信号の振幅や極性が変化していることがわかる。

これらの測定データから求めた基本波全透過率および位相シフトを波数不整合量  $\Delta k = k_2 - 2k_1$  に対してプロットしたものが図 3.5 (a)(b) である。ここで参考のため、BBO 結晶への入射

角と位相不整合量の関係を図 3.6(a)に、位相整合角の波長依存性を図 3.6(b)に示している。実験で直接測定される位相シフトは時間平均値  $\langle \Delta\Phi_0(t) \rangle$  であるため、図 3.5(b)には式(3.13)の關係を用いて変換したピーク位相シフトをプロットした。前章の連続光近似による数値計算結果と同様、位相整合角付近では共鳴的な非線形屈折率効果が起こることがわかる。すなわち、位相不整合量に応じて非線形屈折率効果の大きさと符号が変化する様子が観測された。ここで比較のため結合波方程式(2.9)を数値計算した結果を重ねて示した。基本波透過率に関しては実験値と計算値の間に相違が見られるが、位相シフトの振る舞いはよく一致している。基本波透過率の角度依存性に関する相違は、レンズでビームを絞っているため入射角が広がっていることに起因すると考えられる。カスケード非線形効果とともに、BBO が本来もっている真性非線形屈折率効果、すなわち光カー効果による寄与もデータには反映されている。光カー効果は、位相不整合量に依存せず光強度に比例した正の位相シフトを付加する。

以上の実験結果から、カスケード非線形効果に起因する実効的な非線形屈折率の大きさを評価した。図 3.5 (b)に示した、ピーク強度  $5.3 \text{ GW/cm}^2$  のときに得られた位相シフト

$$-0.20 \text{ rad} < \Delta\Phi < +0.25 \text{ rad}$$

から、カスケード非線形効果に起因する位相シフトは  $|\Delta\Phi^{\text{casc}}| \sim (0.25+0.20)/2 = 0.225 \text{ rad}$ 、光カー効果に起因する位相シフトは  $|\Delta\Phi^{\text{int}}| \sim (0.25-0.20)/2 = 0.025 \text{ rad}$  と評価できる。ここで文献値  $n_2^{\text{int}}(\text{BBO}) = (4.5 \pm 1) \times 10^{-16} [\text{cm}^2/\text{W}]$  [3] を用いると、カスケード非線形効果により得られた非線形屈折率の最大値は

$$|n_2^{\text{casc}}(\text{BBO})| \sim (0.225/0.025) \times n_2^{\text{int}}(\text{BBO}) = (41 \pm 9) \times 10^{-16} [\text{cm}^2/\text{W}]$$

と評価できる。

以上のように位相不整合量に応じて正負の非線形位相シフトが生じること、また光カー効果と競合しても正味で負の非線形性が得られることを示した。これはすなわち、正常分散領域でのソリトン伝搬およびソリトン圧縮の可能性を示す結果である。なお同様の測定が Hache ら[3]によりなされていることを付け加えておく。

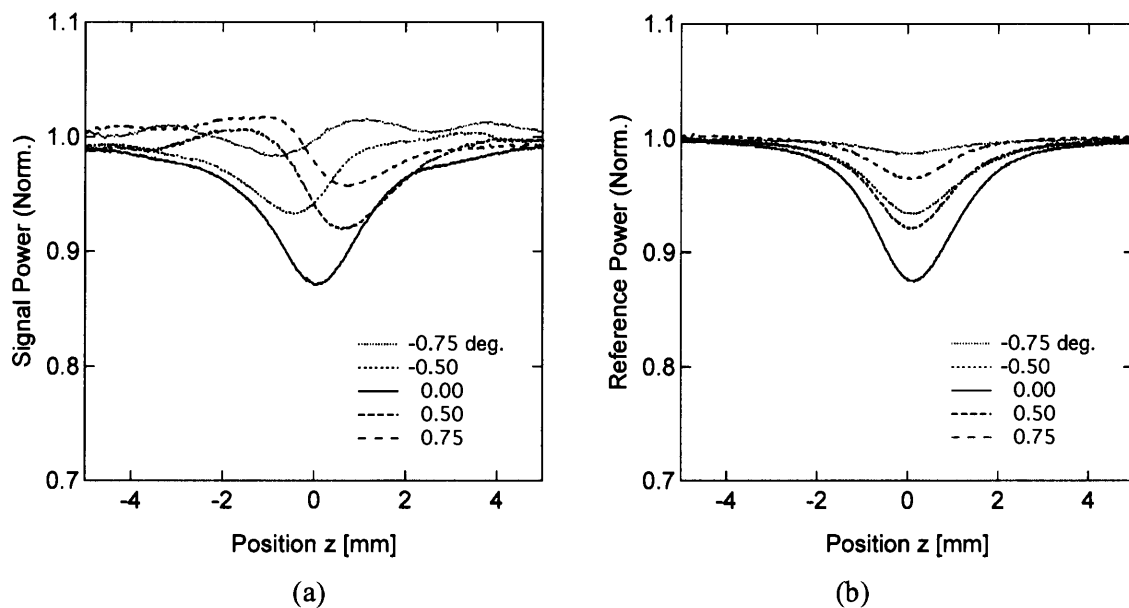


図 3.3 異なる入射角条件で測定した Z スキャントレース

(a)基本波の開口透過率 (b)基本波の全透過率

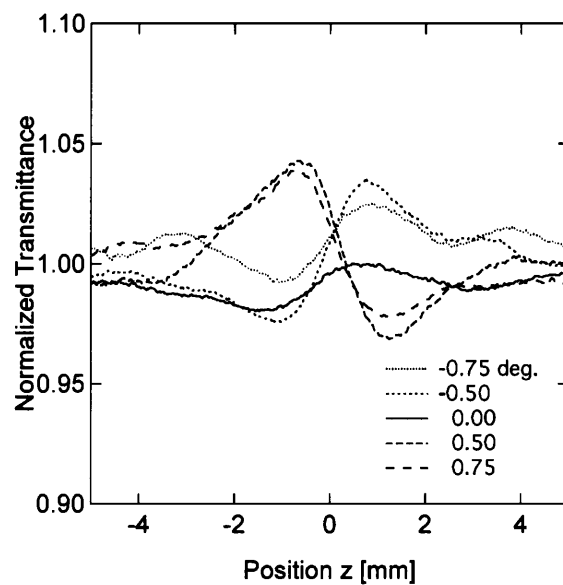
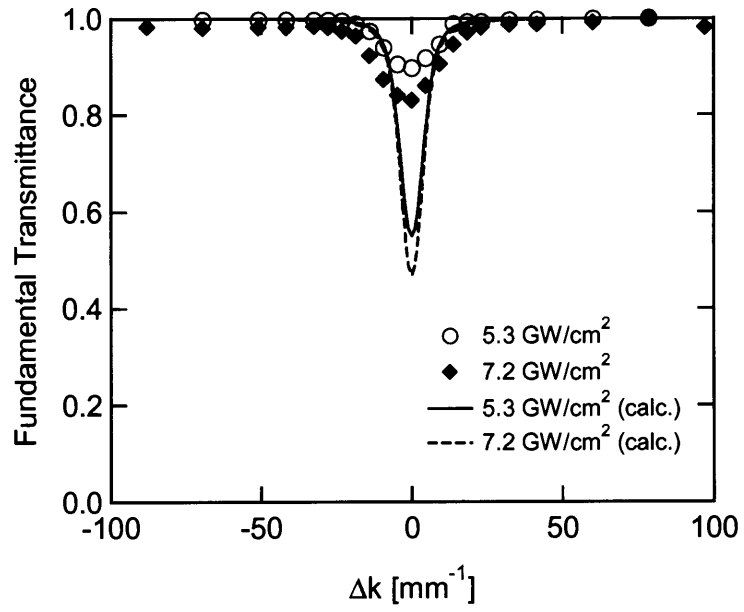
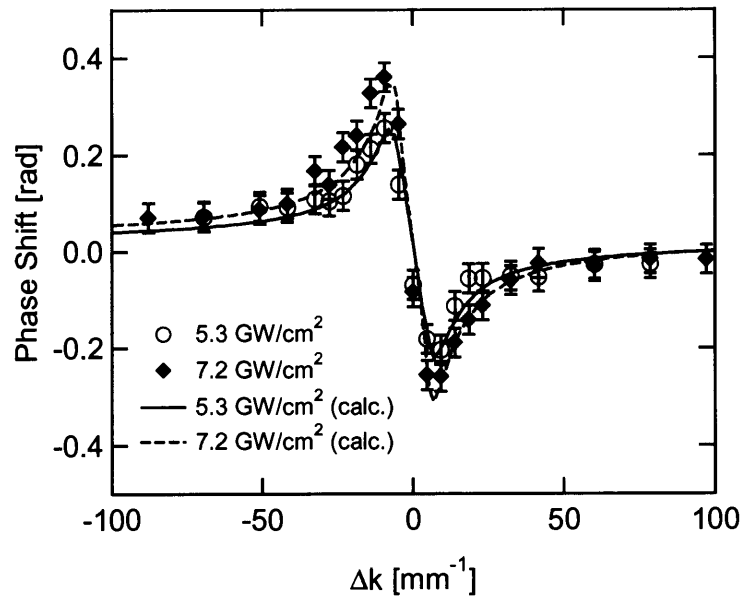


図 3.4 SHG ロスを差し引いた後の Z スキャントレース



(a)

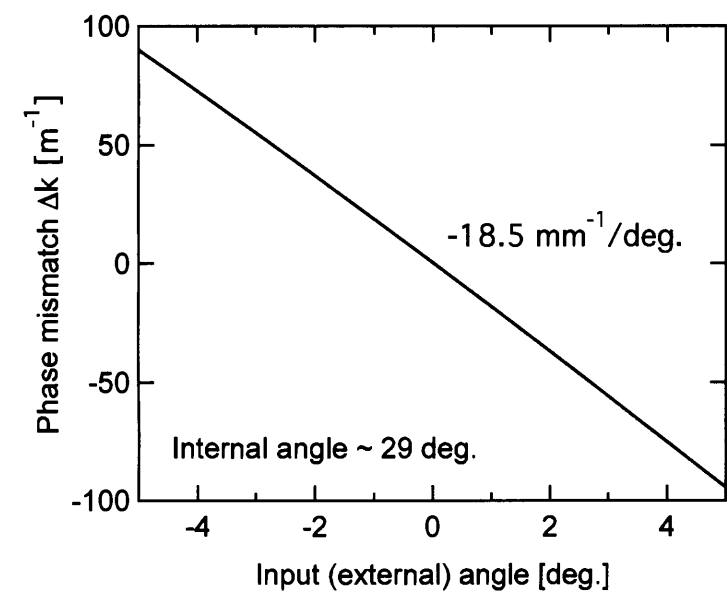


(b)

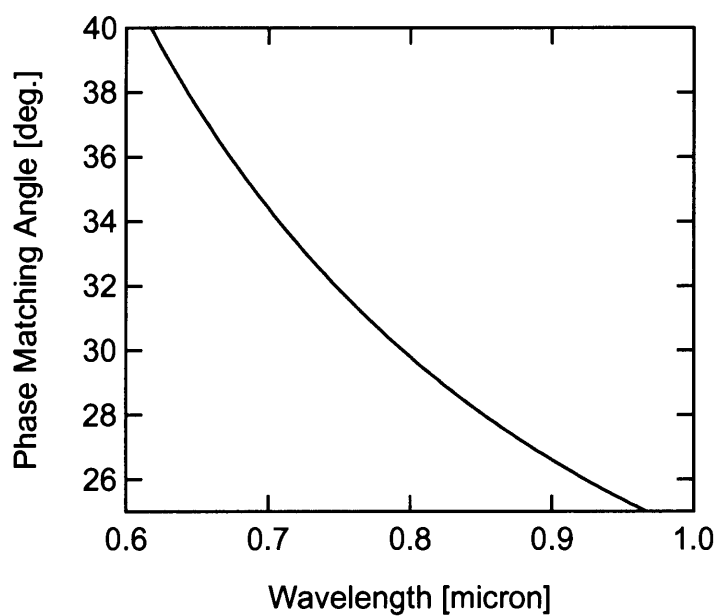
図 3.5 Z スキャン測定結果と数値計算結果

(a)基本波の透過率および (b)非線形位相シフトの $\Delta k$  依存性





(a)



(b)

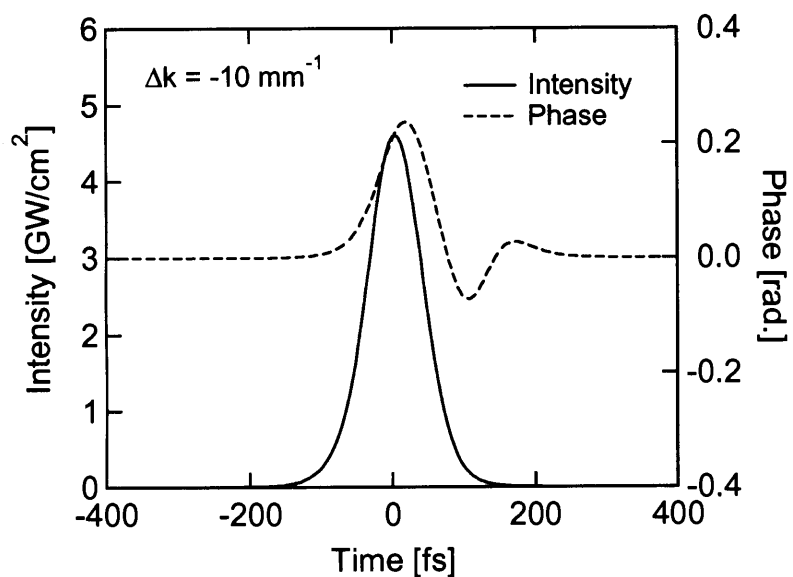
図 3.6 BBO 非線形結晶のタイプ I 位相整合配置における  
(a)波数不整合量の入射角依存性および (b)位相整合角 $\theta$ の波長依存性

### 3.2.3 群速度不整合の影響

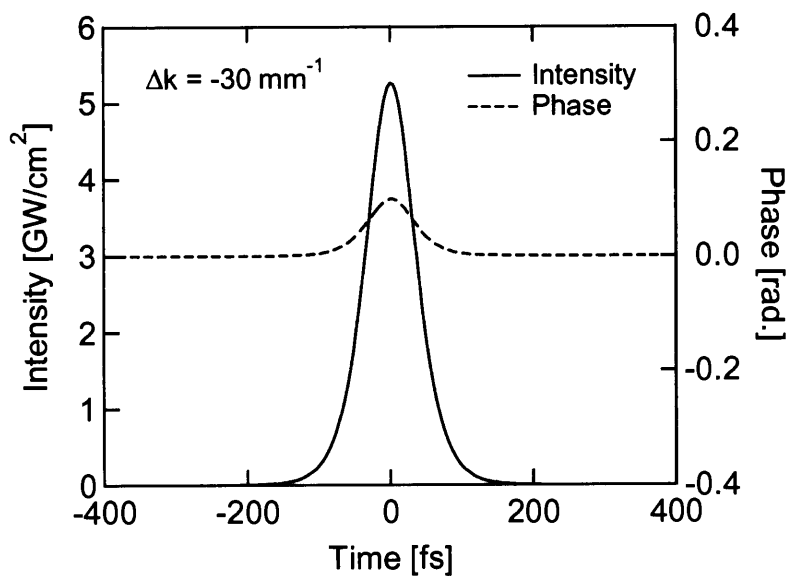
以上のように測定されたカスケード非線形効果は、ナノ秒パルスで観測されたものと比べると小さい値になっている。その原因は基本波と第2高調波の間の群速度不整合に起因する。基本波パルスおよび高調波パルスは媒質の屈折率分散から決まるそれぞれの群速度で伝搬するため、一般にはパルス同士が時間的にウォークオフする。SHG 変換効率が低い場合、位相不整合によってエネルギーの逆変換が起こる周期はコヒーレンス長の2倍、すなわち  $2L_c = 2\pi/\Delta k$  で与えられる。これに対し、パルス同士がパルス幅だけ時間的にウォークオフする距離は  $L_{GVM} = cT_{FWHM}/|n_{1g}-n_{2g}|$  と表される。ここで、 $n_{1g}$ ,  $n_{2g}$  は基本波および高調波の群屈折率である。基本波波長 800 nm、パルス幅 120 fs の場合、BBO 結晶中での時間ウォークオフ長は  $L_{GVM} \sim 0.6$  mm である。一度発生した高調波パルスが基本波パルスに逆変換する前に時間ウォークオフが起きますと、基本波に付加される非線形位相シフトの大きさが低減されるだけでなく、その時間プロファイルも大きく歪んでしまう[4]。

この群速度不整合の影響を数値計算で調べてみよう。パルス幅 80 fs、ピーク強度  $5.3 \text{ GW/cm}^2$ 、BBO 結晶長 1 mm、 $\Delta k = -10$  および  $-30 \text{ mm}^{-1}$  の各場合について透過基本波の時間強度・位相波形を図 3.7(a)および(b)に示した。これよりわかるとおり、大きな位相不整合量条件下ではほぼ強度波形に一致した時間位相が生成されることがわかる。一方、位相不整合量が小さい場合、すなわちコヒーレンス長が時間ウォークオフ長と同程度またはそれ以下の場合、非線形位相シフトは大きいものの、その時間波形は強度に対して時間遅れした形となる。時間遅れした非線形位相シフトはパルスに非線形チャープを誘起するため、パルス圧縮性能を低下させる。そのため、次節以降に示すとおり、効率的なパルス圧縮のためには比較的大きな位相不整合条件を用いる必要がある。

次に、いくつかのパルス幅について計算した、基本波透過率および位相シフトの  $\Delta k$  依存性を図 3.8(a)(b)に示す。計算条件はピーク強度  $5.3 \text{ GW/cm}^2$ 、BBO 結晶長 1 mm とした。パルス幅が短くなると SHG 変換効率の  $\Delta k$  依存性は鈍くなり、位相整合条件での SHG 変換効率が低下する。また、パルス幅が短いほど群速度不整合の影響を強く受け、位相整合条件付近で発生する位相シフトが低減することがわかる。



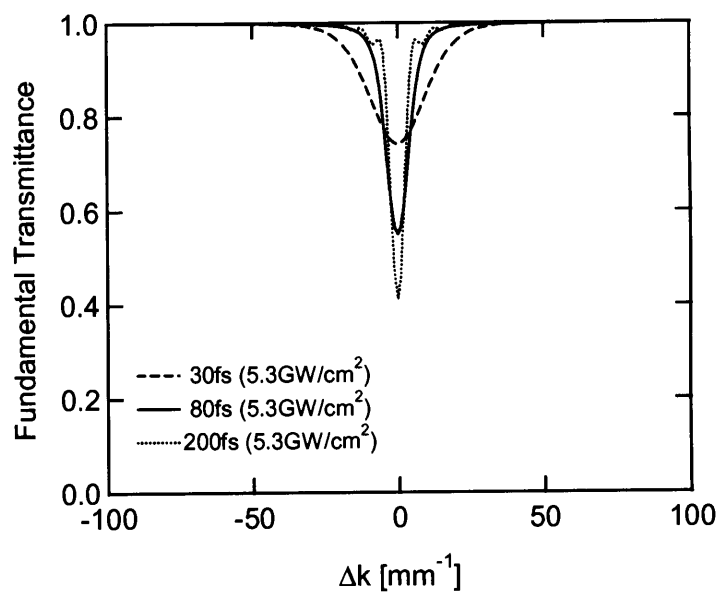
(a)



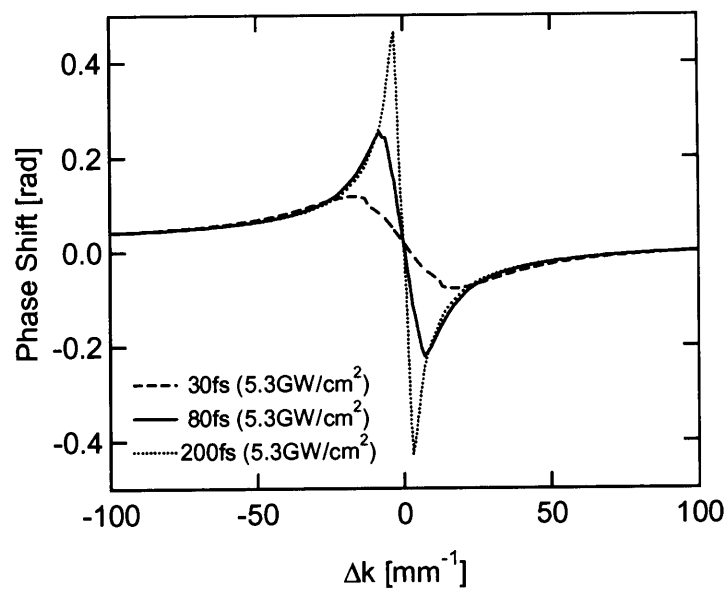
(b)

図 3.7 透過基本波の時間強度および位相波形の数値計算結果

(a)  $\Delta k = -10 \text{ mm}^{-1}$  (b)  $\Delta k = -30 \text{ mm}^{-1}$



(a)



(b)

図 3.8 パルス幅 30 fs, 80 fs, 200 fs の場合の数値計算結果  
(a)基本波の透過率 および (b)非線形位相シフトの $\Delta k$  依存性

### 3.3 理論解析 1：ソリトン伝搬

本節では数値計算により BBO 結晶中でのソリトン伝搬特性を明らかにする。計算に用いた結合波方程式(2.9)を再掲する。

$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} = i\xi_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} - i\rho_1 A_1^* A_2 \exp(-i\Delta k z) - i\sigma_1 (|A_1|^2 A_1 + 2|A_2|^2 A_1), \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = -i\zeta \frac{\partial A_2}{\partial \eta} + i\xi_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial \eta^2} - \frac{1}{2}i\rho_2 A_1^2 \exp(+i\Delta k z) - i\sigma_2 (|A_2|^2 A_2 + 2|A_1|^2 A_2), \end{cases}$$

where,

$$\tilde{E}_j(z, t) \equiv \frac{1}{2} \{ A_j(z, t) \exp[i(\omega_j t - k_j z)] + c.c. \}, \quad (3.14)$$

$$\Delta k = k_2 - 2k_1, \quad \eta = t - \frac{z}{v_1} = t - \dot{k}_1 z,$$

$$\xi_1 = \frac{1}{2} \ddot{k}_1, \quad \xi_2 = \frac{\dot{k}_2^2 - \dot{k}_1^2 + k_2 \ddot{k}_2}{2k_2}, \quad \zeta = \dot{k}_2 - \dot{k}_1, \quad \rho_i = \frac{\omega_i d_{\text{eff}}}{cn_i}, \quad \sigma_i = \frac{3\omega_i \chi^{(3)}}{8cn_i}.$$

計算には文献値  $d_{\text{eff}} = 2.0 \text{ pm/V}$ [5]および  $\chi^{(3)} = 5 \times 10^{-22} \text{ m}^2/\text{V}^2$ [3]を用いた。屈折率、群速度、群速度分散などは文献[6]のセルマイヤー方程式から求めた。

前章で示した通り、大きな位相不整合条件の極限 ( $\Delta k L \gg 1$ ) では、この結合波方程式は非線形シュレディンガー方程式

$$i \frac{\partial A_1}{\partial z} + \xi_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} + \left( \frac{\rho_1 \rho_2}{2\Delta k} - \sigma_1 \right) |A_1|^2 A_1 = 0. \quad (3.15)$$

に簡略化することができる。BBO 結晶では、波長 800nm における群速度分散は正常分散 ( $\ddot{k}_1 > 0$ ) であるため、明るいソリトンは  $\Delta k < 0$  において存在する。式(2.48)に示したとおり、 $N$  次ソリトン解の条件は次式で表される。

$$N^2 = \left( \frac{\rho_1 \rho_2}{2\Delta k} - \sigma_1 \right) \frac{P_0 T_0^2}{|\ddot{k}_1|} \quad (3.16)$$

図 3.9 に式(3.16)から導いた基本ソリトン ( $N=1$ ) の閾値ピーク強度を示す。 $\Delta k$  が小さいほど非線形性が大きいので小さな強度しか必要としない。また、パルス幅が短いほど分散の影響を受けやすいため、大きな強度が必要である。ただし非線形シュレディンガー方程式(3.15)を導出する過程で、 $\Delta k L \gg 1$  を仮定したことに注意する必要がある。位相整合付近 ( $\Delta k \sim 0$ ) では式(3.16)による解析は成り立たなくなる。

次に基本ソリトン条件で入射した光パルスの伝搬を調べよう。現実的な結晶長で議論するため、入射パルスを半値全幅 40 fs の  $\text{sech}^2$  パルスとする。また、群速度不整合の問題に抵触しない  $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$  とした。まず、入射ピーク強度が閾値ピーク強度より十分小さい場合 ( $I_p < I_c$ )、図 3.10 (a, b) のように 50 mm 伝搬後、群速度分散により 40 fs から約 220 fs へとパルス幅が広がる。これに対し、ソリトン条件 ( $I_p \sim I_c$ ) で入射すると図 3.10 (c, d) に示すように半値全幅 40 fs のパルスがほぼ同じパルス幅で伝搬する。この計算における時間軸は基本波パルスの群速度で移動しているが、ソリトン伝搬をしている場合パルスの中心位置が時間的に少しずつシフトしていることがわかる。これは、基本波・高調波が互いにトラップしながらそれぞれのエネルギー比と群速度によって決まる実効的な群速度で伝搬するソリトン状態にあることを示している。これが前章で触れた “Walking soliton” である。今の場合、少ないが存在する第 2 高調波成分の群速度に引きずられて実効的な群速度は基本波のそれよりも遅い値になっているのである。

以上のように、比較的群速度不整合が大きい場合にも、大きな位相不整合量条件を選んでコヒーレンス長を短くすればソリトン伝搬が可能であることがわかる。

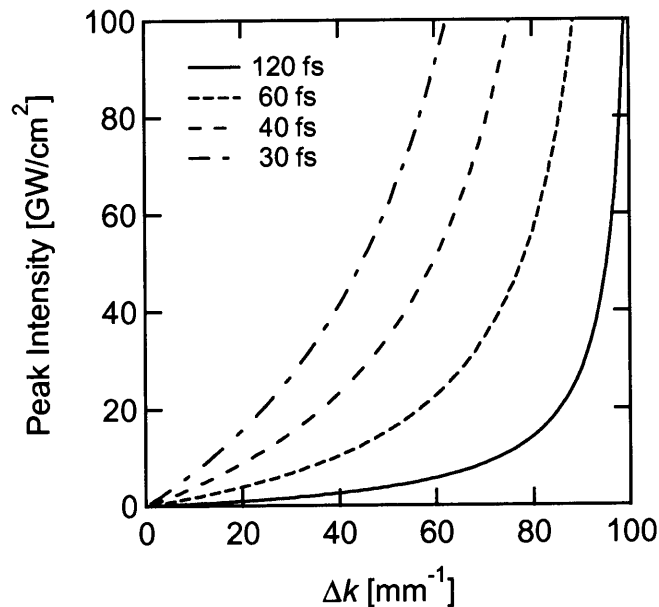


図 3.9 BBO 結晶における基本ソリトンの閾値ピーク強度

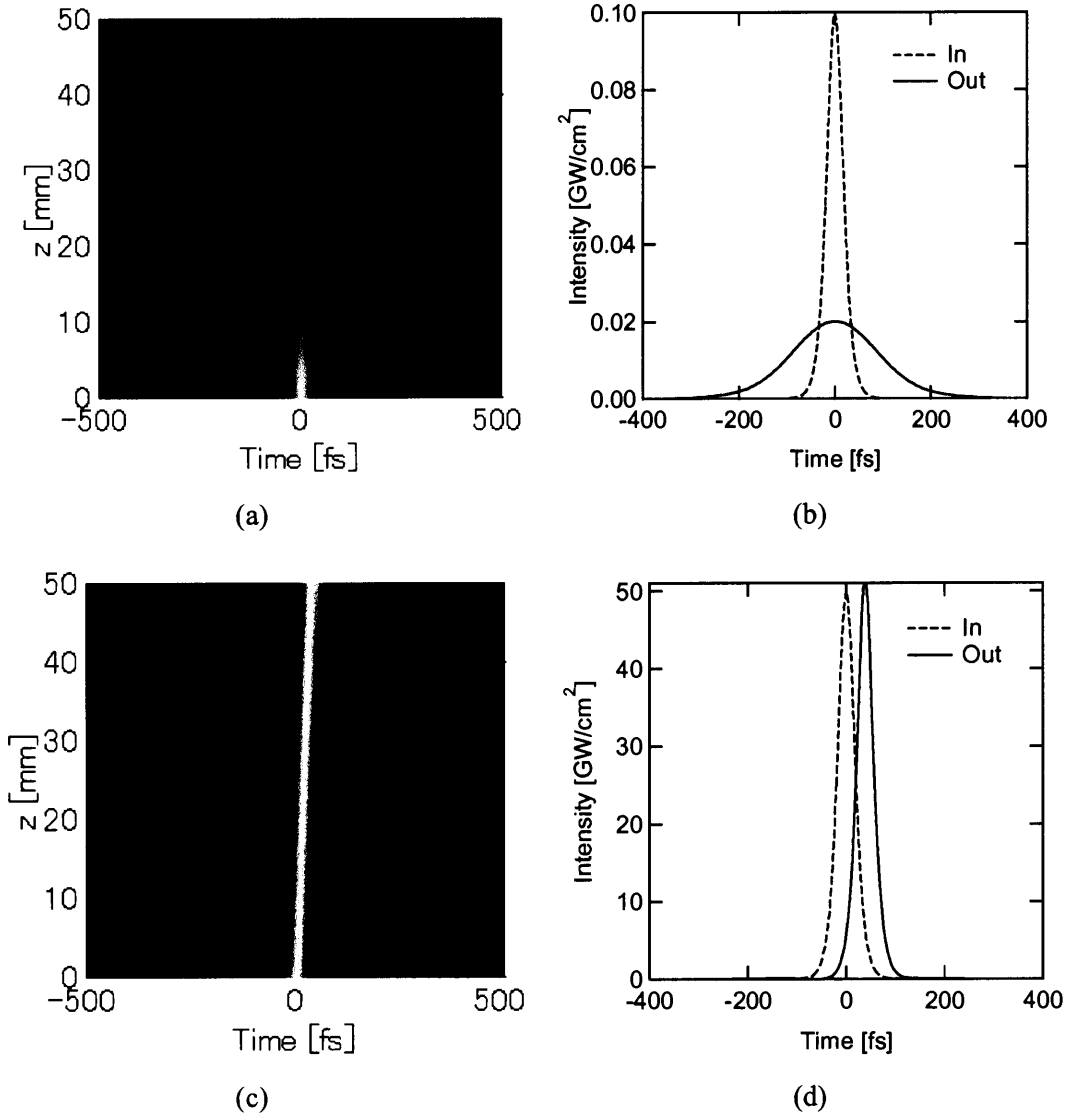


図 3.10 BBO 結晶中での基本波の伝搬：分散拡がりとソリトン伝搬

- (a) 時間強度波形の伝搬距離依存性 ( $I_p < I_c$ ) (b) 時間強度波形の変化 ( $I_p < I_c$ )  
 (c) 時間強度波形の伝搬距離依存性 ( $I_p \sim I_c$ ) (d) 時間強度波形の変化 ( $I_p \sim I_c$ )

次に、1.3 次ソリトン条件で入射した場合（ピーク強度  $15 \text{ GW/cm}^2$ 、 $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$ ）の時間強度変化を図 3.11 (a,b)に示す。またこのときのパルス幅およびピーク強度をそれぞれ図 3.11 (c,d)に示す。ファイバーソリトンと同様、伝搬長に応じてパルス幅とピーク強度が振動を示すが、完全な周期性はもたない。しかし初期の段階でパルス幅が圧縮される過程は非常に類似しており、カスケード非線形伝搬においてもファイバー中と同様に高次ソリトンパルス圧縮が可能であることを示唆している。

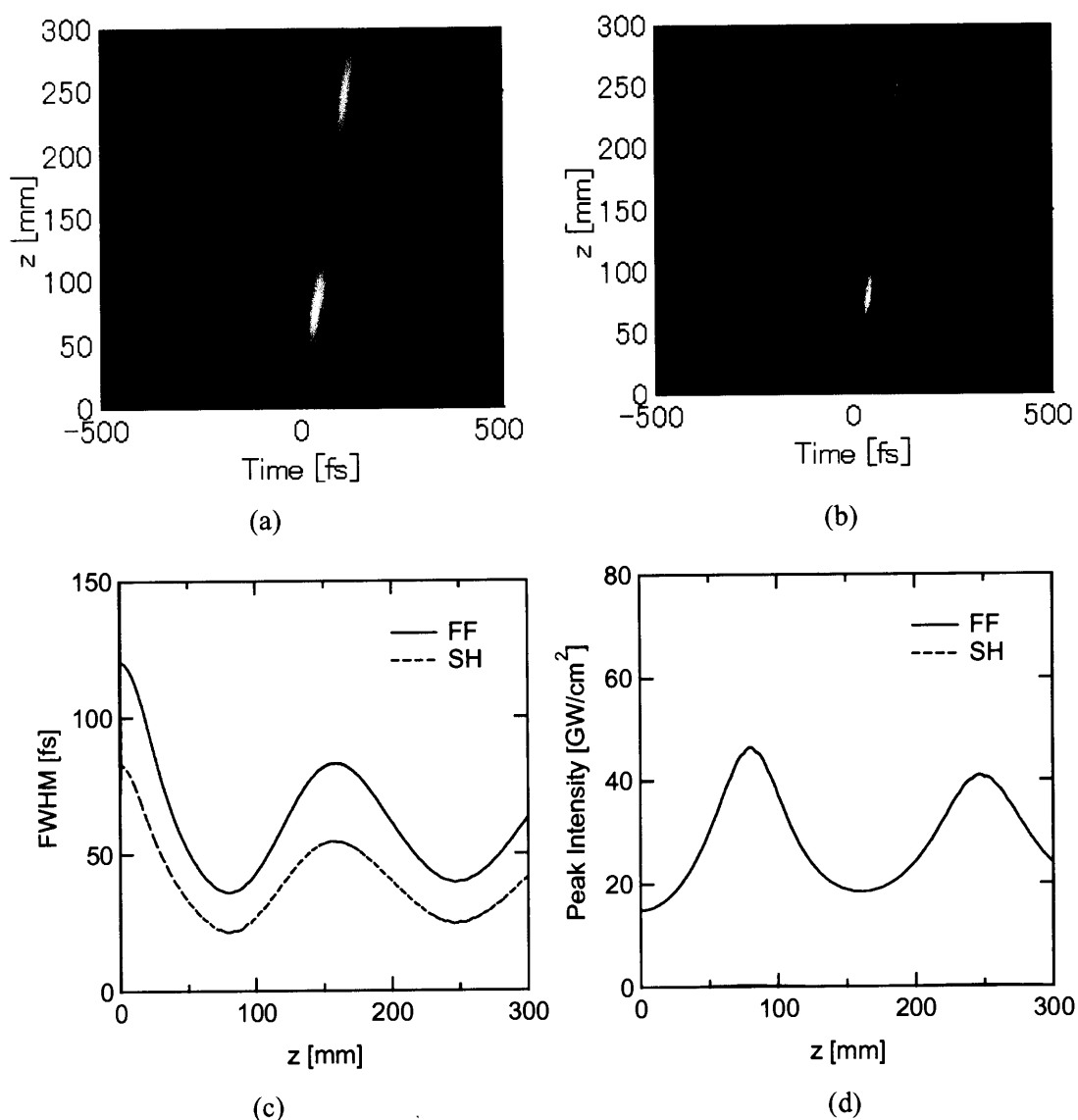


図 3.11 1.3 次ソリトン条件での各種パラメーターの伝搬長依存性

(a)基本波の時間強度波形 (b)第2高調波の時間強度波形

(c)パルス半値全幅 (d)ピーク強度



### 3.4 理論解析 2：ソリトン圧縮

大きな位相不整合条件下 ( $|\Delta k| \gg 1$ ) での基本波の高次ソリトンのパルス圧縮は、カスケード非線形効果による位相シフトと非線形媒質自身の正常分散とのバランスにより起こる。前章で導出したように、 $|\Delta k| \gg 1$  のとき連続光に誘起される非線形位相シフト  $\Delta\Phi$  の近似式は次のとおりである。

$$\Delta\Phi \approx -\frac{\Gamma^2 L^2}{\Delta k L}, \quad \text{where} \quad \Gamma = \frac{\omega d_{\text{eff}} |A_0|}{c \sqrt{n_1 n_2}}. \quad (3.17)$$

式(3.17)は位相シフトが光強度  $I_0$ 、波数不整合量  $\Delta k$ 、伝搬長  $L$  に依存することを示している。これから、パルス圧縮性能もこれらのパラメーターに依存することが容易に予測できる。フェムト秒領域ではさらに、基本波・高調波間の群速度不整合や BBO 結晶の光カー効果が無視できなくなる。

これらの影響まで含めてソリトン圧縮の諸特性を明らかにするため、BBO 結晶中のパルス伝搬の数値計算を行った。入射パルスは  $\text{sech}^2$  強度分布で中心波長 800 nm、パルス半値全幅 120 fs とした。図 3.12 はパルス圧縮された基本波の (a)時間強度・位相および (b)スペクトル強度・位相である。ここで、計算条件は  $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$ ,  $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$ ,  $L = 30 \text{ mm}$  である。入射パルスの時間およびスペクトル強度は破線で示した。基本波パルスは 120 fs から 25 fs に圧縮され、またその時間波形は非対称かつある程度のペデスタルをもつことがわかる。スペクトル強度も非対称になり、複数のピークをもつ形で約 4 倍に広がっていることがわかる。

次に種々の ( $I_0, \Delta k, L$ ) 条件における圧縮パルス幅を検証してみよう。図 3.13 (a) は圧縮パルス幅の  $\Delta k$  依存性を伝搬長  $L = 15 \text{ mm}$  と  $30 \text{ mm}$ 、ピーク強度  $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$  の条件で計算した結果である。 $\Delta k \sim 30\text{--}60 \text{ mm}^{-1}$  のとき約 3～5 倍のパルス圧縮が可能であることがわかる。また、最適な  $\Delta k$  の値は伝搬長を増加させると大きな値へとシフトする。図 3.13 (b) は  $\Delta k = 40 \text{ mm}^{-1}$  におけるピーク強度依存性を示したものである。伝搬長  $L = 15 \text{ mm}$  のとき、光強度の増大とともに圧縮比は増大し、ピーク強度  $40\text{--}50 \text{ GW/cm}^2$  では飽和の傾向が見られる。一方、 $L = 30 \text{ mm}$  のときは光強度の増大とともに圧縮比は急激に増加し、ピーク強度  $20\text{--}30 \text{ GW/cm}^2$  あたりで最短パルス 25 fs を発生する。そしてまたパルス幅は広がっていく。

ここで結晶のもつ光カー効果の影響を調べるため、これを除いて数値計算を行った。 $L = 15 \text{ mm}$  について計算を行った例を図 3.13 (a)(b) に点線で示した。これより、光カー効果はカスケード非線形を打ち消すように働いていることが明白である。

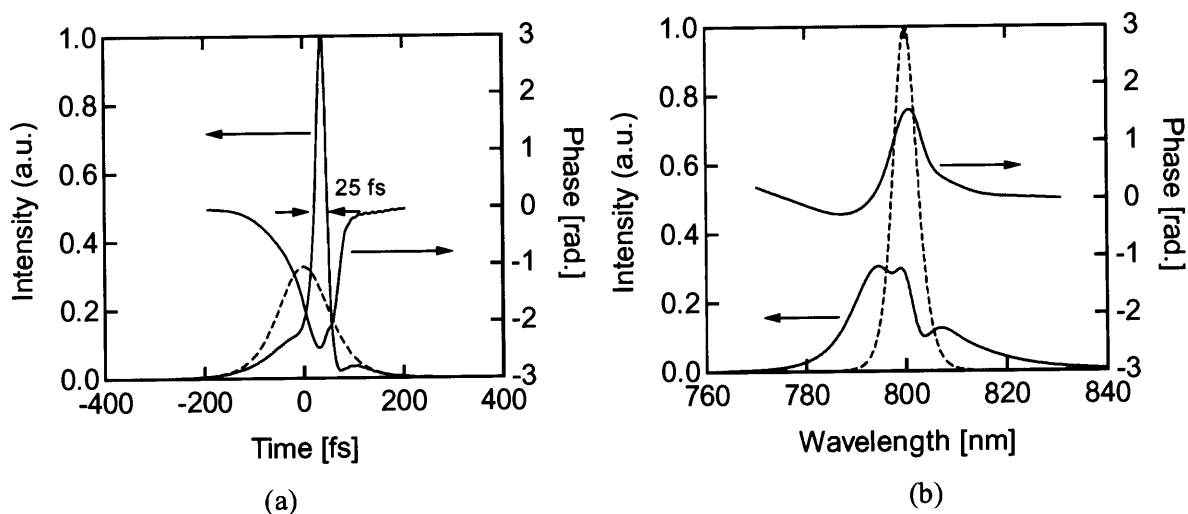


図 3.12 計算結果：透過基本波パルスの (a)時間強度と位相および (b)スペクトル強度と位相  
破線は入射パルスの時間およびスペクトル強度を示す。計算条件は  $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$ 、 $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$ 、 $L = 30 \text{ mm}$  とした。

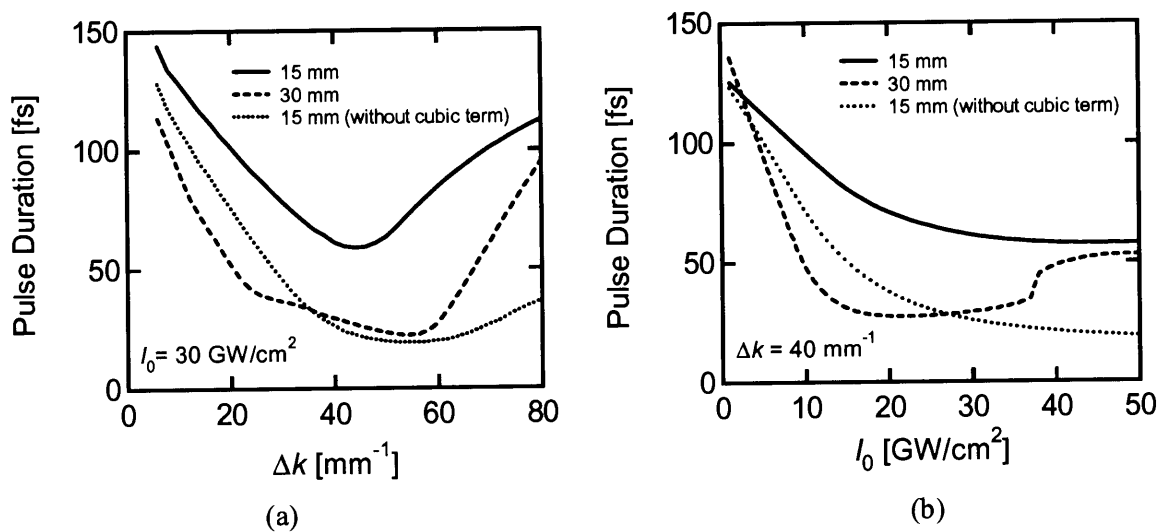


図 3.13 計算結果：透過基本波のパルス半値全幅

(a)  $\Delta k$  依存性 ( $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$ ) (b)  $I_0$  依存性 ( $\Delta k = 40 \text{ mm}^{-1}$ )

図には伝搬長 15mm および 30mm の場合の計算結果をそれぞれ実線および破線にて示した。  
また 3 次の非線形項に起因する影響を調べるため、これを除いた場合の計算結果を  $L = 15 \text{ mm}$  に対してのみ点線にて示した。

次に、圧縮パルスのパルス品質を考察しよう。パルスの性能因子  $Q_c$  を、「圧縮パルスの中心ピーク部分に含まれるエネルギーの、入射パルスエネルギーに対する比」として定義する。具体的に  $Q_c$  は、圧縮パルスの中心部分にフィッティングした  $\text{sech}^2$  型パルスのエネルギーから算出した。この  $Q_c$  の  $\Delta k$  依存性を図 3.14 に示す。計算条件は図 3.13(a)と同じであり、 $L = 15$  mm および 30 mm の計算結果をそれぞれ実線および破線で示した。伝搬長  $L = 30$  mm の場合、性能因子  $Q_c$  は  $\Delta k > 40 \text{ mm}^{-1}$  の範囲で  $\Delta k$  とともに増加する。図 3.13(a)で示したとおり、 $20 \text{ mm}^{-1} < \Delta k < 60 \text{ mm}^{-1}$  の範囲では  $\Delta k$  の増加に伴ってパルス圧縮比が向上することと合わせて考えると、 $50 \text{ mm}^{-1} < \Delta k < 60 \text{ mm}^{-1}$  の範囲でパルス圧縮比と性能因子が比較的良好に両立することがわかる。

ここで圧縮パルス品質を低下させる要因として、主に2つ挙げられる。1つ目は、高次ソリトンの性質に起因するペデスタルである。ファイバー高次ソリトン圧縮器では、ソリトン次数が上がるにつれてパルス圧縮比も向上するがそれと同時にペデスタルが増大する。2つ目は、群速度不整合に起因する時間強度波形の非対称性である。群速度不整合の影響は位相整合条件に近いほど大きく、これにより時間強度および位相プロファイルが大きく乱され、圧縮パルスの時間強度波形は非対称になる。 $40 \text{ mm}^{-1} < \Delta k < 60 \text{ mm}^{-1}$  の範囲でパルス圧縮比とパルス品質とのトレードオフの関係が破れているのは、この群速度不整合の効果である。

以上の数値計算結果より、 $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$ ,  $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$ ,  $L = 30 \text{ mm}$  の条件では圧縮比  $> 4$  かつ性能因子  $\sim 0.7$  のパルス圧縮が可能であることが示された。これらの数値計算を通じて、SHG 変換効率は 5%以下であった。すなわち基本波にとってはほとんどロスのないパルス圧縮システムであることがわかる。

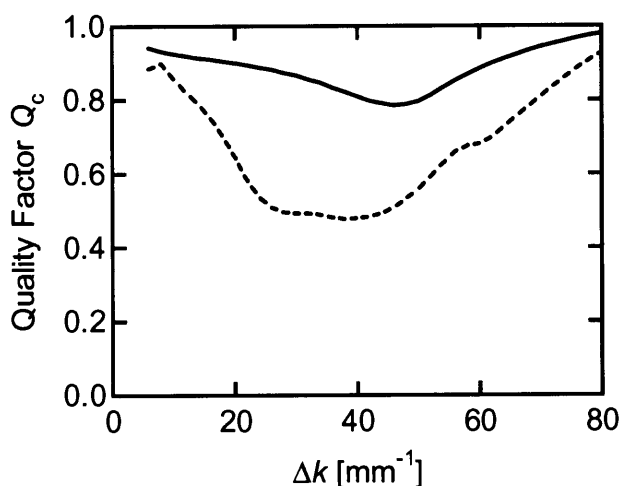


図 3.14 光強度  $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$  における圧縮パルス性能因子の  $\Delta k$  依存性  
(実線 :  $L = 15 \text{ mm}$ , 破線 :  $L = 30 \text{ mm}$ )

### 3.5 ソリトン圧縮実験

BBO 非線形結晶を用いたソリトン圧縮の実験系を図 3.15 に示す。直線偏光、パルス幅 120 fs、中心波長 800 nm、繰り返し 1 kHz の Ti: sapphire 再生増幅パルス（図 3.16）を光源として用いた。タイプ I 位相整合角でカットされたそれぞれ 15, 10, 7 mm の長さの BBO 結晶を用いた。テレスコープ系によりビーム径を 6 mm から 3 mm に変換してコリメートしたのち、入射角度を調整して BBO 結晶に入射した。ND フィルターを用いて入射ピーク強度を BBO のダメージ閾値以下の  $5 \sim 50 \text{ GW/cm}^2$  の範囲で変化させた。透過光のスペクトルはシリコンフォトダイオードマルチチャンネル分光器を用いて測定し、パルス特性評価には SHG-FROG 法を用いた。0.1mm 厚の BBO 結晶（タイプ I）を用いて測定した FROG データを補間・補外により光学遅延とスペクトルに対する  $128 \times 128$  データポイントに変換しなおし、自作した FROG 解析ソフトにて時間強度・位相を再構築した。FROG 法の詳細は付録 B にまとめた。

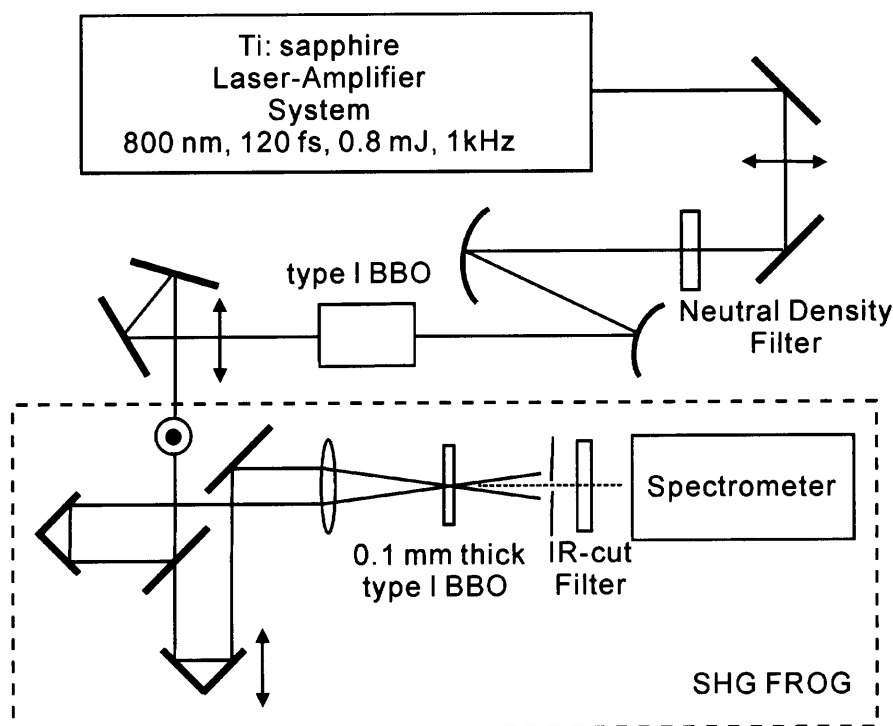


図 3.15 ソリトン圧縮および FROG 測定系

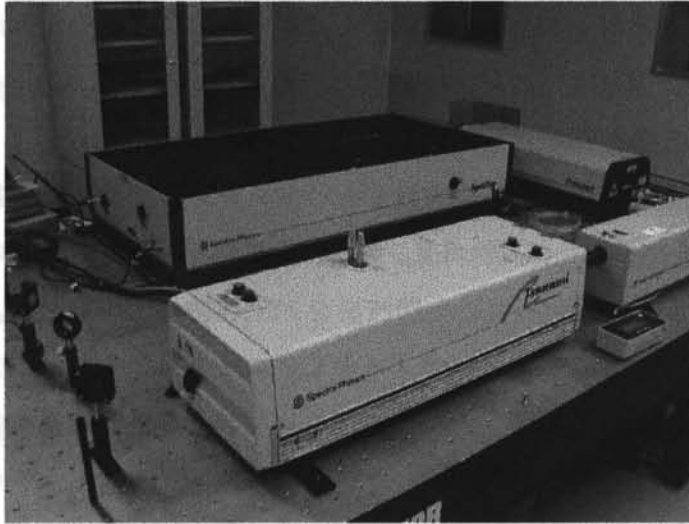


図 3.16 Ti:sapphire フェムト秒再生増幅システム

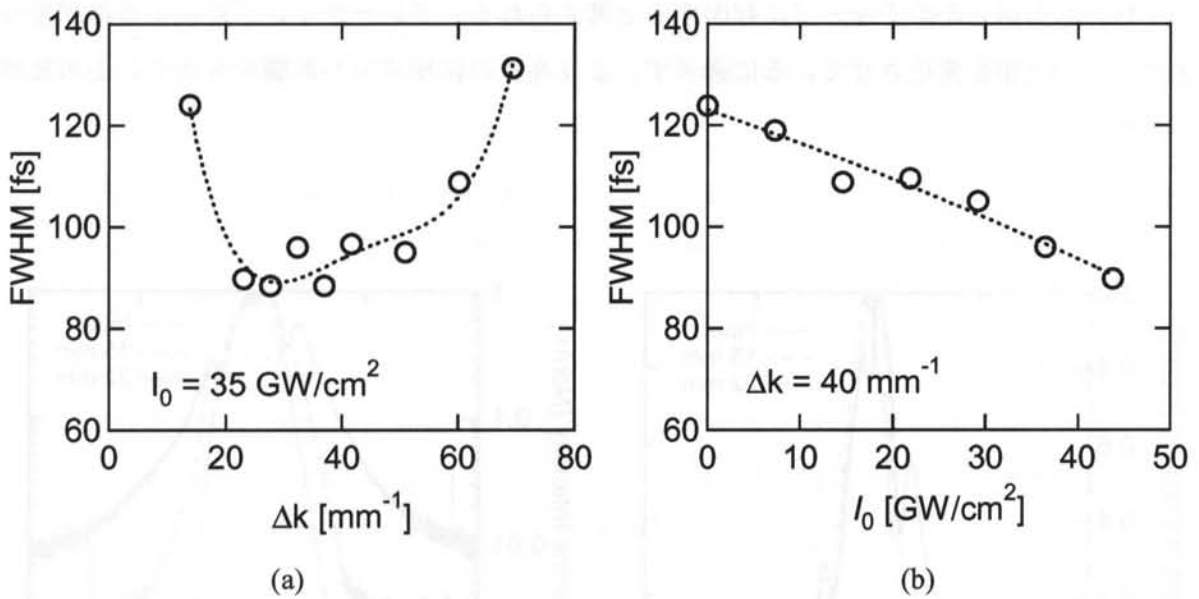


図 3.17 長さ 15mm の結晶を用いた実験結果

(a) 透過基本波パルス幅の  $\Delta k$  依存性 ( $I_0 = 35 \text{ GW/cm}^2$ )

(b) 透過基本波パルス幅の  $I_0$  依存性 ( $\Delta k = 40 \text{ mm}^{-1}$ )

まず長さ 15 mm の結晶を用い、パルス圧縮性能の $\Delta k$  および  $I_0$  依存性を調べた。図 3.17 (a) に圧縮パルス幅の $\Delta k$  依存性を示した。 $\Delta k \sim 20\text{--}50\text{ mm}^{-1}$  の範囲で明確な圧縮が観測された。同様に、位相整合条件を $\Delta k = 40\text{ mm}^{-1}$  に固定してピーク強度  $I_0$  を変えながら測定した結果を図 3.17 (b) に示す。測定範囲  $I_0 \sim 0\text{--}50\text{ GW/cm}^2$  では圧縮比はピーク強度とともに増大する。これらの結果は前に示した数値計算結果と定性的には一致する。

次に、より長い相互作用長での圧縮実験を行った。3つの結晶を順に並べることでトータル 32 mm の伝搬長を確保した。入射角度、すなわち波数不整合量を全ての結晶で同じくなるよう同時に調整しながら透過パルスの時間波形を FROG 法にて測定した。なお、このようなソリトンのパルス圧縮を行う場合、そのダイナミクスは入射光のチャープに影響される。そこで実験では、透過パルスのスペクトルをモニタしながら再生増幅器内のグレーティング対で入射チャープを微調した。やや負チャープが存在するとき、スペクトルが対称によく広がることを確認した。そして入射パルス幅 135 fs、 $\Delta k = 60\text{ mm}^{-1}$ 、 $I_0 = 50\text{ GW/cm}^2$  のとき最も効率的にパルス圧縮されることを見出した。図 3.18 に入射光と 15 mm 伝搬後また 32 mm 伝搬後のスペクトルを示す。数値計算でみたように、非対称な形でスペクトル幅が約 3 倍に広がっている。スペクトルの形が数値計算結果と異なる原因は定かではないが、おそらく再生増幅パルスのもつ何らかのチャープに起因すると考えられる。グレーティング対による微調整は主に 2 次の位相を変化させているに過ぎず、より高次の位相成分が影響を与えている可能性がある。

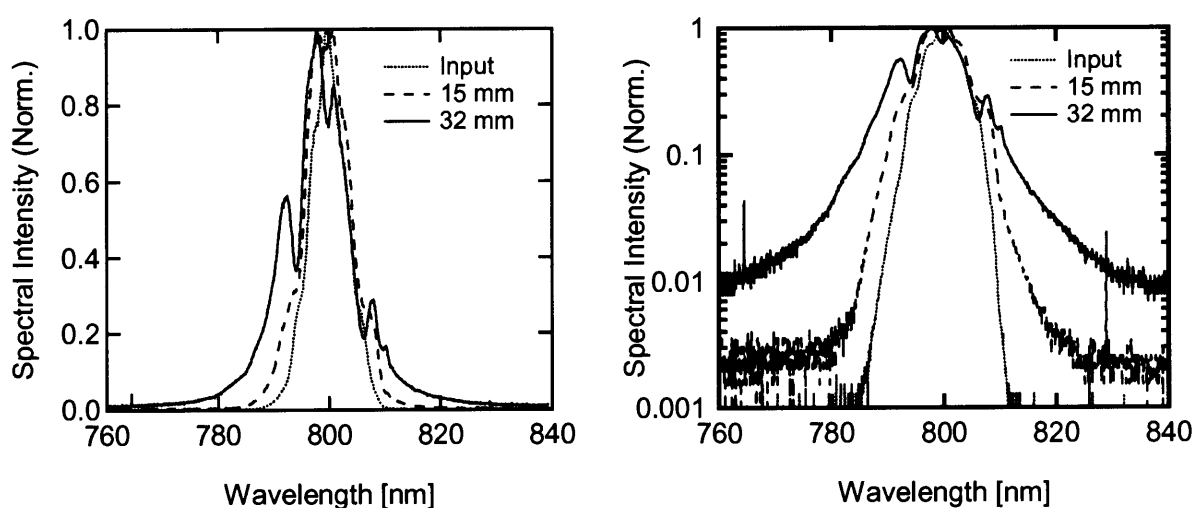


図 3.18 入射光、15 mm 伝搬後および 32 mm 伝搬後の基本波スペクトル強度

(左 : linear-scale、右 : log-scale)

さて、同様に各伝搬長における基本波パルスの時間波形の測定結果を図 3.19 に示す。測定した FROG トレースを図 3.19(a-c)に、再構築された時間強度・位相を図 3.19(d-f)に示した。入射パルスはパルス幅 135 fs でやや負チャープをもっている。(b)の FROG トレースは光カー媒質中で自己位相変調を受けたパルスのそれと非常に似た形をしている。長さ 15mm の伝搬後はパルス幅が 85 fs に圧縮されている。そして 32mm では圧縮比 3 倍の約 45 fs にまで圧縮された。このパルス幅は、スペクトル強度から予測されるフーリエ限界パルス (約 40fs) とほぼ一致する。このときのパルス性能因子  $Q_c$  は 0.86 であった。パルス幅の伝搬長依存性を改めて図 3.20 に示す。負チャープをもつ 135 fs パルスの  $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$ 、 $I_0 = 30 \text{ GW/cm}^2$  条件下での伝搬を数値計算した結果も破線で示した。このように、最終的な圧縮パルス幅は少し異なるものの、理論的な予測と定性的には一致する特性で基本波のソリトン圧縮が達成されている。

以上のように、各種パラメーターを最適化することで高い性能因子 $\sim 0.86$ で約 3 倍のソリトンパルス圧縮に成功した。そして、ソリトン圧縮性能の  $(\Delta k, I_0, L)$  依存性や非対称な時間およびスペクトル強度波形などを理論・実験両面から明らかにした。ただし、実験で最終的に得られたパルス幅は理論予測とも異なるため、さらなる圧縮性能向上という課題が残った。理論と実験が一致しない要因として、結晶端面でのフレネルロスによるパルスエネルギーの低下が挙げられる。また、負の非線形性に起因する空間的デフォーカス効果も、伝搬にともなった光強度の低下を引き起こしていると考えられる。

本実験では BBO 結晶の非線形性と群速度分散を利用したソリトン圧縮の有用性を十分示せた。さらなる高性能化を狙うには結晶に無反射コートを施す、非線形効果による空間的デフォーカスを補償するようビームを収束条件で入射させる、また複数の結晶の位相不整合条件を少しずつ変えて最適化するなどの工夫が必要であろう。このパルス圧縮システムにおいて、エネルギーロスには SHG、2 光子吸収、そしてフレネルロスがある。本実験ではフレネルロスが 12%で、SHG や 2 光子吸収によるものは合わせて 5%程度であった。無反射コートを施せばエネルギー利用効率も 95%という高い数値になるであろう。

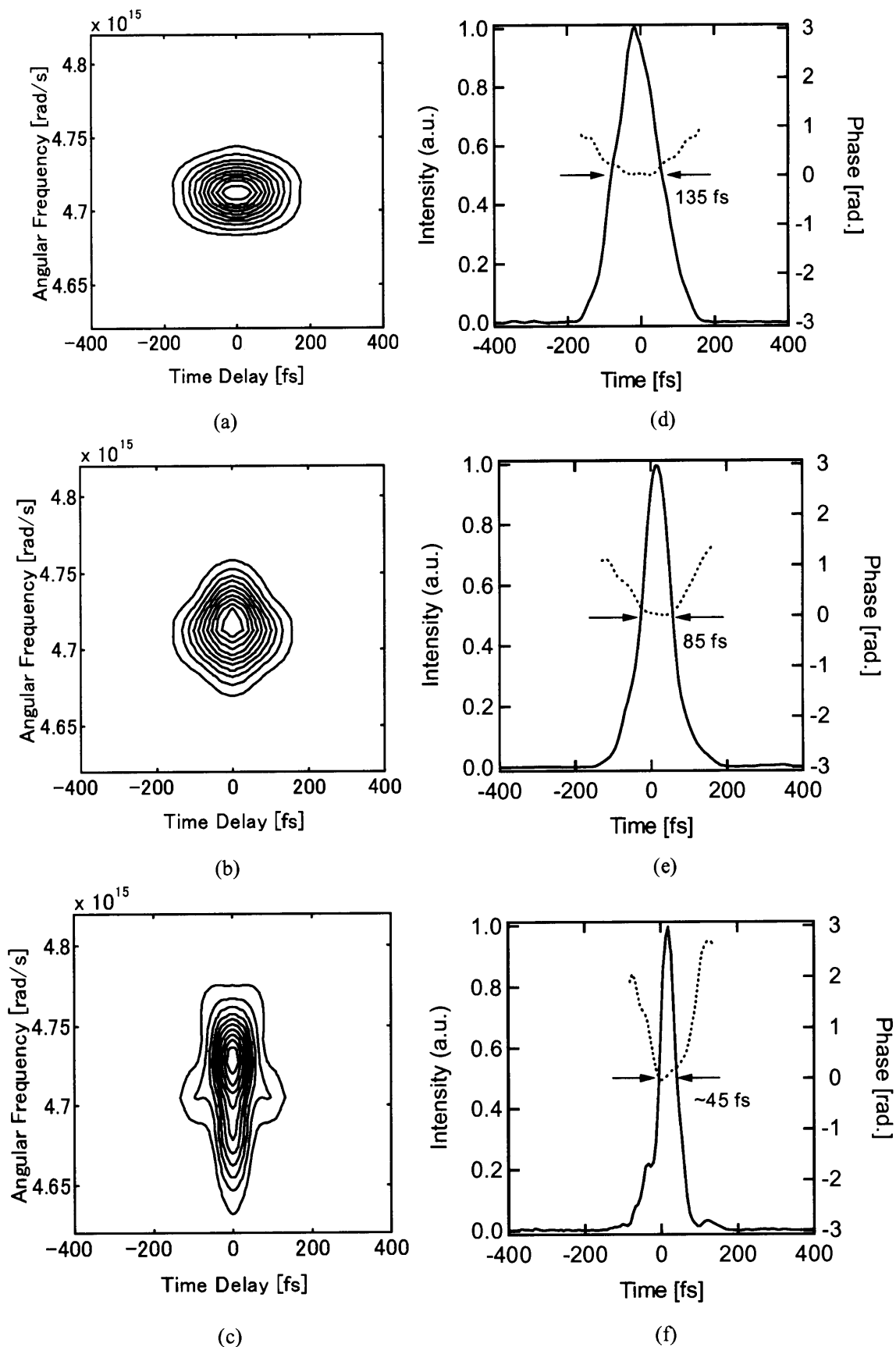


図 3.19 FROG トレースと再構築パルス (a) (d) 入射パルス (b) (e) 15 mm (c) (f) 32 mm



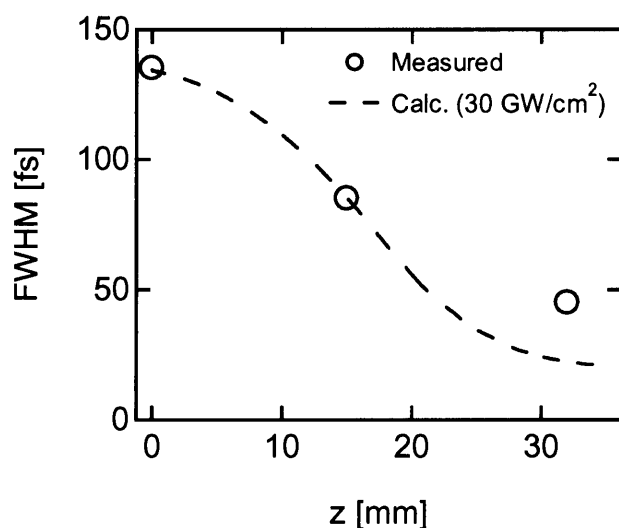


図 3.20 基本波パルス半値全幅の伝搬長依存性 ( $\Delta k = 60 \text{ mm}^{-1}$ 、 $I_0 = 50 \text{ GW/cm}^2$ )

### 3.6 まとめ

#### 実効的非線形屈折率の測定

BBO 非線形結晶を用いてモードロック Ti: sapphire レーザーのフェムト秒パルスにおけるカスケード非線形効果を測定した。その結果、カスケード非線形効果に起因する実効的非線形屈折率を次のように決定した。

$$|n_2^{\text{casc}}(\text{BBO})| \sim (41 \pm 9) \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$$

#### ソリトン伝搬および圧縮の数値解析

時間ソリトン伝搬条件を解析的に導き、数値計算により検証した。適切な入射光強度ではパルス波形が伝搬に際して変化しない基本ソリトン伝搬を確認した。またこのとき群速度不一致が存在するため、基本波および高調波が互いにトラップし合いながら実効的な群速度で伝搬する Walking Soliton として振舞うことを示した。また、具体的にソリトン圧縮実験の指針を得るため、光パルス伝搬の光強度・位相不整合量・伝搬長依存性を系統的に評価した。理論計算では長さ 32 mm 程度の伝搬長で最短約 25 fs への圧縮が可能であることを示した。

#### ソリトン圧縮実験および FROG 法による圧縮パルスの評価

長さ 32mm の BBO 非線形結晶を用い、カスケード非線形効果による負の非線形位相シフトと正常分散とのバランスによる光ソリトン効果で 135 fs から 45fs への約 3 分の 1 のパルス圧縮を実現した。これは極めてシンプルかつエネルギー利用効率が高い (>80%) パルス圧縮システムであるという大きな利点を有する。また、SHG-FROG の測定系および解析ソフトを自作し、圧縮パルス波形の振幅・位相測定を行った。

## 参考文献

- [1] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, and E. W. Van Stryland, "High-sensitivity, single-beam  $n_2$  measurements," Opt. Lett. **14**, pp. 955-957 (1989).
- [2] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam," IEEE J. Quant. Electron. **26**, pp.760-769 (1990).
- [3] F. Hache, A. Zeboulon, G. Gallot, and G. M. Gale, "Cascaded second-order effects in the femtosecond regime in  $\beta$ -barium borate: self-compression in a visible femtosecond optical parametric oscillator," Opt. Lett. **14** pp.1556-1558 (1995).
- [4] O. Albert and J. Etchepare, "Femtosecond temporal behavior measurement of Kerr-like cascaded second-order non-linearities," Opt. Commun. **154**, pp.345-349 (1998).
- [5] I. Shoji, H. Nakamura, K. Ohdaira, T. Kondo, R. Ito, T. Okamoto, K. Tatsuki, and S. Kubota, "Absolute measurement of second-order nonlinear-optical coefficients of  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> for visible to ultraviolet second-harmonic wavelengths," J. Opt. Soc. Am B **16** pp.620-624 (1999).
- [6] E. Eimerl, L. Davis, S. Velsko, E. K. Graham, and A. Zalkin, "Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate," J. Appl. Phys. **62** pp.1968-1983 (1987).

## 第4章

# 周期分極反転 $\text{LiTaO}_3$ を用いた カスケード非線形効果の測定

### 4.1 はじめに

前章では、本研究の第一ステップとして行った BBO 結晶のタイプ I 角度位相整合配置におけるカスケード非線形効果の測定と、それを用いたソリトン圧縮についてまとめた。本研究の次なるステップとして、カスケード非線形光学素子の高機能化を目指し擬似位相整合素子の利用へと展開した。強誘電体分極反転素子は一般に、

- ・非線形光学定数および性能指数が大きい ( $d \sim 10 - 30 \text{ pm/V}$ )
- ・分極反転構造の設計如何により任意の動作波長に対して擬似位相整合が可能

という特徴をもつ。式(2.22)に示した通り、カスケード非線形効果による実効的非線形屈折率はいわゆる SHG の性能指数  $d^2/n^3$  に比例するため、上記第一点はカスケード非線形光学素子として利用する際にもメリットとなる。また第二点は、分極反転構造の設計如何により任意の位相不整合量  $\Delta kL$  を与えることができる、と言い換えることができる。さらに究極的にはその位相不整合量  $\Delta kL$  を空間的に不均一に分布するよう設計することも可能である。第2章で示した通り、カスケード非線形効果の大きさや符号を決定する重要な因子は  $\Delta k$  であるため、第2点もやはりカスケード非線形光学素子の高機能化のために有用な特徴である。

QPM 素子を利用したフェムト秒領域の様々な応用を検討するにあたっては、まず QPM 素

子におけるフェムト秒カスケード非線形効果を評価することが必須である。特にフェムト秒領域では、3.2 節で述べたように基本波・高調波間の群速度不整合の影響が無視できなくなる。しかしこれまで QPM 素子におけるフェムト秒カスケード非線形効果に関する報告例は無かった。そこで本研究では、周期分極反転 LiTaO<sub>3</sub> 素子 (Periodically-poled lithium tantalate: PPLT) を作製し、それを用いてカスケード非線形効果を測定した。その成果を本章でまとめる。

最も広く普及しているフェムト秒光源である Ti: sapphire レーザーで動作する素子として PPLT を選択した。QPM 素子材料としては LiNbO<sub>3</sub> (LN), LiTaO<sub>3</sub> (LT), KNbO<sub>3</sub>, KTiOPO<sub>4</sub> などが成熟しつつあるが、この中で LT を選択した理由は以下の 3 点である。

- ・大きな非線形光学定数 :  $d_{33}=15.1$  pm/V [1]
- ・深い紫外吸収端 ~ 280 nm
- ・高いフォトリフレクティブ耐性

PPLT は、紫外域での透明性から特に青～紫外域への波長変換素子として有望視され、短周期分極反転構造の作製が盛んに研究されてきた[2]。カスケード非線形効果を発現させる際にも第 2 高調波は発生しているため、青色 SHG 素子の場合と同じく短波長域での透明性が重要である。

本章で用いた PPLT 素子は、QPM 周期が 3.1  $\mu$ m と非常に細かい。そのような短周期分極反転素子の作製は決して容易ではないが、本研究ではリソグラフィ技術と電界印加法により良好な素子を作製できた。カスケード非線形光学効果の測定には周波数分解 2 光波混合法 (Spectrally resolved two-beam coupling: SRTBC) [3] と呼ばれる方法を用いた。これによりカスケード非線形効果の大きさおよびその位相不整合量依存性を評価し、同時に LT 自体がもつ真性非線形屈折率効果 (光カー効果) の大きさとその異方性も測定した。

本来 PPLT を用いたソリトン圧縮器の実現を狙っていたのであるが、結論から言うとその実現には至らなかった。その原因は、第 3 章で指摘した群速度不整合の影響に加え、比較的大きな LT の光カー効果が負のカスケード非線形効果と競合することであった。これまでに 2 次非線形媒質の光カー効果やその異方性に関する報告がいくつかなされてきた[4-6]が、LT に関しては報告がなく本研究によって初めて明らかになったことである。この光カー効果は、カスケード非線形効果だけでなくフェムト秒波長変換器[7]の動作にも影響を与えるため、そのような素子設計のために必要となる重要な物質定数である。

## 4.2 周波数分解 2 光波混合法

強誘電体の周期分極反転素子の厚みは抗電界により制限を受け、一般には 0.5 mm 以下である。本研究で作製した PPLT 素子の有効開口径も 0.3 mm と狭いため、ビームの蹴られの問題から Z スキャン法の適用は困難であった。そこで、本章では非線形屈折率効果測定のために SRTBC 法を用いた。SRTBC 法も Z スキャン法と同様、非線形屈折率や非線形吸収率を測定する方法である。以下に測定原理を述べる。

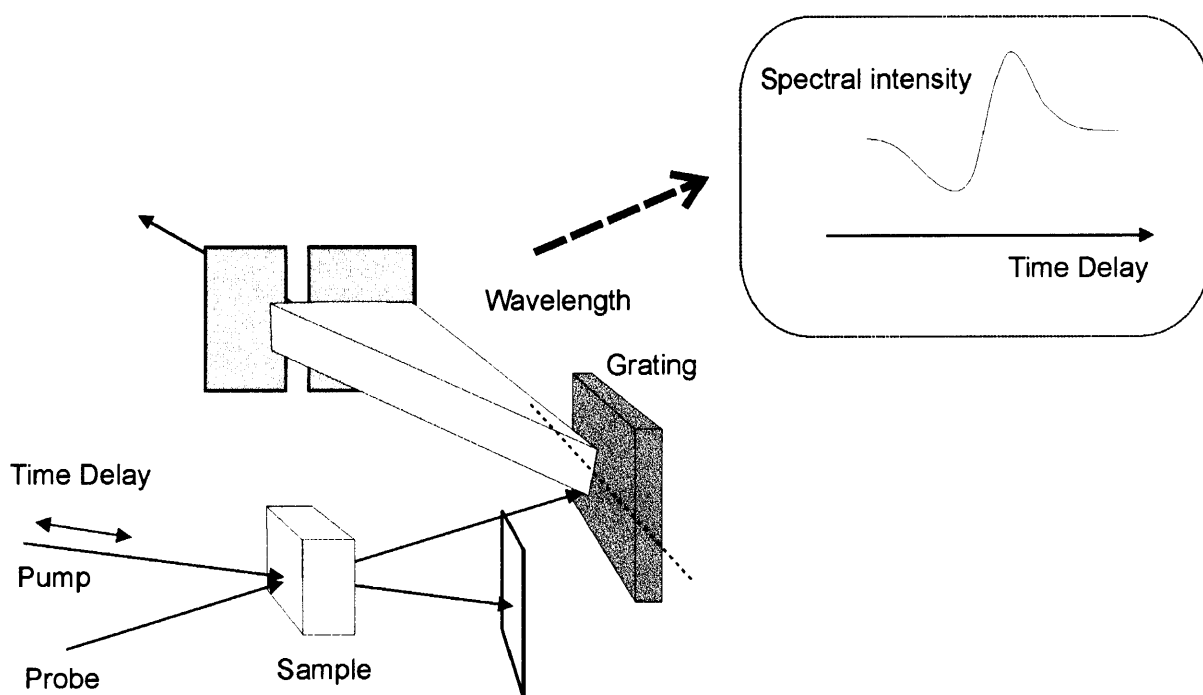


図 4.1 SRTBC 測定の概略図

図 4.1 に示すように通常のポンプ・プローブ法のセットアップにおいて、透過プローブ光のあるスペクトル成分の強度を測定する。非線形屈折率あるいは非線形吸収が存在するとき、強度の大きなポンプパルスはプローブパルスに位相変調あるいは振幅変調を及ぼす。この位相・振幅変調はプローブ光のスペクトルに変化を与える。例えば、ポンプおよびプローブパルスの時間差がゼロのとき、プローブパルスのスペクトルは通常の自己位相変調効果と同じく、中心から対称に広がる。これに対し、パルス同士の時間遅延がゼロでないとき、スペクトルの中心波長がシフトする。つまり、時間遅延をスキャンしながら透過プローブ光のあるスペクトル強度を測定すると、図 4.1 に示したような時間遅延に依存する強度変化が得られるのである。この SRTBC 信号の解析方法を以下にまとめる。

簡単のため、非線形屈折率効果のみが存在し、その応答は瞬間的であると仮定する。ポンプ光、プローブ光の複素電場包絡関数を  $A_{pu}, A_{pr}$  とすると、

$$\frac{\partial A_{pu}}{\partial z} = \frac{i\omega}{c} n_{NL} A_{pu}, \quad n_{NL} = n_2 I_{pu} \quad (4.1)$$

と書ける。ここで、

$$I_{pu}(z, t) = \frac{n_0}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |A_{pu}(z, t)|^2 = I_{pu}(0, t) \quad (4.2)$$

である。式(4.1)より、非線形位相シフト  $\Phi_{NL}(z, t)$  が十分小さい場合

$$\begin{aligned} A_{pu}(z, t) &= A_{pu}(0, t) \exp \left[ i \frac{\omega}{c} n_2 I_{pu}(0, t) z \right] \\ &\equiv A_{pu}(0, t) \exp [i \Phi_{NL}(z, t)] \equiv A_{pu}(0, t) [1 + i \Phi_{NL}(z, t)] \end{aligned} \quad (4.3)$$

と書ける。ガウシアンパルスを仮定する、すなわち  $A_{pu}(0, t) = A_{pu}^0 \exp(-t^2/2)$  とすると、

$$\Phi_{NL}(z, t) = \frac{\omega}{c} n_2 z \left( \frac{n_0}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |A_{pu}^0|^2 \right) \exp(-t^2) \quad (4.4)$$

より、

$$A_{pu}(z, t) = A_{pu}^0 \exp(-t^2/2) [1 + i \varphi_0 \exp(-t^2)], \quad \varphi_0 = \frac{\omega}{c} n_2 \left( \frac{n_0}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} |A_{pu}^0|^2 \right) z \quad (4.5)$$

となる。プローブ光に関しても同様に、

$$\frac{\partial A_{pr}}{\partial z} = 2i \frac{\omega}{c} n_2 I_{pu}(0, t) A_{pr} \quad (4.6)$$

より、 $A_{pr}(z, t) = A_{pr}(0, t) \exp[2i \Phi_{NL}(z, t)] \equiv A_{pr}(0, t) [1 + 2i \Phi_{NL}]$  と書ける。

ここで  $A_{pr}(0, t) = A_{pr}^0 e^{-(t-\tau)^2/2}$  とおくと、

$$\begin{aligned} A_{pr}(z, t) &= A_{pr}^0 e^{-(t-\tau)^2/2} (1 + 2i \varphi_0 e^{-t^2}) \\ &= A_{pr}^0 \left[ e^{-(t-\tau)^2/2} + 2i \varphi_0 e^{-(3t^2 + \tau^2 - 2t\tau)/2} \right] \\ &= A_{pr}^0 \left[ e^{-(t-\tau)^2/2} + 2i \varphi_0 e^{-\tau^2/3} e^{-3(t-\tau/3)^2/2} \right] \end{aligned} \quad (4.7)$$

となる。これをフーリエ変換すると、

$$A_{pr}(z, \omega) = A_{pr}^0 \left[ \sqrt{2\pi} e^{-\frac{\omega^2}{2}} e^{i\omega\tau} + 2i \varphi_0 e^{-\frac{\tau^2}{3}} \sqrt{\frac{2\pi}{3}} e^{-\frac{\omega^2}{6}} e^{\frac{i\omega\tau}{3}} \right] \quad (4.8)$$

が得られる。スペクトル強度を計算すると、

$$\begin{aligned}
 S(\omega) &= |A_{pr}(z, \omega)|^2 \\
 &= |A_{pr}^0|^2 \left\{ 2\pi e^{-\omega^2} + \frac{4\pi}{\sqrt{3}} e^{-\frac{2\omega^2}{3}} e^{-\frac{\tau^2}{3}} \left( e^{-i\frac{2\omega\tau}{3}} i\varphi_0 - e^{i\frac{2\omega\tau}{3}} i\varphi_0 \right) + \vartheta(\varphi_0^2) \right\} \quad (4.9) \\
 &\cong |A_{pr}^0|^2 2\pi e^{-\omega^2} \left\{ 1 + \frac{4}{\sqrt{3}} e^{\frac{\omega^2}{3}} e^{-\frac{\tau^2}{3}} \varphi_0 \sin\left(\frac{2\omega\tau}{3}\right) \right\}
 \end{aligned}$$

となる。これを用いて周波数 $\omega$ 成分のスペクトル強度変化を計算すると、

$$\frac{\Delta T}{T}(\omega, \tau) = \frac{S(\omega) - S(\omega)_{no \text{ pump}}}{S(\omega)_{no \text{ pump}}} = \frac{4}{\sqrt{3}} e^{\frac{\omega^2}{3}} e^{-\frac{\tau^2}{3}} \Phi_{NL} \sin\left(\frac{2\omega\tau}{3}\right) \quad (4.10)$$

$$\text{where } \Phi_{NL} = \frac{\omega}{c} n_2 I_{pu}^0 z$$

が得られる。

以上の導出を非線形吸収まで含めて行うことで時間遅延に依存した信号の式が得られる。光電場の時間プロファイルを  $A(t) \sim \exp(-t^2/t_0^2)$  のように仮定すると、プローブ光の中心周波数から  $\delta = \omega - \omega_0$  だけ離れた周波数成分の時間遅延  $\tau$  での透過率は次式で与えられる[3]。

$$\frac{\Delta T}{T}(\tau, \delta) = \frac{2}{\sqrt{3}} \exp(\delta^2 t_0^2 / 6) \exp(-2\tau^2 / 3t_0^2) \times [2\Delta\Phi \sin(2\delta\tau/3) - q \cos(2\delta\tau/3)] \quad (4.11)$$

ここで  $\Delta\Phi = (2\pi/\lambda)n_2 I_{pu} L$  は非線形位相シフト、 $q = \beta I_{pu} L$  は2光子吸収のパラメーター、 $L$  は相互作用長である。ある周波数成分 $\delta$ に関して実験で得られる典型的な時間依存信号は図4.2のようになるが、これを  $n_2$  と  $\beta$  をパラメーターとして式(4.11)によりフィッティングすることで非線形屈折率と2光子吸収係数を求めるのである。

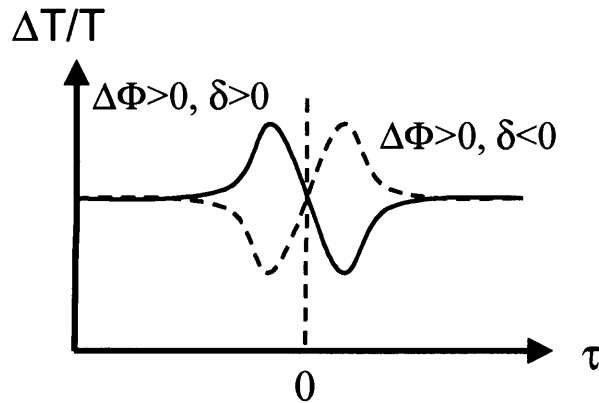


図4.2 典型的な時間依存 SRTBC 信号

信号の極性は非線形位相シフト $\Delta\Phi$ および測定する周波数 $\omega = \omega_0 + \delta$ に依存して変化する。

この SRTBC 信号(4.11)は、理想的なフーリエ限界パルスを用いた場合の式である。現実には何らかの位相をもつパルスで測定することになるが、SRTBC 信号はプローブ光のもつチャープに非常に敏感である。チャープをもつパルスでの SRTBC は Wang ら[8]により解析されており、パルスの光電場が

$$E(t) = E^0 \exp\left(-t^2/t_0^2 + ibt^2 + i\omega_0 t\right) \quad (4.12)$$

と表される場合、SRTBC 信号は

$$\begin{aligned} \frac{\Delta T}{T}(\tau, \delta) = & 2 \left[ \frac{(3 + b^2 t_0^4)^2 + 4b^2 t_0^4}{(9 + b^2 t_0^4)^2} \right]^{\frac{1}{4}} \exp[g(b, \delta, t_0)] \\ & \times \exp\left\{-\frac{[\tau - T_s(b, \delta, t_0)]^2}{[\Gamma(b, t_0)]^2}\right\} \{2\Phi_{NL} \sin \Theta - q \cos \Theta\} \end{aligned} \quad (4.13)$$

と書き表される。ただし、

$$\begin{aligned} T_s = & \frac{-\delta t_0^4}{2(3 + b^2 t_0^4)}, \quad \Gamma = \tau \left[ \frac{9 + b^2 t_0^4}{2(3 + b^2 t_0^4)} \right]^{\frac{1}{2}}, \quad g = \frac{\delta^2 t_0^2}{2(1 + b^2 t_0^4)(3 + b^2 t_0^4)} \\ \Theta = & \frac{4b}{9 + b^2 t_0^4} \left( \tau + \frac{3\delta}{4b} \right)^2 - \frac{\delta^2}{4b(1 + b^2 t_0^4)} - \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( \frac{2bt_0^2}{3 + b^2 t_0^4} \right) \end{aligned}$$

である。

実験では、モードロック Ti: sapphire レーザーのプリズム挿入量を調整し、また光路中の分散媒質をできるだけ減らすことでフーリエ限界パルスに近づけた。その上でチャープパラメーターを含んだ式(4.13)を用いて実験結果をフィッティングすることにより、 $n_2$ を導出した。

カスケード非線形効果もこの SRTBC 法により測定することができる[9]。SHG 過程と逆変換過程の繰り返しにより、ポンプ光、プローブ光双方に非線形位相シフトが付加される。3.2 節で述べたように、フェムト秒領域のカスケード非線形効果は、大きな位相不整合条件下、すなわち逆変換周期が群速度不整合長  $L_{GVM}$  より短い場合には光カー効果に似た非線形応答を示す。このような場合、実効的な非線形屈折率は時間依存信号を式(4.13)でフィッティングすることにより得られる。しかし、位相整合条件近傍では位相シフトの時間波形は歪むため、式(4.13)によるフィッティングは不適切となる。より一般的には、次に示す3光波の結合波方程式を直接数値計算することにより正確な SRTBC 信号が得られる。ここで添え字 1, 2, 3 はそれぞれポンプ光、プローブ光、およびそれらの和周波を表す。



$$\begin{cases} \frac{\partial A_1}{\partial z} = i\xi_1 \frac{\partial^2 A_1}{\partial \eta^2} - i\rho_1 A_2^* A_3 \exp(-i\Delta kz) - i\sigma_1 (|A_1|^2 A_1 + 2|A_2|^2 A_1 + 2|A_3|^2 A_1), \\ \frac{\partial A_2}{\partial z} = i\xi_2 \frac{\partial^2 A_2}{\partial \eta^2} - i\rho_2 A_2^* A_3 \exp(-i\Delta kz) - i\sigma_2 (2|A_1|^2 A_2 + |A_2|^2 A_2 + 2|A_3|^2 A_2), \\ \frac{\partial A_3}{\partial z} = -\zeta \frac{\partial A_3}{\partial \eta} + i\xi_3 \frac{\partial^2 A_3}{\partial \eta^2} - \frac{1}{2} i\rho_3 A_1 A_2 \exp(+i\Delta kz) - i\sigma_3 (2|A_1|^2 A_3 + 2|A_2|^2 A_3 + |A_3|^2 A_3), \end{cases} \quad (4.14)$$

$$\text{where, } \tilde{E}_j(z, t) \equiv \frac{1}{2} \{A_j(z, t) \exp[i(\omega_j t - k_j z)] + \text{c.c.}\}$$

$$\Delta k = k_3 - k_1 - k_2, \quad \eta = t - \frac{z}{v_1} = t - \dot{k}_1 z,$$

$$\xi_1 = \xi_2 = \frac{1}{2} \ddot{k}_1, \quad \xi_3 = \frac{\dot{k}_3^2 - \dot{k}_1^2 + k_3 \ddot{k}_3}{2k_3}, \quad \zeta = \dot{k}_3 - \dot{k}_1, \quad \rho_i = \frac{\omega_i d}{cn_i}, \quad \sigma_i = \frac{3\omega_i \chi^{(3)}}{8cn_i}.$$

### 4.3 真性非線形屈折率およびその異方性の測定

本節では、LT 単結晶の真性非線形屈折率の測定についてまとめる。測定系を図 4.3 に示す。モードロック Ti: sapphire レーザー (Spectra Physics, Model 3960) からの出力はパルスエネルギー 5 nJ、パルス幅 80 fs、繰り返し周波数 82 MHz、中心波長が 800 nm 付近で可変である。パルスを反射率 10% のビームスプリッターで分け、時間遅延を調整したのち再びサンプル中で交差させる。ポンプおよびプローブ光は交差角 0.12 rad で空間的に重なっており、半波長板により水平または垂直な直線偏光に調整した。ポンプパルスエネルギーは 3.1 nJ としたが、これはピーク強度にして 2.8 GW/cm<sup>2</sup> に相当する。一方、プローブ光ピーク強度は 0.25 GW/cm<sup>2</sup> に調整した。コンピューター制御により光学遅延をスキャンしながら、プローブ光スペクトルをシリコンフォトディテクターのマルチチャンネル分光器により測定した。

図 4.4(a) にはモードロック Ti: sapphire レーザーのスペクトルを、(b) には時間遅延を変化させながら測定した透過プローブ光スペクトルの 2 次元データをそれぞれ示した。図 4.4(b) のデータから、特定の波長成分に関して図 4.2 のような時間依存信号を抽出して非線形位相シフトの評価を行った。

直径 2 インチ、厚み 1 mm、z カットの LT 単結晶ウェハ（山寿セラミックス、光学グレード）から光学測定用サンプルを 1 mm (along x) x 5 mm (along y) x 1 mm (along z) の大きさに切り出し、光学研磨を 2 面に施した。参照サンプルとして、1 ミリ厚の熔融石英を用いた。LT 結晶は対称性 3m に属するため、 $\chi^{(3)}$  テンソル成分に関して  $\chi_{1111}^{(3)} = \chi_{2222}^{(3)} \neq \chi_{3333}^{(3)}$  の関係式が成り立つ。ビームがほぼ x 方向に伝搬している配置では、直線偏光方向を常光線および異常光

線に選ぶことにより、それぞれ  $\chi_{222}^{(3)}$  に起因する  $n_{20}(\text{LT})$  と、 $\chi_{333}^{(3)}$  に起因する  $n_{2E}(\text{LT})$  の両成分を測定することができる。ポンプ光とプローブ光は常に同じ方向の直線偏光とし、 $n_{20}(\text{LT})$  と  $n_{2E}(\text{LT})$  の測定に応じてそれぞれ y および z 軸方向の直線偏光に調整した。室温ではフォトリフラクティブ効果が測定精度を著しく低下させる。そこで測定中はこのフォトリフラクティブ効果を低減させるためにサンプル温度を約 230°C に保持した。温度制御にはヒーターと白金測温体、そしてフィードバック回路を用いた。SRTBC 測定は、ビームの空間的な重なりやピーク強度に非常に敏感であるが、実際にそれらを定量的に評価するのは難しい。そこで、本実験では全く同じビーム配置において、 $n_{2E}(\text{LT})/n_2(\text{silica})$  と  $n_{2E}(\text{LT})/n_{20}(\text{LT})$  の相対測定をそれぞれ行った。各サンプルについていくつかの測定波長  $\Delta\lambda$  における時間依存 SRTBC 信号を抽出し、それらを式(4.13)を用いてフィッティングした。ここで  $\Delta\lambda$  は時間依存信号を測定する波長  $\lambda$  のスペクトル中心波長  $\lambda_0$  からのずれ  $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_0$  である。

図 4.5 (a)に  $n_{2E}(\text{LT})$  および  $n_2(\text{silica})$  を波長  $\Delta\lambda = -1.3\sigma$  で測定したときの SRTBC 信号を示す。ここで  $\sigma = 10.7 \text{ nm}$  はスペクトル半値全幅である。図 4.5 (b)にはそれぞれ  $n_{2E}(\text{LT})$  と  $n_{20}(\text{LT})$  を  $\Delta\lambda = -1.3\sigma$  で測定した信号を示す。式(4.13)によるフィッティングカーブは破線で示されている。フィッティングパラメーター  $\Delta\Phi$  は非線形屈折率  $n_2$  に比例しているため、パラメーター  $\Delta\Phi$  の比から次の相対値を得た。

$$n_{2E}(\text{LT}) / n_2(\text{silica}) = 12 \pm 2.4 \quad (4.15)$$

$$n_{2E}(\text{LT}) / n_{20}(\text{LT}) = 1.8 \pm 0.3 \quad (4.16)$$

ここで、文献値  $n_2(\text{silica}) = 2.46 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$  [10]を用いることで、それぞれ

$$n_{2E}(\text{LT}) = (30 \pm 6) \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} \quad (4.17)$$

$$n_{20}(\text{LT}) = (17 \pm 3) \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} \quad (4.18)$$

を得た。このように LT の非線形屈折率は大きな異方性をもつことを明らかにした。同様な光カー効果の異方性は KTiOPO<sub>4</sub> においても過去に報告されている[6]。また、LT の非線形屈折率の大きさ自体、その他の 2 次非線形材料の非線形屈折率[5]

$$n_2(\text{KTiOPO}_4) = 10.8 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 850 \text{ nm}$$

$$n_2(\text{KNbO}_3) = 18.7 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 850 \text{ nm}$$

$$n_2(\text{BaB}_2\text{O}_4) = 3.65 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 850 \text{ nm}$$

$$n_2(\text{LiB}_3\text{O}_5) = 1.91 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 850 \text{ nm}$$

と比べると比較的大きいことがわかる。

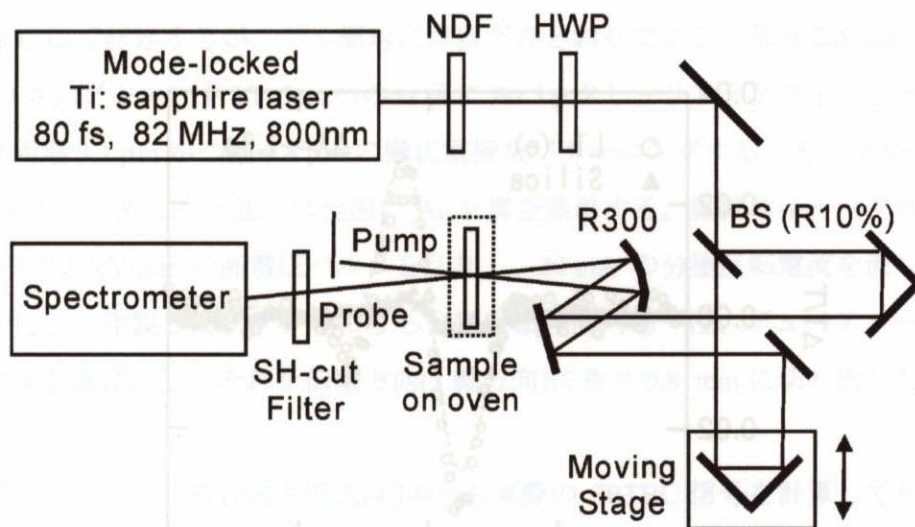


図 4.3 SRTBC の測定系

(NDF: neutral density filter, HWP: half-wave plate, BS: beam splitter with 10% reflectivity.)

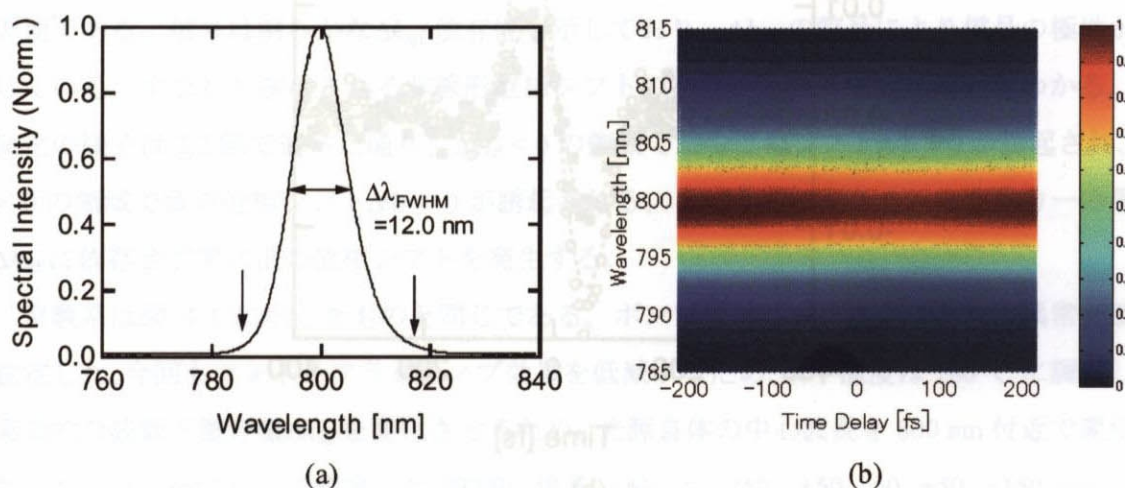
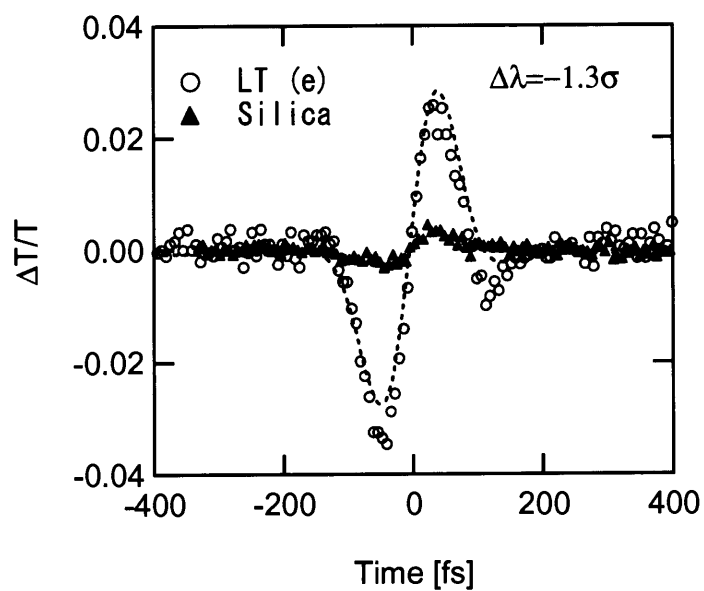
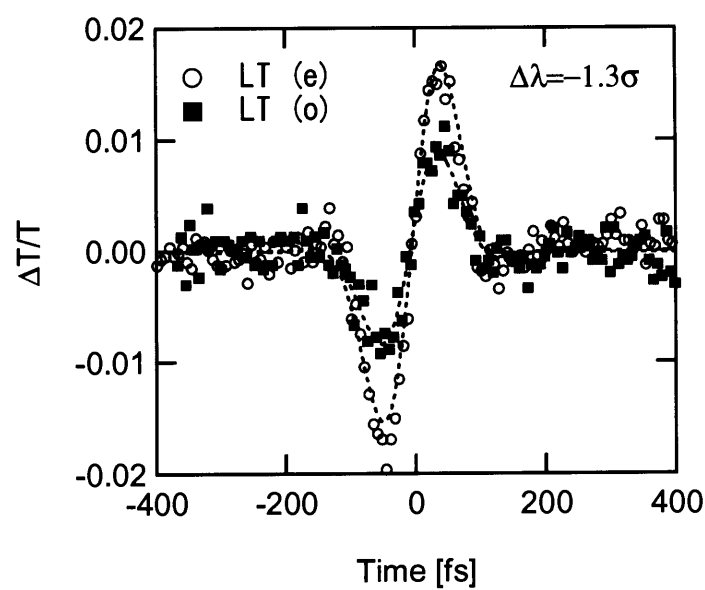


図 4.4 (a) モードロック Ti: sapphire レーザーのスペクトル強度

(b) 測定した時間遅延-波長 2 次元データの一例



(a)



(b)

図 4.5 (a)  $n_{2E}$  (LT) および  $n_2$  (silica)の $\Delta\lambda = -1.3\sigma$ における SRTBC 信号  
(b)  $n_{2E}$  (LT) および  $n_{2O}$  (LT)の  $\Delta\lambda = -1.3\sigma$ における SRTBC 信号

#### 4.4 実効的非線形屈折率の測定

次に PPLT 素子におけるカスケード非線形効果の測定を行った。PPLT 素子の作製工程に関しては付録 C にて詳述するが、ごく簡単には以下のとおりである。厚み 200 nm の Ta 膜を厚み 0.3mm のコングルエント LT ウェハの +z 面にスパッタし、リソグラフィとドライエッチングにより周期 3.1  $\mu\text{m}$  かつ幅 0.8  $\mu\text{m}$  の櫛状電極をパターンニングする。その上から 300 nm 厚の SiO<sub>2</sub> 膜をスパッタし、-z 面には全面に Al を真空蒸着する。絶縁オイル（フロリナート、3M 社製）中で 21kV/mm の高電圧パルスを印加し、20 mA の分極反転電流を流して周期的な分極反転を行う。作製したサンプルのうち分極反転の面内均一性、デューティー比などが良好なサンプルを選び出し、それを伝搬方向(x 軸方向)に長さ 0.8 mm に切り出した上、光学研磨を施した。

実験結果へ移る前に、結合波方程式(4.14)から実際の SRTBC 信号を計算してみよう。計算条件はポンプ光のピーク強度 2.8 GW/cm<sup>2</sup>、プローブ光のピーク強度が 0.1 GW/cm<sup>2</sup>、相互作用長が 0.1 mm である。計算に用いる非線形定数として、文献値  $d_{33}=15.1$  pm/V [1] と本研究における測定値  $n_{2E}(\text{LT}) = (30 \pm 6) \times 10^{-16}$  cm<sup>2</sup>/W を用いた。図 4.5 (a) に計算した SRTBC 信号を示す。光カー効果の影響を明らかにするため、これを含んだ場合と含まない場合について計算を行い、それぞれ実線および破線で示した。個々の曲線は異なる波数不整合量  $\Delta k_{\text{eff}} = k_3 - k_1 - k_2 - 2\pi/\Lambda = -250, -150, -50, +50, +150, +250$  mm<sup>-1</sup> について計算した結果である。ここで、 $\Lambda$  は QPM 周期である。信号は明らかな  $\Delta k_{\text{eff}}$  依存性を示しており、 $\Delta k_{\text{eff}}$  の符号により信号の極性が変化している、すなわち誘起される非線形位相シフトの符号が変わっていることがわかる。この変化の様子は 2.2 節で述べた通り、 $\Delta k_{\text{eff}} < 0$  の領域で正の位相シフト  $\Delta\Phi > 0$  が誘起され、 $\Delta k_{\text{eff}} > 0$  の領域で負の位相シフト  $\Delta\Phi < 0$  が誘起される、というものである。また光カー効果は、 $\Delta k_{\text{eff}}$  に依存せず常に正の位相シフトを発生する。

実験系は図 4.3 に示したものと同じである。ポンプ光・プローブ光はともに異常光偏光に設定した。今回もフォトリフレクティブ効果を低減するため、素子温度は 180 °C に調整した。実効的な波数不整合量  $\Delta k_{\text{eff}}$  を変化させるため、光源自体の中心波長を 800 nm 付近で変化させた。 $\Delta\lambda = +1.3\sigma$  において測定した SRTBC 信号 ( $\Delta k_{\text{eff}} = -250, -150, -50, +50, +150$  mm<sup>-1</sup>, +200 mm<sup>-1</sup>) を図 4.6(b) に示す。これらの測定データにははっきりと  $\Delta k_{\text{eff}}$  依存性が観測されており、数値計算結果との対応も良い。しかし、比較的大きな光カー効果の影響により、負の非線形位相シフトは  $\Delta k_{\text{eff}} = +50$  mm<sup>-1</sup> 付近でわずかに観測されるにとどまった。

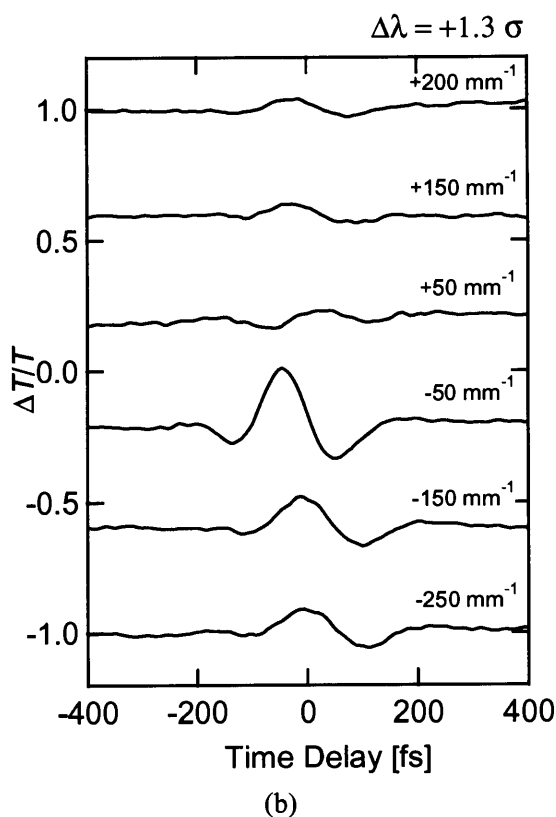
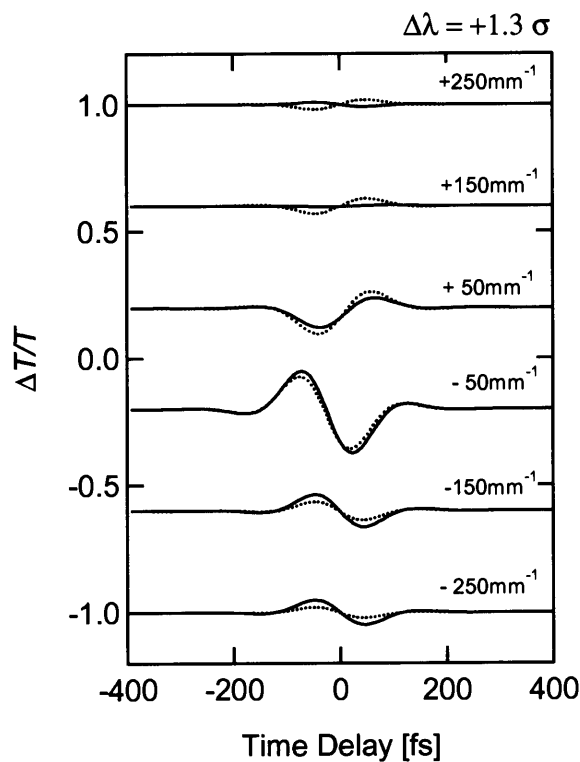


図 4.6 PPLT における SRTBC 信号の (a)計算結果および (b)測定結果

測定波長は $\Delta\lambda=+1.3\sigma$ とした。また、計算結果における実線は3次の非線形効果を含んだ場合、破線は3次の非線形効果を見捨てた場合に相当する。

以上に示した時間依存信号を式(4.13)によりフィッティングし、蓄積した非線形位相シフト  $\Delta\Phi$  を評価した。そしてそれらを  $\Delta k_{\text{eff}}$  の関数として図 4.7 に示した。ただし、群速度不整合の影響により SRTBC 信号が大きく歪む QPM 条件付近ではこのような評価は避けた。非線形位相シフトの  $\Delta k_{\text{eff}}$  依存性は明確に観測できるものの、光カー効果による大きなバイアスのために正味負の位相シフトは非常に小さくなっている。また図 4.7 に示すとおり、式(4.13)でフィッティングできる非線形位相シフトとしては、 $-0.005 \text{ rad} < \Delta\Phi < 0.025 \text{ rad}$  が得られた。これより、カスケード非線形効果による位相シフトの最大値は  $\pm(0.025+0.005)/2 = \pm 0.015 \text{ rad.}$  と評価できる。また  $|\Delta k_{\text{eff}}| > 1$  での測定値より、光カー効果からの寄与は約  $0.008 \text{ rad.}$  と評価した。以上の結果より、実効的非線形屈折率は次のように決定した。

$$|n_2^{\text{casc}}| = (0.015/0.008) \times n_{2E}(\text{LT}) = (56 \pm 10) \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} \quad (4.19)$$

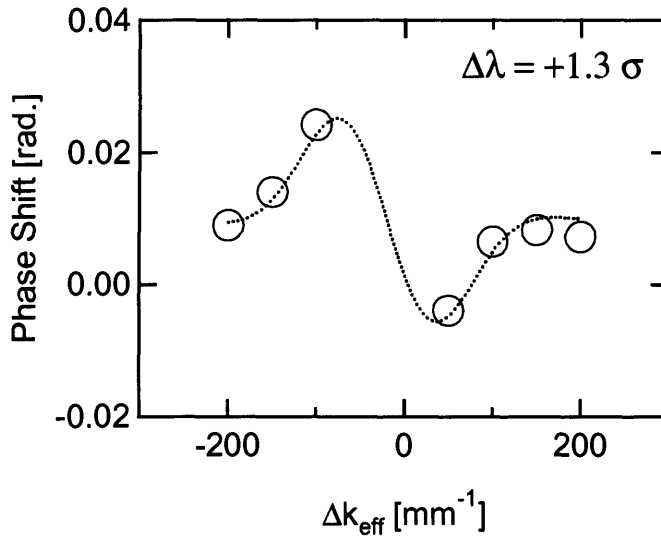


図 4.7 SRTBC 信号から得た非線形位相シフトの  $\Delta k_{\text{eff}}$  依存性（点線はガイド線）

## 4.5 考察

### 実効的非線形屈折率の波長依存性

ここまでは Ti:sapphire レーザーの波長における PPLT の実効的非線形屈折率  $n_2^{\text{casc}}$  を評価してきた。さらにその他の動作波長における  $n_2^{\text{casc}}$  を評価しておくことは重要であろう。大きな位相不整合条件下での連続光における非線形屈折率効果の近似式(2.22)を再掲する。

$$n_2^{\text{casc}} = -\frac{4\pi}{c\epsilon_0} \frac{L}{\lambda} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_2 n_1^2} \frac{1}{\Delta k L} \quad (4.20)$$

前にも述べたように、逆変換周期が群速度不整合長  $L_{\text{GVM}}$  より長い場合、カスケード非線形効果による位相シフトは時間的に歪んでしまう。そこで超短パルスにおけるカスケード非線形効果の実効的な非線形屈折率  $|n_2^{\text{casc}}|$  の最大値を、 $L_{\text{GVM}}$  が逆変換周期と同じくなる場合、すなわち  $L_{\text{GVM}} = 2L_c = 2\pi/\Delta k$  での値で評価する。PPLT と PPLN における  $n_2^{\text{casc}}$  をそれぞれのセルマイヤー方程式 [11,12] と非線形光学定数の文献値  $d_{33}(\text{LT}) = 15.1 \text{ pm/V}$ 、 $d_{33}(\text{LN}) = 25.2 \text{ pm/V}$  [1] を用いて評価した。

図 4.8 に 100 fs パルスに対する実効的非線形屈折率をそれぞれ(a) PPLT と (b) PPLN について計算した値を示す。PPLN、PPLT それぞれの評価値は  $10^{-14}$ - $10^{-13} \text{ cm}^2/\text{W}$  のオーダーである。ただし波長  $2.5 \mu\text{m}$  付近では  $n_2^{\text{casc}}$  は無限大に発散している。これは、波長  $2.5 \mu\text{m}$  付近で基本波と第2高調波の群速度整合、すなわち  $L_{\text{GVM}} = +\infty$  が起こっており、式(4.20)で  $\Delta k \sim 0$  を代入していることに起因する。このように、実効的な非線形屈折率の最大値は材料の屈折率分散から決まる群速度整合条件に強く依存するのである。

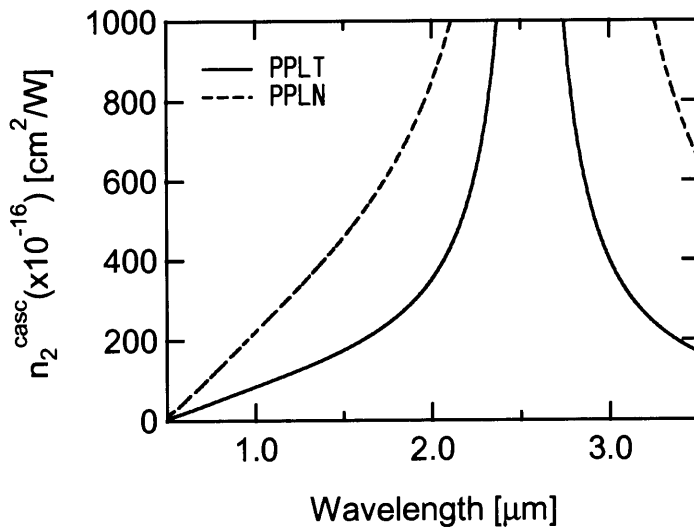


図 4.8 PPLT および PPLN の実効的な非線形屈折率  $n_2^{\text{casc}}$  の波長依存性



式(4.20)で評価した、PPLT の波長 800 nm における実効的非線形屈折率の最大値は、

$$n_2^{\text{casc}}(\text{PPLT}) = 51 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} \quad (4.21)$$

であり、これは実験結果とよく一致している。一方で BBO におけるタイプ I 角度位相整合配置では、波長 800 nm では  $d_{\text{eff}} = 2.0 \text{ pm/V}$  と  $L_{\text{GVM}} = 0.53 \text{ mm}$  を用いて、

$$n_2^{\text{casc}}(\text{BBO}) \sim 43 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} \quad (4.22)$$

と評価できる。実際、この値は PPLT の値(4.21)に比べて少し劣るが、実用的にはむしろ光カー効果の違い ( $n_2(\text{BBO}) = 4.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ ,  $n_{2\text{E}}(\text{LT}) = 30 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) の方が重要である。光カー効果は正のカスケード非線形効果に対しては足し合わせるように働くが、負のカスケード非線形効果とは競合して互いに打ち消し合うように働くからである。

Ti: sapphire レーザーからのパルスの基本波とした場合、基本波・第2高調波ともに正常分散領域に入るため、ソリトン圧縮を実現するためには負の非線形位相シフトが必要である。しかし、現実には得られる正味で負の非線形位相シフトは非常に小さいことがわかったため、PPLT 素子を用いたソリトン圧縮の実現には至らなかった。

### シングルドメイン LT 結晶におけるカスケード非線形効果

LT 単結晶を用いて非線形屈折率効果を測定した場合、常光線・異常光線を問わず SHG 過程の位相整合条件からは遠くかけ離れている。しかし、非線形光学定数自体が大きいため、ある程度のカスケード非線形効果を生じる可能性がある。

対角成分  $d_{33}$  を介したタイプ 0 相互作用 (e: e+e) では、波数不整合量が  $\Delta k \sim +2.0 \times 10^3 \text{ mm}^{-1}$  となる。このとき、式(4.20)を用いて計算される実効的非線形屈折率は  $n_2^{\text{casc}}(\text{LT}, \text{e:e+e}) = -2.5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$  となり、この配置で真性非線形屈折率を評価した測定値  $n_{2\text{E}}(\text{LT})$  と比べると 10 分の 1 以下である。より正確に表現するならば、(4.17)に示した測定値  $n_{2\text{E}}(\text{LT}) \sim 30 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$  は真性非線形屈折率とカスケード非線形効果  $n_2^{\text{casc}}(\text{LT}, \text{e:e+e})$  が足し合わされたものである。一方、非対角成分  $d_{31}$  を介したタイプ I (e: o+o) のカスケード非線形効果が  $n_{20}(\text{LT})$  の測定値に与える影響はほぼ無視できる。これは、タイプ 0 とタイプ I とで  $\Delta k$  の値は同程度であるが、 $d_{31}$  は  $d_{33}$  より約 16 倍小さいため、式(4.20)から  $n_2^{\text{casc}}(\text{LT}, \text{o:e+e})$  は  $n_2^{\text{casc}}(\text{LT}, \text{e:e+e})$  の 1/200 以下と評価できるからである。

このように、LT 単結晶中でもカスケード非線形効果は起こっていると推測できるが、測定した光カー効果や PPLT 中のカスケード非線形効果に比べれば十分小さい。LT 単結晶中のカスケード非線形効果は c 軸に垂直な面内に伝搬している限り、その伝搬方向依存性を示さないため、これを光カー効果に起因する効果と分離して測定するのは極めて困難である。

### 光カー効果の大きさ

LT 結晶は 2 次非線形光学定数が大きい反面、光カー効果も大きい。そのため、負のカスケード非線形効果は光カー効果と競合して低減されてしまうことが実験結果より明らかとなった。ではこの LT 結晶の光カー効果の大きさは何によって決まるのであろうか。

DeSalvo ら[4]や Sheik-Bahae ら[13]は、種々の半導体や誘電体の光カー係数や 2 光子吸収係数を測定し、それらの大きさおよび波長依存性を材料のバンドギャップの大きさから説明している。そして確かにワイドギャップ半導体に関しては、そのような理論予測はある程度成功をおさめているが、誘電体に関しては信頼性が低い。

一方で、森田ら[14]は非共鳴な 3 次非線形感受率の近似値が以下のように表されることを示した。

$$|\chi^{(3)}| \sim \left| 10^2 \frac{[\chi^{(2)}]^2}{\chi^{(1)}} - \frac{1}{10} \frac{\epsilon_0}{N\hbar\Omega} [\chi^{(1)}]^2 \right| \quad (4.23)$$

ここで  $N$  は原子の数密度、 $\Omega$  は電子遷移エネルギーに対応する角周波数である。これを用いて無機結晶の典型的な値を入れると、 $\chi^{(2)}$  が数 pm/V 以上の値をもつ場合には  $\chi^{(3)}$  はほぼ  $\chi^{(2)}$  の大きさで決まることがわかる。これは 2 次非線形性が大きな材料では本質的に 3 次の非線形効果が大きいことを示すものである。実際、(4.23) の  $|\chi^{(2)}|$  -  $|\chi^{(3)}|$  関係式は代表的な 2 次非線形材料、例えば DAN, LiIO<sub>3</sub>, m-NA, ADP, KDP,  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub> に対してよく当てはまることが示されている。本研究で測定した LT も  $d_{33} = 15.1$  pm/V という大きな 2 次非線形光学定数をもつため、それに起因して光カー効果が大きくなっている可能性がある。つまり、QPM 素子に用いられるような 2 次非線形光学定数の大きな強誘電体材料は、一般的に大きな光カー効果をもつであろうとも予測できる。

非線形屈折率効果への寄与としては、これまで考えてきた電子分極によるものだけでなく、結晶を構成している原子核の変位に起因するものもあると考えられる。LT および LN 結晶は今後、超短パルス波長変換器やカスケード非線形光学素子として利用される可能性の高い材料であるため、非線形屈折率効果を詳細に調べることは有意義であろう。具体的には、10-20fs というより高い時間分解能での非線形屈折率測定により、純粋な電子分極からの寄与と原子核の変位に起因する項を区別すること、また、2 次非線形光学定数のテンソル成分から非線形屈折率効果の異方性を説明することは、非常に興味深い課題である。

## 4.6 まとめ

### LT 単結晶の光カー効果およびその異方性の測定

SRTBC 法を用い、これまで報告の無かった LT 結晶の光カー効果を測定した。その結果、次に示すように比較的大きな光カー効果および異方性を明らかにした。

$$n_{2O}(\text{LT}) \sim 17 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

$$n_{2E}(\text{LT}) \sim 30 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

### 短周期 PPLT 素子を用いたフェムト秒カスケード非線形効果の測定

電界印加法により作製した周期 3.1  $\mu\text{m}$  の PPLT 素子を用い、モードロック Ti: sapphire レーザーのフェムト秒パルスに誘起されるカスケード非線形効果を測定した。その結果、次のような実効的非線形屈折率を得た。

$$n_2^{\text{casc}}(\text{PPLT}) \sim 56 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

以上の結果は PPLT 素子を用いたフェムト秒波長変換器や光スイッチ、モードロッカーやパルス圧縮器を設計する上で知っておくべき極めて重要な基礎データである。特に LT 結晶の光カー効果に関しては、本研究が最初の報告である。

当初の目標であった PPLT 素子を用いたソリトン圧縮の実現には至らなかったが、 $d$  定数の大きな強誘電体結晶の場合、往々にして光カー効果も大きいことに注意を払う必要がある、という知見を得た。つまり、強誘電体 QPM 素子を用いて正常分散領域でソリトン圧縮を実現するためには、群速度不整合の小さい条件を利用して光カー効果が気にならないほどのカスケード非線形性を発現させることが重要なのである。

## 参考文献

- [1] I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, "Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients," *J. Opt. Soc. Am B* **14**, pp.2268-2294 (1997).
- [2] K. Mizuuchi and K. Yamamoto, "Generation of 340-nm light by frequency doubling of a laser diode in bulk periodically poled LiTaO<sub>3</sub>," *Opt. Lett.* **21**, pp.107-109 (1996).
- [3] I. Kang, T. Krauss, and F. Wise, "Sensitive measurement of nonlinear refraction and two-photon absorption by spectrally resolved two-beam coupling," *Opt. Lett.* **22**, pp.1077-1079 (1997).
- [4] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Stryland, and M. Sheik-Bahae, "Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and  $n_2$  in wide bandgap solids," *IEEE J. Quant. Electron.* **32**, pp.1324-1333 (1996).
- [5] M. Sheik-Bahae and M. Ebrahimzadeh, "Measurements of nonlinear refraction in the second-order  $\chi^{(2)}$  materials KTiOPO<sub>4</sub>, KNbO<sub>3</sub>,  $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, and LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub>," *Opt. Commun.* **142**, pp. 294-298 (1997).
- [6] R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Z-scan measurements of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals," *Opt. Lett.* **18**, pp.194-196 (1993).
- [7] L. Gallmann, G. Steinmeyer, U. Keller, G. Imeshev, M. M. Fejer, and J. -P. Meyn, "Generation of sub-6-fs blue pulses by frequency doubling with quasi-phase-matching gratings," *Opt. Lett.* **26**, pp.614-616 (2001).
- [8] J. -K. Wang, T. -L. Chiu, C. -H. Chi, and C. -K. Sun, "Nonlinear refraction and absorption measurements with chirped femtosecond laser pulses: experiments and simulations," *J. Opt. Soc Am B* **16**, pp. 651-661 (1999).
- [9] X. Liu, L. J. Qian, and F. W. Wise, "Femtosecond measurement of cascaded second-order nonlinearities by spectrally resolved two-beam coupling," *Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics*, CWF13, Baltimore, Maryland, US (May 1999).
- [10] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, "Nonlinear refractive index of optical crystals," *Phys. Rev. B* **39**, pp.3337-3350 (1989).
- [11] K. S. Abedin and H. Ito, "Temperature-dependent dispersion relation of ferroelectric lithium tantalate," *J. Appl. Phys.* **80**, pp.6561-6563 (1996).
- [12] G. J. Edwards, M. Lawrence, "A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate," *Opt. Quant. Electron.* **16**, pp.373-374 (1984).
- [13] M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland, "Dispersion and band-gap scaling of the electronic Kerr effect in solids associated with two-photon absorption," *Phys. Rev. Lett.* **65**, pp.96-99 (1990).
- [14] R. Morita and M. Yamashita, "Relationship between second- and third-order nonlinear optical susceptibilities due to electronic polarization," *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, pp.905-907 (1993).

## 第 5 章

# 周期分極反転 $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ を 用いた光ソリトン圧縮

### 5.1 はじめに

前章の結果より、強誘電体の QPM 材料では角度位相整合素子に比べて（１）２次非線形光学定数  $d$  は大きいものの、（２）光カー効果が大きく、（３）群速度不整合の問題もシビアに効く、ということが明確になった。結局、効率的なフェムト秒カスケード非線形光学素子を実現するためには、大きな  $d$  定数をもつ材料を選ぶとともに使う波長において群速度整合させるような、新しい手法の導入が必要である。

本章では、5mol%MgO-doped congruent- $\text{LiNbO}_3$  の周期分極反転素子（Periodically-poled MgO-doped lithium niobate: PPMgLN）におけるタイプ I-QPM 相互作用を用いることで満たされる、通信波長 1560 nm の SHG 過程での群速度整合条件を用いた実験についてまとめる。まず前半では、PPMgLN 素子中で誘起されるカスケード非線形効果の測定結果を示す。得られた非線形屈折率はガラスのその 100 倍以上であり、これまでフェムト秒領域で報告されたカスケード非線形効果としては最も大きい。後半では、カスケード非線形効果を用いて実現した光ソリトン圧縮について述べる。中心波長 1560 nm、パルス幅 110fs の基本波を入射したとき、基本波・高調波を同時に約 35fs にパルス圧縮することに成功した。

## 5.2 群速度整合条件

PPMgLN におけるタイプ I-QPM 配置を図 5.1 に示す。通常用いるタイプ 0 と呼ばれる配置と異なり、常光線の基本波から異常光線の第 2 高調波が発生するプロセス (e:o+o) である。図から明らかなように、関与する非線形光学定数は非対角成分  $d_{32} (=d_{31})$  である。

MgLN の常光線・異常光線の群速度を図 5.2(a) に示す。タイプ I (e:o+o) 相互作用を用いれば波長 1560nm の SHG 過程で、群速度整合が満たされることがわかる[1]。ちなみにノンドープのコングルエント LN では群速度整合条件が 1600nm 付近であり、MgO ドーピングにより群速度整合波長がかなりシフトすることがわかる。またこの MgO ドーピングによりフォトリフレクティブ耐性も大幅に向上することが知られている。図 5.2(b) にタイプ I QPM 配置における実効的な波数不整合量  $\Delta k = k_2 - 2k_1 - 2\pi/\Lambda$  の温度依存性を示した。図から明らかなように、精密な温度制御 ( $\pm 0.1^\circ\text{C}$ ) により  $\Delta k$  を制御することが可能である。

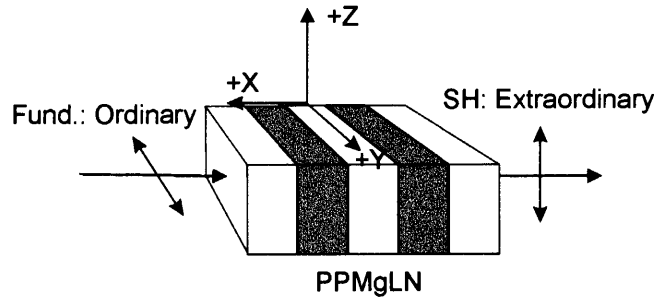


図 5.1 PPMgLN 素子におけるタイプ I 擬似位相整合の概略図

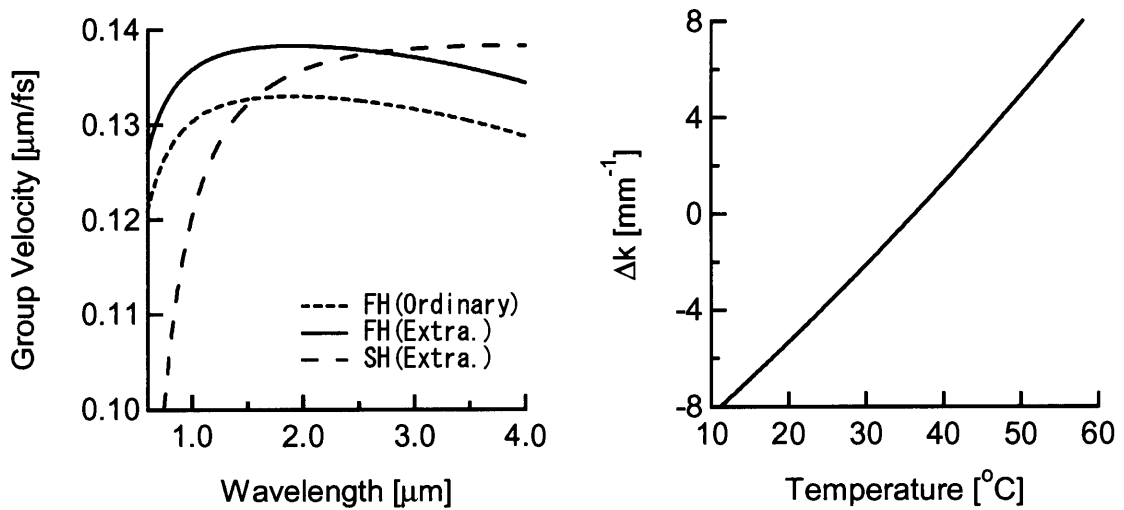


図 5.2 (a) 群速度の波長依存性 (b) タイプ I-QPM 配置における波数不整合量の温度依存性

### 5.3 非線形位相シフトの測定

#### 5.3.1 位相シフト測定系

測定に用いた素子は、厚み 0.5 mm、長さ 10 mm、分極反転周期  $\Lambda = 20.4 \mu\text{m}$  の PPMgLN 素子であり、三菱電線工業株式会社において作製されたものである。QPM 素子の非線形位相シフトを測定する場合、サンプル開口の制限から Z スキャン法は適用し難い。

そこで本実験では、Z スキャンと同様に空間的な効果、すなわち自己収束効果を用いるが、サンプル位置は固定して非線形位相シフトを測定する方法をとった。具体的には、入射光強度や実効的な波数不整合量  $\Delta k$  に応じて素子中で誘起される自己収束の効果を、遠視野でのビーム径変化としてとらえた。図 5.3 に実験系を示す。光源としてフェムト秒光パラメトリック増幅システム(SpectraPhysics OPA-800C)からの出力パルス (80 fs、1 kHz、30  $\mu\text{J}$ 、1560 nm) を用いた。ND フィルターによりパルスエネルギーを調整したのち、 $f=300 \text{ mm}$  のレンズで集光した。ビームウェスト( $z=0$ )において測定されたビーム半値全幅は  $240 \mu\text{m}$  である。このときの回折長は  $z_0 = (1/2)k_1 w_0^2 = 89 \text{ mm}$  と見積もることができるが、これは素子長よりも十分長い。ここで  $w_0$  はガウシアンビームのビームウェストでの半径である。非線形位相シフトによる遠視野でのビーム径変化は、サンプル位置が  $z_D \sim \pm 0.86 z_0$  において最大となることが知られている。非線形位相シフトに関して高い感度を保ちつつ、開口制限によるビームのけられを防ぐため、 $z_D = -0.5 z_0$  に素子をセットした。遠視野  $z_S = +340 \text{ mm}$  におけるビーム径はスリットと PbS 光導電素子を用いて測定した。実際の実験系および温度制御サンプルホルダーの写真をそれぞれ図 5.4 (a)(b)に載せた。

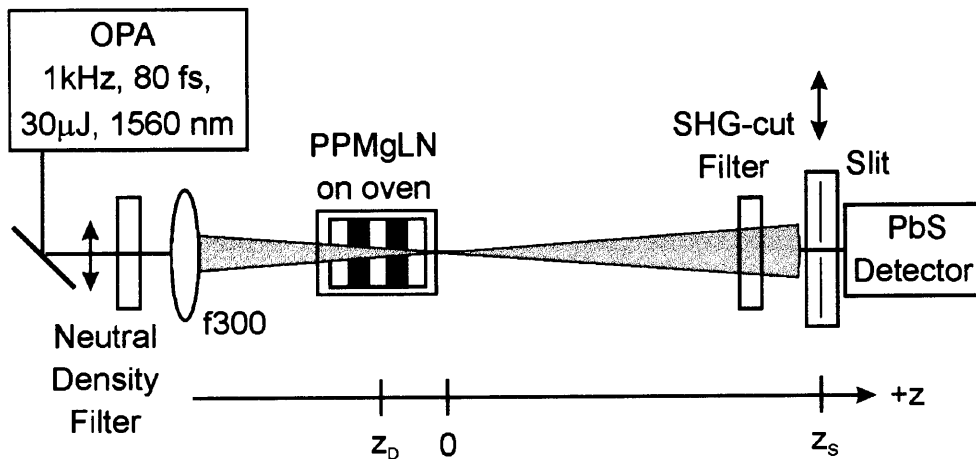
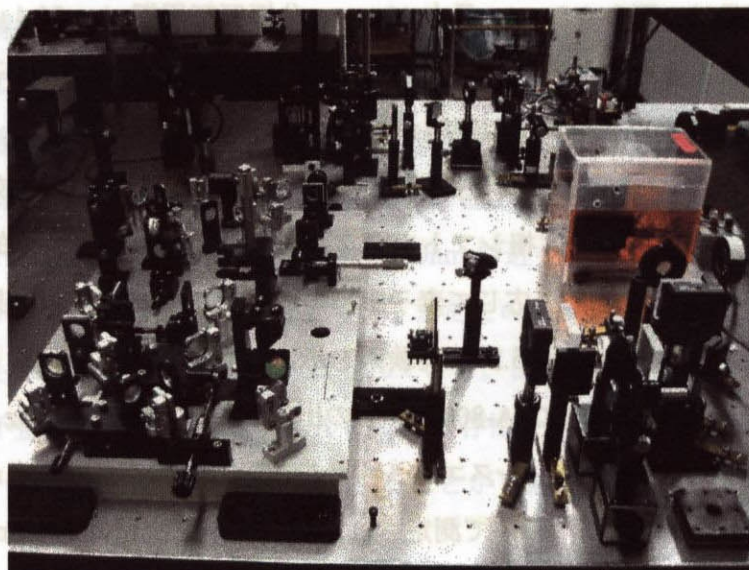
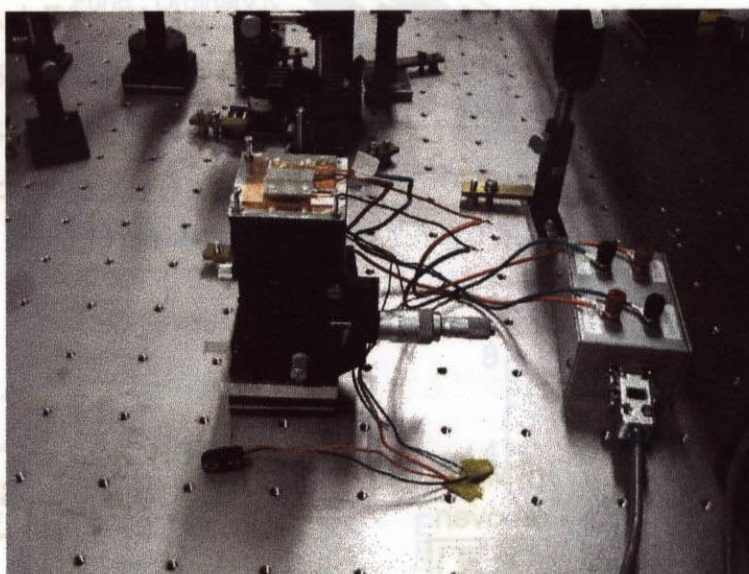


図 5.3 非線形位相シフトの測定系

自己収束効果による遠視野でのビーム径変化から非線形位相シフトを評価する。サンプル位置は  $z_D$  に固定し、光強度や位相不整合条件を変化させた。



(a)



(b)

図 5.4 (a)測定系の全体写真 (b)ペルティエ素子と熱電対による温度制御サンプルホルダー



### 5.3.2 位相シフトの算出

まず素子中で誘起される位相シフトと、遠視野でのビームプロファイルとの関係を明らかにする。TEM<sub>00</sub> 空間ガウシアンビームを仮定し、素子長  $L$  が焦点深度や非線形長に比べて十分小さいと仮定する ( $L \ll z_0$  and  $L \ll z_0/\Delta\phi$ )。ここで  $\Delta\phi$  は蓄積された位相シフトである。そうすると第3章で示したように、 $z = z_s$  における複素電場振幅を非線形位相シフト  $\Delta\phi$  に関してテイラー展開することができる。これを用いれば非線形位相シフトから遠視野でのビームプロファイルが計算できるのである。遠視野での光電場を表す式(3.7)を再掲すると、

$$E_a(r,t) = E(z, r=0, t) \exp\left(-\frac{\alpha L}{2}\right) \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[i\Delta\phi_0(z,t)]^m}{m!} \frac{w_{m0}}{w_m} \exp\left[-\frac{r^2}{w_m^2} - \frac{ikr^2}{2R_m} + i\theta_m\right] \quad (5.1)$$

となる。位相シフトが小さい場合、 $m=5$  程度まで加算すれば十分であることを確かめ、実際には  $m=10$  程度まで考慮に入れて計算を行った。素子を  $z_D = \pm 0.5 z_0$  に置いた場合の開口面での電場振幅を式(5.1)を用いて計算し、そこから導出した規格化ビーム径変化  $(D-D_0)/D_0$  を  $\Delta\phi$  の関数として図5.5に示した。ここで  $D$  と  $D_0$  はそれぞれ、位相シフトがある場合とない場合のビーム径半値全幅である。パルス光を用いた測定では、位相シフト  $\Delta\phi$  の時間平均値

$$\Delta\phi = \int I(t)\phi(t)dt / \int I(t)dt \quad (5.2)$$

が測定される。ここで  $I(t)$  と  $\phi(t)$  はそれぞれ時間強度と時間位相である。しかし、位相シフトの本質的な量はピーク位相シフトであるため、以下の実験では位相シフトが時間的にガウシアン分布をもつと仮定し、

$$\phi_0 = \sqrt{2}\Delta\phi \quad (5.3)$$

の関係式を用いて測定値からピーク位相シフト  $\phi_0$  を算出した。

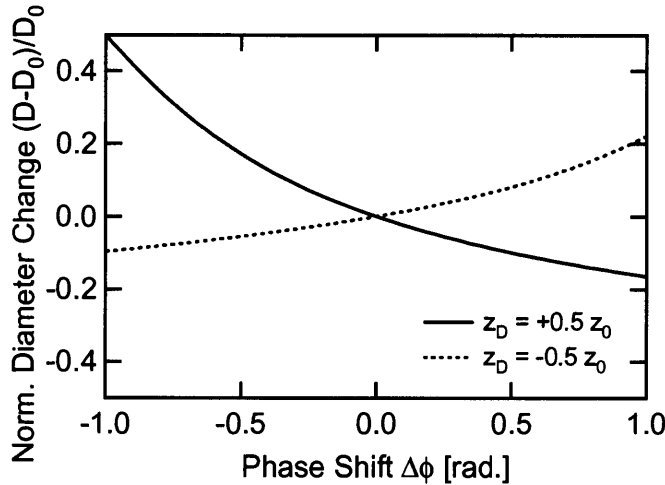


図 5.5 位相シフトに対する開口位置での規格化ビーム径変化  $(D-D_0)/D_0$

サンプル位置がそれぞれ  $z_D = \pm 0.5 z_0$  の場合について計算した結果を示した。

### 5.3.3 測定結果

光ピーク強度を  $1.36 \text{ GW/cm}^2$  に固定し、素子温度を変化させながら基本波の減衰および位相シフトを測定した。QPM 温度からのずれは実効的な波数不整合量  $\Delta k$  を誘起する。実験的に求めた QPM 温度は  $32.0^\circ\text{C}$  であった。コングルエント LiNbO<sub>3</sub> の温度依存セルマイヤー方程式[2]を用いることにより導かれる次の依存性を変換式として用いた。

$$\Delta k/\Delta T = 0.343 [\text{mm}^{-1}\text{K}^{-1}] \quad (5.4)$$

図 5.6 (a)(b)に測定した基本波透過率とピーク位相シフト  $\phi_0$  の  $\Delta k$  依存性を示す。正負の位相シフトが QPM 条件のまわりで明確に現れている。そして  $|\Delta k| \sim 0.3 \text{ mm}^{-1}$  において  $|\phi_0| \sim 1 \text{ rad.}$  の位相シフトが得られた。平面波を近似して、パルス幅 80fs、光ピーク強度  $1.36 \text{ GW/cm}^2$  の条件で数値計算を行った結果も合わせて図 5.6 (a)(b)に実線で示す。計算パラメーターとして  $d_{32} = 3.4 \text{ pm/V}$  [3]、 $n_2 = 1 \times 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{W}$  [4]を用いた。これより実験と計算は非常によく一致していることがわかる。QPM 条件付近での基本波減衰の程度が少し異なるが、この原因としては空間プロファイルがあるため平面波近似からずれることや、QPM 構造が完全ではないことが考えられる。

また、光カー効果の影響を調べるため、光カー効果を取り除いて数値計算を行った結果を同じく図 5.6(a)(b)に破線で示した。基本波の減衰に関しては、光カー効果のある場合とない場合とで数値計算結果がほぼ一致して重なっている。一方、非線形位相シフトのグラフを見ると、光カー効果は  $\Delta k$  に依存しない正の非線形位相シフトを発生させていることがわかるが、その大きさはカスケード非線形効果と比べると十分小さい。

次に実効的非線形屈折率  $n_2^{\text{casc}}$  を定量的に評価するため、非線形位相シフトの強度依存性を測定した。このとき厚み 11mm の熔融石英を参照サンプルとして用いた。その結果を図 5.7 に示す。 $\Delta k = -0.8, -0.3, +0.3, +0.8 \text{ mm}^{-1}$  のときのピーク位相シフト  $\phi_0$  をピーク強度  $I_0$  の関数として示した。PPMgLN 素子の中で発生した位相シフトは低強度では強度に比例して増大するが、強度が増大するにつれ飽和の傾向が見られる。熔融石英の場合には、非共鳴な光カー効果であるため、本来飽和の傾向は示さないはずであるが、実際の測定データには幾分飽和の傾向が見られる。このことから、PPMgLN で観測された飽和の傾向は、カスケード非線形効果が本来もつ飽和の性質のみならず、測定系または測定方法のもつ何らかの原因からも生じていると考えられる。

そこで飽和の傾向が見られない低強度領域で非線形屈折率の評価を行った。 $c_1$  と  $c_2$  を2つのパラメーターとして現象論的に測定データを  $c_1[1 - \exp(-c_2 I_0)]$  でフィッティングした。そして低強度での傾きから次のような相対値を得た。

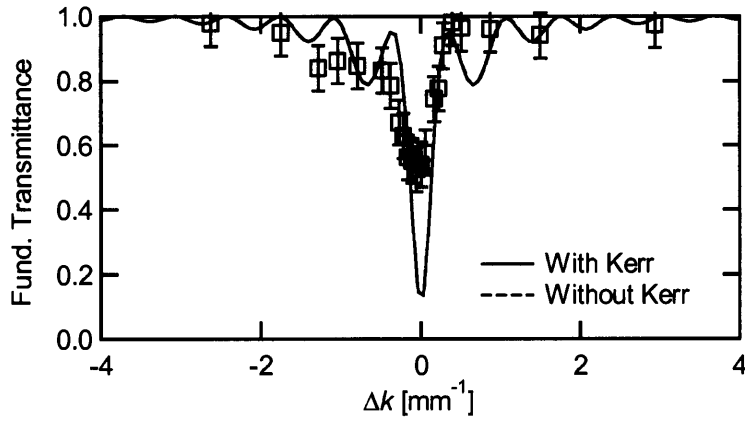
$$n_2^{\text{casc}} (\text{PPMgLN}) / n_2 (\text{silica}) \sim -117 \text{ at } \Delta k = +0.3 \text{ mm}^{-1}$$

$$n_2^{\text{casc}} (\text{PPMgLN}) / n_2 (\text{silica}) \sim +136 \text{ at } \Delta k = -0.3 \text{ mm}^{-1}$$

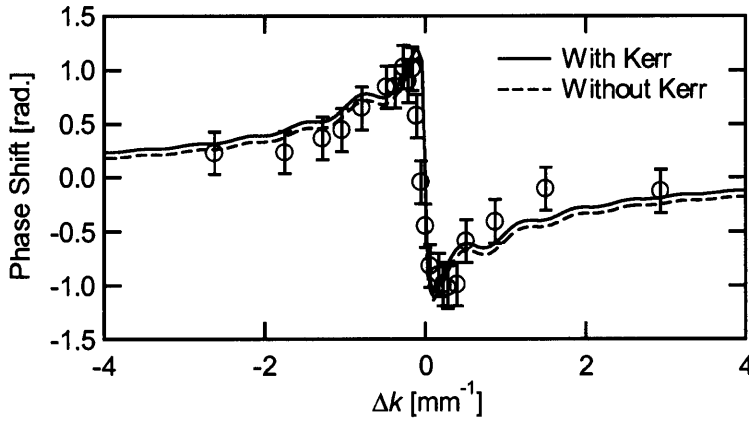
ここで文献値  $n_2 (\text{silica}) = 2.46 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$  [5] を用いることで、非線形屈折率の最大値を次のように評価した。

$$n_2^{\text{casc}} (\text{PPMgLN}) = -2.9 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W} @ \Delta k = +0.3 \text{ mm}^{-1}$$

$$n_2^{\text{casc}} (\text{PPMgLN}) = +3.3 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W} @ \Delta k = -0.3 \text{ mm}^{-1}$$



(a)



(b)

図 5.6 (a)基本波透過率および (b)ピーク位相シフトの波数不整合量 $\Delta k$  依存性

入射光ピーク強度は  $1.36 \text{ GW}/\text{cm}^2$  に固定し、実効的な波数不整合量 $\Delta k$  を温度調整により変化させた。実線は平面波近似のもとでの数値計算結果、破線は光カー効果を除いた場合の数値計算結果である。

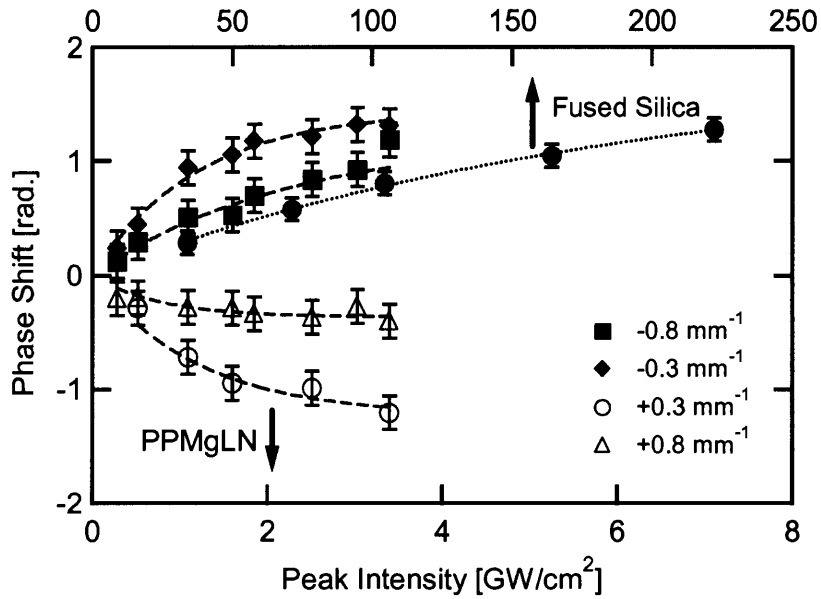


図 5.7 PPMgLN 中で誘起されたピーク位相シフト  $\phi_0$  の入射光ピーク強度依存性  
各波数不整合量  $\Delta k = -0.8, -0.3, +0.3, +0.8 \text{ mm}^{-1}$  についての測定値およびフィッティング曲線を  
示した。参照サンプルである熔融石英の結果も示している。

#### 5.3.4 考察とまとめ

このように空間的なセルフアクション、すなわち自己収束効果を測定しているとき、時間領域のセルフアクション、すなわち自己位相変調効果も起こるはずである。しかし入射基本波のピーク強度が  $\sim 3 \text{ GW/cm}^2$  以下の領域では顕著なスペクトル変化は観測されなかった。これはつまり、光ソリトン圧縮を実現するためにはより高い光強度もしくは長い相互作用長が必要であるということを示している。また、測定は平均光パワーが  $0.3 \text{ W/cm}^2$  以下という条件で行ったが、フォトリフラクティブ耐性の高い PPMgLN 素子においては、この程度のパワー領域で誘起されるフォトリフラクティブ効果はほとんど無視できる。

さて、ここで理論的にタイプ 0 とタイプ I でのカスケード非線形効果の大きさを比較してみよう。従来のタイプ 0 相互作用では非線形感受率テンソルの対角成分  $d_{33} = 20.3 \text{ pm/V}$  [3] を用いる。これまでに Vidakovic ら [6] は、PPLN におけるタイプ 0 相互作用配置を用いて、波長  $1064 \text{ nm}$ 、パルス幅  $100 \text{ ps}$  パルスに誘起される非線形屈折率  $2.4 \times 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{W}$  を報告している。しかし、よりパルス幅が短くなりフェムト秒領域に入ってくると、群速度不整合の問題

が影響してくる。

大きな位相不整合量条件下で連続光に対して与えられる、実効的非線形屈折率の近似式 (2.22) を再掲すると、

$$n_2^{\text{casc}} = -\frac{4\pi}{c\epsilon_0} \frac{L}{\lambda} \frac{d_{\text{eff}}^2}{n_2 n_1^2} \frac{1}{\Delta k L} \quad (5.5)$$

となる。逆変換周期  $2L_c = 2\pi/\Delta k$  が群速度不整合長  $L_{\text{GVM}} = \tau c |n_{g2} - n_{g1}|^{-1}$  に関して  $2L_c = L_{\text{GVM}}$  の関係を満たすとき、最大の非線形屈折率効果が得られると考える。80 fs パルスに対して、 $2\pi/\Delta k = L_{\text{GVM}}$  (type 0) = 0.30 mm を代入すると、

$$n_2^{\text{casc}} (\text{type 0}) = 2.5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W} @ 1560 \text{ nm}$$

が得られる。一方、タイプ I の場合には群速度が一致しているため、実効的な非線形性の大きさはむしろ素子長  $L$  で制限される。最大の位相シフトは  $|\Delta k L| \sim \pi$  の条件下で発生するため、 $|\Delta k L| = \pi$ 、 $L = 10 \text{ mm}$  を代入することで次のような値が得られる。

$$n_2^{\text{casc}} (\text{type 1}) = 4.3 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W} @ 1560 \text{ nm}$$

これは実験値とよく一致している。また、タイプ 0 における非線形屈折率の評価値よりも若干ではあるが大きい。パルスが短くなればなるほど群速度不整合の問題が厳しくなるため、よりタイプ I の優位性が高まると推測できる。例えば、群速度不整合によって時間的に歪んだ位相シフトは非線形チャープを生み出し、光ソリトン圧縮ではその性能を低下させる。

## 5.4 ソリトン圧縮実験

### 5.4.1 基本的な考え方

ソリトンのパルス圧縮の基本的な考え方は、カスケード非線形効果と媒質の群速度分散とのバランスを利用する、というものである。また、ある初期条件からソリトン状態へと変化するプロセスをパルス圧縮に利用するという考え方もある。特に、今のような群速度整合条件下では、第2高調波がある程度のエネルギーを担って相互トラップソリトンを形成できるため、その形成過程においても基本波と高調波の同時パルス圧縮が期待できる。実際、2次非線形媒質中での伝搬を記述する結合波方程式には各種条件に応じた相互トラップソリトン解が存在する。

PPMgLN を用いて中心波長 1560 nm におけるパルス圧縮を実現するためには、タイプ0相互作用 ( $e:e+e$ ) とタイプI相互作用 ( $e:o+o$ ) という2つのアプローチがある。前節で示した通り、非線形光学定数の大きさと群速度不整合長との兼ね合いから、100 fs 程度のパルスにおけるカスケード非線形効果はタイプIの方が若干大きくなり、さらにパルス幅が短くなればタイプIの優位性が大きくなる。そこで本研究ではタイプI配置を用いてソリトン圧縮を行った。

基本波波長 1560 nm のとき、タイプI相互作用では基本波・高調波ともに正常分散領域に入る。100 fs パルスに対する分散長  $L_D = \tau^2(d^2k/d\omega^2)^{-1}$  は基本波に対して 33 mm、第2高調波に対して 9.8 mm である。2.4 節で述べたとおりソリトンの生成条件は  $\Delta k < 0$  の領域にもまたがっているが、ここでは基本的に負の非線形性と正常分散をバランスさせるパルス圧縮を目指す。2次非線形光学ソリトンは基本波と第2高調波が互いにトラップしあって伝搬するため、実効的な分散長はそれぞれの分散長の間になるであろう。本実験で用いた素子長 10 mm では定常的なソリトン伝搬の観測は困難であるが、以下に示すようにソリトンの形成過程を用いることで効率的なパルス圧縮が十分可能であることを、理論・実験両面から実証した。

### 5.4.2 実験結果

光ソリトン圧縮実験に用いた素子は位相シフト測定に用いたものと同じく、厚み 0.5 mm、長さ 10 mm、分極反転周期  $\Lambda = 20.4 \mu\text{m}$  である。光源はフェムト秒光パラメトリック増幅システム (SpectraPhysics OPA-800C) であり、パルス幅 110 fs、繰り返し周波数 1 kHz、パルスエネルギー 30  $\mu\text{J}$ 、中心波長 1560 nm となるように調整した。光学系は図 5.3 に示したのと同じである。ソリトン圧縮に用いる非線形位相シフトの符号は負であるが、これは同時にセルフデフォーカスを引き起こし、伝搬とともに光強度を低下させてしまう。これを避けるため、

素子をビームウェストではなくビームが収束している途中で半値全幅が  $300\text{ }\mu\text{m}$  の位置に配置した。実効的な波数不整合量  $\Delta k$  は素子温度を  $\pm 0.1\text{ }^\circ\text{C}$  以内に制御することにより高精度に制御した。基本波の透過率は SHG カットフィルターと PbS 光導電素子を用いて測定した。また、透過した基本波・高調波のスペクトルおよび強度相関を分光器と SHG 強度相関計を用いて測定した。位相整合許容バンド幅を考え、基本波の強度相関測定には厚み  $1.0\text{mm}$  の BBO 結晶を、SHG の測定には厚み  $0.1\text{mm}$  の BBO 結晶を用いた。

ピーク強度  $9, 18\text{ GW/cm}^2$  の場合の基本波透過率を図 5.8 に示す。図から見てとれるように、基本波の減衰は  $\Delta k$  に対して非対称な依存性を示している。平面波近似のもとでの数値計算結果をそれぞれ点線と破線で示した。 $\Delta k > 0$  の領域では実験結果との一致は良いが、 $\Delta k < 0$  では大きくずれている。数値計算で  $\Delta k < 0$  の場合の伝搬長依存性を注意深く観察すると、SHG 変換および逆変換のエネルギーのやりとりが長い伝搬長にわたり続くことがわかった。これが図 5.8 に示されている  $\Delta k$  に対して振動する振る舞いに反映されている。一方、 $\Delta k < 0$  の領域では伝搬とともにそのような振動が小さくなっていく。 $\Delta k < 0$  の領域での理論と実験が大きくずれる原因は、空間的効果であろうと考える。本実験では、 $\Delta k > 0$  でのセルフデフォーカスを打ち消すようにビームが収束している位置に素子を置いている。 $\Delta k < 0$  の領域で自己収束効果が起こるとビーム径が大きく変化し、空間的に急峻に変化する強度分布のせいで平面波近似から大きく外れると考えられる。ここでは主に  $\Delta k > 0$  でのソリトン効果に興味があるため、 $\Delta k < 0$  での基本波透過率の相違に関しては深く立ち入らないことにする。

測定中、SHG とともに第 3 高調波および第 4 高調波が観測されたが、これらのエネルギーは入射強度  $1\text{--}30\text{ GW/cm}^2$ 、QPM 温度付近で 5% 以下であった。つまり、測定した範囲では基本波の減衰はほとんど全て SHG に変換されたと考えてよい。

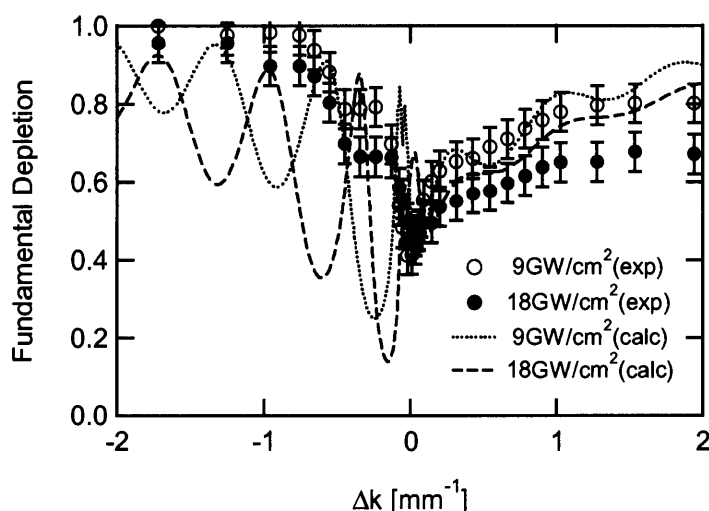


図 5.8 基本波透過率の  $\Delta k$  依存性（ポンプ光強度のピーク値は  $9, 18\text{ GW/cm}^2$ ）

次に光強度および素子温度を変化させながら透過パルスの強度自己相関測定を行った。図 5.9(a)(b)に  $\text{sech}^2$  関数を仮定して評価した基本波・高調波のパルス幅を  $\Delta k$  に対してプロットした。予測どおり、 $0 < \Delta k < 0.5 \text{ mm}^{-1}$  の領域で基本波・高調波の同時パルス圧縮が実現されていることがわかる。圧縮された基本波は、小さな  $\Delta k$  条件ではパルス幅が短くなるが比較的大きなペデスタル成分をもち、大きな  $\Delta k$  条件ではパルス幅は比較的広いがペデスタルは小さい、という傾向をもっていた。これに対し、SHG パルスは  $0 < \Delta k < 0.5 \text{ mm}^{-1}$  の範囲でほぼ一定のパルス幅とペデスタルをもつ。

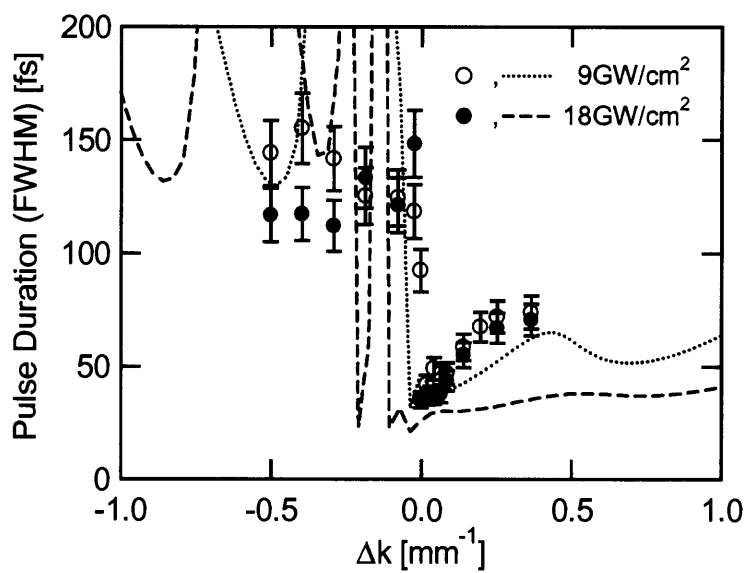
点線および破線で示した数値計算結果は定性的には実験結果と一致するが、数値計算ではさらに高い圧縮比、すなわち  $0 < \Delta k < 0.5 \text{ mm}^{-1}$  で約 25 fs への同時パルス圧縮を示し、またところどころで急峻なパルス幅の変化を示している。ソリトンを形成する過程ではパルスが複数ピーク構造に分かれていく場合があるが、数値計算ではパルス幅を単純な半値全幅として評価しているため、このような現象が鋭いパルス幅の変化として現れるのである。

結局、光ピーク強度  $18 \text{ GW/cm}^2$ 、波数不整合量  $\Delta k \sim 0.1\text{--}0.2 \text{ mm}^{-1}$  の条件で、35-40 fs への基本波・高調波の同時パルス圧縮を、パルスエネルギー比 1:1 で達成した。このときの基本波・高調波圧縮パルスのスペクトルを図 5.10 (a)(b)に、スペクトルから求めたフーリエ限界パルスの強度自己相関波形を(c)(d)に、実際に測定した SHG 強度自己相関波形を(e)(f)にそれぞれ示す。図中に示したとおり、基本波と高調波のパルス幅は  $\text{sech}^2$  関数形仮定することによりそれぞれ 35 fs および 37 fs と評価した。

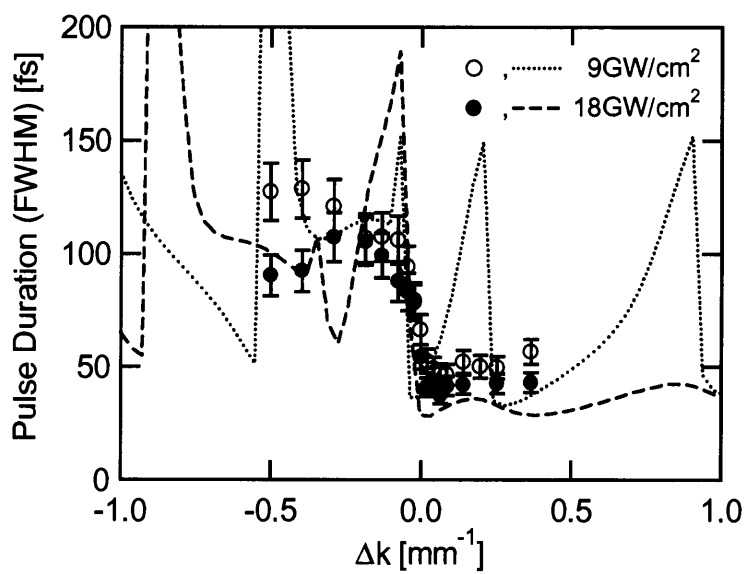
以上のように長さ 10 mm の PPMgLN 素子を用いて基本波・高調波の~35 fs への同時パルス圧縮を実現した。また、このときのエネルギー比はおよそ 1:1 であった。図 5.10 に示したような圧縮パルスの強度自己相関波形やスペクトルはあまりきれいではないが、パルス品質やパルス圧縮比は、素子長や分極反転周期パターンを最適化することで改善できるであろう。

本章で示したパルス圧縮技術は、1560 nm で発振するモードロック Er: fiber レーザーのパルス圧縮器として有用である。現在市販されているレーザーの典型的な出力は、パルスエネルギー 1nJ、パルス幅 300 fs である。コア面積  $25 \mu\text{m}^2$  の導波路を PPMgLN において設計すればピーク強度は  $\sim 20 \text{ GW/cm}^2$  となり、効率的なパルス圧縮が期待できる。





(a)



(b)

図 5.9 (a)基本波および (b)高調波のパルス半値全幅の $\Delta k$  依存性  
(ポンプ光強度：9、18  $\text{GW}/\text{cm}^2$ )

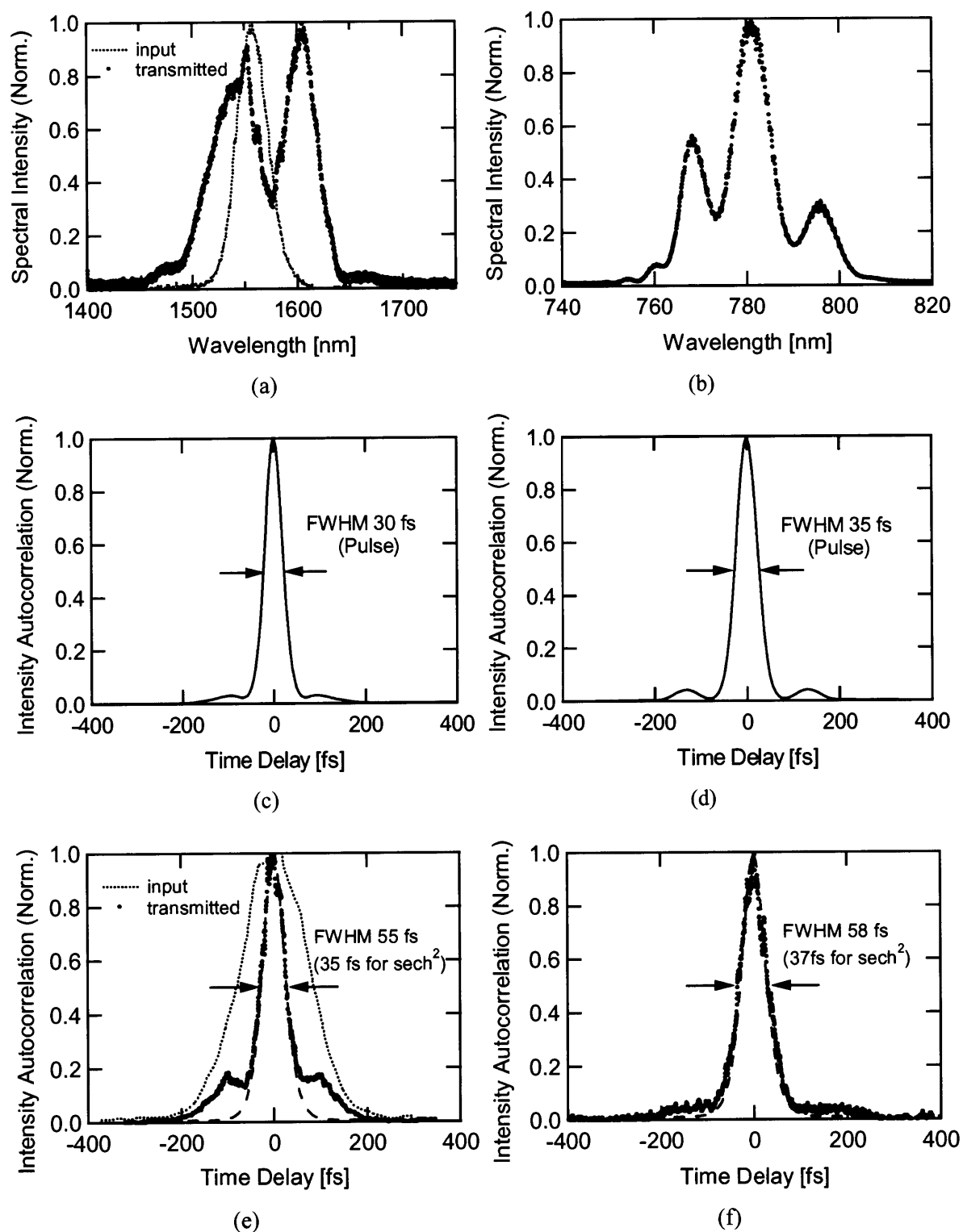


図 5.10 (a)基本波および (b)高調波のスペクトル強度

(c)基本波および (d)高調波のスペクトル強度から計算した強度自己相関波形

(e)基本波および (f)高調波の SHG 強度自己相関波形

## 5.5 考察

### パルス圧縮過程の数値計算

以上示したとおり、わずか 10mm の素子を用いて 110 fs の基本波パルス入力に対し、~35 fs に圧縮された基本波・高調波パルス発生に成功した。このパルス圧縮過程およびこの素子中のパルス伝搬特性をより深く知るため、ピーク光強度・位相不整合量・伝搬長を変化させて数値計算を行ってみよう。

まず前節に示した実験とほぼ同じ条件 ( $I_0=18\text{GW}/\text{cm}^2$ ,  $L=10\text{ mm}$ ,  $\Delta k\sim 0.2\text{mm}^{-1}$ ) での数値計算結果を示す。基本波・高調波エネルギーの伝搬長依存性を図 5.11(a)に、またパルス幅の伝搬長依存性を(b)に示す。伝搬の初期過程では明確なエネルギーのやりとりを示すが、次第に正味のエネルギー移行が小さくなる。一方、パルス幅は基本波・高調波ともに振動しながら約 30 fs に圧縮されていく。出力された基本波・高調波の時間強度波形およびスペクトル強度を図 5.11(c-f)に示す。基本波は比較的きれいな時間強度波形をもつが、第2高調波は大きなペデスタルを有する。基本波に関してはスペクトル、時間波形ともに実験結果とよく一致しているのに対し、SHG パルスに関してはむしろ計算結果の方が大きなペデスタルをもつ。

次に、より大きな波数不整合量条件  $\Delta k=2.7\text{ mm}^{-1}$  で長さ 20 mm 伝搬させた場合の挙動を調べる。エネルギー変換およびパルス幅の伝搬長依存性をそれぞれ図 5.12(a) (b)に示した。図 5.11 と同様、パルス幅は基本波・高調波ともに圧縮されていくが、 $\Delta k$  が大きいとため比較的緩やかにパルス幅が約 30 fs まで圧縮されている。このときの時間強度波形とスペクトルを図 5.12(c-f)に示す。図 5.11 と比べると基本波・高調波ともに圧縮パルスのペデスタルが小さく、パルス品質としては向上している。このように、大きな位相不整合かつ長い相互作用長でパルス圧縮過程を進めた方がパルス品質は向上する。ただし、分散長よりも十分長い素子長が確保できればこの限りでなく、位相整合付近でもソリトン伝搬をすることによって良好なパルス品質が得られることを付け加えておく。

さらに、十分相互作用が長い場合の伝搬を調べる。図 5.13 (a)(b)にそれぞれ  $\Delta k=0.1, 1.0\text{ mm}^{-1}$  の場合について、長さ 100 mm にわたる伝搬中のパルス幅変化を示す。基本波・高調波ともに距離に応じてパルス幅を振動させながら圧縮され、次第に定常的なソリトン伝搬へと近づいていく。ここで  $\Delta k$  が大きい方がファイバーの高次ソリトンに似た振動的な振る舞いを顕著に示す。伝搬中に得られる最短パルス幅は約 25 fs である。この挙動から推測すると、実験で実現したパルス圧縮はこのソリトン形成過程を利用したものであると考えられる。

図 5.14(a)(b)にそれぞれ  $\Delta k=0.1, 1.0\text{ mm}^{-1}$  の場合について、長さ 10 mm 伝搬した後のパルス

幅の入射光強度依存性を、(c)(d)に同じく  $\Delta k = 0.1, 1.0 \text{ mm}^{-1}$  の場合について、長さ 100 mm 伝搬した後のパルス幅の入射光強度依存性を示す。 $\Delta k = 0.1 \text{ mm}^{-1}$  かつ  $L = 10 \text{ mm}$  とき、入射ピーク強度が  $11 \text{ GW/cm}^2$  以上では安定して基本波・高調波双方とも  $\sim 30 \text{ fs}$  まで圧縮されることがわかる。実験値もおおよそ数値計算の結果と適合する。また図 5.14 (c)の結果から、100 fs パルスに対する基本ソリトン伝搬の閾値強度は  $\Delta k = 0.1 \text{ mm}^{-1}$  において約  $0.2 \text{ GW/cm}^2$  であることがわかる。

### ソリトン閾値強度の比較

大きな群速度分散はソリトン伝搬の閾値強度を引き上げる反面、ソリトン効果を発現させる伝搬長を短くする。そのため、閾値強度の大小だけでは素子性能の優劣を判断できない。しかしここでは大雑把な比較のため、波長 1560 nm での基本ソリトン閾値強度をファイバーソリトンおよび PPMgLN 素子のタイプ 0 相互作用について見積もってみよう。

第2章で示したとおり、ファイバー中の N 次ソリトン条件は式(2.27)で与えられる。石英系シングルモードファイバーの典型的な値、すなわち屈折率  $n_0 = 1.45$ 、非線形屈折率  $n_2 = 3.18 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ 、群速度分散  $\ddot{k} = -2 \times 10^{-2} \text{ fs}^2/\mu\text{m}$  を用いると、パルス幅 100 fs に対する基本ソリトン閾値強度は  $4.7 \text{ GW/cm}^2$  と評価される。一方、波長 1560 nm でタイプ 0 相互作用を用いる場合、群速度不整合の影響を抑制するために大きな位相不整合条件を利用せざるを得ない。2.4 節で示したとおり、2 次非線形媒質中でも  $\Delta k L \gg 1$  の場合には基本波の伝搬は非線形シュレディンガー方程式に従い、ソリトン閾値は式(2.48)で与えられる。基本波波長 1560 nm における MgLN の物質定数を代入し、さらに  $2L_c = 2\pi/\Delta k = L_{\text{GVM}}$  の条件、すなわち  $\Delta k = 16.5 \text{ mm}^{-1}$  を用いると、パルス幅 100 fs に対する基本ソリトン閾値強度は  $\sim 0.23 \text{ GW/cm}^2$  となる。この値は上でみた  $\Delta k = 0.1 \text{ mm}^{-1}$  におけるタイプ I 相互作用のソリトン閾値と同程度である。

### サブピコ秒パルスのソリトン圧縮

非常に小さなモードロック Er: fiber レーザーとの集積化を検討するため、パルス幅 300 fs、ピーク光強度  $7 \text{ GW/cm}^2$ 、 $\Delta k = 1.0 \text{ mm}^{-1}$ 、 $L = 35 \text{ mm}$  として計算を行った結果を図 5.15 (a-d)に示す。PPMgLN 素子長を 35 mm 程度まで確保すれば、300 fs の基本波入射から約 25 fs までパルス圧縮された基本波・高調波が得られることがわかる。

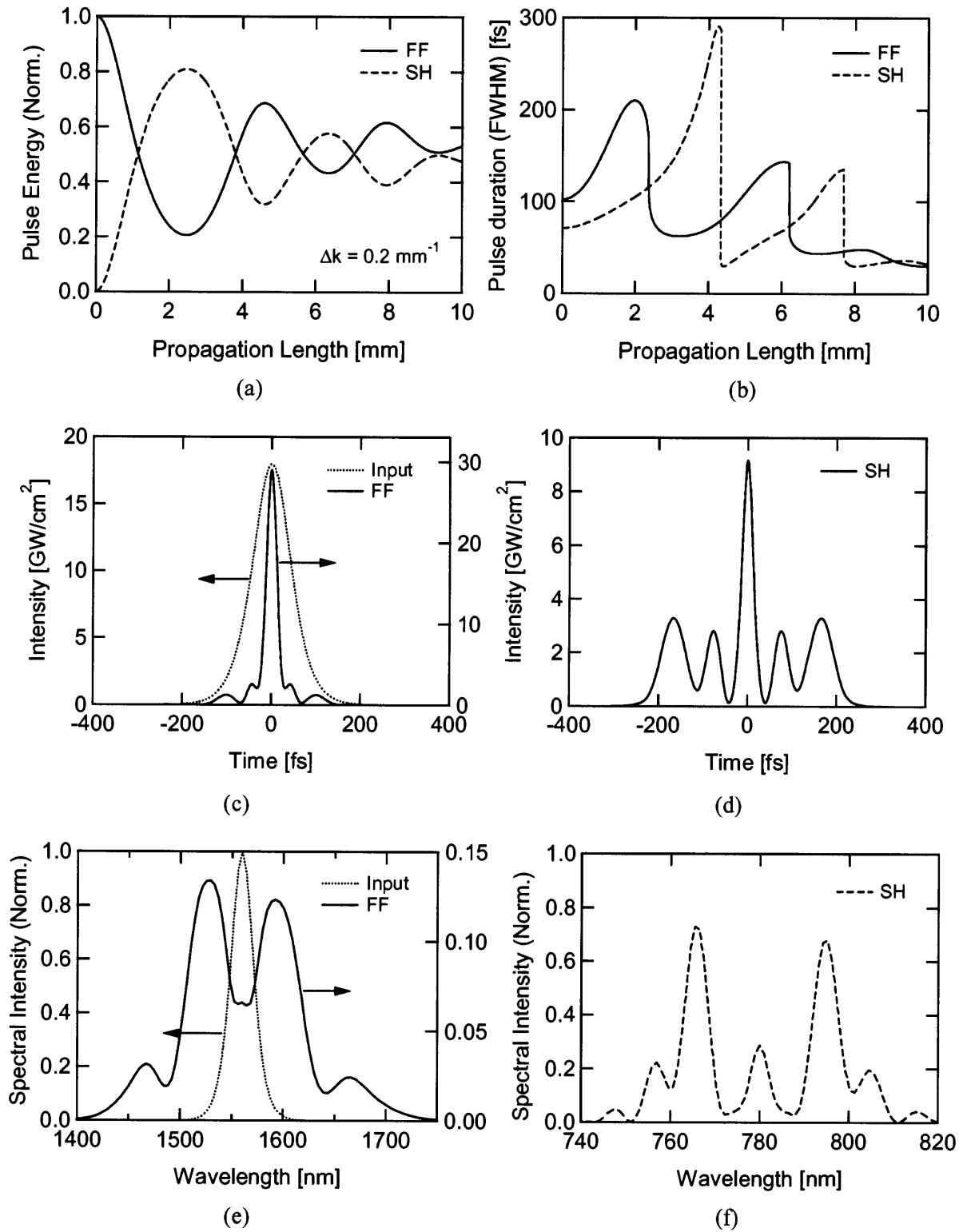


図 5.11 数値計算結果 (100 fs at FWHM,  $I_0 = 18 \text{ GW/cm}^2$ ,  $L = 10 \text{ mm}$ ,  $\Delta k \sim 0.2 \text{ mm}^{-1}$ )

(a) エネルギー移行の伝搬長依存性 (b) パルス幅の伝搬長依存性

(c) 基本波および(d) 高調波の時間強度波形、(e) 基本波および(f) 高調波のスペクトル強度

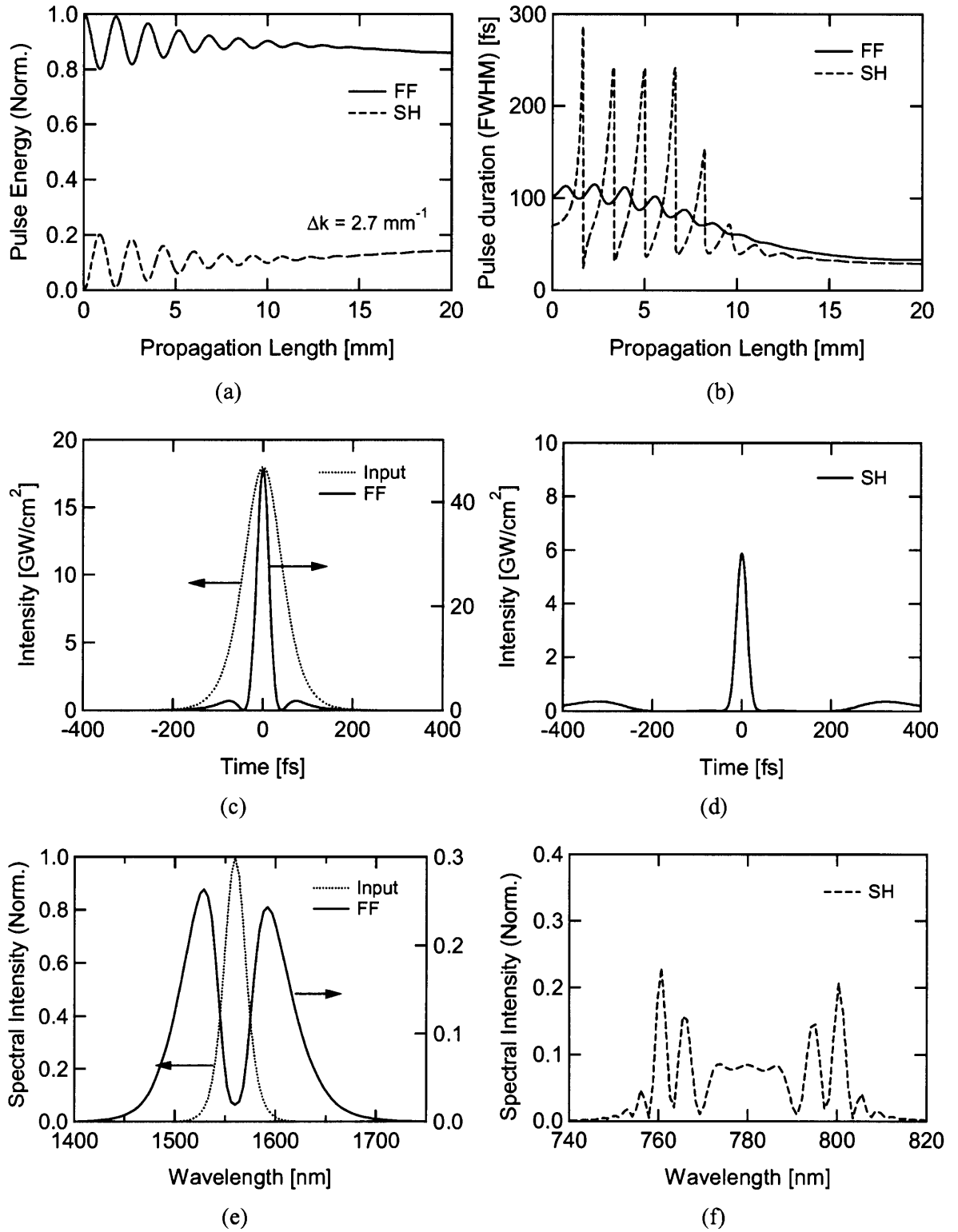
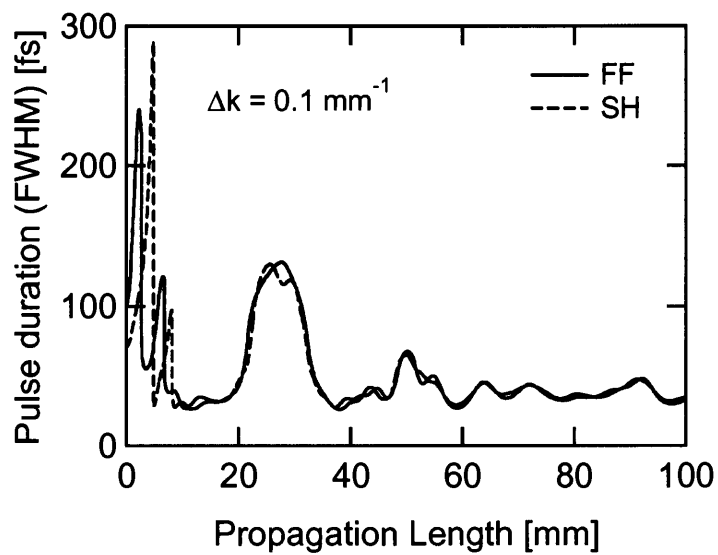


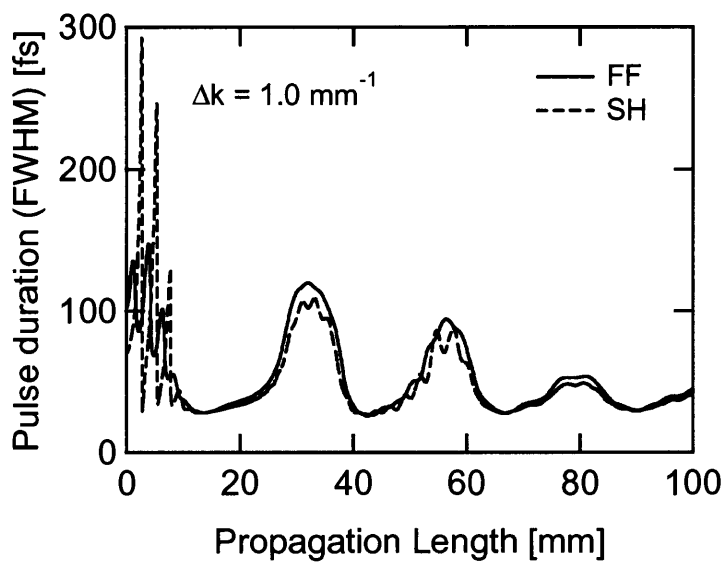
図 5.12 数値計算結果 ( $100 \text{ fs}$  at FWHM,  $I_0=18 \text{ GW/cm}^2$ ,  $L = 20 \text{ mm}$ ,  $\Delta k \sim 2.7 \text{ mm}^{-1}$ )

(a) エネルギー移行の伝搬長依存性 (b) パルス幅の伝搬長依存性

(c) 基本波および (d) 高調波の時間強度波形、(e) 基本波および (f) 高調波のスペクトル強度



(a)



(b)

図 5.13 数値計算結果：パルス幅の伝搬長依存性（100 fs at FWHM,  $I_0=18\text{GW}/\text{cm}^2$ ）

(a)  $\Delta k = 0.1 \text{ mm}^{-1}$  (b)  $\Delta k = 1.0 \text{ mm}^{-1}$

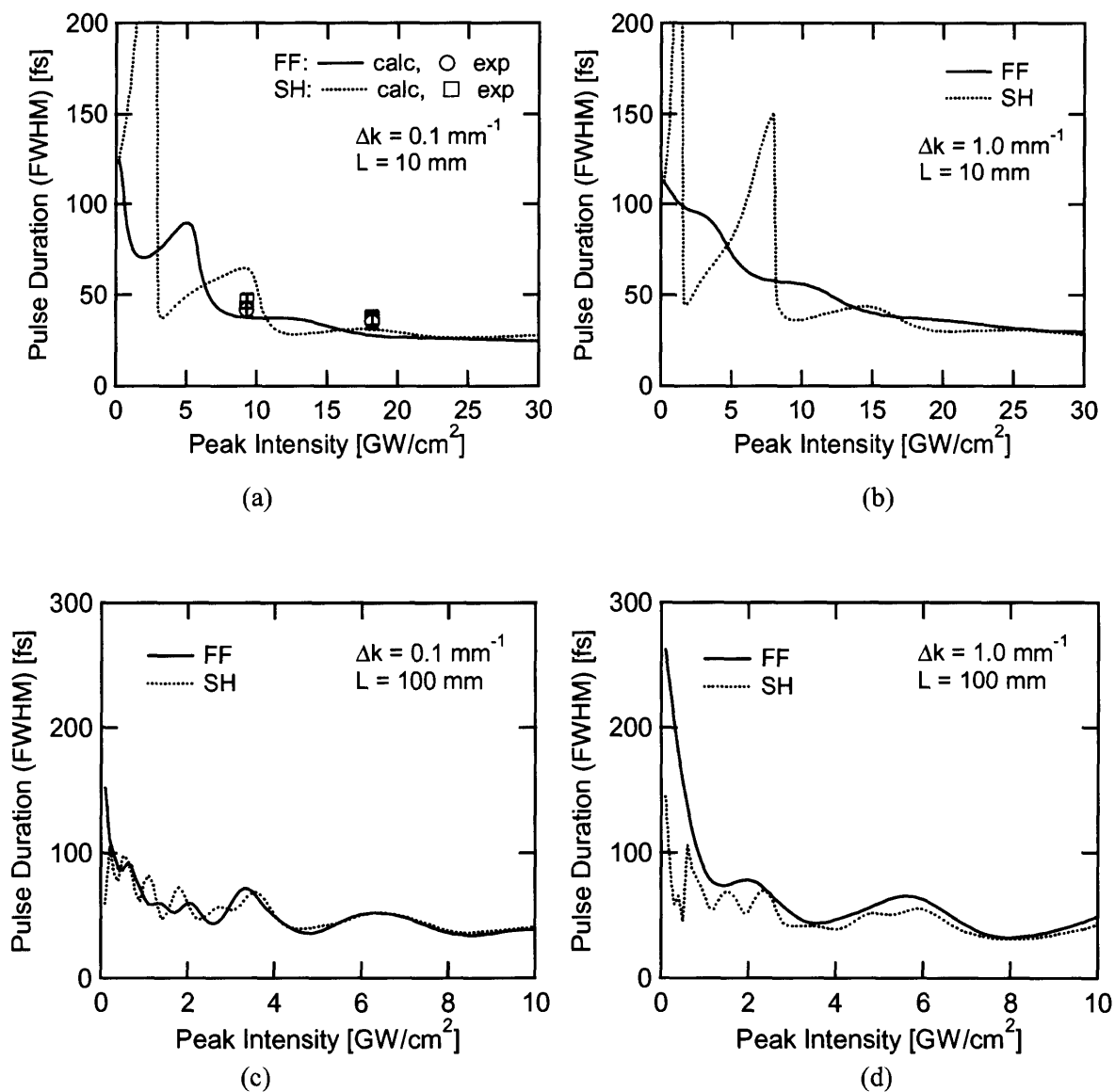


図 5.14 数値計算結果：パルス幅の入射ピーク強度依存性（100 fs at FWHM）

- (a)  $\Delta k = 0.1 \text{ mm}^{-1}$ ,  $L = 10 \text{ mm}$  (b)  $\Delta k = 1.0 \text{ mm}^{-1}$ ,  $L = 10 \text{ mm}$   
 (c)  $\Delta k = 0.1 \text{ mm}^{-1}$ ,  $L = 100 \text{ mm}$  (d)  $\Delta k = 1.0 \text{ mm}^{-1}$ ,  $L = 100 \text{ mm}$



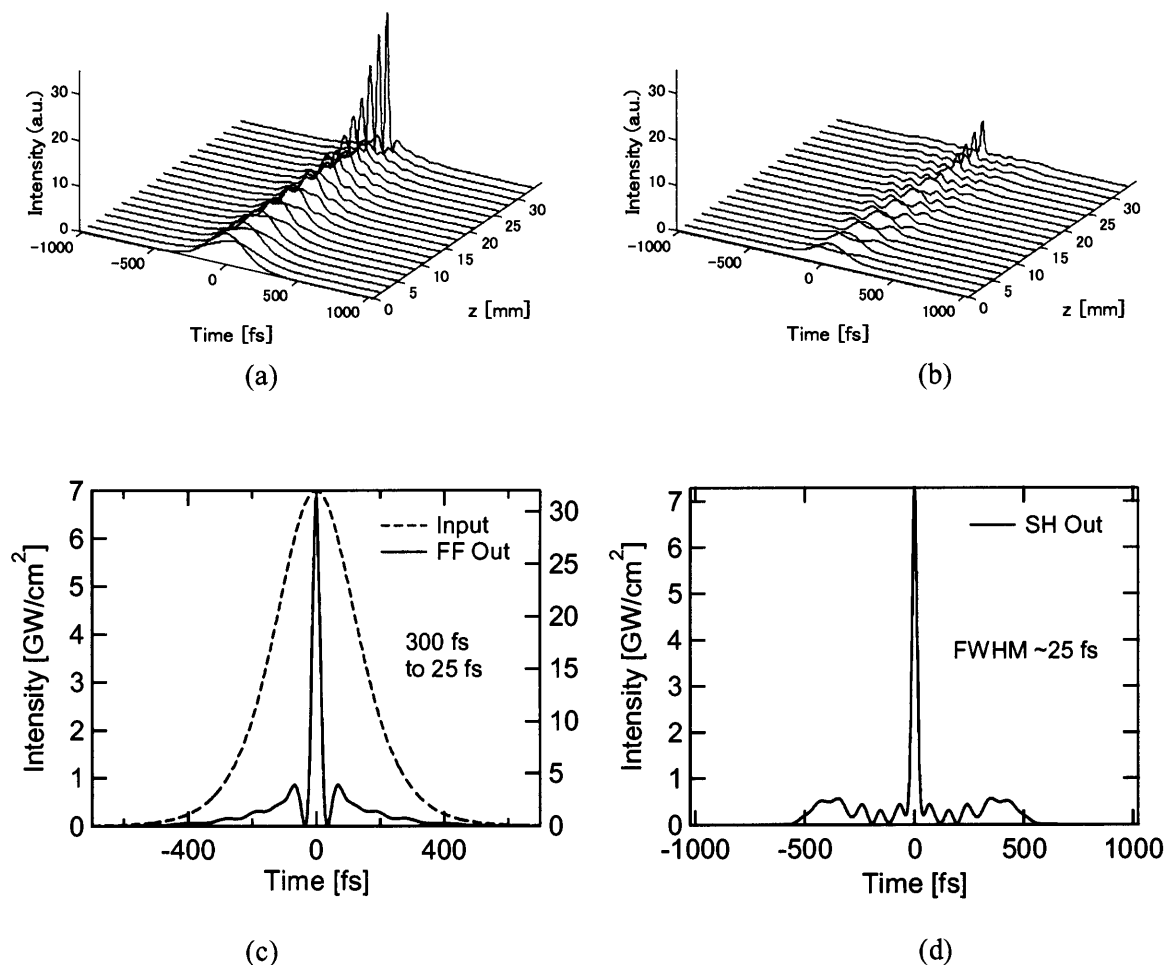


図 5.15 数値計算結果 : 300 fs at FWHM,  $I_0=7\text{GW}/\text{cm}^2$ ,  $\Delta k = 1.0 \text{ mm}^{-1}$

(a) 基本波および (b) 高調波の時間強度波形の伝搬長依存性

(c) 基本波および (d) 高調波の時間強度波形

## 5.6 まとめ

本章での成果をまとめる。

### 実効的非線形屈折率の測定

PPMgLN 素子における群速度整合条件を用いて大きな非線形屈折率効果を発現させた。パルス幅 80 fs、中心波長 1560 nm の光パルスにおいて、PPMgLN の非対角成分  $d_{32}$  を用いたカスケード非線形効果を測定し、実効的な非線形屈折率として  $-2.9 \times 10^{-14} \text{cm}^2/\text{W} \sim +3.3 \times 10^{-14} \text{cm}^2/\text{W}$  を得た。これはフェムト秒カスケード非線形効果として報告された中では最大である。特に動作波長が通信波長帯であるため、測定された非線形性は全光処理、光カー効果補償、位相共役波発生などに有用であるといえる。

### 基本波・高調波の同時パルス圧縮の実現

長さ 10mm の PPMgLN 素子を用いてパルス幅 110 fs、中心波長 1560 nm の基本波入力から、ともに約 35 fs へとパルス圧縮される、基本波・高調波同時ソリトン圧縮を達成した。また、数値計算によりモードロック Er: fiber レーザーとの集積化の可能性を示した。

## 参考文献

- [1] N. E. Yu, J. H. Ro, M. Cha, S. Kurimura, and T. Taira, “Broadband quasi-phase-matched second-harmonic generation in MgO-doped periodically poled  $\text{LiNbO}_3$  at the communications band,” *Opt. Lett.* **15**, pp.27-29 (2002).
- [2] G. J. Edwards, M. Lawrence, “A temperature-dependent dispersion equation for congruently grown lithium niobate,” *Opt. Quant. Electron.* **16**, pp.373-374 (1984).
- [3] I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, and R. Ito, “Absolute scale of second-order nonlinear-optical coefficients” *J. Opt. Soc. Am B* **14**, pp.2268-2294 (1997).
- [4] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Stryland, and M. Sheik-Bahae, “Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and  $n_2$  in wide bandgap solids,” *IEEE J. Quant. Electron.* **32**, pp.1324-1333 (1996).
- [5] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne, “Nonlinear refractive index of optical crystals,” *Phys. Rev. B* **39**, pp.3337-3350 (1989).
- [6] P. Vidakovic, D. J. Lovering, J. A. Levenson, J. Webjorn, and P. J. Russell, “Large nonlinear phase shift owing to cascaded  $\chi^{(2)}$  in quasi-phase-matched bulk  $\text{LiNbO}_3$ ,” *Opt. Lett.* **22**, pp.277-279 (1997).

## 第 6 章

# 非平行擬似位相整合配置を用いた 群速度整合法

### 6.1 はじめに

前章までの結論として、カスケード非線形効果を用いた光ソリトン圧縮の効率を本質的に左右する要因は、位相整合とともに群速度整合条件であることがわかった。前章で行ったソリトン圧縮は QPM 素子を用いているため、位相整合条件は任意に設定可能であるが、群速度整合条件は、本質的には屈折率分散から決められているものである。つまり、少し波長が異なると群速度整合条件は外れてしまうのである。本章では従来の QPM 相互作用と異なる、2 次元的な QPM を用いることで超短パルス波長変換過程において、任意の波長に対して擬似位相整合と群速度整合を両立させる新しい方法を提案する。この手法によれば通常的方式に比べ、許容バンド幅が波長 800 nm では 110 倍、波長 1550 nm では 32 倍に増大する。

超短光パルスの SHG 過程は非線形性、群速度、群速度分散などの影響が複雑に絡み合っ多彩な現象を示す。Sidick らはそのような現象を理論計算により明らかにした[1]。一般に、位相整合バンド幅は基本波・高調波の間の群速度不整合により決まる。そこで、通常は許容バンド幅を広く保つためにその変換効率を犠牲にして薄い結晶を用いる、というのが常套手段である。Martinez [2]はタイプ I 角度位相整合における群速度整合法を提案した。それを用いて、例えば Richman ら[3]は厚み 4 mm の BBO におけるタイプ I 角度位相整合において、中心波長 650 nm でバンド幅 85 nm の基本波を広帯域に SHG 変換した。

強誘電体 QPM 素子は大きな非線形光学定数と設計自由度をあわせもつため[4]、超短光パルス波長変換素子としても高い潜在能力をもつ。スタンフォード大学 Fejer 教授のグループの Arbore ら[5]は、非周期 QPM 素子を用いることでフェムト秒パルスの SHG 過程におけるスペクトルの狭帯域化を防いだ。しかしこの方法では本質的に群速度整合をしていないため、高いポンプ光強度では思惑のスペクトル応答を示さなくなる。前章で用いたような PPMgLN 中のタイプ I 相互作用を用いた通信波長での群速度整合は非常に有用である。しかしこの群速度整合条件は屈折率分散から与えられるものであり、使うことのできる非線形光学定数  $d_{32}$  は対角成分  $d_{33}$  の約 6 分の 1 の大きさである。

本章では 2 次元的な QPM 配置を用いることで任意の波長に対し、擬似位相整合と群速度整合を両立させる手法である。いわばこれは、Martinez の手法[2]をタイプ I 角度位相整合から、QPM 素子での手法に拡張するものである。本章ではまずこの手法の基本的な考え方を説明し、定式化を行う。次に PPLN に適用した場合の配置および許容バンド幅、性能指数の評価を行い、最後に PPLN 素子を用いた原理確認実験について述べる。

## 6.2 原理

2 次元的な QPM 条件の導出から始めよう。周期  $\Lambda$  の QPM 構造が図 6.1(a)に示すように伝搬方向から傾いている場合を考える。基本波と第 2 高調波がともに異常光線として直線偏光しており、光学軸 (c 軸) と垂直な x-z 平面内を伝搬している、タイプ 0 相互作用を考える。ここで基本波と高調波は格子ベクトルに対してそれぞれ、 $\alpha$  および  $\gamma$  だけ傾いて伝搬しているとしよう。基本波と高調波の伝搬方向の違い、すなわち空間的ウォークオフ角を  $\beta$  とする。このような傾斜した QPM 格子中の非平行な相互作用は、図 6.1(b)に示したような波数ベクトルダイアグラムで考えるとわかりやすい[4,6,7]。この図において、 $\mathbf{k}_1$ 、 $\mathbf{k}_2$ 、 $\mathbf{K}$  はそれぞれ基本波、高調波、QPM 格子の波数ベクトルである。また、 $\zeta$  は  $\mathbf{K}$  と  $\mathbf{z}$  の間の角度を示している。波数不整合量  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{K}$  はいま、伝搬方向  $z$  方向にとることにする。幾何学的な考察より、この波数不整合量はスカラーで表すと以下の式になる。

$$\Delta k = -2k_1 \cos(\zeta - \alpha) - K \cos \zeta + \sqrt{k_2^2 - [2k_1 \sin(\zeta - \alpha) + K \sin \zeta]^2}. \quad (6.1)$$

$\Delta k(\lambda_0 + \Delta\lambda)$  を基本波の中心波長  $\lambda_0$  のまわりでテイラー展開すると、次式のようになる。

$$\Delta k(\lambda_0 + \Delta\lambda) = \Delta k(\lambda_0) + \left. \frac{d\Delta k}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \Delta\lambda + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\Delta k}{d\lambda^2} \right|_{\lambda_0} (\Delta\lambda)^2 + \dots \quad (6.2)$$

それぞれの波長に関する微分値は式(6.1)を用いて計算できる。2 次元的な運動量保存則、す

なわち位相整合条件 $\Delta k(\lambda_0) = 0$  は角度 $\alpha$ または $\beta$  に関して解くことができ、

$$\cos \alpha = -\frac{K^2 + 4k_1^2 - k_2^2}{4Kk_1}, \quad (6.3)$$

$$\cos \beta = \frac{4k_1^2 + k_2^2 - K^2}{4k_1k_2}, \quad (6.4)$$

となる。もし QPM 格子への入射角が全スペクトル成分に対して一定ならば、すなわち角度 $\alpha$  が全ての周波数成分に対して一定ならば、位相整合条件は特定の1周波数成分に対してのみ 成り立つ。これは従来法である平行配置の QPM と同じ状況である。

もしもスペクトルごとに伝搬角を分散させ、式(6.2)の第2項を消去できれば群速度整合条件 $(d\omega/d\mathbf{k})_\omega = (d\omega/d\mathbf{k})_{\lambda_0}$ を満たすことができる。実際、位相整合条件 $(\Delta k)_{\lambda_0} = 0$ のもとで群速度整合条件 $(d\Delta k/d\lambda)_{\lambda_0} = 0$ を課すと、

$$\varepsilon = \frac{d\alpha}{d\lambda}\bigg|_{\lambda_0} = \frac{1}{4k_1K \sin \alpha} \left[ 4(2k_1 + K \cos \alpha) \frac{dk}{d\lambda}\bigg|_{\lambda_0} - k_2 \frac{dk}{d\lambda}\bigg|_{\frac{\lambda_0}{2}} \right], \quad (6.5)$$

のような必要条件が求まる。これがまさに、QPM と群速度整合を同時に成立させるために基本波に要求される、スペクトル線形角度分散である。同じ条件を角度 $\gamma = \alpha - \beta$  に関して表すと、次式のようになる。

$$\varepsilon' = \frac{d\gamma}{d\lambda}\bigg|_{\frac{\lambda_0}{2}} = \frac{1}{k_2K \sin \gamma} \left[ 8k_1 \frac{dk}{d\lambda}\bigg|_{\lambda_0} + (K \cos \gamma - k_2) \frac{dk}{d\lambda}\bigg|_{\frac{\lambda_0}{2}} \right]. \quad (6.6)$$

これは発生した第2高調波に誘起されるスペクトル線形角度分散であり、最終的にこれを補償して全てのスペクトル成分が平行に進むようなビームに直してやる必要がある。

基本波の減衰を無視した場合の位相整合許容バンド幅 $2\Delta\lambda$ は $\Delta k(\lambda_0 + \Delta\lambda)L = 0.886\pi$  [8]で与えられる。ここで  $L$  は相互作用長である。スペクトル角度分散が無い場合、位相整合許容バンド幅は式 (6.2) の1次の成分で決まり、

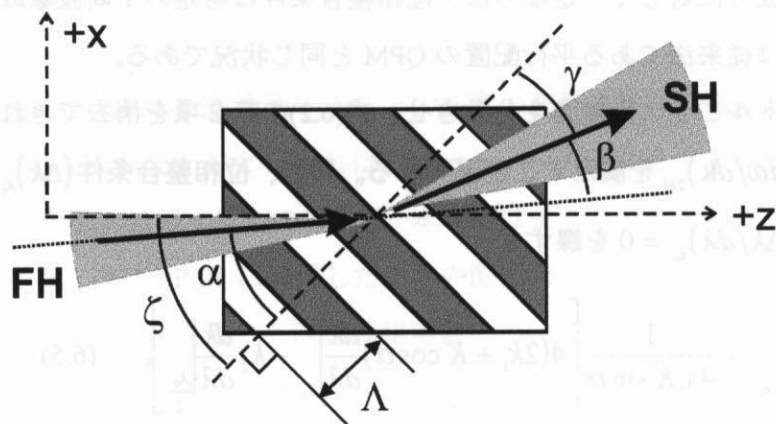
$$\Delta\lambda L = 0.886\pi \left\{ \left| \frac{d(\Delta k)}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \right\}^{-1}, \quad (6.7)$$

のように与えられる。また、式 (6.5) で示される角度分散を基本波に与えることができれば、 $\Delta k$  は波長に対する1次の成分をもたないため、許容バンド幅は式 (6.2) の2次の項で決まり、

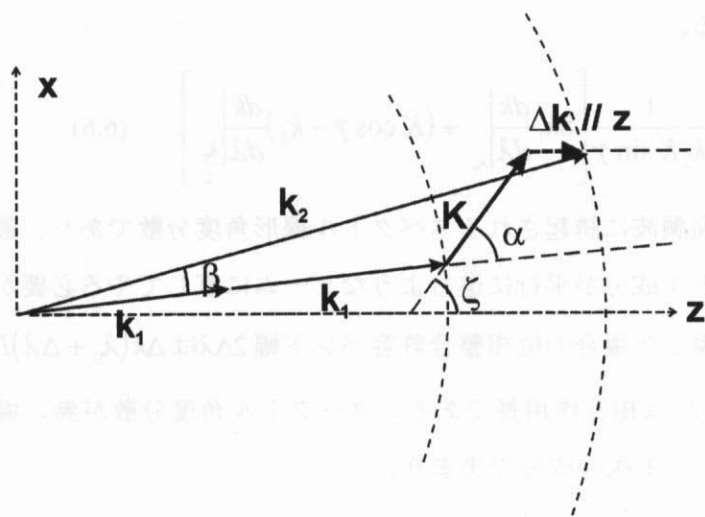
$$(\Delta\lambda)^2 L = 1.772\pi \left\{ \left| \frac{d^2(\Delta k)}{d\lambda^2} \right|_{\lambda_0} \right\}^{-1}, \quad (6.8)$$

で与えられる。

このように、位相整合バンド幅はスペクトル線形角度分散を与えることで大きく広帯域化されると予測できる。超短光パルスの SHG 過程では、群速度整合が成り立つため、変換効率が大きく向上すると考えられる。



(a)



(b)

図 6.1 (a)傾斜 QPM 格子における 2 次元的擬似位相整合配置および (b)その波数ベクトル表示

### 6.3 周期分極反転ニオブ酸リチウム結晶への適用例

前節で導いた群速度整合条件を PPLN に適用してみよう。以下の計算ではコングルエント LN のセルマイヤー方程式 [8] を用いた。まず、基本波波長  $1.55 \mu\text{m}$  の第2高調波発生過程における群速度整合条件を導出する。式 (6.3) を用いて計算した位相整合角  $\alpha$  を基本波波長に対してプロットした例を図 6.2 に示す。3つの曲線はそれぞれ異なる3つの規格化 QPM 周期  $R = \Lambda/\Lambda_0 = 0.3, 0.5, 0.7$  に対するものである。ここで通常の平行配置における QPM 周期  $\Lambda_0 = 17.8 \mu\text{m}$  を用いて規格化した。図に示されたとおり、QPM 角度  $\alpha$  は QPM 周期および波長の両方に依存する。QPM 角度  $\alpha$ 、空間ウォークオフ角  $\beta$ 、スペクトル角度分散  $\varepsilon$  および  $\varepsilon'$  のグレーティング周期依存性は2次元的な QPM 相互作用の特徴であり、この依存性を詳しく調べる必要がある。

波長  $1.55 \mu\text{m}$  の位相整合条件 (6.3, 6.4) から求められる角度  $\alpha$  と  $\beta$  を規格化グレーティング周期  $R$  に対してプロットした例を図 6.3 (a) に示す。図からわかるとおり、角度  $\alpha$  は  $R$  が1に近づくにつれて単調に減少する。空間ウォークオフ角  $\beta$  も同じく  $R$  に関する単調減少関数であり、 $R < 0.1$  では急激に減少する。群速度整合に必要な、スペクトル角度分散  $\varepsilon = d\alpha/d\lambda$  および  $\varepsilon' = d\beta/d\lambda$  は式 (6.5, 6.6) から得られ、それを  $R$  の関数として図 6.3(b) にプロットした。 $\varepsilon$  や  $\varepsilon'$  の値は  $R$  とともに単調増加し、 $R$  が1に近づくとき無限大に発散する。ここで  $R = 1$  は通常の平行な QPM 配置である。このように、群速度整合条件を表すパラメーター  $\alpha, \beta, \varepsilon, \varepsilon'$  はグレーティング周期を選ぶことで制御できるのが本手法の大きな特徴である。

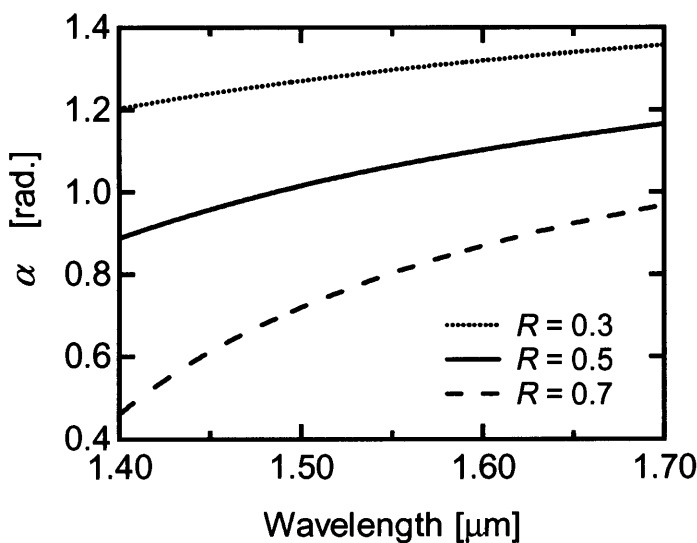
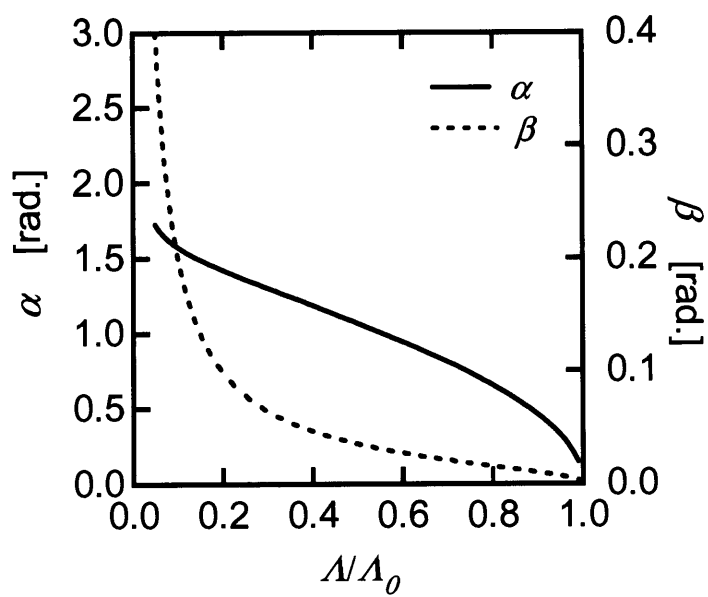
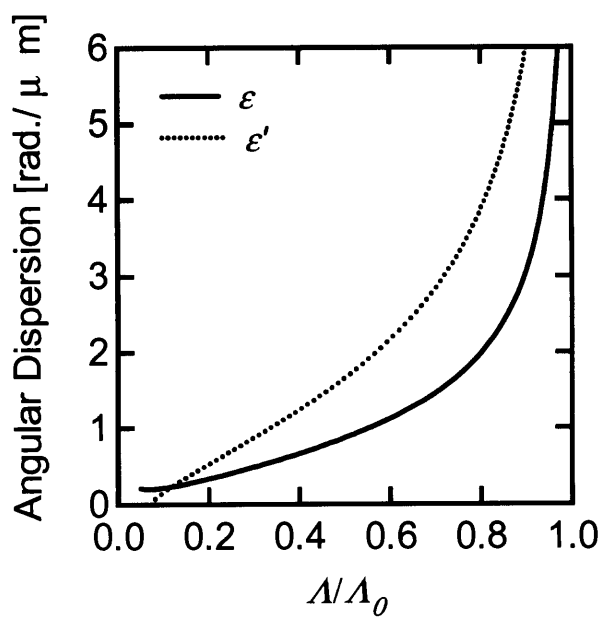


図 6.2 非平行配置における波長  $1.55 \mu\text{m}$  付近での擬似位相整合角  
3つの曲線はそれぞれ、異なる規格化格子周期  $R = \Lambda/\Lambda_0 = 0.3, 0.5, 0.7$  に対応する。



(a)



(b)

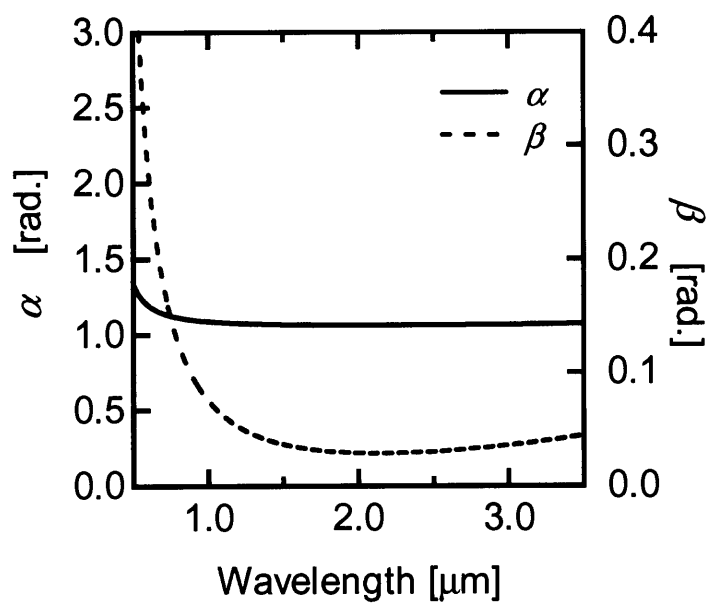
図 6.3 波長  $1.55 \mu\text{m}$  における(a)角度 $\alpha, \beta$  および (b)角度分散  $\epsilon, \epsilon'$  の規格化格子周期依存性



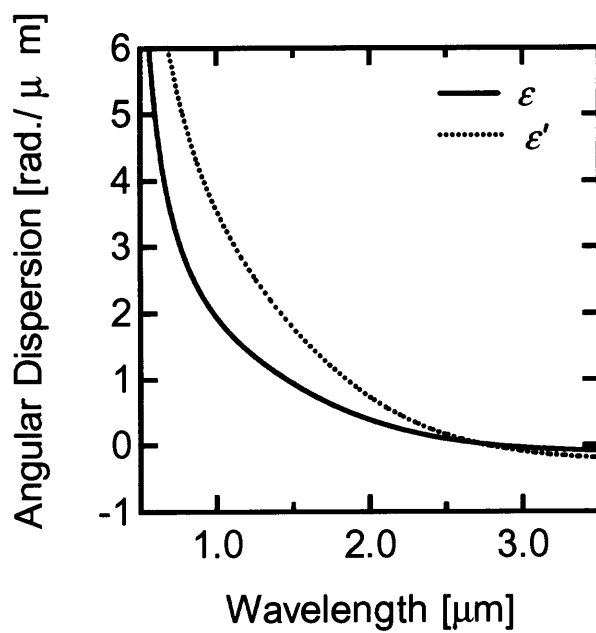
次にいろいろな動作波長での特性の違いを調べる。全ての波長において、規格化グレーティング周期  $R$  は 0.5 に統一して比較する。式 (6.3-6.6) を用いて導出された群速度整合条件の各パラメーター  $\alpha, \beta, \varepsilon, \varepsilon'$  をそれぞれ図 6.4 (a) (b) に示す。角度  $\alpha$  および  $\beta$  は波長に対してなだらかに変化するが、 $0.8 \mu\text{m}$  以下では急峻に変化する。スペクトル角度分散  $\varepsilon$  および  $\varepsilon'$  は波長に対して単調減少し、波長  $2.8 \mu\text{m}$  でゼロを通る。これはこの波長で通常の平行配置における群速度整合が成立していることを示している。

さて、では次に通常の 1 次元 QPM 相互作用とこの 2 次元相互作用とで、位相整合許容バンド幅を比較してみよう。図 6.5 (a) に式 (6.7) から求められる、通常の 1 次元 QPM における許容バンド幅パラメーター  $\Delta\lambda L$  を波長の関数として示す。ここで  $\Delta\lambda$  は相互作用長  $L$  の場合の位相整合許容バンド幅である。波長  $2.8 \mu\text{m}$  あたりでの鋭いピークは屈折率分散からそもそも決まる群速度整合条件に対応している。ここで式 (6.7) では  $\Delta k$  の 1 次までで近似をしているためにこのような発散が起こっているに過ぎないことを注意しておく。図 6.5 (b) に式 (6.8) で与えられる、2 次元 QPM 相互作用でスペクトル角度分散を与えた場合の許容バンド幅パラメーター  $(\Delta\lambda)^2 L$  を波長の関数として示す。

例えば、長さ  $L = 10 \text{ mm}$  の通常の 1 次元 QPM 素子における、波長  $0.8 \mu\text{m}$  での許容バンド幅は  $0.046 \text{ nm}$  であり、波長  $1.55 \mu\text{m}$  での許容バンド幅は  $1.1 \text{ nm}$  である。一方、2 次元配置で群速度整合条件下では、波長  $0.8 \mu\text{m}$  では許容バンド幅が  $4.9 \text{ nm}$ 、波長  $1.55 \mu\text{m}$  では  $35 \text{ nm}$  と計算される。これより、許容バンド幅は、波長  $0.8 \mu\text{m}$  では 110 倍に、波長  $1.55 \mu\text{m}$  では 32 倍に増大することがわかる。



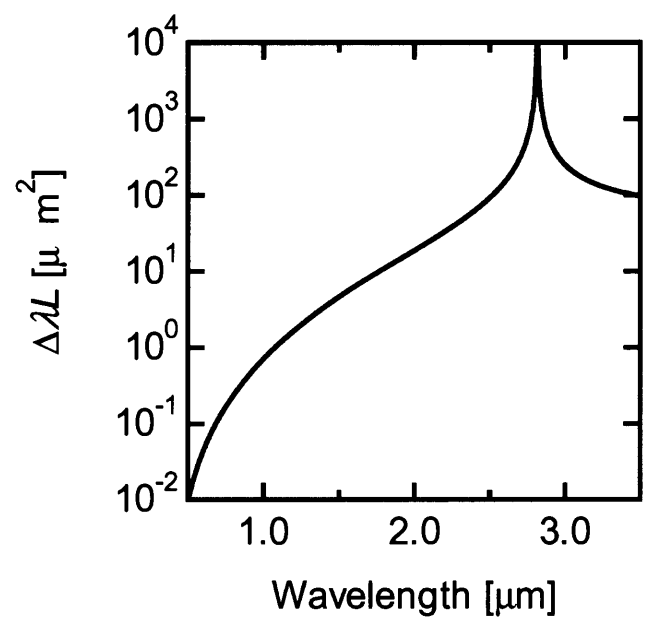
(a)



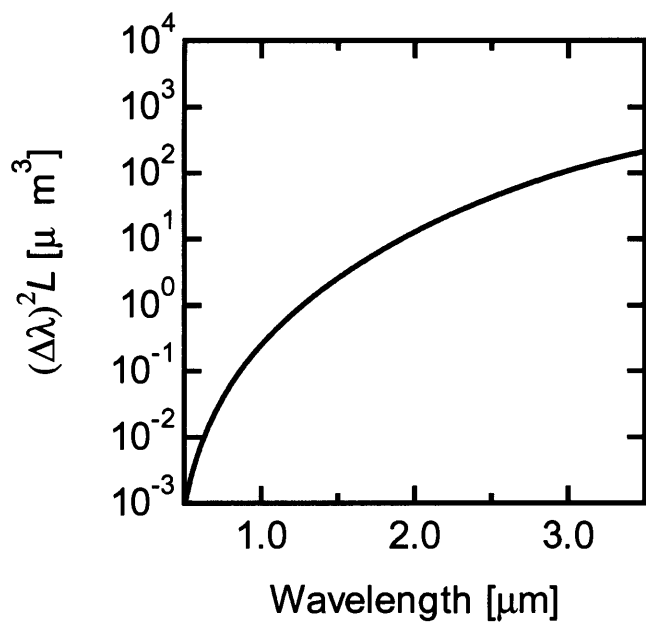
(b)

 図 6.4 (a)  $\alpha, \beta$  および (b)  $\epsilon, \epsilon'$  の動作波長依存性

全ての波長について規格化格子周期  $R$  は 0.5 に固定して計算している。



(a)



(b)

図 6.5 (a) 1 次元 QPM における許容バンド幅 $(\Delta\lambda)L$  および (b) 2 次元 QPM 配置で適切な角度分散を与えた場合の許容バンド幅  $(\Delta\lambda)^2 L$  の動作波長依存性

## 6.4 考察

### ビームを集束をしない極限での変換効率

時間幅 100 fs のパルスの SHG 変換効率 $\eta$ をそれぞれ 1 次元および 2 次元配置で比較する。ポンプ光の減衰が無視でき、かつ SHG 変換過程においてスペクトル狭帯域化が起こらない、すなわち許容バンド幅制限を満たす、という制約条件の下での変換効率 $\eta$ は、弱いフォーカシングの極限では次のように与えられる。

$$\eta \propto (d_{\text{eff}}^2 / n_1^2 n_2) L_{\text{max}}^2 \quad (6.9)$$

ここで、 $n_1$  および  $n_2$  はそれぞれ基本波、高調波の屈折率、 $d_{\text{eff}}$  は実効的非線形光学定数、 $L_{\text{max}}$  は 100 fs パルスのバンド幅がぎりぎり保たれる特性長である。1 次元 QPM では、 $L_{\text{max}}$  はちょうど群速度不整合長  $L_{\text{GVM}} = \pi |n_{g2} - n_{g1}|^{-1}$  に相当する。1 次元と 2 次元配置の変換効率を比べると、用いる非線形光学定数のテンソル成分は同一であるため、唯一の違いはバンド幅制限の特性長  $L_{\text{max}}$  である。この最大相互作用長  $L_{\text{max}}$  は図 6.5(a)(b)に示された  $\Delta\lambda L$  および  $(\Delta\lambda)^2 L$  において許容バンド半値全幅  $2\Delta\lambda$  を 100 fs パルスのスペクトル半値全幅 (4.7 nm at 0.8  $\mu\text{m}$ 、35 nm at 1.55  $\mu\text{m}$ ) と等しいという条件から得られる。そうして計算すると、1 次元での  $L_{\text{max}}$  は 0.049 mm at 0.8  $\mu\text{m}$ 、また 0.30 mm at 1.55  $\mu\text{m}$  である。これに対し、2 次元で群速度整合を満たした場合は、2.7 mm at 0.8  $\mu\text{m}$  および 9.8 mm at 1.55  $\mu\text{m}$  である。変換効率は  $L_{\text{max}}$  の 2 乗に比例するため、2 次元 QPM の変換効率は 1 次元のそれに対し、それぞれ波長 0.8  $\mu\text{m}$  では  $(2.7/0.049)^2 \sim 3000$  倍、波長 1.55  $\mu\text{m}$  では  $(9.8/0.30)^2 \sim 1100$  倍となる。

先ほどの評価では無視したが、非平行な QPM 相互作用に伴う空間的ウォークオフは変換効率を低下させる可能性がある。空間ウォークオフ長、すなわち開口長と呼ばれる特性長は  $L_a = D/\beta$  のように表される。ここで  $D$  はビーム幅である。空間ウォークオフ角  $\beta$  は式(6.4)により計算でき、波長 0.8  $\mu\text{m}$  では 0.13 rad、また波長 1.55  $\mu\text{m}$  では 0.035 rad である。2 次元 QPM において  $L_a = L_{\text{max}}$  とおくと、クリティカルなビーム幅  $D$  がそれぞれ波長 0.8  $\mu\text{m}$  で 0.35 mm、波長 1.55  $\mu\text{m}$  で 0.34 mm と評価される。つまり、ビーム幅  $D$  を 0.35 mm 以上に設定しておけば、SHG 過程の効率は低下しない、といえる。

以上のような性能比較を表 6.1 にまとめた。

### 強くビームを集束する場合の変換効率

ビームの強いフォーカシングを許す場合の変換効率は式(6.9)では表せなくなる。光パワーが小さい場合、変換効率を大きくするためにはビームを集光する必要がある。しかし強く集

光しすぎると焦点深度が結晶長より短くなり、かえって効率が低下してしまう。Boyd [9]はこのような問題を「ある結晶長が与えられたとき、SHG 変換効率を最大にする集光条件の最適化問題」として角度位相整合の場合について理論解析した。その結果のみ記すと次のようになる。集光した場合に発生する SHG パワー $P_2$ は、

$$P_2 = KP_1 k_1 e^{-\alpha} h(\sigma, \beta, \kappa, \xi, \mu) \quad (6.10)$$

と表すことができる。ここで、 $K$ は SHG の性能指数( $d^2/n_1^2 n_2$ )に比例する係数、 $P_1$ は入射基本波パワー、 $k_1$ は基本波の波数、 $\alpha$ は吸収係数、 $l$ は相互作用長、そして $h$ は媒質およびビームプロファイルの諸パラメーターに依存する特性関数である。また、関数 $h$ に関わる変数は、

$$\sigma = (1/2)b\Delta k, \quad b = w_0^2 k_1, \quad \beta = \rho/\delta_0, \quad \delta_0 = 2w_0/b = 2/w_0 k_1 = 2/(bk_1)^{1/2}, \quad \kappa = (1/2)\alpha b, \\ \mu = (l - 2f)/l, \quad \xi = l/b, \quad B = \rho(lk_1)^{1/2}/2$$

であり、ここで $\rho$ は空間ウォークオフ角、 $w_0$ はビーム径、 $f$ はレンズの焦点距離である。重要なのは、変換効率が関数 $h$ と長さ $l$ に比例している点である。Boyd は制約条件として与えられた空間的なウォークオフに対して、ビームパラメーターを最適化して得られる関数 $h$ の最大値を数値計算により示している。

いま、Boyd による計算結果を平行および非平行な擬似位相整合配置にあてはめ、波長 1.55mm の場合についてその変換効率を比較する。平行配置の場合、まず結晶長はバンド幅制限から $l = L_{\max} (1D) = 0.30 \text{ mm}$ で与えられる。そして基本波・高調波の間に空間的なウォークオフは存在せず、そのときの関数 $h$ の最大値は $h_{\max} = 1.068$ となる。一方、非平行配置ではバンド幅制限からくる最大結晶長は、 $l = L_{\max} (2D) = 9.8 \text{ mm}$ であり、空間ウォークオフ角は $\rho = 0.035 \text{ rad}$ であるため、 $h_{\max} = 0.12$ となる。変換効率は $h_{\max} L_{\max}$ に比例するため、結局非平行配置は平行配置よりも $(9.8 \times 0.12 / 0.298 \times 1.068) \sim 3.7$ 倍だけ高い変換効率となる。

表 6.1 従来法と本手法との比較 (congruent LiNbO<sub>3</sub>)

Operating wavelength	0.8 $\mu\text{m}$	1.55 $\mu\text{m}$
FWHM $2\Delta\lambda$ of a 100 fs pulse	9.4 nm	35.3 nm
$\Delta\lambda L$	0.230 $\mu\text{m}^2$	5.28 $\mu\text{m}^2$
$L_{\max} (1D)$	0.049 mm	0.298 mm
$(\Delta\lambda)^2 L$	0.0594 $\mu\text{m}^3$	3.07 $\mu\text{m}^3$
$L_{\max} (2D)$	2.69 mm	9.80 mm
Noncollinear angle $\beta$	0.13 rad	0.035 rad

以上のように、ビームの集束を許す場合とそうでない場合とで性能比較に大きな差が生じる。どちらの性能比較が妥当か、というのは光源のパルスエネルギーに依存するため、一概には言えない。従来は連続光の波長変換に関する議論が多く、そこではビームを強く絞って光強度を大きくすることが重要であった。しかしフェムト秒パルスのような場合、ピークパワーは連続光に比べずっと大きく、むしろ十分であるケースも多々ある。そのような場合、集光するとかえって自己収束効果や自己位相変調効果などによる時間的・空間的な位相の乱れを誘起し、変換効率が飽和したり時間的・空間的ビームプロファイルが劣化したりすることが報告されている[10]。つまり、媒質の光カー効果が効かない程度の低強度に保ちつつ群速度整合により長い相互作用長を十分利用して波長変換した方が、高い変換効率と良好な時空間プロファイルが得られるであろう。つまり、横方向にはビームを絞り込まず、非平行配置における群速度整合条件を用いるスキームが有効であると考ええる。

### その他の議論

実際の実験光学系を考える。基本波には式(6.5)で与えられるような角度分散 $\epsilon$ が付加され、そうして出てくる第2高調波にも式(6.6)で与えられる角度分散 $\epsilon$ が付加される。フーリエ限界パルスとして高調波を出すためには余計な位相は取り除いてやらねばならない。そこで考えられる一般的な解決策は、回折格子とテレスコープ系を使うことでグレーティングにおけるビームを結晶中に結像し、さらに結晶中のSHG像を次の回折格子上に結像する、という手法である。これはよくパルスシェイパーに用いられる系で、基本波、高調波ともにグレーティングと結晶の間で2次分散が付加されない特徴がある。つまり、パルス広がりを防げるのである。結晶の面は入射および出射光に対して垂直となるようにカットすれば余計な位相の付加を防げるであろう。

本方式では、QPM格子を傾けて使うため、従来法に比べて必要となるQPM周期は小さくなる。基本波波長が1.0  $\mu\text{m}$ 以下の領域では、必要とされるグレーティング構造が1 $\mu\text{m}$ 程度となり、素子作製自体が困難となる。そのような場合には、高次のQPM過程においても同様な考えで群速度整合条件を満たすことができることを指摘しておく。

## 6.5 傾斜パルスの伝搬特性

前節までに超短パルスの第2高調波発生過程における群速度整合条件を導き出し、その有効性を理論的に検証した。しかしその概念は複雑であり、擬似位相整合条件の波長に関する1次の依存性を消去すればパルス面傾斜したパルス同士の群速度が整合する、という事実を直感的に認識することは決して容易でない。本節では、前節までで課した条件が確かに群速度整合していることを証明し、また傾斜した超短パルスの実効的な群速度および群速度分散を表す式を示す。

### 位相速度と群速度

図 6.6 に示すように、超短光パルスが回折格子によって回折される場合を考える。ここで回折格子への入射角、回折角はそれぞれ $\theta_0$ 、 $\theta$ 、回折格子のピッチは $d$ 、媒質の屈折率は $n$ である。回折条件 ( $m=1$ ) は、

$$\sin \theta = \sin \theta_0 + \frac{\lambda}{nd} \quad (6.11)$$

である。この回折条件は、回折格子上で $d$ だけ離れた2点からの散乱光同士の光路長差が丁度1波長となっているため、光エネルギーが到達しているパルス面は式 (6.11) で表される波面とは平行にならず (すなわち傾き)、その傾斜角( $\theta-\phi$ )は次のように与えられる。

$$\tan(\theta - \phi) = \frac{\lambda_0}{nd \cos \theta} = \lambda_0 \left. \frac{d\theta}{d\lambda} \right|_{\lambda_0} \quad (6.12)$$

ここで $\lambda_0$ はパルスの中心波長である。

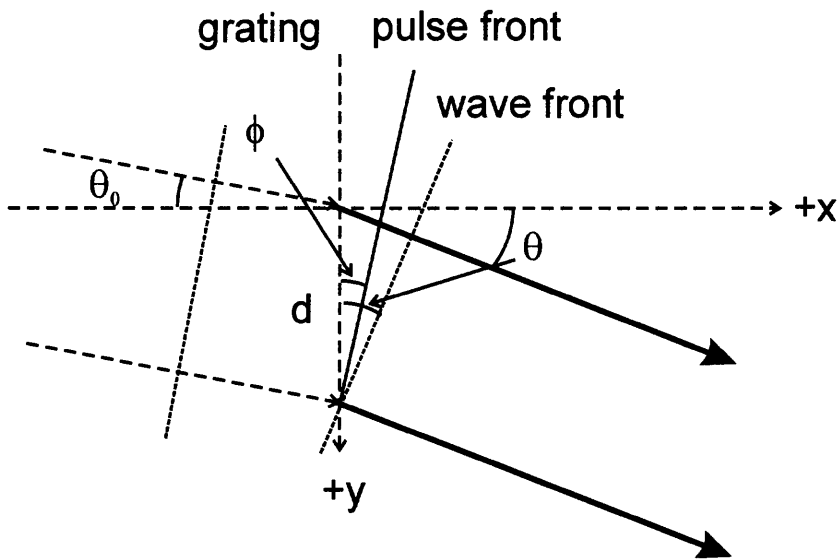


図 6.6 超短光パルスの回折の様子

式(6.12)を角度 $\phi$ に関して解くと、

$$\begin{aligned}\tan \phi &= \frac{d \sin \theta - \frac{\lambda}{n}}{d \cos \theta + \frac{\lambda}{n} \tan \theta} = \frac{\sin \theta - \lambda \frac{d\theta}{d\lambda} \cos \theta}{\cos \theta + \lambda \frac{d\theta}{d\lambda} \sin \theta} \\ &= \frac{\sin \theta_0 \sqrt{\cos^2 \theta_0 - \frac{2\lambda}{nd} \sin \theta_0 - \left(\frac{\lambda}{nd}\right)^2}}{\cos^2 \theta_0 - \frac{\lambda}{nd} \sin \theta_0}\end{aligned}\quad (6.13)$$

と表される。これより $\theta_0 = 0$ のとき $\phi = 0$ となることがわかるが、これは回折格子に対して垂直に入射した光パルスは回折によって $\theta$ 方向へと伝搬方向が変化するが、パルス面は変化しないことに相当する。

さて、このように伝搬する光パルスの位相速度と群速度を考えよう。通常、媒質中での位相速度は次式のように与えられる。

$$\mathbf{v}_p = \frac{\omega}{\mathbf{k}} \quad \left( \leftrightarrow v_{p,i} = \frac{\omega}{k_i} \right) \quad (6.14)$$

ここで $\mathbf{k} = [k_i] = [(\omega/c)n_i]$ は $i = a, b, c$ などの固有軸方向に伝搬する際の波数を表しており、ある伝搬方向に対して位相速度を与える式である。いま、伝搬する $x$ - $y$ 面内には等方的な媒質中で $z$ 方向に偏光した光を考える。すなわち、 $x$ - $y$ 面内では伝搬方向によらず屈折率が一定とする。角度 $\theta$ に進む光の波数ベクトル $\vec{k} \left( |\vec{k}| = \omega n/c \right)$ は

$$\vec{k}(\omega) = \frac{\omega}{c} n(\omega) \begin{pmatrix} \cos \theta(\omega) \\ \sin \theta(\omega) \end{pmatrix} \quad (6.15)$$

と表すことができる。光の位相 $\Phi$ は

$$\Phi(r, t) = \vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t = k_x x + k_y y - \omega t = (k \cos \theta)x + (k \sin \theta)y - \omega t \quad (6.16)$$

のように蓄積するため、等位相面（すなわち波面：phase front）は $\Phi = 0$ という条件を解くことで

$$\frac{k_x}{\omega} x + \frac{k_y}{\omega} y = t \quad (6.17)$$

のように与えられる。すなわち、波面の $x, y$ 切片は $(\omega t/k_x, \omega t/k_y)$ である。この場合の波面の進む速度、すなわち位相速度ベクトルは式(6.14)と区別して $\vec{v}_p (// \mathbf{k})$ と表すと

$$\vec{v}_p = \frac{\omega}{k} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}, \quad \text{where} \quad \tan \theta = \frac{k_y}{k_x} \quad (6.18)$$



となる。

同様にして群速度ベクトルを導出する。通常、群速度は次式で定義される。

$$\mathbf{v}_g = \frac{d\omega}{d\mathbf{k}} \quad \left( \leftrightarrow v_{g,i} = \frac{d\omega}{dk_i} \right) \quad (6.19)$$

ここでも式(6.14)と同様、 $\mathbf{k} = [k_i] = [(\omega/c)n_i]$ は  $i = a, b, c$  などの固有軸方向に伝搬する際の波数を表しており、ある伝搬方向に対する群速度を与える式であることに注意が必要である。

今、式(6.15)より簡単に

$$\frac{d\vec{k}(\omega)}{d\omega} = \frac{dk}{d\omega} \begin{pmatrix} \cos\theta(\omega) \\ \sin\theta(\omega) \end{pmatrix} + k \frac{d\theta}{d\omega} \begin{pmatrix} -\sin\theta(\omega) \\ \cos\theta(\omega) \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \frac{dk_x}{d\omega} \\ \frac{dk_y}{d\omega} \end{pmatrix} \quad (6.20)$$

が得られる。等位相差面は  $d\Phi/d\omega = 0$  を解くことで

$$\frac{\partial k_x}{\partial \omega} x + \frac{\partial k_y}{\partial \omega} y = t \quad (6.21)$$

のように与えられ、同様に等位相差面の  $x, y$  切片は  $[(d\omega/dk_x)t, (d\omega/dk_y)t]$  である。この等位相差面の進む速度がすなわち群速度であるため、等位相差面に垂直な方向へ進む群速度ベクトルは次のように与えられる。

$$\vec{v}_g = \frac{d\omega}{dk} \begin{pmatrix} \cos\theta' \\ \sin\theta' \end{pmatrix} \quad (6.22)$$

$$\begin{aligned} \tan\theta' &= \left( \frac{dk_x}{d\omega} \right) / \left( \frac{dk_y}{d\omega} \right) = \frac{\frac{dk}{d\omega} \sin\theta + k \frac{d\theta}{d\omega} \cos\theta}{\frac{dk}{d\omega} \cos\theta - k \frac{d\theta}{d\omega} \sin\theta} \\ &= \frac{\sin\theta + k \frac{d\theta}{dk} \cos\theta}{\cos\theta - k \frac{d\theta}{dk} \sin\theta} = \frac{\sin\theta + k \frac{d\lambda}{dk} \frac{d\theta}{d\lambda} \cos\theta}{\cos\theta - k \frac{d\lambda}{dk} \frac{d\theta}{d\lambda} \sin\theta} \end{aligned} \quad (6.23)$$

例えば角度分散がない場合、すなわち  $(d\theta/d\omega) = 0$  のとき当然  $\theta' = \theta$ 、つまり位相速度と群速度は同じ方向となる。式(6.23)と式(6.13)を比較すると一般には  $\theta' \neq \phi$  であることがわかる。ただし、媒質の屈折率分散がない場合 ( $dn/d\lambda = 0$ )、 $d\lambda/dk = -\lambda^2/2\pi n$  となり式(6.23)は(6.13)と一致して  $\theta' = \phi$  となる、すなわちパルス面法線と群速度の方向は一致する。

このように定義した群速度の大きさは次のように表される。

$$|\vec{v}_g|^2 = 1 / \left\{ \left( \frac{dk_x}{d\omega} \right)^2 + \left( \frac{dk_y}{d\omega} \right)^2 \right\} = 1 / \left\{ \left( \frac{dk}{d\omega} \right)^2 + k^2 \left( \frac{d\theta}{d\omega} \right)^2 \right\} \quad (6.24)$$

さて、前節までに群速度整合条件として課した条件は

$$d\Delta\mathbf{k}/d\omega_1 = 0 \Leftrightarrow \frac{d(\mathbf{k}_2 - 2\mathbf{k}_1 - \mathbf{K})}{d\omega_1} = 2\left(\frac{d\mathbf{k}_2}{d\omega_2} - \frac{d\mathbf{k}_1}{d\omega_1}\right) = 0 \quad (6.25)$$

であり、これはこれまでの議論におけるベクトルとしての基本波と高調波の群速度一致条件に他ならないことがわかる。

### 実効的な群速度と群速度分散

これまでは超短光パルスの無限平面波に関する理想化されたモデルについて議論した。ここでは群速度ベクトルはパルス面とほぼ垂直な方向を向くことがわかった。しかし実際には有限なビーム幅をもつため、中心周波数の回折方向に沿った伝搬を議論する方が現実的である。式(6.23)を用いて丹念に計算すると

$$\tan(\theta' - \theta) = \frac{\tan \theta' - \tan \theta}{1 + \tan \theta' \tan \theta} = \frac{k \frac{d\theta}{d\omega}}{\frac{dk}{d\omega}} \quad (6.26)$$

であるため、式(6.24)で表される群速度で進むパルスの、中心周波数の回折方向に関する実効的な群速度は、

$$v_g^{\text{eff}} = |\vec{v}_g| / \cos(\theta' - \theta) = \left( \frac{d\omega}{dk} \right)_0 \quad (6.27)$$

となって中心周波数成分の群速度となり、直感的な理解と一致することがわかる。

それでは、課した群速度整合条件(6.25)の幾何学的な理解を試みる。この群速度整合法は、基本波と高調波の群速度の違いをパルス面の傾斜と空間ウォークオフのバランスによって補償する方法である（図 6.7）。適度な角度分散を基本波に与えることにより式(6.12)で決まるパルス面傾斜を起こし、非平行な擬似位相整合配置による基本波・高調波の空間的ウォークオフによる横ずれと群速度不整合のバランスによって実効的にパルス面が重なりつづける、というものである。ここで PPLN（基本波波長  $1.55\mu\text{m}$ ,  $D = \Lambda/\Lambda_0 = 0.5$ ）に関して実際に導出した値を用いて議論しよう。式(6.5)で与えられる基本波の角度分散は  $\epsilon = d\theta/d\lambda = 0.86698$  であるため、式(6.12)よりパルス傾斜角は

$$\tan p_1 = 1.55 [\mu\text{m}] \times 0.86698 [\text{rad}/\mu\text{m}] = 1.343819 \quad \text{より} \quad p_1 = 0.931051 \text{ rad} \sim 53.37 \text{ deg}$$

である。また、式(6.6)で与えられる高調波の角度分散は  $\epsilon' = d\theta'/d\lambda = 1.6534$  であるため、

$$\tan p_2 = 0.775 [\mu\text{m}] \times 1.6534 [\text{rad}/\mu\text{m}] = 1.281385 \quad \text{より} \quad p_2 = 0.908118 \text{ rad} \sim 52.06 \text{ deg}$$

である。このときの非平行角は  $b = 0.0348 \text{ rad} \sim 2.00 \text{ deg}$  である。高調波のパルス面傾斜角  $p_2$

は高調波の波面に対する傾斜角として定義しているため、基本波と高調波のパルス面同士の間の角度は、 $\rho_2 + \beta - \rho_1 \sim 0.69 \text{ deg}$  となりほぼ一致していることがわかる。

Z方向から角度 $\rho = \rho_2 + \beta$ だけ傾いたパルス面をもち非平行角 $\beta$ で伝搬する高調波のz方向への実効的な群速度  $v_{T2}$  は幾何学的な考察より

$$v_{T2} = v_{g2} \cos \beta (1 + \tan \beta \tan \rho) \quad (6.28)$$

で与えられる。 $v_{g2} = 0.1306 [\mu\text{m/fs}]@0.775 \mu\text{m}$ ,  $\beta = 0.0348 \text{ rad}$ ,  $\rho = 0.9429 \text{ rad}$  を代入すると、

$$v_{T2} = 0.1306 \times 0.99939 \times (1 + 0.034814 \times 1.3776) = 0.1306 \times 1.04732 \sim 1.3678 [\mu\text{m/fs}]$$

となり、基本波の群速度  $v_{g1} = 0.1365 [\mu\text{m/fs}]@1.55 \mu\text{m}$  とほぼ一致していることがわかる。

以上のように、これまで課した条件が幾何学的に実効的な群速度整合条件として成り立っていることが示された。

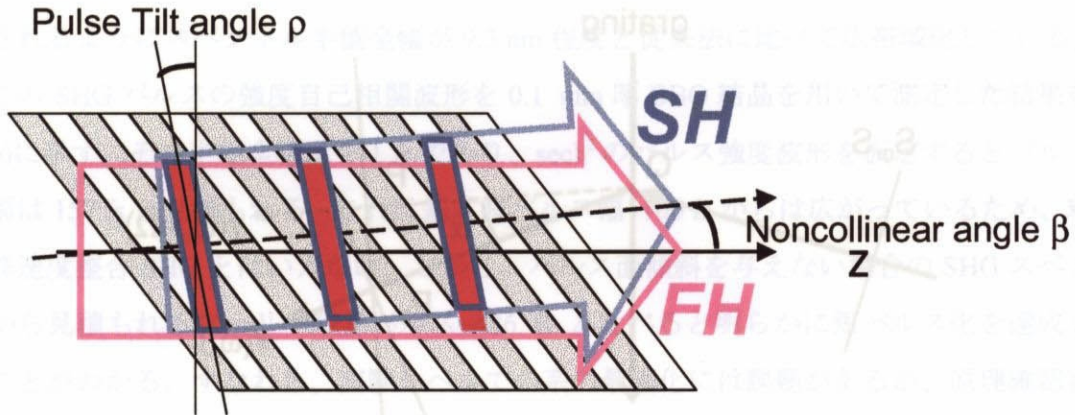


図 6.7 パルス面傾斜と空間ウォークオフによる群速度整合の概念図

もうひとつ、実際のパルス伝搬特性に関して抑えておくべきポイントがある。それは角度分散を与えることにより生じる実効的な群速度分散である。これを図 6.8 を用いて定式化しよう。点 Q に入射したパルスの、中心周波数成分 $\omega_0$ および少しシフトした成分 $\omega_0 + \Omega$ の回折を考える。S<sub>0</sub>, S, S', S' は入射光および回折光の波面を表す。QP<sub>0</sub>間の光学的距離を  $nl$  ( $n$  は屈折率) とし、 $\omega_0 + \Omega$  成分の P' における波面 S' が点 P<sub>0</sub> において波面法線  $\mathbf{r}(\omega_0)$  と交差するとしよう。そのとき、QP' 間の光学的距離は  $nl \cos \alpha$  となる。すなわち、位相遅延は

$$\Psi(\Omega) = \frac{\Omega}{c} n(\Omega) l \cos \alpha \quad (6.29)$$

のように表される。周波数に関する微分を施すと、

$$\frac{d\Psi}{d\Omega} = \frac{l}{c} \left[ n \cos \alpha + \Omega \frac{dn}{d\Omega} \cos \alpha - n \Omega \sin \alpha \frac{d\alpha}{d\Omega} \right] \cong \frac{l}{c} \left[ n + \Omega \frac{dn}{d\Omega} \right] = \frac{n_g l}{c} \quad (6.30)$$

となり、角度分散によらず中心波長の群速度  $v_g = c/n_g$  で伝搬することがわかる。さらに周波数に関して微分することにより、

$$\begin{aligned} \frac{d^2\Psi}{d\Omega^2} &= \frac{l}{c} \left[ 2\cos\alpha \frac{dn}{d\Omega} - 2n\sin\alpha \frac{d\alpha}{d\Omega} + \Omega \frac{d^2n}{d\Omega^2} \cos\alpha - 2\Omega \sin\alpha \frac{dn}{d\Omega} \frac{d\alpha}{d\Omega} \right. \\ &\quad \left. - n\Omega \cos\alpha \left( \frac{d\alpha}{d\Omega} \right)^2 - n\Omega \sin\alpha \frac{d^2\alpha}{d\Omega^2} \right] \\ &\equiv \frac{l}{c} \left[ 2\frac{dn}{d\Omega} + \Omega \frac{d^2n}{d\Omega^2} - n\Omega \left( \frac{d\alpha}{d\Omega} \right)^2 \right] \end{aligned} \quad (6.31)$$

となり、媒質の群速度分散に加えて角度分散による実効的な群速度分散（異常分散）が加わることがわかる。

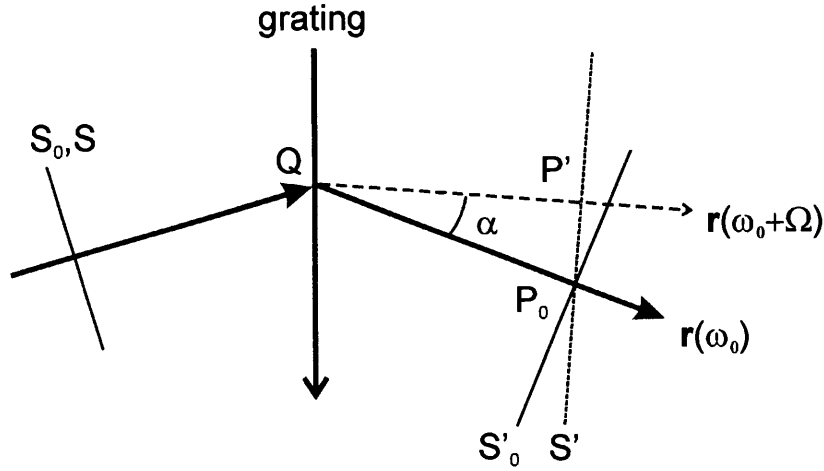


図 6.8 角度分散によって実効的な群速度分散が生じることを表す模式図

## 6.6 原理確認実験

本章で提案した方式を用いた第2高調波発生の実験を行ったのでその結果を示す。第5章と同じく、フェムト秒光パラメトリック増幅システムからの出力光（1560 nm, 100 fs, 1kHz）を用いた。波長 1560 nm 付近は通信波長であるばかりでなく、半導体レーザーで直接励起できるコンパクトなフェムト秒光源、すなわち Er: fiber レーザーが存在するため、それと集積化できる SHG 素子あるいはパルス圧縮素子は非常に有用である。

まず、前に導出した式を用いて群速度整合させるための素子およびパルス面傾斜角を設計した。ここでは波長 1550 nm、分極反転周期を  $\Lambda = 0.5\Lambda_0 = 8.9 \mu\text{m}$  とした。このとき、式(6.3),

(6.5), (6.6)から得られる値は、 $\alpha \sim 60 \text{ deg.}$ ,  $\epsilon = 0.87 \text{ rad./}\mu\text{m}$ ,  $\epsilon' = 1.7 \text{ rad./}\mu\text{m}$  である。このような配置を実現する分極反転パターンの模式図を図 6.9 に示す。また、実験光学系を図 6.10 に示す。回折格子は2つとも 830 lines/mm のものを用い、4f 光学系により基本波はグレーティング面を 1:1 結像し、高調波は 2:1 結像した。ビームの素子への角度を調整することにより QPM 条件を調整し、基本波のグレーティングからの回折角によりパルス面傾斜角を調整した。対角成分  $d_{33}$  を用いるため、結晶中で異常光となるよう紙面に垂直な方向の直線偏光とした。入射パルスのスペクトルおよび強度自己相関波形は図 5.10 に示されたものと同様である。

発生した SHG スペクトルを図 6.11(a)に示す。グレーティングを用いずに伝搬させた場合、SHG スペクトルの顕著な狭帯域化が観測される。この場合、非平行 QPM 条件ではあるが大きな群速度不整合の影響を被っているという点で 1 次元的な QPM である従来法と同じ条件であるといえる。これに対し、グレーティングを用いてパルス面傾斜を施した場合には実線で示されるようにスペクトル半値全幅が 9.3 nm 程度と従来法に比べて広帯域化している。また、この SHG パルスの強度自己相関波形を 0.1 mm 厚 BBO 結晶を用いて測定した結果を図 6.11(b)に示す。その半値全幅は 241 fs であり、 $\text{sech}^2$  のパルス強度波形を仮定するとパルス半値全幅は 157 fs と見積もれる。これは基本波パルス幅 $\sim 100$  fs からは広がっているため、理想的な群速度整合 SHG とはいえない。しかし、パルス面傾斜を与えない場合の SHG スペクトル幅から見積もれるフーリエ限界パルス $\sim 486$  fs と比べると明らかに短パルス化を達成していることがわかる。すなわち、実験レベルでの系の最適化には課題があるが、原理確認実験としては本手法の有効性を十分示している。

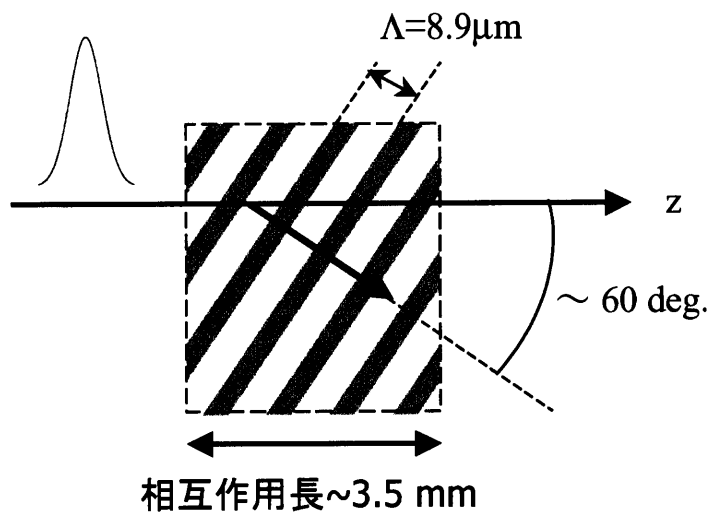


図 6.9 実験に用いた周期分極反転 LiNbO<sub>3</sub> 素子

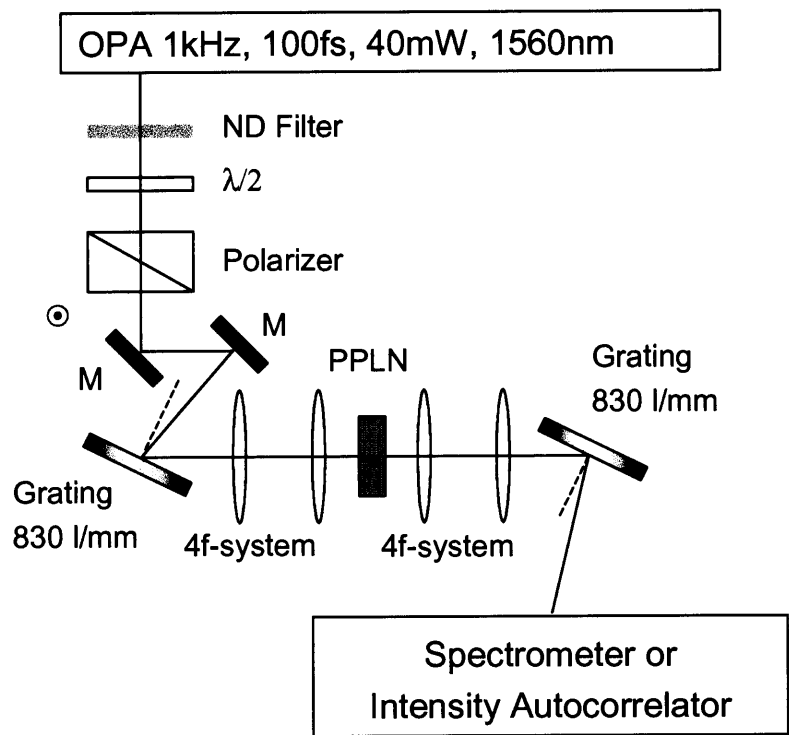


図 6.10 非平行 QPM 配置を用いた群速度整合 SHG の実験系

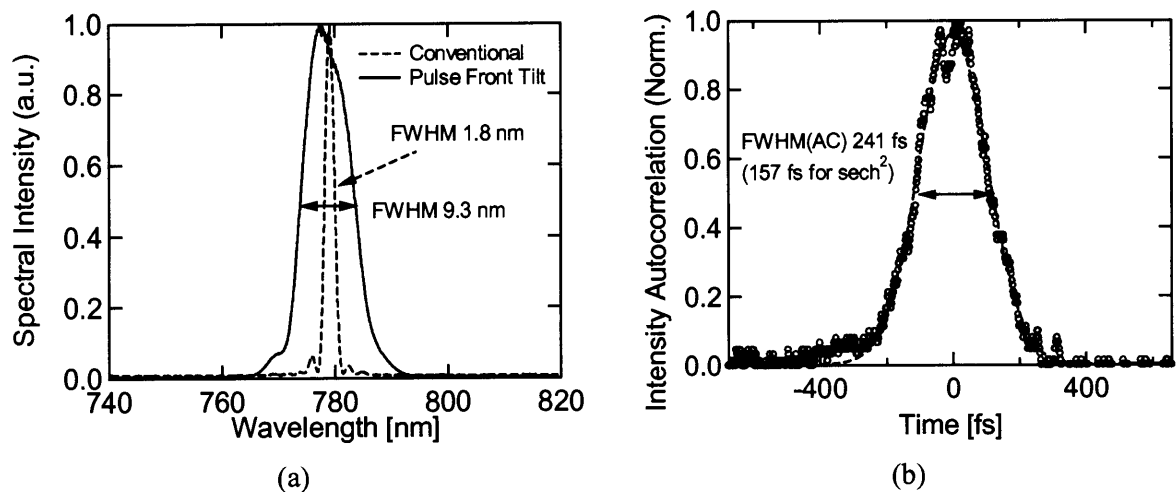


図 6.11 発生した第 2 高調波の (a)スペクトル強度および (b)SHG 強度自己相関

## 6.7 まとめ

### 非平行擬位相整合配置を用いた群速度整合法の提案

非平行な QPM 配置とパルス面傾斜を利用する、第2高調波発生における新しい群速度整合法を提案した。この方法は、タイプ I 角度位相整合配置での Martinez の手法[2]を QPM に拡張したものであるが、その恩恵は多大である。まず、本手法を用いれば材料の屈折率分散の呪縛から開放され、原理的には2次元的な分極反転構造の設計如何により任意の波長において擬位相整合と群速度整合を両立させることが可能となる。さらに、分極反転構造は面内2次元の設計自由度があるため、角度位相整合素子では不可能な機能性を付加することができる。例えば2つの異なる周期および角度をもつ周期分極反転パターンを2次元的に組み合わせることで、超短光パルスの2倍高調波および4倍高調波過程について同時に QPM と群速度整合を満たしてやることも可能である。さらに角度位相整合配置と異なる特徴は、空間ウォークオフ角  $\beta$  や角度分散  $\epsilon$  が、グレーティング周期  $\Lambda$  の選択により調整可能である点である。これは、群速度整合条件を満たす際にひとつの自由度  $\Lambda$  が存在することを意味する。

### 群速度整合法の定式化と原理確認実験

群速度整合条件を表す方程式を導出し、PPLN に適用することで、提案した群速度整合法に必要なパルス面傾斜角などの条件が現実的であることを示した。素子長 10 mm の場合、QPM 許容バンド幅は従来法に比べ、波長  $0.8 \mu\text{m}$  では 110 倍、波長  $1.55 \mu\text{m}$  では 32 倍に広がる。また、長さ 3.5 mm の PPLN 素子を作製してフェムト秒パルス SHG の原理確認実験を行い、本手法の有効性を実証した。本章では1次の角度分散制御に関する議論はしなかったが、より高次の項を補償することで、さらに許容バンド幅を増大することが可能である。また、提案した手法は PPLN 以外のいかなる QPM 素子についても適用可能である。

本手法では基本波と高調波が非平行であるため、直線導波路との組み合わせは困難だが、スラブ導波路にして縦方向への閉じ込めをよくすることは可能である。また、パルス面傾斜角を大きくする、あるいは時間ウォークオフを完全にはゼロにしないことで空間ウォークオフを抑える、というアプローチも可能である。

## 参考文献

- [1] E. Sidick, A. Knoesen, and A. Dienes, "Ultrashort-pulse second-harmonic generation. I Transform-limited fundamental pulses," J. Opt. Soc. Am. B **12**, pp. 1704-1712 (1995).
- [2] O. E. Martinez, "Achromatic Phase Matching for Second Harmonic Generation of Femtosecond Pulses," IEEE J. Quant. Electron., **25**, pp. 2464-2468 (1989).
- [3] B. A. Richman, S. E. Bisson, R. Trebino, E. Sidick, and A. Jacobson, "All-prism achromatic phase matching for tunable second-harmonic generation," Appl. Opt. **38**, pp. 3316-3323 (1999).
- [4] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, "Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation: Tuning and Tolerances," IEEE J. Quant. Electron. **28**, pp. 2631-2654 (1992).
- [5] M. A. Arbore, A. Galvanauskas, D. Harter, M. H. Chou, and M. M. Fejer, "Engineerable compression of ultrashort pulses by use of second-harmonic generation in chirped-period-poled lithium niobate," Opt. Lett. **22**, pp. 1341-1343 (1997).
- [6] V. Berger, "Nonlinear Photonic Crystals," Phys. Rev. Lett. **81**, pp. 4136-4139 (1998).
- [7] S. Saltiel and Y. S. Kivshar, "Phase matching in nonlinear  $\chi^{(2)}$  photonic crystals," Opt. Lett. **25**, pp. 1204-1206 (2000).
- [8] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan, "*Handbook of nonlinear optical crystals*," third edition, Springer, New York (1999).
- [9] G. D. Boyd, "Parametric interaction of focused Gaussian light beams," J. Appl. Phys. **39**, pp. 3597-3639 (1968).
- [10] T. Ditmire, A. M. Rubenchik, D. Eimerl, and M. D. Perry, "Effects of cubic nonlinearity on frequency doubling of high-power laser pulses," J. Opt. Soc. Am B **13**, pp. 649-655 (1996).



# 第7章

## 総括

本研究は「超短光パルスにおけるカスケード2次非線形光学効果の諸特性評価と、それを用いた光ソリトン圧縮の実現」を目的として行われたものである。得られた成果を以下にまとめる。

### BBO 非線形結晶を用いた光ソリトン圧縮

Ti: sapphire レーザーのフェムト秒光パルスを用い、長さ 1 mm の BBO 非線形結晶のタイプ I 角度位相整合配置におけるカスケード非線形効果を測定した：

$$|n_2^{\text{casc}}(\text{BBO})| \sim (41 \pm 9) \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

同じく BBO 結晶を用いた光ソリトン圧縮特性を理論・実験両面から系統的に評価した。理論計算により、長さ 32 mm の伝搬長で最短約 25 fs への基本波パルス圧縮が可能であることを示した。実験では 135 fs から 45 fs への約3分の1へのパルス圧縮を達成した。ここでは群速度不整合に起因する非線形チャープの影響を抑えるために大きな位相不整合条件を用いる、というアプローチをとった。

### 周期分極反転 LiTaO<sub>3</sub> を用いたフェムト秒カスケード非線形効果の測定

周波数分解2光波混合法を用い、LT 単結晶の光カー効果およびその異方性を測定した：

$$n_{20}(\text{LT}) \sim 17 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

$$n_{2E}(\text{LT}) \sim 30 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

自作した周期 3.1  $\mu\text{m}$ 、長さ 0.8 mm の PPLT 素子を用いてフェムト秒パルスのカスケード非線形効果を測定した：

$$|n_2^{\text{casc}}(\text{PPLT})| \sim 56 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 800 \text{ nm}$$

群速度不整合と大きな光カー効果の影響から PPLT 素子を用いた正常分散領域でのソリトン圧縮は実現できなかったが、LT の光カー効果の大きさとその異方性に関しては初めての報告例となった。2次非線形光学材料の光カー効果は、カスケード非線形光学素子や超短パルスの波長変換素子を設計するにあたり、非常に重要な物質定数である。

### 周期分極反転 MgO:LiNbO<sub>3</sub> を用いた光ソリトン圧縮

PPMgLN 素子の非対角成分  $d_{32}$  を用いることで通信波長での群速度整合条件を満たし、大きなカスケード非線形効果を得た：

$$|n_2^{\text{casc}}(\text{PPMgLN})| \sim 300 \times 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W} @ 1560 \text{ nm}$$

この値は、フェムト秒カスケード非線形効果としてこれまでに報告された値としては最大である。

長さ 10mm の PPMgLN 素子を用いてパルス幅 110 fs、中心波長 1560 nm の基本波入力から、基本波・高調波の同時 35 fs パルス圧縮を実現した。QPM 素子を用いてこのようなソリトン圧縮を実現したのは本研究が初めてである。この技術はモードロック Er: glass レーザーとの集積化によるコンパクトな超短パルス光源実現への可能性を強く示すものである。

### 非平行擬似位相整合配置を用いた群速度整合法

分極反転構造の傾斜とパルス面傾斜により、任意の波長に対して擬似位相整合と群速度整合を同時に満たす新しい手法を提案した。このような同時擬似位相整合・群速度整合条件を表す方程式を導出し、具体的に PPLN に適用した例を示した。本手法では、位相整合許容バンド幅は通常の方法に比べて、波長 0.8  $\mu\text{m}$  では 110 倍、波長 1.55  $\mu\text{m}$  では 32 倍に広がる。設計・作製した PPLN 素子を用いて SHG 原理確認実験を行い、本手法の有効性を実証した。

### 結論と展望

以上の通り、本研究では2次非線形媒質中のソリトン効果を利用することで効率的なパルス圧縮が可能であることを十分示せた。ここで2次非線形ソリトン圧縮器の位置づけを考えてみよう。これまで研究されてきたファイバー中の自己位相変調効果とその後段での分散補償によるパルス圧縮法、あるいはファイバーソリトン圧縮法との比較を表 7.1 にまとめた。まず、カスケード2次非線形効果はファイバー中の光カー効果よりも大きい非線形性を有するため、低パワー動作を可能にする。また、ソリトンタイプのパルス圧縮法は非線形媒質中の伝搬のみでパルス圧縮が行われるため、エネルギーの利用効率が高い。しかしその反面、精密な分散補償が困難であるため数フェムト秒という極短パルス化には向かない。ファイバーソリトン圧縮器は基本的に、シングルモードファイバーの異常分散領域でしか実現できなかった。ただし、近年ではフォトニック結晶ファイバーの構造分散により、ガラス自身の正常分散領域でも異常分散の導入が可能になっている。2次非線形光学ソリトンとは原理的に、

正常分散・異常分散どちらの領域でも存在できる。また、基本波と高調波が互いにトラップしながら同時にパルス圧縮されて出力されることも2次非線形光学ソリトン圧縮器の際立った特徴である。

以上の特徴を考えると、2次非線形光学ソリトン圧縮法は、特に低パワーかつサブピコ秒動作のモードロックレーザー光源、例えば Er: glass レーザーや Yb: YAG レーザーなどのパルス圧縮器に適していると言える。これらと集積化して 30 fs 以下にパルス圧縮できれば、全体としてコンパクトかつエネルギー利用効率の高い超短パルス光源になる。用途によっては同時に圧縮されて発生する第2高調波が有用になるであろう。

表 7.1 代表的なパルス圧縮法の比較

	ファイバー +分散補償	ファイバーソリトン 圧縮器	2次非線形光学 ソリトン圧縮器
非線形性	小	小	大
エネルギー利用効率	△	○	○
極短パルス化	○	△	△
群速度分散の制約条件	正常	異常(・正常)	正常・異常どちらも
出力パルス	1波長	1波長	2波長

今後の展開として、2次非線形光学ソリトン圧縮器のさらなる高性能化が挙げられる。分極反転構造の非周期化などによる断熱的ソリトン形成・圧縮や、本研究で提案した群速度整合法とスラブ導波路の融合などが有望である。また光カー媒質とは対照的に、2次非線形光学媒質では時間・空間領域の多次元ソリトンが安定である。この特性を利用して時空間ソリトンを形成し、高品質な時空間プロファイルの光パルスを生成する、というのも魅力的なターゲットである。さらに、2次非線形光学ソリトン伝搬を用いた量子光学的応用も興味深い展開である。