

# 第6章 高繰り返し高出力レーザーの開発

前章までに、本研究のテーマである高出力超短パルスレーザーの基本事項および本研究で開発した新しい手法の考え方、解析結果等を述べてきた。本章ではこれらを踏まえた上で、実際に開発したレーザーシステムについて具体的に述べる。§6.1では、1kHzの繰り返しで開発当時最大のピーク出力であった0.66TWのTi:sapphireレーザーシステム、およびその補足として、励起光をLD励起のNd:YAGレーザーの2倍波としたシステムのデータについて述べる。続く§6.2では、LD励起のNd:YAGレーザーの2倍波を励起光とした5kHzの超短パルスレーザーシステムについての記述が中心となる。得られた平均出力22.2Wはすべての超短パルスレーザーの中で最も高いものである。さらに§6.3ではKrFエキシマレーザーとTi:sapphireの組み合わせによる、紫外光での超短パルス発生について、幾つかの解析を補足しながら実験結果を示してゆく。

## §6.1 kHz 0.66-TW

### チタンサファイアレーザーシステム

#### 6.1.1 システムの概要

Ti:sapphireを用いた繰り返し1kHzのCPAシステムである。全体の構成は、種光を発生するTi:sapphire

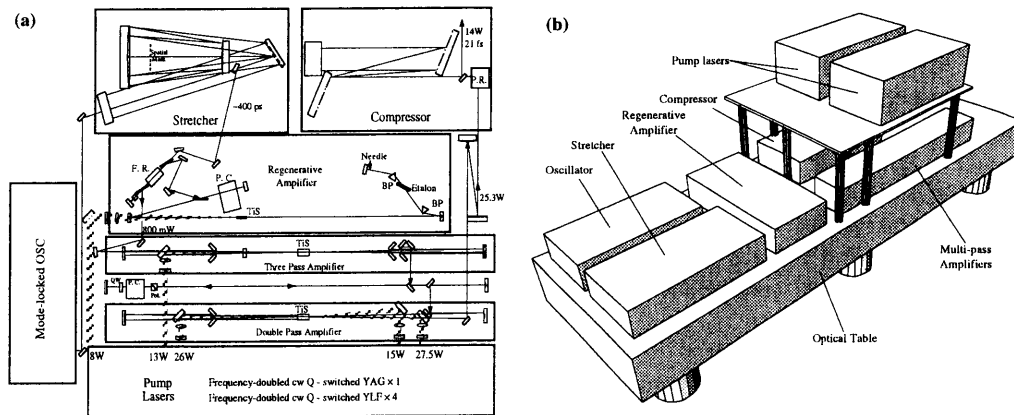


図 6.1: kHz、0.66TW レーザーシステム。(a): システムの構成図。(b): 各ステージの実際の配置。

のモード同期発振器 (§2.5 参照)、Öffner 型の Stretcher、再生増幅器、3-パス増幅器、2-パス増幅器、Compressor から成り、この他に増幅器を励起するための cw-Q スイッチ Nd:YAG または Nd:YLF レー

ザーの2倍波が用いられている(図 6.1(a))。マルチパス増幅器の2ステージを除き、各ステージは600mm×1200mm程度のBredboard上に組上げられ、これらを1.5m×5mの光学除振台に配置して、テーブルトップでのkHz、sub-TWレーザーを実現した。また、スペースの節約のため光学除振台上部にアルミ板によるステージを構築しこの上に励起レーザーを配置しているが、これによって励起源とTi:sapphireの距離の短縮化を行うことも出来、マルチモードの励起ビームの発散を最小限に抑える事にも成功している。図 6.1(b)はこれを模式的に表わしたもので、光学台上の直方体の箱が各ステージを表わしており、2段のマルチパス増幅器とCompressorが励起レーザーの乗った台の下に入っている。

### 6.1.2 各ステージの詳細

#### 発振器

発振器は§2.5で述べた通り、LD励起のNd:YVO<sub>4</sub>レーザーの2倍波で励起した、カーレンズモード同期のTi:sapphire発振器である。パルス幅は20fs以下、出力は約80mW程度(繰返しは約82MHzなので~nJ/pulse)である。

#### Stretcher

基本構成は図 4.16のÖffner型のStretcherである。用いた回折格子はMilton-Roy(Richardson Grating Laboratory)社製のruled Grating(型番:MR136、750nm用にBrazeをつけてある)で、溝数は1200ℓ/mm、近赤外での回折効率を上げるために金コートが施されている。入射角は18.6°とした。

Öffnerテレスコープを構成する球面鏡は曲率半径800mmの凹面鏡と400mmの凸面鏡で、金コート(金コートは近赤外の広い波長域で分散が無く、高い反射率が得られる)を施している。それぞれの球面鏡の大きさは凹面鏡が250mm×50mm×30mm-t、凸面鏡が120mm×10mm×15mm-tである。凸面鏡の高さが10mmと極端に小さくなっているのは、このミラーの上下をビームが通過する(図 4.16(b)参照)ためである。従って、このミラーを支持するミラーホルダーもビームを遮らない様、横方向から突き出す形にしている。

折返しに用いているルーフミラーはやはり金コートで、大きさは120mm×50mmである。このミラー2枚を垂直になるよう予めHe-Neレーザーで調整しておく。またビームの入射はこのミラーの間から行うのでミラーの間隔を適度にあけておく必要がある。

Stretcherのアライメントは、まず回折格子の入射角を計算値(4.3.5参照)に合わせる所から始める。すなわち、入射ビームに対する0次光(反射光)が入射方向に返るよう回折格子の乗った回転ステージを合わせた後、その位置から回転ステージを18.6°だけ回転することによって入射角を決定する。この際入射ビーム、回折ビームともテーブルと平行になっていることを確認する。

計算ではStretcherの2Z(式(4.56))を400mmに設定しているので、凹面鏡を球面鏡の共中心から200mm前に置く事になる。これは回折格子から見れば凹面鏡を600mmの位置に置く事を意味する。必要であれば発振器のプリズム対にスリットいれて800nmの狭帯域発振としこのビームがミラーの中心を通るように配置を行う。通常はモード同期がかかった状態でIRスコープで見ながら、なるべく広いスペクトルがミラーに入る様に凹面鏡をこの距離に置けば良い。なお、最後のパスを凸面鏡より下から取り出すのであれば、ここでのビームの高さは凸面鏡の中心が来るべき場所よりも8mm上、また凹面鏡の中心の高さも凸面鏡の中心の高さと一致させておく。凹面鏡の左右方向のアライメントは800nmの狭帯域発振のビームが元に戻って行くようにすれば良い。高さ方向については凸面鏡を置いたのちこの中心にビームが来るようにする。凸面鏡は回折格子から200mmの位置に置き、アライメントは、800nmの狭帯域発振のビームが回折格子上で入射ビームの真下16mmの所に来るようにしてやる。後はルーフミラーをビームが入射の8mm上に来るように上下の調節をしてやれば自然に出射が下から出てくるので、これをエッジの出た金コートミラーでけり出せばよい。

Öffnerテレスコープの構成が不正確であると出射ビームに空間的な色分散が残るので、ビームの遠視野像(10m程度)を見ながら回折格子で広がったスペクトルの一部を適当にブロックして、これをチェッ

クする。色分散が残っているようであれば、凸面鏡の距離を動かして、最も色分散が少なくなる場所を探す。

以上の手続きで Stretcher の配置は完了し、出射ビームは長焦点のレンズ ( $f=4000$ ) によってコリメートされながら再生増幅器へ送られる。ビームの透過率は発振器からの打ち上げによる偏光の回転や、スペクトルのけられ等があるため 30%程度である。

なお、再生パルス整形によるスペクトル制御 (4.2.2 参照) が不十分であった時には適当な形状の空間マスクを凹面鏡の前に挿入してスペクトル制御の補助を行う。

## 再生増幅器

1kHz の再生増幅器は 5.2.1 で検討した通り、曲率半径 1m と 0.5m の凹面鏡を 1 枚ずつ用いた 4-ミラー構成で X 型に折り畳んだ共振器となっている (図 6.2)。原理は 3.3.2 の図 3.4 で説明した通り、Pre-Bias

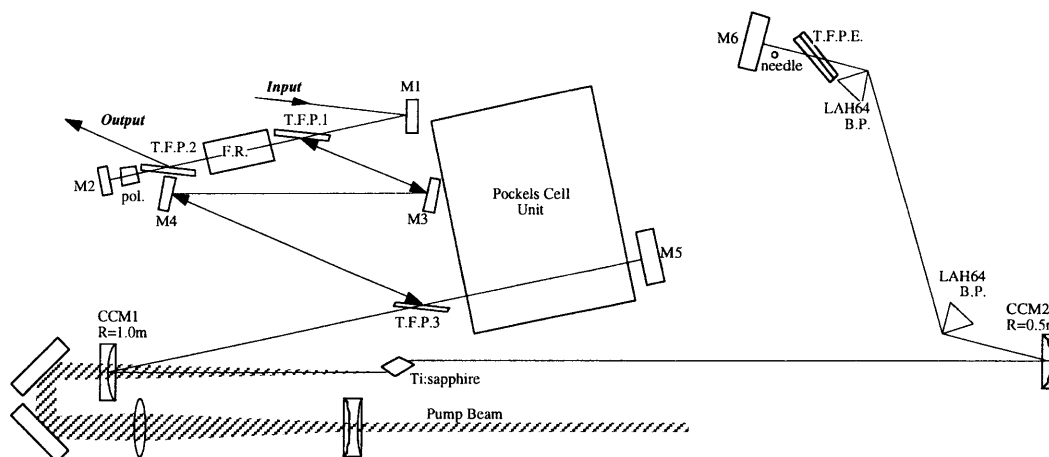


図 6.2: kHz、0.66TW システムの再生増幅器

印可型の 1/4 波長電圧再生増幅器なので、ファラデー旋光子をパルスの出し入れに用いている。

図 6.2 の M1 (金コート平面鏡) で反射された横偏光の入射パルス (列) は薄膜フィルム偏光子 T.F.P.1 を通過後ファラデー旋光子を通る。この入射方向では偏光は回転せず、ビームはそのまま T.F.P.2 とカルサイトのグランレーザープリズム偏光子 (pol.) を通過し M2 (金コート平面鏡) で折返され、再びファラデー旋光子を通る。この時の入射方向の場合は偏光が  $90^\circ$  回転するので縦偏光になったビームは T.F.P.1 で反射されて再生増幅器の共振器へ導かれる。単純な入力のみを考えれば、最初から M2 の側から入射してやれば良いのだが、このようにファラデー旋光子を 2 度通す事によって、発振器と再生増幅器のアイソレーションの効果が大きくなる。カルサイトの偏光子も同様な理由で挿入されている。

T.F.P.1~T.F.P.3 はいずれも Alpine Optics Reseach 社の Ultrafast 用のコートをした厚さ 3.2mm の BK7 ガラス基板であるが、スペクトル帯域を広くとるために、s-偏光の反射と p-偏光の透過のどちらを優先するかを選択をする必要がある。T.F.P.1 と T.F.P.2 については、入力パルスのエネルギーは数 mW もあれば十分なので s-偏光反射を優先したコーティング ( $R_s=99\%$ ,  $T_p=80\%$ ) を使い、T.F.P.3 については共振器内の損失を小さくするため p-偏光透過を優先したコーティング ( $R_s=80\%$ ,  $T_p=99\%$ ) を用いている。

Pockels Cell は Medox 社の駆動回路を備えた Cleaveland Crystal 社の KD\*P で sol-gel タイプの AR コートが施されている。端子間容量 5pF のこの Pockels Cell は 3.3.3 で述べた容量移行回路に Pre-Bias モジュールを加えた電源によって駆動されるので、共振器内への増幅パルスのインジェクションは 1/4 波長電圧の Pre-Bias が 0V になる時刻に行われる。

共振器は曲率半径 1.0m の凹面鏡 CCM1 を Pockels Cell 側、曲率半径 0.5m の凹面鏡 CCM2 をプリズム対の入った腕の側とし、Pockels Cell でのビーム径を大きくして AR 損傷回避を意図した。CCM1 と CCM2 の間隔は約 90cm で、Ti:sapphire は CCM1 から約 23cm の位置にある。Ti:sapphire の励起は

CCM1 を通して行われているが、CCM1 には特に AR コート、ダイクロイックコートは用いていない。共振器に用いているミラーのコーティングはすべて CVI 社の高破壊閾値の高帯域コーティング TLM1 であり、中心波長は 800nm に指定している。

Ti:sapphire 結晶は Union Cabide 社製（現 BICRON 社）で Ti イオン dope 量は 0.15wt%、FOM300、形状は 7mm 径 × 12mm 長の Brewster/Brewster カットのものである。銅のホルダーにインジウムの薄板を介して固定され、冷却は約 10°C の水-エチレングリコール混合液（いわゆる不凍液）によって行われている。

CCM2 側の腕には LAH64（小原光学<sup>1</sup>） Brewster プリズム（頂角 58.8°）対が挿入されている。最終段の増幅を行った後 Compression を行いながらプリズム間隔も幾つかの場所を試していったが、最終的に約 37cm とした。挿入量は基準点を正確にきめる事が出来ないで明らかではないが、4~6mm 程度と推測される。

また、スペクトルの狭帯域化を防ぐ為の薄膜フィルム偏光子エタロンを挿入し（図では M6 とプリズムの間に入っているが実際はスペースの都合上プリズム間に入っている）し、さらにこれでもスペクトル幅が不十分であった場合には、M6 の手前に針を用意し、空間的に広がったスペクトルをこの針の出し入れによって調節する。薄膜フィルム偏光子エタロンは、片方の薄膜フィルム偏光子がピエゾ素子によって前後移動する X ステージ（PI Politechnique 社または Sigma 光機社製）上のミラーホルダーに固定されているので、ピエゾの最大電圧（75V）で 2 枚の偏光子の距離が最小となるよう予め He-Ne レーザーでアライメントを行っておく。

励起レーザーは Clark 社のアークランプ励起の cw-Q スイッチ Nd:YAG レーザー（ORC-1000）で内部 SHG により 1kHz の繰返して 10W、10kHz の繰返して 30W の 532nm の出力が得られる。パルス幅は約 200ns である。これを約 9W に調節して再生増幅器の励起に用いている。励起光の集光はビームの  $M^2$  が約 10 とガウシアンビームに比べて 10 倍程度集光しにくいいため、AR 付の凹レンズで一旦ビームを拡大した後、同じく AR 付の凸レンズで集光する事によって f ナンバーを大きくして、適正なビーム径まで絞り込める様にしている。励起に対する集光のやり方はマルチパス増幅器、あるいは 5kHz の増幅器でも同様である。

再生増幅器の調整は、M5 からのもれ光の時間波形をオシロスコープで観察しながら、自己発振の立ち上がり時間が最も早くなるようにアライメントを最適化してゆく事によって行われる。同時に M6 からのもれ光を分光器で見るとスペクトルの形も薄膜フィルム偏光子エタロンの入射角と印可電圧を変化させて調節する。ただし、最終的には、すべての増幅ステージ後に Compression したパルスのスペクトル幅が広がるよう微調整を行う事になる。

パルスが共振器内を 12~20 往復してエネルギーが飽和した直後に Pockels Cell に 1/4 波長電圧を印可する事によって、共振器から増幅パルスをスイッチアウトする。縦偏光のこの光は T.F.P.1 を反射しフェラデー旋光子通過後も偏光は回転せず T.F.P.2 によって反射され、次の 3 パス増幅器に送られる。この再生増幅器から得られたパルスエネルギーは約 800 $\mu$ J（平均のパワーで 800mW）であった。

### 6.1.3 マルチパス増幅器

#### 3-パス増幅器

基本構成は図 5.7 と同じで、本研究独自の設計である SCAT の考え方に基づいている（5.3.2 参照）。用いた凹面鏡の曲率半径は 1.5m で、これを距離約 1.85m だけ離して配置し、中央に Ti:sapphire を置く擬共振器構造である。

Ti:sapphire は低濃度（0.05wt%）で長い（5mm 径、30mm 長）Brewster/Brewster カットのものを用いて銅ホルダーとの接触面積を増やし、冷却の効果を高めている。冷却は再生増幅器と同様、約 10°C の不凍液の循環によって行われている。増幅エネルギーの増大と共に、光パルス（励起光、増幅光いずれに対しても）による Ti:sapphire 結晶の損傷が懸念されるため、結露やほこりの付着を防ぐ目的で乾燥空気による Ti:sapphire 表面のページが行われている。

<sup>1</sup>Shott 社の LaSF014 に相当する。

励起レーザーは Quantronix 社製 cw-Q スイッチ Nd:YLF の 2 倍波出力 (527DP-H) で Ti:sapphire の直前のパワーで 13W を 3-パス増幅器に入力している。パルス幅は 200ns 程度 (励起のランプ電流の値によって異なる) である。擬共振器を構成している凹面鏡は Ti:sapphire から 1m 近く離れているため、この凹面鏡を通して増幅光との同軸励起を行おうとすると f ナンバーが小さくなりすぎて、適切な集光ができない。ここでは、増幅光の経路の直下にエッジの出た 45° ミラーを配置し、ここから励起光を打ち込む様にしている。励起の集光レンズはこの 45° ミラーの近くにあるので、十分な絞込みが行える。

この 3-パス増幅器はコンフォーカル型のマルチパス増幅器とは異なり、凹面鏡のアライメントが合えばすべてのパスが自動的に Ti:sapphire 上で重なるものではないので、1 パスごとに折返しミラーによってビームの重なりを合わせて行く必要がある。1-パス目の出力は約 3W (3mJ/pulse)、2-パス目は 5W (5mJ/pulse)、3-パス目では 6W (6mJ/pulse) となり、4-パス目ではこれよりパワーが下がったため、3-パスでこのステージの増幅は飽和に達している事が分かった。3-パスでの出力を Pockels Cell による「パルススライサー」に通すステージへ送り出している。

## パルススライサー

「パルススライサー」は Pockels Cell と偏光子の組み合わせによって 1 パルスのみを時間的に切り取る仕掛けで、マルチパスステージ間の自己発振を抑制するために用いられている。Pockels Cell へ印可されるパルス状の高電圧は半値全幅が約 6ns であるので、モード同期のパルス列から 1 本のみの光パルスを切り出す事も可能である。ただし、駆動回路 (Medox 社製) の都合上ピークが 1/4 波長電圧までにしか上がらないため Pockels Cell を往復させて 1/2 波長の位相差を得ている。

図 6.1(a) にある通り、3-パス増幅器の出力は曲率半径 1.5m の凹面鏡で拡大されて偏光子、Pockels Cell、1/4 波長板を通して曲率半径 1.2m の凹面鏡で僅かに位置をずらしながら再び入射側の凹面鏡に戻される。2つの凹面鏡によってビーム径を 1.6 倍に拡大して Pockels Cell 等の光パルスによる損傷を防いでいる。電圧無印可時は 1/4 波長板の働きによってこれを往復した光の偏光は入射に対して直交するため偏光子によってビームははねられるが、電圧印可時はさらに 1/4 波長の位相差が Pockels Cell によってもたらされるので、ビームは偏光子を通過し最終増幅ステージへ行くことになる。波長板と偏光子の透過損失があるため、入力 6W に対してこのパルススライサーを通過するのは 3.5W と約 60%程度であった。

## 2-パス増幅器

最終段の増幅器も曲率半径 1.5m の凹面鏡 2 枚を用いた SCAT による、2-パス増幅器である。凹面鏡の間隔は 1.95m と長くし、ビーム径の拡大を計っている。使用している Ti:sapphire やミラーのコーティングは 3-パス増幅器と同種のものであり、冷却、パージなども同系統のものを分岐して用いている。

励起レーザーは当初 Quantronix 社製の cw-Q スイッチ Nd:YLF レーザー 2 台の 2 倍波 (537DR) 出力を用いて、Ti:sapphire 結晶の両側からそれぞれ 26W、27.5W で励起を行っている。この時の増幅出力は 22.5W (22.5mJ/pulse) で、Ti:sapphire に吸収された励起パワー 51W に対してエネルギーの取り出し効率は 38%という kHz の増幅器としては最大の値となった。

2-パス増幅後のビームプロファイルを図 6.3 (a)、(b)、(c) に示す。これを見て分る通り、励起ビームのパワーが少ない時にはきれいなガウシアンライクなプロファイルであるのに対し、励起パワーを上げ、出力が増大するにつれて、リング状の部分がメインのビームの周りにでき始め、最高の励起パワーではこの部分がかなり顕著になってきている事がわかる。特に上下方向 (光学台を基準にして) にこの傾向が大きい事から推測すると、励起ビームを斜下方から 2 本入射している事によって、等価的に斜に傾いた熱レンズが 2 つできてしまい、この収差がビームプロファイルに影響しているのではないかとと思われる。いずれにしても長焦点の凹面鏡による集光での  $M^2$  は約 2 であったので、高強度照射の実験に用いるには差し支えないであろう。

この実験の後さらに励起レーザー (Quantronix 社製 cw-Q スイッチ Nd:YLF レーザー、527DP-H) を

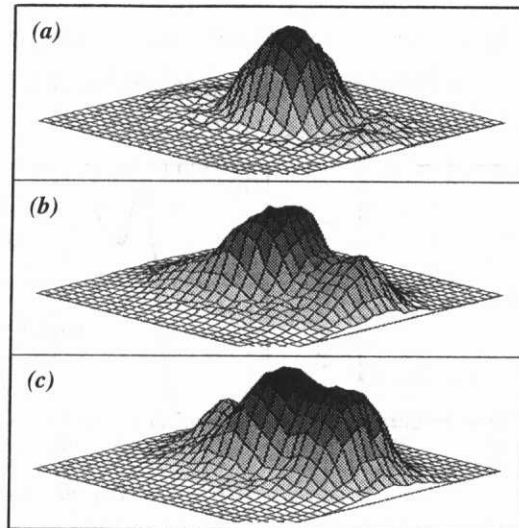


図 6.3: 2-パス増幅後のビームプロファイル。(a): 増幅出力が 10W の時。(b): 増幅出力が 15W の時。(c): 増幅出力が 20W 以上の時。

用い、励起パワーは 15W 付け加わる事となった。増幅されたパワーは 25.3W まで上昇し、吸収された励起パワーに対する効率は 33%となった。

#### 6.1.4 Compressor

増幅されたビームは凸面鏡と凹面鏡の組合わせによるテレスコープでビーム径を拡大された後、直交にフリップさせたミラーペアによる偏光の回転を経て、回折格子対による Compressor に入射される。

Compressor に用いている回折格子は Stretcher に用いているものと同じ Milton-Roy 社製の ruled grating で金コート仕様である。ただし、レーザービームの熱による膨張を考慮して基板はゼロデュアーとし、大きさは縦 120mm と Stretcher 用の 2 倍となっている。

Compressor のアライメント方法には、以下の通りである。

- 最初にビームのあたる回折格子を 0 次反射を利用して所定の角度に設定する。
- 再現性の良いレール上に 0° 反射ミラーを用意して、回折格子の直前でビームを反射し元の方向へ戻す。完全にもとの方向に戻すとレーザーに影響が出てしまう場合は、上下方向に僅かにチルトさせておく。
- 上記 0° 反射ミラーをレール上で移動させ、2 番目の回折格子の回折光があたる様にする。ミラーからの反射光がもとの経路と重なる様 2 番目の回折格子の回転角を合わせる。これによって 2 枚の回折格子の平行度が（レールと 0° 反射ミラーの平行移動の精度の範囲で）保証された事になる。
- 予め垂直をあわせておいたルーフミラーで、2 番目の回折格子からの回折光を戻してやり、入射ビームの真下または真上に来るよう左右を合わせる。

Compressor の効率は 55% であり、得られた平均のパワーは 14W (14mJ/pulse) であった。Pulse Compression は、Compressor の出力を単一ショットの自己相関計に通し、50 $\mu$ m 厚の BBO による SHG 相関波形（空間パターン）をカメラでモニターしながら、これが最も細くなるように回折格子間隔、入射角（2 枚の回折格子の回転角を、ビームの方向が変化しない様に変えてゆく）、再生増幅器のプリズム対の突っ込みを調整してゆく事によって行う。この手順は 4.3.4 に於ける光線追跡計算での配置の最適化と同じである。これによって 21 fs のパルス幅が最終的に得られた。

### 6.1.5 結果

得られたエネルギーについての結果は各ステージの詳細で述べられている通りである。レーザーシステムの出力のスペクトルを図 6.4 に示す。図 6.4(a) はスペクトル制御をしなかったときの結果である。

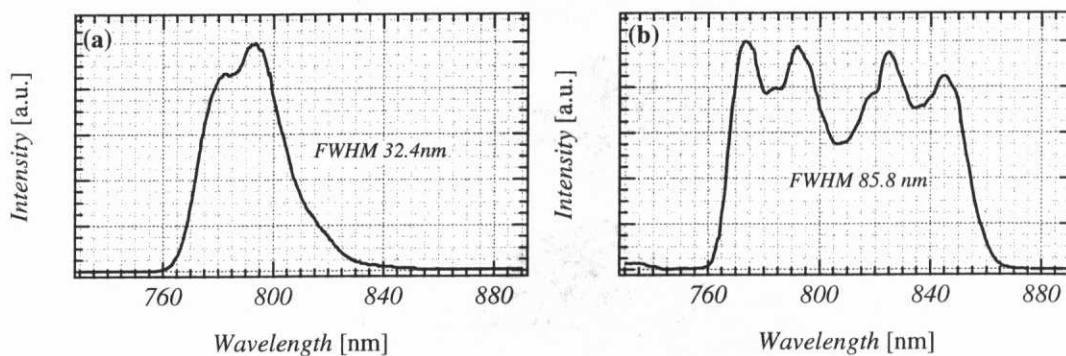


図 6.4: Compressor 後のスペクトル。(a): スペクトル制御をしない場合。(b): 再生増幅器中の薄膜フィルム偏光子エタロンと針、さらに Stretcher 中のマスクの調整でスペクトル幅を最大にした時。

利得プロファイルに起因する狭帯域化によって (§4.1 参照) スペクトル幅は 30nm 程度になった。一方図 6.4(b) は再生増幅器中の薄膜フィルム偏光子エタロンと針、さらに Stretcher 中のマスクを調整して得たスペクトルで、半値全幅は 80nm 以上に達し、このスペクトルに対するフーリエ限界パルスは 20fs を切ると計算された。ただし **HYCOME** による分散補償では、最大にスペクトル幅を広げるよりも適度なスペクトル幅及び波形の方が Compression しやすいので (スペクトルの裾の部分での位相変化が比較的大きいため) Compression はこれよりも若干狭いスペクトルで行った。

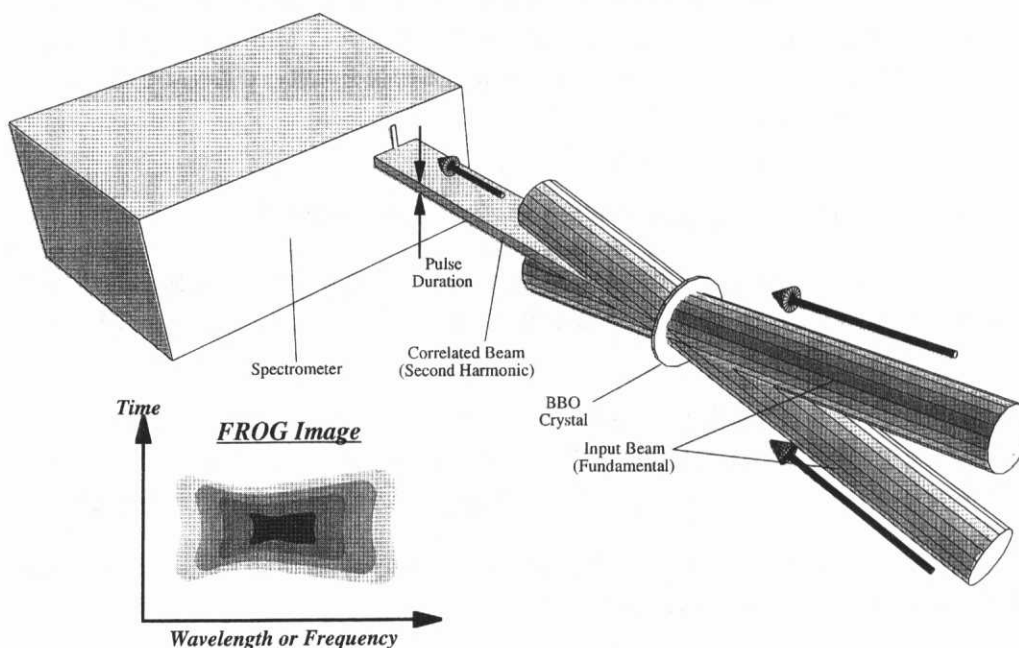


図 6.5: FROG によるパルス幅計測のセットアップ。左下は分光器から得られる FROG イメージの模式図。

パルス幅の計測は前節に述べた通り、単一ショットの自己相関波形を観察しながら最短パルスが得られるように Compressor とプリズム対、スペクトル波形を調整した。この後さらに、自己相関波形を表している 2 倍波を分光して、2 倍波発生による周波数分解光学ゲート法 (SHG-FROG) によってパルス

の包絡線、位相の決定を行った。図 6.5 に装置配置の概略を示す。単一ショットによる計測は自己相関の時間幅を 2 本のビームを斜めに重ね合わせる事によって空間方向の幅に変換している。図 6.5 の配置では発生した 2 倍波の縦方向のプロファイルが時間幅を表わす事になる。これをさらに横方向に対して分光してやる事によって、図 6.5 左下に示すような横軸が周波数、縦軸が時間を表わすスペクトログラムが得られ、このスペクトログラムが得られるようなパルスを再構築することによって元のパルスの波形、位相の情報得られる。

実験で得られた FROG イメージから再構築したパルス（強度）波形と位相を図 6.6 に示す。図 6.6(a)

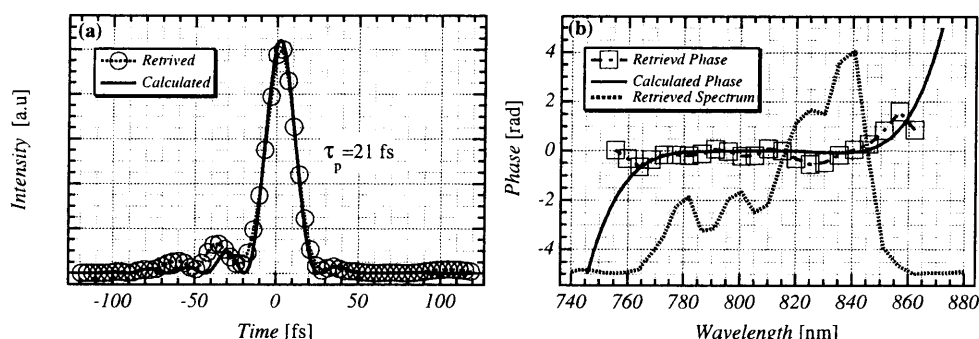


図 6.6: FROG イメージから再構築したパルス波形 ((a)) とスペクトルに対する位相 ((b))。実線は光線追跡で計算した値。

は時間方向の強度波形、図 6.6(b) は周波数（波長）にたいするスペクトルと位相を表わしている。図 6.6(a) の実線は、光線追跡によって計算した位相（実験結果に合うように回折格子の入射角等を調整しているので 4.3.5 で得られたものとは若干異なる）と実験で得られたスペクトルを合わせてフーリエ変換した結果である。裾の部分が少々ずれているものの、計算値と FROG による再構築の結果は良く一致しており、半値全幅 21fs のパルスが得られた。これによって、レーザーパルスのピークパワーは 0.66TW となった。

以上、本研究で開発した 1kHz の Ti:sapphireCPA レーザーシステムの仕様をまとめると次のようになる。

表 6.1: 1kHz、0.66TW レーザーシステム

繰返し	1kHz
中心波長	~800 nm
Energy/pulse	14 mJ
平均のパワー	14 W
パルス幅	21 fs
ピークパワー	0.66 TW

### 6.1.6 補足

上記レーザーの開発の後、Ti:sapphire を励起するグリーンレーザーをランプ励起の Nd:YAG または Nd:YLF であったものを、レーザーダイオード (LD) 励起の Nd:YAG レーザーに変更したので、その結果について補足をする。

LD 励起の Nd:YAG レーザーは三菱電機先端技術総合開発研究所で開発された MEL-Green50 である。1/5-duty のパルス電流で駆動された quasi-cw LD によって YAG ロッドは励起され、AO 変調器によって駆動電流に同期して Q スイッチをかける様になっている。パルス幅は約 150ns、共振器内 SHG によ



て1台あたり 45W (45mJ/pulse) のグリーンレーザー光出力が得られる。本システムではこのレーザー2台を Ti:sapphire の励起に用いた。図 6.1(b) の上側の台に乗っている2つの箱はこの励起レーザー2台を表したものである。

励起レーザーの変更に伴って、各増幅ステージへの励起パワーの配分も変更され、再生増幅器へは1台目の YAG レーザーの約 20%、3-パス増幅器にはこの残りの 80% が用いられ、最終段は 2-パスから 1-パスに変更された上で、もう1台の YAG レーザーの出力全てが励起に用いられた。

図 6.7 に示す通り、この変更と同時にシステムの一部を変更した。マルチパス部分の自己発振による

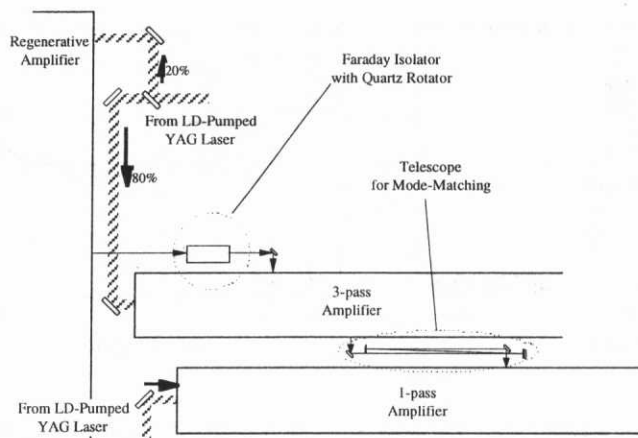


図 6.7: LD 励起 Nd:YAG レーザーによる Ti:sapphire 励起に伴った変更点。

レーザーの戻り光からモード同期発振器を守るために、再生増幅器直後にアイソレーターを（偏光を合わせるために 90° の石英旋光子も）挿入し、その代わりにマルチパス間にあったパルススライサーをはずした。アイソレーターの透過率は 90% 以上あるので、パルススライサーによる損失分が無くなり、励起効率が向上した。

また 3-パス増幅器、1-パス増幅器の SCAT に用いる凹面鏡の曲率半径を 2m に変更した。これに伴って凹面鏡間隔も広がるため、途中を 0° ミラーで折返す形に改良した（図 6.8）。従来の配置では、集光の

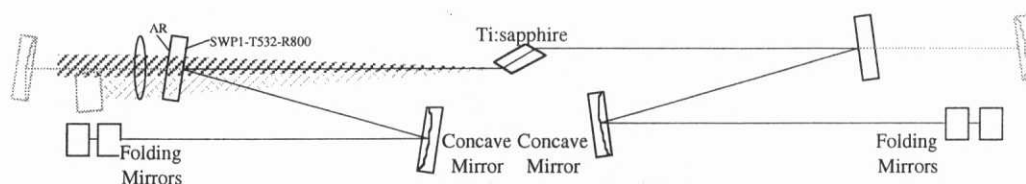


図 6.8: マルチパスの変更点。灰色の部分が従来の配置。

都合上励起ビームを増幅ビームの斜下から打ち込まねばならず、縦方向に関して励起ビームと増幅ビームが斜めに交差していたが、この改良によって、0° ミラーを通して励起を行う事ができるようになり（532nm 透過のダイクロイックおよび AR コートを施している）、増幅ビームとの方向の不整合が改善された。

また、Ti:sapphire 上でのビーム径を最適化するため、3-パス増幅器と 1-パス増幅器の間に 1.5 倍拡大系の telescope が新たに設けられた。

これらの改良によってマルチパス増幅器の各パスの出力は図 6.9 の様になった。3-パス増幅器は励起 30.6W に対して 27.9W が Ti:sapphire に吸収され、840mW の入力に対して 13.0W の増幅出力が 3-パス後に得られた。吸収された励起光に対する取り出し効率は 43.6% と非常に高い値になっている。最終の 1-パス増幅器については 38.8W の励起にたいして 31.8W が Ti:sapphire に吸収され、27W の増幅出力が得られた。この増幅器も 44% という大変高いエネルギー取り出し効率を達成している。

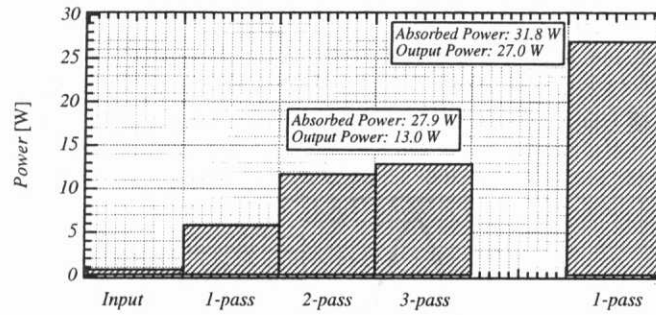


図 6.9: 励起を LD 励起 Nd:YAG レーザーに変えた時のマルチパスの出力。

## §6.2 全固体 5-kHz 0.2-TW チタンサファイアレーザーシステム

### 6.2.1 システムの概要

基本的には 1kHz のシステムと同様な Ti:sapphire の CPA システムである [79, 80]。しかし第 5 章で述べた通り、熱レンズの補償が難しくなるため、再生増幅器及びマルチパスの設計が 1kHz のシステムとは大きく異なっている。また、励起レーザーは LD 励起の cw-Q スイッチ Nd:YAG レーザーの 2 倍波

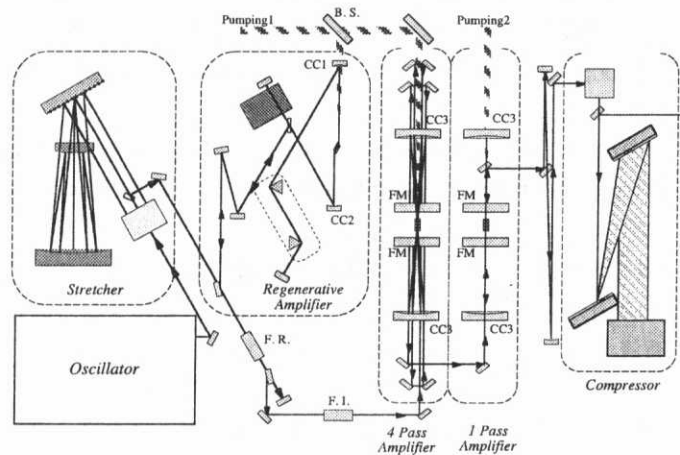


図 6.10: 全固体 5kHz、0.2TW レーザーシステム

であり（三菱電機、MEL-Green100×2 台）、これらの本体は除振台上に設けられたステージの上に並べられている。

### 6.2.2 各ステージの詳細

#### 励起レーザー

本システムの特徴としては 5kHz という高速の繰返しの他に、励起レーザーに新しく開発された LD 励起の Nd:YAG レーザーを使用している事が挙げられる。これによって、システムで用いられている光源はすべて固体化された。LD 励起の固体レーザーは従来のランプ励起の固体レーザーと比べて、安定、長寿命、電気-光効率の良さ等、優れた性質を持つ事が知られており、全固体化によってシステム全体の安定化、稼働率の上昇が図られている。

励起レーザーについての詳しい内容は参考文献 [81, 82] にある通りであるが、本システムでは、繰返し 5kHz において 1 台目のレーザーが 56W、2 台目のレーザーが 83W の 2 倍波出力での運転となっている。また、この運転の条件でのパルス幅は 200ns である。 $M^2$  の値は約 10 で、集光点でのビームプロファイルは図 6.11 に示す通り、横方向、縦方向共にガウシアンに近い形であり、Ti:sapphire の励起に適

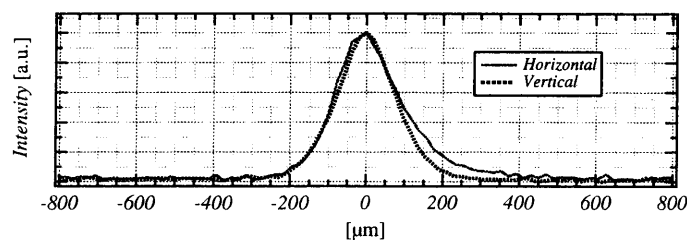


図 6.11: LD 励起 Nd:YAG レーザー (2 倍波) のビームプロファイル。実線が横方向、点線が縦方向。

している。

### 再生増幅器

モード同期発振器と Stretcher は 1kHz のシステムと同じ仕様であるのでここでの説明は省略する。再生増幅器は熱レンズの値が 1kHz の場合とは異なるため、共振器の構成が異なっている。5.2.2 と同様な計算に基づき、凹面鏡の曲率半径 200mm のもの (図 6.10 の CC1) と 300mm のもの (図 6.10 の CC2) を用いた 4 ミラー X 型共振器を基本構成とした。この共振器の曲率半径 300mm の側の腕に Pockels Cell と薄膜フィルム偏光子、曲率半径 200mm の側の腕に LAH64 の Brewster Prism 対、薄膜フィルム偏光子エタロンが挿入されている。

励起は 1 台目の YAG レーザーの出力のうち 17W を用いている。この励起光を  $f=-35\text{mm}$  の凹レンズと  $f=50\text{mm}$  の凸レンズの組み合わせ (いずれも 532nm の AR 付き) によってタイトフォーカスして、少ないエネルギーでも十分なフルエンスが得られるようにしている。

Ti:sapphire は 1kHz の場合と同じく Uion Carbide 社 (現 BICRON 社) 製、0.15wt% dope、FOM300 で、7mm 径  $\times$  12mm 長の Brewster/Brewster ロッドである。銅ホルダーにインジウム薄板を通して密着させ、ホルダーに 10°C の不凍液を通して冷却するのも、1kHz の場合と同様である。

共振器の最適化は 5.2.2 で述べた様に、Ti:sapphire の位置と凹面鏡間隔に敏感であるため、計算値の位置に光学系を配置した後、自己発振の波形が最も速く立ち上がる様にマイクロメータ付きステージに乗った Ti:sapphire 及び凹面鏡の位置を調整した。励起のフォーカスについても同様な調整を行ったが、自己発振の立ち上がりを極端に速くするとパルス増幅時には、出力がかえって下がる傾向が見られたため、励起のフォーカスについては増幅パワーが最大となるように調整をしている。これは飽和増幅時に励起のビーム径が小さくなりすぎて、エネルギーの取り出し効率が悪くなる事に起因する現象と思われる。最終的には凹面鏡間隔が 251mm、Ti:sapphire が曲率半径 200mm の凹面鏡から 112mm の位置となった。

繰返しを 5kHz まで増加させたため、Pockels Cell システム (Medox 社製) も高繰返し用の工夫がなされている。回路構成は 1kHz の場合と同様、トライオードによる高電圧の容量移行回路にプリバイアスのかけたものであるが、単位時間あたりのトライオードの電流増幅動作時の損失が増えるため、放熱を強化する必要がある、従来の放熱フィンによる空冷から外部冷却水による水冷への改造がなされている。またプリバイアスユニットについても、ファンによる強制空冷が行われている。

この再生増幅器に於いて、薄膜フィルム偏光子エタロンによるスペクトル制御を行い、12~18 往復した後取り出した増幅パルスの平均パワーは 750mW であった。

## マルチパス増幅器

再生増幅器の出力は、以降の増幅器からのもどり光から発振器と再生増幅器を切り離すための Faraday アイソレーターを通った後、SCAT による 4 パス増幅器によって増幅される。5.3.2 に於ける擬共振器の設計に従い、曲率半径 500mm の凹面鏡 2 枚をコンフォーカルから大幅にずらした距離 (260mm~300mm) に配置し、 $0^\circ$  入射の平面鏡で擬共振器の腕を折り曲げ、その先に各パスに対する折返しミラーを置く構成になっている (図 5.7 参照)。再生増幅器と同様、増幅ビームの径は凹面鏡間隔の違いに敏感なので、凹面鏡間隔は出力が最大となるよう、4 パスを合わせ直しながら調整を行った。

励起ビームは凹面鏡の背後から打ち込まれるので、凹面鏡の裏面は 532nm に対する AR コートを施し、また表面 (増幅ビームを反射する凹面) もダイクロイックコーティング (CVI 社、SWP1-T532-R800-0) としている。励起ビーム 49W は偏光を  $90^\circ$  回転するペリスコープ型の転送ミラーによって集光系 ( $f=-100\text{mm}$  の凹レンズと  $f=120\text{mm}$  の凸レンズ、いずれも 532nm の AR 付) まで運ばれ、この内 32.5W が Ti:sapphire に吸収される。図 6.12(a) はこの時の 4 パス増幅器の各パスにおける出力を示す。再生増

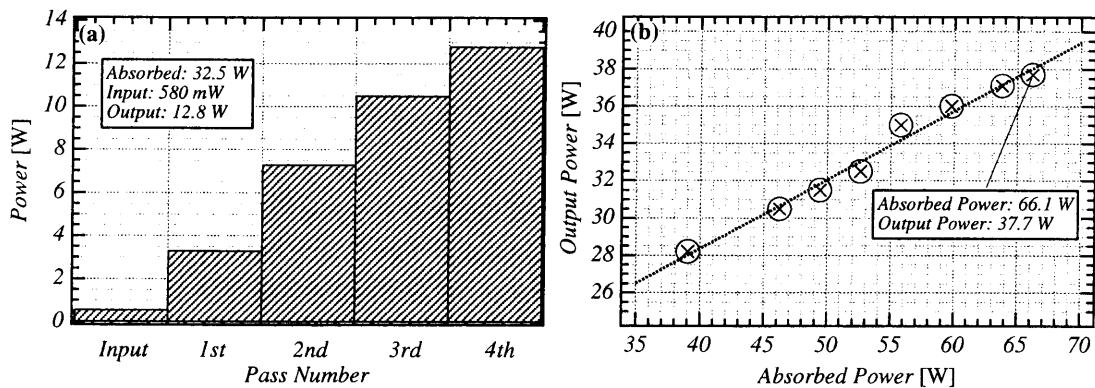


図 6.12: マルチパス増幅器の出力。(a): 4-パス増幅器の各パスにおける出力。(b): 1-パス増幅器の出力。横軸は Ti:sapphire の吸収したパワー、縦軸が出力パワー。

増幅器との間にある Faraday アイソレーターによる損失で、4 パスに入力されるパワーは 580mW となっている。これに対して 1 パス増幅ごとに、3.3 W、7.3 W、10.5 W、とパワーが増加し、最終的に 4 パス目で 12.8 W の出力が得られた。パワーの増加は、まだ飽和にまで到達していない様に見えるが、これ以上のパス数の増加は試みなかった。もう 1 パスさせればもう少しエネルギーを取りだせる可能性があるが、凹面鏡の焦点距離が短いので、各パスのビームのオーバーラップの度合いが悪くなり、ビームパターンを悪化させる恐れがあるためである。いずれにしろ、吸収したパワーに対する取り出し効率は約 38% であり、高繰返し増幅器としては非常に高い値と言える。

最終段の 1-パス増幅器も 4-パス増幅器と同じ光学系による構成であるが、1-パスのみであるので擬共振器と呼ぶには語弊があるかもしれない。当初は 2-パスによる増幅を試みたが、ビームの空間的なオーバーラップの調整中に、増幅ビームの横モードに強度の強い部分が生じて Ti:sapphire にダメージを生じたため、励起と増幅ビームの空間的な整合がとれる 1-パス構成にした経緯がある。凹面鏡と Ti:sapphire の距離は 4-パス増幅器よりも数 mm から 10 数 mm 程度長くし、ビーム径が大きくなるようにし、励起は 2 台目の MEL-Green100 の出力を偏光回転のためのペリスコープ等の転送ミラーと集光系 ( $f=-100\text{mm}$  の凹レンズと  $f=150\text{mm}$  の凸レンズ、いずれも 532nm の AR 付) および擬共振器の凹面鏡を通して打ち込んでいる。最終段増幅器に於いて、Ti:sapphire に吸収された励起パワーに対する増幅出力の変化の様子を図 6.12(b) に示す。励起のパワーの調整は LD をドライブする電流値によって行った。これによって励起パルスの発振のタイミングが変化するため、LD の電流値を変えるごとに Q スイッチへのトリガーのタイミングも調整し、最大のパワーが得られるようにしながら測定を行った。励起パワーによって大きく熱レンズが変化するはずであるにもかかわらず、図 6.12(b) に示される通り、増幅出力はほぼ線形に増加しており、この増幅器の熱レンズ補償が有効に働いている事が伺える。最大の励起パワー 83 W のとき、Ti:sapphire に吸収されたパワーは 66.1 W であり、このときの出力は 37.7 W であった。これは超

短パルスの Ti:sapphire 増幅器としては最大の平均パワーである。エネルギー取り出し効率は約 38%と 4パス増幅器と同じで非常に効率の高い増幅器となっている。

増幅されたビームの集光性、集光点でのプロファイルを図 6.13 に示す。 $M^2$  の測定は、ビームを Wedge

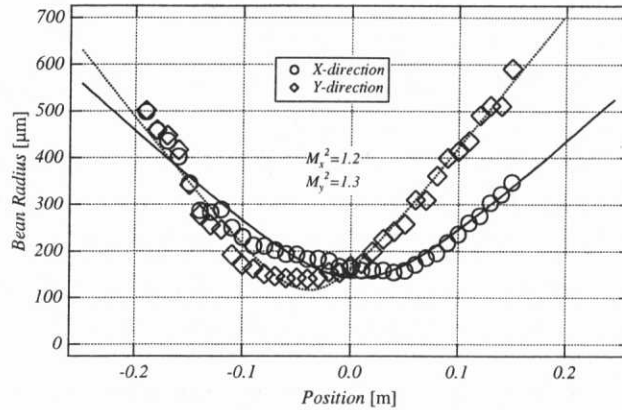


図 6.13: 増幅されたビームの集光性能。丸によるプロットが水平 (X) 方向、菱形によるプロットが垂直 (Y) 方向に対する  $M^2$  の測定結果。

基板で Fresnel 反射させた後、さらに偏光子と 1/2 波長板で減光して行った。集光は長焦点の凹面鏡で行い、プロファイルをモニターするカメラの位置を移動しながら水平 (X) 方向と垂直 (Y) 方向のプロファイルを記録する。これらをガウシアンでフィットし各カメラの位置でのビーム径 ( $1/e^2$  半値幅) を決定する。カメラの位置を  $z$  とし、その位置でのビーム径  $w(z)$  を式

$$w(z) = \sqrt{w_0^2 + M_i^2 \left\{ \frac{\lambda}{\pi w_0} (z - z_0) \right\}^2} \quad (i = x, y) \quad (6.1)$$

でフィットして  $M^2$  を求めた。なお、式 (6.1) 中の  $w_0$  (最小ビーム径)、 $z_0$  (最小ビーム径の位置) がフィッティングパラメータで、波長  $\lambda$  は 800nm に固定している。この結果図中に示した通り、x (水平) 方向の  $M^2$  が 1.2、y (垂直) 方向の  $M^2$  が 1.3 となり、ほぼ Gaussian に近い集光性が得られた。また、集光位置でのビームプロファイルも 図 6.14 に示す通り、裾に若干の歪みがあるもののほぼ Gaussian と

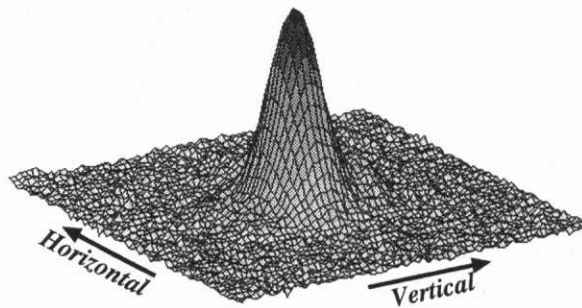


図 6.14: 増幅されたビームの集光位置でのプロファイル。

言って良い形状である事が確認された。

### 6.2.3 Compressor

最終段で増幅されたビームは凸面鏡と凹面鏡の組合わせによるテレスコープによって 40mm 弱のビーム径まで拡大され、2 枚の回折格子を平行に配置した Compressor に通される。用いている回折格子の種

類、配置のやり方等は 6.1.4 で述べた kHz の場合と全く同じである。また、Compressor 後の平均パワーは 22.2 W であり、超短パルスレーザーとしてはこれまでで最高の値を記録した。

6.1.4 で述べたやり方で Compressor と再生増幅器中のプリズム対の最適化を行い、パルス圧縮を行った。得られたスペクトルを図 6.15(a) に、SHG-FROG によるパルス幅測定の結果を図 6.15(b) に示す。

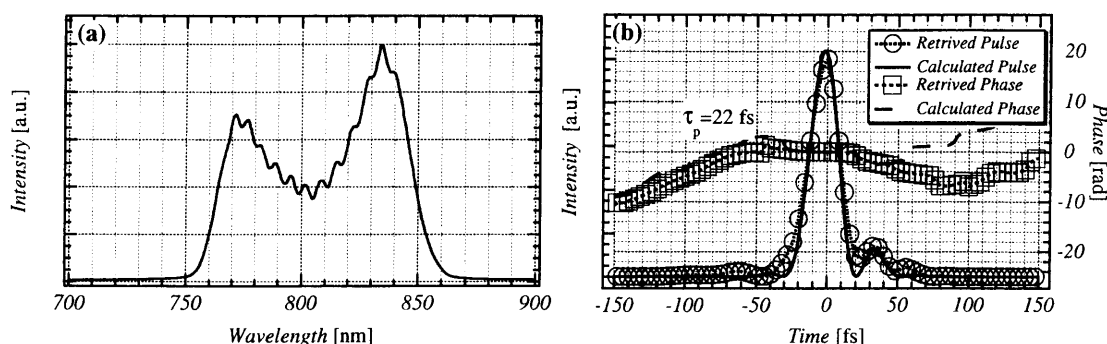


図 6.15: (a): Compressor 後のスペクトル。(b): SHG-FROG によるパルス幅測定結果。

ここでのスペクトル制御は再生増幅器中の薄膜フィルム偏光子エタロンのみで行っており、スペクトルの中央のディップがかなり深くなっているが、半値全幅は 80 nm 以上まで広げることができている。パルス幅については裾の部分にペダスタルが少々見られるものの半値全幅では 22 fs まで圧縮することができおり、図 6.15(b) の実線及び一点鎖線で示した様に、適当なモデルを仮定すると光線追跡による計算で、位相、パルス波形とも実験値をほぼ再現する事ができた。

1 パルスあたりのエネルギーが約 4.4 mJ (5kHz で平均パワーが 22.2 W)、パルス幅が 22 fs であるから、0.2 TW のピークパワーが 5kHz で得られた事になる。

## 6.2.4 結果

本研究で開発した 5kHz のシステムの仕様をまとめると表 6.2 の様になる。

表 6.2: 5kHz、0.2TW レーザーシステム

繰返し	5kHz
中心波長	~800 nm
Energy/pulse	4.4 mJ
平均のパワー	22.2W
パルス幅	22 fs
ピークパワー	0.2 TW

比較のために代表的な Ti:sapphire CPA システムの仕様を表 6.3 にまとめる。表中の Institute の略称はそれぞれ、JAERI=> 日本原子力研究所 [1]、MIT=> マサチューセッツ工科大学 [77]、CUOS=> ミシガン大学超高速光科学センター [63]、B=> ボルドー大学 [2, 3]、ISSP=> 東京大学物性研究所 [13, 79, 80] (本研究) を表す。5kHz という高繰返しで 20W 以上のパワーを得た増幅器はこれまでになく、さらに、1kHz 以下の増幅器と比較しても、平均のパワーは最大であり、本研究でのレーザー開発の位置付けは明確であろう。さらに、最終段増幅器のエネルギー取り出し効率を比較してみると、10ns 程度の短いパルス幅で励起している 10Hz の増幅器 [1] を除けば<sup>2</sup>、本研究で得られた値が最大であり、SCAT によるマルチパス増幅器の有効性が示されたと言える。

<sup>2</sup>Ti:sapphire の上準位寿命は約 3 $\mu$ s なので励起のパルス幅が 200ns であると 10ns の場合に比べて反転分布の密度が約 6%減少している事になる。

表 6.3: 代表的な Ti:sapphire CPA の比較

Institute	JAERI	MIT	CUOS	B	ISSP	ISSP
繰返し	10Hz	1kHz	1kHz	1kHz	1kHz	5kHz
平均のパワー (圧縮前)	34W	10.5W	7W	28W	25.3W(27W)	37.7W
平均のパワー (圧縮後)	18W	6.5W	4.8W	18W	14W(14.9W)	22.2W
最終増幅器の効率	53%	~30%	~24%	32%	33%(44%)	38%
パルス幅	18fs	94fs	21fs	18.5fs	21fs	22fs

## §6.3 KrF-Ti:sapphire ハイブリッドシステム

これまで述べてきた高繰返しの CPA システムは Ti:sapphire レーザーを増幅媒質として用いたものであり、波長可変ではあるものの、波長域は近赤外に限られていた。一方、紫外領域の超短パルスレーザー媒質として KrF エキシマ (利得中心波長 248.3nm) が良く知られており [83]、高強度化の試みも多くなされてきている [84, 85, 86, 87, 88]。

本研究のレーザー開発の目的の一つは超短パルス高強度レーザーをガス媒質に集光して得られる高調波を真空紫外～軟 X 線領域の超短パルスコヒーレント光源として利用する事にあるが、90nm から 50nm 程度の真空紫外に限ってみると、この波長域における高調波の発生強度は (KrF エキシマレーザーの 3 次及び 5 次高調波と Ti:sapphire レーザーの 9 次から 15 次高調波の比較) KrF レーザーの高調波によるものの方が 2 桁あるいはそれ以上強いことが知られている [89]<sup>3</sup>。従って、この波長域の強力なコヒーレント光発生的手段として高強度の超短パルスエキシマレーザーの研究開発は重要な役割を果たすと言える。

このセクションでは上記の目的を念頭に置いて、Ti:sapphire CPA を前段増幅器として用いた KrF-Ti:sapphire ハイブリッドレーザーシステムによる高強度紫外超短パルス発生実験について述べる。

### 6.3.1 システムの概要

KrF エキシマレーザーは 248.3nm を中心に 2nm 以上の利得帯域幅を持つ (図 6.16) ことから、超短パルス増幅媒質として利用されてきた。超短パルスのモード同期発振器としては、紫外域で有効に働く

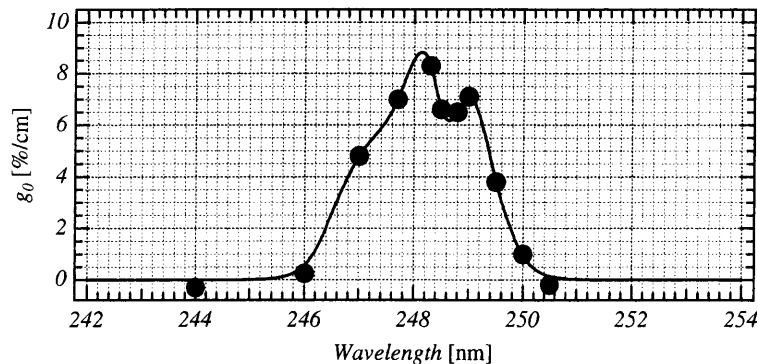


図 6.16: KrF エキシマレーザーの小信号利得 [90]。248.3 nm を中心に半値全幅 2.2 nm 渡って利得を持つ。なお、小信号利得  $g_0$  は  $g_0 = (\ln G)/L_g$  で与えられる。ここで、 $G$  は増幅率、 $L_g$  は利得媒質の長さである。

可飽和吸収体が開発されない等多数の問題があり、実用にはいたらなかったが、超短パルスの紫外種光

<sup>3</sup>強度は弱くても、より短波長化を目指すのであれば Ti:sapphire レーザーの超短パルス化が有効である [91]。

さえ発生できれば増幅器としては有効に働き、1989年の時点でパルス幅 400fs、4TW のピークパワーを持つ増幅システムが開発されている [84]。このレーザーは電子ビーム励起による単一ショットの増幅器を最終段に用いていたため、高繰返しは不可能であったが 1992 年には 10Hz での繰返しが可能な放電励起の大口増幅器が開発され、1TW のピークパワーが 10Hz で得られるようになった [85]。

しかしながら、これらの増幅器に対する種パルス光は色素レーザーの超短パルス増幅器からの出力を波長変換したものであり、数  $\mu\text{J}$  程度のエネルギーしか得られていなかった。色素レーザーは飽和フルエンスが低いため、利得は得易いものの大きなエネルギーを取り出すためには大口径を必要とし、さらに上準位の寿命が sub-ns とかなり短いので、数 ns 程度のパルス幅の励起であっても、自然発光の増幅 (ASE) を抑えなければならず、高エネルギーの増幅を行うためには非常に複雑な手法と微妙な調整が必要であった。このため、さらにこれを波長変換すると、上記のようなエネルギーしか得られなかったのである。エキシマレーザーについても同様な問題がある。色素レーザーと同様、飽和フルエンスが小さく利得は得易いものの、高利得の増幅ではどうしても ASE の問題を避ける事ができない。各増幅ステージの間にピンホールによる空間フィルターを設け、被増幅光と自然放出光のコントラストをつける事によって参考文献 [85] では  $10^5$  倍程度の増幅を実現しているが、色素レーザーの増幅器と複数のエキシマレーザーを同時に動かさねばならない事を考えると装置の複雑さは否めない。

エキシマレーザーの増幅部分に関しては、紫外の種パルスさえ十分なエネルギーを持っていれば、エキシマでの必要な利得は減少し ASE はほとんど問題にならなくなるはずである。すなわち、”高エネルギーの紫外超短パルス発生=>エキシマ増幅ステージ 1 段” という形が実現できれば、これは理想的な超短パルス高強度紫外光発生の手段と言える。幸いな事に Ti:sapphire レーザーは 248 nm の 3 倍波長、745 nm に於いて利得があり、CPA によって高エネルギーの超短パルス増幅が可能である。従って図 6.17

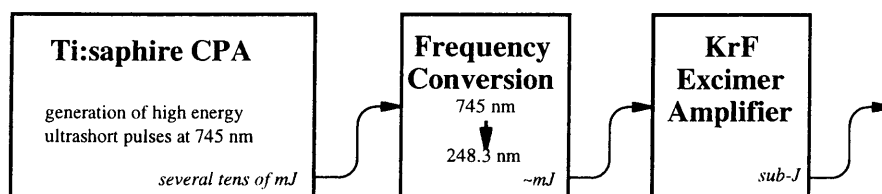


図 6.17: KrF/Ti:sapphire ハイブリッドレーザーシステムの基本方針。図中のパルスエネルギーは 10Hz の繰返しの場合の例。ポイントは mJ クラスの紫外種パルスを発生させ、KrF 増幅器を 1 段で済ます設計である。

に示すように Ti:sapphire と KrF を組み合わせる事によって、

1. Ti:sapphire CPA による 745nm の高エネルギー（繰返し 10Hz であれば数十 mJ 程度）超短パルスの発生。
2. 非線形結晶による高効率波長変換による 3 倍波発生。数十 mJ の基本波（745nm）の入力で、mJ 程度の 248.3nm の超短パルスを得る。
3. 得られた Ti:sapphire レーザーの 3 倍波を KrF エキシマレーザーで増幅する。

という方針が成り立つ。ポイントは高エネルギーの種パルスの入力によってエキシマレーザー増幅ステージを 1 段で済ませ、ASE の影響を最低限に抑える点にある。

次節以降、このやり方によって開発した KrF-Ti:sapphire のハイブリッドレーザーについて述べるが、その前にまず超短パルスの波長変換についての問題点と実際の波長変換の方法について説明する。効率良く紫外の種パルスを発生するための波長変換ステージは本研究の特徴のひとつである。

### 6.3.2 超短パルスの波長変換

付録 F の式 (F-39)~ 式 (F-41) に示す通り、非線形結晶中の波長変換は 3 つの電場のカップルした非線形方程式（入射電場が 1 種類の 2 倍波発生ときは式 (F-43)、式 (F-44)）で記述される [92]。この式



においてパルス光電場（の複素包絡線） $A^\alpha(z, t)$ 、 $A^\beta(z, t)$ 、（中心角振動数は $\omega_\alpha$ 、 $\omega_\beta$ 、波数は $k_\alpha$ 、 $k_\beta$ とする）を入力して中心角振動数 $\omega_\gamma = \omega_\alpha + \omega_\beta$ のパルス光電場 $A^\gamma(z, t)$ を発生させる場合を考える。

式(F-39)～式(F-41)の左辺は各々の光電場包絡線が異なる群速度で移動する様子を表している。これを、 $A^\gamma(z, t)$ の進む群速度で動くフレームにのった形に直すと、このフレーム上での空間座標 $z'$ 、時間座標 $t'$ はそれぞれ

$$\begin{cases} z' = z \\ t' = t - \frac{z}{v_g^\gamma} \end{cases} \quad (6.2)$$

と変換されるから

$$\begin{cases} \frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z'} - \frac{1}{v_g^\gamma} \frac{\partial}{\partial t'} \\ \frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t'} \end{cases} \quad (6.3)$$

になる。ここで $v_g^\gamma \equiv v_g(\omega_\gamma)$ である。式(6.2)の変換を行った包絡線関数を

$$B^\gamma(z', t') \equiv A^\gamma(z', t' + z'/v_g^\gamma) \quad (6.4)$$

$$B^\alpha(z', t') \equiv A^\alpha(z', t' + z'/v_g^\gamma) \quad (6.5)$$

$$B^\beta(z', t') \equiv A^\beta(z', t' + z'/v_g^\gamma) \quad (6.6)$$

と定義すれば、 $B^\gamma$ 、 $B^\alpha$ 、 $B^\beta$ についての方程式は

$$\frac{\partial}{\partial z'} B^\gamma(z', t') = \frac{\omega_\gamma}{2icn_\gamma} \chi_{\text{eff}}^{(2)} B^\alpha(z', t') B^\beta(z', t') e^{i\Delta kz'} \quad (6.7)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z'} + \frac{1}{\Delta v_g^{\alpha\gamma}} \frac{\partial}{\partial t'} \right\} B^\alpha(z', t') = \frac{\omega_\alpha}{2icn_\alpha} \chi_{\text{eff}}^{(2)} B^\gamma(z', t') B^{\beta*}(z', t') e^{-i\Delta kz'} \quad (6.8)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z'} + \frac{1}{\Delta v_g^{\beta\gamma}} \frac{\partial}{\partial t'} \right\} B^\beta(z', t') = \frac{\omega_\beta}{2icn_\beta} \chi_{\text{eff}}^{(2)} B^\gamma(z', t') B^{\alpha*}(z', t') e^{-i\Delta kz'} \quad (6.9)$$

となる。これが（2次以上の分散は無視した）ゆっくりと変化する包絡線による近似（Slowly varying envelope approximation, SVEA）による3光波混合の基本式である。なお、各 notation の定義はF-1を参照。ただし、 $n_\gamma \equiv n(\omega_\gamma)$ 等の省略をしている。さらに、ここでは発生する光電場パルスの群速度と入力する光電場の群速度の逆数どうしの差（群速度ミスマッチ）をそれぞれ

$$\frac{1}{\Delta v_g^{\alpha\gamma}} \equiv \frac{1}{v_g^\alpha} - \frac{1}{v_g^\gamma} \quad (6.10)$$

$$\frac{1}{\Delta v_g^{\beta\gamma}} \equiv \frac{1}{v_g^\beta} - \frac{1}{v_g^\gamma} \quad (6.11)$$

と定義した。

式(6.8)、式(6.9)を見て分かる通り、時間微分の係数に群速度の逆数の差が掛かっているため、パルス包絡線関数 $B^\alpha$ 、 $B^\beta$ は $B^\gamma$ に対してそれぞれ相対速度 $\Delta v_g^{\alpha\gamma}$ 、 $\Delta v_g^{\beta\gamma}$ で移動してしまう。結晶長 $L_c$ だけ進む間に $\tau^{\alpha\gamma} = L_c / \Delta v_g^{\alpha\gamma}$ または $\tau^{\beta\gamma} = L_c / \Delta v_g^{\beta\gamma}$ だけのdelayがつくので、入射パルス幅がこの値よりも小さいと波長変換の際に発生するパルス幅に大きな影響を与える事が予想される<sup>4</sup>。

745nmの2倍波発生を例にとると、 $\Delta v_g^{\alpha\gamma}$ の値はKDPで約100fs/mm、LBOで約150fs/mm、BBOで200fs/mmなので、100fs程度のパルス幅であれば、波長変換には十分注意する必要がある。

<sup>4</sup>パルス幅が十分長ければ

$$\frac{L_c}{\Delta v_g^{\alpha\gamma}} \frac{\partial B^\alpha(z', t')}{\partial t'} = \int d\omega \frac{\omega}{\Delta v_g^{\alpha\gamma} / L_c} \tilde{B}^\alpha(z', \omega)$$

において、 $B^\alpha$ のフーリエ成分 $\tilde{B}^\alpha$ の幅が $\Delta v_g^{\alpha\gamma} / L_c$ に比べて十分狭いのでこの項は無視できる。 $B^\beta$ についても同様。これによって第付録F章の式(F-45)～式(F-46)が近似的に成立する。

## 群速度ミスマッチの影響～近似解

群速度ミスマッチが波長変換にどのような影響を与えるか、発生する光電場が十分弱く、群速度ミスマッチが入射光パルスの幅より十分大きいという極端な場合を例にとって具体的に考えてみよう。簡単のため完全に同種の光電場による2倍波発生 (Type I SHG) で位相整合が成り立っているとする。この時の基本方程式は式 (F-43)、式 (F-44) なので式 (6.2) 及び式 (6.4)、式 (6.5) の変換により

$$\frac{\partial}{\partial z'} B^\gamma(z', t') = g_{\text{sh}} B^\alpha(z', t') B^\alpha(z', t') \quad (6.12)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z'} + \frac{1}{\Delta v_g^{\alpha\gamma}} \frac{\partial}{\partial t'} \right\} B^\alpha(z', t') = g_{\text{sh}} B^\gamma(z', t') B^{\alpha*}(z', t') \quad (6.13)$$

となる。位相整合が成り立っている事から  $n \equiv n_\gamma = n_\alpha$ 、また2倍波発生であることから  $\omega_\gamma = 2\omega_\alpha$  となるので式 (6.12) と式 (6.13) に共通な相互作用定数  $g_{\text{sh}}$  は

$$g_{\text{sh}} = \frac{\omega_\gamma}{4icn} \chi_{\text{eff}}^{(2)} \quad (6.14)$$

となる。

ここで考えているのは発生する光電場 (の包絡線) が弱い場合であるので、式 (6.13) の右辺は殆ど0とみなして良い。この時の式 (6.13) の解は入射電場が  $z' = 0$  での包絡線関数  $B_0^\alpha(t') \equiv B^\alpha(0, t')$  の形を変える事無く  $z'$  方向に速度  $\Delta v_g^{\alpha\gamma}$  で進行する形、すなわち

$$B^\alpha(z', t') = B_0^\alpha(t' - z'/\Delta v_g^{\alpha\gamma}) \quad (6.15)$$

になる (small depletion limit)。これを式 (6.12) に代入して  $z'$  について0から  $L_c$  まで積分 (結晶長を  $L_c$  とする) すれば、発生する2倍波の包絡線が得られる。

$$B^\gamma(L_c, t') = g_{\text{sh}} \int_0^{L_c} dz' \{ B_0^\alpha(t' - z'/\Delta v_g^{\alpha\gamma}) \}^2 \quad (6.16)$$

式を見易くするために積分範囲を  $-\infty$  から  $\infty$  に広げると、

$$B^\gamma(L_c, t') = g_{\text{sh}} \int dz' \{ B_0^\alpha(t' - z'/\Delta v_g^{\alpha\gamma}) \}^2 \Theta(z'; L_c) \quad (6.17)$$

である。ただし  $\Theta(z'; L_c)$  は

$$\begin{aligned} \Theta(z'; L_c) &\equiv \theta(z') - \theta(z' - L_c) \\ &= \begin{cases} 1 & (0 \leq z' \leq L_c) \\ 0 & (\text{その他の場合}) \end{cases} \end{aligned} \quad (6.18)$$

で与えられる幅  $L_c$  の矩形の関数である ( $\theta(z')$  はヘビサイド関数)。  $t'' \equiv -z'/\Delta v_g^{\alpha\gamma} + t'$  と変数変換して、  $\theta(At - B) = \theta(t - B/A)$  ( $A > 0$  のとき)、  $\theta(-t) - \theta(-t + t_0) = -\theta(t) + \theta(t - t_0)$  等を用いると式 (6.17) は、

$$B^\gamma(L_c, t') = g_{\text{sh}} \Delta v_g^{\alpha\gamma} \int dt'' \{ B_0^\alpha(t'') \}^2 \Theta(t'' - t'; L_c/\Delta v_g^{\alpha\gamma}) \quad (6.19)$$

と書ける。式 (6.19) の右辺は入射電場包絡線関数の2乗と幅  $\tau^{\alpha\gamma} \equiv L_c/\Delta v_g^{\alpha\gamma}$  の矩形関数の畳込みになっているので入射電場のパルス幅が短くても  $\tau^{\alpha\gamma}$  がそれよりも大きいと、発生する2倍波のパルス幅は殆ど  $\tau^{\alpha\gamma}$  で決まってしまう。BBOを例にとると  $1/\Delta v_g^{\alpha\gamma}$  は約200fs/mmであるから、たとえ100fsの光パルスを入射しても結晶長が5mmもあれば、発生する2倍波のパルス幅は1ps程度になる (図6.18(a))。

式 (6.19) を角周波数領域で考えると2倍波のフーリエ成分  $\tilde{B}^\gamma(L_c, \omega)$  は、  $\{ B_0^\alpha(t'') \}^2$  のフーリエ成分  $\tilde{C}_0^\alpha(\omega)$  と  $\Theta(t''; L_c/\Delta v_g^{\alpha\gamma})$  のフーリエ成分  $\tilde{\Theta}(\omega; L_c/\Delta v_g^{\alpha\gamma})$  で  $\omega \rightarrow -\omega$  の置き換えをしたものの積に比例する事になる。ここで、

$$\tilde{\Theta}(\omega; L_c/\Delta v_g^{\alpha\gamma}) = \frac{1}{2\pi} e^{-i\omega\tau^{\alpha\gamma}/2} \tau^{\alpha\gamma} \text{sinc}(\omega\tau^{\alpha\gamma}/2) \quad (6.20)$$

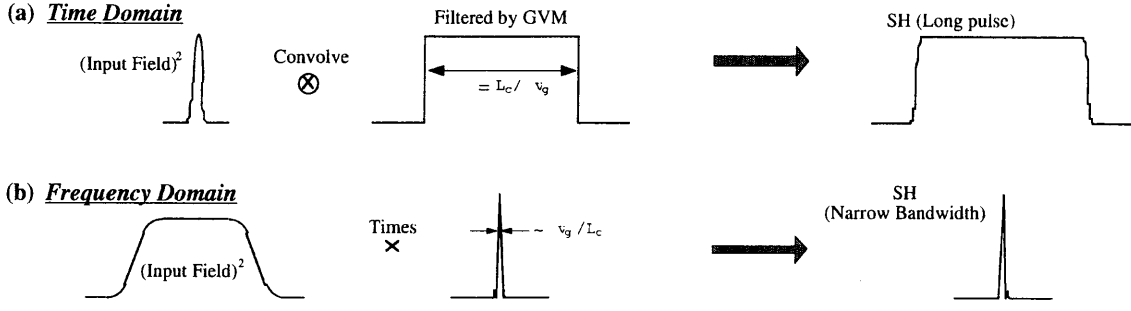


図 6.18: 群速度ミスマッチが波長変換 (Type I SHG) に与える影響。入射光パルスの振幅が殆ど変わらない近似 (small depletion limit) の場合。(a): 時間領域。(b): 周波数領域

であるから、

$$\tilde{B}^\gamma(L_c, \omega) \propto \tilde{C}_0^\alpha(\omega) \text{sinc}(\omega\tau^{\alpha\gamma}/2) \quad (6.21)$$

となり、角周波数の帯域はおよそ  $1/\tau^{\alpha\gamma} = \Delta v_g^{\alpha\gamma}/L_c$  で制限される事が分る (図 6.18(b))。

以上、同種の光電場入射での 2 倍波発生について、簡単に解く事のできる small depletion limit の場合を見てきた。発生する 2 倍波のパルス幅は群速度ミスマッチ  $\Delta v_g^{\alpha\gamma}$  と結晶長  $L_c$  に依存し、これらの比  $\tau^{\alpha\gamma}$  が大きければ大きい程パルス幅を広げる。また周波数領域でみれば、幅  $\sim 1/\tau^{\alpha\gamma}$  の領域のみ通すフィルターとして群速度ミスマッチが働くのである。

しかしながら、これらの結論はあくまでも「同種の光電場入射での 2 倍波発生」、「small depletion limit」という制限の中でのものであり、3 倍波発生のための和周波発生の場合、あるいは入射電場の多くの部分に変換される場合などについてはここから結論を導き出す事はできず、式 (6.7)~ 式 (6.9) をきちんと解いてやらなければならない。

### 数値計算

式 (6.7)~ 式 (6.9) はお互いの電場包絡線がカップルした非線形方程式であり、これを解析的に解くのは大変困難である。よって数値計算によってこれを解き、2 倍波発生、和周波発生の様子を調べた。計算にあたっては以下の様な手順を踏んでいる。

保存則 数値計算の解が妥当であるかどうかをチェックするために、各電場のエネルギーの和 (平面波近似であるので単位面積あたりの量になる) が保存している事を確認している。

$n_\gamma \times B^\gamma \times$  式 (6.7) +  $n_\gamma \times B^\gamma \times$  式 (6.7)\* +  $n_\alpha \times B^{\alpha*} \times$  式 (6.8) +  $n_\alpha \times B^\alpha \times$  式 (6.8)\* +  $n_\beta \times B^{\beta*} \times$  式 (6.9) +  $n_\beta \times B^\beta \times$  式 (6.9)\* を行ってやると

$$n_\gamma \frac{\partial}{\partial z'} |B^\gamma(z', t')|^2 + n_\alpha \left\{ \frac{\partial}{\partial z'} + \frac{1}{\Delta v_g^{\alpha\gamma}} \frac{\partial}{\partial t'} \right\} |B^\alpha(z', t')|^2 + n_\beta \left\{ \frac{\partial}{\partial z'} + \frac{1}{\Delta v_g^{\beta\gamma}} \frac{\partial}{\partial t'} \right\} |B^\beta(z', t')|^2 = 0 \quad (6.22)$$

入射電場  $B^\alpha(z', t')$ 、 $B^\beta(z', t')$  はパルス状であり、時刻の無限遠方では 0 になると考えられる。すなわち

$$\int dt' \frac{\partial}{\partial t'} |B^{\alpha, \beta}(z', t')|^2 = |B^{\alpha, \beta}(z', +\infty)|^2 - |B^{\alpha, \beta}(z', -\infty)|^2 = 0 \quad (6.23)$$

であるから、式 (6.22) の両辺を  $t'$  で  $-\infty$  から  $+\infty$  まで積分してやれば、

$$\frac{\partial}{\partial z'} \left\{ n_\gamma \int dt' |B^\gamma(z', t')|^2 + n_\alpha \int dt' |B^\alpha(z', t')|^2 + n_\beta \int dt' |B^\beta(z', t')|^2 \right\} = 0 \quad (6.24)$$

が得られる。電場強度のプロファイルは  $n_{\gamma,\alpha,\beta}c\epsilon_0 |B^{\gamma,\alpha,\beta}(z',t')|^2/2$  で与えられるから、式 (6.24) に  $c\epsilon_0/2$  を掛けてやれば、この式は

$$u_\gamma(z') + u_\alpha(z') + u_\beta(z') = \text{const.} \quad (6.25)$$

というエネルギー保存の式となる。ただし

$$u_{\gamma,\alpha,\beta}(z') \equiv \frac{n_{\gamma,\alpha,\beta}c\epsilon_0}{2} \int dt' |B^{\gamma,\alpha,\beta}(z',t')|^2 \quad (6.26)$$

は、 $z'$  の位置で単位面積を通り抜ける各電場のエネルギーを表わす。

数値計算では計算の進行ごとに上記エネルギーの和（ただし、後に述べる様に無次元化した形で）を計算し、初期状態と同じ値となっているかどうかを確かめている。その結果、計算の進行に従ってエネルギーの和は少しずつ減ってゆく傾向にあるものの、殆ど一定に保たれている事が確かめられた。なお、このエネルギーの和の減少傾向は、用いたプログラムの配列が有限であるため、境界条件式 (6.23) が厳密には満たされず、配列の端から少しずつエネルギーが漏れている事が原因と思われる。

無次元化 式 (6.7)～式 (6.9) にそのまま数値を入れて計算すると、非線形な方程式である上極端に異なる値の量が混在するため、数値計算上好ましくない現象（指数のオーバーフロー等）が起こりうる。通常、このような場合は次元をもった量を括り出して方程式を無次元化し、主要な無次元パラメータが1に近い値になるよう変型してから計算を行うのが定石である。

まず、位置  $z'$ 、時刻  $t'$  についてそれぞれ長さの次元を持った量  $a_z$ 、時間の次元を持った量  $b_t$  を括り出して無次元の変数  $\zeta$ 、 $\tau$  で方程式を表わす。即ち、

$$\begin{cases} z' \equiv a_z \zeta \\ t' \equiv b_t \tau \end{cases} \quad (6.27)$$

と定義する。このときの各電場包絡線関数も

$$\begin{aligned} B^{\gamma,\alpha,\beta}(z',t') &= B^{\gamma,\alpha,\beta}(a_z \zeta, b_t \tau) \\ &= G^{\gamma,\alpha,\beta}(\zeta, \tau) \end{aligned} \quad (6.28)$$

という関数形になるものとする

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} G^\gamma(\zeta, \tau) = \frac{a_z \omega_\gamma}{2icn_\gamma} \chi_{\text{eff}}^{(2)} G^\alpha(\zeta, \tau) G^\beta(\zeta, \tau) e^{i\Delta k a_z \zeta} \quad (6.29)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{a_z/b_t}{\Delta v_g^{\alpha\gamma}} \frac{\partial}{\partial \tau} \right\} G^\alpha(\zeta, \tau) = \frac{a_z \omega_\alpha}{2icn_\alpha} \chi_{\text{eff}}^{(2)} G^\gamma(\zeta, \tau) G^{\beta*}(\zeta, \tau) e^{-i\Delta k a_z \zeta} \quad (6.30)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{a_z/b_t}{\Delta v_g^{\beta\gamma}} \frac{\partial}{\partial \tau} \right\} G^\beta(\zeta, \tau) = \frac{a_z \omega_\beta}{2icn_\beta} \chi_{\text{eff}}^{(2)} G^\gamma(\zeta, \tau) G^{\alpha*}(\zeta, \tau) e^{-i\Delta k a_z \zeta} \quad (6.31)$$

さらに、群速度ミスマッチと  $a_z/b_t$  の比を

$$\frac{a_z/b_t}{\Delta v_g^{\alpha,\beta\gamma}} \equiv a_\gamma^{\alpha,\beta} \quad (6.32)$$

各角振動数と  $a_z/c$  の比及び、 $\Delta k a_z$  を

$$\frac{a_z \omega_{\gamma,\alpha,\beta}}{c} \equiv \Omega_{\gamma,\alpha,\beta} \quad (6.33)$$

$$\Delta k a_z \equiv \Delta \quad (6.34)$$

さらに電場の振幅についてもそれぞれ

$$G^{\gamma,\alpha,\beta}(\zeta, \tau) \equiv G_0^{\gamma,\alpha,\beta} g^{\gamma,\alpha,\beta}(\zeta, \tau) / \sqrt{n_{\gamma,\alpha,\beta}} \quad (6.35)$$

と定義した上、 $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  も  $G_0^\gamma$  で規格化して

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} \equiv \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} / G_0^\gamma \quad (6.36)$$

得られる方程式は

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} g^\gamma(\zeta, \tau) = \frac{\Omega_\gamma}{2i\sqrt{n_\gamma n_\alpha n_\beta}} \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \frac{G_0^\alpha G_0^\beta}{(G_0^\gamma)^2} g^\alpha(\zeta, \tau) g^\beta(\zeta, \tau) e^{i\Delta\zeta} \quad (6.37)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial \zeta} + a_\gamma^\alpha \frac{\partial}{\partial \tau} \right\} g^\alpha(\zeta, \tau) = \frac{\Omega_\alpha}{2i\sqrt{n_\gamma n_\alpha n_\beta}} \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \frac{G_0^\beta}{G_0^\alpha} g^\gamma(\zeta, \tau) g^{\beta*}(\zeta, \tau) e^{-i\Delta\zeta} \quad (6.38)$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial \zeta} + a_\gamma^\beta \frac{\partial}{\partial \tau} \right\} g^\beta(\zeta, \tau) = \frac{\Omega_\beta}{2i\sqrt{n_\gamma n_\alpha n_\beta}} \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \frac{G_0^\alpha}{G_0^\beta} g^\gamma(\zeta, \tau) g^{\alpha*}(\zeta, \tau) e^{-i\Delta\zeta} \quad (6.39)$$

となる。

具体的な値を検討してみよう。入射のパルス幅は 100fs 程度、 $\Delta v_g^\alpha$  は 100fs/mm から 1ps/mm 程度であるから、small depletion limit での考察から結晶長はせいぜい数 mm まで計算すれば良いことが予想できる。そこで空間方向の単位  $a_z$  を  $1\mu\text{m}$  ( $\zeta=1000$  で 1mm に相当) とすると、BBO による和周波で 248.3nm の光を発生させる場合には  $\Delta v_g^\alpha \simeq 900\text{fs/mm}$ 、 $\Delta v_g^\beta \simeq 500\text{fs/mm}$  であるから、 $b_t=0.9\text{fs}$  とすれば  $a^{\gamma\alpha}=1$ 、 $a^{\gamma\beta}=1.8$  と、これらの無次元数を 1 に近い値にすることができる。またこの時  $\Omega_\gamma$ 、 $\Omega_\alpha$ 、 $\Omega_\beta$  はそれぞれ 23.56、7.85、15.71 で少々大きい値であるが、入射電場の強度を  $100\text{GW/cm}^2$ 、電場強度の規格化をこれと同じ値とした時 ( $G_0^\gamma \sim 10^9\text{V/m}$ )  $\widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \sim 10^{-3}$  となるので、式 (6.37)~式 (6.39) 右辺のカップリングコンスタントは  $10^{-2}$  のオーダーになり、数値計算には丁度良い値となる。なお、この見積りで  $\chi_{\text{eff}}^{(2)}$  の値はだいたい  $1\text{pm/V}$  とした。

差分化とイテレーション 式 (6.37)~式 (6.39) は  $\zeta$  と  $\tau$  いずれについても 1 階の偏微分方程式であるが、式 (6.37) は  $\tau$  微分を含まない形になっているので解を求める方法としては、 $\zeta=0$  での時間方向の初期分布  $g^\alpha(0, \tau)$ 、 $g^\beta(0, \tau)$  を与え (和周波発生の場合は  $g^\alpha(0, \tau)=0$ )、 $\zeta$  の進行につれて、時間方向の分布が変化する様子を計算して行く事にした。このような考え方をすると、時刻  $\tau$  を固定すれば式

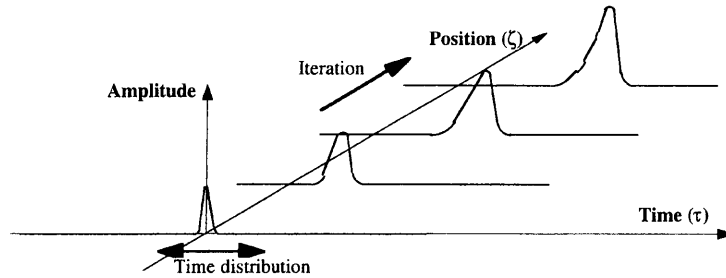


図 6.19: 数値計算の概念図。時間 ( $\tau$ ) 方向の分布用意し、空間 ( $\zeta$ ) 方向へのイテレーションに従ってこの分布がどのように変化するかを計算してゆく。

(6.37)~式 (6.39) は  $\zeta$  についての常微分方程式であるので、常微分方程式に対する数値計算手法を用いる事ができる。ただし時間微分の項も新たな  $\zeta$  に対する振幅を生成する source term として取り入れなければならない。式の上では

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} g^\gamma(\zeta, \tau) = i^{-1} q_\gamma g^\alpha(\zeta, \tau) g^\beta(\zeta, \tau) e^{i\Delta\zeta} \quad (6.40)$$

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} g^\alpha(\zeta, \tau) = i^{-1} q_\alpha g^\gamma(\zeta, \tau) g^{\beta*}(\zeta, \tau) e^{-i\Delta\zeta} - a_\gamma^\alpha \frac{\partial g^\alpha(\zeta, \tau)}{\partial \tau} \quad (6.41)$$

$$\frac{\partial}{\partial \zeta} g^\beta(\zeta, \tau) = i^{-1} q_\beta g^\gamma(\zeta, \tau) g^{\alpha*}(\zeta, \tau) e^{-i\Delta\zeta} - a_\gamma^\beta \frac{\partial g^\beta(\zeta, \tau)}{\partial \tau} \quad (6.42)$$

と移項し、 $\zeta$  方向にイテレートして行く。なおカップリング定数  $q_{\gamma,\alpha,\beta}$  はそれぞれ

$$q_\gamma \equiv \frac{\Omega_\gamma}{2\sqrt{n_\gamma n_\alpha n_\beta}} \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \frac{G_0^\alpha G_0^\beta}{(G_0^\gamma)^2} \quad (6.43)$$

$$q_\alpha \equiv \frac{\Omega_\alpha}{2\sqrt{n_\gamma n_\alpha n_\beta}} \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \frac{G_0^\beta}{G_0^\alpha} \quad (6.44)$$

$$q_\beta \equiv \frac{\Omega_\beta}{2\sqrt{n_\gamma n_\alpha n_\beta}} \widehat{\chi}_{\text{eff}}^{(2)} \frac{G_0^\alpha}{G_0^\beta} \quad (6.45)$$

である。

式 (6.40)~式 (6.42) を  $\zeta$  についての常微分方程式として Runge-Kutta 法による数値計算を行う。 $\zeta$  及び  $\tau$  について離散化を  $\zeta_m = sm$ ,  $\tau_n = hn$  ( $m=0, 1, 2, \dots, m_{\text{max}}$ ,  $n=0, 1, 2, \dots, n_{\text{max}}$ ,  $s$  及び  $h$  は空間と時間方向の刻み幅) として行い、 $g^{\gamma,\alpha,\beta}(\zeta_m, \tau_n) = g_{mn}^{\gamma,\alpha,\beta}$  と書けば  $m+1$  番目の振幅の時間方向の分布  $g_{m+1n}^{\gamma,\alpha,\beta}$  は  $g_{mn}^{\gamma,\alpha,\beta}$  によって次の様に表わされる。

$$g_{m+1n}^\gamma = g_{mn}^\gamma + s\Phi^\gamma(g_{mn}^\gamma, g_{mn}^\alpha, g_{mn}^\beta) \quad (6.46)$$

$$g_{m+1n}^\alpha = g_{mn}^\alpha + s\Phi^\alpha(g_{mn}^\gamma, g_{mn}^\alpha, g_{mn}^\beta) \quad (6.47)$$

$$g_{m+1n}^\beta = g_{mn}^\beta + s\Phi^\beta(g_{mn}^\gamma, g_{mn}^\alpha, g_{mn}^\beta) \quad (6.48)$$

$\Phi^\gamma$  等は Runge-Kutta によって考案された関数形で、計算誤差を  $s^5$  未満に抑えられる事が知られている。これらの具体形は

$$\Phi^\gamma(g_{mn}^\gamma, g_{mn}^\alpha, g_{mn}^\beta) = \frac{1}{6} \left( \varrho_{mn}^{(1)\gamma} + 2\varrho_{mn}^{(2)\gamma} + 2\varrho_{mn}^{(3)\gamma} + \varrho_{mn}^{(4)\gamma} \right) \quad (6.49)$$

$$\Phi^\alpha(g_{mn}^\gamma, g_{mn}^\alpha, g_{mn}^\beta) = \frac{1}{6} \left( \varrho_{mn}^{(1)\alpha} + 2\varrho_{mn}^{(2)\alpha} + 2\varrho_{mn}^{(3)\alpha} + \varrho_{mn}^{(4)\alpha} \right) \quad (6.50)$$

$$\Phi^\beta(g_{mn}^\gamma, g_{mn}^\alpha, g_{mn}^\beta) = \frac{1}{6} \left( \varrho_{mn}^{(1)\beta} + 2\varrho_{mn}^{(2)\beta} + 2\varrho_{mn}^{(3)\beta} + \varrho_{mn}^{(4)\beta} \right) \quad (6.51)$$

で、さらにこれらに含まれる  $\varrho_{mn}^{(i)\gamma,\alpha,\beta}$  は

$$\begin{cases} \varrho_{mn}^{(1)\gamma} = i^{-1} q_\gamma g_{mn}^\alpha g_{mn}^\beta e^{i\Delta sm} \\ \varrho_{mn}^{(1)\alpha} = i^{-1} q_\alpha g_{mn}^\gamma g_{mn}^{\beta*} e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\alpha \dot{g}_{mn}^\alpha \\ \varrho_{mn}^{(1)\beta} = i^{-1} q_\beta g_{mn}^\gamma g_{mn}^{\alpha*} e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\beta \dot{g}_{mn}^\beta \end{cases} \quad (6.52)$$

$$\begin{cases} \varrho_{mn}^{(2)\gamma} = i^{-1} q_\gamma \left( g_{mn}^\alpha + \frac{s\varrho_{mn}^{(1)\alpha}}{2} \right) \left( g_{mn}^\beta + \frac{s\varrho_{mn}^{(1)\beta}}{2} \right) e^{i\Delta sm} \\ \varrho_{mn}^{(2)\alpha} = i^{-1} q_\alpha \left( g_{mn}^\gamma + \frac{s\varrho_{mn}^{(1)\gamma}}{2} \right) \left( g_{mn}^{\beta*} + \frac{s\varrho_{mn}^{(1)\beta*}}{2} \right) e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\alpha \dot{g}_{mn}^\alpha \\ \varrho_{mn}^{(2)\beta} = i^{-1} q_\beta \left( g_{mn}^\gamma + \frac{s\varrho_{mn}^{(1)\gamma}}{2} \right) \left( g_{mn}^{\alpha*} + \frac{s\varrho_{mn}^{(1)\alpha*}}{2} \right) e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\beta \dot{g}_{mn}^\beta \end{cases} \quad (6.53)$$

$$\begin{cases} \varrho_{mn}^{(3)\gamma} = i^{-1} q_\gamma \left( g_{mn}^\alpha + \frac{s\varrho_{mn}^{(2)\alpha}}{2} \right) \left( g_{mn}^\beta + \frac{s\varrho_{mn}^{(2)\beta}}{2} \right) e^{i\Delta sm} \\ \varrho_{mn}^{(3)\alpha} = i^{-1} q_\alpha \left( g_{mn}^\gamma + \frac{s\varrho_{mn}^{(2)\gamma}}{2} \right) \left( g_{mn}^{\beta*} + \frac{s\varrho_{mn}^{(2)\beta*}}{2} \right) e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\alpha \dot{g}_{mn}^\alpha \\ \varrho_{mn}^{(3)\beta} = i^{-1} q_\beta \left( g_{mn}^\gamma + \frac{s\varrho_{mn}^{(2)\gamma}}{2} \right) \left( g_{mn}^{\alpha*} + \frac{s\varrho_{mn}^{(2)\alpha*}}{2} \right) e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\beta \dot{g}_{mn}^\beta \end{cases} \quad (6.54)$$

$$\begin{cases} \varrho_{mn}^{(4)\gamma} = i^{-1} q_\gamma \left( g_{mn}^\alpha + s\varrho_{mn}^{(3)\alpha} \right) \left( g_{mn}^\beta + s\varrho_{mn}^{(3)\beta} \right) e^{i\Delta sm} \\ \varrho_{mn}^{(4)\alpha} = i^{-1} q_\alpha \left( g_{mn}^\gamma + s\varrho_{mn}^{(3)\gamma} \right) \left( g_{mn}^{\beta*} + s\varrho_{mn}^{(3)\beta*} \right) e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\alpha \dot{g}_{mn}^\alpha \\ \varrho_{mn}^{(4)\beta} = i^{-1} q_\beta \left( g_{mn}^\gamma + s\varrho_{mn}^{(3)\gamma} \right) \left( g_{mn}^{\alpha*} + s\varrho_{mn}^{(3)\alpha*} \right) e^{-i\Delta sm} - a_\gamma^\beta \dot{g}_{mn}^\beta \end{cases} \quad (6.55)$$

で与えられる。 $g_{mn}^{\gamma,\alpha,\beta}$  に対する時間微分の項  $\dot{g}_{mn}^{\gamma,\alpha,\beta}$  が含まれていなければ、これらの式は通常の Runge-Kutta 法によるイテレーションの式である。

時間微分については  $0 < \delta_d < 1$  のパラメータを用いて

$$\dot{g}_{mn}^\alpha \equiv \delta_d (g_{m,n+1}^\alpha - g_{mn}^\alpha) / h + (1 - \delta_d) (g_{mn}^\alpha - g_{m,n-1}^\alpha) / h \quad (n = 1, 2, \dots, n_{\max} - 1) \quad (6.56)$$

$$\dot{g}_{mn}^\beta \equiv \delta_d (g_{m,n+1}^\beta - g_{mn}^\beta) / h + (1 - \delta_d) (g_{mn}^\beta - g_{m,n-1}^\beta) / h \quad (n = 1, 2, \dots, n_{\max} - 1) \quad (6.57)$$

と、前微分と後微分を適当な重みで平均して計算を行った。これは、カップリング定数を 0 とした時のパルスの時間発展を計算した所（これは単に入射パルスが  $\zeta$  の進行に従って移動してゆくだけの解になる）、微分のやり方をどちらか一方にするとパルスの進行方向 ( $a_\gamma^\alpha, a_\gamma^\beta$  の符号) の組み合わせによって計算がうまくできない場合が生じた事による。式 (6.56)、式 (6.57) のやり方によって、このような問題は回避できた。さらに、時刻を離散化した時のステップ  $h$  の大きさに注意をする必要がある。式 (6.46)~式 (6.48) で記述される  $\zeta$  についてのイテレーションには、右辺の  $\Phi^{\gamma,\alpha,\beta}$  の中に  $h^{-1}$  の項が含まれるため  $s/h$  が  $\zeta$  方向の解の発展に寄与するからである。従って計算精度を上げようとして  $h$  のみを  $s$  に比較して極端に小さくするのは危険である。

以上が本研究で行った数値計算の手順と留意点である。得られた計算結果を次に示す。

**計算結果** エクシマレーザと同じ波長を発生させるために必要な基本波の波長は 745nm である。この波長での 2 倍波発生として、基本波と 2 倍波の群速度差が BBO より小さく有効非線形感受率が KDP よりも大きい LBO を Type I の位相整合で用いる事を想定した。有効非線形感受率は BBO の方が大きい、ここで発生させた 2 倍波と基本波で和周波を発生させた場合 LBO を用いた方が効率が良いという実験報告があったため [93]、LBO を選んだ。また入射ビームはガウス型を仮定し、パルス幅は 200fs とした。この時得られた計算結果を図 6.20 に示す。(a) は入射パルスのピーク強度が  $30\text{GW}/\text{cm}^2$  の場合、

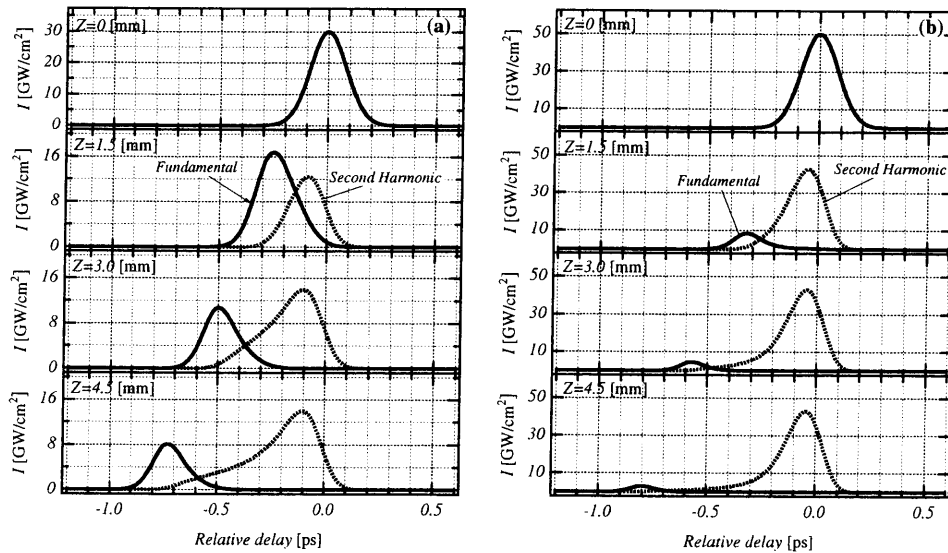


図 6.20: LBO 結晶中での基本波 (745nm) と 2 倍波 (372.5nm) の時間波形。図の上から順に、入射パルス、結晶を 1.5mm 進んだ所、3mm 進んだ所、4.5mm 進んだ所、での波形を表す。また (a) は入射パルスのピーク強度が  $30\text{GW}/\text{cm}^2$  の時、(b) は  $60\text{GW}/\text{cm}^2$  の時の様子を示している。

(b) は  $60\text{GW}/\text{cm}^2$  の場合である。

図 6.20(a)、(b) とも 2 倍波の群速度で移動するフレーム上で計算しているので、2 倍波のピーク位置は殆ど変化しないが、2 倍波よりも群速度の大きい基本波が時刻の早い方向へ移動しながら 2 倍波を発生している様子が見てとれる。small depletion limit の近似では結晶長が伸びると、それに応じて生じる矩形の関数と入射パルスの畳み込みが 2 倍波の波形となったが、この場合には結晶の最初の部分で入射パルスの多くの部分が 2 倍波に変換されるため、small depletion limit の場合程、顕著にパルス幅が広がる訳ではない事が分かった。ただし、2 倍波パルス前方に、先行する基本波から変換され

る成分が長く伸びるため、やはり非線形結晶の厚みは群速度ミスマッチがパルス幅程度になるような薄さにする必要があると言える。

基本波から2倍波へのエネルギー変換効率は式(6.21)(a)に示す通り入射パルスのピーク強度を増加

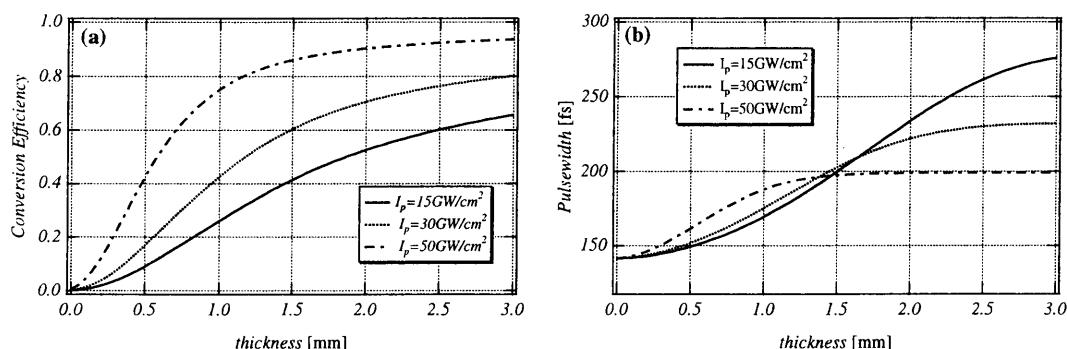


図 6.21: (a): 結晶 (LBO) 長に対する、2 倍波への変換効率。(b): 結晶 (LBO) 長に対する、2 倍波のパルス幅。

させれば非線形結晶の厚みが少なくても十分な変換効率が得られることがわかる。結晶長をのばせばそれに応じて変換効率も上昇するが、これは図 6.20 から分かる様に、パルス前方にある裾からの寄与であり、ピークの強度を上げるためには寄与しない事に注意する必要がある。このことは式(6.21)(b)に示した結晶長に対するパルス幅(半値全幅)の値からも明らかで、ある結晶長以上ではパルス幅はほぼ一定の値となっている。

以上の結果から2倍波に用いるLBOはなるべく薄い(0.5~1.5mm厚)ものを用い、基本波の入射強度を出来るだけ大きくすれば、2倍波の変換効率の向上、およびパルス幅の広がり抑制が期待できる事が分かった。

基本波の745nmと2倍波の372.5nmを混合して3倍波(248.3nm)を発生させるためには、BBOをType I位相整合で用いるのが、最も有効非線形感受率が大きく、効率の良い変換手段である<sup>5</sup>。この場合に発生する3倍波のパルス波形を計算した結果が図6.22(a)と図6.22(b)である。この計算では基本波のピーク強度を20.5GW/cm<sup>2</sup>、2倍波のピーク強度を9.5GW/cm<sup>2</sup>とし、ガウス型の波形を仮定している。Type Iの2倍波発生とは異なり、和周波発生の場合は2つの入射パルスは独立なので入射のタイミングを変える事が出来る。発生した3倍波を含めた非線形結晶中の3つのパルスの群速度は基本波、2倍波、3倍波の順で大きくなるため、予め2倍波を基本波よりも先に入射(pre-delay)しておけば、非線形結晶中で基本波が2倍波に追い付き、効率よく3倍波が発生する事が期待できる。

図6.22(a)はpre-delayが200fsの場合、図6.22(b)はpre-delayが無い場合の計算結果を示している。(a)では確かに結晶長1mmの段階で基本波が2倍波を追い越し、その後ろに3倍波が生成されている事がわかる。ただし、3倍波のパルス幅はかなり伸びてしまっている。(b)では変換効率はそれ程大きくなっていないが、基本波と2倍波が重なっている時間が短いため、3倍波のパルス幅は結晶長1mmでもそれ程伸びていない。

入射強度を大きくした場合もパルス幅の伸びる様子はあまり変化がない。図6.23は入射パルスのピーク強度をそれぞれ図6.22の場合の2倍にした時(基本波のピーク強度を41GW/cm<sup>2</sup>、2倍波のピーク強度を19GW/cm<sup>2</sup>)の計算結果であるが、変換効率の向上はあるものの結晶長1mmの所での3倍波のパルス幅は長いままである。

これらの時間波形をふまえた上で、結晶長に対する変換効率および3倍波のパルス幅を見てみると(図6.24(a)、図6.24(b))、pre-delayをつける事によって結晶長1mm程度の所では大幅な変換効率の改善がなされる事がわかる。しかしながら図6.25に示したパルス幅については、200fsのpre-delayを付けた場合、ピーク強度によらず、結晶長0.6mmくらいの所からパルス幅が伸びはじめ1mm程度の所で飽和するまで、500fs以上に伸びてしまう。

<sup>5</sup>最近開発された非線形結晶CLBOは、この波長変換に於ける有効非線形感受率はBBOの2/3程度であるが、群速度ミスマッチの値は半分程度であるので、今後の研究で高効率な波長変換が実現する可能性がある。



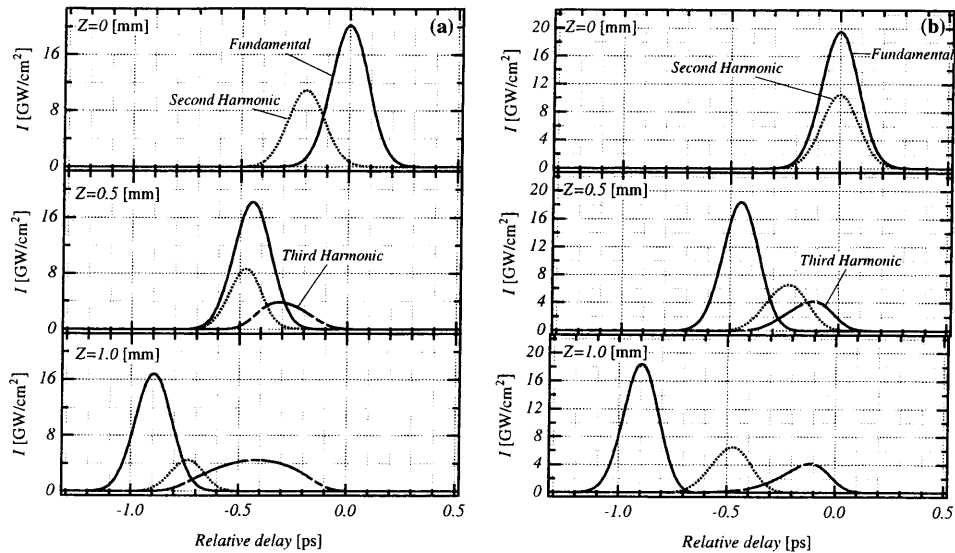


図 6.22: BBO の Type I 位相整合で基本波 (745nm) と 2 倍波 (372.5nm) を混合して 3 倍波を発生させたときのパルス波形。図の上から順に、入射パルス、結晶を 0.5mm 進んだ所、1mm 進んだ所、での波形を表す。また、(a) は基本波に 2 倍波を 200fs だけ先行 (predelay=200 fs) させた場合、(b) は基本波と 2 倍波を同時に入射した場合である。

以上の計算結果から、3 倍波発生のための BBO の厚みは 0.5mm 以下が理想的であることが分かった。

### 波長変換ステージ

前節の計算結果を参考にして、図 6.26 に示す波長変換ステージを開発した。基本構成は、2 倍波を発生させる LBO の後に、基本波と 2 倍波を分けるビームスプリッターを配置し各ビームに適当な時間遅延を付けた後、再びビームスプリッターで重ね合わせて BBO に入射して 3 倍波を発生させるものである。このステージの最も大きな特徴は図 6.26 中央に描かれたビームスプリッターにある。60mm×60mm×6mm 厚の合成石英平行平面基板のビーム入射側半面に、s 偏光の 372.5nm (2 倍波) を反射し、p-偏光の 745nm (基本波) を透過するダイクロイックコーティングを施し、その裏面には p-偏光の 745nm 透過のために AR コーティングを行っている。残りの半分には 745nmAR の隣の半面に、p-偏光の 745nm を反射し p-偏光の 372.5nm を透過するダイクロイックコーティング、その裏面に p-偏光の 372.5nm に対する AR コーティングを施してある。これによって 1 枚のビームスプリッターだけで基本波と 2 倍波の分離と重ね合わせが出来、丁度マイケルソン干渉計と同様な配置が可能となるため、各ビームを折り返すルーフミラーの垂直精度さえ良ければ、Delay の調整のためにルーフミラーを前後に動かしてもビームの方向がずれる事がないという利点がある。また、この配置によって全体を非常にコンパクトにまとめる事が出来た。なお、Type I 位相整合で 3 倍波を発生するために、ビームを分けた後に結晶石英の旋光子を用いて 2 倍波の偏光回転を行っている。

用いた結晶の厚みや、得られた 3 倍波の効率等の実験結果は以降のサブセクションで述べる。

### 6.3.3 10Hz、1TW システム

式 (6.3.1) で述べた方針に従い、KrF-Ti:sapphire のハイブリッドシステムで、繰返し 10Hz、ピーク出力 1TW のレーザーを開発した [94]。システムの基本構成を図 6.27 に示す。Ti:sapphire の CPA の部分は 100fs 程度のパルス幅のシステムであるため、高次分散補償については、それ程注意をはらっていない。また、増幅器はこのレーザー開発当初はすべてマルチパス増幅器であった。

CPA の種光を発生するモード同期発振器は増幅におけるスペクトルの長波長側へのシフトを考慮し

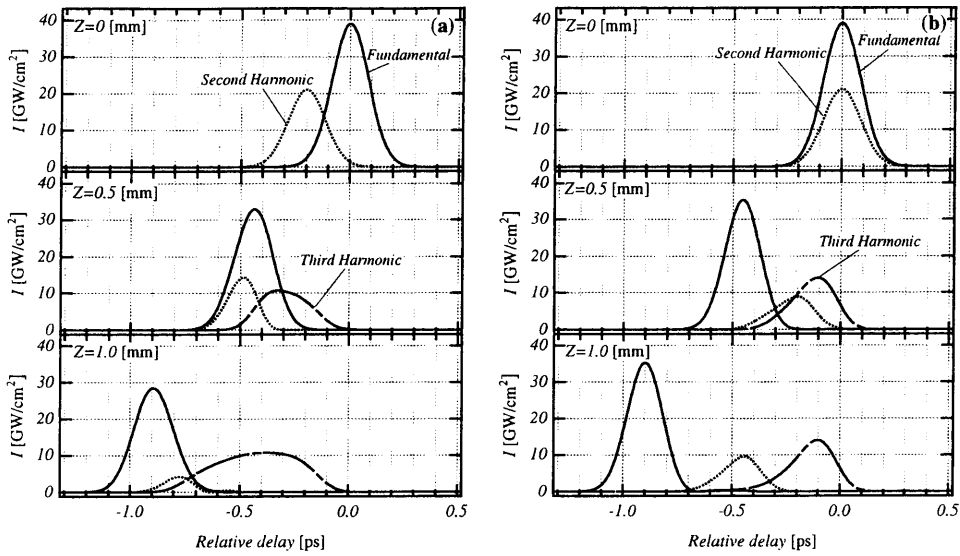


図 6.23: 図 6.22 と同様の計算結果。ただし入射パルスのピーク強度をそれぞれ 2 倍にした場合。(a): predelay=200 fs。(b): predelay=0 fs。

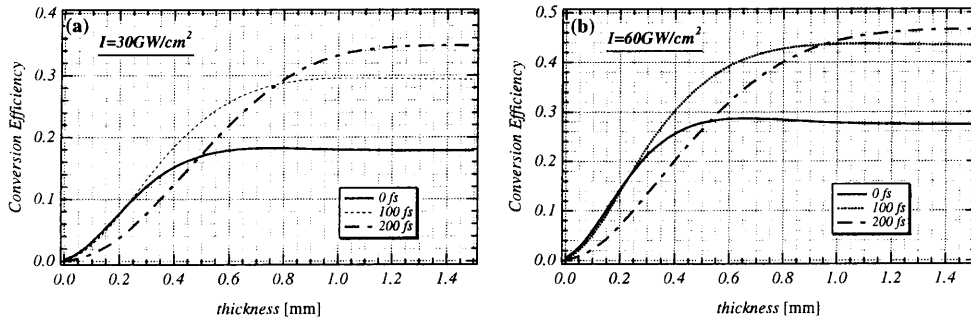


図 6.24: 結晶長に対する 3 倍波への変換効率。(a): 基本波と 2 倍波の強度の和が 30GW/cm<sup>2</sup> の時。(b): 基本波と 2 倍波の強度の和が 60GW/cm<sup>2</sup> の時。基本波と 2 倍波の強度の比は図 6.22 の場合と同じ。

て、中心波長を 745nm よりさらに数 nm 短波長側へシフトさせている。利得中心よりもかなり短い波長でのモード同期を行わなければならないため、発振器は自己モード同期を促す役目を果たす AO 変調器を共振器中に挿入している Spectra Physics 社の Tsunami を用いた。ここで得られるパルス幅は 160fs、平均のパワーは 400mW である。このパルスを伸延する Stretcher は 2000ℓ/mm の溝数の金コートホログラフィック回折格子 (Jovin Yvon 社製) 1 枚と焦点距離 1m のアクロマティックレンズの組み合わせによって構成され、パルス幅は 150ps 程度に伸延される。

伸延されたパルスを増幅するステージは 3 段階あり、すべてマルチパスによるものである。最初の 4 パス増幅器は図 3.8(b) に示したような AR 付レンズ 2 枚を用いた (焦点距離 0.3m のものと 0.5m のもの) コンフォーカルタイプであり、両レンズの共焦点の位置に Brewster Cut の Ti:sapphire を置いている。励起はフラッシュランプ励起の Q-スイッチ Nd:YAG レーザー (Quantary GCR-11) の 2 倍波出力 150mJ の内 30mJ を使い、これを焦点距離 0.3m のレンズで集光した。図 3.8(b) にあるとおり、マルチパスは 532nm を透過し 745nm を反射するダイクロイックミラーによって折り曲げられており、これを通して上下左右均等に割り振られた各パスの中央から励起光を入射する事ができる。このステージでの増幅は、約 82MHz の繰返しで出射されているモード同期パルス列に対して行っており、励起直後の先頭のパルスを PIN-光ダイオードと ND フィルターの組み合わせで計測した結果、利得は約 10<sup>5</sup> 倍であった。

最初のステージではパルス列の増幅を行っているので、次の増幅ステージの前に増幅の先頭のパルス

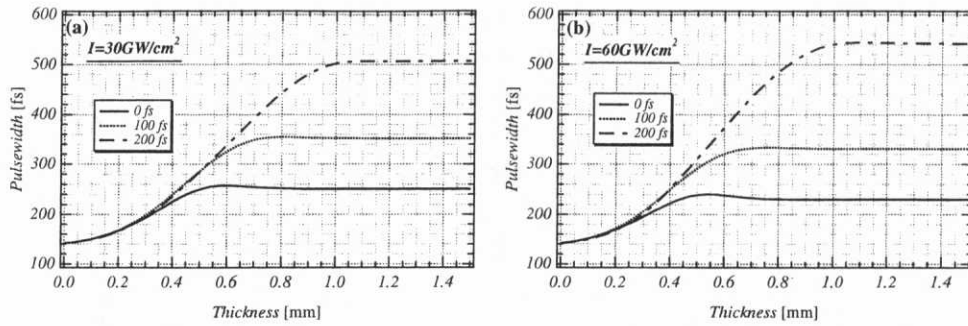


図 6.25: 結晶長に対する 3 倍波のパルス幅。(a): 基本波と 2 倍波の強度の和が  $30\text{GW}/\text{cm}^2$  の時。(b): 基本波と 2 倍波の強度の和が  $60\text{GW}/\text{cm}^2$  の時。基本波と 2 倍波の強度の比は式 (6.22) の場合と同じ。

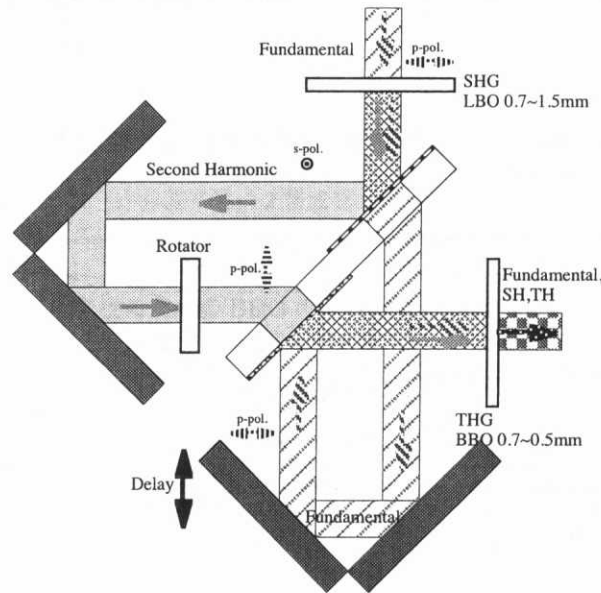


図 6.26: Ti:sapphire (波長  $745\text{nm}$ ) の 3 倍波を発生させるための Delay 系。

のみを切り出すパルスセレクターを挿入してある。これは、高利得の増幅器の間の結合による自己発振を防止する役割も兼ねている。

2 番目の増幅ステージは 3 パスの構成である。基本は 1 段目と同様なレンズによるコンフォーカル増幅器であるが、丁度よいフルエンスが得られるよう、各パス毎にレンズの焦点距離を変えてある。隣のパスに影響を及ぼさないように、円形のレンズを半分に切断してこれを行った。励起ビームは 1 段目の励起に用いた Q-スイッチ Nd:YAG レーザーの 2 倍波の残り  $120\text{mJ}$  を用い、出力  $10\text{mJ}$  を得た。

この出力ビームを  $3.5\sim 4\text{mm}$  程度の径に拡大し、平行ビームでの 2 パス増幅 (図 3.8(a) の形) を 3 番目の増幅ステージで行う。励起レーザーは中心波長  $480\text{nm}$  の色素レーザー (Coumarin 102) で、XeCl エキシマレーザーによる励起で  $500\text{mJ}$  の出力を得る事ができる。この色素レーザーは平面鏡 2 枚を平行に並べた不安定共振器による発振であるためビーム転送途中でのビームプロファイルが不均一になる傾向にある。それ故、凸レンズを用いて Ti:sapphire ロッド上でレーザー出射口の縮小像 (径約  $4\text{mm}$ ) が結ばれるような像転送の配置を行い、なるべく均一な励起となるよう配慮をしている。この条件のもとで得られたエネルギーは  $90\text{mJ}$  であった。

増幅されたパルスは径を拡大され、回折格子対による Compressor に送られる。ここで用いた回折格子は Stretcher に用いたものと同種で、溝数  $2000\text{l}/\text{mm}$ 、金コートのアラシバ回折格子 (Jovin Yvon 社製) である。これによって、入射パルスの 50%、 $45\text{mJ}$  が透過し、パルス幅は  $200\text{fs}$  になった。

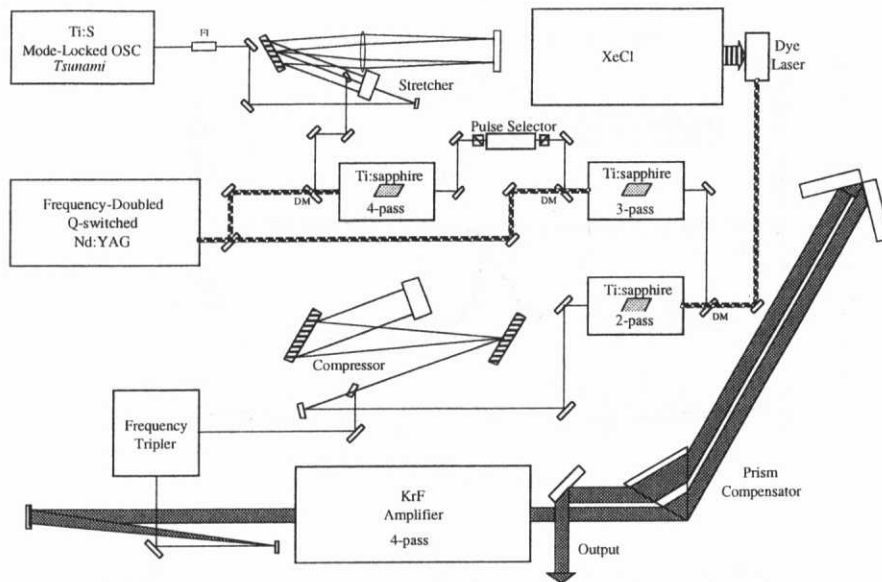


図 6.27: 10Hz、1TW、KrF-Tisapphire ハイブリッドレーザーシステムの構成。図中、FI はファラデーアイソレーター、DM はダイクロイックミラーを表す。

得られた 745nm のパルスを 6.3.2 で述べた波長変換ステージによって 3 倍波に変換する。2 倍波発生に用いたのは Type I 位相整合の LBO で、厚さは 1.5mm、3 倍波発生（和周波発生）に用いたのは Type I 位相整合の BBO、厚さ 0.5mm である。また、2 倍波の偏光回転には当初は 1/2 波長板を用いていたが、接合面における高強度のレーザーに対する耐性が低かったため最終的にはクォーツ旋光子に交換して良好な結果を得た。基本波から 2 倍波への変換効率は基本波約  $3\text{mJ}/\text{cm}^2$  のフルエンスの下で 27% であった。パルス幅から換算すると基本波のピーク強度は約  $15\text{GW}/\text{cm}^2$  であり、6.3.2 での数値計算結果から考えると、もっと強度を上げれば変換効率が上がるはずであったが、実験結果は必ずしもそうではなかった。これはおそらく、計算上では考慮に入っていない位相変調の効果等によるものと思われる。3 倍波については上記の条件で 10% の効率（基本波のエネルギーに対して）を得た。しかしながら、システム全体を動かす場合には、限られた有効面積（直径 10mm）の LBO 及び BBO にビームを入射して、大きな 3 倍波のエネルギーを得る必要があったため、これよりも強度の大きい条件で波長変換を行っており、この時の 3 倍波の発生効率は 6%、得られた 3 倍波のエネルギーは 1mJ であった。

ここで最も重要なのは KrF に対して ASE を全く含まない 1mJ の種光を得る事が出来たという事実である。これによって 1TW のピーク出力を得るための KrF での増幅率を 100~200 倍程度に抑えられる。今までの KrF システム [85, 86] と比較すると、1/10 から 1/100 の増幅率であるので、1 段のマルチパス増幅器のみで増幅を行うことが出来、しかも ASE をこの比率以下に出来るという点を強調しておく。

波長変換時のスペクトルについては、基本波のスペクトル幅が 5.4nm（半値全幅、FWHM）であったのに対して、2 倍波が 0.97nm、3 倍波が 0.32nm であった。セルマイヤー式から計算される許容スペクトル幅はそれぞれ、1.9nm と 0.57nm で、これらの値と比較するとスペクトル幅はかなり狭くなっていると言えるが、計算式は無限に広いフラットなスペクトルの入射を仮定しているため、実際に入射した基本波のスペクトルの狭さが実験結果に反映しているのであると思われる。

得られた 3 倍波のスペクトルを図 6.28(a) に、これを KrF エキシマによって 4 パス増幅した後のスペクトルを図 6.28(b) に示す。KrF 増幅後のスペクトルは半値全幅が 0.88nm にまで広がっているが、これは 248.3nm 付近にある 3 倍波の裾の成分が KrF の利得のピーク波長であるため、増幅によってこの部分が強調された事と、もとのピーク波長部分の利得の飽和が生じた事が主な理由であると思われる。

波長変換ステージで得られた 3 倍波は KrF 増幅器の口径（縦 6.5cm×横 4cm）を満たすようビーム径を拡大される。円形のビームを長方形のアパーチャーを満たすまで拡大するため、ビームのけられが生じてしまい、実質的に KrF 増幅器に入射される 3 倍波のエネルギーは 0.3~0.5 mJ である。参考文献 [85] と同じ 4 パスの配置で増幅を行い、出力エネルギー 200 mJ を得た。

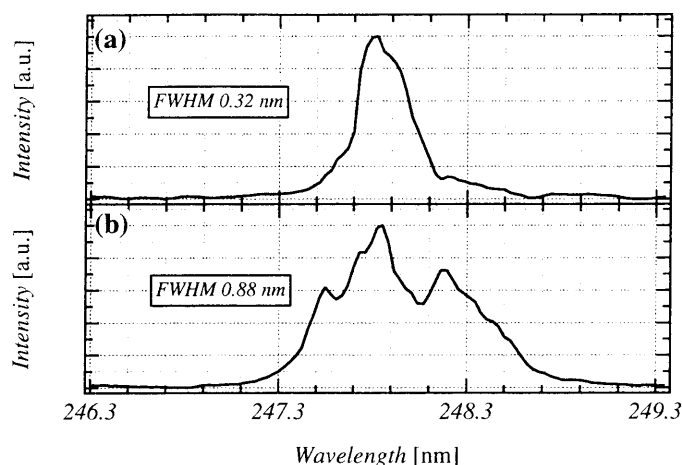


図 6.28: (a): 波長変換ステージ後の 3 倍波のスペクトル。(b): KrF エキシマによる 4-パス増幅後のスペクトル。

増幅光のパルス幅計測は XeF の 3 光子蛍光 [97] による単一ショット自己相関法によって測定された。ビームプリッターで分けられたビームをキセノンとフッ素を封入したガスセルに対向入射させ、集光点で 2 つのパルスが重なる様にしてやると、パルスの重なった部分の発光の空間的な幅はパルス幅に比例するので、これを SIT カメラで計測する事によってパルス幅を知る事ができる。時間のキャリブレーションは片方のビームの経路に厚さ 2.2mm の石英板を挿入し、この時のピーク位置の移動距離によって決定した。得られた 3 次の自己相関波形を図 6.29(a) に示す。相関の幅は 560 fs (FWHM) で、パルス波形

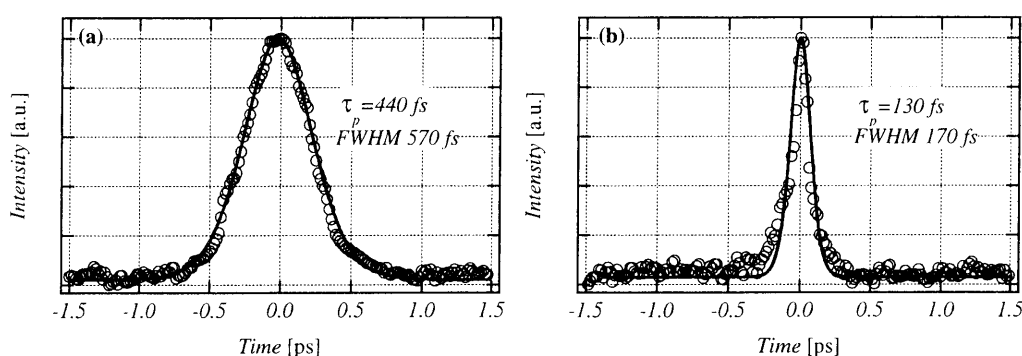


図 6.29: 単一ショット自己相関法による KrF レーザーの自己相関波形。(a): KrF 増幅直後。(b): KrF 増幅後、プリズムによる分散補償を行った時。

を  $\text{sech}^2$  型と仮定すると、パルス幅は 440 fs である。KrF レーザーのウィンドウ ( $\text{CaF}_2$ 、厚さ 15mm) を 4-パスの間に 8 回通過する事による分散があるため、スペクトル幅から換算されるフーリエ限界パルス幅よりも 3 倍程度広い値となっている。この分散を補償するため KrF 増幅後に  $\text{CaF}_2$  プリズムによる補償器を用いた。プリズムによる分散補償は本来であれば図 E-1(a) の様にプリズム 2 個を用いた対の形にし、ビームがこれを往復する (あるいはもう 1 対のプリズム対を通過する) 事によって空間的な分散の補償も行うが、ここではビーム径が十分大きく、補償による空間的な分散はこれに比較して殆ど無視できるので、片道みの通過でこれを行った。またプリズム 1 個でプリズム対の状況を作るために、(図 6.27 参照) プリズムからの出射ビームを横方向に折返してもう一度プリズムに通している。分散補償後の自己相関波形を図 6.29(b) に示す。相関の幅は 170 fs であり、 $\text{sech}^2$  型のパルス波形を仮定して換算すると、パルス幅は 130 fs となる。この時プリズム対の間隔は 2m であった。Time-Bandwidth Product (表 2.1 参照) は 0.56 でフーリエ限界での値 0.315 よりもかなり大きい、これは  $\text{sech}^2$  型パルス波形の仮定と実際のパルス波形の違いが反映されているためであると思われる。

ASE の計測は、KrF レーザーの出射口から 15 m 離れた所に紫外光を透過するファイバーを設置し、ファイバーからの出力をバイプレーナフォトチューブ（浜松フォトニクス）で受け、パルスの裾成分とメインパルスの面積比を計算する事によって行った。その結果、メインパルスと ASE のエネルギーコントラストは  $10^3$  以上であった。ASE の幅は 10ns 程度であるので、ピーク強度のコントラストは  $10^8$  以上となり、KrF の超短パルス増幅システムとしてはきわめて良好な対 ASE 比であると言える。

プリズムによる分散補償後のパルスエネルギーは、折返しミラーによる損失、プリズム頂点部分のビームのけられ等の損失により、130 mJ となった。ASE は殆ど無視できるので、これによって 1TW のピークパワーを持つ KrF-Ti:sapphire のハイブリッドレーザーシステムが完成した [94]。

なお、このシステムの完成とほぼ同時期に、ラザフォードアップルトン研究所で KrF 増幅器 3 段を用いた単一ショットの 1TW システム [95]、イリノイ大学で KrF 増幅器 2 段を用いた 1TW システム [96] などが Ti:sapphire CPA をフロントエンドに用いて開発されている。

### TW システムについての補足

上記 TW-KrF-Ti:sapphire ハイブリッドシステムの開発後、Ti:sapphire CPA の部分は再生増幅器を用いたものに改善された [98]。励起レーザーはフラッシュランプ励起の Q-スイッチ Nd:YAG レーザー

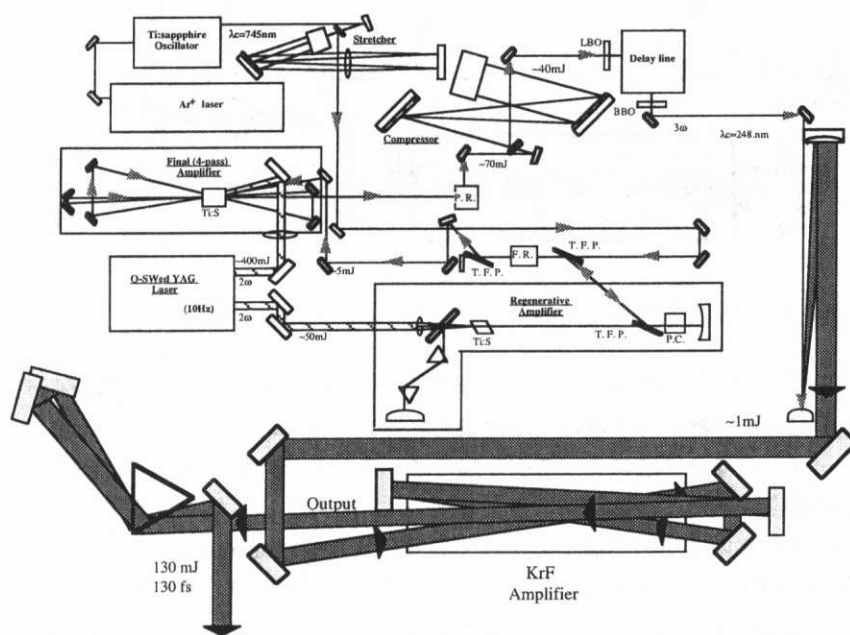


図 6.30: 前段を再生増幅器にした TW KrF-Ti:sapphire レーザーシステム

の 2 倍波のみである。定格出力 400mJ のレーザー（Quantaray GCR-170）に於いて 2 倍波に変換されなかった残りの基本波をもう一度波長変換し、得られた 2 倍波 75mJ を再生増幅器の励起に用い、本来の出力 400mJ を 4-パス増幅器の励起に用いた。

再生増幅器は曲率半径 4 m の凹面鏡と 5 m の凸面鏡の組合わせによる直線型の共振器構成で、途中に合成石英の Brewster プリズム対が約 30 cm の間隔で挿入されている [99]。プリズム対はビームが広がりながら進行する部分に挿入されているので、凸面鏡の左右方向の調整によって共振器の最大利得波長（自己発振の波長）を選ぶ事ができる。ミラーのコーティングの反射中心は長波 745 nm であるが、プリズム対が無い場合の自己発振のスペクトルのピークは Ti:sapphire の利得のプロファイルに応じて 745 nm よりも長波長側となってしまう、種光の Injection はほとんど不可能であった。なお、プリズム対による分散補償の効果は考慮されていないが、パルス幅が比較的長いので、特に問題はなかった。

再生増幅器の出力、約 5mJ はビーム径を 3~4 mm に拡大され 4-パスの増幅器に送られる。400 mJ の励起にたいして 70 mJ のエネルギーが得られ、ビーム径を拡大後 Compressor を通して 40 mJ、160 fs

のパルス光を得た。

波長変換ステージ以降の仕様はオリジナルのシステムと同じである。

### 6.3.4 kHz、高平均出力 システム

TW システムは 10Hz の繰返しであるが、高繰返しの用途に対応するため kHz の繰返しの KrF - Ti:sapphire のハイブリッドシステムを開発した。図 6.31 にシステム図を示す。

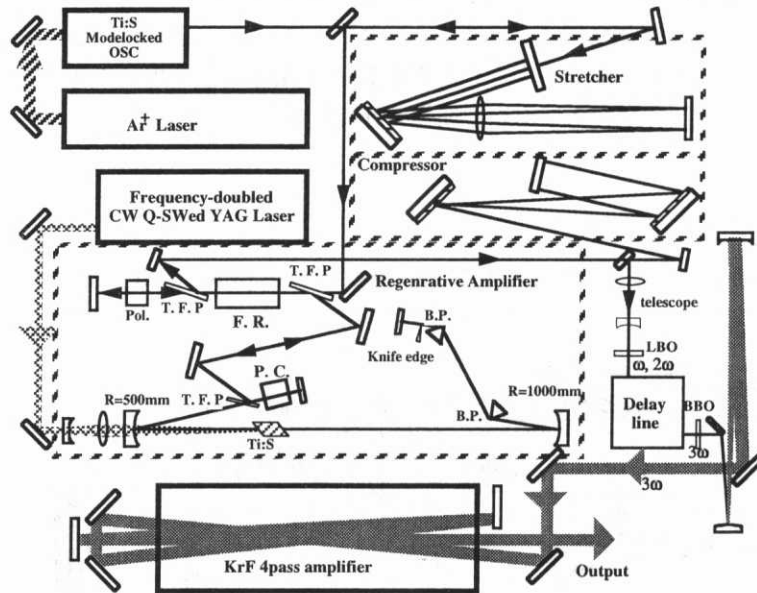


図 6.31: kHz の KrF-Ti:sapphire ハイブリッドレーザーシステム。

高繰返し化、高平均出力化に際しての KrF レーザーの利点は、Ti:sapphire 等の固体レーザーと違ってガス媒質であるため、発生する熱に対する対策が比較的容易に行えるという所にある。第 5 章で詳しく述べた様に、固体レーザーの場合は熱によって引き起こされるレンズ効果がビーム伝播に著しい影響を与えるが、ガス媒質の場合は熱がビーム伝播に与える効果はそれ程大きく無く、放熱の目的は温度上昇による装置そのものの破壊を防ぐ事に主眼がおかれている。また Ti:sapphire の場合には、レーザーロッドの大きさが (数 mm の径) × (10 mm 程度の長さ) しかないため放熱の為に用いる事のできる表面積は数 100 mm<sup>2</sup> 程度であるのに対して、エキシマレーザーのチェンバーは m<sup>2</sup> オーダーの表面積があるため、ここに冷却水を流す事で効率良く冷却が可能である。さらに、チェンバー中に冷却フィンを入れればガス自身の冷却も効率よく行う事ができる。KrF エキシマは Ti:sapphire より上準位寿命が短く飽和断面積が小さいため、超短パルス増幅で高効率でエネルギーを取り出すには特殊な方法が必要であるが [85]、基本的に、高繰返し高平均出力の用途に適したレーザーと言える。

システムの基本構成は TW システムと同様、745 nm の Ti:sapphire CPA で得たパルス波長を波長変換して KrF エキシマで増幅するものであるが、繰返しの違いに応じて異なる構成となっている部分がある。

発振器と Stretcher は TW システムと共通のものを用い、Stretcher の出力をビームスプリッターで分けて片方を TW 用、もう片方を kHz 用の種光として用いた。この種光は kHz の再生増幅器に Injection される。再生増幅器の共振器構成は §6.1 の kHz Ti:sapphire システムと同じである。ただし挿入してあるプリズム対は LAH64 ではなく合成石英で、分散補償の意味合いはほとんど無く、ナイフエッジを空間分散している側に入れる事によって、共振器の利得の中心波長を制御するのが主な目的である。また、ミラーや薄膜フィルム偏光子のコーティングの中心波長は 750 nm である。励起レーザーは内部 SHG 型のアークランプ励起 cw Q-スイッチ Nd:YAG レーザー (Clark ORC1000) で典型的な励起パワーは 8W である。再生増幅器の調整は、ナイフエッジを挿入しない状態で自己発振のタイミングが最も早くなるようアライメントを行った後、自己発振のピーク波長が 745nm になるようにナイフエッジを挿入して

いった。これによって、自己発振の立ち上がりは約 50ns 遅くなった。この再生増幅器共振器中に種光を Injection (励起パルスのピークに対して約 300ns 後のタイミング) すると 14~15 往復でパルスエネルギーは飽和し、これを取り出して得られるパルスエネルギーは 900  $\mu\text{J}$  (平均のパワー 900 mW) である。

ビーム径を拡大した後、増幅されたパルスは回折格子 (2000  $\ell/\text{mm}$ 、Holgraphic、Jovin Yvon 社製) 対の Compressor によって圧縮され、スペクトル幅 5.2nm、パルス幅 160 fs、エネルギー 570 $\mu\text{J}$  の出力となる。

波長変換ステージは TW システムと同様、図 6.26 の配置を用いている。2 倍波発生用に 1.5mm 厚の LBO を Type I の位相整合、3 倍波用に 0.5 mm 厚の BBO を Type I の位相整合で用いている点も同じである。2 倍波単独の波長変換実験に於ては、ビーム径を 3 mm 以下にして強度を上げた ( $\geq 40 \text{ GW}/\text{cm}^2$ ) 時に 35% となり、計算値と比較するとまだ低い、かなりの高効率の変換を行う事ができた。しかし、この条件のまま 3 倍波発生を行うと必ずしも効率は上がらず、むしろビーム径を拡大しパルスのピーク強度を下げた方が 3 倍波発生に関しては効率が良かった。これは、非線形結晶やビームスプリッター、コーツ旋光子で位相変調が生じているためであると考えられる。最終的にビーム径約 6mm (ピーク強度  $\sim 10 \text{ GW}/\text{cm}^2$ ) のとき 12% の変換効率を得る事ができた。ビームの縮小系などでの損失により、入力した基本波のエネルギーは 400  $\mu\text{J}$  であり、得られた 3 倍波は 50  $\mu\text{J}$  であった。

3 倍波のスペクトルは図 6.32(a) に示す通り、半値全幅 0.43nm のスムーズな波形である。このスペク

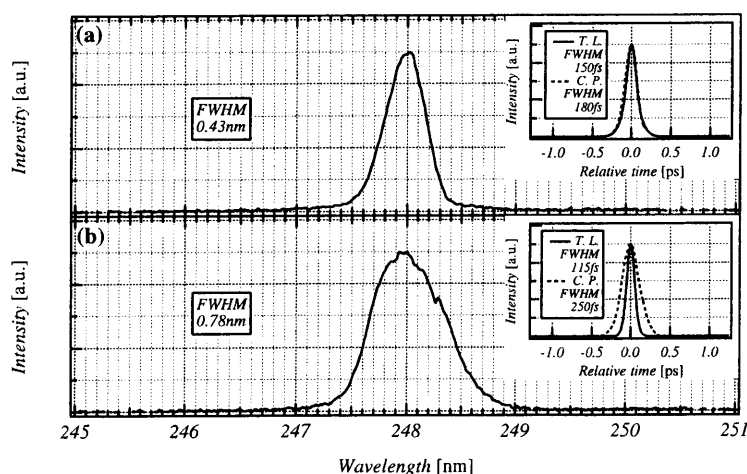


図 6.32: (a): 3 倍波のスペクトル。右上に挿入されているのはこのスペクトルから計算されるフーリエ限界パルス (T. L.、実線) と自己相関計のウィンドウ等によるチャープを考慮して計算したパルス (C. P.、点線) を示す。(b): KrF 増幅後のスペクトル。右上に挿入されているのはこのスペクトルから計算されるフーリエ限界パルス (T. L.、実線) と自己相関計と KrF 増幅器のウィンドウによるチャープを考慮して計算したパルス (C. P.、点線) を示す。

トルから計算されるフーリエ限界パルスは図 6.32(a) の右上に挿入された図にある通り、半値全幅 150 fs のパルスとなる。Time-Bandwidth Product は丁度 0.315 となるので、以降はパルス波形を  $\text{sech}^2$  型と仮定する事にする。なお、XeF の 3 光子蛍光法による自己相関計 [97] に用いられているビームスプリッターとガスセルのウィンドウによるチャープを考慮して計算すると、得られるパルス幅は 180 fs となる (図 6.32(a) の右上に挿入された図の点線)。

実際にこの 3 倍波のパルス幅を計測した結果が図 6.33(a) (白抜き丸によるプロット) である。 $\text{sech}^2$  型のパルス波形を仮定した 3 次の自己相関波形でこの計測結果を最小自乗法によってフィットした所、半値全幅は 180 fs となり (実線で表わしたものがフィットした自己相関波形)、測定したスペクトルと分散式から得られた計算結果と非常に良く一致した。

3 倍波はビーム径を 4 倍に拡大した後 KrF 増幅器に導かれる。KrF 増幅器は高繰返しに耐えるよう、幾つかの改造を施した。放電を行うチャンパー内にはガス冷却のための冷却フィンを 2 本設置した土、直径 12 cm のファンによって約 20 m/s のガス循環速度を得られるようにした。レーザーチャンパーの長さは 60 cm、この中に長さ 30 cm の電極が間隔 24 mm で配置され、放電の断面の幅は 11 mm となっ



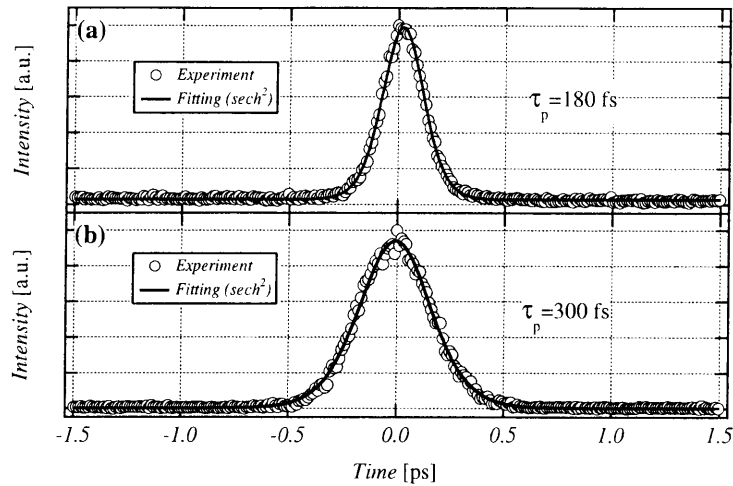


図 6.33: (a): 3 倍波の自己相関波形。白抜き丸が実験値、実線が  $\text{sech}^2$  型パルス波形を仮定してフィットした自己相関波形である。この時パルス幅は 180 fs となった。(b): KrF 増幅後の自己相関波形。白抜き丸が実験値、実線が  $\text{sech}^2$  型パルス波形を仮定してフィットした自己相関波形である。パルス幅は 300 fs となった。

ている。放電は通常の電荷移行回路で、充電容量、放電容量共に 8 nF、充電電圧は 30kV である。

KrF レーザー自身の性能は、30%透過のアウトプットカップラーで共振器を組んだ時に、500Hz の繰返しで 18W の出力を得ている。レーザーガスの混合の割合は Kr を 80torr、 $F_2$  を 3torr、バッファとして He を加えて全体で 1.8atm である。パルス幅は 10ns であった。繰返し周波数が低い場合は、Ne をバッファに用い、もっと高い圧力とすれば、1 パルスあたりのエネルギーは増す事ができるが、高繰返しの場合はガス循環速度を増す事のできる He を低圧で用いた方が適している。

KrF での増幅は 75 cm の間隔で配置された折返しミラーによる 4パス増幅である。発振のパルス幅が 10 ns である事から、利得の持続時間もこれに近い値（発振の際には利得飽和でパルス幅が短くなるはずなので、実際はこれより少し長い）と考えられ、この 4パスの配置はこの間の 2.5 ns 毎にエネルギーを取りだせる様になっている。

レーザーの繰返しを変えて平均出力（平均のパワー）を測定した結果を図 6.34 に示す。繰返しを 100

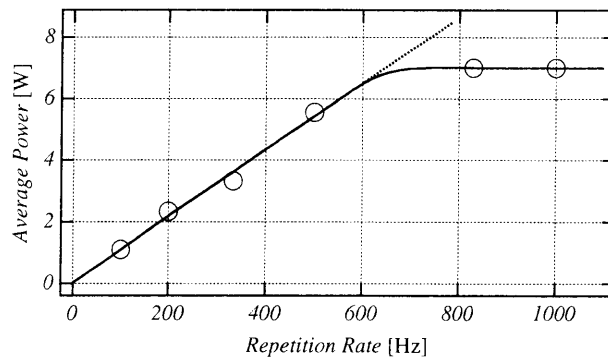


図 6.34: KrF4-パス増幅器による平均出力。横軸が繰返し周波数、縦軸が平均のパワー。

Hz から 500 Hz に上げて行くのに伴って平均のパワーはほぼ比例して上昇してゆくが、1 kHz の繰返しでは飽和している。レーザーガスの循環がまだ不足気味である事が原因と思われるが、いずれにしても 830 Hz と 1 kHz で得られている 7 W のパワーは超短パルスの紫外光源としては最大のものである。

増幅光のスペクトルを図 6.32(b) に、3 光子蛍光法による単一ショットの自己相関波形を図 6.33(b) に示す。スペクトルはピーク波長での利得飽和によって 3 倍波よりも幅が広がり、半値全幅で 0.78 nm と

なった。このスペクトルから計算されるフーリエ限界パルスは 115 fs のパルス幅となるが (図 6.33(b) 右上挿入図の実線)、KrF レーザーチェンバーのウインドウ等の分散を考慮すると 250 fs のパルス幅が得られる計算となる (図 6.33(b) 右上挿入図の点線)。これは自己相関波形を  $\text{sech}^2$  型パルスの相関波形でフィットして得られた値、300 fs とかなり良く一致している。

### 6.3.5 KrF レーザーの超短パルス化

300 nm を切る波長での紫外超短パルスとしては 1kHz、22 fs の Ti:sapphire レーザーを用いたガス中の波長変換で 16 fs、8 fs のパルスが得られているが [100, 101, 102]、いずれの場合も平均のパワーは mW レベルで、高強度の応用に用いるには物足りない。利得帯域幅による制限から KrF エキシマレーザーによって 20 fs を切る紫外パルスを得ることは不可能であるが、平均パワーという点では (光励起ではなく) 放電励起による 1 次レーザー源であるため、Ti:sapphire を波長変換しただけの光源よりも圧倒的に有利である。

6.3.4 で開発したレーザーシステムはこの利点を活かして平均出力 7 W というこれまでで最大の超短パルス紫外光源を実現したが、パルス幅については 300 fs と少々長めであり、しかも明らかにチャープを残したままである。図 6.16 に示した KrF の利得プロファイルをすべて用い、さらに分散補償を行う事ができれば、KrF でも 100 fs を切るパルス幅が可能である。そこで sub-100 fs で高強度、高繰返しの紫外光源を得る事を目的に 6.3.4 のレーザーシステムの短パルス化の実験を行った。

§4.1 で述べた通り、Ti:sapphire の場合と同様、短パルス化に際して最初に問題となるのは、増幅によるスペクトルの狭帯域化である。Ti:sapphire の場合は再生増幅器における利得の制御が可能であったが、KrF レーザーの場合、上順位寿命が  $\sim 1$  ns と短く共振器を組んで再生増幅を行う事は殆ど不可能である。従って、現実的な選択は Ti:sapphire でも検討された種光パルスのスペクトル制御 (4.2.1 参照) という事になる。

図 6.16 の利得プロファイル  $g_0(\lambda)$  ( $\lambda$  は波長) をもとに種光のスペクトルから増幅光のスペクトルを計算した例を図 6.35(a) に示す。種光のスペクトルはガウシアン関数にガウシアン型のディップを持つ

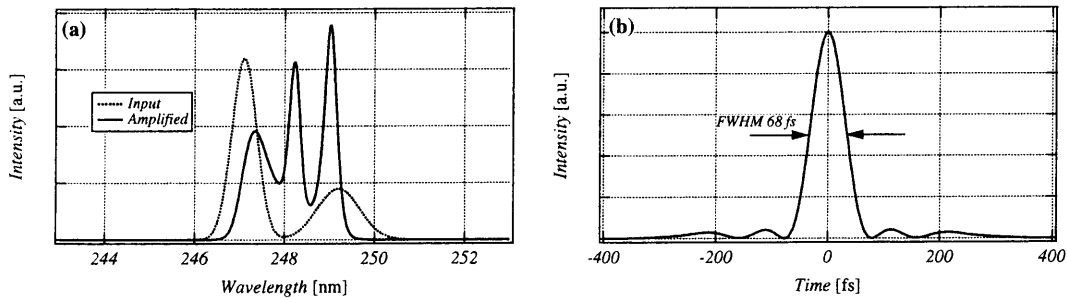


図 6.35: (a): KrF の利得中心付近にディップを持つ種光のスペクトル (点線) とこれを増幅した時のスペクトル (実線)。 (b): 増幅されたスペクトルから計算されるフーリエ限界パルス。

ものとし、ディップの位置、深さを適当に変えて増幅スペクトルが広がる様にした<sup>6</sup>。計算は利得の飽和を取りあえず無視して、小信号利得に応じて指数的に増幅がなされると仮定した。すなわち増幅スペクトル  $I_{out}(\lambda)$  は種光スペクトル  $I_{in}(\lambda)$  に対して  $I_{out}(\lambda) = I_{in}(\lambda) \exp\{g_0(\lambda)L_{dis}\}$  である。ここで  $L_{dis}$  は KrF 増幅器の利得長で放電の長さ 30 cm の 4 倍、1.2 m としている。

計算で得られたスペクトル波形は図 6.35(a) の実線で示した通り、3つのピークを持つ複雑な形となるが、端のピークの半値の所で幅を定義すれば 1.9 nm となり、100 fs を切るのに十分なスペクトルである。このスペクトルからフーリエ限界パルスを計算してやると、図 6.35(b) の様になり、半値全幅 68 fs のパルスが得られる事が分る。

<sup>6</sup>ガウシアン等の理想的な増幅スペクトルを設定して種光のスペクトルを逆算すると、複雑なディップを持つ種光を用意せねばならない事が分る。ここでは実験で比較的容易に行える種光のスペクトル制御でどのようなスペクトルが得られるかを検討した結果を示した。

スペクトル制御を行うために図 6.31 のシステムにいくつかの変更を加えた (図 6.36)。Stretcher は曲

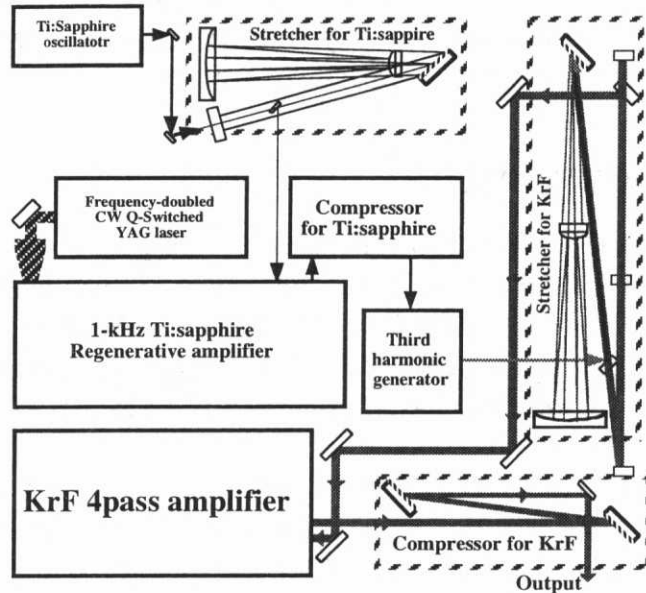


図 6.36: 種光のスペクトル制御による KrF エキシマレーザーでの sub-100 fs UV 発生の実験配置図。

率半径 800mm の凹面鏡と曲率半径 400 mm の凸面鏡の組合せによる Öffner 型 (回折格子は  $2000\ell/\text{mm}$  のまま) とし、Ti:sapphire でのスペクトル制御を行うため、空間的にビームが分散している位置に円形のカードによるマスクを挿入できる様にした。また、Ti:sapphire の CPA においてもなるべく広いスペクトルと短パルスを実現するため、再生増幅器内のプリズム対のビームが空間分散する側に針を 2 本用意し、1 本は長波長側のカット、もう 1 本はスペクトルを広げる為に用いている。さらに短波長成分を強調するために、図 6.37(a) の点線の様に、

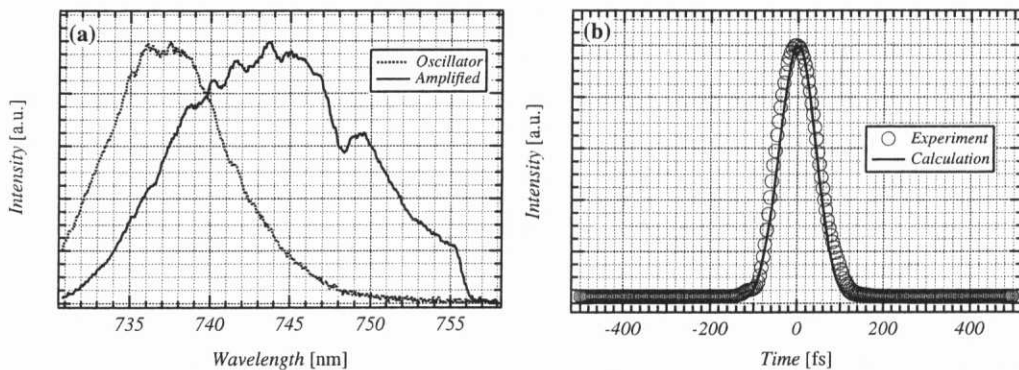


図 6.37: (a): Ti:sapphire モード同期発振器のスペクトル (点線) と増幅後のスペクトル (実線)。(b): Ti:sapphire CPA の出力パルスの SHG 自己相関波形。白抜の丸が実験値、実線はスペクトルから計算されるフーリエ限界パルスの自己相関波形。

発振器の中心波長も 738 nm に設定した。これらのスペクトル制御によって増幅後のスペクトル幅は 14.4 nm にまで広がった (図 6.37(a) の実線)。これをパルス圧縮した時の SHG 自己相関波形を図 6.37(b) に示す。スペクトルから計算されるフーリエ限界パルスのパルス幅は 74 fs であり、この自己相関波形を図 6.37(b) の実線で示した。この計算値と実験値はかなり良く一致しており、パルス幅はほぼ 80 fs であると考えられる。なお、Compressor 後のパルスの平均のパワーは 1kHz の繰返しで 570 mW と 6.3.4 のシステムと変わらなかった。

波長変換ステージの構造は 6.3.4 のものと全く同じであるが、2 倍波発生用の LBO の厚みを 1.5 mm

から 0.5 mm のものに変更して 2 倍波の許容スペクトル幅を約 3 nm に広げた (図 6.38 の 1 点鎖線)。3

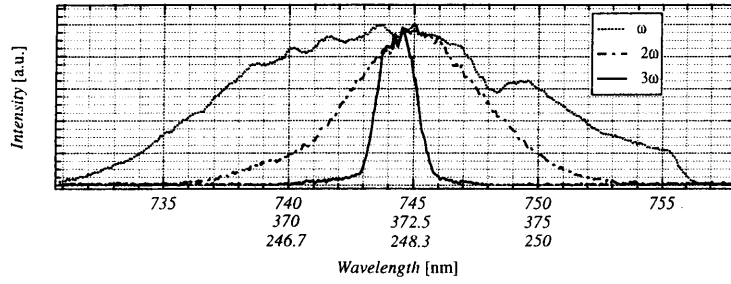


図 6.38: 波長変換によるスペクトル幅の変化。点線が基本波、1 点鎖線が 2 倍波、実線が 3 倍波。波長のスケールは基本波に対して 2 倍波が 1/2、3 倍波が 1/3 になっている。

倍波への変換は LBO の厚みを変更してもビーム径の調整により最適化が可能で、結局 6.3.4 と同じ 50 mW の出力を得る事ができた。以上の波長変換を行った時のスペクトルの変化を図 6.38 に示す。基本波のスペクトルが十分広くても、非線形結晶の許容スペクトル幅による制限のため、2 倍波、3 倍波と変換するに従ってスペクトル幅が狭くなっていく様子が分かる。

超短パルス化のためにはスペクトルの広帯域化の他に、3 倍波及び KrF 増幅後での分散制御も行わなくてはならない。6.3.3 の TW システムの場合の様にプリズムによる増幅後の分散補償のやり方もあるが、ここでは 3 倍波でのスペクトル制御も想定して、3 倍波を Öffner 型の Stretcher に通し、増幅後に回折格子対の Compressor で分散補償する方式とした。ただし、Ti:sapphire の場合と異なり、波長 248 nm の紫外では効率の良い回折格子が無いので、Stretcher、Compressor 共に、ルーフミラーでの折り返しの無い、片道のみを通す配置で使用した。この場合、空間的な色分散が Stretcher の出力段階で残る事になるが、Compressor を通す事によってこの空間的な色分散が補償されるように回折格子の入射方向を選んでいる。いずれにしろ伸延したパルス幅は 3~10 ps 程度なのでそれ程大きな色分散では無い。

3 倍波用の Stretcher は曲率半径 800 mm の凸面鏡と曲率半径 1600 mm の凹面鏡による Öffner 系で構成されており、用いた回折格子はアルミコートホログラフィックのもので、溝数は 3600ℓ/mm (Milton Roy Model 35-83-530) である。回折効率約 70% であった。KrF での増幅を行う前に、この片道のみによる Stretch-Compression の方法が正しく機能するかどうかを、スペクトル制御をしない 3 倍波で確かめた。図 6.39(a) に実験の配置図を示す。Stretcher は回折格子を凹面鏡の後方約 8 cm の位置に置き、

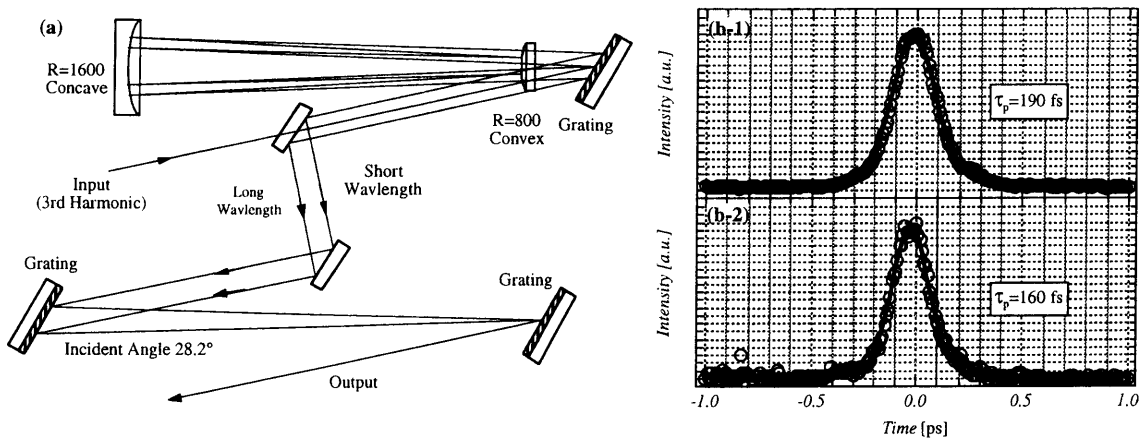


図 6.39: (a): 3 倍波による Stretch-Compression の配置。Stretcher、Compressor 共に片道 (1 往復のみ) の透過なので、空間的な色分散が残るが、双方を通す事によってこれを補償する。(b): 3 光子蛍光による 3 倍波の自己相関波形。(b-1) は 3 倍波をそのまま測定したもの、(b-2) は Stretcher-Compressor を通して測定したもの。白抜きの丸が実験結果を表し、実線が  $\text{sech}^2$  型のパルスを仮定してフィットした自己相関波形。

これを通した3倍波をそのまま回折格子対のCompressorに通す。Stretcherの出力は図にある通り空間的な色分散を持っているがCompressorの回折格子で補償(同じ入射角でも回折格子の向きを反対にすると補償できない事に注意する必要がある)する事が出来た。

Stretcher、Compressorを通す前に、直接3倍波のパルス幅を測定した結果が図6.39(b-1)である。XeFの3光子蛍光法によって得られた自己相関波形は $\text{sech}^2$ 型のパルス波形を仮定してフィットすると(図6.39(b-1)実線)、半値全幅は190 fsとなる。一方Stretch-Compression後の自己相関波形から得られたパルス幅は160 fsであり、スペクトルから計算されるフーリエ限界にはほぼ近い値となった。この時の回折格子対の間隔は約144 cm、入射角 $28.2^\circ$ であった。また、伸延されたパルス幅は10 ps程度と計算される。Stretch-Compression後のパルス幅が短くなったのは、3光子蛍光に用いているガスセルのウィンドウ等の分散が補償されたためであり、この結果から片道だけのStretch-Compressionのやり方が分散補償に有効である事が確かめられた。

KrFエキシマでの増幅の為にはビーム径を増幅器の断面に合わせる必要があるが、今回の実験では横方向についての幅はパルス伸延による色分散によって調節できるので、Stretcherの回折格子を凸面鏡後方約60 cm後方に置くことによって幅約1 cmのビームとした。この時の伸延されたパルス幅は3 ps程度である。縦方向については円筒ミラーを用い、曲率半径300 mmの凸面円筒鏡と曲率半径2000 mmの凹面円筒鏡でビーム径を拡大して高さ約20 mmのビームとした。

KrFエキシマでの増幅は6.3.4と同じ4パスの配置で、増幅後のビームは溝数3600 $\ell$ /mm(Milton Roy Model 35-83-530)の回折格子対によるCompressorでパルス圧縮される。片道だけの通過で、効率は約50%であった。

以上の準備を行った上で、3倍波に対するスペクトル制御、増幅実験を行った。3倍波に対するスペクトル制御はTi:sapphire CPAのStretcherに円形のカードを挿入し、基本波に対してスペクトルのディップを作る事で行うことが出来る。しかし、基本波の出力はそれ程低くならないにもかかわらず、位相整合からかなり離れたスペクトル成分を強調せねばならないため、3倍波の平均パワーは約1 mWにまで減った。

スペクトル制御を行わない場合の3倍波のスペクトルとKrFエキシマでの増幅スペクトルを図6.40(a)に、スペクトル制御を行った3倍波のスペクトルと、これをKrFエキシマで増幅したスペクトルを図6.40(b)に示す。通常増幅ではKrF増幅の利得の飽和、248.3 nm近くでの利得のピークの影響などに

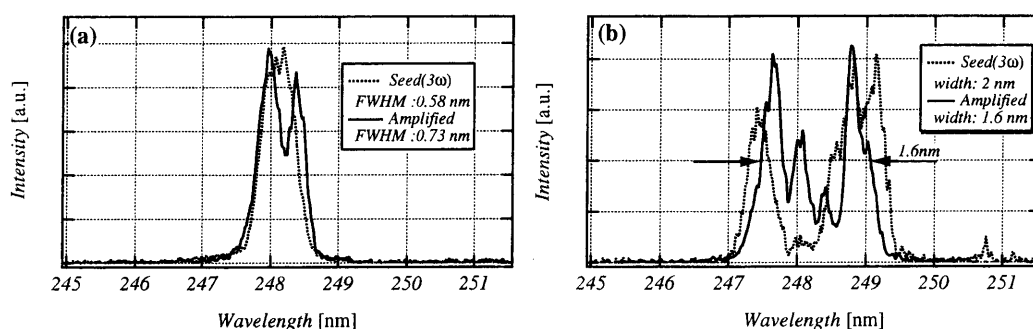


図 6.40: (a): 通常の Ti:sapphire の 3 倍波スペクトル (点線) と KrF エキシマで増幅したスペクトル (実線) (b): スペクトル制御を行った 3 倍波スペクトル (点線) とこれを KrF エキシマで増幅したスペクトル (実線)。

より、3倍波よりもスペクトルは広がっているものの、その幅は1 nmにも達していない。これに対してスペクトル制御を行った場合は、248 nm付近にディップを持ち幅2 nm以上となる3倍波の入力に対して、増幅スペクトルは中央付近にディップといくつかのピークを持つものの、1.6 nmの幅となった。これは(自己位相変調等を用いない) KrF レーザー単独の増幅としては最も広いスペクトル幅である。このスペクトルから得られるフーリエ限界パルスのパルス幅は72 fsになる。

増幅によって得られた平均の出力は1 kHzの繰返しで1.2 Wである。スペクトル制御を行わなかった時の出力は2.4 Wで、6.3.4での結果と比較するとかなり低い値になっているが、これはStretcherによ

る損失で入力する3倍波が少なくなっている事、ビームの大きさが利得の断面積より小さく、このために高率良く増幅出来ていない事、そしてスペクトル制御を行っている場合は利得の少ないスペクトル成分が主に増幅に寄与している事、等が原因であると思われる。

増幅したパルスを Compressor に通しパルス圧縮を行った。XeF の3光子蛍光法による3次の自己相関波形を図 6.41 に示す。スペクトル制御を行ったパルスは通常の場合と比べて約 65% のパルス幅

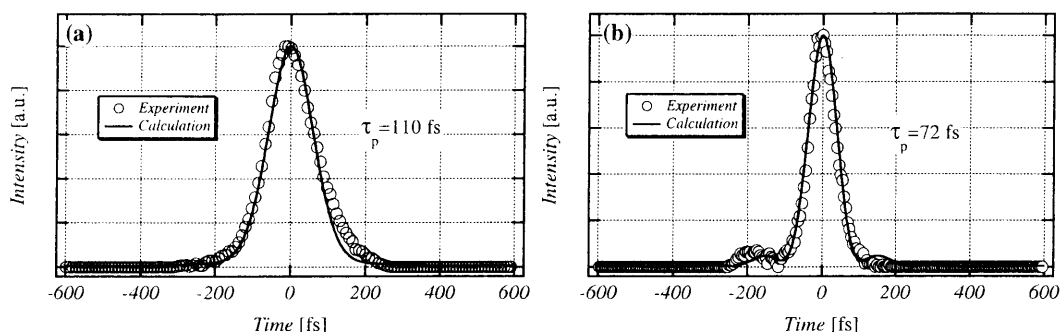


図 6.41: KrF 増幅後の XeF<sub>3</sub> 光子蛍光法による 3 次の自己相関波形。白抜き丸が実験値、実線がスペクトルから計算されるフーリエ限界パルスの自己相関波形。(a): スペクトル制御を行わない場合。(b): スペクトル制御を行った場合。

に縮まり、100-fs を切る相関幅が得られている。また、いずれの場合もスペクトルから計算されたフーリエ限界パルスの自己相関波形と良く一致しており、それぞれ 110 fs、72 fs のパルス幅が得られた。

### 6.3.6 KrF-Ti:sapphire ハイブリッドシステムについてのまとめ

以下に超短パルス化実験を含めた 3 種類の KrF-Ti:sapphire ハイブリッドシステムで得られた結果をまとめる。1TW クラスのレーザーシステムは本研究の後、電子ビーム励起の単一ショットシステム、あ

表 6.4: KrF-Ti:sapphire ハイブリッドレーザー

表 6.4(a) TW システム		表 6.4(b) kHz システム		表 6.4(c) sub-100fs システム	
繰返し	10Hz	繰返し	1kHz	繰返し	1kHz
中心波長	~248.3 nm	中心波長	~248.3 nm	中心波長	~248.3 nm
Energy/pulse	130 mJ	Energy/pulse	7 mJ	Energy/pulse	0.6 mJ
平均のパワー	1.3W	平均のパワー	7W	平均のパワー	0.6W
パルス幅	130 fs	パルス幅	300 fs	パルス幅	72 fs
ピークパワー	1 TW	ピークパワー	23 GW	ピークパワー	8.3 GW

るいは 10Hz 程度の繰返しシステムが幾つか開発されてきているが、平均出力 7W を超える超短パルスエキシマレーザーは今の所他に例が無い。また、KrF レーザーの広帯域化、超短パルス化についても、Ti:sapphire と組み合わせたシステムとしては、これ以上の超短パルス化を試みた例はない。

## 第7章 まとめ

Ti:sapphire レーザーを中心とした高出力超短パルスレーザーの研究開発を行った。本研究における成果は次の通りである。

### 1. 超短パルス高繰返し高出力 Ti:sapphire レーザー

- 20 fs 領域の増幅パルスを得るための新しい手法 "HYCOME" の開発。再生増幅器中に適切な材質のプリズム対を挿入する事によって、20 fs を得るのに十分な波長域で分散補償を行う事ができる。また、これを詳しく検討するために光線追跡によるシステム全体の分散についての解析を行った。
- 高繰返し固体レーザー増幅器で問題となる熱レンズ効果を "SCAT" によって解決。マルチパス増幅器を熱レンズを含んだ疑似共振器とみなし、これが安定となる様に凹面鏡間隔、折り返しの長さ等を調整すれば良い事を明らかにした。
- 上記の本研究独自の技術と再生パルス成形等の既存の技術の組み合わせによる、繰返し 1kHz で 0.66TW のピークパワーを持つシステムと、5kHz、0.2TW のシステムの開発。特に 5kHz のシステムは、あらゆる繰返しの Ti:sapphire CPA システムの中で、最大の (22 W) 平均出力を達成している。

### 2. 超短パルス KrF-Ti:sapphire ハイブリッドレーザー

- 745nm での Ti:sapphire CPA の開発。再生増幅器中のプリズム対によって、Ti:sapphire の利得のピークからはずれた波長での増幅を行える。
- 波長変換に於ける非線形結晶の群速度ミスマッチの効果の検討。数値計算により 2 倍波、3 倍波のパルスの時間発展の様子、パルス幅、変換効率等を解析した。これによって 3 倍波発生時の pre-delay の重要性が明らかになり、本研究独自の Delay Line を考案、3 倍波への変換効率 ~10% を実現している。
- 10Hz で 1TW のハイブリッドレーザー開発。1mJ の種光を発生させる事によって、ASE の少ない 1 段での KrF エキシマレーザー増幅が可能となった。
- kHz エキシマレーザーの開発。冷却、ガス循環の強化等、高繰返し仕様のエキシマレーザーを開発、これと kHz の Ti:sapphire CPA を組み合わせる事によって、高平均出力の紫外超短パルス光源を開発した。得られたパワー (7 W) は 紫外超短パルス光源としては最大のものである。
- KrF レーザーによる sub-100 fs パルスの増幅。スペクトル幅の拡大と分散補償によって KrF レーザーで 100 fs を切るパルス幅を得た。

本研究で開発したレーザーシステムの性能については第 6 章の表 6.1、表 6.2、表 6.3、そして表 6.4 にまとめた通りである。これらのレーザーシステムは、高次高長波発生 [89, 105]、多光子イオン化実験 [104, 103]、電子分光 [106, 107]、発生した高長波による XUV 領域の超高速固体物性の研究等に用いられ、多くの成果をあげている。

今後、Ti:sapphire レーザーの励起源の全固体化や、短パルスファイバーレーザーの高出力化、疑似位相整合素子による波長変換の高効率化など超短パルス高出力レーザーに関する新しい研究が進み、この分野の研究開発はさらに加速されていくであろう。本研究がその一翼を担う役割を果たしたならば幸いである。

## 第8章 謝辞

本研究は東京大学物性研究所先端分光部門（旧極限レーザー）渡部研究室に於いて行われたものです。本研究のすべての成果は渡部俊太郎教授の指導にもとづく物であります。常に世界の先端の研究開発を手掛けている渡部教授の叱咤激励によって初めて本研究が成立しました。ここに心から感謝の意を表します。

渡部研究室助手であった現筑波大学講師、近藤公伯博士はオシロスコープもまともに触った事のない筆者を実験のイロハから現場で指導して下さいました。右も左もわからない場所へやってきた筆者にとって、近藤博士からの助言がなければこのような研究を行う事は不可能であったでしょう。本当に有難うございました。

渡部研究室の助手である関川太郎博士にはユーザーの立場からレーザーについての多くの助言を戴きました。関川博士の研究成果によって、多くの人に本研究で開発されたレーザー が認識される様になりました。有難うございます。

直接指導して戴いた方々以外にも、本研究は研究室職員のOBである遠藤彰博士、渡辺昌良博士が残して下さい、多くの有形無形の財産に助けられています。また研究室のOBである分子科学研究所の猿倉信彦助教授は貴重な情報をもたらして下さいました。改めて感謝の意を表します。

物性研究所に着任以来、多くの学生と超短パルス高出力レーザーの研究を続けてきました。彼等の献身的な働きが本研究の支えとなった事は言うまでもありません。有難うございました。

畑違いの分野からレーザーの研究開発の世界に飛び込んで、とまどう場面も多かった日々ではありましたが、こうして成果をまとめる事ができました。上記のように具体的には書きませんでしたが、本当に多くの方に支えられた研究生活でした。筆者と関わったすべてのひとに改めて御礼を申し上げます。



# 付録 A Uncertainty relation

Hilbert Space 上で演算子  $\hat{t}$ ,  $\hat{\omega}$  が Hermite かつ交換関係

$$[\hat{t}, \hat{\omega}] = i \quad (\text{A-1})$$

を満たす時、この Hilbert Space 上での任意の状態  $|e\rangle$  についての各演算子の偏差

$$\Delta t = \left\{ \langle e | (\hat{t} - t_0)^2 | e \rangle \right\}^{1/2} \quad (\text{A-2})$$

$$\Delta \omega = \left\{ \langle e | (\hat{\omega} - \omega_0)^2 | e \rangle \right\}^{1/2} \quad (\text{A-3})$$

が、不等式

$$\Delta t \Delta \omega \geq \frac{1}{2} \quad (\text{A-4})$$

を満たす事の証明 ( $t_0$ ,  $\omega_0$  については式式 (2.3) 及び式式 (2.4) で定義)。

まず、 $\hat{t}$ ,  $\hat{\omega}$  について、それぞれ c 数  $t_0$ ,  $\omega_0$  だけずらした Hermite 演算子  $\Delta \hat{t}$ ,  $\Delta \hat{\omega}$  を

$$\Delta \hat{t} \equiv \hat{t} - t_0, \quad \Delta \hat{\omega} \equiv \hat{\omega} - \omega_0 \quad (\text{A-5})$$

と定義しておく。この時

$$\langle e | \Delta \hat{t} | e \rangle = 0, \quad \langle e | \Delta \hat{\omega} | e \rangle = 0 \quad (\text{A-6})$$

$$\langle e | (\Delta \hat{t})^2 | e \rangle = (\Delta t)^2, \quad \langle e | (\Delta \hat{\omega})^2 | e \rangle = (\Delta \omega)^2 \quad (\text{A-7})$$

$$[\Delta \hat{t}, \Delta \hat{\omega}] = i \quad (\text{A-8})$$

である。さらに  $\Delta \hat{t}$ ,  $\Delta \hat{\omega}$  から演算子  $\hat{b}$  を次の様に定義してやる。

$$\hat{b} \equiv \Delta \hat{t} + i\alpha \Delta \hat{\omega} \quad (\text{A-9})$$

ただし  $\alpha$  は実数とする。一般に  $\hat{b}$  とその共役演算子  $\hat{b}^\dagger$  の積で定義される演算子  $\hat{H} \equiv \hat{b}^\dagger \hat{b}$  は正定値である。何故ならば、 $\hat{b}$  の固有状態  $|b_n\rangle$  ( $\hat{b}|b_n\rangle = b_n|b_n\rangle$ ) が完全であれば、任意の状態  $|e\rangle$  はこれによって展開できる、

$$|e\rangle = \sum_n c_n |b_n\rangle \quad (\text{A-10})$$

と書けるので、 $|e\rangle$  による  $\hat{H}$  の期待値  $H$  は

$$\begin{aligned} H &= \langle e | \hat{H} | e \rangle \\ &= \sum_m \sum_n \langle b_m | b_m^* c_m^* c_n b_n | b_n \rangle \\ &= \sum_n |c_n|^2 |b_n|^2 \geq 0 \end{aligned} \quad (\text{A-11})$$

で、必ず 0 以上の値をとる実数となるからである (最後の変型で  $|b_n\rangle$  の直交性を用いた)。

一方、 $\hat{H}$  自身の具体形は

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \hat{b}^\dagger \hat{b} \\ &= (\Delta \hat{t} - i\alpha \Delta \hat{\omega}) (\Delta \hat{t} + i\alpha \Delta \hat{\omega}) \\ &= (\Delta \hat{t})^2 + \alpha^2 (\Delta \hat{\omega})^2 + i\alpha [\Delta \hat{t}, \Delta \hat{\omega}] \end{aligned}$$

式式 (A-8) を用いて、

$$= (\Delta \hat{t})^2 + \alpha^2 (\Delta \hat{\omega})^2 - \alpha \quad (\text{A-12})$$

であるから、これを用いて  $H$  を計算してやると、

$$\begin{aligned} H &= \langle e | \hat{H} | e \rangle \\ &= (\Delta \omega)^2 \alpha^2 - \alpha + (\Delta t)^2 \\ &= (\Delta \omega)^2 \left\{ \alpha - \frac{1}{2(\Delta \omega)^2} \right\}^2 + (\Delta t)^2 - \frac{1}{4(\Delta \omega)^2} \end{aligned} \quad (\text{A-13})$$

である。ここで式式 (A-7) を用いた。

$\alpha$  は実数であるから、 $H$ 、すなわち式式 (A-13) の右辺が 0 以上になるためには  $(\Delta t)^2 - (2\Delta \omega)^{-2}$  が 0 以上でなければならない。即ち

$$(\Delta t)^2 (\Delta \omega)^2 \geq \frac{1}{4} \Rightarrow \Delta t \Delta \omega \geq \frac{1}{2} \quad (\text{A-14})$$

が成立する事になる。

## 付録 B 高速過飽和吸収体モデルによる自己モード同期の原理

～100fs の Ti:sapphire レーザーが開発される以前には、過飽和色素を利得変調に用いた自己モード同期色素レーザーがサブピコ秒の光源としてよく用いられていた。Ti:sapphire におけるカーレンズモード同期の原理が、可飽和吸収体によるモード同期のモデルと同じ形に帰着する事は 2 で述べた通りである。そこで図 2.2 に於ける Intensity dependent loss を応答の速い可飽和吸収色素であるとして共振器内のレーザー電場の様子を考えてみる [108]。

$n$  回共振器を往復したレーザー電場を  $E_n(t)$ 、その Fourier 成分を  $\tilde{E}_n(\omega_k)$  とする。この時お互いが

$$E_n(t) = \sum_{k=-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_n(\omega_k) e^{i\omega_k t} \quad (\text{B-1})$$

$$\text{where } \begin{cases} \omega_k \equiv \frac{2\pi}{T_R} k & (k = 0, \pm 1, \pm 2, \dots) \\ T_R : \text{cavity の round trip time} \end{cases}$$

$$\tilde{E}_n(\omega_k) = \frac{1}{T_R} \int_{-\frac{T_R}{2}}^{\frac{T_R}{2}} dt E_n(t) e^{-i\omega_k t} \quad (\text{B-2})$$

という関係になっている。レーザー電場は共振器を片方のミラーからもう片方のミラーまで片道進む間に角振動数  $\omega_k$  に依存した利得  $G(\omega_k)$  及び強度に依存した損失  $L(t)$  を受ける事になる。式 (B-1)、式 (B-2) に拠れば  $\omega$  を時間領域で表現する演算子は  $-id/dt$  になるから、 $n+1$  回往復後の電場  $E_{n+1}(t)$  は  $n$  回往復後の電場  $E_n(t)$  を用いて

$$E_{n+1}(t) = \exp(\gamma T_R) \exp \left\{ G \left( -i \frac{d}{dt} \right) \right\} \exp \{-2L(t)\} \exp \left\{ G \left( -i \frac{d}{dt} \right) \right\} E_n(t - T_R) \quad (\text{B-3})$$

と表す事ができる。ここで  $\gamma$  はアウトプットカップラー等による一定の線形損失である。電場をレーザー発振の中心角振動数  $\omega_0$  の振動項と包絡線関数  $A(t)$  に分けて書けば (すなわち  $E_n(t) \equiv A_n(t) e^{i\omega_0 t}$ ) 式 (B-3) は  $A_n(t)$  についての漸化式

$$A_{n+1}(t) = e^{-i\omega_0 T_R} e^{-\gamma T_R} \exp \left\{ G \left( -i \frac{d}{dt} + \omega_0 \right) \right\} e^{-L(t)} \exp \left\{ G \left( -i \frac{d}{dt} + \omega_0 \right) \right\} A_n(t - T_R) \quad (\text{B-4})$$

に書き直せる。なお、 $\omega_0$  は共振器のモードの 1 つと考えられるから  $\omega_0 T_R = 2\pi m$  ( $m$  は整数) として以降の式では  $e^{-i\omega_0 T_R} = 1$  とする。

式 (B-4) を  $n$  に拠らない  $A(t)$  についての微分方程式に書き換え、解を求める事を考える。計算を簡単にするため、まずレーザー媒質の利得が角振動数  $\omega_0$  を中心にローレンツ型の分布をしており、さらに利得の帯域幅が十分広いとして、以下のような近似が成立している場合のみを想定する事にする。

$$G(\omega) = G(\omega_0) / \left\{ 1 + i \frac{\omega - \omega_0}{\omega_L} \right\} \quad (\text{B-5})$$

$$\simeq G(\omega_0) \left\{ 1 - i \left( \frac{\omega - \omega_0}{\omega_L} \right) - \left( \frac{\omega - \omega_0}{\omega_L} \right)^2 \right\} \quad (\text{B-6})$$

この時、 $G(\omega_0)$  もまた十分小さければ  $\hat{G} \equiv G(-id/dt + \omega_0)$  として

$$\begin{aligned} \exp \hat{G} &\simeq 1 + \hat{G} \\ &= 1 + G(\omega_0) \left( 1 - \frac{1}{\omega_L} \frac{d}{dt} + \frac{1}{\omega_L^2} \frac{d^2}{dt^2} \right) \end{aligned} \quad (\text{B-7})$$

と近似できる。式 (B-4) は  $e^{\hat{G}}$  が  $e^{-2L}$  を挟む形になっていて計算がしにくいので、上記近似のもとでこれを交換すると

$$e^{\hat{G}}e^{-2L} = e^{-2L}e^{\hat{G}} + [e^{\hat{G}}, e^{-2L}] \quad (\text{B-8})$$

$$\simeq e^{-2L}e^{\hat{G}} + [1 + \hat{G}, e^{-2L}] \quad (\text{B-9})$$

で一般には交換しない。この時交換子  $[1 + \hat{G}, e^{-2L}] = [\hat{G}, e^{-2L}]$  の値は

$$[\hat{G}, e^{-2L}] = G(\omega_0) \left[ \frac{4}{\omega_L} \frac{dL}{dt} \hat{s} + \frac{2}{\omega_L} \frac{dL}{dt} - \frac{2}{\omega_L^2} \left\{ \frac{d^2L}{dt^2} - 2 \left( \frac{dL}{dt} \right)^2 \right\} \right] \quad (\text{B-10})$$

where

$$\hat{s} \equiv -\frac{1}{\omega_L} \frac{d}{dt} \quad (\text{B-11})$$

である。強度に依存した損失  $L$  の時間変化  $dL/dt$  は、後で評価するように発振パルス波形の変化程度なので、利得の帯域幅  $\omega_L$  との積はせいぜい 1 程度あり、 $G(\omega_0)$  は十分小さいとしているので、この項 (式 (B-10)) は無視する。よって  $e^{-\gamma T_R} \simeq 1 - \gamma T_R$ 、 $e^{-2L} \simeq 1 - 2L$ 、等の近似をさらに加えてやれば、式 (B-4) は

$$A_{n+1}(t) = A_n(t - T_R) - \frac{\omega_0}{2Q} T_R \left\{ 1 + \frac{Q}{Q_A(t)} - g(1 + \hat{s} + \hat{s}^2) \right\} A_n(t - T_R) \quad (\text{B-12})$$

という形になる。なお、式 (B-12) 中で、共振器の線形損失による Q 値  $Q \equiv \omega_0/(2\gamma)$ 、及び線形損失によって規格化された中心角振動数での利得  $g \equiv 2G(\omega_0)/(\gamma T_R)$ 、さらに、線形損失と  $Q$  で規格化された強度依存の Q 値  $Q_A(t) \equiv \{2L(t)/(\gamma T_R Q)\}^{-1}$  を定義した。

一方、光パルスが共振器を往復する間に、式 (B-12) の効果で電場の包絡線の形が変化し、電場のピークで考えた往復時間が僅かに  $\delta T$  だけ短くなると考えれば、( $\delta T$  に上記の効果を含めると考える)  $\delta T$  の 1 次までの近似で

$$A_{n+1}(t) = A_n(t - T_R + \delta T) \simeq A_n(t - T_R) + \delta T \left( \frac{d}{dt} \right) A_n(t - T_R) \quad (\text{B-13})$$

となるから、式 (B-12) と式 (B-13) を比較して

$$\left\{ 1 + \frac{Q}{Q_A(t)} - g(1 + \hat{s}^2) - (g + \delta) \hat{s} \right\} A(t) = 0 \quad (\text{B-14})$$

where

$$\delta \equiv 2Q \cdot \frac{\omega_L \delta T}{\omega_0 T_R} \quad (\text{B-15})$$

という包絡線関数  $A(t)$  についての微分方程式が得られる。なお、この式は任意の  $n$  について成り立つので、添字  $n$  を落とした。あとは強度依存の損失 (または Q 値) の具体型がわかれば式 (B-14) を解くことによってパルス光の電場包絡線が得られることになる。

強度依存の損失の具体型を得るために過飽和吸収体の簡単なモデルを考えてみよう。2 準位間の分子数の差、 $\Delta N$  の時間変化が平衡時の 2 準位間の分子数の差、 $\Delta N_e$  からの  $\Delta N$  のずれと、入射光電場の強度、 $I(t)$  と  $\Delta N$  の積に比例すると仮定すれば、 $\alpha$  をこの比例係数として  $\Delta N$  についてのレイト方程式

$$\frac{d\Delta N}{dt} = -\frac{\Delta N - \Delta N_e}{T_A} - \alpha I(t) \Delta N \quad (\text{B-16})$$

が成立するはずである。この時吸収体の2準位間緩和時間  $T_A$  が十分小さければ ( $T_A \cdot d\Delta N/dt \ll 1 \Rightarrow$  "速い" 過飽和吸収体)  $\Delta N$  の時間変化を無視できて

$$\begin{aligned}\Delta N &\simeq \Delta N_e (1 + \alpha T_A I(t))^{-1} \\ &\simeq \Delta N_e (1 - \alpha T_A I(t)) \\ &= \Delta N_e \left( 1 - \frac{|A(t)|^2}{P_A} \right)\end{aligned}\quad (\text{B-17})$$

where

$$P_A \equiv \left( \frac{c\epsilon_0}{2} \alpha T_A \right)^{-1} \quad (\text{B-18})$$

となる。 $L(t) \propto \Delta N$  であるから  $q$  をある定数として、

$$\frac{Q}{Q_A(t)} = q \left( 1 - \frac{|A(t)|^2}{P_A} \right) \quad (\text{B-19})$$

という形で強度に依存した損失 (強度の強いパルスほど損失が少ない) が得られる。

式 (B-19) を式 (B-14) に代入して式 (B-11) の定義から  $\hat{s}$  を  $d/dt$  に戻して書けば  $A(t)$  についての非線形微分方程式

$$\left\{ 1 + q + \frac{(g + \delta)}{\omega_L} \frac{d}{dt} - g \left( 1 + \frac{1}{\omega_L^2} \frac{d^2}{dt^2} \right) \right\} A(t) = \frac{q}{P_A} |A(t)|^2 A(t) \quad (\text{B-20})$$

が得られる。式 (B-20) が求めようとしていた、電場の包絡線関数についての微分方程式である。

式 (B-20) は Dumping Factor  $\gamma_D$  が  $(g + \delta)/\omega_L$  の非線形発振を表しているが、モード同期がかかった状態では解は周期的でなければならないので、この時  $\gamma_D$  が 0 となるようにパラメーター  $\delta$  が選ばれるようになっているものとする。従って

$$\Omega_N^2 \equiv \frac{gq}{P_A} \omega_L^2 \quad (\text{B-21})$$

$$\Omega_L^2 \equiv \frac{1 + q - g}{g} \omega_L^2 \quad (\text{B-22})$$

と定義すると、式 (B-20) は

$$\frac{d^2}{dt^2} A(t) = -\Omega_N^2 A^3(t) + \Omega_L^2 A(t)$$

となるから ( $A$  は実とした)  $t$  について積分できて

$$\frac{d}{dt} \left\{ \frac{1}{2} \left( \frac{dA}{dt} \right)^2 + \frac{1}{4} \Omega_N^2 A^4 - \frac{1}{2} \Omega_L^2 A^2 \right\} = 0 \quad (\text{B-23})$$

となる。この式に  $A$  についてスケール変換

$$A(t) \equiv \sqrt{2} (\Omega_L / \Omega_N) B(t) \quad (\text{B-24})$$

をほどこしてやれば、結局

$$\left( \frac{dB}{dt} \right)^2 + \Omega_L^2 B^2 (B^2 - 1) = \text{const} \quad (\text{B-25})$$

という Double well potential 中の質点の運動を記述する式と同じ形になる。式 (B-25) の右辺は積分定数で、 $dA/dt$  の初期値から決定される。一般にこの解は周期性を持つが、式 (B-25) は 1 周期の時間  $T_R$  内における電場包絡線の時間発展を表しているので、この中に含まれるパルス包絡線の時間幅は十分短いと考えて  $t \rightarrow -\infty$  のとき  $dA/dt \rightarrow 0$  という初期条件を課するのが妥当であろう。このとき式 (B-25)

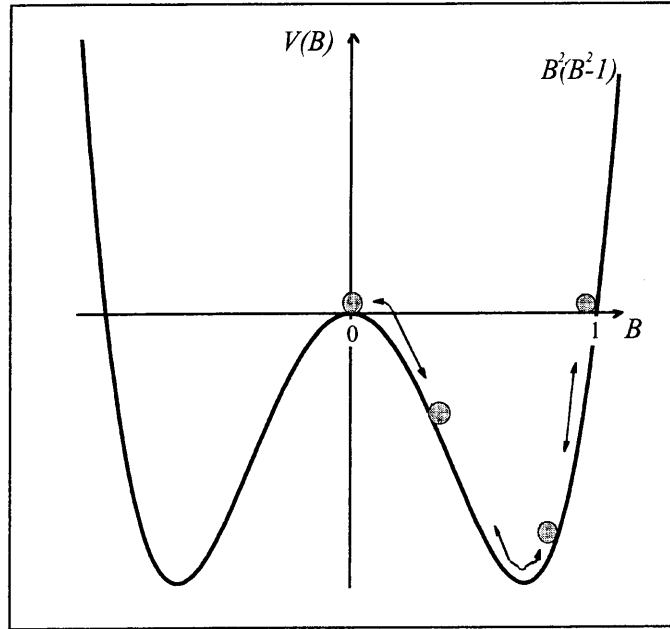


図 B-1: double-well potential 中の質点の運動

の右辺は 0 であるので、等価的な質点の運動では原点から初速度 0 で出発して  $B = 1$  の転回点に到達し再び原点に戻って速度 0 になる運動を無限時間の間に行う事に対応している (図 B-1)。具体形は式 (B-25) を積分を行い

$$\int \frac{dB}{B\sqrt{1-B^2}} = \pm\Omega_L t + \phi_0 \quad (\text{B-26})$$

であるから ( $\phi_0$  は積分定数)、 $B \equiv \cos \theta$ 、 $\eta \equiv \tan(\theta/2)$  の置き換えをして

$$\begin{aligned} \ln \left| \frac{1-\eta}{1+\eta} \right| &= \pm\Omega_L t + \phi_0 \\ \iff \\ B(t) &= \text{sech}(\Omega_L t + \phi_0) \end{aligned} \quad (\text{B-27})$$

という解となる。もとの  $A(t)$  に戻せば

$$A(t) = \sqrt{2} \frac{\Omega_L}{\Omega_N} \text{sech}(\Omega_L t + \phi_0) \quad (\text{B-28})$$

であり、電場包絡線は sech 型で与えられる事が分かる。

パルス幅を  $\tau_p \equiv \Omega_L^{-1}$  と定義すれば式 (B-22) により  $\Omega_L$  が与えられているので

$$\tau_p = \sqrt{\frac{g}{1+q-g\omega_L}} \quad (\text{B-29})$$

であるが、この式から分かる通り  $1+q > g$  すなわちパルスが無い状態での損失が利得を上回っていないと、このような孤立したパルスを安定して発生できない。

## 付録 C Öffner 光学系における像の位置

4.4.3.2 で与えられた Öffner タイプの Stretcher による分散式の導出 ( $\ell(\omega_0)$  と  $2Z$  の対応) は、Öffner の telescope による回折格子像の転送が凹面鏡と凸面鏡の共中心に対して対称に行われる事が根拠となっている。ここでは、簡単に近軸での Newton の結像式で像の位置を導出しておく。収差については参考文献 [60] を参照の事。

図 4.16 の球面鏡を等価的なレンズに置き換えると図 C-1 の様になる。レンズ 1 とレンズ 3 は像空間

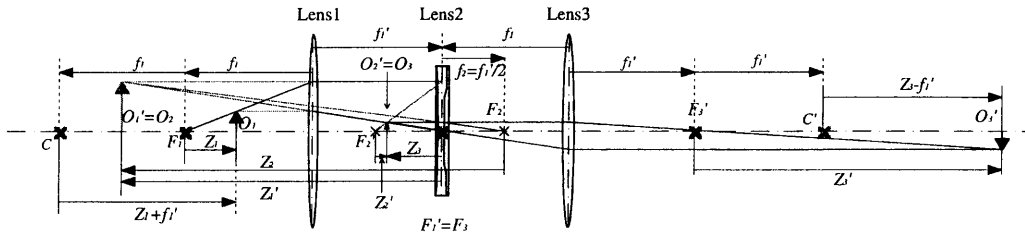


図 C-1: Offner の telescope と等価的なレンズ配置。

焦点距離  $f_1' = R/2 > 0$  (物空間焦点距離  $f_1 = -R/2 < 0$ ) の凸レンズ、レンズ 2 は像空間焦点距離  $f_2' = -f_1'/2 = -R/4 < 0$  (物空間焦点距離  $f_2 = R/4 > 0$ ) の凹レンズで、各レンズ間の間隔はすべて  $f_1'$  になる。物点 (回折格子) をレンズ 1 の物空間焦点位置  $F_1$  を原点として  $Z_1$  の位置 (右向き正)  $O_1$  に置くと、このレンズ 1 によって転送される像点  $O_1'$  の位置  $Z_1'$  (原点は像空間の焦点位置  $F_1'$ ) は Newton の結像式

$$Z_1 Z_1' = f_1 f_1' \quad (\text{C-1})$$

によって与えられる。以下同様にレンズ 2 でこの像を転送した位置、さらにレンズ 3 で転送した位置を、各空間での焦点位置を基準にして  $Z_i, Z_i'$ ;  $i = 2, 3$  ( $i$  はレンズの番号に対応。' が付いているものは像空間、そうでないものは物空間の位置を示す) と定義すれば (図 C-1 参照)、各々の像転送に対して

$$Z_2 Z_2' = f_2 f_2' \quad (\text{C-2})$$

$$Z_3 Z_3' = f_3 f_3' \quad (\text{C-3})$$

が成立する。

レンズ 2 がレンズ 1 の像焦点にあることから

$$Z_2 = Z_1' + f_1/2 = Z_1' - f_1'/2 \quad (\text{C-4})$$

であり、さらにレンズ 2 がレンズ 3 の物焦点にあることから

$$Z_2' = Z_3 + f_1'/2 \quad (\text{C-5})$$

であるので、これらの式を用いて  $Z_1', Z_2, Z_2', Z_3$  を消去し、最終的な像の位置  $Z_3'$  と、もとの物点の位置  $Z_1$  との関係を求めると、

$$Z_3' - f_1' = Z_1 + f_1' \quad (\text{C-6})$$

という形になる。本来の反射光学系における共中心  $C$  は  $F_1$  から  $f_1 = -f'_1$  の位置、および  $F'_3$  から  $f'_1$  の位置であるから、この共中心を基準にした物点と像点の位置  $Z$ 、 $Z'$  はそれぞれ  $Z = Z_1 + f_1$ 、 $Z' = Z'_3 - f'_1$  となり、これを式 (C-6) に代入すれば

$$Z = Z' \quad (\text{C-7})$$

という関係式が得られる。これはすなわち、共中心  $C$  の前（凹面鏡に近い側）にある物点の像が、 $C$  を中心として対称の位置に像を結ぶ事を意味している。



## 付録 D 媒質のセルマイヤー式

本研究で用いた主な媒質の屈折率分散を表すセルマイヤー式を以下に示す。 $\lambda$ は波長を表し、単位を $[\mu\text{m}]$ としてこれらの式に数値を代入すれば、その波長での屈折率 $n$ が得られる。なお、複屈折をもつ結晶に対しては1軸性の場合には添字 $o$ 及び $e$ によって常光と異常光に対する係数を区別し、2軸性の場合には各主軸方向に対する係数を添字 $x$ 、 $y$ 、 $z$ 、で表している。

また、式の形は以下の2通りがあるので、それぞれ Type A、Type B、として適用すべき式をリストの最初に示した。

Type A

$$n^2 = 1 + \frac{A_1\lambda^2}{(\lambda^2 - B_1)} + \frac{A_2\lambda^2}{(\lambda^2 - B_2)} + \frac{A_3\lambda^2}{(\lambda^2 - B_3)} \quad (\text{D-1})$$

Type B (KD\*P)

$$n^2 = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C^2} + \frac{D}{\lambda^2 - E^2} \quad (\text{D-2})$$

ガラス材料

石英ガラスの係数		
式の形:Type A		
$A_1 = 6.96166300 \times 10^{-1}$	$A_2 = 4.07942600 \times 10^{-1}$	$A_3 = 8.97479400 \times 10^{-1}$
$B_1 = 4.67914826 \times 10^{-3}[\mu\text{m}^2]$	$B_2 = 1.35120631 \times 10^{-2}[\mu\text{m}^2]$	$B_3 = 9.79340025 \times 10[\mu\text{m}^2]$
BK7 ガラスの係数		
式の形:Type A		
$A_1 = 1.03961212 \times 10^0$	$A_2 = 2.31792344 \times 10^{-1}$	$A_3 = 1.01046945 \times 10^0$
$B_1 = 6.00069867 \times 10^{-3}[\mu\text{m}^2]$	$B_2 = 2.00179144 \times 10^{-2}[\mu\text{m}^2]$	$B_3 = 1.03560653 \times 10^2[\mu\text{m}^2]$
LaSF014 ガラスの係数		
式の形:Type A		
$A_1 = 1.85200910 \times 10^0$	$A_2 = -7.65636415 \times 10^{-1}$	$A_3 = 1.00454635 \times 10^0$
$B_1 = 1.87383050 \times 10^{-2}[\mu\text{m}^2]$	$B_2 = -1.91724908 \times 10^{-1}[\mu\text{m}^2]$	$B_3 = -1.29135566 \times 10^{-1}[\mu\text{m}^2]$
LaSF6 ガラスの係数		
式の形:Type A		
$A_1 = 1.058703627 \times 10^0$	$A_2 = 1.059041989 \times 10^0$	$A_3 = -9.209722033 \times 10^1$
$B_1 = 4.182117832 \times 10^{-2}[\mu\text{m}^2]$	$B_2 = -4.550498338 \times 10^{-4}[\mu\text{m}^2]$	$B_3 = -8.673179425 \times 10^3[\mu\text{m}^2]$

結晶

CaF<sub>2</sub> の係数

式の形:Type A

$$\begin{aligned} A_1 &= 5.6758880 \times 10^{-1} & A_2 &= 4.7109140 \times 10^{-1} & A_3 &= 3.8484723 \times 10^0 \\ B_1 &= 2.5264300 \times 10^{-3} [\mu\text{m}^2] & B_2 &= 1.0078330 \times 10^{-2} [\mu\text{m}^2] & B_3 &= 1.2005560 \times 10^3 [\mu\text{m}^2] \end{aligned}$$

Sapphire の係数

式の形:Type A

O-axis

$$\begin{aligned} A_1^o &= 1.43134930 \times 10^0 & A_2^o &= 6.50547130 \times 10^{-1} & A_3^o &= 5.34140210 \times 10^0 \\ B_1^o &= 5.27992610 \times 10^{-3} [\mu\text{m}^2] & B_2^o &= 1.42382647 \times 10^{-2} [\mu\text{m}^2] & B_3^o &= 3.25017834 \times 10^2 [\mu\text{m}^2] \end{aligned}$$

E-axis

$$\begin{aligned} A_1^e &= 1.50397590 \times 10^0 & A_2^e &= 5.50691410 \times 10^{-1} & A_3^e &= 6.59273790 \times 10^0 \\ B_1^e &= 5.48041129 \times 10^{-3} [\mu\text{m}^2] & B_2^e &= 1.47994281 \times 10^{-2} [\mu\text{m}^2] & B_3^e &= 4.02895140 \times 10^2 [\mu\text{m}^2] \end{aligned}$$

非線形結晶

KD\*P の係数

式の形:Type B

O-axis

$$\begin{aligned} A^o &= 2.24090 \times 10^0 & B^o &= 2.24700 \times 10^0 & C^o &= 1.12659 \times 10^1 [\mu\text{m}] \\ D^o &= 9.70000 \times 10^{-3} [\mu\text{m}^2] & E^o &= 1.25000 \times 10^{-1} [\mu\text{m}] \end{aligned}$$

E-axis

$$\begin{aligned} A^e &= 2.12600 \times 10^0 & B^e &= 7.84400 \times 10^{-1} & C^e &= 1.11087 \times 10^1 [\mu\text{m}] \\ D^e &= 8.60000 \times 10^{-3} [\mu\text{m}^2] & E^e &= 1.09500 \times 10^{-1} [\mu\text{m}] \end{aligned}$$

本文中の分散の値は以上の式をもとに求められている。

## 付録 E プリズム対による分散補償

共振器内の分散補償の手段としてプリズム対を用いる手法がよく知られている。回折格子による分散補償と比較すると、補償できる正の分散量はあまり多くとれないが、Brewster 入射のプリズムを使用する事によって共振器内の損失を最低限に抑えられるため、色素を媒質としたモード同期発振器の時代から超短パルス発生に不可欠の光学系であった。本研究に於ては第 4 章にて説明される CPA システム全体の分散補償に重要な役割を果たすので、その分散量を参考文献 [68] に従って示しておく。

プリズム対の配置を図 E-1 に示す。目的とする中心波長  $\lambda_0$  に対して Brewster 入射/出射となるよ

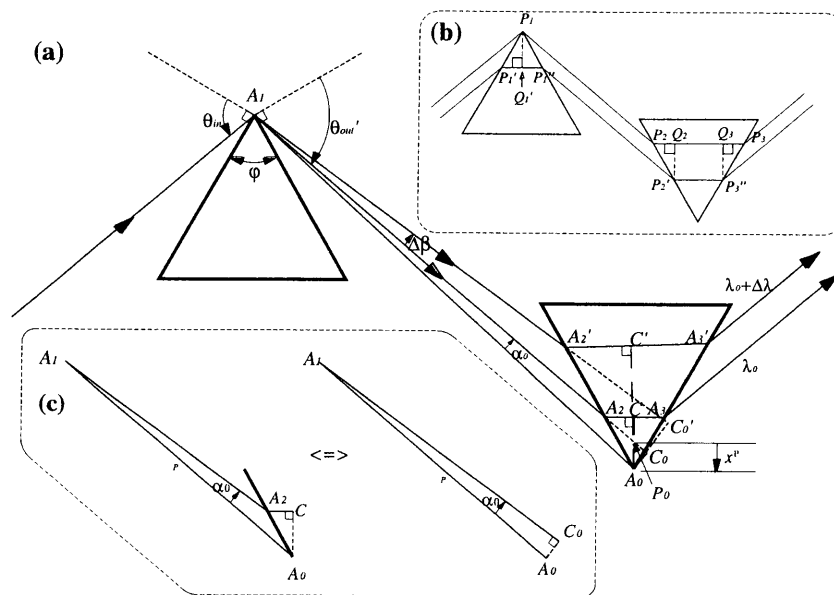


図 E-1: (a): プリズム対の配置。2つのプリズムは目的の波長に対して Brewster 入射/出射の頂角とする。詳細は本文参照。(b): 中心波長に対する等価的なプリズム配置。図中 2 本の経路はいずれも同じ光路長であるので 1 番目のプリズムの頂点を光線が通る配置のみを考えても一般性を失わない。(c): 等価的な光線経路。Fermat の原理に従い  $A_0$  に等しい位相フロントは  $A_1 \rightarrow A_2 \rightarrow C$  の経路における  $C$  であり、これと等価な位相フロントの位置は  $C_0$  である。

う頂角をカットしたプリズムを相対する辺が平行となるように対抗させて配置する。Brewster 入射させた中心波長の光線が丁度 1 つ目のプリズムの頂点を通り、2 番目のプリズム中を図 E-1(a) の様に、 $A_2 \rightarrow C \rightarrow A_3$  の経路で通るものとする。図 E-1(b) に示す通り、 $\overline{P_1'P_1''} = \overline{P_2'Q_2} + \overline{P_3'Q_3}$  なので光線が 1 番目のプリズムの頂点を通るとしても一般性は失わない。

頂点  $A_1$  を基準として、丁度この頂点間を経路とするような波長  $\lambda$  の光線の位相フロントが  $A_0$  に到達する時、Fermat の原理により、これに等しい中心波長の位相フロントは頂点  $A_0$  から  $A_2A_3$  に垂線を下ろした位置  $C$  にある。同様に中心波長から  $\Delta\lambda$  だけずれた波長に対する位相フロントは頂点  $A_0$  から  $A_2'A_3'$  に垂線を下ろした位置  $C'$  にある。 $A_0$  は頂点であり、かつ出射ビームは波長に依らず平行に進むので（出射ビームの延長線上に  $A_0$  から下ろす垂線は波長に依らず全て平行になる） $C$  および  $C'$  以降の経路に対する位相フロントの位置は変化せず、分散には寄与しない。さらに 2 番目のプリズムを取り除いた自由光路に対して同様の考察を行うと、図 E-1(c) に示す様に、経路の延長線上に垂線を下ろした位置  $C_0$  が位相フロントの一致する等価な経路である事が分る。

従って、頂点間距離  $\overline{A_1A_0}$  を  $\ell^P$ 、 $A_1A_0$  に対する中心波長経路の角度を  $\alpha_0$  とすれば、経路の長さ  $s(\lambda_0)$  は

$$s(\lambda_0) = \ell^P \cos \alpha_0 \quad (\text{E-1})$$

で与えられる。中心波長から  $\Delta\lambda$  だけ変化したビームの経路が中心波長の経路に対して角度  $\Delta\beta$  変化したとすると、このビームに対する経路の長さは、上記の考察をくり返す事によって、

$$s(\lambda_0 + \Delta\lambda) = \ell^P \cos(\alpha_0 + \Delta\beta) \quad (\text{E-2})$$

となるから、両者の経路の差  $\Delta s$  は

$$\begin{aligned} \Delta s &= s(\lambda_0 + \Delta\lambda) - s(\lambda_0) \\ &= -\ell^P \sin \alpha_0 \cdot \Delta\beta - \frac{\ell^P}{2} \cos \alpha_0 \cdot (\Delta\beta)^2 + \frac{\ell^P}{6} \sin \alpha_0 \cdot (\Delta\beta)^3 + O(\Delta\beta^4) \\ &= -\ell^P \sin \alpha_0 \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \cdot \Delta\lambda - \frac{\ell^P}{2} \left\{ \cos \alpha_0 \left( \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 + \sin \alpha_0 \left. \frac{d^2\beta}{d\lambda^2} \right|_0 \right\} \cdot (\Delta\lambda)^2 \\ &\quad - \frac{\ell^P}{6} \left\{ -\sin \alpha_0 \left( \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 + 3 \cos \alpha_0 \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \left. \frac{d^2\beta}{d\lambda^2} \right|_0 + \sin \alpha_0 \left. \frac{d^3\beta}{d\lambda^3} \right|_0 \right\} \cdot (\Delta\lambda)^3 + O(\Delta\lambda^4) \quad (\text{E-3}) \end{aligned}$$

となる。ここで  $d\beta/d\lambda|_0$  等は微分操作を行ってから  $\lambda = \lambda_0$  とする事を意味する。また  $\Delta\beta(\lambda_0) = 0$  を用いている。 $s$  の Taylor 展開から

$$\Delta s = \left. \frac{ds}{d\lambda} \right|_0 \cdot \Delta\lambda + \frac{1}{2!} \left. \frac{d^2s}{d\lambda^2} \right|_0 \cdot (\Delta\lambda)^2 + \frac{1}{3!} \left. \frac{d^3s}{d\lambda^3} \right|_0 \cdot (\Delta\lambda)^3 + O(\Delta\lambda^4) \quad (\text{E-4})$$

であるから、式 E-3 と係数を比較すれば

$$\left. \frac{ds}{d\lambda} \right|_0 = -\ell^P \sin \alpha_0 \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \quad (\text{E-5})$$

$$\left. \frac{d^2s}{d\lambda^2} \right|_0 = -\ell^P \left\{ \cos \alpha_0 \left( \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 + \sin \alpha_0 \left. \frac{d^2\beta}{d\lambda^2} \right|_0 \right\} \quad (\text{E-6})$$

$$\left. \frac{d^3s}{d\lambda^3} \right|_0 = -\ell^P \left\{ -\sin \alpha_0 \left( \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 + 3 \cos \alpha_0 \left. \frac{d\beta}{d\lambda} \right|_0 \left. \frac{d^2\beta}{d\lambda^2} \right|_0 + \sin \alpha_0 \left. \frac{d^3\beta}{d\lambda^3} \right|_0 \right\} \quad (\text{E-7})$$

として、径路長の波長依存性が求められる。後は上式右辺に含まれるプリズムからの出射角度の波長依存性が分ればよい。

図 E-2 の様に、プリズムへの入射角を  $\theta_{\text{in}}$ 、屈折角を  $\theta_{\text{out}}$ 、出射面への入射角を  $\theta'_{\text{in}}$ 、屈折角を  $\theta'_{\text{out}}$  とすれば、Snell の法則により

$$\frac{\sin \theta_{\text{in}}}{\sin \theta_{\text{out}}} = \frac{\sin \theta'_{\text{out}}}{\sin \theta'_{\text{in}}} = n \quad (\text{E-8})$$

、そして頂角  $\varphi$  との幾何学的関係

$$\theta_{\text{out}} + \theta'_{\text{in}} = \varphi \quad (\text{E-9})$$

、さらに角度の正方向の定義から

$$\Delta\beta = -\Delta\theta'_{\text{out}} \quad (\text{E-10})$$

であるから、出射角度の波長依存性はこれらを用いる事によって求める事ができる。ここで  $n$  は任意の波長  $\lambda$  に於けるプリズムの屈折率を表す。 $\theta_{\text{in}}$  は固定されているので、式 E-8 を通して  $\theta_{\text{out}}$ 、 $\theta'_{\text{in}}$ 、 $\theta'_{\text{out}}$  はすべて波長  $\lambda$  に依存している。

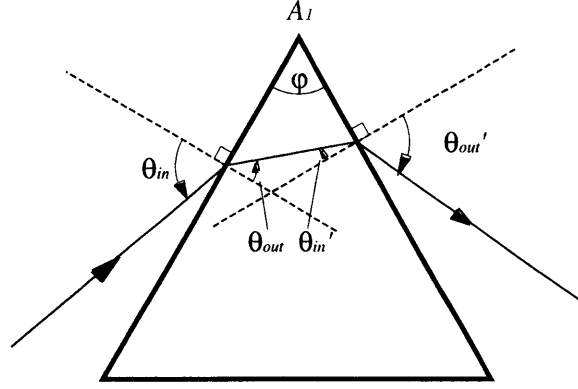


図 E-2: プリズムによる光の屈折。角度  $\theta_{in}$  で入射した光はプリズム中で図のような屈折角をもって進行する。

まず  $\theta'_{out}$  の  $n$  依存性を導出する。式 E-8 第 2 式の両辺に  $\sin \theta'_{in}$  を掛けた後に  $n$  で微分すると

$$\cos \theta'_{out} \frac{d\theta'_{out}}{dn} = \sin \theta'_{in} + n \cos \theta'_{in} \frac{d\theta'_{in}}{dn} \quad (E-11)$$

である。式 E-9 を  $n$  で微分すると  $d\theta'_{in}/dn = -d\theta_{out}/dn$  となるから、この式を式 E-11 に代入し、さらに式 E-8 第 1 式の両辺に  $\theta_{out}$  を掛けて  $n$  によって微分する事によって得られる

$$\frac{d\theta_{out}}{dn} = -\frac{1}{n} \tan \theta_{out} \quad (E-12)$$

を式 E-11 に代入してやれば ( $d\theta_{in}/dn = 0$  を用いている)、

$$\frac{d\theta'_{out}}{dn} = \frac{1}{\cos \theta'_{out}} (\sin \theta'_{in} + \cos \theta'_{in} \tan \theta_{out}) \quad (E-13)$$

という形で  $d\theta'_{out}/dn$  が求められる。式 E-13 を  $n$  で微分し  $d\theta'_{in}/dn$  について上記と同様な代入を行えば、

$$\frac{d^2\theta'_{out}}{dn^2} = \tan \theta'_{out} \left( \frac{d\theta'_{out}}{dn} \right)^2 - \frac{1}{n} \tan^2 \theta_{out} \frac{d\theta'_{out}}{dn} \quad (E-14)$$

として 2 階の微分が得られる。

さらに 3 階の微分についても同様に、式 E-14 を  $n$  で微分して式 E-12 を代入する事によって、

$$\begin{aligned} \frac{d^3\theta'_{out}}{dn^3} = & \frac{1}{\cos^2\theta'_{out}} \left( \frac{d\theta'_{out}}{dn} \right)^3 + 2 \tan \theta'_{out} \left( \frac{d\theta'_{out}}{dn} \right) \left( \frac{d^2\theta'_{out}}{dn^2} \right) \\ & - \frac{1}{n} \tan^2 \theta_{out} \left( \frac{d^2\theta'_{out}}{dn^2} \right) + \frac{1}{n^2} \tan^2 \theta_{out} \left( \frac{2}{\cos^2\theta_{out}} + 1 \right) \left( \frac{d\theta'_{out}}{dn} \right) \end{aligned} \quad (E-15)$$

が得られる。式 E-13、式 E-14、式 E-15 はいずれも任意の頂角のプリズム、及び任意の波長  $\lambda$  に於ける屈折率  $n$  で成立するが、特にここで目的の中心波長  $\lambda_0$  に於ける屈折率  $n_0 \equiv n(\lambda_0)$  に対する Brewster プリズムに Brewster 入射したビームについて考える。この時のプリズムへの入射角を  $\theta_{in} \equiv \theta_{inB}$  とすれば、波長  $\lambda_0$  のビームに対する各屈折角は、 $\theta_{out} = \theta_{outB}(\lambda_0) = \pi/2 - \theta_{inB} = \theta'_{inB}(\lambda_0)$ 、 $\theta'_{outB}(\lambda_0) = \theta_{inB}$ 、であるから、式 E-8 の Snell の法則と合わせて、各屈折角の正接、正弦、余弦を  $n_0$  で表す事ができる。すなわち、

$$\tan \theta_{0outB} = \frac{1}{\tan \theta'_{0outB}} = \frac{1}{n_0} \quad (E-16)$$

$$\sin \theta_{0outB} = \cos \theta'_{0outB} = \frac{1}{\sqrt{1+n_0^2}} \quad (E-17)$$

$$\cos \theta_{0outB} = \sin \theta'_{0outB} = \frac{n_0}{\sqrt{1+n_0^2}} \quad (E-18)$$

である。ここで添字<sub>0</sub>は $\lambda_0$ での値である事を示している。これらを式 E-13、式 E-14、式 E-15 に代入すれば Brewster 入射/頂角に於ける中心波長周りの出射角変化が $n_0$ によって表される。

$$\left. \frac{d\theta'_{\text{outB}}}{dn} \right|_0 = 2 \quad (\text{E-19})$$

$$\left. \frac{d^2\theta'_{\text{outB}}}{dn^2} \right|_0 = 4n_0 - \frac{2}{n_0^3} \quad (\text{E-20})$$

$$\left. \frac{d^3\theta'_{\text{outB}}}{dn^3} \right|_0 = 8 + 24n_0^2 - \frac{12}{n_0^2} + \frac{6}{n_0^4} + \frac{6}{n_0^6} \quad (\text{E-21})$$

ここで $|_0$ は微分操作後に $n = n_0$  ( $\lambda = \lambda_0$ ) とする事を表す。

一方、式 E-10 を式 E-7 に代入し、さらに

$$\frac{d}{d\lambda} = \frac{dn}{d\lambda} \frac{d}{dn} \quad (\text{E-22})$$

$$\frac{d^2}{d\lambda^2} = \frac{d^2n}{d\lambda^2} \frac{d}{dn} + \left( \frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \frac{d^2}{dn^2} \quad (\text{E-23})$$

$$\frac{d^3}{d\lambda^3} = \frac{d^3n}{d\lambda^3} \frac{d}{dn} + 3 \left( \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right) \left( \frac{dn}{d\lambda} \right) \frac{d^2}{dn^2} + \left( \frac{dn}{d\lambda} \right)^3 \frac{d^3}{dn^3} \quad (\text{E-24})$$

によって $\lambda$ による微分を $n$ による微分に置き換えれば

$$\left. \frac{ds}{d\lambda} \right|_0 = \ell^P \sin \alpha_0 \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \quad (\text{E-25})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d^2s}{d\lambda^2} \right|_0 &= \ell^P \sin \alpha_0 \left\{ \left. \frac{d^2\theta'_{\text{out}}}{dn^2} \right|_0 \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 + \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_0 \right\} \\ &\quad - \ell^P \cos \alpha_0 \left( \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \right)^2 \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \end{aligned} \quad (\text{E-26})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d^3s}{d\lambda^3} \right|_0 &= \ell^P \sin \alpha_0 \left[ \left\{ \left. \frac{d^3\theta'_{\text{out}}}{dn^3} \right|_0 - \left( \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \right)^3 \right\} \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 \right. \\ &\quad \left. + 3 \left. \frac{d^2\theta'_{\text{out}}}{dn^2} \right|_0 \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 + \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \left. \frac{d^3n}{d\lambda^3} \right|_0 \right] \\ &\quad - 3\ell^P \cos \alpha_0 \left[ \left. \frac{d^2\theta'_{\text{out}}}{dn^2} \right|_0 \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 + \left( \left. \frac{d\theta'_{\text{out}}}{dn} \right|_0 \right)^2 \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right] \end{aligned} \quad (\text{E-27})$$

となるので、あとは式 E-19、式 E-20、式 E-21 をこれらに代入してやれば、

$$\left. \frac{ds}{d\lambda} \right|_0 = 2\ell^P \sin \alpha_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \quad (\text{E-28})$$

$$\left. \frac{d^2s}{d\lambda^2} \right|_0 = 2\ell^P \sin \alpha_0 \left\{ \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_0 + \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \right\} - 4\ell^P \cos \alpha_0 \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \quad (\text{E-29})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d^3s}{d\lambda^3} \right|_0 &= 2\ell^P \sin \alpha_0 \left\{ 3 \left( 4n_0^2 - \frac{2}{n_0^2} + \frac{1}{n_0^4} + \frac{1}{n_0^6} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 \right. \\ &\quad \left. + 3 \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 + \left. \frac{d^3n}{d\lambda^3} \right|_0 \right\} \\ &\quad - 12\ell^P \cos \alpha_0 \left\{ \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 + \left. \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right\} \end{aligned} \quad (\text{E-30})$$

という形で径路の波長微分係数が求められる。回折格子による Compressor と同様にプリズム対の場合も空間的なビームの色分散を取り除くためビームを往復させる (あるいは同じプリズム対をもうもう一

組用いる) のが一般的である。往復の場合は径路の長さが2倍になるので  $s_r = 2s$  として、

$$\left. \frac{ds_r}{d\lambda} \right|_0 = 4\ell^P \sin \alpha_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \quad (\text{E-31})$$

$$\left. \frac{d^2 s_r}{d\lambda^2} \right|_0 = 4\ell^P \sin \alpha_0 \left\{ \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 + \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \right\} - 8\ell^P \cos \alpha_0 \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \quad (\text{E-32})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d^3 s_r}{d\lambda^3} \right|_0 = 4\ell^P \sin \alpha_0 \left\{ 3 \left( 4n_0^2 - \frac{2}{n_0^2} + \frac{1}{n_0^4} + \frac{1}{n_0^6} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 \right. \\ \left. + 3 \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 + \left. \frac{d^3 n}{d\lambda^3} \right|_0 \right\} \\ - 24\ell^P \cos \alpha_0 \left\{ \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 + \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right\} \quad (\text{E-33}) \end{aligned}$$

が径路長の変化になる。

あとはこれらを用いて GDD 及び TOD に換算を行えば良いのであるが、式に含まれる角度  $\alpha_0$  は実験的に求めにくい変数であるので、これを「プリズムの挿入量」で置き換えておこう。図 E-1 に示す様に中心波長のビーム経路を 2 番目の Brewster プリズム中でも延長し、プリズムの頂点から実際の中心波長の経路 ( $A_2 \rightarrow A_3$ ) に下ろした垂線との交点を  $P_0$  とする。頂点からこの  $P_0$  までを「プリズムの挿入量」 $x^P$  と定義する ( $x^P \equiv \overline{A_0 P_0}$ )。また 1 番目のプリズムの頂点から  $P_0$  までの距離を「プリズムの間隔」 $\ell_0^P$  と定義する ( $\ell_0^P \equiv \overline{A_1 P_0}$ )。Brewster 条件を入射ビームとプリズムの頂角がいずれも満たしている時

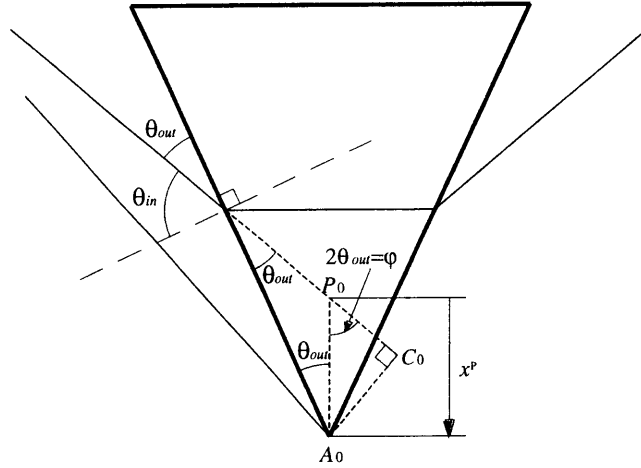


図 E-3: プリズムの挿入量

( $\theta_{in} + \theta_{out} = \pi/2$ 、 $\varphi = 2\theta_{out}$ ) 図 E-3 に示す通り  $\angle A_0 P_0 C_0 = 2\theta_{out} = \varphi$  であるから  $\overline{P_0 C_0} = x^P \cos \varphi$ 、 $\overline{A_0 C_0} = x^P \sin \varphi$  となり、

$$\ell^P \cos \alpha_0 = \ell_0^P + x^P \cos \varphi \quad (\text{E-34})$$

$$\ell^P \sin \alpha_0 = x^P \sin \varphi \quad (\text{E-35})$$

が成立する。Brewster 条件から

$$\cos \varphi = 2 \cos^2 \theta_{out} - 1 = \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 1} \quad (\text{E-36})$$

$$\sin \varphi = 2 \cos \theta_{out} \sin \theta_{out} = \frac{2n_0}{n_0^2 + 1} \quad (\text{E-37})$$

であるから、これらを式 E-34、式 E-35 に代入し、さらにこれを式 E-31、式 E-32、式 E-33 に代入すれば、

$$\left. \frac{ds_r}{d\lambda} \right|_0 = \frac{8n_0}{n_0^2 + 1} \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 x^P \quad (\text{E-38})$$

$$\left. \frac{d^2 s_r}{d\lambda^2} \right|_0 = -8 \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \ell_0^P + \frac{8}{n_0^2 + 1} \left\{ n_0 \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 + \left( n_0^2 + 1 - \frac{1}{n_0^2} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \right\} x^P \quad (\text{E-39})$$

$$\begin{aligned} \left. \frac{d^3 s_r}{d\lambda^3} \right|_0 &= -24 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \left\{ \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 + \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \right\} \ell_0^P \\ &\quad + \frac{8}{n_0^2 + 1} \left\{ n_0 \left. \frac{d^3 n}{d\lambda^3} \right|_0 + 3 \left( n_0^2 + 1 - \frac{1}{n_0^2} \right) \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right. \\ &\quad \left. + 3 \left( 2n_0^3 + 2n_0 - \frac{1}{n_0} + \frac{1}{n_0^5} \right) \left( \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 \right\} x^P \end{aligned} \quad (\text{E-40})$$

という形で各微分量がプリズム間隔と挿入量で表される。

$s_r$  は自由空間での等価的な経路長なので位相  $\Phi_P$  は

$$\Phi_P = \frac{\omega}{c} s_r = \frac{2\pi}{\lambda} s_r \quad (\text{E-41})$$

で与えられる。これを順次角振動数  $\omega$  で微分した後  $\lambda = \lambda_0$  ( $\omega = \omega_0$ ) とすれば、

$$\left. \frac{d\Phi_P}{d\omega} \right|_0 = \frac{1}{c} \left( s_r - \lambda_0 \left. \frac{ds_r}{d\lambda} \right|_0 \right) \quad (\text{E-42})$$

$$\left. \frac{d^2 \Phi_P}{d\omega^2} \right|_0 = \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \left. \frac{d^2 s_r}{d\lambda^2} \right|_0 \quad (\text{E-43})$$

$$\left. \frac{d^3 \Phi_P}{d\omega^3} \right|_0 = -\frac{\lambda_0^4}{4\pi^2 c^3} \left( 3 \left. \frac{d^2 s_r}{d\lambda^2} \right|_0 + \lambda_0 \left. \frac{d^3 s_r}{d\lambda^3} \right|_0 \right) \quad (\text{E-44})$$

で分散が得られる。式 E-43 及び式 E-44 に式 E-38、式 E-39、式 E-40 を代入すれば、プリズム対を往復した時の GDD、TOD が得られる。即ち、

$$\left. \frac{d^2 \Phi_P}{d\omega^2} \right|_0 = A_{11} \ell_0^P + A_{12} x^P \quad (\text{E-45})$$

$$\left. \frac{d^3 \Phi_P}{d\omega^3} \right|_0 = A_{21} \ell_0^P + A_{22} x^P \quad (\text{E-46})$$

ここで

$$A_{11} \equiv -\frac{4\lambda_0}{\pi c^2} \left( \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \quad (\text{E-47})$$

$$A_{12} \equiv \frac{4\lambda_0}{\pi c^2} \cdot \frac{1}{n_0^2 + 1} \left\{ n_0 \cdot \lambda_0^2 \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 + \left( n_0^2 + 1 - \frac{1}{n_0^2} \right) \left( \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \right\} \quad (\text{E-48})$$

$$A_{21} \equiv \frac{6\lambda_0^2}{\pi^2 c^3} \cdot \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \left\{ \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 + \lambda_0^2 \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 + \left( 2n_0 - \frac{1}{n_0^3} \right) \left( \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 \right\} \quad (\text{E-49})$$

$$\begin{aligned} A_{22} \equiv & -\frac{2\lambda_0^2}{\pi^2 c^3} \cdot \frac{1}{n_0^2 + 1} \left\{ n_0 \cdot \lambda_0^3 \left. \frac{d^3 n}{d\lambda^3} \right|_0 + 3n_0 \cdot \lambda_0^2 \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 \right. \\ & + 3 \left( n_0^2 + 1 - \frac{1}{n_0^2} \right) \left( \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^2 + 3 \left( 2n_0^3 + 2n_0 - \frac{1}{n_0} + \frac{1}{n_0^5} \right) \left( \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right)^3 \\ & \left. + 3 \left( n_0^2 + 1 - \frac{1}{n_0^2} \right) \cdot \lambda_0^2 \left. \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right|_0 \cdot \lambda_0 \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_0 \right\} \end{aligned} \quad (\text{E-50})$$

と定義している。



代表的なガラス材料について係数  $A_{11}$ ,  $A_{12}$ ,  $A_{21}$ ,  $A_{22}$  の値を表 E-1~表 E-9 に示す。これらを見ると、材料の種類及び波長によって各係数が大きく異なっている事が分る。特に  $1.2\sim 1.5\mu\text{m}$  の赤外領域ではプリズムの突っ込み  $x^P$  に対する係数  $A_{12}$ ,  $A_{22}$  は、材料によっては符号が反転する事に注意する必要がある。またビーム径は有限でありかつ2番目のプリズムでは空間的な色分散が生ずるので、 $x^P$  はこれらの値によって制限され、ある正の値以上としないとビームのけられが生ずる事を考慮せねばならない。

表 E-1: CaF<sub>2</sub> の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-10.4622	7.89217	22.0523	169.549
0.8	-7.93495	105.376	-13.8760	62.5614
0.4	-51.7270	257.253	-73.5261	79.1898
0.2483	-299.868	569.276	-336.744	173.953

表 E-2: 石英の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-66.3870	-77.4976	226.413	479.290
0.8	-21.6694	136.934	-24.3438	104.811
0.4	-107.983	372.196	-156.153	126.059
0.2483	-675.809	907.730	-844.434	338.820

表 E-3: BK7 の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-73.0069	-62.6301	231.820	489.992
1.2	-36.7670	43.9302	42.6138	239.690
0.8	-28.5561	166.886	-37.4390	121.472
0.4	-160.774	461.028	-244.046	170.975

表 E-4: Sapphire 常光の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-141.226	-73.2027	431.737	566.063
1.2	-70.6749	53.1514	83.7079	292.153
0.8	-52.0052	204.214	-65.2008	150.791
0.4	-268.168	548.780	-407.859	198.990

表 E-5: Sapphire 異常光の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-139.635	-74.4976	429.208	559.171
1.2	-69.5399	50.4711	84.5420	288.983
0.8	-50.4053	199.656	-61.9967	148.325
0.4	-256.832	537.285	-389.097	193.973

表 E-6: LaSF014 の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-26.0067	274.986	-108.097	127.018
1.2	-43.4854	307.084	-137.476	95.297
0.8	-100.950	375.159	-209.735	124.086
0.6	-195.433	510.931	-373.608	266.666

表 E-7: LaFN8 の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-40.6532	295.935	-128.779	5.06288
1.2	-55.9569	296.375	-131.301	26.4855
0.8	-103.638	380.9277	-210.567	214.285
0.6	-217.396	592.592	-466.176	349.496

表 E-8: SF10 の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-117.857	167.302	59.2056	594.626
1.2	-103.214	316.578	-149.232	419.507
0.8	-204.020	615.905	-517.061	432.274
0.6	-510.838	996.615	-1258.85	666.982

表 E-9: SF6 の係数

波長 [ $\mu\text{m}$ ]	$A_{11}$ [ $\text{fs}^2/\text{cm}$ ]	$A_{12}$ [ $\text{fs}^2/\text{mm}$ ]	$A_{21}$ [ $\text{fs}^3/\text{cm}$ ]	$A_{22}$ [ $\text{fs}^3/\text{mm}$ ]
1.5	-132.704	207.077	19.3330	582.081
1.2	-122.734	359.834	-204.524	451.508
0.8	-258.586	696.730	-684.080	506.396
0.6	-668.619	1140.44	-1710.78	788.16

# 付録 F 超短パルスの波長変換の基礎

## F-1 基本方程式

### F-1-1 基本方程式の導出

非線形結晶中で3波混合による波長変換が行えるのは、非線形結晶の空間対称性の破れから2次の非線形光学定数  $d_{ijk}$  が存在することに起源がある。非線形結晶中に電場  $\mathbf{E}$  が存在する時、これによって誘起される2次の非線形分極  $\mathbf{P}_{NL}$  は

$$P_{NLi} = \sum_{j,k} d_{ijk} E_j E_k \quad (\text{F-1})$$

で与えられる。ここで  $d_{ijk}$  の分散（周波数依存性）は無視しており非線形分極の応答は電場に追従して瞬時に起きると仮定している。また、座標の方向は通常結晶の主軸方向（誘電率のテンソルが対角化される方向）にとる。結晶の電気伝導率を  $\sigma$  ( $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$ ,  $\mathbf{j}$  は電流密度) とすれば Maxwell 方程式から電場  $\mathbf{E}$  についての波動方程式

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{D}}{\partial t^2} + \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (\text{F-2})$$

が成立するが ( $\mu_0$  は真空の透磁率。透磁率の値は結晶中でも殆ど真空中と変わらない。)、電束密度  $\mathbf{D}$  は電場に比例する分極  $\mathbf{P}_L$  と非線形分極の和が寄与するから、非線形の方程式となる。電場  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  がある中心角振動数  $\omega_0$ 、波数  $k_0$  の振動部分と複素包絡線関数  $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$  の積によって

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{2} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c. c. \\ &= \mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (\text{F-3})$$

と表わされるものとする。一般に誘電率の分散を考慮すると非線形結晶の感受率  $\chi_L^1$  は角周波数依存性を持つので  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  による線形分極の正周波数成分  $\mathbf{P}_L^{(+)}(\mathbf{r}, t)$  は

$$\mathbf{P}_L^{(+)}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int d\omega \chi_L(\omega) \tilde{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}, \omega) e^{i\omega t} \quad (\text{F-4})$$

と書ける。ここで、 $\varepsilon_0$  は真空の誘電率、 $\tilde{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}, \omega)$  は電場  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  の正振動部分  $\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$  のフーリエ成分で

$$\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t) \equiv \int d\omega \tilde{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}, \omega) e^{i\omega t} \quad (\text{F-5})$$

で定義する。電束密度  $\mathbf{D}(\mathbf{r}, t)$  は

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) \quad (\text{F-6})$$

であり、これによって方程式は完結する。

ここで、中心各振動数が  $\omega_\alpha$ 、 $\omega_\beta$ 、 $\omega_\gamma$  の3つのパルス状の電場  $\mathbf{E}^\alpha$ 、 $\mathbf{E}^\beta$ 、 $\mathbf{E}^\gamma$  が上記方程式に従って相互作用する場合を考えよう。この時各々の電場は式 (F-3) と同様

$$\mathbf{E}^A(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{A}^A(\mathbf{r}, t) e^{i(\omega_A t - k_A z)} + c. c. \quad (A = \alpha, \beta, \gamma) \quad (\text{F-7})$$

<sup>1</sup>非線形結晶は通常複屈折をもつので  $\chi_L$  は一般には2階の対称テンソルである。今はこれを対角化する様に座標をとっているが、計算の都合上ここではスカラーとして取り扱い、式の最後で現象論的に複屈折の効果を取り入れる事にする。

という複素包絡線関数関数と振動項の積で書ける。さらにこのとき、エネルギー保存則

$$\omega_\gamma = \omega_\alpha + \omega_\beta \quad (\text{F-8})$$

が成立しているとする。また、各電場は  $z$  方向に進む平面波であると仮定し、空間依存性は  $z$  方向のみとする。すなわち  $\nabla \Rightarrow \partial/\partial z$ 、 $\mathbf{r} \Rightarrow z$  と置き換える。

最初に、式 (F-2) に  $\mathbf{E}^\gamma$  を代入した場合を考えよう。正周波数成分 ( $e^{i\omega_\gamma}$  を持つ成分)、負周波数成分 ( $e^{-i\omega_\gamma}$  を持つ成分) それぞれについてこの方程式が成立すると仮定すると、式 (F-8) が成立している場合を考えているので、 $\mathbf{E}^\gamma$  を式 (F-2) に代入したときに主に寄与する非線形分極の正周波数成分  $P_{\text{NL}}^{\gamma(+)}(z, t)$  は

$$\begin{aligned} P_{\text{NL}}^{\gamma(+)}(z, t) &= \sum_{j,k} d_{ijk} \left\{ E_j^{\alpha(+)}(z, t) E_k^{\beta(+)}(z, t) + E_j^{\beta(+)}(z, t) E_k^{\alpha(+)}(z, t) \right\} \\ &= \frac{1}{2} \sum_{j,k} d_{ijk} A_j^\alpha(z, t) A_k^\beta(z, t) \exp [i \{ \omega_\gamma t - (k_\alpha + k_\beta) z \}] \end{aligned} \quad (\text{F-9})$$

である (角振動数が  $\omega_\gamma$  にならない項はすべて無視している)。ただし、ここで式 (F-8)、式 (F-5) 及び非線形定数の対称性  $d_{ijk} = d_{ikj}$  を用いた。電場  $\mathbf{E}^\alpha$  と  $\mathbf{E}^\beta$  が偏光、位相とも全く同じ場合 (Type I の 2 倍波発生に相当) は電場の交換による symmetry factor が無いので

$$\begin{aligned} P_{\text{NL}}^{\gamma(+)}(z, t) &= \sum_{j,k} d_{ijk} E_j^{\alpha(+)}(z, t) E_k^{\alpha(+)}(z, t) \\ &= \frac{1}{4} \sum_{j,k} d_{ijk} A_j^\alpha(z, t) A_k^\alpha(z, t) \exp \{ i (\omega_\gamma t - 2k_\alpha z) \} \end{aligned} \quad (\text{F-10})$$

である。

一方、線形分極の正周波数成分については  $\mathbf{E}^{\gamma(+)}(z, \omega)$  が  $\omega$  方向に対して中心角振動数  $\omega_\gamma$  のまわりに分布していることから、 $\chi_L(\omega)$  を  $\omega_\gamma$  を中心に Taylor 展開して 1 次の項まで残す近似を行う。

$$\chi_L(\omega) \simeq \chi_L(\omega_\gamma) + \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma (\omega - \omega_\gamma) \quad (\text{F-11})$$

これを式 (F-4) に代入して、

$$\begin{aligned} P_L^{(+)}(z, t) &\simeq \varepsilon_0 \chi_L(\omega_\gamma) \mathbf{E}^{\gamma(+)}(z, t) + \varepsilon_0 \int d\omega \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma (\omega - \omega_\gamma) \tilde{\mathbf{E}}^{\gamma(+)}(z, \omega) e^{i\omega t} \\ &= \frac{1}{2} \varepsilon_0 \chi_L(\omega_\gamma) \mathbf{A}^\gamma(z, t) e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \left\{ -i \frac{\partial \mathbf{A}^\gamma(z, t)}{\partial t} \right\} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \end{aligned} \quad (\text{F-12})$$

という線形分極が得られる。正角振動数を持つ電束密度の線形部分  $D_L^{\gamma(+)}(z, t)$  は上記  $P_L^{(+)}(z, t)$  と  $\varepsilon_0 \mathbf{E}^{\gamma(+)}(z, t)$  の和であるから、

$$D_L^{\gamma(+)}(z, t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 \{ 1 + \chi_L(\omega_\gamma) \} \mathbf{A}^\gamma(z, t) e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \left\{ -i \frac{\partial \mathbf{A}^\gamma(z, t)}{\partial t} \right\} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \quad (\text{F-13})$$

となる。これによって波動方程式 (F-2) の右辺の  $D_L^{\gamma(+)}(z, t)$  についての 2 階微分の項は

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 D_L^{\gamma(+)}(z, t)}{\partial t^2} &= -\frac{1}{2} \varepsilon_0 \omega_\gamma^2 \{ 1 + \chi_L(\omega_\gamma) \} \mathbf{A}^\gamma(z, t) e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \\ &\quad + \frac{1}{2} \cdot 2i \varepsilon_0 \omega_\gamma \left\{ 1 + \chi_L(\omega_\gamma) + \frac{1}{2} \omega_\gamma \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \right\} \frac{\partial \mathbf{A}^\gamma(z, t)}{\partial t} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \\ &\quad + \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left\{ 1 + \chi_L(\omega_\gamma) + 2\omega_\gamma \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \right\} \frac{\partial^2 \mathbf{A}^\gamma(z, t)}{\partial t^2} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \\ &\quad - i \frac{1}{2} \varepsilon_0 \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \frac{\partial^3 \mathbf{A}^\gamma(z, t)}{\partial t^3} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \end{aligned} \quad (\text{F-14})$$

となる。電束密度の非線形部分（非線形分極）の正角振動成分  $P_{NL}^{\gamma(+)}(z, t)$  の  $t$  についての 2 階微分は  $A_i^\alpha \equiv A_i^\alpha(z, t)$  として、

$$\frac{\partial^2 P_{NL}^{\gamma(+)}(z, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{2} \sum_{j,k} d_{ijk} \left\{ \frac{\partial^2 A_j^\alpha}{\partial t^2} A_k^\beta + 2 \frac{\partial A_j^\alpha}{\partial t} \frac{\partial A_k^\beta}{\partial t} + A_j^\alpha \frac{\partial^2 A_k^\beta}{\partial t^2} + 2i\omega_\gamma \left( \frac{\partial A_j^\alpha}{\partial t} A_k^\beta + A_j^\alpha \frac{\partial A_k^\beta}{\partial t} \right) - \omega_\gamma^2 A_j^\alpha A_k^\beta \right\} e^{i\{\omega_\gamma t - (k_\alpha + k_\beta)z\}} \quad (F-15)$$

であり、式 (F-14) と式 (F-15) の和が  $\partial^2 D^{\gamma(+)} / \partial t^2$  である。式 (F-2) 右辺の電気電導に起因する項と左辺の空間座標  $z$  についての微分はそれぞれ

$$\mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}^{\gamma(+)}}{\partial t} = \frac{1}{2} \mu_0 \sigma \left\{ \frac{\partial \mathbf{A}^\gamma}{\partial t} + i\omega_\gamma \mathbf{A}^\gamma \right\} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \quad (F-16)$$

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}^{\gamma(+)}}{\partial z^2} = \frac{1}{2} \left\{ \frac{\partial^2 \mathbf{A}^\gamma}{\partial z^2} - 2ik_\gamma \frac{\partial \mathbf{A}^\gamma}{\partial z} - k_\gamma^2 \mathbf{A}^\gamma \right\} e^{i(\omega_\gamma t - k_\gamma z)} \quad (F-17)$$

である。

以上で式 (F-2) 中で正の中心角振動数  $\omega_\gamma$  を持つ成分を、複素包絡線関数  $\mathbf{A}^\gamma(z, t)$  と振動成分に分けて書くことができたので  $\mathbf{A}^\gamma(z, t)$  が  $\omega_\gamma$  に比べてゆっくりと変化する近似 (Slowly Varying Envelope Approximation) を行って、式を簡素化する。

まず、電束密度の線形部分  $D_L^{\gamma(+)}(z, t)$  の  $t$  についての 2 階微分を見ると (式 (F-14))、第 3 項以降は第 1 項、第 2 項の角振動数と  $\mathbf{A}^\gamma$  の積に比較して十分小さいと考えることができる ( $\partial^2 |\mathbf{A}^\gamma| / \partial t^2 \sim \Delta\omega_\gamma^2 |\mathbf{A}^\gamma| \ll \omega_\gamma^2 |\mathbf{A}^\gamma|$ ,  $\Delta\omega_\gamma$  は  $\mathbf{A}^\gamma$  のフーリエ成分の幅) ので無視する事にする。1 階微分の項はパルスの伝播に寄与するので残す。

電束密度の非線形部分（非線形分極）の  $t$  についての 2 階微分 (式 (F-15)) も同様に  $t$  について 2 階微分、あるいは 1 階微分どうしの積は無視する。線形 1 階微分のための項については線形部分と同じ基準で考えれば無視するのは不自然であるが、この部分は相互作用の source term であるので、とりあえず最も寄与の大きい  $\omega_\gamma^2 A_j^\alpha A_k^\beta$  の項のみを残す事にする。これは電気伝導に起因する項も同様に 1 階微分の項は無視する。

電場を  $z$  で微分した式 (F-17) では時間領域と同様な考え方から  $\partial^2 \mathbf{A}^\gamma / z^2$  の項は無視する。 $z$  についての 1 階微分の項はパルスの伝播に寄与することになるので残しておく。

以上の近似を行った上で各項を式 (F-2) に代入して整理すると

$$\begin{aligned} & \left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{\omega_\gamma^2}{c^2 k_\gamma} \left( 1 + \chi_L(\omega_\gamma) + \frac{1}{2} \omega_\gamma \frac{d\chi_L}{d\omega} \Big|_\gamma \right) \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\gamma(z, t) \\ &= - \left[ \frac{k_\gamma}{2i} - \frac{\omega_\gamma^2}{2ic^2 k_\gamma} \{1 + \chi_L(\omega_\gamma)\} \right] A_i^\gamma(z, t) - \frac{\sigma \omega_\gamma}{2\epsilon_0 c^2 k_\gamma} A_i^\gamma(z, t) \\ & \quad + \frac{\omega_\gamma^2}{2i\epsilon_0 c^2 k_\gamma} \sum_{j,k} d_{ijk} A_j^\alpha(z, t) A_k^\beta(z, t) e^{i\Delta k z} \end{aligned} \quad (F-18)$$

となる。ただし

$$\Delta k = k_\gamma - (k_\alpha + k_\beta) \quad (F-19)$$

と定義した。また  $\epsilon_0 \mu_0 = c^{-2}$  等も用いている。ここで角振動数  $\omega_\gamma$  に対する波数  $k_\gamma$  はこの角振動数での屈折率  $n(\omega_\gamma)$  を用いて

$$k_\gamma = n(\omega_\gamma) \frac{\omega_\gamma}{c} \quad (F-20)$$

と書ける。また、線形感受率と屈折率の関係は

$$n^2(\omega_\gamma) = 1 + \chi_L(\omega_\gamma) \quad (F-21)$$

であるから、式 (F-18) 右辺第 1 項の係数は 0 になる。さらに、式 (F-21) より

$$2n(\omega_\gamma) \left. \frac{dn}{d\omega} \right|_\gamma = \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \quad (\text{F-22})$$

であるから、式 (F-18) 左辺第 2 項の  $\partial/\partial t$  の係数は

$$\begin{aligned} \frac{\omega_\gamma^2}{c^2 k_\gamma} \left( 1 + \chi_L(\omega_\gamma) + \frac{1}{2} \omega_\gamma \left. \frac{d\chi_L}{d\omega} \right|_\gamma \right) &= \frac{\omega_\gamma}{cn(\omega_\gamma)} \left( n^2(\omega_\gamma) + n(\omega_\gamma) \omega_\gamma \left. \frac{dn}{d\omega} \right|_\gamma \right) \\ &= \frac{\omega_\gamma}{c} \left( n(\omega_\gamma) + \omega_\gamma \left. \frac{dn}{d\omega} \right|_\gamma \right) \\ &= \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_\gamma = \frac{1}{v_g(\omega_\gamma)} \end{aligned} \quad (\text{F-23})$$

となる。ここで、 $v_g(\omega_\gamma)$  は角振動数  $\omega_\gamma$  の光パルスに対する群速度である。式 (F-18) 右辺第 3 項の係数は

$$\frac{\omega_\gamma^2}{2i\varepsilon_0 c^2 k_\gamma} = \frac{\omega_\gamma}{2i\varepsilon_0 cn(\omega_\gamma)} \quad (\text{F-24})$$

であり、右辺第 2 項の係数は減衰定数を  $\Gamma(\omega_\gamma) \equiv \sigma/(\varepsilon_0 n(\omega_\gamma))$  と定義してやると、結局、式 (F-18) は

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\gamma)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\gamma(z, t) = -\frac{\Gamma(\omega_\gamma)}{2c} A_i^\gamma(z, t) + \frac{\omega_\gamma}{2icn(\omega_\gamma)} \sum_{j,k} \frac{d_{ijk}}{\varepsilon_0} A_j^\alpha(z, t) A_k^\beta(z, t) e^{i\Delta kz} \quad (\text{F-25})$$

となる。

角振動数  $\omega_\alpha$ 、 $\omega_\beta$  の電場についても同様に考えれば良いが<sup>5</sup>、非線形分極の振動数が<sup>5</sup>  $\omega_\alpha$ 、 $\omega_\beta$  になるのはそれぞれ

$$\begin{aligned} P_{\text{NL}}^{\alpha(+)}(z, t) &= \sum_{j,k} d_{ijk} \left\{ E_j^{\gamma(+)}(z, t) E_k^{\beta(-)}(z, t) + E_j^{\beta(-)}(z, t) E_k^{\gamma(+)}(z, t) \right\} \\ &= \frac{1}{2} \sum_{j,k} d_{ijk} A_j^\gamma(z, t) A_k^{\beta*}(z, t) \exp[i\{\omega_\alpha t - (k_\gamma - k_\beta)z\}] \end{aligned} \quad (\text{F-26})$$

$$P_{\text{NL}}^{\beta(+)}(z, t) = \frac{1}{2} \sum_{j,k} d_{ijk} A_j^\gamma(z, t) A_k^{\alpha*}(z, t) \exp[i\{\omega_\beta t - (k_\gamma - k_\alpha)z\}] \quad (\text{F-27})$$

である事に注意しなければならない。後は式 (F-28) を得るのと同様な手続きを経て、

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\gamma)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\gamma(z, t) = \frac{\omega_\gamma}{2icn(\omega_\gamma)} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} A_j^\alpha(z, t) A_k^\beta(z, t) e^{i\Delta kz} \quad (\text{F-28})$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\alpha)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\alpha(z, t) = \frac{\omega_\alpha}{2icn(\omega_\alpha)} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} A_j^\gamma(z, t) A_k^{\beta*}(z, t) e^{-i\Delta kz} \quad (\text{F-29})$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\beta)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\beta(z, t) = \frac{\omega_\beta}{2icn(\omega_\beta)} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} A_j^\gamma(z, t) A_k^{\alpha*}(z, t) e^{-i\Delta kz} \quad (\text{F-30})$$

という 3 式が基本方程式として得られる。なお、簡単のため損失が無い場合のみをこれ以降は扱う事とする。 $\chi_{ijk}^{(2)}$  は (2 次) の非線形感受率で<sup>2</sup>

$$\chi_{ijk}^{(2)} \equiv d_{ijk}/\varepsilon_0 \quad (\text{F-31})$$

で定義される。

<sup>2</sup>MKSA 単位系ではこの  $\chi_{ijk}^{(2)}$  を非線形定数  $d_{ijk}$  と定義する場合もある。いずれにしる  $\chi_{ijk}^{(2)} A_j A_k$  は電場と同じ単位になるので、 $\chi_{ijk}^{(2)}$  の単位は電場の逆、すなわち [m/V] である。

完全に同種の光電場による2倍波発生の場合は式(F-10)にある通り、非線形分極の symmetry factor が半分になるので、

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\gamma)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\gamma(z, t) = \frac{\omega_\gamma}{4icn(\omega_\gamma)} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} A_j^\alpha(z, t) A_k^\alpha(z, t) e^{i\Delta k z} \quad (\text{F-32})$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\alpha)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A_i^\alpha(z, t) = \frac{\omega_\alpha}{2icn(\omega_\alpha)} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} A_j^\gamma(z, t) A_k^{\alpha*}(z, t) e^{-i\Delta k z} \quad (\text{F-33})$$

の2式が基本方程式になる。

式(F-28)、式(F-29)、式(F-30)の3式は、左辺の部分がそれぞれ異なる群速度、 $v_g(\omega_\gamma)$ 、 $v_g(\omega_\alpha)$ 、 $v_g(\omega_\beta)$ 、で包絡線が進行する事を表しており、右辺は各々の電場を誘起する source term となっている事がわかる。また、各 source term は  $z$  についての振動項 ( $e^{i\Delta k}$  または  $e^{-i\Delta k}$ ) を含んでいるので、相互作用長を  $L_c$  としたとき、 $\Delta k L_c \gg 1$  であるとする、激しい振動によってこの項は電場の誘起に寄与しなくなってしまう(近似による簡単な例を後に示す)。従って、効率の良い frequency mixing を行うためには  $\Delta k = 0$  としなければならない(位相整合条件)。

非線形結晶で位相整合をとるためには、偏光方向による屈折率の違いを利用するのが普通である。各電場の方向がそれぞれ単位ベクトル、 $\hat{\xi}^\gamma$  (角振動数  $\omega_\gamma$  の電場包絡線  $A^\gamma(z, t)$  の方向ベクトル)、 $\hat{\xi}^\alpha$  (角振動数  $\omega_\alpha$  の電場包絡線  $A^\alpha(z, t)$  の方向ベクトル)、 $\hat{\xi}^\beta$  (角振動数  $\omega_\beta$  の電場包絡線  $A^\beta(z, t)$  の方向ベクトル)、である(直線偏光)とすると、

$$A^\gamma(z, t) \equiv \hat{\xi}^\gamma A^\gamma(z, t) \quad (\text{F-34})$$

$$A^\alpha(z, t) \equiv \hat{\xi}^\alpha A^\alpha(z, t) \quad (\text{F-35})$$

$$A^\beta(z, t) \equiv \hat{\xi}^\beta A^\beta(z, t) \quad (\text{F-36})$$

でスカラーの複素包絡線関数  $A^\gamma(z, t)$ 、 $A^\alpha(z, t)$ 、 $A^\beta(z, t)$ 、が定義できる。これらについて成立する方程式は、式(F-28)に  $\hat{\xi}_i$  を掛けて  $i$  について和をとると

$$\sum_{i=1}^3 \hat{\xi}_i^\gamma A_i^\gamma(z, t) = \sum_{i=1}^3 \left( \hat{\xi}_i^\gamma \right)^2 A^\gamma(z, t) = A^\gamma(z, t) \quad (\text{F-37})$$

であり、かつ

$$\sum_{i,j,k} \chi_{ijk}^{(2)} \hat{\xi}_i^\gamma A_j^\alpha(z, t) A_k^\beta(z, t) = \sum_{i,j,k} \chi_{ijk}^{(2)} \hat{\xi}_i^\gamma \hat{\xi}_j^\alpha \hat{\xi}_k^\beta A^\alpha(z, t) A^\beta(z, t) \quad (\text{F-38})$$

なので(式(F-29)、式(F-30)についても同様、それぞれに  $\hat{\xi}_i^\alpha$ 、 $\hat{\xi}_i^\beta$  を掛けて  $i$  について和をとる)、式(F-28)~式(F-30)は

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\gamma)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A^\gamma(z, t) = \frac{\omega_\gamma}{2icn(\omega_\gamma)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\alpha(z, t) A^\beta(z, t) e^{i\Delta k z} \quad (\text{F-39})$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\alpha)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A^\alpha(z, t) = \frac{\omega_\alpha}{2icn(\omega_\alpha)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\gamma(z, t) A^{\beta*}(z, t) e^{-i\Delta k z} \quad (\text{F-40})$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\beta)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A^\beta(z, t) = \frac{\omega_\beta}{2icn(\omega_\beta)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\gamma(z, t) A^{\alpha*}(z, t) e^{-i\Delta k z} \quad (\text{F-41})$$

という和を省いた形に書き直すことができる。ここで

$$\chi_{\text{eff}}^{(2)} = \sum_{i,j,k} \chi_{ijk}^{(2)} \hat{\xi}_i^\gamma \hat{\xi}_j^\alpha \hat{\xi}_k^\beta \quad (\text{F-42})$$

は有効非線形感受率で、非線形感受率テンソルの各方向に対して3つの電場の射影成分を掛けて足し合わせたものになっている。なお、 $\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{jik}^{(2)} = \chi_{kji}^{(2)}$  等が成立する(Kleinman's Symmetry)事を仮定した。

なお、完全に同種の光電場による2倍波発生の場合は式(F-32)、式(F-33)に従って、

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\gamma)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A^\gamma(z, t) = \frac{\omega_\gamma}{4icn(\omega_\gamma)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\alpha(z, t) A^\alpha(z, t) e^{i\Delta kz} \quad (\text{F-43})$$

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{v_g(\omega_\alpha)} \frac{\partial}{\partial t} \right\} A^\alpha(z, t) = \frac{\omega_\alpha}{2icn(\omega_\alpha)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\gamma(z, t) A^{\alpha*}(z, t) e^{-i\Delta kz} \quad (\text{F-44})$$

となる。

### F-1-2 基本方程式の近似解

式(F-39)～式(F-41)は各電場包絡線が異なる群速度で移動しながら相互作用する様子を表しているので(詳しい解析は本文6.3.2参照)で $L_c(v_g^{-1}(\omega_p) - v_g^{-1}(\omega_q))$  ( $L_c$ は相互作用長、 $p, q$ には $\gamma, \alpha, \beta$ の内の異なる2つがある)が入射電場のパルス幅より十分短ければ、時間依存の項は省略できて

$$\frac{d}{dz} A^\gamma(z) = \frac{\omega_\gamma}{2icn(\omega_\gamma)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\alpha(z) A^\beta(z) e^{i\Delta kz} \quad (\text{F-45})$$

$$\frac{d}{dz} A^\alpha(z) = \frac{\omega_\alpha}{2icn(\omega_\alpha)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\gamma(z) A^{\beta*}(z) e^{-i\Delta kz} \quad (\text{F-46})$$

$$\frac{d}{dz} A^\beta(z) = \frac{\omega_\beta}{2icn(\omega_\beta)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\gamma(z) A^{\alpha*}(z) e^{-i\Delta kz} \quad (\text{F-47})$$

として良い。

$A^\alpha(z)$ と $A^\beta(z)$ を入力して $A^\gamma(z)$ を発生させる場合を考えよう。最も基本的な近似は発生する $A^\gamma(z)$ が十分小さく式(F-46)と式(F-47)の右辺が殆ど0とみなせる場合である。右辺が0なので $A^\alpha(z)$ と $A^\beta(z)$ は定数 $A^\alpha, A^\beta$ とみなせるので(small depletion limit)

$$\frac{d}{dz} A^\gamma(z) = \frac{\omega_\gamma}{2icn(\omega_\gamma)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\alpha A^\beta e^{i\Delta kz} \quad (\text{F-48})$$

を解けばよい。これは簡単に積分できて( $z$ を0から $L_c$ まで積分)

$$A^\gamma(L_c) = \frac{\omega_\gamma}{2icn(\omega_\gamma)} \chi_{\text{eff}}^{(2)} A^\alpha A^\beta L_c e^{i\frac{\Delta k L_c}{2}} \frac{\sin\left(\frac{\Delta k L_c}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k L_c}{2}\right)} \quad (\text{F-49})$$

となるから、強度 $I^\gamma(L_c) = n_\gamma \epsilon_0 c |A^\gamma(L_c)|^2 / 2$ は $n_\gamma \equiv n(\omega_\gamma)$ 等として

$$I^\gamma(L_c) = \frac{\omega_\gamma^2}{2\epsilon_0 c^3 n_\gamma n_\alpha n_\beta} \chi_{\text{eff}}^{(2)2} I^\alpha I^\beta L_c^2 \text{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L_c}{2}\right) \quad (\text{F-50})$$

で与えられる。式(F-50)を見て分かる通り、位相整合がとれていない( $\Delta k L_c \gg 1$ )とsincfactorによって、 $I^\gamma(L_c)$ は殆ど発生しない。 $\Delta k = 0$ ならば、発生強度 $I^\gamma(L_c)$ は入射電場強度の積と結晶長、有効非線形感受率の2乗に比例する事になる。



# References

- [1] K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Matsuoka, T. Kase, Y. Akahane, and H. Takuma, "100-TW sub-20-fs Ti:sapphire laser system operating at a 10-Hz repetition rate," *Opt. Lett.* **23**, 1468-1470 (1998)
- [2] V. Bagnoud and F. Salin, "1kHz repetition rate, Terawatt laser source," *Technical Digest of Ultrafast Optics '99*, pp17-19 (1999)
- [3] V. Bagnoud and F. Salin, "Amplifying laser pulses to terawatt level at 1-kilohertz repetition rate," *Appl. Phys.* **B70** [Suppl.], S165-S170 (2000)
- [4] J. Reintjes, R. C. Eckardt, C. Y. She, N. E. Karangelen, R. C. Elton, and R. A. Andrews, "Generation of Coherent Radiation at 53.2 nm by Fifth-Harmonic Conversion," *Phys. Rev. Lett.* **37**, 1540-1543 (1976)
- [5] K Miyazaki, H Sakai, "High-order harmonic generation in rare gases with intense subpicosecond dye laser pulses," *J. Phys.* **B25**, L83-L89 (1992)
- [6] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, H. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rohdes, "Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases," *J. Opt. Soc. Am.* **B4**, 595-601 (1987)
- [7] N. Sarukura, K. Hata, T. Adachi, R. Nodomi, M. i Watanabe, and S. Watanabe, "Coherent soft-x-ray generation by the harmonics of an ultrahigh-power KrF laser," *Phys. Rev.* **A43**, 1669-1672 (1991)
- [8] J. J. Macklin, J. D. kmetec, and C. L. Gordon III, "High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses," *Phys. Rev. Lett.* **70**, 766-769 (1993)
- [9] Anne L'Huillier and Ph. Balcou, "High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser," *Phys. Rev. Lett.* **70**, 774-777 (1993)
- [10] P. B. Corkum "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization," *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994-1997 (1993)
- [11] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L'Huillier, and P. B. Corkum, "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields," *Phys. Rev.* **A49**, 2117-2132 (1994)
- [12] H. A. Haus, "Theory of mode locking with a fast saturable absorber," *J. Appl. Phys.* **46**, 3049-3058 (1975)
- [13] Y. Nabekawa, Y. Kuramoto, T. Sekikawa, and S. Watanabe, "Geneeration of 0.66-TW pulses from Ti:sapphire laser at 1-kHz repetition rate," *Opt. Lett.* **23**, 611-613 (1998)
- [14] D. J. Kuizenga, A. E. Siegman, " FM-laser operation of the Nd:YAG laser," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-6**, 673-677 (1970)
- [15] A. S. L. Gomes, W. Sibbett, J. R. Taylor, " Compression of Q-switched and mode-locked CW Nd:YAG laser pulses," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-21** 1157-1158 (1985)

- [16] A.M. Johnson, W.M. Simpson, "Tunable femtosecond dye laser synchronously pumped by the compressed second harmonic of Nd:YAG," *J. Opt. Soc. Am.* **B2**, 619-25 (1985)
- [17] J.D. Kafka, M. L. Watts, J. -W. J. Pieterse, "Picosecond and femtosecond pulse generation in a regeneratively mode-locked Ti:sapphire laser," *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 2151-2162 (1992)
- [18] N. Sarukura, Y. Ishida, and H. Nakano "Generation of 50-fsec pulses from a pulse-compressed, cw, passively mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* , **16**, 153-155 (1991)
- [19] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett "60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* , **16**, 42-44 (1991)
- [20] H. A. Haus, J. G. Fujimoto, and E. P. Ippen, "Analytic Theory of Additive Pulse and Kerr Lens Mode Locking," *IEEE, J. Quantum Electron.* **QE-28**, 2086-2096 (1992)
- [21] T. Brabec, Ch. Spielmann, and F. Krausz, "Mode locking in solitary lasers" *Opt. Lett.* , **16**, 1961-1963 (1991)
- [22] E. D. Nelson, J. Y. Wong, and A. L. Schawlow, "Far infrared spectra of  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}^{3+}$  and  $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Ti}^{3+}$ ," *Phys. Rev.* **156**, 298-308 (1967)
- [23] R. M. MacFarlane, J. Y. Wong, and M. D. Struge, "Dynamic Jahn-Teller effect in octahedrally coordinated  $d^1$  impurity systems," *Phys. Rev.* **166**, 250-258 (1968)
- [24] P. F. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ ," *J. Opt. Soc. Am.* **B3**, 125-133 (1986)
- [25] D. H. Shutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, "Semiconductor saturable-absorber mirror-assisted Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser producing pulses in the two cycle regime," *Opt. Lett.* **24**, 631-633 (1999)
- [26] B. E. Lemoff and C. P. J. Barty, "Generation of high-peak-power 20-fs pulses from a regeneratively initiated, self-mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **17**, 1367-1369 (1992)
- [27] Chung-Po Huang, Melanie T. Asaki, Sterling Backus, Margaret M. Murnane, Henry C. Kapteyn, and Howard Nathel, "17-fs pulses from a self-mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **17**, 1289-1291 (1992)
- [28] Melanie T. Asaki, Chung-Po Huang, Dennis Garvey, Jianping Zhou, Henry C. Kapteyn, and Margaret M. Murnane, "Generation of 11-fs pulses from a self-mode-locked Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **18**, 977-979 (1993)
- [29] B. E. Lemoff and C. P. J. Barty, "Cubic-phase-free dispersion compensation in solid-state ultrashort-pulse lasers," *Opt. Lett.* **18**, 57-59 (1993)
- [30] O. E. Martinez, J. P. Gordon, and R. L. Fork, "Negative group-velocity dispersion using refraction," *J. Opt. Soc. Am.* **A1**, 1003-1006 (1984)
- [31] Joseph F. Pinto, Leon Esterowitz, Gregg H. Rosenblatt, Milan Kokta, and Dennis Peressini, "Improved Ti:sapphire Laser Performance with New High Figure of Merit Crystals," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-30**, 2612-2616 (1994)
- [32] M. Yamashita, K. Torizuka, and T. Sato, "A chirp-compensation technique using incident-angle changes of cavity mirrors in a femtosecond pulse laser," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 2005-2007 (1987)

- [33] A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann, F. Krausz, and R. Szipöcs, "Sub-10-fs mirror-dispersion-controlled Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **20**, 602-604 (1995)
- [34] Lin Xu, Christian Spielmann, Ferenc Krausz, and Robert Szipöcs, "Ultrabroadband ring oscillator for sub-10-fs pulse generation," *Opt. Lett.* **21**, 1259-1261 (1996)
- [35] Ursula. Keller, Kurt J. Weingarten, Franz X. Kärtner, Daniel Kopf, Bernd Braun, Isabella D. Jung, Regula Fluck, Clemens Hönninger, Nicolai Matuschek, and Juerg Aus der Au, "Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM's) for Femtosecond to Nanosecond Pulse Generation in Solid-State Lasers," *IEEE Select. Top. Quantum Electron.* **2**, 435-453 (1996)
- [36] F. X. Kärtner, N. Matuschek, T. Schibli, U. Keller, H. A. Haus, C. Heine, R. Morf, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tschudi, "Design and fabrication of double-chirped mirrors," *Opt. Lett.* **22**, 831-833 (1997)
- [37] I. D. Jung, F. X. Kärtner, N. Matuschek, D. H. Sutter, F. Morier-Genoud, G. Zhang, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tschudi, "Self-starting 6.5-fs pulses from a Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **22**, 1009-1011 (1997)
- [38] D. H. Sutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scheuer, M. Tilsch, and T. Tschudi, "Semiconductor saturable-absorber mirror-assisted Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime," *Opt. Lett.* **24**, 631-633 (1999)
- [39] J. Harrison, "Tunable Solid-State Lasers," Short Course Notes of CLEO'94
- [40] D. S. Sumida and B. A. Wechsler, "Laser Host Crystals: Physical, Optical, and Thermomechanical Properties," Short Course Notes of CLEO'95
- [41] L. M. Frantz and J. S. Nodvik, "Theory of Pulse Propagation in a Laser Amplifier," *J. Appl. Phys.* **34**, 2346-2349 (1963)
- [42] C. Le Blanc, G. Grillon, J. P. Chambaret, A. Migus, and A. Antonetti, "Compact and efficient multipass Ti:sapphire system for femtosecond chirped-pulse amplification at terawatt level," *Opt. Lett.* **18**, 140-142
- [43] Norman L. Boling, Alexander J. Glass, and Adelbert Owyong "Empirical Relationships for Predicting Nonlinear Refractive Index Changes in Optical Solids," *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-14**, 601-608 (1978)
- [44] D. Strickland and G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses," *Opt. Commun.* **56**, 219-221 (1985)
- [45] J. E. Murray and W. H. Lowdermilk, "Nd : YAG regenerative amplifier," *J. Appl. Phys.* **57**, 3548-3555 (1980)
- [46] J. Squier, F. Salin, G. Mourou, and D. Harter, "100-fs pulse generation and amplification in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *Opt. Lett.* **16**, 324-326 (1991)
- [47] J. D. Kmetec, J. J. Macklin, and J. F. Young, "0.5-TW, 125-fs Ti:sapphire laser," *Opt. Lett.* **16**, 1001-1003 (1991)
- [48] J. Zhou, C. P. Huang, C. Shi, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, "Generation of 21-fs millijoule-energy pulses by use of Ti:sapphire," *Opt. Lett.* **19**, 126-128 (1994)

- [49] J. Itatani, J. Faure, M. Nantel, G. Mourou and S. Watanabe, "Suppression of the amplified spontaneous emission in chirped-pulse-amplification lasers by clean high-energy seed-pulse injection," *Opt. Commun.* **148**, 70-74 (1998)
- [50] Cataloge of Cleveland Crystals, Inc. ,  
<http://www.ClevelandCrystals.com/eodevs.shtml>
- [51] G. Vaillancourt, T. B. Norris, J. S. Coe, P. Bado, and G. Mourou, "Operation of a 1-kHz pulse-pumped Ti:sapphire regenerative amplifier," *Opt. Lett.* **15**, 317-319 (1990)
- [52] P. Bado and M. Bouvier, "Multikilohertz Pockels cell driver," *Rev. Sci. Instrum.* **56**, 1744-1745 (1985)
- [53] T. Togashi, Y. Nabekawa, T. Sekikawa, S. Watanabe, "High-peak-power femtosecond Cr:forsterite laser system," *Appl. Phys. B***68**, 169-175 (1999)
- [54] Y. Nabekawa, T. Togashi, T. Sekikawa, S. Watanabe, "High-power ultrashort pulse generation at 10 kHz" *Proceeding of Ultrafast Optics 1999*
- [55] "Generation of 16-fs, 10-TW pulses at a 10-Hz repetition rate with efficient Ti:sapphire amplifier," K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Matsuoka, H Takuma, C. P. J. Barty, and D. Fittinghoff, *Opt. Lett.* **23**, 525-527 (1998)
- [56] "Multiterawatt 30-fs Ti:sapphire laser system," C. P. J. Barty, C. L. Gordon III, and B. E. Lemoff *Opt. Lett.* **18**, 1442-1444 (1994)
- [57] C. P. J. Barty , G. Korn , F. Raksi, C. Rose-Petruck, J. Squier , A.-C. Tien , K. R. Wilson, V. V. Yakovlev, and K. Yamakawa, "Regenerative pulse shaping and amplification of ultrabroadband optical pulses. " *Op. Lett.* **21**, 219-221 (1996 )
- [58] O. E. Martinez, "3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: application to fiber compensation in 1.3-1.6  $\mu$  m region," *IEEE J. of Quantum Electron*, **QE-23**, 59-64 (1987)
- [59] "1000 times expansion/compression of optical pulses for chirped pulse amplification," M. Pessot, P. Maine, G. Mourou, *Opt. Commun*, **62**, 419-421 (1987)
- [60] A. Öffner, US patent 3, 748, 015 (1971)
- [61] G. Cheriaux, P. Rousseau, F. Salin, J. P. Chambaret, Barry Walker, and L. F. Dimauro, "Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification," *Opt. Lett.* **21**, 414-416 (1996)
- [62] S. Backus, J. Peatross, C. P. Huang, M. M. Murnane, and H. C. Kaptain, "Ti:sapphire amplifier producing millijoule-level, 21-fs pulses at 1 kHz," *Opt. Lett.* **20**, 2000-2002 (1995)
- [63] S. Backus, C. G. Durfee III, G. Mourou, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, "0.2-TW laser system at 1 kHz," *Opt. Lett.* **22**, 1256-1258 (1997)
- [64] J. P. Chambaret, C. Le Blanc, G. Chériaux, P. Curley, G. Darpentigny, P. Rousseau, G. Hamoni-  
aux, A. Antonetti, and F. Salin, "Generation of 25-TW, 32-fs pulses at 10 Hz," *Opt. Lett.* **21**, 1921 (1996)
- [65] B. E. Lemoff and C. P. J. Barty, "Quintic-phase-limited, spatially uniform expansion and recompression of ultrashort optical pulses," *Opt. Lett.* **18**, 1651-1653 (1993)

- [66] J. Squier, C.P.J. Barty, F. Salin, C. Le Blanc, S. Kane, "Use of mismatched grating pairs in chirped-pulse amplification systems," *Appl. Opt.* **37**, 1638-1641 (1998)
- [67] K. Wynne, G. D. Reid, and R. M. Hochstrasser, "Regenerative amplification of 30-fs pulses in Ti:sapphire at 5 kHz," *Opt. Lett.* **19**, 895-897 (1994)
- [68] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon, "Negative dispersion using pairs of prisms," *Opt. Lett.* **9**, 150-152 (1984)
- [69] J. D. Foster and L. M. Osterink, "Thermal Effects in a Nd:YAG Laser," *J. Appl. Phys.* **9**, 3656-3663 (1970)
- [70] W. C. Scott and M. de Wit, "Birefringence Compensation and TEM<sub>00</sub> Mode Enhancement in a Nd:YAG Laser," *Appl. Phys. Lett.* **18**, 3-4 (1971)
- [71] S. C. Tidwell, J. F. Seamans, and M. S. Bowers, "Highly efficient 60-W TEM<sub>00</sub> cw diode-end-pumped Nd:YAG laser," *Opt. Lett.* **18**, 116-118 (1993)
- [72] K. Yasui, "Efficient and stable operation of a high-brightness cw 500-W Nd:YAG rod laser," *Appl. Opt.* **35**, 2566-2569 (1996)
- [73] D. Georgiev, J. Herrmann, and U. Stamm, "Cavity design for optimum nonlinear absorption in Kerr-lens mode-locked solid-state lasers," *Opt. Commun.* **92**, 368-375 (1992)
- [74] M. E. Innocenzi, H. T. Yura, C. L. Fincher, and R. A. Fields, "Thermal modeling of continuous-wave end-pumped solid-state lasers," *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1831-1833 (1990)
- [75] Yariv, "*Quantum Electronics*"
- [76] J. Squier, G. Korn, G. Mourou, Gary Vaillancourt, Marcel Bouvier, "Amplification of femtosecond pulses at 10-kHz repetition rates in Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *Opt. Lett.* **18**, 625-627 (1993)
- [77] Q. Fu, F. Seier, S. K. Gayen, and R. R. Alfano "High-average-power kilohertz-repetition-rate sub-100-fs Ti:sapphire amplifier system," *Opt. Lett.* **22**, 712-714 (1997)
- [78] F. Salin, C. Le Blanc, J. Squier, and C. P. J. Barty, "Thermal eigenmode amplifiers for diffraction-limited amplification of ultrashort pulses," *Opt. Lett.* **23**, 718-720 (1998)
- [79] Y. Nabekawa, T. Togashi, T. Sekikawa, S. Watanabe, S. Konno, T. Kojima, S. Fujikawa, K. Yasui, "All-solid-state 5-kHz 0.2-TW Ti:sapphire laser system," *Opt. Express* , **5**, 318-324 (1999)
- [80] Y. Nabekawa, T. Togashi, T. Sekikawa, S. Watanabe, S. Konno, T. Kojima, S. Fujikawa, K. Yasui, "All-solid-state high-peak-power Ti:sapphire laser system above 5-kHz repetition rate," *Appl. Phys. B70* [Suppl.], S171-S179 (2000)
- [81] S. Konno, T. Kojima, S. Fujikawa, and K. Yasui, "High-brightness 138-W green laser based on an intracavity-frequency-doubled diode-side-pumped Q-switched Nd:YAG laser," *Opt. Lett.* **25**, 105-107 (2000)
- [82] T. Kojima, S. Konno, S. Fujikawa, K. Yasui, K. Yoshizawa, Y. Mori, T. Sasaki, M. Tanaka, and Y. Okada, "20-W ultraviolet-beam generation by fourth-harmonic generation of an all-solid-state laser," *Opt. Lett.* **25**, 58-60 (2000)
- [83] 前田三男 編「エキシマーレーザー」学会出版センター (1993)
- [84] A. Endoh, M. Watanabe, N. Sarukura, and S. Watanabe, "Multiterawatt subpicosecond KrF laser," *Opt. Lett.* **14**, 353-355 (1989)

- [85] M. Mizoguchi, K. Kondo, and S. Watanabe, "100-fs, 10-Hz, terawatt KrF laser," *J. Opt. Soc. Am.* **B9**, 560-564 (1992)
- [86] S. Szatmári, F. P. Schäfer, E. Müller-Horsche, and W. Mückenheim, "Hibrid Dye-Excimer Laser System for the Generation of 80 fs , 900GW Pulses at 248 nm," *Opt. Commun.* **63**, 305-309 (1987)
- [87] T. S. Luk, A. McPherson, G. Gibson, K. Boyer, and C. K. Rhodes, "Ultrahigh-intensity KrF laser system," *Opt. Lett.* **14**, 1113-1115 (1989)
- [88] A. J. Taylor, C. R. Tallman, J. P. Roberts, C. S. Lester, T. R. Gosnell, P. H. Y. Lee, and G. A. Kyrala, "High-intensity subpicosecond XeCl laser system," *Opt. Lett.* **15**, 39-41 (1990)
- [89] K. Kondo, T. Tamida, Y. Nabekawa, and S. Watanabe, "High-order harmonic generation and ionization using ultrashort KrF and Ti:sapphire lasers," *Phys. Rev.* **A49**, 3881-3889 (1994)
- [90] R. Nodomi, Y. Oeda, K. Sajiki, S. Nakajima, M. Watanabe, and S. Watanabe, "High Repetition Rate, Wide-Aperture KrF Lasers for Subpicosecond Amplification," *IEEE J. Quantum. Electron.* **27**, 441-447 (1991)
- [91] M. Schnürer, Ch. Spielmann, P. Wobrauschek, C. Streli, N. H. Burnett, C. Kan, K. Ferencz, R. Koppitsch, Z. Cheng, T. Brabec, and F. Krausz, "Coherent 0.5-keV X-Ray Emission from Helium Driven by a Sub-10-fs Laser" *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3236-3239 (1998)
- [92] J. A. Armstrong, S. S. Jha, and N. S. Shiren, "Some effects of groupe-velocity dispersion on parameterc Interaction," *IEEE J. Quantum. Electron.* **6**, 123-129 (1970)
- [93] A. Nebel and R. Beigang, "External frequency conversion of cw mode-locked Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser radiation," *Opt. Lett.* **16**, 1729-1731 (1991)
- [94] Y. Nabekawa, K.Kondo, N. Sarukura, and S. Watanabe "Terawatt KrF/Tisapphire hybrid laser system," *Opt. Lett.* **18**, 1922-1924 (1993)
- [95] I. N. Ross, A. R. Damerell, E. J. Dival, J. Evans, G. J. Hirst, C. J. Hooker, J. R. Houliston, M. H. Key, J. M. D. Lister, K. Osvay, M. J. Shaw, "A 1 TW KrF laser using chirped pulse amplification," *Opt. Commun.* **109**, 288-295 (1994)
- [96] B. Bouma, T. S. Luk, K. Boyer, and C. K. Rhodes, "High-brightness subpicosecond terawatt KrF\* system driven with a frequency-converted self-mode-locked pulse commpressed Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> laser," *J. Opt. Soc. Am.* **B10**, 1180-1184 (1993)
- [97] N. Sarukura, M. Watanabe, A. Endoh, and S. Watanabe, "Single-shot measurement of subpicosecond KrF pulse width by three-photon fluorescence of the XeF visible transition," *Opt. Lett.* **13**, 996-998 (1988)
- [98] Y. Nabekawa, D. Yoshitomi, K. Kondo, and S. Watanabe "Development of high power femtosecond lasers in ISSP," *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **33**, 249-52 (1996)
- [99] Z. G. Zhang and T. Yagi, "Regenerative amplification of femtosecond pulses at 745 nm in Ti:sapphire," *Appl. Opt.* **35**, 2026-2029 (1996)
- [100] S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, "16-fs, 1- $\mu$ J ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air," *Opt. Lett.* **21**, 665-667 (1996)

- [101] Charles G. Durfee III, Sterling Backus, Margaret M. Murnane, and Henry C. Kapteyn, "Ultra-broadband phase-matched optical parametric generation in the ultraviolet by use of guided waves," *Opt. Lett.* **22**, 1565-1567 (1997)
- [102] Charles G. Durfee III, Sterling Backus, Henry C. Kapteyn, and Margaret M. Murnane, "Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet," *Opt. Lett.* **24**, 697-699 (1999)
- [103] K. Kondo, A. Sagisaka, T. Tamida, Y. Nabekawa, and S. Watanabe, "Wavelength dependence of nonsequential double ionization in He," *Phys. Rev.* **A48**, R2531-R2533 (1993)
- [104] S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa, A. Sagisaka, and Y. Kobayashi, "Two-color phase control in tunneling ionization and harmonic generation by a strong laser field and its third harmonic," *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 2692-2695 (1994)
- [105] K. Kondo, Y. Kobayashi, A. Sagisaka, Y. Nabekawa, and S. Watanabe "Tunneling ionization and harmonic generation in two-color fields," *J. Opt. Soc. Am.* **B13**, 424-429 (1996)
- [106] A. Sagisaka, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe " Energy distribution of photoelectrons generated from highly charged ions in a circularly polarized intense laser field," *Appl. Phys.* **B61**, 217-221 (1995)
- [107] A. Sagisaka, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe, "Ionization via an ultrashort high-power KrF laser," *Appl. Phys.* **B65**, 475-480 (1997)
- [108] H. A. Haus, "Theory of mode locking with a fast saturable absorber," *J. Appl. Phys.* **46**, 3049-3058 (1975)