

フェムト秒光パルスの発生、制御とレーザー加工への適用に関する研究

メタデータ	言語: ja 出版者: 静岡大学 公開日: 2012-03-06 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 伊藤, 晴康 メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.14945/00006423

静岡大学 博士論文

フェムト秒光パルスの発生、制御と
レーザー加工への適用に関する研究

2009年12月

伊藤 晴康

概要

1秒間に地球を7周半回ることが出来る光でさえ、100 フェムト秒という短い時間では僅かに 30 μm (髪の毛の太さの 1/3 程度)しか進むことができない。フェムト秒レーザーは、このような短い時間に光エネルギーを集中させることができる極限的なレーザーである。このような、時間幅が短く(超高速性)、非常に高いピーク強度を持つ(超高電界)という特徴を利用することで、物質中で非常に高速に起こる緩和現象等の観測、熱の影響が少なく周囲の組織を傷つけない特徴を利用した医療応用、多光子吸収等の非線形過程を利用した透明材料内部加工、あるいは超精密微細加工等の様々な分野に応用されつつある。

フェムト秒レーザー自体も飛躍的に改良され、現在ではパルス幅が 10 フェムト秒より短い光パルスを放つレーザーが開発されるなどして特性の向上が図られると共に、半導体レーザー励起固体レーザーの第二高調波を励起光源とするなどしてフェムト秒レーザーの小型化も図られている。しかしながら、固体レーザーの第二高調波を励起源とする手法は、構造が複雑であると共に電気-光変換効率が低い。産業界においてフェムト秒レーザーの応用分野を進展させるためには、レーザー装置の小型化および低コスト化が必要不可欠であり、そのようなフェムト秒レーザーの登場が待ち望まれている。

また、これまでは、主にフェムト秒レーザーの強い電界強度を利用することで、様々な分野においてフェムト秒レーザーの急速な応用展開が図られてきたが、新たな応用分野を開拓するためには、「超高速性」および「超高電界」以外の新たな付加価値を生み出し、これを実用化する必要がある。そこで、着目されたのが「光の位相」であり、現在では時間的な側面と空間的な側面から様々なアプローチがなされている。さらに、様々な研究分野において光の位相制御技術が利用されることでその重要性が認識されつつあるが、産業応用に適用させるためには位相制御技術ならびに操作性に優れた制御システムの開発が急務である。

これらの要求に応える為に、本研究では半導体レーザーで直接励起することにより実現される小型の全固体フェムト秒レーザーの開発を目指した。さらに、フェムト秒レーザーの時間的な位相(時間波形)制御技術ならびに空間的な位相(波面)制御技術を開発すると共に、これらの技術をシステム化することによりフェムト秒レーザーの応用展開を図った。

フェムト秒レーザー装置の小型化においては、半導体レーザーで直接励起することが可能な Cr:LiSAF レーザー媒質に着目し、小型全固体フェムト秒レーザーの実現を図った。Cr:LiSAF は、フェムト秒レーザーとして最も広く用いられている Ti:Sapphire と同等な超短パルス光を発生させることが可能である数少ないレーザー媒質である。一方で、フェムト秒光パルスを発生させるためには発振波長帯域の広いレーザー共振器を構築する必要がある。そこで、CW発振状態において 100 nm 以上の連続波長可変を実現することにより、レーザー共振器の発振波長帯域が広帯域であることを確認した。次に、能動モード同期法によるピコ秒パルスの発生を試みた結果、88 nm の帯域にわたって 146~200 ピコ秒の光パルスが得られ、パルス発振動作時においてもレーザー共振器の帯域が維持された。これらの基礎評価を踏まえて、半導体レーザーでの直接励起による小型の全固体フェムト秒レーザー

の実現を試みた。この際、波長分散を補正するために用いるプリズム対の間にレーザー媒質を配置する新たな構成を考案し、この構成を用いることによってレーザー共振器を25×16cmにまで小型化することに成功した。

時間的な位相制御においては、光アドレス型空間光変調器を用いることによって、小型でありながら高い波長分解能を有する時間波形整形器を開発した。この際、画素構造を有しない光アドレス型空間光変調器を用いることによって画素構造に起因するサテライトパルスの発生が抑制されること、そして光アドレス型空間光変調器の誘電体多層膜鏡の反射率を高くすると共に透明電極の吸収率を低く抑えることにより、位相変調に伴う強度変化が低減されることを解析的に検証した。同時に、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する光アドレス型空間光変調器を開発することで、再生増幅された高強度フェムト秒レーザーの時間波形制御を可能とした。時間波形が制御された高強度フェムト秒光パルスを透明材料内部加工に適用し、光と物質の相互作用を制御できることを実証した。また、光と物質の反応系においては、相互作用を制御する上での最適パルス波形が既知でない場合が多い。そこで、反応効率に関する情報を波形整形器にフィードバックすることで、その反応効率を自動的に向上させることを可能とする適応型反応制御装置を開発した。そして、制御アルゴリズムとしてシミュレーテッドアニーリング法を用いることで、ガラス媒質や光ファイバー伝播時に生じる波長分散、あるいは非同軸光パラメトリック増幅時に生じる波長分散を自動的に補正できることを実証し、制御系の有意性を実証した。

空間的な位相制御においては、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する LCOS 型空間光変調器を開発すると共に、波面制御を行うための光学系をモジュール化することでレーザー加工における波面制御技術の実用化を図った。従来のフェムト秒レーザー加工においては、レーザー光を1点に集光した状態で試料を走査する1点走査加工が用いられていたために、加工効率が悪く、産業界への応用展開を阻む要因となっていた。これに対して、本研究では、計算機ホログラムを用いた3次元一括多点形成技術を開発し、この技術を用いることで加工効率を大幅に向上させることに成功した。レーザー光を透明材料内部に集光する加工では、球面収差が発生することで集光部が肥大化し、これが加工精度を悪化させる要因となる。従来は、発生する球面収差を解析的に算出し、球面収差に相当する補正パターンを与えることによって球面収差を補正する試みがなされていたが、レンズの開口数が大きい場合、あるいは集光位置が深い場合には球面収差を精密に補正することができなかった。そこで、本研究では、光線を逆追跡することで球面収差を補正するパターンを算出する手法を考案し、この手法を用いることによって球面収差が精密に補正されることを実験的に検証した。

以上のように、本研究では産業界においてフェムト秒レーザーを展開するためにフェムト秒レーザーの小型化を実現した。さらに、フェムト秒レーザーの新たな応用分野を開拓する上で重要な要素技術となる時間的な位相制御技術ならびに空間的な位相制御技術を開発すると共に、具体的な応用システムへの展開を試み、その有効性を示した。本研究で得られた成果は、フェムト秒レーザーを用いた基礎研究の発展のみならず、フェムト秒レーザーを用いた新規産業を開拓する上で有用になるものと確信する。これらの成果を踏まえたフェムト秒レーザーの応用分野の更なる発展を期待する。

目次

第1章 序論	6
1.1. 研究の背景	6
1.2. 本研究の目的と概要	8
1.3. 本論文の構成	9
1.4. 第1章の参考文献	11
第2章 半導体レーザー励起小型Cr:LiSAFレーザーの開発	14
2.1. まえがき	14
2.2. 広帯域連続波長可変レーザー発振	15
2.2.1. はじめに	15
2.2.2. 実験結果及び考察	16
2.3. 超短パルスレーザー発振	21
2.3.1. はじめに	21
2.3.2. 能動モード同期法によるピコ秒パルスレーザー発振	21
2.3.3. 受動モード同期法によるフェムト秒パルスレーザー発振	24
2.3.3.1. アルゴンイオンレーザー励起によるフェムト秒光パルス発生	31
2.3.3.2. 半導体レーザー励起によるフェムト秒光パルス発生	35
2.3.3.3. MOPA型半導体レーザー励起によるフェムト秒光パルス発生	38
2.3.3.4. 小型共振器構造を用いた小型全固体フェムト秒レーザーの開発	42
2.4. あとがき	47
2.5. 第2章の参考文献	48
第3章 フェムト秒光パルスの時間波形制御	50
3.1. まえがき	50
3.2. 光アドレス型空間光変調器を用いた反射型波形整形器の開発	51
3.2.1. はじめに	51
3.2.2. 光アドレス型空間光変調器	53
3.2.3. 波形整形器における画素電極間のギャップの影響	55
3.2.4. 空間光変調器の反射面と透明電極間における多重干渉の影響	59
3.2.5. 反射型波形整形器の設計	62
3.3. 反射型波形整形器の動作確認	67
3.3.1. はじめに	67
3.3.2. 周波数分解光ゲート法(FROG: Frequency Resolved Optical Gating)	67
3.3.3. フーリエ変換スペクトル干渉法(FTSI: Furrier Transform Spectrum Interferometry)	73
3.3.4. TADPOLE: Temporal Analysis, by Dispersing a Pair Of Light E field	75

3.3.5.	反復フーリエ法による周波数フィルターの作成	76
3.3.6.	波形整形器によるパルス列整形、ならびにTADPOLEによる評価	77
3.4.	高強度フェムト秒レーザー用波形整形器の開発	79
3.4.1.	はじめに	79
3.4.2.	光アドレス型空間光変調器の高耐光化	79
3.4.3.	波形整形器の耐光性評価	80
3.4.4.	波形整形光パルスの加工への応用	81
3.5.	高耐光型小型波形整形器の開発	84
3.5.1.	はじめに	84
3.5.2.	高効率小型波形整形器の開発	84
3.6.	適応型光パルス反応制御装置の開発	86
3.6.1.	はじめに	86
3.6.2.	適応型光パルス反応制御装置の概要	86
3.6.3.	適応型光パルス反応制御装置の応用	88
3.6.3.1.	波長分散補正	88
3.6.3.2.	マルチモードファイバーを用いたフェムト秒光パルスの長距離伝送	91
3.6.3.3.	波形整形による非同軸光パラメトリック増幅光のパルス圧縮	97
3.7.	あとがき	105
3.8.	第3章の参考文献	106
第4章	空間光変調器を用いた光波面制御	108
4.1.	まえがき	108
4.2.	高強度フェムト秒レーザー用LCOS型空間光変調器の開発	109
4.2.1.	はじめに	109
4.2.2.	LCOS型空間光変調器の破壊しきい値の向上	110
4.2.3.	LCOS型空間光変調器の動作しきい値の向上	113
4.3.	光波面制御モジュールの開発	115
4.3.1.	はじめに	115
4.3.2.	直進型光波面制御のジュールの開発	115
4.3.3.	90°反射型光波面制御のジュールの開発	118
4.4.	結像モジュールの開発	119
4.4.1.	はじめに	119
4.4.2.	結像モジュールの詳細ならびに光波面制御モジュールとの結合	119
4.5.	光波面制御技術による3次元同時多点形成	120
4.5.1.	はじめに	120
4.5.2.	光波面制御モジュールを用いた3次元一括多点加工	120

4.6.	光波面制御技術による球面収差補正.....	124
4.6.1.	はじめに.....	124
4.6.2.	球面収差補正の概念.....	124
4.6.3.	球面収差補正の検証システムの構築.....	125
4.6.4.	球面収差補正の検証.....	126
4.7.	あとがき.....	130
4.8.	第4章の参考文献.....	131
第5章	結論.....	132
	謝辞.....	135
	論文リスト.....	136

第1章 序論

1.1. 研究の背景

1960年にT.H.Maimanがルビー($\text{Cr}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$)結晶によりレーザー発振に成功して以来¹⁾、He-Neレーザー²⁾や CO_2 レーザー³⁾に代表される気体レーザー、Nd:YAGレーザー⁴⁾に代表される固体レーザー、半導体レーザー(LD:Laser Diode)⁵⁾など様々なレーザーに関する研究が進められてきた。中でも固体レーザーは、容易に高出力が得られると同時に時間的にも空間的にも安定した特性が得られるため、遷移金属や希土類元素を活性媒質とした数多くの固体レーザー媒質が開発され、その利得帯域は紫外域から近赤外域におよぶ。

一方で、固体レーザーは利得線幅が広いために、その帯域に含まれる光の位相を揃えることによって短パルス光を発生させることが可能なレーザーでもある。1962年にQスイッチング法⁶⁾が開発されて以来、短パルス化に関する研究が急速に進展し、1964年に導入されたモード同期の概念を発展させることにより⁷⁾、1966年にはピコ秒パルスが発生するまでに至った⁸⁾。そして、パルス圧縮の技術を用いて1969年にはサブピコ秒のパルス発生が実現された⁹⁾。その後、1980年代後半に開発されたTi:Sapphire($\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$)レーザー¹⁰⁾と1991年に開発されたカーレンズモード同期法¹¹⁾により、フェムト秒光パルスの発生に関する研究が急速な展開を見せることになる。さらに、時間幅が短く(超高速性)、非常に高いピーク強度を持つ(超高電界)というフェムト秒レーザーの特徴を利用することで、物質中で非常に高速に起こる緩和現象等の観測¹²⁾、熱の影響が少なく周囲の組織を傷つけない特徴を利用した医療応用¹³⁾やバイオテクノロジー¹⁴⁾、多光子吸収等の非線形過程を利用した透明材料内部加工¹⁵⁾、あるいは超精密微細加工¹⁶⁾等の様々な分野に応用されつつある。例えば、フェムト秒レーザーから発生する光パルスは、そのパルス幅が非常に短いため、これを写真技術で言う高速フラッシュとして用いることで物質の超高速現象を捉えることが可能となる。分子を構成する原子同士の振動周期は、1ピコ秒(1×10^{-12} 秒、ps)程度であるため、フェムト秒レーザーを用いることで分子の遷移状態を観測することが可能になる。Zeweilは $\text{NaI} \rightarrow \text{Na} + \text{I}$ という化学反応では、光誘起分解の遷移状態の寿命が200 fsであることを確認した¹⁷⁾。その後、Zeweilらは化学反応のマイクロ過程に対する認識を大きく前進させた功績により、1999年にノーベル化学賞を受賞している。

固体レーザーであるTi:Sapphireレーザーは、色素レーザーと比較して高出力であると同時に安定した出力が得られるために、研究用途から産業用途にわたって幅広く用いられているフェムト秒レーザーである。一方で、Ti:Sapphireレーザーは、その吸収帯域が600 nmから短波長域にあるため、一般に半導体レーザー励起Nd:YVO₄レーザーや半導体レーザー励起Nd:YLFレーザーの第二高調波が励起源として用いられる。固体レーザーの第二高調波を励起源とする手法は、構造が複雑であると共に電気-光変換効率が低い。産業界においてフェムト秒レーザーの応用分野を発展させるためには、レーザー装置の小型化および低コスト化が必要不可欠であり、そのようなフェムト秒レーザーの登場が待ち望まれている。

また、これまでは、主にフェムト秒レーザーの強い電界強度を利用することで、様々な分野においてフェムト秒レーザーの急速な応用展開が図られてきたが、フェムト秒レーザーを容易に取扱える環境が整えられた今日に至ってはその成長度も飽和しつつある。したがって、新たな応用分野を開拓するためには、「超高速性」および「超高電界」以外の新たな付加価値を生み出し、これを実用化する必要がある。そこで、着目されたのが「光の位相」であり、現在では時間的な側面と空間的な側面から様々なアプローチがなされている。例えば、Brumerらはフェムト秒レーザーのコヒーレンスを積極的に利用することで、光と物質の相互作用を任意に制御する手法を提案した¹⁸⁾。強度と位相が制御された2つのレーザーを2原子分子である臭化ヨウ素(IBr)に照射することで、二通りある解離過程のうちのうち一方の収率を25%から95%の間で自由に制御できることを計算により示したのである¹⁹⁾。レーザーによる化学反応制御が可能になれば、有用な化合物を選択的に生成することが可能になるため、製薬工業のように生成物の選択性が低い化学工業において製造コストが大きく引き下げることが可能となる。さらに、様々な研究分野において光の位相制御技術が利用されることでその重要性が認識されつつあるが、産業応用に適用させるためには位相制御技術ならびに操作性に優れた制御システムの開発が急務である。

フェムト秒レーザーの時間的な位相(時間波形)を制御する手法は、非熱加工、量子制御、物質改変等といった様々な分野への応用が期待されている。これらの応用では、反応過程はさらに複雑になるため、その反応を制御するために複雑な振幅・位相制御が必要となる。しかしながら、フェムト秒領域で応答する電子デバイスは今のところ存在しない。そこで、周波数領域における光パルスの振幅および位相を空間光変調器により制御し、これをフーリエ変換することによって時間領域における光パルスの振幅および位相を高い自由度で制御する技術、いわゆる波形整形の技術が考案された²⁰⁾。波形整形技術は、光パルスに含まれる周波数成分の位相を個別に制御することにより、光パルスの時間波形を任意の時間波形に整形する技術である。その反応に適した波形に整形された光パルスを用いることによって、光と物質の相互作用をより厳密に制御することが可能となる。しかし、最適パルス波形を解析的に導き出すことができる反応は少なく、多くの物質系における反応はその過程が未知である場合が多い。そこで、未知の相互作用における最適パルス波形を、自己学習効果を持った閉ループ最適制御によって導き出そうという研究が盛んに行われるようになった²¹⁾。

上記の様に時間的な特性を制御することが可能であるが、空間光変調器を用いることによって空間的な位相(波面)を制御することも可能である。波面制御により、レンズ集光位置に任意の形状を生成、あるいは光路伝播中に生じた波面歪みの補正が可能となるため、レーザー加工²²⁾、顕微鏡²³⁾、光ピンセット²⁴⁾、眼底カメラ²⁵⁾などの様々な応用分野への展開が図られている。一方、ナノテクノロジー分野において、光集積回路向けの微細加工技術として、高強度フェムト秒レーザーによる透明材料内部局所加工が注目され、光導波路²⁶⁾、光メモリー²⁷⁾、回折格子²⁸⁾、ビームスプリッター²⁹⁾、光カップラー³⁰⁾等の光学素子へと展開されつつある。光が透明媒質内部に集光されるこれらの応用では、異なる屈折率を有する材料の境界面における屈折に伴って球面収差が発生し、これが観察あるいは加工精度を劣化させる要因となる。特に、対物レンズの開口数が多いほど、あるいは集光位置が深いほど球

面収差によって集光部が肥大化することで、その影響が顕著となるため、波面制御技術により球面収差を補正する研究が盛んに行われている。

そこで我々は、フェムト秒レーザーに関するこれらの要求に応える為に、半導体レーザーで直接励起することで実現される小型な全固体フェムト秒レーザーの開発を目指した。この際、筆者は主にレーザー共振器の構築や光パルスの計測等の光学実験を担当し、得られた諸データの解析結果に対する共同研究者からの助言ならびに提案を得ることで研究が遂行された。さらに、フェムト秒レーザーの時間的な位相制御技術ならびに空間的な位相制御技術を開発すると共に、これらの技術をシステム化することによりフェムト秒レーザーの応用展開を図った。上記位相制御技術は、空間光変調器をキーデバイスとするものであり、空間光変調器の開発・改良については共同研究者が、空間光変調器の評価、空間光変調器を用いた波形整形器や光波面制御モジュールの開発、ならびに応用実験については筆者が担当した。また、位相制御技術を用いた研究を遂行するためには、位相制御された光の時間的・空間的な特性を評価する必要があるため、解析アルゴリズムに関する共同研究者の協力を得て、筆者が計測系の構築ならびに評価を行った。

1.2. 本研究の目的と概要

本研究は、フェムト秒光パルスの発生に関する技術、フェムト秒光パルスの時間的なならびに空間的な位相制御に関する技術を確立すると共に、これらの技術を様々な応用分野に展開することで、産業界においてフェムト秒レーザーを応用展開させることを目的としている。

フェムト秒光パルスの発生に関しては、操作性に優れたフェムト秒レーザーを実現することを目的として、半導体レーザーで直接励起することが可能な Cr:LiSAF ($\text{Cr}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$) レーザー媒質に着目した³¹⁻³³⁾。Cr:LiSAF レーザー媒質は、その吸収帯域が 630~680 nm にあるために、既存の半導体レーザーで直接励起することが可能なレーザー媒質である。同時に、利得帯域が 750~1000 nm と広いために、フェムト秒レーザーとして最も広く用いられている Ti:Sapphire と同等な超短パルス光を発生させることが可能である数少ないレーザー媒質である。一方、フェムト秒光パルスを発生させるためには発振波長帯域の広いレーザー共振器を構築する必要がある。そこで、CW発振状態においてレーザー共振器の発振波長帯域を検証するために、100 nm 以上の連続波長可変が可能であることを確認した³⁴⁾。次に、能動モード同期法によるピコ秒パルスの発生を試みた結果、88 nm の帯域にわたって 146~200 ピコ秒の光パルスが得られ、パルス発振動作時においてもレーザー共振器の帯域が維持されることを確認した³⁵⁾。これらの基礎評価を踏まえて、半導体レーザーでの直接励起による小型の全固体フェムト秒レーザーの実現を試みた^{36,37)}。この際、波長分散を補正するために用いるプリズム対の間にレーザー媒質を配置する新たな構成を考案し、この構成を用いることによってレーザー共振器を 25×16cm にまで小型化することに成功した^{38,39)}。

上記のフェムト秒光パルスの発生に関する研究により、フェムト秒レーザー実用化の目処が得られると共に、フェムト秒光パルスを取り扱う上での基礎技術ならびに知見が得られたため、次にフェムト秒レーザーの高機能化を実現するために位相制御技術に関する研究に着手した。フェムト秒レーザー

の時間的位相の制御に関しては、周波数領域において光パルスの位相を制御し、これをフーリエ変換することによって時間領域における光パルスの位相を高い自由度で制御する技術を用いた小型波形整形器を開発した。この際、画素構造を有しない光アドレス型空間光変調器を用いることによって画素構造に起因するサテライトパルスの発生が抑制されること、そして光アドレス型空間光変調器の誘電体多層膜鏡の反射率を高くすると同時に透明電極の反射率を低く抑えることにより位相変調に伴う強度変化が低減されることを解析的に検証した。同時に、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する光アドレス型空間光変調器⁴⁰⁾を開発することで、再生増幅された高強度フェムト秒レーザーの時間波形を直接制御することが可能な波形整形器を実現した⁴¹⁾。波形整形された高強度フェムト秒光パルスを透明材料の内部加工に適用することで、光と物質の相互作用を制御できることを実証した⁴²⁾。さらに、光と物質の相互作用が未知の状態においても、反応効率に関する情報を波形整形器にフィードバックすることで、その反応効率を自動的に向上させることが可能な適応型反応制御装置を開発した⁴³⁾。そして、制御アルゴリズムとしてシミュレーテッドアニーリング法を用いることで、ガラス媒質や光ファイバー伝播時に生じる波長分散⁴⁴⁾、あるいは非同軸光パラメトリック増幅時に生じる波長分散を自動的に補正できることを実証し、制御系の有意性を実証した。

フェムト秒レーザーの空間的位相の制御に関しては、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する LCOS 型空間光変調器を開発すると共に、波面制御を行うための光学系をモジュール化することでレーザー加工における波面制御技術の実用化を図った。従来のフェムト秒レーザー加工においては、レーザー光を1点に集光した状態で試料を走査する「1点走査加工」が用いられていたために、加工効率が悪く、産業界への応用展開を阻む要因となっていた。これに対して、本研究では、計算機ホログラム(Computer Generated Hologram, CGH)を用いた「3次元一括多点形成技術」を開発し^{45,46)}、この技術を用いることで内部加工の効率を大幅に向上させることに成功した。レーザー光を透明材料内部に集光する加工では、球面収差が発生することで集光部が肥大化し、これが加工精度を悪化させる要因となる。従来は、発生する球面収差を解析的に算出し、あらかじめ球面収差に相当する補正パターンを与えることによって球面収差を補正する試みがなされていたが、レンズの開口数が大きい場合、あるいは集光位置が深い場合には球面収差を精密に補正することができなかった。そこで、本研究では、光線を逆追跡することで球面収差を補正するパターンを算出する手法を考案し⁴⁷⁾、この手法を用いることによって球面収差が精密に補正されることを実験的に検証した。

1.3. 本論文の構成

本研究では、フェムト秒光パルスの発生技術ならびにその位相制御技術に関して理論的な解析を行うと共に、その結果を踏まえて操作性に優れたシステムの開発を目指した。さらに、開発したシステムを用いて制御技術の具体的な応用についての展開を試みた。従来のフェムト秒レーザー応用では、主に「高速性」や「超高電界」といった特性が利用されていたが、これに「光の位相」という新たな付加価値を取り入れることによりフェムト秒レーザーの新たな応用分野を開拓することを目指した。

第1章は序文であり、フェムト秒光パルスの発生・制御技術の現状と本論文のアプローチについて

述べた。第2章では、Cr:LiSAF レーザー媒質を半導体レーザーで直接励起することによる小型な全固体フェムト秒レーザーの開発について述べる。同時に、その広い利得線幅を利用した連続波長可変性、ピコ秒パルス発振、ならびにフェムト秒パルス発振に関して、その動作原理と特性について解析する。第3章では、フェムト秒レーザーの時間的な位相を制御する手法として考案された波形整形技術の動作原理を解析すると共に、その原理に基づいて開発した波形整形器の詳細、ならびに波形整形器を用いた応用研究について述べる。波形整形器の開発では、フェムト秒レーザーに含まれる周波数成分の位相を制御するために用いられる光アドレス型空間光変調器の耐光性に関する検討を行い、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する波形整形器を開発した結果を述べる。また、フェムト秒光パルスを評価するために、自己相関法、周波数分解光ゲート法、フーリエ変換スペクトル干渉法等の様々な計測法の原理を解析すると共に、これらの計測法を用いてフェムト秒光パルスを評価した結果について議論する。第4章では、フェムト秒レーザーの空間的な位相制御に関して、波面制御のための専用の光学系を構築する際の負担を軽減することを目的として開発した光波面制御モジュールの詳細を述べる。同時に、光波面制御モジュールで用いられる LCOS 型空間光変調器の耐光性に関する検討を行い、再生増幅された高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有するデバイスを開発した結果を述べる。また、計算機プログラムを用いた多点形成による加工効率の向上について述べると共に、透明材料内部において3次元一括多点加工を行った結果について述べる。さらに、透明材料内部に光を集光する場合に発生する球面収差を補正する技術を開発すると共に、補正技術を適用した場合の集光形状を解析することで加工品質の向上を図った結果を述べる。第5章で本論文の内容を統括し、今後の展望について述べる。

1.4. 第 1 章の参考文献

- 1) T. H. Maiman, "Stimulated optical radiation in ruby", *Nature* 187, 493 (1960).
- 2) A. Javan, W. R. Bennett, Jr., and D. R. Herriott, "Population inversion and continuous optical maser oscillation in a gas discharge containing a He-Ne mixture", *Phys. Rev. Lett.* 6, 106 - 110 (1961).
- 3) C. K. N. Patel, "Continuous-wave laser action on vibrational-rotational transitions of CO₂", *Phys. Rev.*, 136, A1187 - A1193 (1964).
- 4) J. E. Geusic, H. M. Marcos, and L. G. Van Uitert, "Laser Oscillations in Nd-doped yttrium aluminum, yttrium gallium and gadolinium garnets", *Appl. Phys. Lett.* 4, 182 (1964).
- 5) R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, and R. O. Carlson, "Coherent light emission from GaAs junctions", *Phys. Rev. Lett.*, 9, 366 - 368 (1962).
- 6) F. J. McClung and R. W. Hellwarth, "Giant optical pulsations from ruby", *J. Appl. Phys.* 33, 828 (1962).
- 7) L. E. Hargrove, R. L. Fork, and M. A. Pollack, "Locking of HeNe laser modes induced by synchronous intracavity modulation", *Appl. Phys. Lett.* 5, 4 (1964).
- 8) A. J. DeMaria, D. A. Stetser, and H. Heynau, "Self mode-locking of lasers with saturable absorbers", *Appl. Phys. Lett.* 8, 174 (1966).
- 9) E. B. Treacy, "Optical pulse compression with diffraction gratings", *IEEE J. Quantum Electron.*, 5, 454-458 (1969).
- 10) P. F. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al₂O₃," *J. Opt. Soc. Am. B* 3, 125-133 (1986).
- 11) 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).
- 12) M. Joffre, D. Hulin, J. P. Chambaret, A. Migus, A. Antonetti, and C. Benoit a' la Guillaume, in *Ultrafast Phenomena VI*, edited by T. Yajima, K. Yashihara, C. B. Harris, and S. Shionoya (Springer-Verlag, Berlin), 223 (1988).
- 13) A. Heisterkamp, I. Z. Maxwell, E. Mazur, J. M. Underwood, J. A. Nickerson, S. Kumar, and D. E. Ingber, "Pulse energy dependence of subcellular dissection by femtosecond laser pulses", *Opt. Express*, 13, 3690-3696 (2005).
- 14) R. Montés-Micó, A. Rodríguez-Galietero, J. Alió; "Femtosecond laser versus mechanical keratome LASIK for myopia", *Ophthalmology*, 114, 62-68 (2007).
- 15) B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, A. Tünnermann; "Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids", *Appl. Phys. A*, 63, 109-115 (1996).
- 16) S. Kawata, H-B. Sun, T. Tanaka, and K. Takada; "Finer features for functional microdevices," *Nature*, 412, 697-698 (2001).
- 17) A. H. Zewail. *Femtochemistry—ultrafast dynamics of the chemical bond*, Vols. I and II, World Scientific, New Jersey, Singapore (1994).
- 18) Paul Brumer, Moshe Shapiro, "Laser control of chemical reactions", *Scientific American*, March, 34-39 (1995).
- 19) Moshe Shapiro and Paul Brumer, "Controlled photon induced symmetry breaking: Chiral molecular products from achiral precursors", *J. Chem. Phys.* 95, 8658 (1991).
- 20) A.M. Weiner, "Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators," *Rev. Sci. Instrum.* 71,

- 1929–1969 (2000).
- 21) A. M. Weiner, D. E. Leaird, J. S. Patel, and J. R. Wullert, "Programmable femtosecond pulse shaping by use of a multielement liquid-crystal phase modulator", *Opt. Lett.*, **15**, 326–328 (1990).
 - 22) B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. Alvensleben and A. Tunnermann, "Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids", *Appl. Phys. A*, **63**, 109-115 (1996).
 - 23) W. Denk, J.H. Strickler, W.W. Webb, "2-Photon laser scanning fluorescence microscopy," *Science*, **248**, 73-76 (1990).
 - 24) A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm, and Steven Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles," *Opt. Lett.*, **11**, 288-290 (1986).
 - 25) T. Shirai, T. H. Barnes, and T. G. Haskell, "Adaptive wave-front correction by means of all-optical feedback interferometry," *Opt. Lett.*, **25**, 773-775 (2000).
 - 26) K. Miura, Jianrong Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu, and K. Hirao, "Photowritten optical waveguides in various glasses with ultrashort pulse laser", *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 3329-3331 (1997).
 - 27) Martin J. Booth, Michael Schwertner, Tony Wilson, Masaharu Nakano, Yoshimasa Kawata, Masahito Nakabayashi, and Sou Miyata, "Predictive aberration correction for multilayer optical data storage", *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 031109 (2006).
 - 28) Nobuhito Takeshima, Yoshihiro Narita, Shuhei Tanaka, Yutaka Kuroiwa, and Kazuyuki Hirao, "Fabrication of high-efficiency diffraction gratings in glass", *Opt. Lett.*, **30**, 352-354 (2005).
 - 29) D. Homoelle, S. Wielandy, Alexander L. Gaeta, N. F. Borrelli, and Charlene Smith, "Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses", *Opt. Lett.* **24**, 1311-1313 (1999).
 - 30) Alexander M. Streltsov and Nicholas F. Borrelli, "Fabrication and analysis of a directional coupler written in glass by nanojoule femtosecond laser pulses", *Opt. Lett.*, **26**, 42-43 (2001).
 - 31) D. Kopf, K. J. Weingarten, L. R. Brovelli, M. Kamp, and U. Keller, "Diode-pumped 100-fs passively mode-locked Cr:LiSAF laser with an antiresonant Fabry-Perot saturable absorber," *Opt. Lett.* **19**, 2143-2145 (1994).
 - 32) Michael J. P. Dymott and Allister I. Ferguson, "Self-mode-locked diode-pumped Cr:LiSAF laser producing 34-fs pulses at 42-mW average power," *Opt. Lett.* **20**, 1157-1159 (1995).
 - 33) D. Kopf, G. Zhang, R. Fluck, M. Moser, and U. Keller, "All-in-one dispersion-compensating saturable absorber mirror for compact femtosecond laser sources," *Opt. Lett.* **21**, 486-488 (1996).
 - 34) 青島紳一郎, 伊藤晴康, 黒柳和良; 「可視波長可変レーザー」, *光学*, **9**, 505-511 (1996).
 - 35) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, Kazuyoshi Kuroyanagi, Yoshihiro Takiguchi, Yasushi Ohbayashi and Yutaka Tsuchiya; "All solid-state Cr:LiSAF laser", *IEEE Transaction on Instrumentation and Measurement*, **44**, 972-976 (1995).
 - 36) 青島紳一郎, 伊藤晴康, 黒柳和良, 土屋裕; 「全固体Cr:LiSAFレーザーによる44フェムト秒パルスの発生」, *レーザー研究*, **23**, 996-1001 (1995).
 - 37) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh and Yutaka Tsuchiya; "Transform-limited 30-fs pulse generation", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, 2698-2700 (1997).
 - 38) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh and Yutaka Tsuchiya; "Compact Diode-pumped Cr³⁺:LiSrAlF₆ femtosecond laser", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, L114-L116 (1997).
 - 39) Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, Makoto Hosoda and Yutaka Tsuchiya; "Short cavity all-solid-State femtosecond Cr:LiSAF laser", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, 6380-6382 (1997).

- 40) Y. Igasaki, F. Li, N. Yoshida, H. Toyoda, T. Inoue, N. Mukohzaka, Y. Kobayashi and T. Hara; “High efficiency electrically addressable phase-only spatial light modulator”, *Opt. Rev.*, **6**, 339-344 (1999).
- 41) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 吉田成浩, 伊ヶ崎泰則, 細田誠; 「高強度レーザー用反射型波形整形システムと周波数分解ゲート法によるその特性評価」, *レーザー研究*, **28**, 511-515 (2000).
- 42) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 青島紳一郎, 土屋裕; 「高強度波形整形パルス光の加工への応用」, *電気学会 光・量子デバイス研究会資料*, OQD-03-9 (2003).
- 43) Taro Ando, Yoshiyuki Ohtake, Takashi Inoue, Haruyasu Itoh, Naoya Matsumoto, and Norihiro Fukuchi; “Shaping tight-focusing patterns of linearly polarized beams through elliptic apertures”, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 021116 (2008).
- 44) Haruyasu Itoh, Tsuneyuki Urakami, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Femtosecond pulse delivery through long multimode fiber using adaptive pulse synthesis”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, pp. 5761-5763 (2006).
- 45) 伊藤晴康, 大林寧, 原勉; 「空間光変調器によるレーザー光波面制御」, *機能材料*, **29**, 28-36 (2009).
- 46) 伊藤晴康, 大林寧, 田中博, 原勉; 「空間光変調器を用いた高強度フェムト秒レーザー光波面制御」, *オプトトニクス*, Vol.328, pp.218-223 (2009).
- 47) Haruyasu Itoh, Naoya Matsumoto, and Takashi Inoue, “Spherical aberration correction suitable for a wavefront controller”, *Opt. Express*, **17**, 13309–13314 (2009).

第2章 半導体レーザー励起小型Cr:LiSAFレーザーの開発

2.1. まえがき

1960年にT.H.Maimanがルビー結晶によりレーザー発振に成功して以来、数多くの固体レーザー媒質が開発されてきた。その利得帯域は紫外域から近赤外域に及ぶが、広範囲にわたって発振波長が可変であるレーザー媒質は数少ない。中でも、1990年初頭に開発されたTi:Sapphireレーザーは650~1100 nmの広い範囲にわたって波長可変制御が可能であるため、広帯域波長可変光源として、研究用、産業用として急速に発展した光源である。また、その広い利得帯域を利用して超短パルス光を発生させることが可能であるレーザー媒質であることから、その応用分野は超高速時間領域における物性評価等の基礎研究から透明材料内部加工等の産業用途の多岐にわたる。

一方で、Ti:Sapphireレーザーは、その吸収帯域が600 nmから短波長域にあるため、当初は励起源としてアルゴンイオン(Ar⁺)レーザーが用いられていた。Ar⁺レーザーは「高電圧電源」ならび「大型冷却系」等の環境設備の構築が必要不可欠であったため、レーザー装置そのものが大掛かりとなるだけでなく、アルゴンチューブの劣化(短寿命)や定期的なフィルター交換等のメンテナンスを要するため、操作性に優れているとは言いがたい装置であった。その後、半導体レーザー励起Nd:YLFや半導体レーザー励起Nd:YVO₄レーザーの飛躍的な出力の向上に伴い、その第二高調波が励起光源に用いられるようになった。しかし、固体レーザーの第二高調波を励起源とする手法は、構造が複雑であると共に電気-光変換効率が低いなどの題点が残積していたため、半導体レーザーで直接励起することができる小型な全固体フェムト秒レーザーの開発が強く望まれていた。半導体レーザーで直接励起されるフェムト秒レーザーが実現されれば、フェムト秒レーザーの小型化および低コスト化が実現され、産業応用への展開が可能となる。さらに、キースイッチ一つでフェムト秒光パルスを得ることが可能となるため、従来のフェムト秒レーザーと比較して操作性が飛躍的に向上する。操作性が向上することにより物理、化学、生物等の研究分野の科学者にとってフェムト秒レーザーが身近な光源となり、その研究分野の裾野が広げられる。その結果、これまで未知の領域であった超高速時間領域でのダイナミクスが解明されるようになると期待される。

このような背景の中、半導体レーザーで直接励起することが可能なCr:LiSAF¹⁻⁶⁾、Cr:LiCAF(C³⁺:LiCaAlF₆)⁷⁻⁹⁾が注目されるようになった。特に、Cr:LiSAFは吸収帯域が630~680 nmにあるために既存の半導体レーザーでの直接励起が可能であると同時に、利得帯域が750~1000 nmと広いためにTi:sapphireと同等な超短パルス光を発生させることが可能な数少ないレーザー媒質であり、広帯域波長可変¹⁰⁾、超短パルス発生¹¹⁾、光増幅¹²⁾等の研究が盛んに行われるようになった。我々もいち早くCr:LiSAFに着目し、広帯域波長可変、ならびに超短パルス発生に関する研究を開始した。

本研究では、Cr:LiSAFレーザー媒質を用いた広帯域波長可変、ピコ秒パルス発生¹³⁾、フェムト秒光パルス発生¹⁴⁻¹⁵⁾等を経て、最終的に半導体レーザー直接励起による小型フェムト秒レーザーを実現した¹⁶⁻¹⁷⁾。本章では、実験結果を中心として、開発したCr:LiSAFレーザーの諸特性を示す。

2.2. 広帯域連続波長可変レーザー発振

2.2.1. はじめに

Cr:LiSAFは、S. A. Payneらによって開発された一軸性結晶である。図2-1の吸収および放出スペクトルに示されるように、利得帯域が750~1000 nmと広いために広帯域波長可変性を有すると共に、吸収のピークが630~680 nmにあるために既存の赤色半導体レーザーでの直接励起が可能であるといった特徴を有する。一方で、表2-1に示されるように、誘導放出断面積が他の波長可変レーザー媒質と比較して低いために発振しきい値が高い結晶でもある。加えて、熱拡散係数が低い上に、熱膨張係数がC軸に対して平行な場合と垂直な場合とで符号が異なるために、熱的な影響を受けやすいレーザー媒質である。結果として、発振効率が共振器内の損失に大きく影響される。このため、励起時に発生する熱が十分に放熱されないと、光出力が飽和し、さらにはレーザー発振が停止するという問題が生じる。したがって、十分な光出力を得ると同時に、広帯域連続波長可変を実現するためには、これらの点を考慮してレーザー共振器を綿密に設計する必要がある。

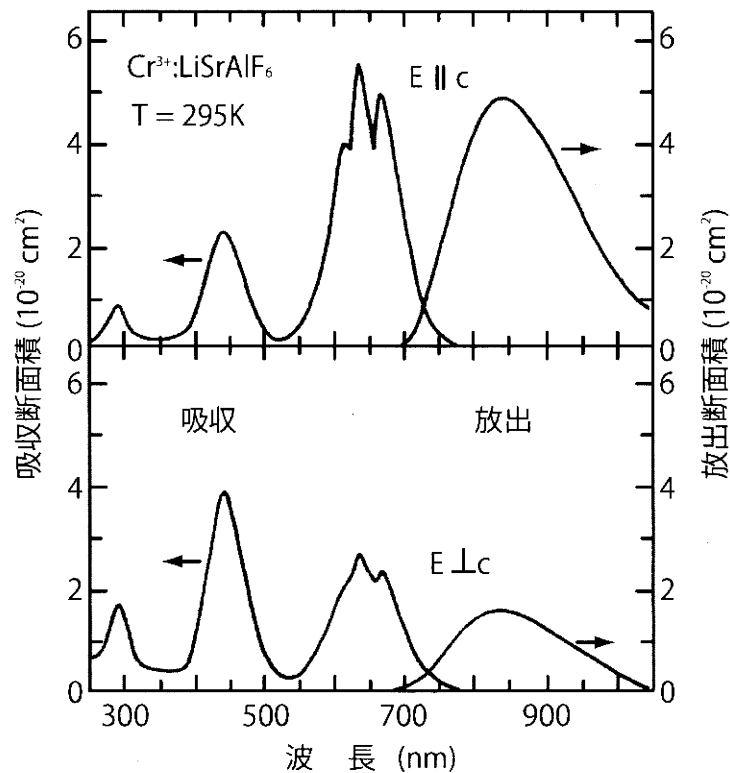


図 2-1 Cr:LiSAF 結晶の吸収スペクトルおよび放出スペクトル

表 2-1 代表的な固体レーザー媒質の諸特性

特性項目	Cr:LiSAF (Cr ³⁺ :LiSrAlF ₆)	Ti:Sapphire (Ti ³⁺ :Al ₂ O ₃)	Cr:Forsterite (Cr ⁴⁺ :Mg ₂ SiO ₄)	Nd:YAG (Nd ³⁺ :Y ₃ Al ₅ O ₁₂)	Yb:YAG (Yb ³⁺ :Y ₃ Al ₅ O ₁₂)
波長可変範囲 [nm]	780-1010	650-1100	1130-1348	1064±0.2	1025-1034
誘導放出断面積 [10 ²⁰ cm ²]	4.8	30	14.4	40	2.0
蛍光寿命 [μsec]	67	3.2	25	230	1200
熱伝導率 [W/m°C]	3.3 (∥ c) 3.0 (⊥ c)	33	8	14	14
熱膨張係数 [10 ⁻⁶ /K]	-10 (∥ c) 25 (⊥ c)	8.4	9.5	7	8.2 [100] 7.2 [110] 7.8 [111]
屈折率	1.4	1.76	1.6	1.8	1.8
dn/dT [10 ⁻⁶ /°C]	-4.8 (∥ c) -2.5 (⊥ c)	12.6	2.8	8.9	9

2.2.2. 実験結果及び考察

利得帯域の広いレーザー媒質の場合、レーザー共振器内に波長選択素子を挿入することにより波長可変が可能となる。ただし、前述したように Cr:LiSAF は共振器内の損失に大きく影響されるため、波長選択素子として挿入損失の低いプリズムを用いる方法が有効である。また、広帯域連続波長可変と同時に高出力化を図るためには出力鏡の反射率を最適化する必要がある。そこで、図 2-2 に示す構成により出力鏡の反射率の最適化を図った。Cr³⁺が3%ドープされた5mm立方体の結晶の励起光入射端面には、励起波長において高透過率、発振波長において高反射率を示す誘電体多層膜鏡が施されており、この面を共振器鏡として用いた。結晶端面を共振器鏡として用いることにより、端面における損失が低減されると共に共振器の調整が容易となる。また、図 2-1 の吸収スペクトルに示されるように、Cr:LiSAFは励起光の偏光依存性が低い結晶であるので、励起光に偏光が直交するように配置された半導体レーザー（中心波長 681 nm および 682 nm）の出力光を偏光ビームスプリッターで合成したものをを用いた。尚、結晶の温度は、結晶端面の結露を避けると共に後述する熱の影響を低減させるために 17 °Cとした。

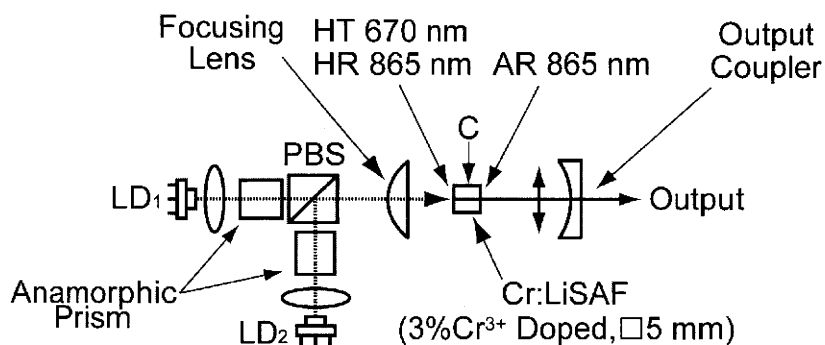


図 2-2 出力鏡最適化のために用いたレーザー共振器の構成

上記構成において、出力鏡(曲率半径 100 mm)の反射率を 99.8 %および 99.2 %とした場合の諸特性を表 2-2 に示す。反射率が 99.8 %の出力鏡を用いた場合の発振しきい値は 27.5 mW であり、反射率が 99.2 %の出力鏡を用いた場合には発振しきい値が 76.2 mW にまで増加した。表には記載していないが、反射率が 99.2 %以下の出力鏡では発振させることすら困難となった。一方、反射率が 99.8 %の出力鏡を用いた場合の最大出力光強度は 56.1 mW(励起光強度 311.2 mW)であり、反射率が 99.2 %の出力鏡を用いた場合の最大出力光強度は 60.1 mW(励起光強度 283.2 mW)にまで増加した。ところが、どちらの場合にも、励起光強度を最大出力光強度が得られる励起光強度以上とすると、出力光強度が低下するという問題が確認された。これは、熱膨張係数の符号が異なるために、励起光強度の増加に伴って結晶内に発生する熱歪の状態が不均一となり、共振状態を維持できなくなるためだと考えられる。以上の結果より、波長可変を行う上での最適な反射率は 99.2 %と判断された。

表 2-2 出力鏡によるレーザー発振特性の変化

励起光源	励起波長 [nm]	出力鏡反射率 [%]	発振中心波長 [nm]	発振しきい値 [mW]	スロープ効率 [%]	最大光出力 (励起光強度) [mW]
LD	681	99.8	865	27.5	21.3	56.1 (311.2)
	682	99.2	865	76.2	29.1	60.1 (283.2)

次に、図 2-3 に示されるように、レーザー共振器内にプリズムを挿入する従来法を用いて波長可変を試みた。上記実験により、出力鏡の反射率は 99.2 %が最適であることが確認されているため、本実験においても反射率 99.2 %の出力鏡を用いることとした。また、凹面鏡のあおりを調整することによって発振波長を制御し、励起光強度は結晶の励起光入射端面直前において 283 mW とした。

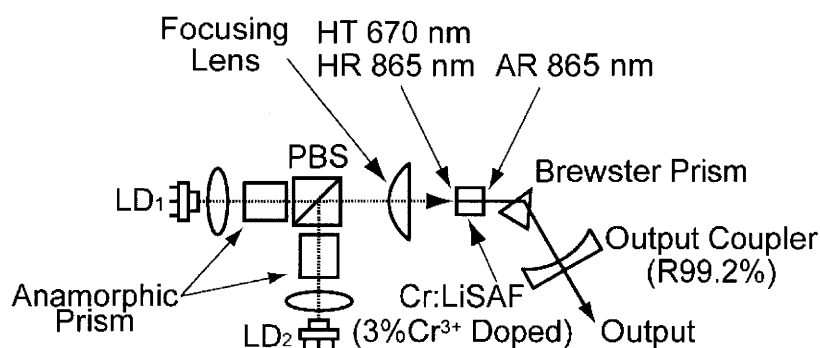


図 2-3 従来法による波長可変 Cr:LiSAF レーザーの構成

従来法により得られたチューニングカーブを図 2-4 に示す。最大出力光強度は 844 nm において 40 mW、波長可変範囲は 53.1 nm であった。

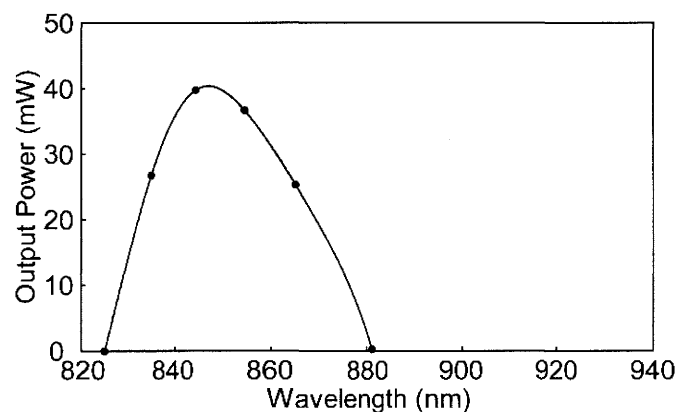


図 2-4 従来法により得られた波長可変 Cr:LiSAF レーザーのチューニングカーブ

図 2-3 に示される構成では、Cr:LiSAF の利得が最も高い 865 nm に対して設計されたブリュースタープリズムが用いられているが、それ以外の波長の光ではブリュースター条件を満足できないため、これが損失となって波長可変領域を制限する要因になると考えられる。特に、図 2-3 に示される構成ではプリズムに発散光が入射されるため、その影響は顕著となる。そこで、凹面鏡で光路を折り返し、平面鏡を出力鏡とする図 2-5 の構成により波長可変を試みた。この構成では、凹面鏡でコリメートされた平行光がプリズムに入射するため、プリズム挿入による損失が低減される。

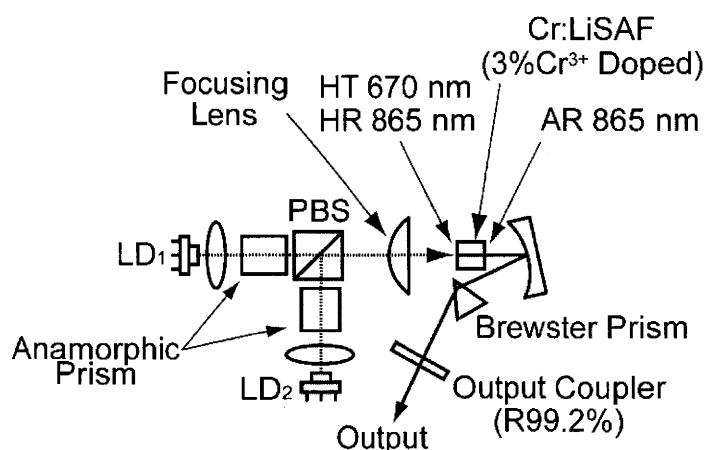


図 2-5 プリズムに平行光が入射する構成(従来法)による波長可変 Cr:LiSAF レーザーの構成

プリズムに平行光が入射する従来法により得られたチューニングカーブを図 2-6 に示す。最大出力光強度は 865 nm において 16.7 mW、波長可変範囲は 63.8 nm であった。

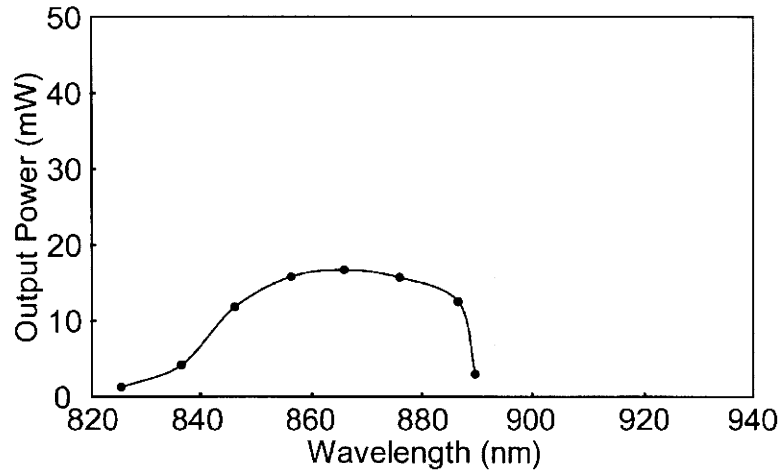


図 2-6 プリズムに平行光が入射する従来法により得られたチューニングカーブ

プリズムに入射する光を平行光とすることにより波長可変範囲が拡大されたが、共振器内に挿入されたプリズムによる損失が波長可変範囲を制限していると考えられる。そこで、我々は副共振器により波長を選択する波長選択自己注入同期法を開発した。図 2-7 は、開発したレーザー共振器の構成である。結晶端面に施された全反射鏡から反射率が 99.2 %の凹面鏡までが主共振器であり、後段の平面全反射鏡までが副共振器となる。副共振器では、主共振器からの出力光がコリメートレンズにより平行光となり、プリズムで分光された後に、任意の波長成分が主共振器に注入される。その結果、主共振器では、副共振器から注入された波長成分に同期してレーザー発振波長が制御される。すなわち、副共振器は、波長を選択・純化して所望の波長成分を主共振器へフィードバックすることにより、レーザーの発振波長を制御する波長選択機能を有する。また、出力光を取り出すために、一方の端面に反射防止膜が、他方に約 9 %の反射率を有する誘電体多層膜鏡が施されたガラス基板をコリメートレンズとプリズムの間に配置した。2方向に出力されるガラス端面からの反射光の一方を全反射鏡により副共振器に戻し、他方を出力光として取り出した。コリメートレンズとプリズムとの間にガラス基板を配置する構成とすることにより、光出力の増加、ならびに波長可変範囲の広帯域化が図れると共に、ビーム広がり小さく、ビーム位置の安定した出力光を得ることが可能となる。また、副共振器を用いる構成では、主共振器は常に発振している状態が維持されるため、共振器の調整が容易になるという利点を有する。

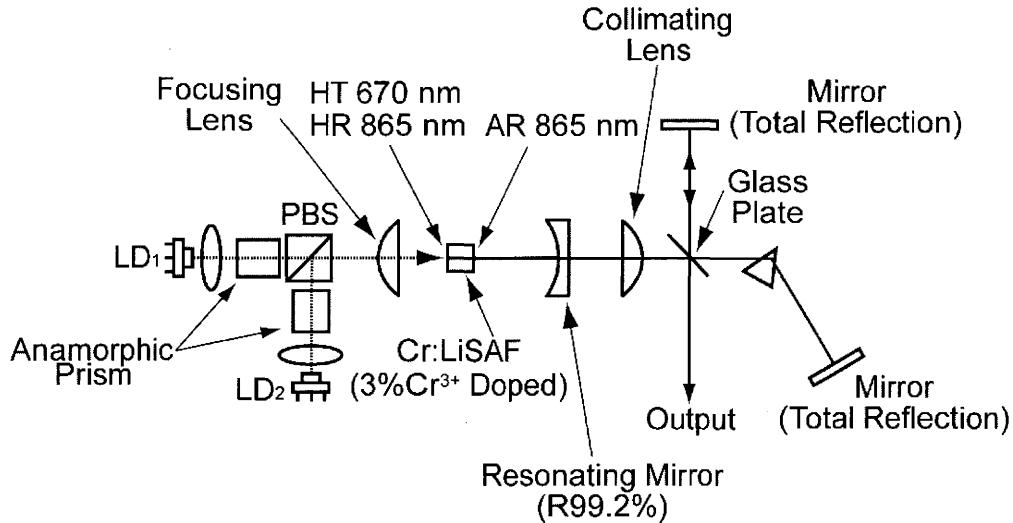


図 2-7 波長選択自己注入同期法によるレーザー共振器の構成

図 2-8 に、波長選択自己注入同期法により得られたチューニングカーブを示す。最大出力光強度は 887 nm において 41 mW、波長可変範囲は 100.7 nm に達した。副共振器内のレンズ、プリズム、および全反射鏡の損失を無視した場合、副共振器から主共振器に再注入される光強度は、主共振器の出力光強度の 0.65 % 程度に過ぎないにもかかわらず、そのわずかな光帰還により主共振器の発振状態が制御され、波長可変領域が広帯域化されたことになる。

この様に、我々が開発した波長選択自己注入同期法では、副共振器を波長選択手段として用いることにより、容易に広帯域連続波長可変制御が可能となる以外に、以下に示す特徴を有する。まず、従来法では波長可変領域両端ではレーザー発振が停止するが、波長選択自己注入同期法では短波長端 (821.8 nm) で 8.5 mW、長波長端 (922.5 nm) で 25.8 mW が得られると共に、全帯域にわたってほぼフラットな光出力が得られる。さらに、主共振器内を光学素子が含まれない最も単純な構成とすることができるために、Cr:LiSAF のように損失の影響を受けやすいレーザー媒質以外にも、利得の低いレーザー媒質や励起光強度が低い場合にも有効な手法である。

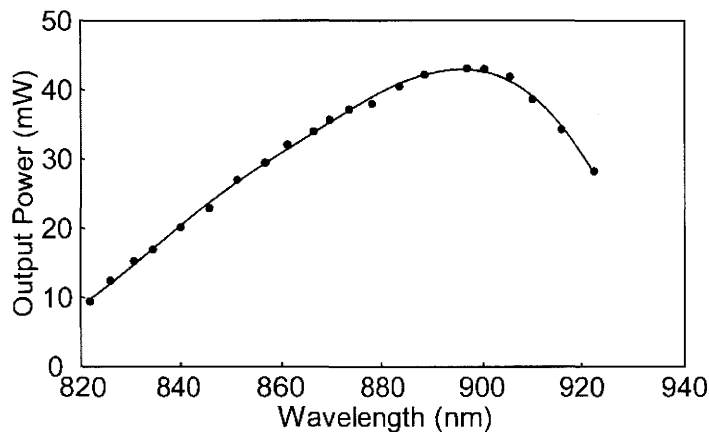


図 2-8 波長選択自己注入同期法により得られた Cr:LiSAF レーザーのチューニングカーブ

2.3. 超短パルスレーザー発振

2.3.1. はじめに

Cr:LiSAFは利得帯域が750~1000 nmと広いために、広帯域波長可変が可能なレーザー媒質であると共に、超短光パルスを発生させることが可能なレーザー媒質でもある。超短光パルスの発生においては、利得帯域に含まれる光の位相を揃える必要があり、そのために様々なモード同期法が用いられる。モード同期法は、能動モード同期法と受動モード同期法とに大別され、それぞれ下記に示す特徴を有する。

能動モード同期法では、レーザー共振器内に配置される外部変調器の変調周波数と、レーザー共振器の共振周波数とを一致させることで、共振器中に存在する縦モードの発振が共通の位相項に固定(モードロック)され、そのフーリエ変換として短パルス光が発生する。変調器としては、音響光学素子(A-O変調器)等の強度変調器、電気光学素子(E-O変調器)等の位相変調器、あるいは励起電流変調器等が用いられる。ただし、これらの変調器は外部からの電気信号によって駆動されるため、その変調速度には限界があり、得られるパルス幅としてはピコ秒オーダーが限界となる。

一方、受動モード同期法では、レーザー共振器内に非線形な吸収係数を有する媒質、もしくは非線形な屈折率を有する媒質が挿入され、これらの媒質を変調器として用いる。前者の場合、過飽和吸収体を用いられる場合が多く、色素レーザーの場合にはエチレングリコールにDODCI等の過飽和色素を溶かしたものが用いられていたが、色素が劣化するために定期的に追加、もしくは交換する必要があった¹⁸⁾。そのため、近年の固体レーザーでは半導体からなる過飽和吸収体(Semiconductor Saturable Absorber Mirrors, SESAM)が主流となっているが¹⁹⁾、やはり長期的な劣化は避けられない。一方、非線形な屈折率を有する媒質としては、光強度で屈折率が変化するカー媒質が用いられる。近年、フェムト秒レーザーとして最も広く用いられているTi:Sapphireレーザーの場合には、レーザー媒質そのものがカー媒質として用いられる。ただし、カー効果を利用したカーレンズモード同期法²⁰⁾は自己発振することができないため、変調器や、振動器等を用いて外部から何らかの変調を加えることによって、モード同期を誘発させる必要がある。一方、カーレンズモード同期法は、戻り光に対して非常に敏感であり、レンズ等の端面反射光が共振器内に戻されると、モード同期発振からCW発振に推移してしまうという弱点を有する。いずれの場合も電気信号を用いておらず、その変調速度は媒質の応答速度(フェムト秒オーダー)に起因するため、フェムト秒光パルスを発生させるためにはいずれかの受動モード同期法を用いる必要がある。

我々は、モードロッカーを用いた能動モード同期法によりピコ秒パルス発振を、そしてカーレンズモード同期法によりフェムト秒パルス発振を実現した。その詳細を以下に示す。

2.3.2. 能動モード同期法によるピコ秒パルスレーザー発振

レーザー共振器中には多くの縦モードが存在するが、通常はこれらの縦モードの相対的な位相がランダムであるため、レーザー出力光強度は時間的に一定となる。すなわち、連続(CW)発振となる。音響光学素子を用いた能動モード同期では、音響光学素子によって共振器内に強度変調を与えること

によってパルス発振させる手法である。この際、変調周波数と縦モードの間隔とを一致させることによって、縦モードの相対的な位相が変調器の変調周波数に同期する。これにより、様々な縦モードが同期してレーザー発振することになるため、これらの縦モードの干渉の結果として短パルスが得られることになる。ただし、レーザー共振器内にはレーザー媒質等の様々な光学素子が含まれており、その屈折率が波長ごとに異なるため、縦モード間に時間的な遅延を生じさせる。すなわち、音響光学素子を用いた能動モード同期法では、縦モードの相対的な位相を同期させることはできても、絶対的な位相を制御することができない。その結果、利得の高い、あるいは共振器内における損失が低い縦モードが優先的にレーザー発振し、その他の縦モードはレーザー発振が抑制されるため、発生する光パルスのパルス幅はピコ秒オーダーに制限される。また、電気信号に起因した音響波は低速なシャッターとして機能するため、縦モードの位相を厳密に制御することができないこともパルス幅を制限する要因となる。

図 2-9 は、我々が開発した半導体レーザー直接励起による波長可変ピコ秒 Cr:LiSAF レーザーの構成である。結晶には、(a)Cr³⁺のドーピング量が 3.0 % で一辺が 5 mm の立方体、(b)Cr³⁺のドーピング量が 5.5 % で中心部の長さが 10 mm の平面/ブリュースター面のもの、(c)Cr³⁺のドーピング量が 15.0 % で厚みが 0.5 mm のものと、合計 3 種類の結晶を用いた。Cr³⁺のドーピング量が多いほど励起光の吸収量が増加する反面、結晶内に蓄積される熱の影響が大きくなるため、励起光の光強度は結晶入射端面直前においてそれぞれ(a)315 mW、(b)315 mW、(c)183 mW に制限された。特に、Cr³⁺のドーピング量が 15.0 % の結晶では、183 mW 以上の励起光強度ではレーザー発振が停止した。全ての結晶の片端面には励起波長 (670 nm) において高透過率、レーザーの発振波長域 (865±50 nm) において高反射率を示す誘電体多層膜鏡が施されており、この面を共振器鏡として用いた。変調器には、プリズム型のモードロッカー (コヒーレント社、MODEL 468) を用いた。前記モードロッカーの共振周波数が 106 MHz であるため、レーザーの共振器長を 141 cm とした。また、出力鏡には、反射率が 98.6 % の誘電体多層膜鏡を用いた。

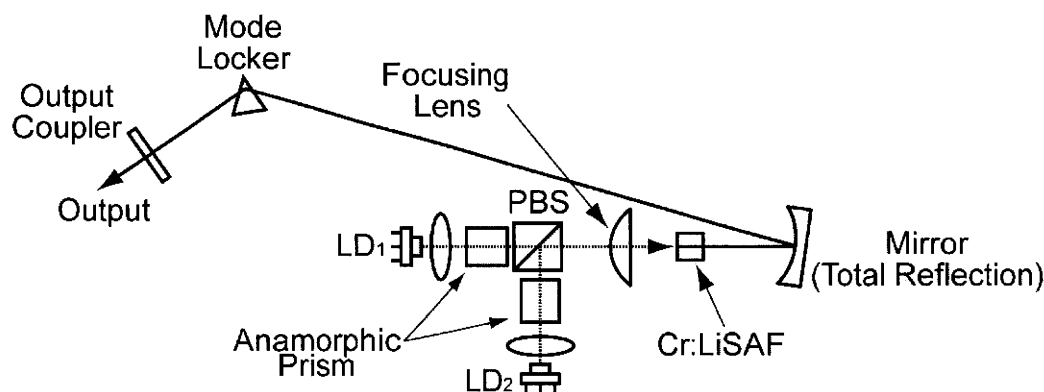
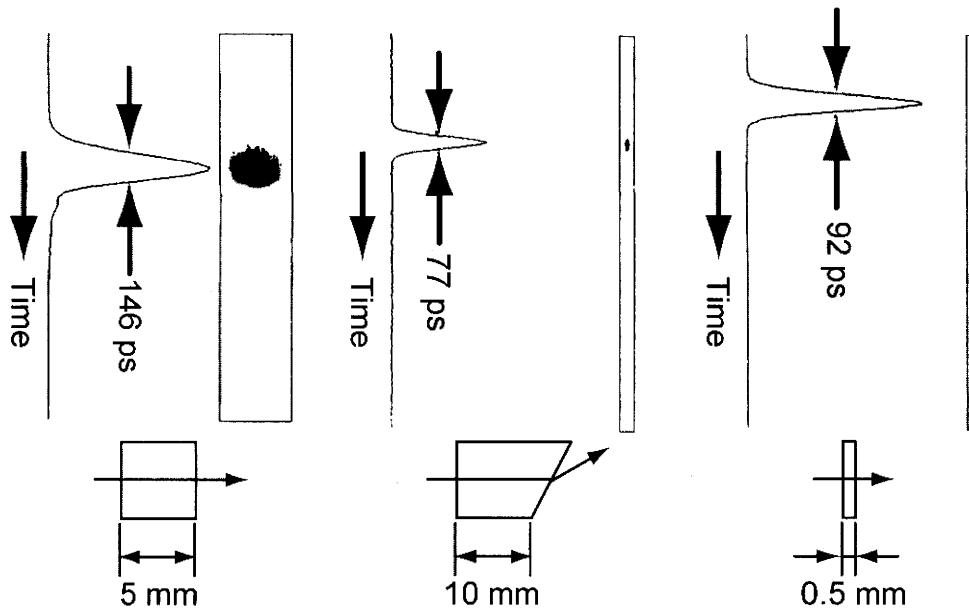


図 2-9 広帯域波長可変ピコ秒 Cr:LiSAF レーザーの構成

各結晶の断面形状と、それぞれの結晶を用いてモード同期発振させた場合に得られた典型的なストリーク像を図 2-10 に、実験結果の一覧を表 2-3 に示す。最も短いパルス幅が得られたのは、(b)Cr³⁺

のドーパ量が 5.5 %で平面／ブリュースター面の形状の結晶を用いた場合であり、パルス幅 77 ps の光パルスが得られた。これは、結晶端面をブリュースター面とすることにより、結晶とプリズム形状のモードロッカーとがプリズム対に近い役割を担い、一部の波長分散が補正されたためであると推測される。(a)Cr³⁺のドーパ量が3.0%で一辺が5 mmの立方体の結晶を用いた場合には、結晶により波長分散が増強されたためにパルス幅が広がり、逆に(c)Cr³⁺のドーパ量が 15.0 %で厚みが 0.5 mmの結晶を用いた場合には結晶長が短いために波長分散が低減されたためにパルス幅が短くなったと推測される。



(a) Cr³⁺3%ドーパ結晶 (b) Cr³⁺5.5%ドーパ結晶 (c) Cr³⁺15%ドーパ結晶

図 2-10 ストリークカメラによるパルス幅計測結果(上段:ストリーク像、下段:結晶断面形状)

表 2-3 様々な結晶を用いた場合のピコ秒パルスレーザーの諸特性

Cr ³⁺ ドーパ量 [%]	励起光強度 [mW]	出力光強度 [mW]	中心波長 [nm]	スペクトル幅 [nm]	パルス幅 [ps]	波長可変範囲 [nm]
(a) 3.0	315	5.0	807	1.03	146	807-895
(b) 5.5	315	0.9	892	1.26	77	-
(c) 15.0	183	0.1	866	1.33	92	-

本実験ではプリズム形状のモードロッカーを用いているため、出力鏡のあおりを調整することによって発振波長を制御すること可能である。そこで、ピコ秒パルスレーザー発振と同時に波長可変を試みた。波長可変領域を広帯域化するためには、共振器内の強度を上げる必要があるため、上記実験において最も高い出力が得られた(a)Cr³⁺のドーパ量が3.0%で一辺が5 mmの立方体の結晶を用いた。この時の発振波長に対する出力光強度、ならびにパルス幅を計測した結果を図 2-11 に示す。807 ~ 895 nmの 88 nm にわたって 146 ~ 200 ps の光パルスが得られた。最大出力光強度は 851 nm において 5.0 mW、最短パルス幅は 851 nm において 146 ps であった。

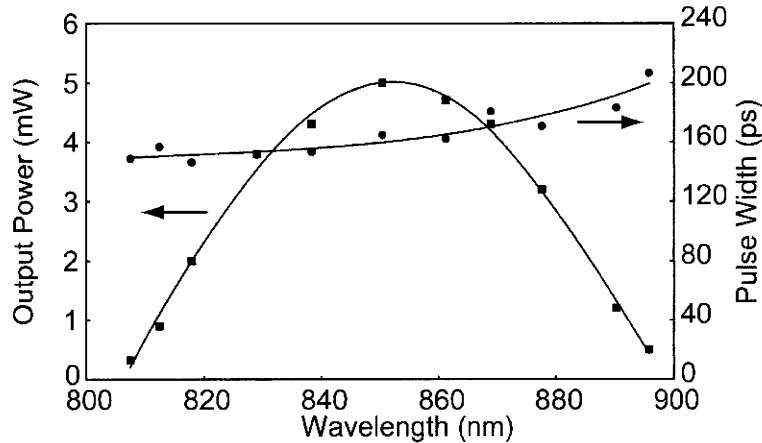


図 2-11 Cr³⁺が3%ドープされた結晶を用いた場合の入出力特性およびチューニングカーブ

2.3.3. 受動モード同期法によるフェムト秒パルスレーザー発振

Cr:LiSAF レーザー媒質は、広帯域波長可変性を有すると同時に、その広い利得帯域を利用してフェムト秒光パルスを発生させることが可能である。先に述べた能動モード同期法では、その特性上、位相が同期される縦モードの帯域が制限される。一方、非線形な吸収変化、あるいは非線形な屈折率変化を利用する受動モード同期においては、その媒質が音響光学素子や電気光学素子を上回る速度で応答するため、より広い帯域において縦モードの位相を同期させることが可能となる。さらに、パルス幅を広げる要因となる波長分散を補償することにより、レーザー媒質の持つ利得帯域を最大限に利用することが可能となる。我々は、最も簡便な手法である、カーレンズモード同期法とプリズム対による分散補償技術の組み合わせにより、最短パルス幅 30 fs を得ることに成功した。カーレンズモード同期法は、レーザー媒質における非線形な屈折率変化を利用した受動モード同期であり、下記原理に基づいて実現される。

レーザー共振器内の光強度が十分に高くなると、レーザー媒質の非線形屈折率に順じた屈折率分布が生じる。軸励起(端面励起)の固体レーザーの場合、強度分布が光軸を中心としたガウス型分布となるため、レーザー媒質内部に光軸に近いほど屈折率が高い分布が生じる。さらに、何らかの外乱によって共振器内に種パルスが発生すると、屈折率分布がさらに増強される。カーレンズ効果の増強とパルス光ピーク強度の増強との相乗効果の結果、結晶内部に実効的なレンズ(カーレンズ)が形成されるため、共振器終端部では図 2-12 に示すように光軸近傍にパルス成分が、周辺に CW 成分が分布するようになる。したがって、この部分にスリット等を配置して周辺部の CW 成分を遮断することで、パルス成分を選択的に発振させることが可能となる。この様に、スリット等によって機械的に CW 成分を遮断する手法をハードアパーチャー効果と呼ぶ。ただし、この方法は共振器内に機械的な損失を発生させることになるため、十分な共振器内光強度が得られず、さらに共振器内の損失の影響を受けやすい Cr:LiSAF には適さない方法である。これに対して、レーザー媒質両端の凹面鏡の配置を、ハードアパーチャー効果が成立する状態からわずかにずらすことによって、光軸中央部のパルス成分は共

振するが周辺部の CW 成分は共振しないという、空間的な利得(損失)分布が形成される。これをソフトアパーチャー効果と呼び、機械的な損失が生じないため Cr:LiSAF には適した方法である。以下の報告では、ソフトアパーチャー効果によるカーレンズモード同期法により、フェムト秒光パルスを発生させた。また、終端の平面鏡を振動させることにより種パルスを発生させて、カーレンズモード同期を誘発させた。

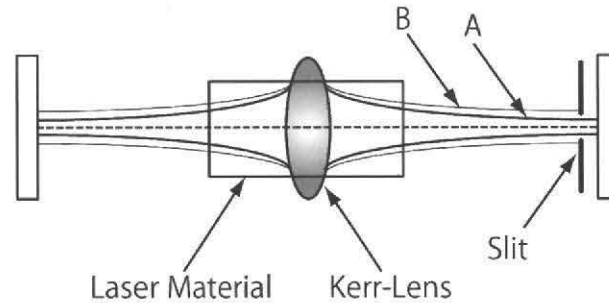


図 2-12 カーレンズモード同期の概念

(A:ピークパワーが大きい光(パルス成分)の分布、B:ピークパワーが小さい光(CW成分)の分布)

カーレンズモード同期法によって縦モードの相対的な位相関係を同期することが可能となるが、共振器に含まれるレーザー媒質等の光学媒質や誘電体多層膜鏡等によって縦モード間の時間遅延、すなわち波長分散が生じる。これらの波長分散は、以下に示すように解析的に算出することが可能である。

(a) 光学素子の波長分散

レーザー共振器には、レンズ、プリズム、音響光学素子、電気光学素子、あるいはレーザー媒質といった様々な光学素子が用いられる。これらの光学素子の屈折率はレーザー光の波長によって異なり、その波長依存性 $n(\lambda)$ はセルマイヤー・ヘルムホルツの式

$$n(\lambda)^2 = 1 + \sum_{i=1}^m \left[A_i \lambda^2 / (\lambda^2 - \lambda_i^2) + B_i \lambda^2 / (\lambda^2 - \lambda_i^2) \right] \quad (2-1)$$

により表される。 A_i 、 B_i 、 λ_i 、 m は媒質により異なり、実験的に求められている定数である。例えば、BK7 ガラスに対しては、 $m=3$ 、 $A_1=1.03961212$ 、 $B_1=0.00600069867$ 、 $A_2=0.231792344$ 、 $B_2=0.0200179144$ 、 $A_3=1.01046945$ 、 $B_3=103.560653$ であり、図2-13に示すようにCr:LiSAFの利得帯域においては波長の増加と共に屈折率が減少する。その結果、レーザー光がこれらの光学素子内部を伝播する際に光路長差、すなわち波長分散が生じることになる。

ここで、中心角周波数 ω_0 で媒質中を伝播する光パルスの複素電場 $E(t)$ を、振幅 $A(t)$ および位相 $\phi(\omega)$ を用いて

$$E(t) = A(t) \exp\{j\omega_0 t + \phi(\omega)\}$$

と表す。位相 $\phi(\omega)$ は中心角周波数 ω_0 を中心にテーラー展開することにより

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + \dot{\phi}(\omega) \Big|_{\omega=\omega_0} \times (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!} \ddot{\phi}(\omega) \Big|_{\omega=\omega_0} \times (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{3!} \dddot{\phi}(\omega) \Big|_{\omega=\omega_0} \times (\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2-2)$$

と表される。各係数は媒質の長さ z 、光速 c 、および屈折率 $n(\lambda)$ を用いて以下の様に関係付けられる。

$$\dot{\phi}(\omega) = z \left\{ n(\lambda_0) - \lambda_0 \frac{dn(\lambda)}{d\lambda} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right\} / c \quad (2-3)$$

$$\ddot{\phi}(\omega) = z \left\{ \frac{\lambda_0^3}{2\pi c^2} \times \frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right\} \quad (2-4)$$

$$\dddot{\phi}(\omega) = -z \left[\frac{\lambda_0^4}{4\pi^2 c^3} \times \left\{ 3 \frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2} \Big|_{\lambda=\lambda_0} + \lambda \frac{d^3 n(\lambda)}{d\lambda^3} \Big|_{\lambda=\lambda_0} \right\} \right] \quad (2-5)$$

上記係数が媒質の持つ位相分散となり、このうち位相の1次微分 $\dot{\phi}(\omega)$ の項は単純な時間シフトを表すものであり、パルス波形に影響を及ぼすのは2次位相分散 $\ddot{\phi}(\omega)$ 以上の項となる。一般に、光学素子の波長分散は正常分散(符号がプラス)となる。

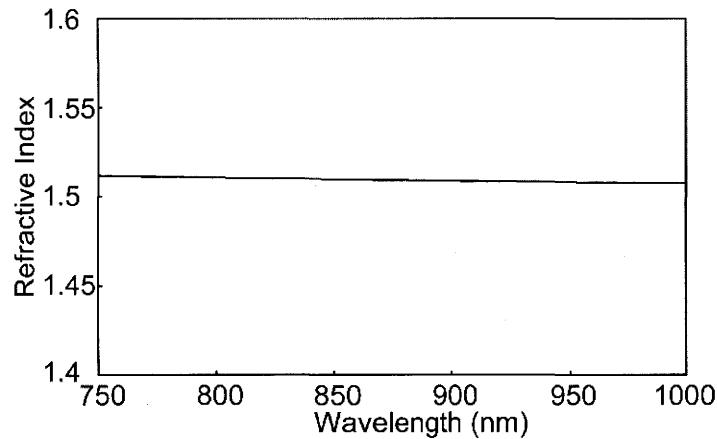


図2-13 BK7ガラスの屈折率

(b) 誘電体多層膜鏡の波長分散

レーザー共振器鏡として用いられる誘電体多層膜鏡は、光学膜厚が入射光の波長の1/4となるように、高屈折誘電体膜(屈折率 n_H)と低屈折誘電体膜(屈折率 n_L)とがガラス基板(屈折率 n_{sub})上に交互に蒸着されたものである。各膜の境界面からの反射光が互いに多重干渉し、膜数の増加と共に広い帯域にわたって高反射率を示す。この場合、 N 層重ねられた誘電体多層膜鏡の角周波数 ω における複素振幅反射係数 $r_{2N+1}(\omega)$ は

$$\begin{aligned} r_{2N+1}(\omega) &= \frac{(\mu_0 A_N' - \mu_{sub} D_N') + j(\mu_0 \mu_{sub} B_N' - C_N')}{(\mu_0 A_N' + \mu_{sub} D_N') + j(\mu_0 \mu_{sub} B_N' + C_N')} \\ &= X + jY \end{aligned} \quad (2-6)$$

と表される。 μ_0 、 μ_{sub} はそれぞれ誘電体多層膜がおかれた媒質（一般に空気）およびガラス基板の透磁率、 A_N' 、 B_N' 、 C_N' 、 D_N' はそれぞれABCDマトリックスの各係数である。ここで、誘電体多層膜鏡が空气中（屈折率 n_0 ）において用いられるとし、入射角を θ_0 、設計中心波長を λ_{center} 、入射光の中心波長を λ とすると、誘電体膜1層あたりの位相差 β は

$$\beta = \frac{\pi\lambda_{center}}{2\lambda} \quad (2-8)$$

と表される。ここで、反射電磁波の電場成分と磁場成分とを与える特性マトリックス M は

$$M_{2N} = \begin{pmatrix} A_N & iB_N \\ iC_N & D_N \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & iB \\ iC & D \end{pmatrix}^N \quad (2-9)$$

または

$$M_{2N+1} = \begin{pmatrix} A_N' & iB_N' \\ iC_N' & D_N' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_N & iB_N \\ iC_N & D_N \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A' & iB' \\ iC' & D' \end{pmatrix} \quad (2-10)$$

であるから、ABCDマトリックスの各係数が以下のように求められる。

$$\left. \begin{aligned} A &= \cos^2 \beta - (\mu_L / \mu_H) \times \sin^2 \beta \\ B &= (1 / \mu_H) \times \cos \beta \sin \beta + (1 / \mu_L) \sin \beta \cos \beta \\ C &= \mu_H \sin \beta \cos \beta + \mu_L \cos \beta \sin \beta \\ D &= -(\mu_H / \mu_L) \sin^2 \beta + \cos^2 \beta \\ A' &= \cos \beta \\ B' &= (1 / \mu_L) \times \sin \beta \\ C' &= \mu_L \times \sin \beta \\ D' &= \cos \beta \end{aligned} \right\} \quad (2-11)$$

ここで、任意の誘電体膜における透磁率 μ_i 、および入射角 θ_i は

$$\mu_i = \frac{n_i}{\cos \theta_i} \quad (i=0, 1, 2, \text{sub}) \quad (2-12)$$

$$\theta_i = \sqrt{1 - \left[\frac{(n_0 \times \sin \theta_0)}{n_i} \right]^2} \quad (i=0, 1, 2, \text{sub}) \quad (2-13)$$

である。したがって、位相シフト $\phi_{2N+1}(\omega)$ は

$$\phi_{2N+1}(\omega) = \tan^{-1} \left(\frac{Y}{X} \right) \quad (2-14)$$

により求められる。分散媒質の場合と同様に、パルス波形に影響を及ぼす2次以上の位相分散値は、(2-14)式の微分関数に所望の数値を代入することにより求められる。一般に、チャープミラーを除く誘電体多層膜鏡の波長分散は正常分散（符号がプラス）となる。

フェムト秒光パルスを発生させるためには、プリズムあるいは回折格子を用いて上記波長分散を補償する必要がある。これらの波長分散も、以下に示すように解析的に算出することが可能である。

(a) プリズム対による分散補償²¹⁾

プリズムを通過したパルス光は、プリズムガラスの屈折率分散 $n(\lambda)$ により、空間的な角度分散を受ける。これを利用して、図2-14に示すように2つのプリズムを対向する面が平行になるように配置し、その間隔 l_p を変えることによって分散量を制御することが可能となる。このプリズム対の波長分散は下記に示す手順で求められる。

図2-14において、2つのプリズムの実効的な光路長はCDEの光路長に相当する。ACとBEとは光パルスの波面を表すので、ABの光路長はCDEの光路長に等しくなる。AB= $l_p \cos \beta$ であるから、CDEの光路長もCDE= $l_p \cos \beta$ となる。更に、プリズムIとプリズムIIの対面が平行であり、プリズムIIへの入射角と出射角とが等しいためFGとBHは平行である。BEとGHは共に同一時刻に光が到達する波面であるから、EFGの光路長はBHの光路長と等しくなるため波長分散には寄与しない。一方、レーザー共振器内にプリズム対を配置する場合には、GH面に平面鏡が配置されるため、波長分散に寄与する全光路長 P は

$$P = 2l_p \cos \beta \quad (2-15)$$

となる。

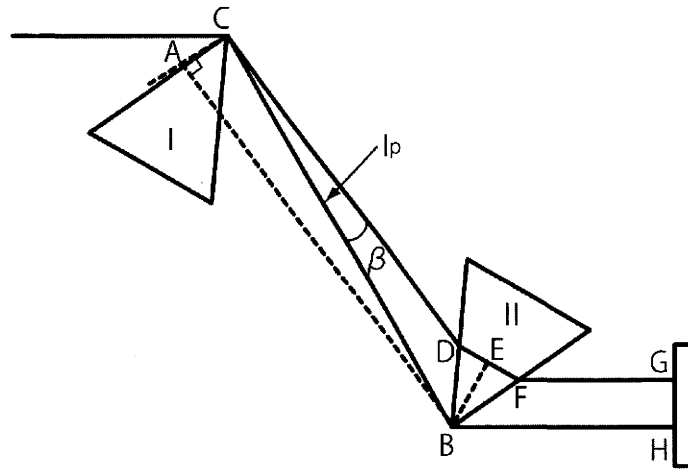


図2-14 プリズム対による分散補償の構成

次に、全光路長 P よりプリズム対による位相シフト $\phi(\omega)$ を求める。位相シフト $\phi(\omega)$ は、光路長 P および光速 $C(=3.0 \times 10^8)$ を用いて

$$\phi(\omega) = -\omega P / c \quad (2-16)$$

と表される。これより、プリズム対の2次位相分散は $\ddot{\phi}(\omega)$ は

$$\ddot{\phi}(\omega) = -\frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \times \frac{d^2 P}{d\lambda^2} \quad (2-17)$$

により求められる。ただし、

$$\frac{d^2 P}{d\lambda^2} = 4l_p \times \left\{ \left[\frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3} \right) \times \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \right] \times \sin \beta - 2 \left(\frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right)^2 \cos \beta \right\} \quad (2-18)$$

であり、 $l_p \sin \beta$ をビーム径の約2倍(3.6 mm)、 $\beta=0^\circ$ と近似すると

$$\frac{d^2 P}{d\lambda^2} = 4 \times 2 \times 10^{-3} \times \left[\frac{d^2 n}{d\lambda^2} + \left(2n - \frac{1}{n^3} \right) \times \left(\frac{dn}{d\lambda} \right)^2 \right] - 4l_p \times 2 \times \left(\frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right)^2 \quad (2-18)$$

となる。3次位相分散も同様にして

$$\ddot{\phi}(\omega) = \frac{\lambda^4}{4\pi^2 c^3} \times \left\{ 3 \times \frac{d^2 P}{d\lambda^2} + \lambda \frac{d^3 P}{d\lambda^3} \right\} \quad (2-19)$$

により求められる。ただし、

$$\frac{d^3 P}{d\lambda^3} = 4l_p \times \left\{ \frac{d^3 n}{d\lambda^3} \times \sin \beta - 6 \times \frac{dn}{d\lambda} \times \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \times \cos \beta \right\} \quad (2-20)$$

であり、 $l_p \sin \beta$ をビーム径の約2倍(3.6 mm)、 $\beta=0^\circ$ と近似すると

$$\frac{d^3 P}{d\lambda^3} = 4 \times 2 \times 10^{-3} \times \left\{ \frac{d^3 n}{d\lambda^3} - 6 \times \frac{dn}{d\lambda} \times \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right\} \quad (2-20)$$

となる。一般にプリズム対の波長分散は異常分散(符号がマイナス)となるため、プリズムの間隔 l_p を適切な値とすることで、光学素子や誘電体多層膜鏡の正常分散を打ち消すことが可能となる。ただし、実際には光がプリズム内部を伝播することでプリズム材料による正常分散も生じるため、この点も考慮してプリズム間隔を設定する必要がある。

(b) 回折格子対(コンプレッサー、パルス圧縮器)による分散補償²²⁾

回折格子もプリズムと同様に空間的な角度分散を与える分光素子である。回折格子の場合、入射光の波長によって回折角が異なるため、図2-15に示すように回折格子を2個平行に配置し、その間隔 b を変えることによって分散量を制御することが可能となる。この回折格子対の波長分散は下記に示す手順で求められる。

光路 AB の距離を $b = G \times \sec(\gamma - \theta)$ (G は回折格子の垂直間距離)とすると光路 $PABQ$ の光路長は

$$\begin{aligned} P &= b(1 + \cos \theta) \\ &= [G \times \sec(\gamma - \theta)] \times (1 + \cos \theta) \end{aligned} \quad (2-21)$$

となる。実際の位相シフト量は、この光路による位相シフト $\phi(\omega) = \omega P / c$ に加えて、回折格子面で受ける位相シフトを考慮する必要がある。これは、入射側の回折格子上の点 A から出射側の回折格子へ垂線をおろした点 S と点 B 間の距離 $G \times \tan(\gamma - \theta)$ にある格子数に 2π をかけた値に等しい。したがって、回折格子対により生じる位相シフト $\phi(\omega)$ は

$$\phi(\omega) = \frac{\omega G}{c} \times \sec(\gamma - \theta) \times (1 + \cos \theta) - \frac{2\pi}{d} \times G \times \tan(\gamma - \theta) \quad (2-22)$$

となる。これより、2次位相分散は

$$\ddot{\phi}(\omega) = -\frac{m^2 \lambda^3 b}{2\pi c^2 d^2 \cos^2(\gamma - \theta)} \quad (2-23)$$

となる。また、3次位相分散も同様にして求めると

$$\ddot{\phi}(\omega) = -\frac{3\lambda}{2\pi c} \times \frac{1 + \frac{\lambda}{d} \times \sin \gamma - \sin^2 \gamma}{1 - \left(\frac{\lambda}{d} - \sin \gamma\right)^2} \times \ddot{\phi}(\omega) \quad (2-24)$$

となる。プリズム対と同様に、回折格子対の波長分散は異常分散(符号がマイナス)となるため、回折格子の間隔 b を適切な値とすることで、光学素子や誘電体多層膜鏡の正常分散を打ち消すことが可能となる。ただし、反射型回折格子の場合、回折効率が低いために通常はレーザー共振器外部での分散補償に用いられる。一方、透過型回折格子の場合には100%に近い回折効率が得られるため、共振器内部で用いることも可能である。

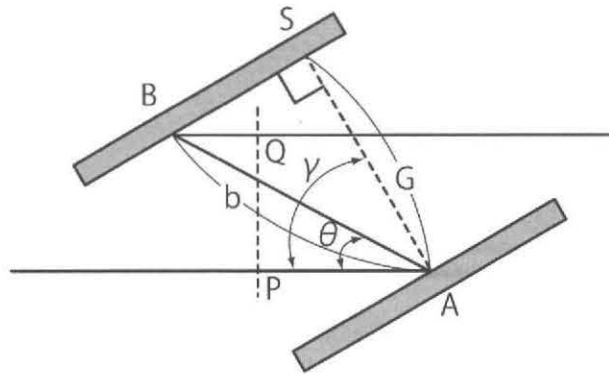


図2-15 回折格子対による分散光学系

(c) ストレッチャー(パルス伸張器)による分散補償²³⁾

ストレッチャーも2枚の回折格子を用いるが、回折格子の間に2枚のレンズからなる結像系を配置することにより像反転を起こす。像反転させることにより、コンプレッサーが異常分散(符号がマイナス)を示していたのに対し、ストレッチャーは正常分散(符号がプラス)を示すことになる。さらに、図2-16に示すように回折格子とレンズとの間隔(レンズの焦点距離以下)を変えることによって分散量を制御することが可能となる。このプリズム対の波長分散は下記に示す手順で求められる。尚、図2-16に示す「像反転型回折格子対による分散光学系」と図2-15に示す「回折格子対による分散補光学系」とは、チャープパルス増幅法²⁴⁾において対として用いられることが多い。この際、パルス幅を広げる(ストレッチする)ために図2-16に示す「像反転型回折格子対による分散光学系」が用いられ、増幅後のパルス幅を再圧縮(コンプレス)するために図2-15に示す「回折格子対による分散補光学系」が用いられる。そのため、通例として前者が「ストレッチャー」、後者が「コンプレッサー」と呼ばれる。レーザー共振器内にストレッチャーが用いられることはないが、異常分散媒質を補正するという意味で、波長分散の求め方を以下に示す。

回折格子への入射角を γ とした場合の分散式は

$$\Delta\phi = \alpha\Delta\gamma + \beta\omega \quad (2-25)$$

と表される。ただし、入射光の中心周波数を ν_0 、回折角を ϕ とすると、角周波数 ω 、定数項 α および β は

$$\omega = 2\pi(\nu - \nu_0) \quad (2-26)$$

$$\alpha = -\frac{\cos \gamma}{\cos \phi} \quad (2-27)$$

$$\beta = \frac{m\lambda^2}{2\pi d \cos \phi} \quad (2-28)$$

となる。前段のレンズの焦点距離を f_1 、レンズの焦点面と回折格子との間隔を z_1 、後段のレンズの焦点距離を f_2 、レンズの焦点面と回折格子との間隔を z_2 とすると、ストレッチャーの2次位相分散 $\ddot{\phi}(\omega)$ は

$$\ddot{\phi}(\omega) = k\beta^2(z_1 + Mz_2) \quad (2-29)$$

と表される。ただし、 M はレンズ系の拡大率 ($M=f_1/f_2$) で、 k は波数 ($k=2\pi\nu/c$)である。

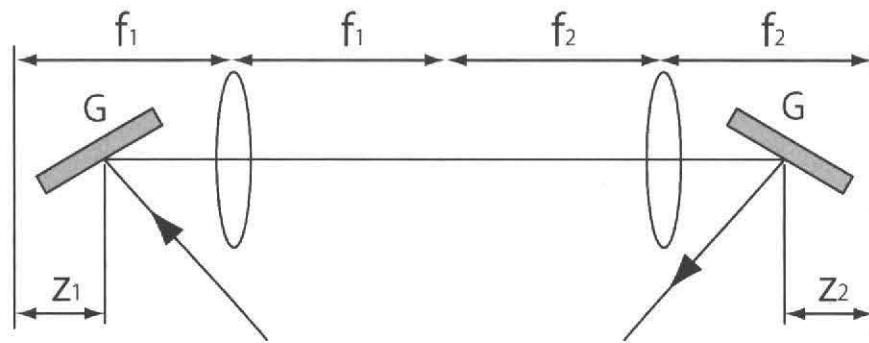


図 2-16 像反転型回折格子対による分散光学系

本研究では、上記の解析手順に基づいて、共振器に含まれる光学素子の波長分散を算出すると共に、算出された波長分散を補償するための光学系を見積もることにより、フェムト秒レーザー発振器の最適化を図った。以下では、各種光源を用いたフェムト秒パルス発生、ならびに新たに開発した小型共振器構造を用いたフェムト秒光パルス発生について詳細を述べる。

2.3.3.1. アルゴンイオンレーザー励起によるフェムト秒光パルス発生

前述したようにCr:LiSAFの吸収帯域は広範囲にわたり、Ti:Sapphireレーザーの励起源としても用いられるAr⁺レーザーでも励起することが可能である。そこで、半導体レーザーによる励起実験に先立って、Ar⁺レーザー励起下でカーレンズモード同期法によるフェムト秒光パルスの発生を試みた。この時のフェムト秒Cr:LiSAFレーザーの構成を図2-17に示す。フェムト秒Ti:Sapphireレーザーとして一般的に用いられるZ型の共振器の構成とした。結晶にはCr³⁺が1.5%ドープされた両面ブリュースターカット、長さ23 mmのものを用いた。光強度2.6 Wの励起光を、焦点距離50 mmの平凸レンズで集光した場合に3.0 mWの光出力が得られた。結晶両側に曲率半径が10 cmの凹面鏡を配置し、材質がSF10のブリュースタープリズム対により共振器内の波長分散を補償した。プリズム対の間隔を26 cmとした場合に最短のパルス幅が得られた。

上記構成により得られた自己相関波形を図2-18に示す。図中の黒丸は実測値、実線はパルス波形をsech²と仮定した場合の理論値である。理論値より得られるパルス幅は64 fsであった。また、同時に

光スペクトラムアナライザで測定したスペクトル波形を図2-19に示す。スペクトル半値全幅 (FWHM) は 12.7 nmであり、これらの値から算出される $\Delta\nu \cdot \Delta\tau$ は0.32であった。これより、得られた光パルスがほぼトランスフォーム限界であり、理想的なモード同期がかかっていることが確認された。

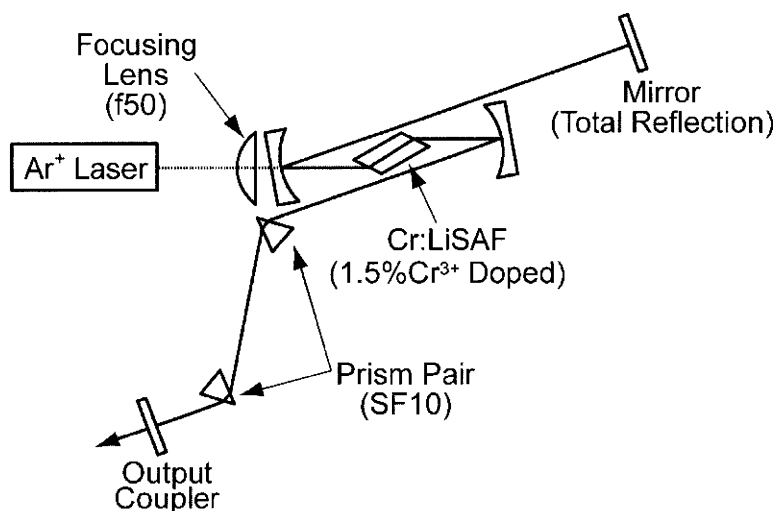


図 2-17 アルゴンイオンレーザー励起フェムト秒 Cr:LiSAF レーザーの構成

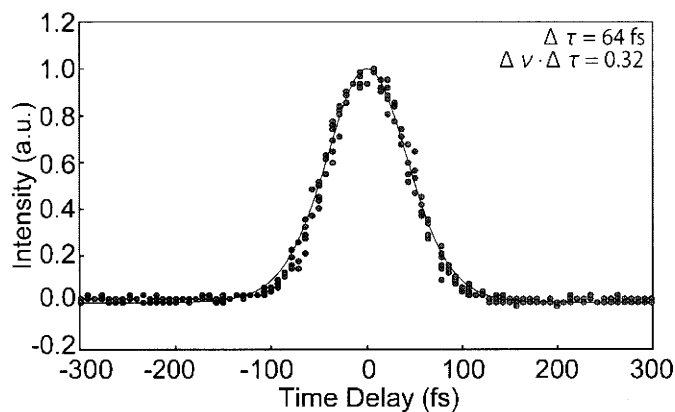


図 2-18 自己相関波形

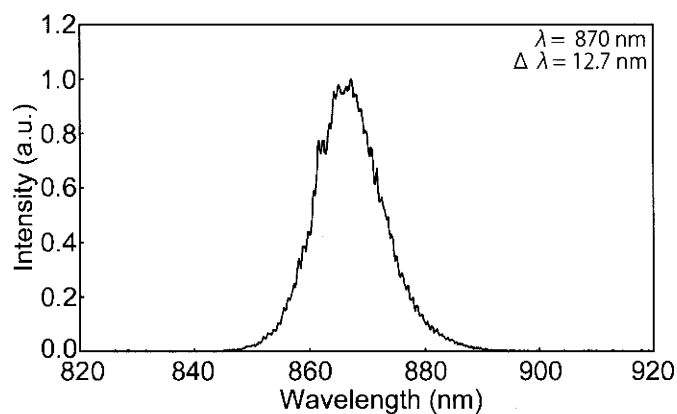


図 2-19 スペクトル波形

一方、励起光を交換する際の利便性を向上させるために、アルゴンイオンレーザーをコア径50 μm のマルチモード光ファイバーに入射し、その出射光を用いて同様な実験を行った。この場合に

もカーレンズモード同期によりフェムト秒光パルス列を得ることに成功した。この際、励起光を交換する以外にレーザー共振器の調整は一切行っていない。その結果、励起光強度2.2 Wに対して3.0 mWの光出力、スペクトル幅11.5 nmが得られた。レーザー共振器は調整していないため、 $\Delta\nu\Delta\tau$ を上記実験値と同じ0.32と仮定するとパルス幅は70 fsとなる。この状態で光ファイバーへの入射光を半導体レーザーとして同様な実験を試みたが、既存の半導体レーザーでは十分な光強度が得られないため、フェムト秒光パルスを得ることはできなかった。今後、半導体レーザーが高出力化されれば、有効な励起手法になると思われる。

ここで、上記構成により得られた光パルスのパルス幅を計測するためのSHG自己相関法²⁵⁾について補足する。中心角周波数が ω_0 、光パルスの強度波形が $I(t)=|E(t)|^2$ 、時間領域での位相が $\phi(t)$ である被測定光パルスの複素電場 $E(t)$ は

$$E(t) = \sqrt{I(t)} \exp[-j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] \quad (2-30)$$

と表される。この光パルスをハーフミラーによって二つに分岐した後に、一方に遅延時間 τ を付与した上で、共軸(コリニア)に再度重ね合わせることで得られる合成複素電場をSHG結晶に入射する。応答時間がパルス幅に比べて極めて長い検出器を用いて、この時発生する第二高調波の複素電場を測定したときの出力信号 $S(t)$ は

$$\begin{aligned} S(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} \left\{ E(t) + E(t-\tau) \right\}^2 dt \\ &= 1 + 2G_2(\tau) + 4\text{Re}[F_1(\tau)\exp(-j\omega_0\tau)] + \text{Re}[F_2(\tau)\exp(-j\omega_0\tau)] \end{aligned} \quad (2-31)$$

と表される。(2-31)式において、定数項は分岐されたそれぞれの光により発生する第二高調波成分であり、DC成分として信号強度を増加させるだけで、パルスの波形には無関係な成分である。一方、 $F_1(\tau)$ は基本波の干渉項(相関関数)であり、その振幅は

$$F_1(\tau) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \{I_1(t) + I_1(t-\tau)\} E_1(t) E_1^*(t-\tau) dt \quad (2-32)$$

により表される。 $F_2(\tau)$ は第二高調波の干渉項(相関関数)であり、その振幅は

$$\begin{aligned} F_2(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} \{E_1(t)\}^2 \{E_1^*(t-\tau)\}^2 dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} E_2(t) E_2^*(t-\tau) dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} I_1(t) I_1(t-\tau) \exp[-2j\{\phi(t) - \phi(t-\tau)\}] dt \end{aligned} \quad (2-33)$$

と表される。一方、 $G_2(\tau)$ は光パルスの強度波形のみを含む相関関数であり、2次の強度自己相関関数と呼ばれ、次式により表される。

$$\begin{aligned} G_2(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} I(t) I(t-\tau) dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} |E^2(t) E^2(t-\tau)| dt \end{aligned} \quad (2-34)$$

分岐された光が共軸(コリニア)となる構成は、色ガラスフィルター等を用いて基本波を遮断したとしても、分岐されたそれぞれの光により発生する第二高調波成分(定数項)、第二高調波の干渉成分 $F_2(\tau)$ 、そして2次の強度自己相関成分 $G_2(\tau)$ とが同時に観測される、いわゆるフリンジ分解 SHG 自己相関器として機能する。ただし、フリンジ分解 SHG 自己相関器は、パルス幅が 10 fs 程度と非常に短い場合に有効な手法であり、今回のようにパルス幅が比較的長い場合には2次の強度自己相関信号からパルス幅を推測する手法が有効的である。

そこで、分岐された被測定光パルスを SHG 結晶に非共軸(ノンコリニア)に入射すると、2次の強度自己相関信号 $G_2(\tau)$ と第二高調波の干渉信号 $F_2(\tau)$ とが空間的に分離される。したがって、検出器前段にスリット、もしくはアパーチャーを配置して第二高調波の干渉信号 $F_2(\tau)$ を遮断することで、2次の強度自己相関信号 $G_2(\tau)$ だけを検出することが可能となる。この様にして得られた2次の強度自己相関信号 $G_2(\tau)$ からパルス幅を推測するためには、光パルスの強度波形を何らかの関数により近似し、その近似関数からパルス幅を推測することになる。一般に、フェムト秒光パルスの場合には強度波形を $I(t)=\text{sech}^2(\tau/T)$ と仮定する。この場合、パルス幅は $\Delta\tau = 1.763T$ で与えられ、この時 $G_2(\tau)$ は

$$G_2(\tau) = \frac{3\{(\tau/T)\cosh(\tau/T) - \sinh(\tau/T)\}}{\sinh^3(\tau/T)} \quad (2-35)$$

により表される。したがって、得られた自己相関波形に対して上記理論波形をフッティングすることによりパルス幅を推定することができる。また、光パルスがトランスフォーム限界である(チャープが含まれていない)場合には、時間帯域幅積 (Time-bandwidth product) が $\Delta\nu\cdot\Delta\tau=0.315$ となるため、測定値より算出される時間帯域幅積 $\Delta\nu\cdot\Delta\tau$ と理論値とを比較することで、理論波形との近似度を評価することができる。

図2-20は、得られる光パルス进行评估するために構築したノンコリニアSHG自己相関器の構成図である。ハーフミラーを用いて光を分岐する手法では、光パルスにハーフミラーの波長分散が重畳されるため、構築した自己相関器ではナイフエッジミラーを用いて、空間的に光を分岐することとした。第二高調波を発生させる結晶として、厚さ 1.2 mmのLiIO₃(LIO)結晶をタイプIの位相整合条件(常光+常光→異常光)で用いた。また、光電子増倍管(PMT)前段にスリットを配置し、2次の強度自己相関信号 $G_2(\tau)$ だけを検出する構成とした。この場合、ギャップセンサー(Gap Sensore)により計測された加振鏡の移動量を校正した値を時間軸とし、光電子増倍管の出力信号を強度信号として用いることによりモニター上に自己相関波形が得られる。得られた自己相関波形をコンピューターに取り込み、(2-35)式によりフィッティングすることでパルス幅が算出される。同時に光スペクトラムアナライザ(安藤電気、AQ-6310C)を用いてスペクトルを計測し、得られたパルス幅およびスペクトル幅から算出される時間帯域幅積 $\Delta\nu\cdot\Delta\tau$ と理論値 ($\Delta\nu\cdot\Delta\tau=0.315$)とを比較する。

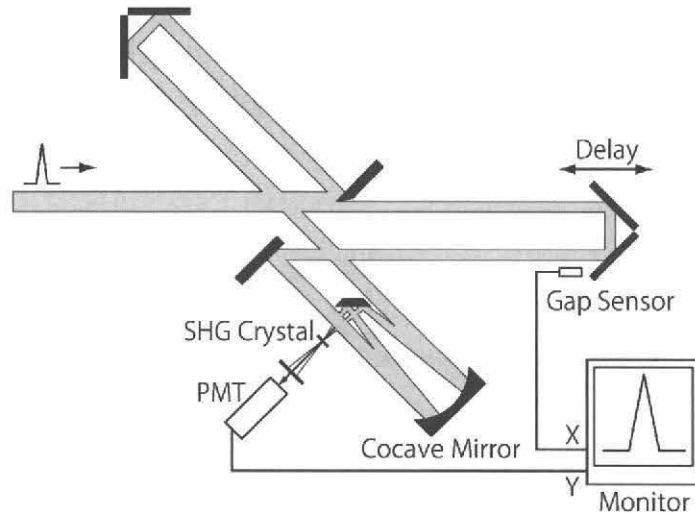


図2-20 SHG自己相関器の構成

2.3.3.2. 半導体レーザー励起によるフェムト秒光パルス発生

次に、半導体レーザー励起によるフェムト秒光パルスの発生を試みた。ただし、Nd:YAGレーザー等の励起源として用いられている近赤外半導体レーザーと異なり、赤色半導体レーザーの場合にはその端面破壊等の要因により高出力化が実現されていない。そこで、誘電体多層膜鏡を用いて4つの半導体レーザーを合成する手法を考案した。その詳細を以下に示す。

半導体レーザーには、SONY社製の半導体レーザー（SLD1304-XT、1.0 W 出力、668 nm、670 nm）を2ヶと、AOC社製の半導体レーザー（AOC670-400T、400 mW 出力、689 nm、690 nm）2ヶの合計4ヶの半導体レーザーを用いた。これらの半導体レーザーを図2-21に示す構成により合成した。まず、SONY社製の半導体レーザー（LD₁、689 nm）とAOC社製の半導体レーザー（LD₂、668 nm）とを、偏光が紙面に対して水平となるように配置した。そして、片面に670 nmにおける反射防止膜が、そして他面には668 nmにおける透過率が91%、689 nmにおける反射率が68%の誘電体多層膜が施された誘電体多層膜鏡M₁を用いて、これらの半導体レーザーを空間的に重ね合わせた。一方、SONY社製の半導体レーザー（LD₃、690 nm）とAOC社製の半導体レーザー（LD₄、670 nm）とは、偏光が紙面に対して垂直となるように配置した。そして片面に690 nmにおける反射防止膜が、他面には690 nmにおける透過率が84%、670 nmにおける反射率が97%の誘電体多層膜が施された誘電体多層膜鏡M₂を用いて、これらの半導体レーザー出力光を空間的に重ね合わせた。最後に、偏光ビームスプリッターを用いて合成されたそれぞれのレーザー光を空間的に重ね合わせた。

次に、上記光源を用いて連続(CW)発振状態での入出力特性を評価した。この時の構成を図2-22に示す。結晶にはCr³⁺が1.6%ドープされた長さが10 mmのものを用いた。結晶の片方の面には865 nmにおいて全反射となるコーティングを施し、この面を全反射鏡として用いた。対向する面には865 nmにおける反射防止膜を施すと共に、全反射面に対して2°の傾斜を持たせることにより、結晶の端面

間における多重干渉の影響を低減させた。カーレンズモード同期の場合、共振器外部からの戻り光や振動等の外乱の影響によりモード同期がかりにくい、あるいはモード同期発振からCW発振に移行するという問題が生じるが、結晶間における多重干渉の影響を受けても同様な問題が発生するためである。結晶の温度はこれまでと同様に17 °Cとした。

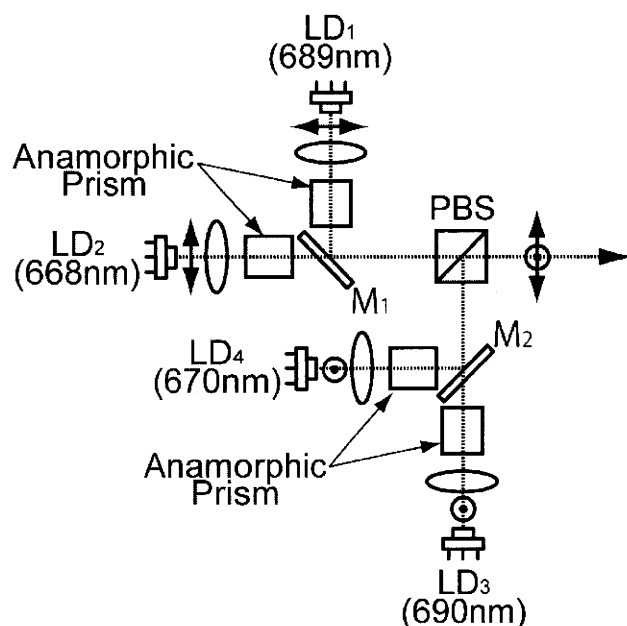


図 2-21 4つのLDを空間的に重ね合わせるための構成

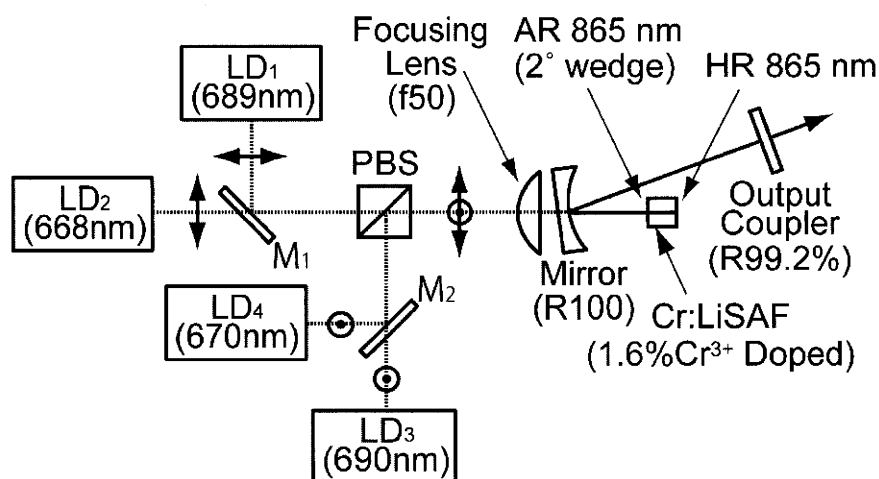


図 2-22 連続(CW)発振状態での入出力特性評価のためのレーザーの構成

上記構成により得られた入出力特性を図 2-23 に示す。AOC 社製の半導体レーザー (AOC670-400T) を用いた場合のスロープ効率 3.6 %に比べて、SONY 社製の半導体レーザー (SLD1304-XT) を用いた場合のスロープ効率が 1.5 %と低い。これは、AOC 社製の半導体レーザー (AOC670-400T) の発光部のストライプ幅が 50 μm であるのに対して、SONY 社製の半導体レーザー (SLD1304-XT) の発光部のストライプ幅が 200 μm と大きいため、SONY 社製の半導体レーザーでは周辺部が発振に寄与していないためであると考えられる。

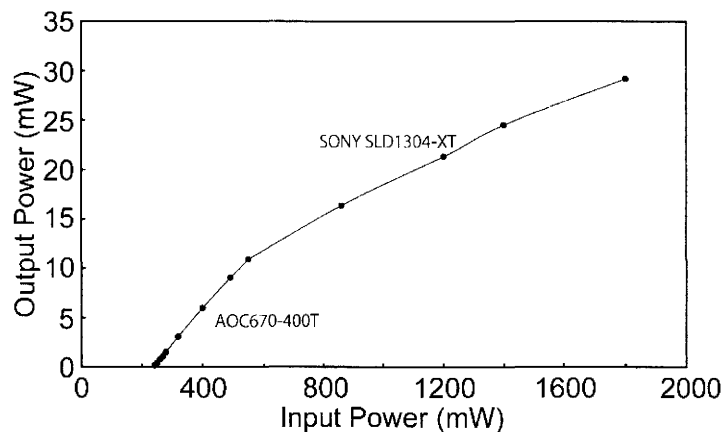


図 2-23 連続(CW)発振状態での LD 励起 Cr:LiSAF レーザーの入出力特性

以上の実験により、4つの半導体レーザーを合成した光源を励起光源として用いた場合でも十分な出力光強度が得られることが確認されたため、同じ構成を用いてカーレンズモード同期法によるフェムト秒光パルスの発生を試みた。ところが、プリズム対を挿入し、共振器長を約93 cmとすると、入射光強度の増加に伴って出力光強度が低下するという問題が生じた。特に、SONY社製の半導体レーザーを用いた場合にその問題は顕著であった。すなわち、レーザー媒質が吸収した励起光のうち、発振に寄与しない成分が熱として結晶内に蓄積され、この蓄積熱によって結晶内部に歪を生じさせるため、ストライプ幅が広いSONY社製の半導体レーザーほどその問題が顕著になるためだと推測される。

以上の予備実験に基づいて、AOC社製の半導体レーザー (AOC670-400T) 2ヶとSONY社製の半導体レーザー (SLD1304-XT) 1ヶを合成し、結晶の温度を15 °Cにまで冷却することで、出力光強度が飽和しない状態でフェムト秒光パルスの発生を試みた。この時の構成を図2-24に示す。

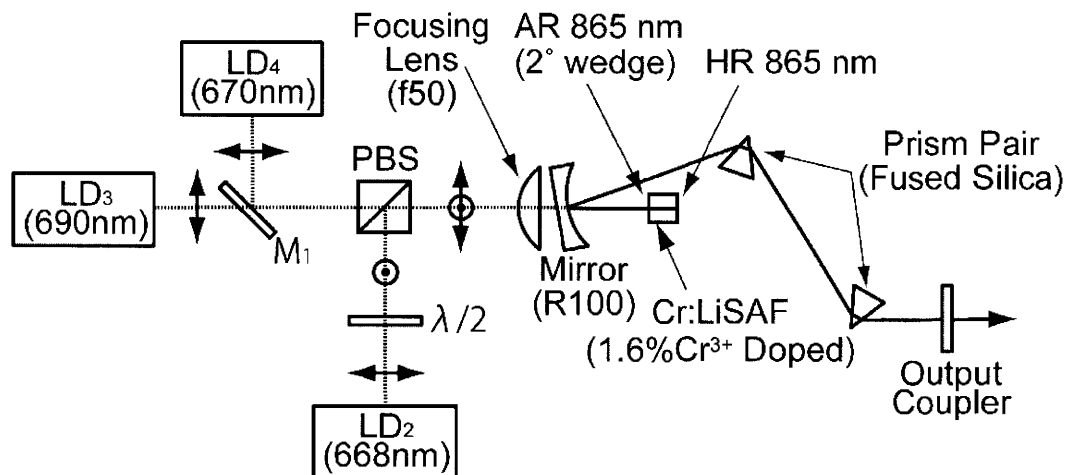


図2-24 連続(CW)発振状態での入出力特性評価のためのレーザーの構成

結晶の C 軸が、偏光が紙面に対して水平となる励起光の吸収が大きくなる向きとなっているため、用いた3つの半導体レーザーのうち、2つの偏光を紙面に対して水平となる向きとした。また、図 2-17 に示す構成では、結晶の長さが 23 mm であったが、図 2-21 に示す構成では結晶の長さが 10 mm で

あるため、共振器の有する波長分散量が少ない。そこで、プリズム対の材料を屈折率分散が小さい合成石英とし、その間隔を67 cmとした。その結果、光パルスの繰返し周波数は139 MHzとなり、励起光強度1.2 Wに対して2.7 mWの光出力が得られた。また、この時得られた自己相関波形を図 2-25 に、同時に測定したスペクトル波形を図 2-26 に示す。パルス幅は109 fs、スペクトルの半値全幅は8.79 nmであった。

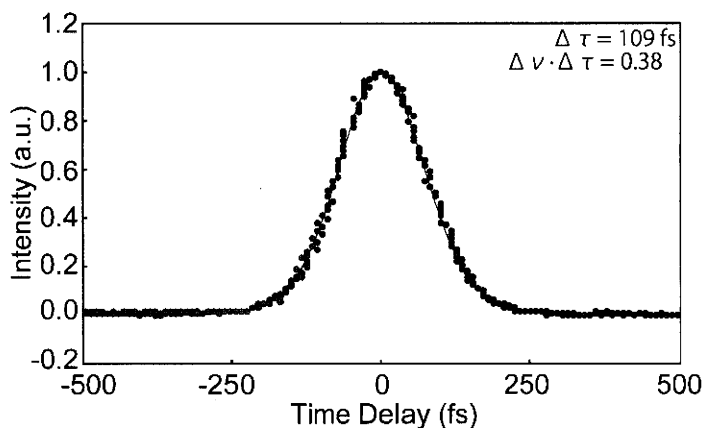


図 2-25 自己相関波形

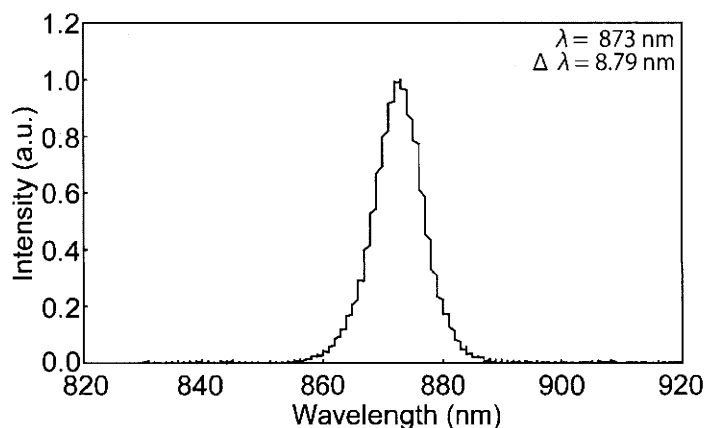


図 2-26 スペクトル波形

2.3.3.3. MOPA型半導体レーザー励起によるフェムト秒光パルス発生

一般に、高出力半導体レーザーは、活性領域にブロードストライプ構造を採用することにより高出力化を実現している。例えば、上記実験で用いたAOC社製の半導体レーザー (AOC670-400T) の場合には活性領域のサイズは $5 \times 50 \mu\text{m}$ 、SONY社製の半導体レーザー (SLD1304-XT) の場合には $5 \times 200 \mu\text{m}$ である。したがって、この様なレーザーを集光した場合には集光部の形状が活性領域の形状を反映するため、レーザー結晶においてレーザー共振器の光の集光部の形状と半導体レーザーの集光部の形状とを一致させることが困難となる。特に、Cr:LiSAFの場合には、レーザー共振器の光の集光部の形状と一致しない部分は励起に寄与しないばかりではなく、結晶に吸収された励起光が熱に変換されて結晶内部に熱歪を生じさせる。その結果、励起強度の増加に伴って出力光強度が飽和し、最終的にレーザー発振が停止する。最悪の場合にはレーザー結晶が破壊される。また、楕円状の集光形状は、光強度に依存した非線形な屈折率分布を利用するカーレンズモード同期においてカー効

果を低減させるため、パルス発振を困難とさせる要因となる。そこで、活性領域のサイズの小さい半導体レーザーを増幅することで、高出力でありながら良質なビーム形状が得られるMOPA型半導体レーザー (Master Oscillator Power Amplifier)²⁶⁾を励起光現に用いて、フェムト秒光パルスの発生を試みた。MOPA型半導体レーザーについて以下に補足する。

図2-27に示されるように、MOPA型半導体レーザーは発光部 (Master oscillator、ストライブ幅 4 μm) と増幅部 (Power Amplifier、ストライブ幅 50 μm) により構成される半導体レーザーである。さらに、SDL社のMOPA型半導体レーザーは、図2-28に示すように素子からの出力光の空間モードを補正するための補正光学系を用いることによりビーム径 4 mmの平行光を出射するようにモジュール化されている。

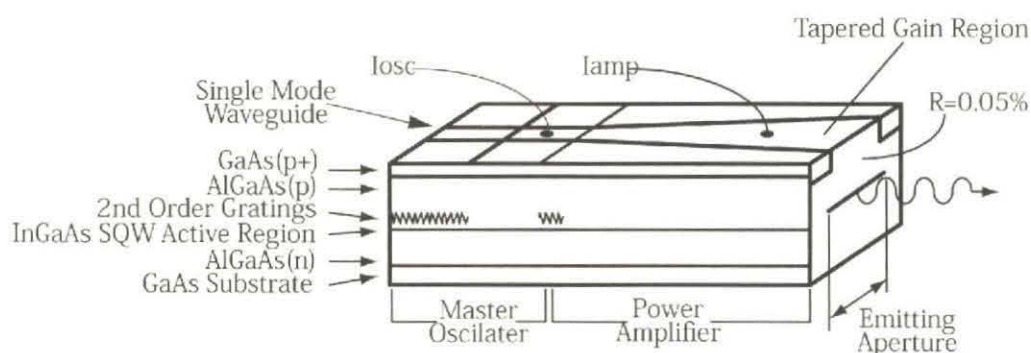


図2-27 MOPAの半導体素子の構成

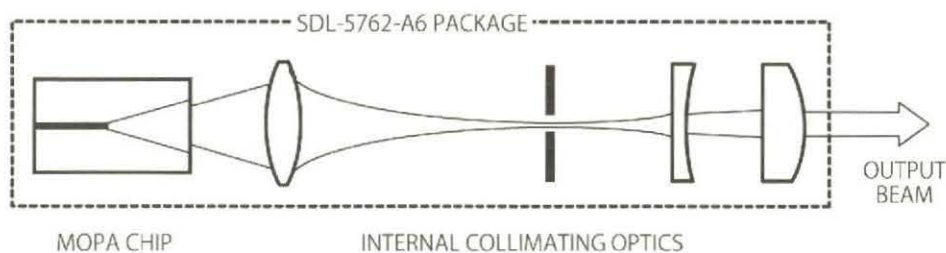


図2-28 SDL社製MOPAの全体構成

上記の構成とすることで、MOPA型半導体レーザーの出力光を集光した場合の集光部の形状は発光部の形状が反映されるため、良好な集光形状を得ることが可能となると推測される。このことを確認するために、図2-29に示すようにビームプロファイラ (浜松ホトニクス、LEPAS-10) を用いてビームスポットを計測した。

図2-29に示される構成により得られたビームスポットを図2-30に示す。Ar⁺レーザーの場合のスポット径が28×28 μm であったのに対し、半導体レーザー (ストライブ幅 200 μm) の場合にはビームスポットが異形であると共に、スポット径が46×191 μm と集光径が非常に大きくなっている。このような半導体レーザーを用いた場合には、励起光率が低いばかりではなく、カーレンズモード同期にも悪影響を及ぼすこととなる。一方、MOPA型半導体レーザーの場合には、スポット径が15×12 μm であるため、レーザー結晶においてレーザー共振器の光の集光部の形状と励起光の集光部の形状とを一致させることが可能となる。

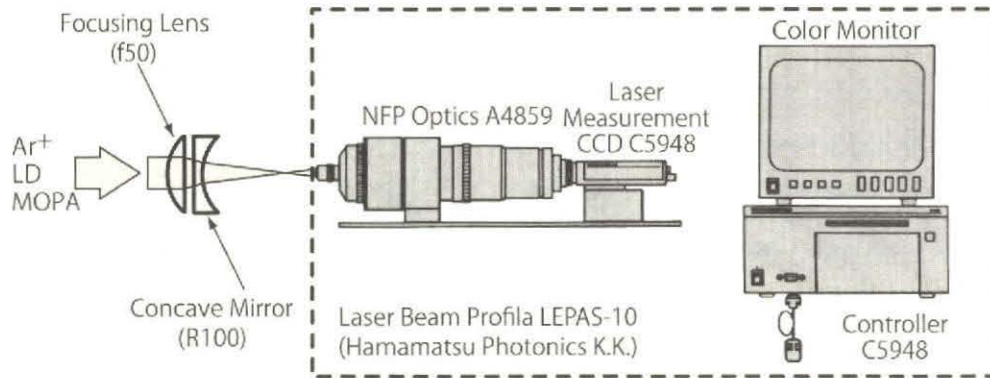
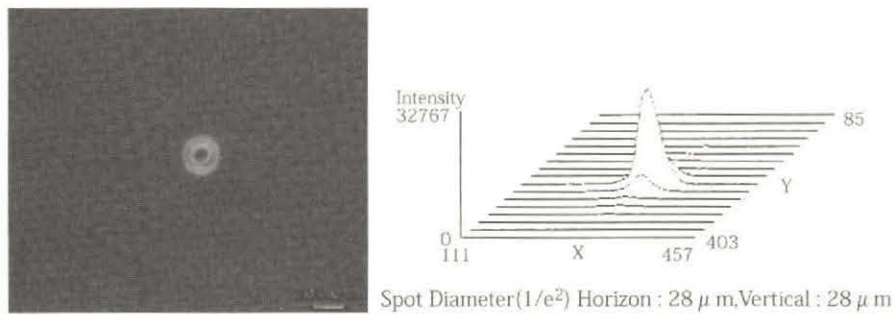
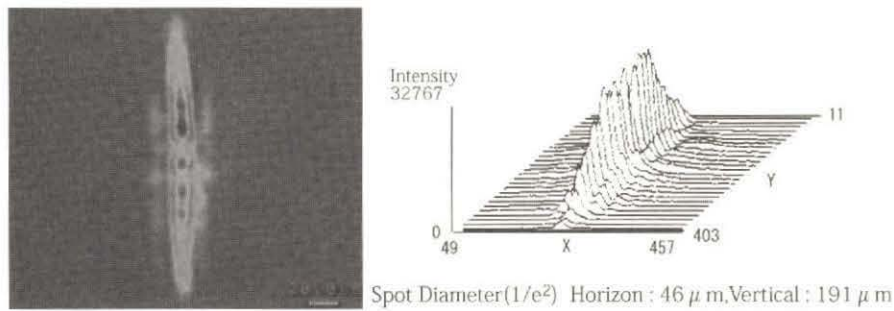


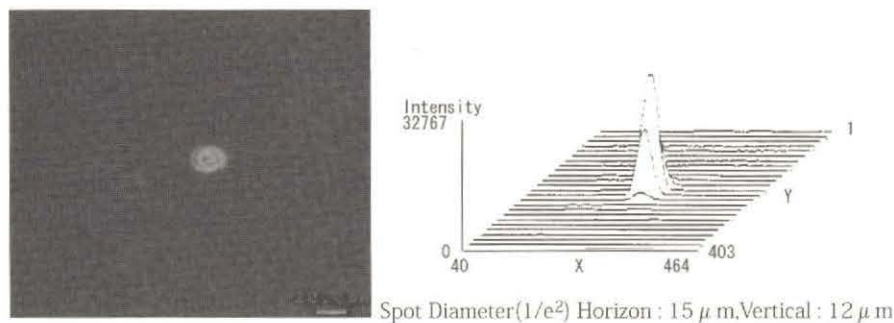
図2-29 ビームスポット計測のための構成



(a) Ar⁺レーザー



(b) LD(ストライプ幅 200 μ m)



(c) SDL 社製 MOPA

図 2-30 ビームスポット計測結果

以上より、MOPA 型半導体レーザーは励起効率やカーレンズモード同期においても有効な光源であることが確認された。そこで、MOPA 型半導体レーザーを用いた図 2-31 に示す構成によりフェムト秒光パルスの発生を試みた。結晶は Cr³⁺ドープ量が 2.2 %、両面プリユースター、長さ 8 mm のものを用いた。光強度 400 mW の励起光を、焦点距離 50 mm の平凸レンズで集光した場合に 2.6 mW の光出

力が得られた。繰返し周波数は 89.4 MHz であった。また、 Ar^+ レーザー励起の場合には長さが 23 mm の結晶を用いていたために、プリズム対には高屈折率分散を有する SF10 プリズム対 (屈折率 1.71) を用いていたが、本構成では長さが 8 mm の結晶を用いているために共振器の有する波長分散が小さくなる。そこで、屈折率分散の低い BK7 プリズム対 (屈折率 1.51) を用いて、その間隔を 46 cm とした。

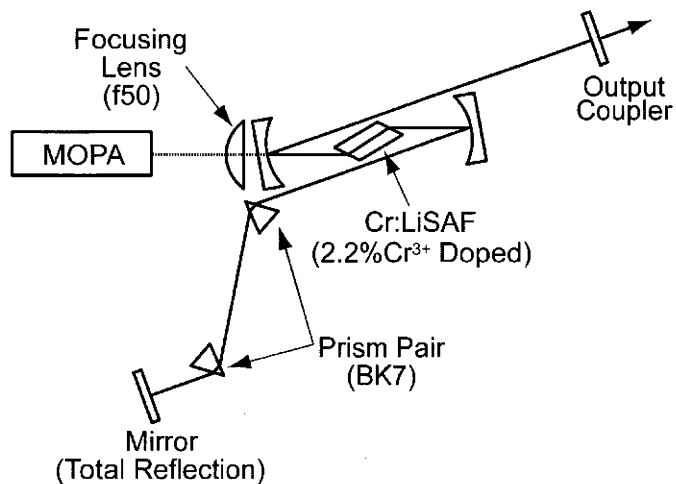


図 2-31 MOPA を用いたフェムト秒 Cr:LiSAF レーザーの構成

上記構成により得られた自己相関波形を図 2-32 に、同時に測定したスペクトル波形を図 2-33 に示す。パルス幅は 30 fs、スペクトルの半値全幅は 29.1 nm であり、半導体レーザー励起固体レーザーとしては当時世界最短のパルス幅を得ることに成功した。 Ar^+ レーザー励起の場合と比較してパルス幅が短くなった要因として、結晶の Cr^{3+} ドープ量を上げると共にその長さを短くしたこと、さらにこれに伴って低屈折率分散の BK7 プリズム対を用いることにより3次位相分散が低減されたことがあげられる。共振器の分散については次節に詳細を述べる。

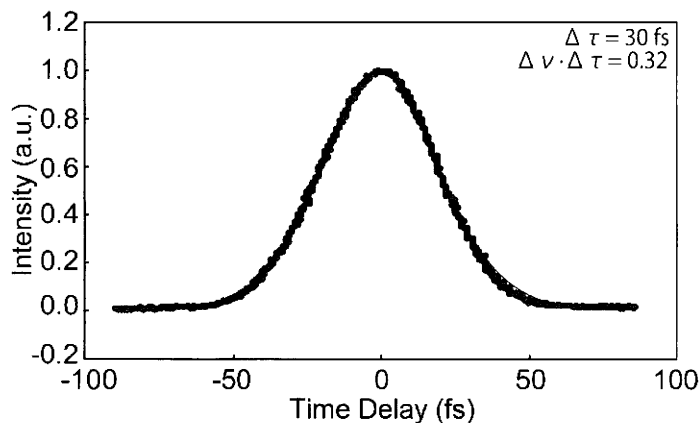


図 2-32 自己相関波形

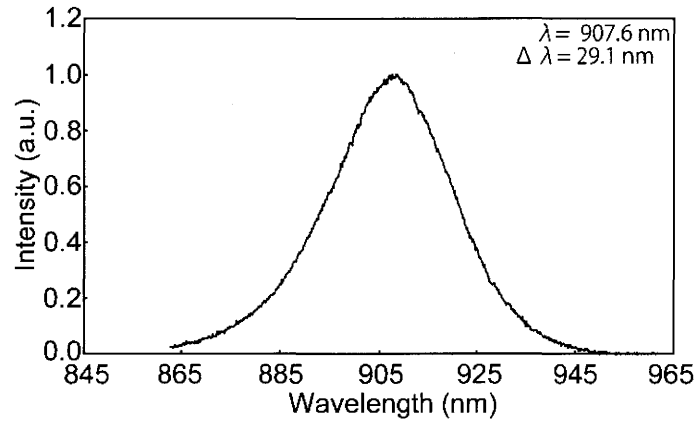


図 2-33 スペクトル波形

2.3.3.4. 小型共振器構造を用いた小型全固体フェムト秒レーザーの開発

一般に、プリズム対を用いたフェムト秒レーザーでは、図 2-31 に示されるように Z 型の共振器の中央に結晶が配置され、そして結晶に対して一方の光路上にプリズム対が配置される。この場合、必然的に共振器長はプリズム対の間隔の2倍以上となるため、共振器を小型化するためには構成そのものが小型化を阻む要因となる。そこで、新たな共振器の構成によりフェムト秒レーザーの小型化を試みた。

新たに考案したレーザーの構成を図 2-34 に示す。結晶には、30 fs が得られた場合と同じ Cr³⁺ が 2.2 %ドープされた両面ブリュースターカット、長さ 8 mm のものを用いた。また、凹面鏡および平面鏡は 30 fs が得られた場合と同じものを用いた。一方、共振器内の光強度を上げるために、偏光ビームスプリッターを用いて2台の MOPA 型半導体レーザーを合成したものを励起光源として用いた。さらに、プリズム対の間にレーザー結晶と凹面鏡を配置することで、レーザーの小型化を図った。本構成では、共振器長はプリズム対の間隔で決定される。さらに、プリズム対の間隔はプリズムの材質により決定されるため、プリズム対の材質を変えることにより共振器長すなわち繰返し周波数を可変制御することが可能となる。

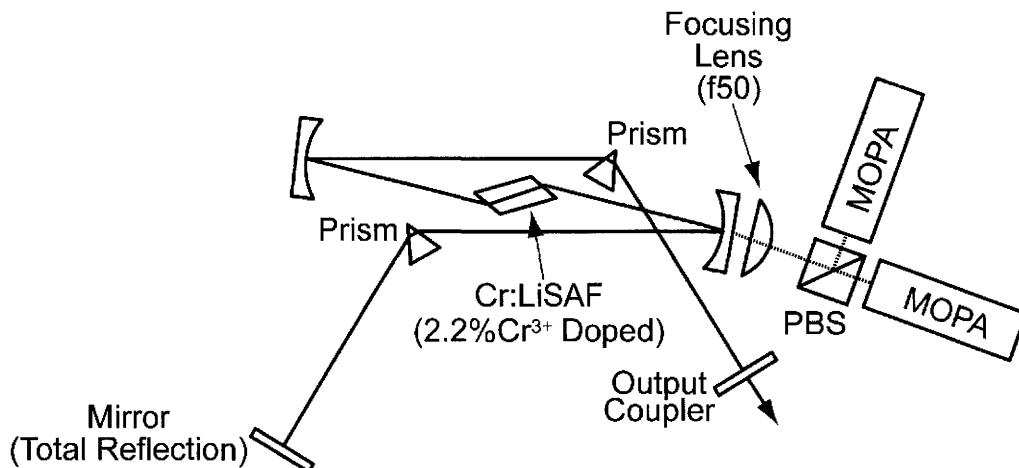


図 2-34 小型 LD 励起 Cr:LiSAF レーザーの構成

上記構成を評価するために、30 fs が得られた時の共振器を構成する光学素子、プリズム対(BK7)を用い、プリズム対の間隔を46 cmとしてフェムト秒光パルスの発生を試みた。その結果、上記構成においてもカーレンズモード同期法によってフェムト秒光パルスを得ることに成功した。この時の繰返し周波数は236 MHz、パルス幅は110 fs、中心波長は875 nm、スペクトル幅は7.8 nmであった。

一方、上記小型共振器の構成では、30 fs が発生した共振器と同じ光学素子を用いているにもかかわらずスペクトル帯域が制限されている。この原因を把握するために、図2-35に示すように凹面鏡(励起光入射対面のみ)と平面鏡直後にスリット(図中矢印表示)を配置し、前記スリットを移動させた際のスペクトル変化を計測することで、共振器内の分光状態を確認した。

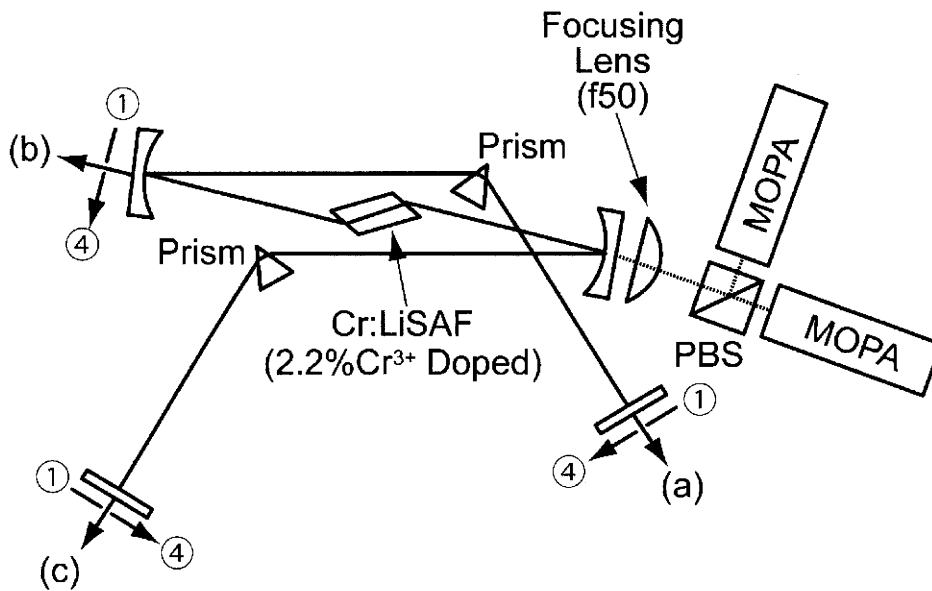


図 2-35 共振器内の分光状態を把握するための構成

出力光(a)~(c)上に配置したスリットを、①から④の方向に移動させた場合のスペクトル変化を計測した結果を図2-36に示す。(c)においては、スペクトルの中心波長が一定していることから、この位置では光は分光されていないことが確認された。一方、(a)および(b)の位置では中心波長が推移しており、さらに(b)と比較して(a)における中心波長推移量が大きい。したがって、(b)から(a)へと伝播するにしたがって光が分光されていくと判断される。さらに、①から④の方向へと長波長成分となるように分光されている。以上の結果より、上記小型共振器の構成では結晶内部で空間的な波長広がりを有することが明らかになった。結晶内部のビームウェストが大きくなると光密度が低下するため、十分なカー効果が得られず、発振帯域が制限される。発振帯域が制限されることによって、同じ光学素子を用いているにも関わらず、レーザー光が結晶内部で集光される従来の構成と比較してパルス幅が広がることになる。

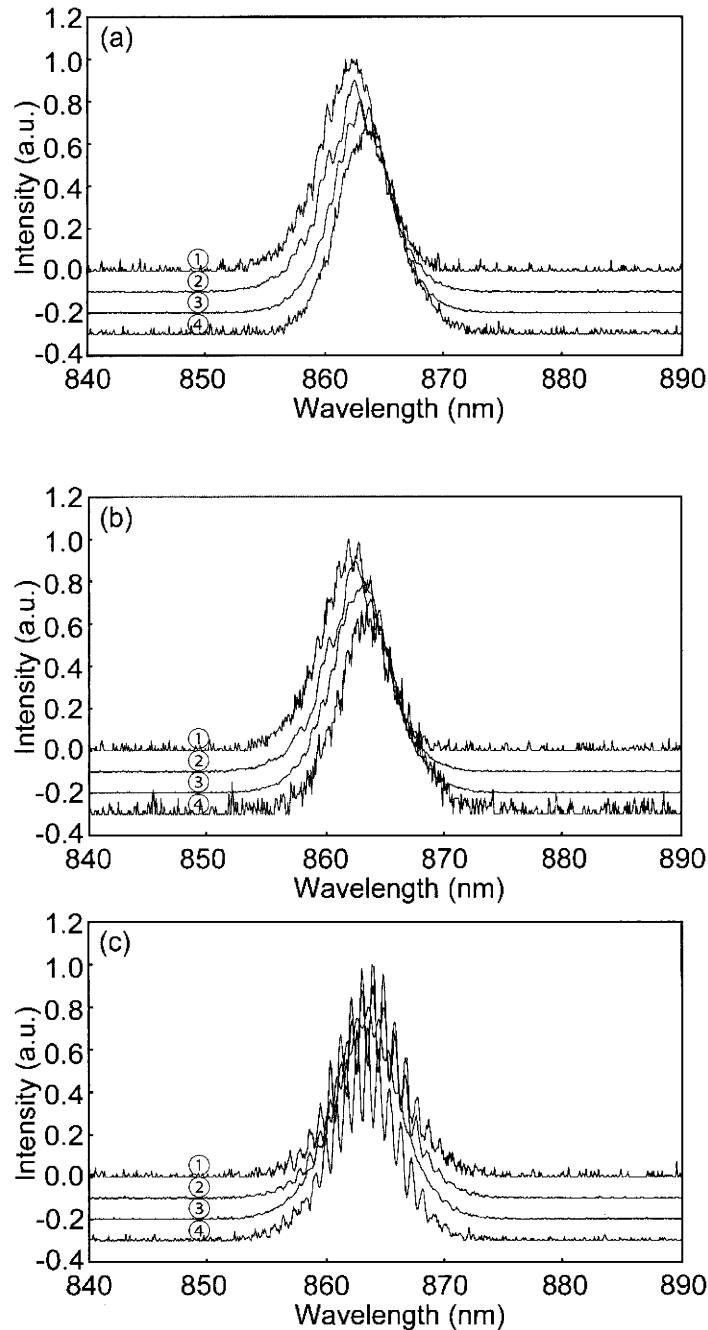


図 2-36 スリットを移動した場合のスペクトル変化計測結果

次に、プリズムの材質を変えると共にプリズム対の間隔を制御することで、レーザーの繰返し周波数の可変制御を試みた。各種プリズムを用いた場合のプリズム対の間隔を見積もるために、2.2.2 で述べた手法に基づいて、30 fs が得られた時の共振器を構成する光学素子の波長分散を求めた。同時に、他のプリズムを用いて前記波長分散を補正するために必要とされるプリズム対の間隔を算出した結果を表 2-4 に示す。プリズム対の間隔、ならびにプリズム内部の伝播光路長は実測値である。また、市販の誘電体多層膜鏡の組成が不明であるために、高屈折率材料を TiO_2 、低屈折率材料を SiO_2 、ガラス基板を BK7 として波長分散を算出した。これらの材質は、誘電体多層膜鏡として一般的に用いられる材質である。また、多層膜の層数も一般的な 24 層とした。その結果、30 fs 発生時における共振器の 2

次位相分散がほぼ理想的な状態に補償されていることが理論的にも実証された。そこで、他の材質のプリズム対を用いた場合に、この時の BK7 プリズム対の有する2次位相分散値 -927 fs^2 と同等の値を生じる間隔を求めた。その結果、プリズム対の間隔を、合成石英(屈折率 1.45)の場合は 57 cm、LLF6(屈折率 1.52)の場合は 37 cm、F8 の場合は 26 cm とすることで共振器の分散が補償されると予測される。

表 2-4 レーザー共振器を構成する光学素子の波長分散計算値(中心波長 875 nm、往復の分散)

プリズムの材質	BK7(30 fs 発生時)	合成石英	LLF6	F8
屈折率	1.51	1.45	1.52	1.58
プリズム対				
間隔 [cm]	46	57	37	26
2次位相分散 [fs^2]	-927	-925	-923	-931
3次位相分散 [fs^3]	-866	-598	-1756	-2558
プリズム P ₁ 、P ₂				
伝播距離 [mm]	P ₁ :4.9、P ₂ :5.0 (実測値)	---	---	---
2次位相分散 [fs^2]	749	---	---	---
3次位相分散 [fs^2]	692	---	---	---
Cr:LiSAF 結晶				
長さ [mm]	8	8	8	8
2次位相分散 [fs^2]	126	126	126	126
3次位相分散 [fs^3]	460	460	460	460
空気				
2次位相分散 [fs^2]	24	---	---	---
3次位相分散 [fs^3]	12	---	---	---
誘電体多層膜鏡(4枚)				
2次位相分散 [fs^2]	30	30	30	30
3次位相分散 [fs^3]	-133	-133	-133	-133
2次位相分散合計 [fs^2]	2	---	---	---
3次位相分散合計 [fs^3]	164	---	---	---

上記計算結果に基づいて、図 2-34 に示す構成によりフェムト秒光パルスが発生させた場合のレーザーの諸特性を表 2-5 に示す。いずれのプリズムを用いた場合でもフェムト秒光パルスが得られ、210 MHz から 262 MHz の範囲で繰返し周波数を可変制御することに成功した。BK7、合成石英ならびに LLF6プリズムを用いた場合には、プリズムから平面鏡までの距離を 9 cm とした。一方、F8 プリズムを用いた場合にプリズムから平面鏡までの距離を 9 cm とすると、カーレンズモード同期をかけることができなかつた。これは、繰返し周波数を上げることで光パルスのピーク強度が低下したため、結晶内部で十分なカーレンズ効果が得られないためと思われる。そこで、プリズムから平面鏡までの距離を 15 cm とし繰返し周波数を LLF6 プリズム対の場合に等しくすることでフェムト秒光パルスが得られた。この場合、共振器の大きさが 26×16 cm と極めて小型な共振器が実現された。尚、屈折率分散の大きい材質ほどパルス幅が広がっているが、これは屈折率分散の大きい材質ほど3次位相分散が大きいことと、高繰返し化に伴って光パルスのピーク強度が低下したためにカーレンズ効果が低減したためである。

表 2-5 小型共振器において各種プリズム対を用いた場合の諸特性

プリズムの材質	BK7	合成石英	LLF6	F8
繰返し周波数 [MHz]	236	210	262	262
光出力 [mW]	3.6	3.9	4.1	4.7
中心波長 [nm]	875.0	871.9	874.5	870.2
スペクトル幅 [nm]	7.8	14.0	7.2	5.6
パルス幅 [fs]	110	68	125	143
$\Delta\nu \cdot \Delta\tau$	0.33	0.37	0.35	0.32
ピークパワー [W]	139	273	126	125

2.4. あとがき

1980 後半に Ti:Sapphire レーザーが出現して以来、フェムト秒レーザーの応用分野は急速に発展してきた。その間、気体レーザーから半導体レーザー励起固体レーザーの第二高調波への励起光源の移行、チャープミラーの開発、半導体可飽和吸収ミラーの開発など様々な技術が開発されてきたが、20 年以上経過した今日においても依然として Ti:Sapphire レーザーがフェムト秒レーザーの主流である。開発された様々な技術の恩恵を受けて、Ti:Sapphire レーザーの小型化、あるいは操作性の向上が図られているものの、レーザーの起動・停止、あるいは日々のメンテナンスといった面ではユーザーの負担は大きいままである。また、装置が複雑であるために、初期投資に加え電気代や修理代といった維持費といった面でもユーザーの負担は大きい。本章では、こういったユーザーの負担を低減させると共に、フェムト秒レーザーの応用範囲を拡大する事を目的として、半導体レーザー直接励起による小型なフェムト秒レーザーを開発し、その構造・動作原理・基本特性について述べた。

その中で、本研究では、Cr:LiSAF レーザー媒質を用いることで、Ti:Sapphire と同等のパルス幅を有しながらも、レーザー媒質を分散補償用プリズム対で挟み込む構成を考案することで小型な共振器を実現した。また共振器の小型化のための基礎実験として、安定したフェムト秒光パルス列を得るためには励起光源の空間モードのクオリティが重要であることを見出し、従来の共振器構成ではあるが MOPA 型半導体レーザーを用いることで全固体フェムト秒レーザーとしては当時世界最短の 30 fs というパルス幅を達成した。また、広い利得帯域を利用することで、100 nm 以上にわたる広帯域連続波長可変が可能であることも実証し、Cr:LiSAF レーザーが Ti:Sapphire レーザーの代替と成りえる事を示唆した。

次章（第 3 章）では、フェムト秒レーザーの応用分野をより一層拡大させるために、時間的な位相（時間波形）を制御するための波形整形器の開発を目指して、波形整形器の詳細な検討を行った結果を述べる。同時に、波形整形技術を用いた各種応用への展開を図る。続く第 4 章では、空間的な位相の制御（光波面制御）を実現するために、LCOS 型空間光変調器の耐光性向上、ならびに光波面制御モジュールの開発と共に、波面制御技術の応用展開について述べる。

2.5. 第2章の参考文献

- 1) S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, and H. W. Newkirk; "Laser performance of $\text{LiSrAlF}_6:\text{Cr}^{3+}$," J. Appl. Phys. **66**, 1051–1056 (1989).
- 2) Richard Scheps, Joseph F. Myers, Harvey B. Serreze, Ari Rosenberg, Robert C. Morris, and Marge Long; "Diode-pumped $\text{Cr}:\text{LiSrAlF}_6$ laser," Opt. Lett. **16**, 820-822 (1991).
- 3) M. Stalder, B. H. T. Chai, and M. Bass; "Flashlamp pumped $\text{Cr}:\text{LiSrAlF}_6$ laser," Appl. Phys. Lett. **58**, 216-218 (1991).
- 4) S. A. Payne, W. F. Krupke, L. K. Smith, W. L. Kway, L. D. DeLoach, and J. B. Tassano; "752 nm wing-pumped $\text{Cr}:\text{LiSAF}$ laser," IEEE J. Quantum Electron. **28**, 1188–1196 (1992).
- 5) Donald J. Harter, Jeff Squier, and Gérard Mourou; "Alexandrite-laser-pumped $\text{Cr}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$," Opt. Lett. **17**, 1512-1514 (1992).
- 6) 青島紳一郎, 伊藤晴康, 黒柳和良; 「可視波長可変レーザー」, 光学, **9**, 505-511 (1996).
- 7) Scheps, R.; " $\text{Cr}:\text{LiCaAlF}_6$ laser pumped by visible laser diodes", IEEE J. Quantum Electron, **27**, 1968-1970 (1991).
- 8) Scheps, R. Myers, J.F. Payne, S.A.; "CW and Q-switched operation of a low threshold $\text{Cr}^{3+}:\text{LiCaAlF}_6$ laser", IEEE Photon. Tech. Lett., **2**, 626-628 (1990).
- 9) Payne, S.A.; Chase, L.L.; Newkirk, H.W.; Smith, L.K.; Krupke, W.F.; " $\text{LiCaAlF}_6:\text{Cr}^{3+}$: a promising new solid-state laser material", **24**, 2243-2252 (1988).
- 10) Qi Zhang, G. J. Dixon, B. H. T. Chai, and P. N. Kean, "Electronically tuned diode-laser-pumped $\text{Cr}:\text{LiSrAlF}_6$ laser," Opt. Lett. **17**, 43-45 (1992).
- 11) N. H. Rizvi, P. M. W. French, and J. R. Taylor; "Generation of 33-fs pulses from a passively mode-locked $\text{Cr}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$ laser," Opt. Lett. **17**, 1605-1607 (1992).
- 12) M. D. Perry, D. Strickland, T. Ditmire, and F. G. Patterson; " $\text{Cr}:\text{LiSrAlF}_6$ regenerative amplifier," Opt. Lett. **17**, 604-606 (1992).
- 13) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, Kazuyoshi Kuroyanagi, Yoshihiro Takiguchi, Yasushi Ohbayashi and Yutaka Tsuchiya; "All solid-state $\text{Cr}:\text{LiSAF}$ Laser", IEEE Transaction on Instrumentation and Measurement, **44**, 972-976 (1995).
- 14) 青島紳一郎, 伊藤晴康, 黒柳和良, 土屋裕; 「全固体 $\text{Cr}:\text{LiSAF}$ レーザーによる44フェムト秒パルス発生」, レーザー研究, **23**, 996-1001 (1995).
- 15) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh and Yutaka Tsuchiya; "Transform-limited 30-fs pulse generation", Jpn. J. Appl. Phys., **36**, 2698-2700 (1997).
- 16) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh and Yutaka Tsuchiya; "Compact diode-pumped $\text{Cr}^{3+}:\text{LiSrAlF}_6$ femtosecond laser", Jpn. J. Appl. Phys., **36**, L114-L116 (1997).
- 17) Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, Makoto Hosoda and Yutaka Tsuchiya; "Short cavity all-solid-state femtosecond $\text{Cr}:\text{LiSAF}$ laser", Jpn. J. Appl. Phys., **36**, 6380-6382 (1997).
- 18) A. Penzkofer and W. Bäuml; "Theoretical analysis of pulse development in a colliding pulse mode-locked dye laser ", Opt. Quantum Electron, **23**, 727-754 (1991)
- 19) Zhigang Zhanga, Tadashi Nakagawab, Hideyuki Takadab, Kenji Torizukab, *, Takeyoshi Sugayab, Taisuke Miurac and Katsuyuki Kobayashi; "Low-loss broadband semiconductor saturable absorber mirror for mode-locked $\text{Ti}:\text{sapphire}$ lasers", Opt. Commun., **176**, 171-175 (2000).
- 20) T. Brabec, Ch. Spielmann, P. F. Curley, and F. Krausz; "Kerr lens mode locking" Opt. Lett. **17**, 1292-1294 (1992).

- 21) R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon; "Negative dispersion using pairs of prisms" *Opt. Lett.* **9**, 150-152 (1984).
- 22) E. B. Treacy; "Optical pulse compression with diffraction gratings" *IEEE J. Quantum Electron.*, **5**, 454-458 (1969).
- 23) Oscar Eduardo Martinez; "3000 times grating compressor with positive group velocity dispersion: application to fiber compensation in 1.3-1.6 μm region", *J. Quantum. Electron.*, **QE-23**, 59-64 (1987).
- 24) G. A. Mourou, C. P. J. Barty, and M. D. Perry; "Ultrahigh-intensity lasers: Physics of the Extreme on a Tabletop ", *Phys. Today*, **51**, 22-28 (1998).
- 25) Jean-Claude M. Diels; "Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy", *Appl. Opt.*, **24**, 1270-1282 (1985).
- 26) S. O'Brien R. Lang R. Parke J. Major D. F. Welch D. Mehuys; "2.2-W continuous-wave diffraction-limited monolithically integrated master oscillator power amplifier at 854 nm", *IEEE Photon. Tech. Lett.*, **5**, 297-300 (1993).

第3章 フェムト秒光パルスの時間波形制御

3.1. まえがき

フェムト秒レーザーのパルス幅は、分子の振動周期と同程度であるため、フェムト秒レーザーを用いることによって分子の遷移状態を観測することが可能になる。その高速性を利用して光と物質の相互作用を制御することも可能である¹⁻⁴⁾。この際、光パルスの波形を制御することによってその制御性を向上させることが可能である事が示唆されている⁵⁻⁶⁾。しかしながら、フェムト秒領域で応答する電子デバイスは今のところ存在しない。そこで、周波数領域において光パルスの振幅および位相を制御し、これをフーリエ変換することによって時間領域における光パルスの振幅および位相を高い自由度で制御する技術、いわゆる波形整形の技術が考案された⁷⁻⁹⁾。波形整形技術は、光パルスに含まれる周波数成分の振幅と位相を個別に制御することにより、光パルスの時間波形を任意の時間波形に整形する技術である。波形整形された光パルスを用いることにより、光と物質の相互作用を効率的に制御することが可能となるが、フェムト秒レーザーを用いた反応系では、相互作用を制御する上での最適パルス波形自体が多くの場合には既知でないことがその応用範囲を限定していることも事実である。多くの物質系における光と物質の相互作用がブラックボックス的であるため、最適パルス波形を解析的に導くことが困難である反応系も数多い。この様な場合、反応効率を制御信号として、この信号を波形整形器にフィードバックする閉ループ制御系を構築することにより、最適パルス波形を自動的に生成する手法が有効となる¹⁰⁻¹³⁾。

本研究では、光アドレス型空間光変調器^{14,15)}を用いることによって、小型でありながら高い波長分解能を有する波形整形器を開発した。この際、画素構造を有しない光アドレス型空間光変調器を用いることによって画素構造に起因するサテライトパルスの発生が抑制されること、そして空間光変調器の誘電体多層膜鏡の反射率を高くすると同時に透明電極の吸収率を低く抑えることにより位相変調に伴う強度変化が低減されることを解析的に検証した。同時に、波形整形された光パルスを透明材料の内部加工に適用することで、光と物質の相互作用を制御できることを実証した¹⁶⁾。一方、フェムト秒光パルスを取り扱う場合、その特性を十分に認識した上で使用する必要がある。特に、波形整形された光パルスを用いる場合には、設計通りの位相制御が行われているのかを認識するために、その位相情報を計測する必要がある。この際、計測により得られたデータが解析理論に則っているのか、そしてどのような手法に基づいて解析されるのかを十分に考慮した上で計測する必要がある。そこで、各種計測法を理論的に検証すると同時に、その理論に基づいた計測装置を自作した。波形整形器の開発においては、自作した評価装置によってその波形を評価することで、得られた光パルスの正当性を実証した。さらに、光と物質の相互作用が未知の状態においても、その反応効率を自動的に向上させることが可能な適応型反応制御装置を開発した。そして、適応型反応制御装置を、ガラス媒質や光ファイバー伝送時に生じる波長分散、あるいは非同軸光パラメトリック増幅時に生じる波長分散の自動補正に適用することで、その有意性を実証した。以下に詳細を述べる。

3.2. 光アドレス型空間光変調器を用いた反射型波形整形器の開発

3.2.1. はじめに

一般に、モード同期レーザー発振器から出力されるフェムト秒光パルスの時間波形は、 sech^2 の強度波形を有する。したがって、これらの光パルスを増幅する場合においてもその時間波形も同様な強度波形が反映される。この場合、フェムト秒光パルスを直接増幅しようとする、レーザー媒質の持つ非線形性のためにビーム断面内でフィラメンテーションと言われる光強度の不均一化が生じる。あるいは、光パルスのピーク強度の増加に伴って増幅器共振器内部の光学部品が破損される。そのため、図 3-1 に示されるように、増幅前に一旦パルス幅を広げることで光パルスのピーク強度を低減させた後にエネルギーを増幅させ、最終段でパルス幅を圧縮するチャープパルス増幅 (CPA: Chirped Pulse Amplification)¹⁷⁾ という手法が用いられる。通常は、2.2.2 項で述べたストレッチャー (伸延器) を用いて正分散を与えることでパルス幅を広げ、コンプレッサー (圧縮器) によって負分散を与えることでパルス幅を圧縮する。この圧縮器の調整具合、すなわち回折格子対の間隔を調整することによってパルス幅を制御することが可能となる。現状では、このようにしてパルス幅が制御された高強度フェムト秒光パルスを反応制御系に利用することで、光と物質の相互作用を制御する試みがなされている。

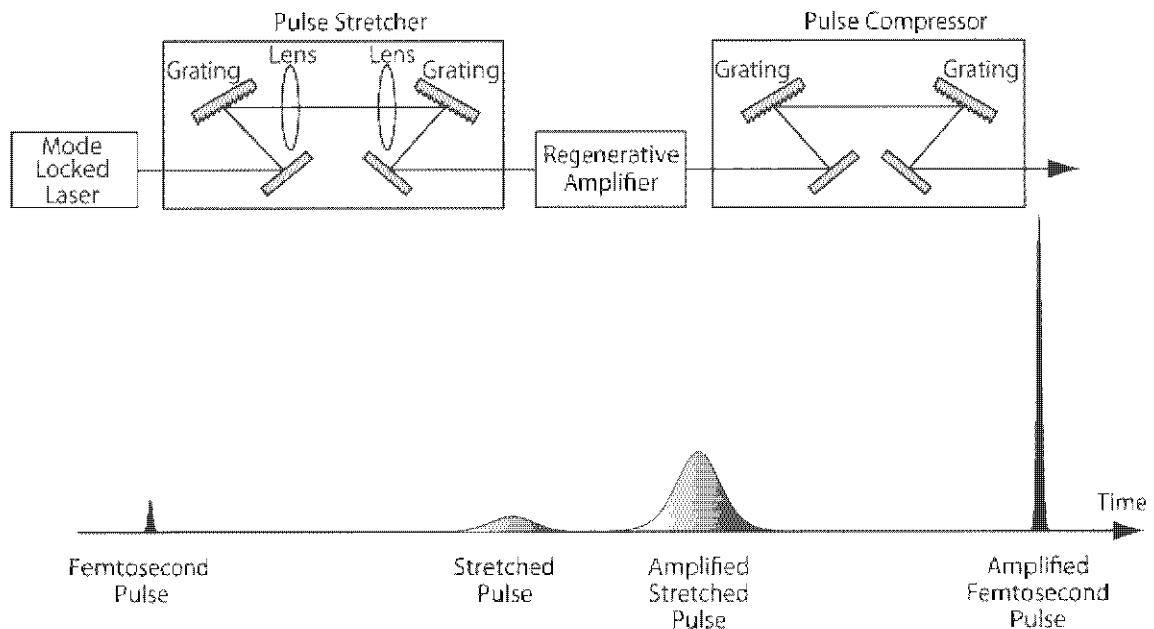


図 3-1 チャープパルス増幅器の概念図

ただし、上記手法ではパルス幅が制御されるだけで、パルス波形を任意の形状に制御することは不可能である。反応制御系において光と物質の相互作用を制御する場合には、より複雑な時間波形が要求される場合が多いが、現時点ではフェムト秒の時間領域で応答する変調器が存在しない。そのため、レーザー共振器から出力される光パルスの時間波形を、複雑なパルス波形に直接整形する (時間領域において強度・位相変調を行う) ことは困難である。そこで、周波数領域において光パルスの振幅および位相を制御し、これをフーリエ変換することによって時間領域にける光パルスの振幅および位

相を高い自由度で制御する技術、いわゆる波形整形 (Pulse Shaping) の技術が考案された。現在では、レーザー増幅系の高次波長分散の補償、あるいは量子制御、化学反応制御などの光と物質との相互作用の制御等に広く用いられるようになった。

周波数領域における非時間依存型線形フィルタリングによるフェムト秒光パルスの波形整形は、時間領域における線形フィルタリングに対応する。電気信号プロセッシングとしてよく知られるように、時間領域における線形フィルタリングは、インパルス応答関数で記述されるフィルター関数 $h(t)$ と入射光パルス $e_{in}(t)$ とのコンボリューションとして

$$\begin{aligned} e_{out}(t) &= e_{in}(t) * h(t) \\ &= \int dt' e_{in}(t') h(t-t') \end{aligned} \quad (3-1)$$

と表される。入射信号 $e_{in}(t)$ がデルタ関数の場合には、出力信号は単純にフィルター関数 $h(t)$ と等価となる。したがって、入力光がフェムト秒光パルスのように極めて短い光パルスである場合には、出力光パルスの時間波形を所望の波形にどれだけ近づけられるか否かは、いかに高精度な線形フィルターを用意できるかがという問題に直結する。この場合、パルス幅が 100 fs 程度の光パルスを、後述する変調器の分解能に依存する 100 fs から数 ps の時間領域で制御するためには、それらの時間波形に対応するインパルス応答関数を有する線形フィルターを用意しなくてはならない。ところが、上述したようにサブピコ秒領域で任意に制御でき、かつ高速応答を示すデバイスが現存しないために、時間領域で直接波形を制御することは不可能である。そこで、時間領域での入射信号をフーリエ変換することでその成分を周波数領域に展開させ、同時に線形フィルタリングを施すことによってフェムト秒光パルスの時間波形を制御しようというのが波形整形の基本概念となる。すなわち、式(3-1)のフーリエ変換は

$$E_{out}(\omega) = E_{in}(\omega) H(\omega) \quad (3-2)$$

$$H(\omega) = \int dt h(t) e^{-j\omega t} \quad (3-3)$$

$$h(t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega H(\omega) e^{j\omega t} \quad (3-4)$$

となり、出力波のスペクトル $E_{out}(\omega)$ は入力波のスペクトル $E_{in}(\omega)$ とフィルターの周波数応答 $H(\omega)$ との積で表されることになる。時間領域での入力関数 $e_{in}(t)$ がデルタ関数であれば、そのスペクトルは一定強度で全周波数にわたって連続となるため、十分な周波数応答を有する周波数フィルターを作成することが可能となり、これによって任意の時間波形を有する光パルスに整形することが可能となる。

上記周波数フィルタリングによる波形整形を実現するためには、図 3-2 に示されるように回折格子とレンズとの組み合わせによるフーリエ変換と、空間光変調器によるフィルタリングにより実現される。この時、光パルスの有する周波数成分がフーリエ面において1次元配列として空間的に展開されるため、周波数フィルターの周波数応答は空間光変調器の空間分解能に対応することとなる。すなわち、周波数領域での線形フィルタリングにおいては、時間的応答はまったく要求されない固定フィルターによりフェムト秒の超高速時間域を等価的に制御することが可能となる。

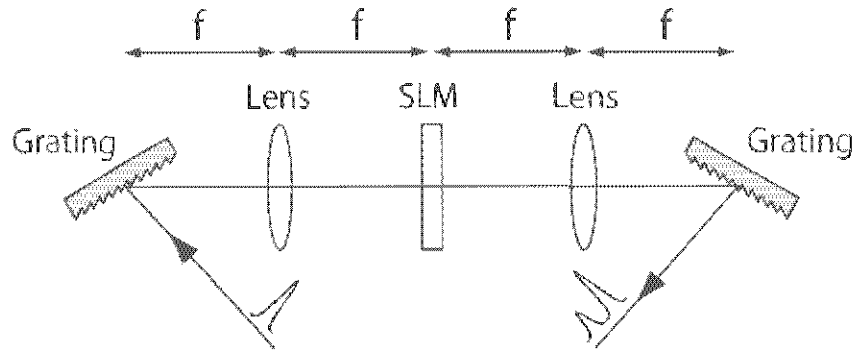


図3-2 周波数フィルタリングに基づく時間波形整形の概念図

図3-2に示すように、波形整形光学系は、回折格子とレンズ間の距離と、レンズと空間光変調器との距離をレンズの焦点距離と等しくした $4f$ 光学系の配置となる。また、図2-16に示したストレッチャーと比較すると明らかなように、回折格子とレンズ間の距離がレンズの焦点距離と等しいために、波形整形器はゼロ分散のストレッチャーの光学系と等価となる。すなわち、波形整形器自体は波長分散を有しないために、高い分解能での位相制御が可能となる。回折格子に入射したフェムト秒光パルスは回折格子によって角度分散を受け、フーリエ変換配置のレンズ(あるいは凹面鏡)によってフーリエ変換面に結像される。フーリエ変換面では、一方向に周波数成分が空間的に展開され、空間光変調器によって個々の周波数成分に対して独立した位相変調、あるいは振幅変調が施される。波形整形器は空間光変調器に関して左右対称の光学配置をとるため、周波数フィルタリングされた光は空間的に同軸上に再合成されて出射することで、等価的に時間領域での振幅・位相変調を受けることになる。ただし、位相と振幅の両方を制御する方法はより厳密な制御を可能とするが、振幅フィルタリングが利用できる光強度を著しく低下させてしまう。レーザーの光強度が制限される実用面においては、光強度の損失によって所望の条件を満足させることができないといった問題が生じる。そこで、本研究では位相フィルタリングのみによって近似的な整形を行うことにした。

3.2.2. 光アドレス型空間光変調器

一般に、周波数成分が空間的に展開されたフーリエ変換面において周波数フィルタリングを行う波形整形法では、電氣的に周波数フィルターを可変制御できる空間光変調器が用いられる。空間光変調器としては、石英ガラスの傾きを変えるデバイス¹⁸⁾や、圧電素子により反射面の形状を制御するデバイス(デフォーマブルミラー)¹⁹⁾、磁性膜の磁気光学効果(ファラデー効果)を用いたデバイス²⁰⁾、あるいは液晶型のデバイス²¹⁾等が用いられ、現在では液晶型のデバイスが主流となっている。液晶型のデバイスは透過型と反射型とに分類され、さらに画素電極に印加する電圧を直接制御する電気アドレス型と、背面から照射されるレーザー光の光量によって液晶層に印加される電圧を制御する光アドレス型とに分類される。この中で、我々は高い回折効率が得られると共に、画素構造を有しないために回折ノイズが発生しない光アドレス型空間光変調器を用いて波形整形器を構築した。

図3-3に示すように、光アドレス型空間光変調器はガラス基板に蒸着された透明電極(ITO:

Indium Tin Oxide、酸化インジウム・スズ、 $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Sn}$ 間に光アドレス材料である水素化アモルファスシリコン ($\alpha\text{-Si}$) と液晶層とが挟み込まれた構造を有する。薄膜トランジスタや太陽電池に用いられる $\alpha\text{-Si}$ は、照射される光（書き込み光）の強度に依存してその抵抗値が変化するため、透明電極間に一定の電圧を印加した状態で書き込み光の強度を制御することで、 $\alpha\text{-Si}$ を可変抵抗として機能させることが可能となる。 $\alpha\text{-Si}$ の抵抗値が変化すると、液晶部分に印加される実効電圧が変化するため、液晶層の屈折率が変化し、最終的に光アドレス型空間光変調器に入射する被変調光（読み出し光）の位相を制御することが可能となる。さらに、書き込み光として空間パターンを有する光を用いることで、読み出し光の位相を2次元で制御することが可能となる。また、液晶層と $\alpha\text{-Si}$ 層との間に設置された誘電体多層膜鏡で読み出し光が反射される構造とすることで、高い光利用効率が実現される。

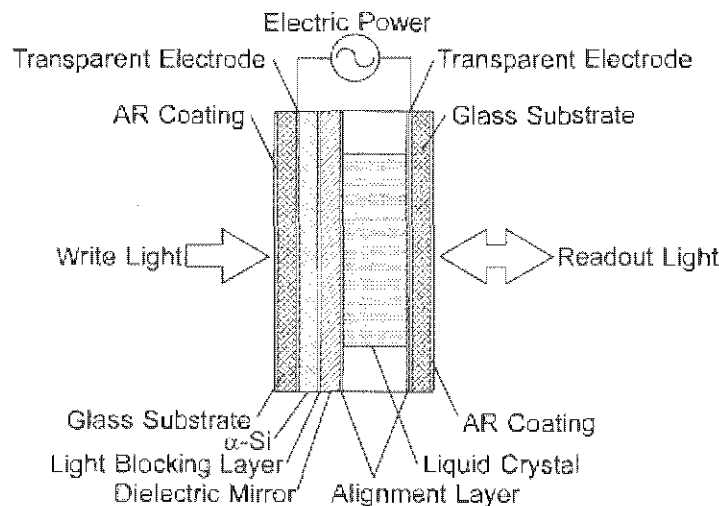


図 3-3 光アドレス型空間光変調器の構造

さらに、コンピューターによる位相制御を実現するために光アドレス型空間光変調器と電気アドレス型の液晶ディスプレイ（LCD）を光学伝達素子で結合したモジュールが図 3-4 に示すプログラマブル位相変調ユニット（PPM: Programmable Phase Modulator）である²²⁾。PPMを用いることにより、コンピューターの画面と1対1に対応した2次元的な位相変調が可能となる。

図 3-5 に示すように、PPM においては、コンピューターで作成された画像（640×480 画素、256 階調）が LCD に表示されると共に、この LCD を背面から半導体レーザーコリメート光で照射することにより、中央部（480×480 画素）が光アドレス型空間光変調器に結像さる。これによりコンピューターの画像に応じた書き込み光の強度パターンが得られるため、その強度パターンに応じて位相変調量を制御することが可能となる。さらに、結像レンズ内に高周波成分を遮断する機械的フィルターを配置することで、光アドレス型空間光変調器上では LCD の画素構造が除去されるため、位相変調時に回折ノイズが発生しない特徴を有する。特に、周波数成分が空間的に展開されるフーリエ変換面に空間光変調器が配置される波形整形器では、位相変調パターンに画素構造が重畳することによってサテライトパルスが発生する。そのため、画素構造を有し

ない PPM は波形整形において有効なデバイスとなる。前記サテライトパルスの発生に関して、以下に詳細を述べる。

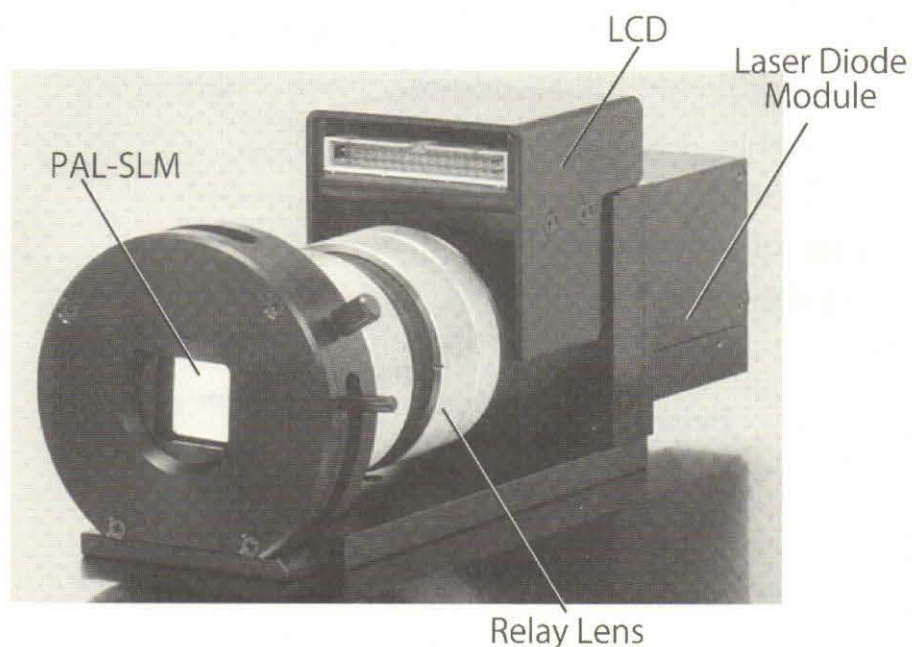


図 3-4 プログラマブル位相変調ユニット概観

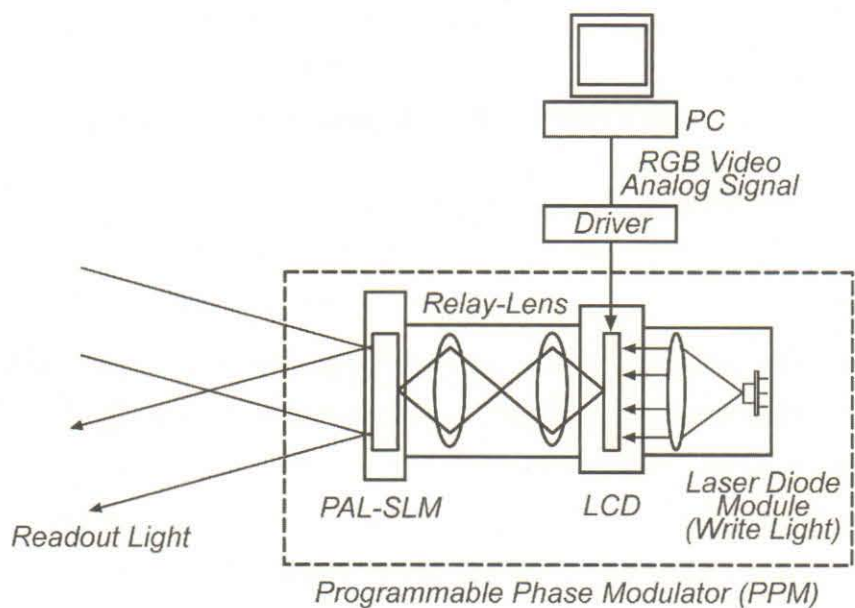


図 3-5 プログラマブル位相変調ユニット概念図

3.2.3. 波形整形器における画素電極間のギャップの影響

空間光変調器は、電極が1次元もしくは2次元に配置され、これらの電極に印加される電圧を独立制御することで空間的な位相変調を可能とするデバイスである。この場合、電極間に電圧が印加され

ないギャップを設けることによって、隣接する電極同士が電氣的に分離される。空間的な波面制御を行う場合には、これらのギャップは回折光が生じる要因となる。一方、周波数成分が空間的に展開されるフーリエ変換面に空間光変調器が配置される波形整形器では、これらのギャップは時間的なサテライトパルスを発生させる要因となる。この点について、以下に検証する。

図3-6に示すように、1次元の空間光変調器の電極幅およびギャップ幅が

- (a) 電極幅 80 μm 、ギャップ幅 60 μm
- (b) 電極幅 100 μm 、ギャップ幅 40 μm
- (c) 電極幅 120 μm 、ギャップ幅 20 μm

となる条件を波形整形器に用いた場合の出力光パルスを評価する。

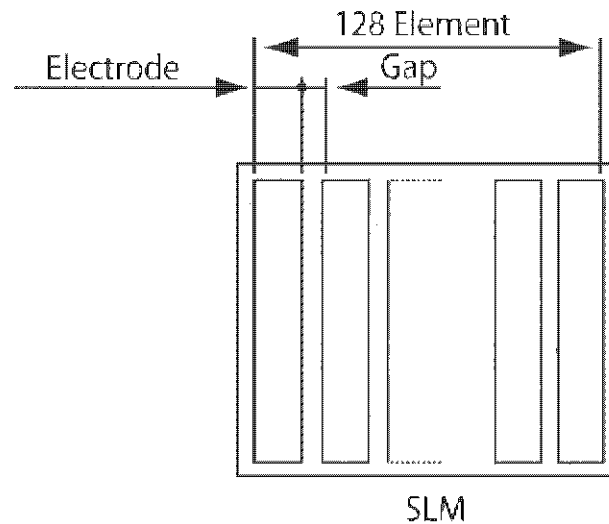


図 3-6 1次元空間光変調器の電極幅とギャップ幅の定義

入射光パルスのパルス波形を sech^2 、そのパルス幅を 60 fs とすると、その時間波形は図 3-7 となり、時間波形をフーリエ変換することにより得られるスペクトル波形は図 3-8 となる。

一方、波形整形の構成に関しては後に詳細を述べるが、回折格子の溝本数を 600 本/mm、結像凹面鏡の曲率半径を $R=1500\text{ mm}$ とすると、波長範囲 32 nm (=806-774) の成分が SLM 上で約 14.5 mm の領域に空間展開される。この場合、空間光変調器上での単位長さあたりの周波数は $32\text{nm}/14.5\text{mm}=2.2\text{ nm/mm}$ となるため、ギャップ幅 20 μm 、ギャップ幅 40 μm 、およびギャップ幅 60 μm に相当する波長範囲はそれぞれ 0.04 nm、0.08 nm、および 0.13 nm と求められる。これより、ギャップに伴う強度フィルターが作成される。例えば、電極幅 100 μm 、ギャップ幅 40 μm の強度フィルターは図 3-9 により示される。

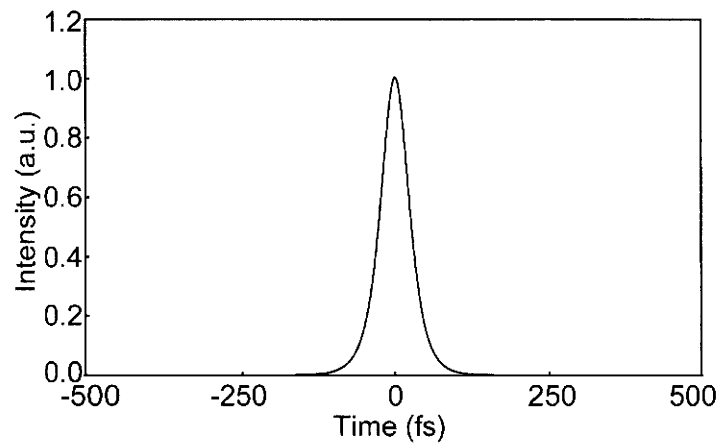


図 3-7 入射光パルスの時間波形

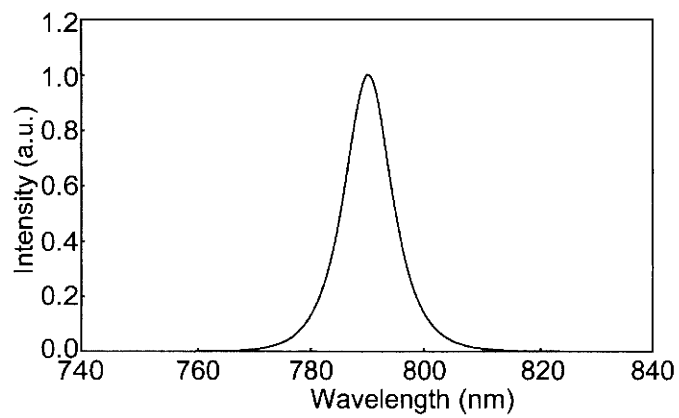


図 3-8 入射光パルスのスペクトル

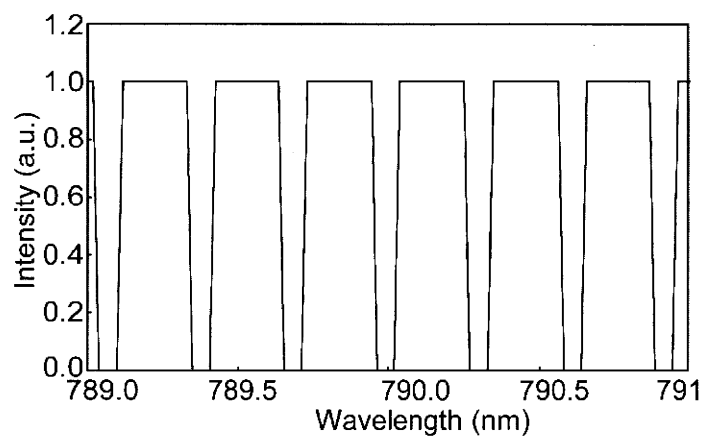
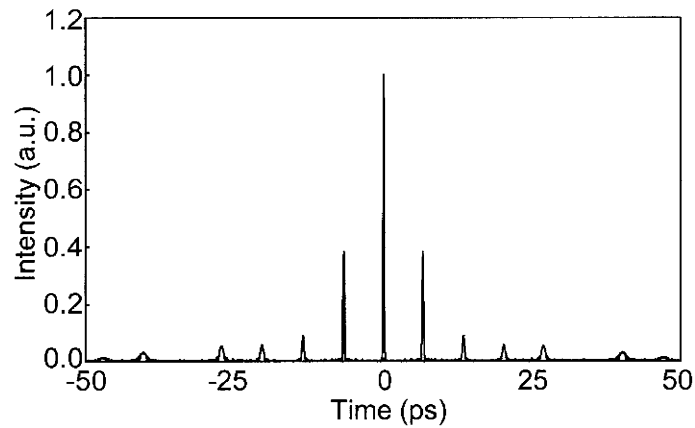


図 3-9 画素ギャップに伴う強度フィルター

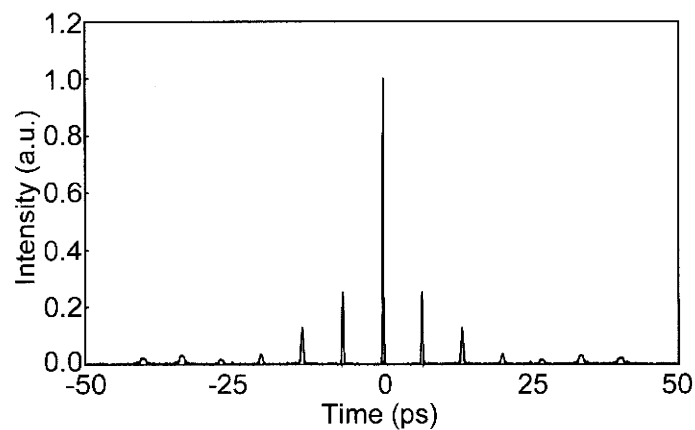
(電極幅 100 μm 、ギャップ幅 40 μm 、一部拡大表示)

最終的に、図 3-8 に示されるスペクトルとそれぞれの強度フィルターを掛け合わせ、これらをフーリエ変換することにより電極間のギャップの影響を受けた出射光パルスの時間波形が生成される。各条件

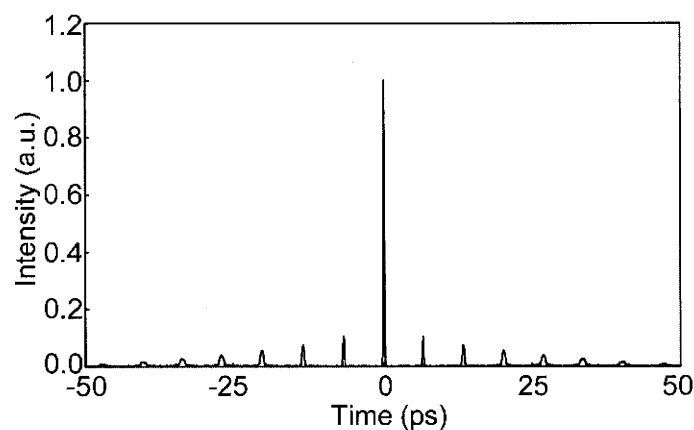
での時間波形を図 3-10 に示す。ギャップ幅が大きいほどサテライトパルスの強度が増強されることが確認された。



(a) 電極幅 80 μm 、ギャップ幅 60 μm



(b) 電極幅 100 μm 、ギャップ幅 40 μm



(c) 電極幅 120 μm 、ギャップ幅 20 μm

図 3-10 電極間のギャップの影響を受けた出射光パルスの時間波形

以上の結果から、高精度な波形整形を実現するためには高い空間分解能を有する空間光変調器が必要となるが、サテライトパルスを抑えるためには、画素電極間のギャップを小さくすることも重要であることが明らかになった。これより、画素構造が除去された光アドレス型並行配向液晶空間光変調器が、波形整形器に有効なデバイスであることが確認された。

3.2.4. 空間光変調器の反射面と透明電極間における多重干渉の影響

波形整形器において空間光変調器を用いる上で、反射面と透明電極間における多重干渉によって生じるエタロン効果についても十分に考慮する必要がある。エタロン効果によって位相変調と同時に光強度が変化するためである。この点について以下に考察する。

図3-11に示すファブリ・ペローエタロンを考える。入射波の複素振幅を A_i 、部分反射波の複素振幅を A_1, A_2, \dots 、部分透過波の複素振幅を B_1, B_2, B_3, \dots とした場合、1往復に相当する部分波、例えば A_1 と A_2 との光路差 ΔL が

$$\begin{aligned} \Delta L &= AB + BC \\ &= \frac{d}{\cos \vartheta} \times \cos 2\vartheta + \frac{d}{\cos \vartheta} \\ &= 2d \cos \vartheta \end{aligned} \quad (3-5)$$

と表されるので、これより位相差 δ は

$$\delta = \frac{2\pi \times \Delta L \times n}{\lambda_0} = \frac{4\pi n d \cos \vartheta}{\lambda_0} \quad (3-6)$$

と表される。

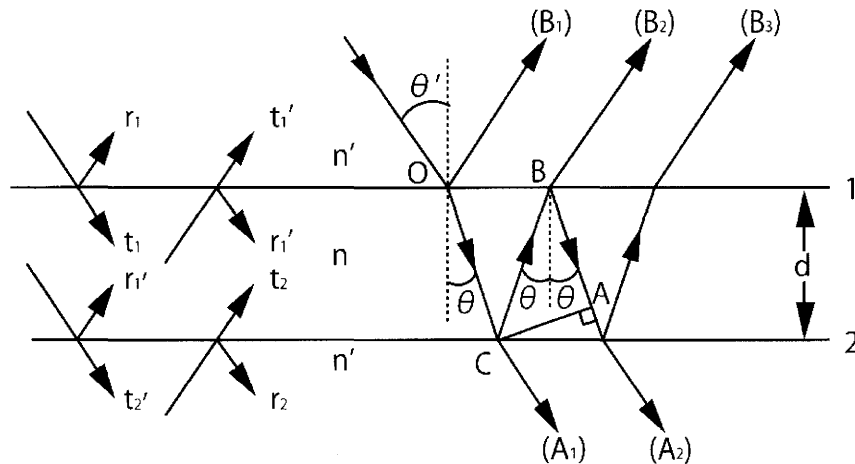


図3-11 ファブリ・ペローエタロンにおける諸変数

ここで、 λ_0 は真空中における入射波の波長である。一方、入射面における屈折率 n' の媒質から屈折率 n の媒質への入射波に対する反射係数を r_1 、透過係数を t_1 とし、屈折率 n の媒質から屈折率 n' の媒質への入射波に対する各係数をそれぞれ r_1' 、 t_1' 、さらに入射面の吸収係数を a_1 とする。同様に、出射面における屈折率 n の媒質から屈折率 n' の媒質への入射波に対する各係数をそれぞれ r_2 、 t_2 、さらに出射面の吸収係数を a_2 とする。この場合、部分反射波 B_1, B_2 、および B_3 は、

$$\left. \begin{aligned} B_1 &= r_1 A_i \\ B_2 &= t_1 t_1' r_2' A_i e^{i\delta} \\ B_3 &= t_1 t_1' r_1' r_2'^2 A_i e^{2i\delta} \end{aligned} \right\} \quad (3-7)$$

と表される。尚、位相項は位相差のみを考慮している。これより全ての部分反射波の総計である複素

振幅 A_r は

$$\begin{aligned} A_r &= B_1 + B_2 + B_3 + \dots \\ &= \left\{ r_1 + t_1 t_1' r_2' e^{i\delta} \left(1 + r_1' r_2' e^{i\delta} + r_1'^2 r_2'^2 e^{2i\delta} + \dots \right) \right\} A_i \end{aligned} \quad (3-8)$$

となる。透過波に対しても、それぞれの部分透過波が

$$\left. \begin{aligned} A_1 &= t_1 t_2' A \\ A_2 &= t_1 t_2' r_1' r_2' A_i e^{i\delta} \\ A_3 &= t_1 t_2' r_1'^2 r_2'^2 A_i e^{2i\delta} \end{aligned} \right\} \quad (3-9)$$

と表される。これより全ての部分透過波の総計である複素振幅 A_t は

$$\begin{aligned} A_t &= A_1 + A_2 + A_3 + \dots \\ &= t_1 t_2' \left(1 + r_1' r_2' e^{i\delta} + r_1'^2 r_2'^2 e^{2i\delta} + \dots \right) A_i \end{aligned} \quad (3-10)$$

(3-8)および(3-9)式の()内はいずれも等比級数の和であるから、それぞれ

$$\begin{aligned} A_r &= \left(r_1 + \frac{t_1 t_1' r_2' e^{i\delta}}{1 - r_1' r_2' e^{i\delta}} \right) A_i \\ &= \frac{r_1 + (R_1 + T_1) r_2' e^{i\delta}}{1 - r_1' r_2' e^{i\delta}} A_i \end{aligned} \quad (3-11)$$

$$A_t = \frac{t_1 t_2'}{1 - r_1' r_2' e^{i\delta}} A_i \quad (3-12)$$

と表される。ただし、 R_1 、 T_1 および A_1 はそれぞれ入射面における反射率、透過率および吸収率であり、 R_2 、 T_2 および A_2 は出射面における対応する量である。また、 $r_1' = -r_1$ 、 $r_1 = \sqrt{R_1}$ 、 $R_1 = r_1^2 = r_1'^2$ 、 $T_1 = t_1 t_1' = t_1^2$ 、 $A_1 = a_1^2$ 、 $r_2' = -r_2$ 、 $r_2 = \sqrt{R_2}$ 、 $R_2 = r_2^2 = r_2'^2$ 、 $T_2 = t_2 t_2' = t_2^2$ 、 $A_2 = a_2^2$ であり、エネルギー保存則 $r_1^2 + t_1 t_1' + a_1^2 = 1$ 、 $r_2^2 + t_2 t_2' + a_2^2 = 1$ が成り立つものとする。

入射強度が $A_i A_i^*$ である場合、(3-11)式より反射光強度と入射光強度の間に

$$\begin{aligned} \frac{I_r}{I_i} &= \frac{A_r A_r^*}{A_i A_i^*} \\ &= \frac{\left(\sqrt{R_1} - (R_1 + T_1) \sqrt{R_2} \right) + 4(R_1 + T_1) \sqrt{R_1} \sqrt{R_2} \sin^2(\delta/2)}{\left(1 - \sqrt{R_1} \sqrt{R_2} \right)^2 + 4 \sqrt{R_1} \sqrt{R_2} \sin^2(\delta/2)} \end{aligned} \quad (3-13)$$

の関係(=反射率)が得られる。さらに、(3-12)式より透過光強度と入射光強度の間に

$$\begin{aligned} \frac{I_t}{I_i} &= \frac{A_t A_t^*}{A_i A_i^*} \\ &= \frac{T_1 T_2}{\left(1 - \sqrt{R_1} \sqrt{R_2} \right)^2 + 4 \sqrt{R_1} \sqrt{R_2} \sin^2(\delta/2)} \end{aligned} \quad (3-14)$$

の関係(=透過率)が得られる。光アドレス型空間光変調器では、入射側のガラス基板の入射面には反射防止膜が施されているため、入射面の反射率はほぼ無視できる。ガラス基板の対面に施される透明電極では約1%程度が吸収されるため、 $R_1 = 2\%$ 、 $T_1 = 97\%$ とおける。一方、反射面に施された誘電

体多層膜鏡では、光がほぼ全反射されるので、 $T_2=1\%$ 、 $R_2=99\%$ として、(3-13)式から位相変調時の反射率を求めたところ、図3-12に示す結果が得られた。この場合、位相変調に伴う反射率の変化は最大で1.1%程度となった。

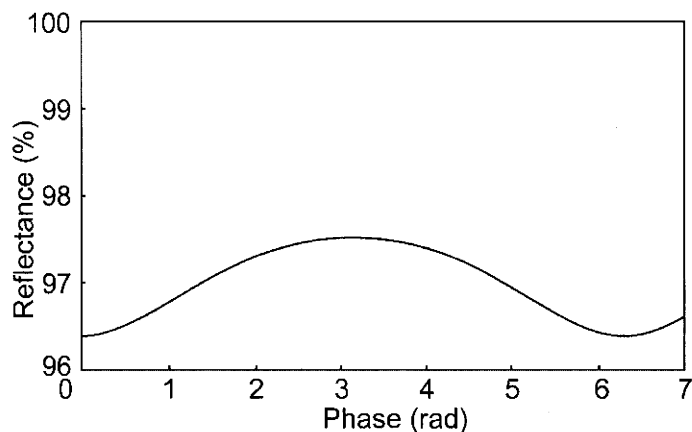


図3-12 多重干渉（エタロン効果）に伴う位相変調時の強度変化 ($R_2=99\%$ 、 $T_2=1\%$)

これに対して、画素電極(アルミ)を反射面として用いた場合には10%程度の光がアルミ電極に吸収されるため、 $T_2=20\%$ 、 $R_2=70\%$ となる。この場合の反射率を求めた結果が図3-13であり、位相変調に伴う反射率の変化は15%程度に増加した。

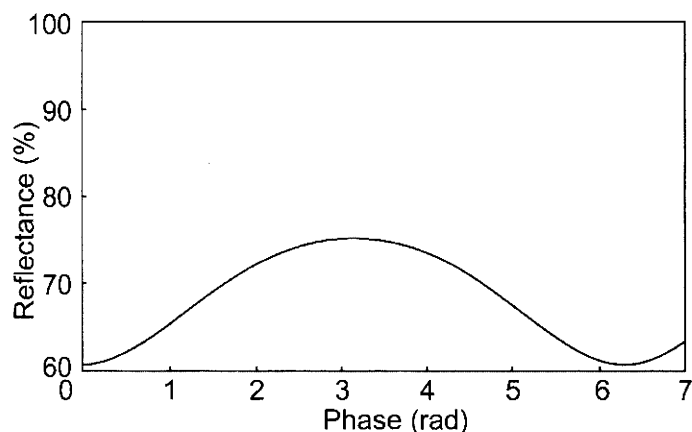


図3-13 多重干渉（エタロン効果）に伴う位相変調時の強度変化 ($R_2=70\%$ 、 $T_2=20\%$)

以上より、位相変調に伴う強度変化を抑えるためには、反射面の反射率を高くすることが重要であるため、誘電体多層膜鏡を用いる光アドレス型空間光変調器であっても、反射率を十分に考慮して構造設計する必要があることが明らかになった。特に、被変調光として波長帯域の広いフェムト秒レーザーを用いる場合には、誘電体多層膜鏡の帯域も十分に広くする必要がある。この場合、誘電体多層膜鏡を広帯域化することによって反射率が低下することで多重干渉の影響が顕著になるため、帯域と反射率とを十分に考慮して設計する必要がある。

3.2.5. 反射型波形整形器の設計

波形整形器を設計する上で、被変調光であるフェムト秒光パルスの周波数帯域を、空間光変調器上に満遍なく展開させることが重要となる。空間光変調器の有効領域に対応する周波数帯域が、フェムト秒光パルスの周波数帯域の一部のみに対応する状態では、被変調光の周波数成分が狭帯域化される。この場合、波形整形器そのものが周波数領域でのバンドパスフィルターと機能するために、光量の損失を招くばかりではなく、入射光のパルス幅に対して出射光のパルス幅が広がるという問題が生じる。逆に、フェムト秒光パルスの周波数帯域に対して空間光変調器の有効領域に対応する周波数帯域が広い場合には、波形整形器の波長分解能が低下するために、十分な制御が行えない。そのために、被変調光の周波数帯域に応じて、波形整形器を構成する回折格子の溝本数、入射角、ならびに結像素子の焦点距離を、空間光変調器の有効領域に適合させる必要がある。以下では、あらかじめ測定されたレーザーのパルス幅 $\Delta\tau = 65$ fs、中心波長 $\lambda = 790$ nm に対して最適な波形整形器を設計する。

図3-14に示される反射型のブレード回折格子を考える。入射角を α 、回折角を β 、1 mm あたりの溝本数(回折格子周期 d の逆数)を N 、 m を回折次数($m=0, \pm 1, \pm 2, \dots$)、 λ を波長とすると、グレーティング方程式は

$$\sin \alpha + \sin \beta = Nm\lambda \quad (3-15)$$

と表される。ただし、角度は反時計回りを正とする。ここで、溝の斜面に対して、入射光と m 次の回折光が鏡面反射の関係にあるとき、 m 次回折光にエネルギーの大部分が集中する。このときの溝の傾き(ブレード角 θ_B)は

$$\theta_B = \frac{\alpha + \beta}{2} \quad (3-16)$$

となる。また、この時の波長(ブレード波長 λ_B)は、(3-15)および(3-16)式を用いて

$$\lambda_B = \frac{2}{Nm} \sin \theta_B \cos(\alpha - \theta_B) \quad (3-17)$$

と表される。特に+1 次の回折光が戻る場合(リトロー配置)には $\alpha = \beta$ となるので、このときの波長 $\lambda_{B(Litt)}$ は

$$\lambda_{B(Litt)} = \frac{2}{N} \sin \theta_B \quad (3-18)$$

となる。ただし、既製の回折格子はとびとびのブレード波長 $\lambda_{B(Litt)}$ で設計されているために、これ以外の波長で用いる場合には、その波長がブレード波長となるように入射角を調整する必要がある。そこで、ブレード波長が $\lambda_{B(Litt)}$ に設計された回折格子に波長 λ_{center} の光を入射して、+1次光を効率よく取り出したい場合には、(3-15)、(3-16)および(3-18)式から得られる

$$\lambda_{B(Litt)} = \frac{2}{N} \sin \left[\frac{1}{2} \left\{ \sin^{-1} (N\lambda_{center} - \sin \alpha) + \alpha \right\} \right] \quad (3-19)$$

を満たす角度で光を入射すれば、波長 λ_{center} がこの回折格子のブレード波長となる。したがって、この時の角度 α が求める入射角となる。一方、波長 λ の光を角度 α で回折格子に入射した場合の出射角は、

(3-15)式から

$$\beta = \sin^{-1}(N\lambda_{center} - \sin \alpha) \quad (3-20)$$

と表される。例えば、溝本数1200 本/mm、ブレード波長 $\lambda_{B(Litt)}=800$ nmの回折格子を用いた場合、波長が $\lambda_{center}=790$ nmの入射光に対する最適な入射角は $\alpha=37.8^\circ$ と求められる。

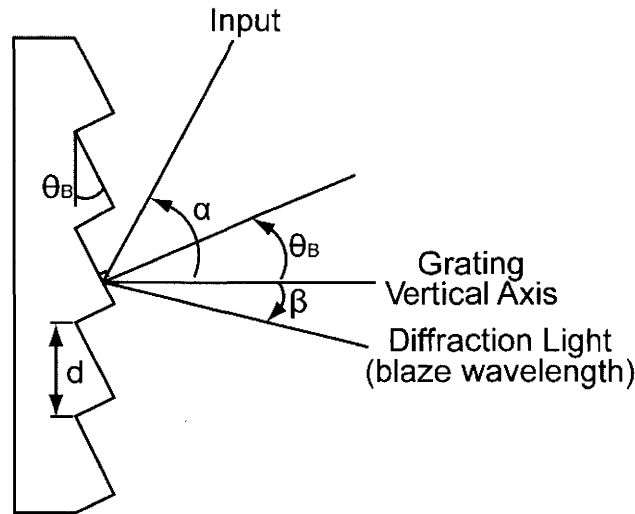


図 3-14 ブレード回折格子

回折格子により分光された周波数成分は、レンズや凹面鏡等によって空間光変調器上に結像されることによって空間的に展開される。ただし、レンズを用いる場合には、レンズ内部での光路長が周波数成分ごとに異なるために、これが位相差となって波長分散を生じる要因となる。またフェムト秒光パルスの場合には、同一周波数成分であっても、空間的にレンズ内部での光路長差が生じるために、空間的な時間分散を生じる要因となる。パルス幅が短い(=周波数帯域が広い)場合にはその影響が顕著になるために、結像素子として凹面鏡が用いられる場合が多い。この場合、フェムト秒光パルスの有する周波数成分と空間光変調器の有効領域とを適合させるために、凹面鏡の曲率半径(=焦点距離)を十分に考慮する必要がある。

トランスフォーム限界な光パルスの時間波形を sech^2 と仮定すると、スペクトル幅 $\Delta\nu$ (単位:Hz) とパルス幅が $\Delta\tau$ (単位:sec) との間には、ハイゼンベルグの不確定原理(sech^2 の場合は $\Delta\nu \cdot \Delta\tau = 0.315$)が成り立つ。更に、中心波長を λ とすると、スペクトル幅 (単位:m) は $\Delta\lambda = \Delta\nu \times \lambda^2 / c$ により算出される。この場合、スペクトル幅は半値全幅 (FWHM) で表されるため、空間光変調器にほぼ全域の周波数成分が照射されるためには、空間光変調器上の周波数帯域としてスペクトル幅の4倍程度が確保されることが望ましい(図3-15)。

以後の実験で使用するレーザーのパルス幅は $\Delta\tau = 65$ fs、中心波長は $\lambda = 790$ nmであるから、この時のスペクトル幅は $\Delta\nu = 4.8$ THz ($\Delta\lambda = \Delta\nu \times \lambda^2 / c = 10$ nm) と算出される。この場合、空間光変調器に照射される周波数帯域として40 nm以上を確保する必要がある。

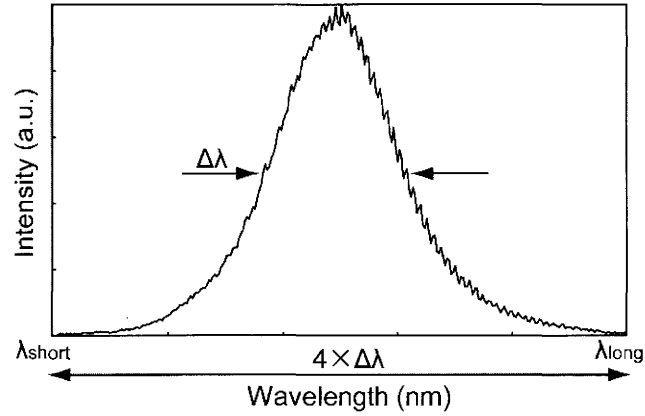


図3-15 被変調光のスペクトル

次に、凹面鏡上における周波数成分の空間的な分布について考察する。周波数成分の最短波長成分を λ_{short} 、最長波長成分を λ_{long} とし、図3-16に示すように凹面鏡上におけるこれらの周波数成分の照射位置をそれぞれ M_{short} 、 M_{long} とする。回折格子の回転角 θ は、光学系の配置から $\theta=23.4^\circ$ とした。 β_{790} はレーザーの中心波長 790 nmにおける回折角である。

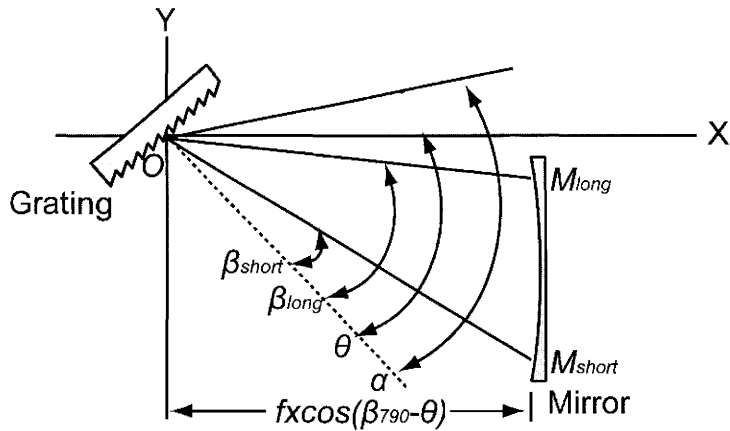


図3-16 最短周波数成分および最長周波数成分回折角、ならびに凹面鏡上における照射位置
この場合、(3-10)式より、回折格子の法線に対する波長 λ_{short} および λ_{long} の出射角 β_{short} および β_{long} はそれぞれ

$$\beta_{short} = \sin^{-1}(Nm\lambda_{short} - \sin \alpha) \quad (3-21)$$

$$\beta_{long} = \sin^{-1}(Nm\lambda_{long} - \sin \alpha) \quad (3-22)$$

と表される。これより、 M_{short} および M_{long} の座標がそれぞれ

$$M_{short} : \{f \times \cos(\theta - \beta_{790}), f \times \cos(\theta - \beta_{790}) \times \tan(\theta - \beta_{short})\} \quad (3-33)$$

$$M_{long} : \{f \times \cos(\theta - \beta_{790}), f \times \cos(\theta - \beta_{790}) \times \tan(\theta - \beta_{long})\} \quad (3-34)$$

となる。したがって、空間光変調器上での空間的な広がり H_{SLM} は

$$\begin{aligned} H_{SLM} &= M_{long} - M_{short} \\ &= \left| f \times \cos(\theta - \beta_{790}) \times \{ \tan(\theta - \beta_{long}) - \tan(\theta - \beta_{short}) \} \right| \end{aligned} \quad (3-35)$$

により求められる。例えば、 $\lambda_{short}=770$ nm、 $\lambda_{long}=810$ nm、凹面鏡の焦点距離を $f=250$ mmとすると、空

間光変調器上における上記周波数成分の水平方向の照射範囲は12.8 mmと算出される。この値は、使用する光アドレス型空間光変調器の有効領域20 mmと比較すると小さい値となるが、実験によっては中心波長を推移させる場合もあり得るため、適切な値と判断される。

一方、空間光変調器の空間分解能を有効に利用するためには、回折格子に依存する波長分解能と空間光変調器の空間分解能とを対応させる必要がある。そのためには、入射光のビーム径を適切な大きさとする必要がある。回折格子に入射するビーム径は有限の広がりを持っており、この広がりによって光路差が生じる。たとえば、図3-17に示すように、ビーム径 H_{in} の光が入射角 α で回折格子に入射し、出射角 β で出射する場合のビームの両端の光路を進むビームの光路差 ΔH は

$$\Delta H = W(\sin \alpha + \sin \beta) = \frac{H_{in}}{\cos \alpha} (\sin \alpha + \sin \beta) \quad (3-35)$$

と表される。(3-15)式より、(3-35)式は

$$\Delta H = \frac{H_{in}}{\cos \alpha} Nm\lambda \quad (3-36)$$

となる。したがって、この光路差による時間広がり $\Delta\tau$ は

$$\Delta\tau = \frac{\Delta H}{c} = \frac{1}{c} \frac{H_{in}}{\cos \alpha} Nm\lambda \quad (3-37)$$

により求められる。一方、時間広がり $\Delta\tau$ と周波数広がり $\Delta\nu$ の間には $\Delta\nu \cdot \Delta\tau \approx 1$ なる関係があるので、この時の周波数広がり

$$\Delta\nu = \frac{1}{\Delta\tau} = c \frac{\cos \alpha}{H_{in}} \frac{1}{Nm\lambda} \quad (3-38)$$

となる。したがって、 $\nu\lambda=c$ なる関係式を用いて、波長広がり $\Delta\lambda_{pass}$ は

$$\Delta\lambda_{pass} = \frac{\lambda^2}{c} \Delta\nu = \frac{\lambda \cos \alpha}{NH_{in}m} \quad (3-39)$$

と表される。ここで、空間光変調器の1素子の大きさを $H_{segment}$ とすると、SLM上でのビーム径が H_{SLM} 、波形整形の対象となるスペクトル領域が $\Delta\lambda = \lambda_{long} - \lambda_{short}$ であるから、空間光変調器の1素子に対応する波長幅 $\lambda_{segment}$ が

$$\lambda_{segment} = (\lambda_{long} - \lambda_{short}) / (H_{SLM} / H_{segment}) \quad (3-40)$$

により算出される。空間光変調器の1素子ごとに位相を制御することを考えると、光路差による波長広がり $\Delta\lambda_{pass}$ が空間光変調器の1素子に対応する波長幅 $\lambda_{segment}$ 以下であることが好ましい。すなわち、ビーム径 H_{in} が満たすべき条件は

$$H_{in} > \frac{H_{SLM} \times \lambda \times \cos \alpha}{N \times m \times H_{segment} \times (\lambda_{long} - \lambda_{short})} \quad (3-41)$$

となる。例えば、画素サイズが $H_{segment}=42 \mu\text{m}$ の光アドレス型空間光変調器を用いる場合には、入射光のビーム径 H_{in} を4 mm以上とする必要があるが、光アドレス型空間光変調器の耐光性を考慮して10 mm程度とすることが望ましい。

以上の計算結果を表 3-1 に、計算結果を基に設計された波形整形器の概念図を図 3-18 に示す。

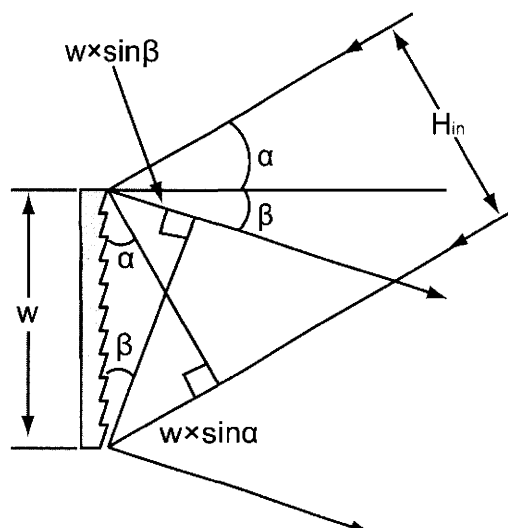


図3-17 回折格子による波長広がり

表 3-1 反射型波形整形器設計パラメータ

パラメータ	設計値
回折格子の溝本数 [line/mm]	1200
中心波長 [nm]	790 (実測値)
スペクトル幅 [nm]	10
スペクトル帯域 [nm]	40
凹面鏡の曲率半径 [mm]	500 (=焦点距離 250mm)
回折格子への入射角 [degree]	37.8
回折格子の回転角 [degree]	23.4
最小入射光ビーム径 [mm]	4 (10mm に設定)

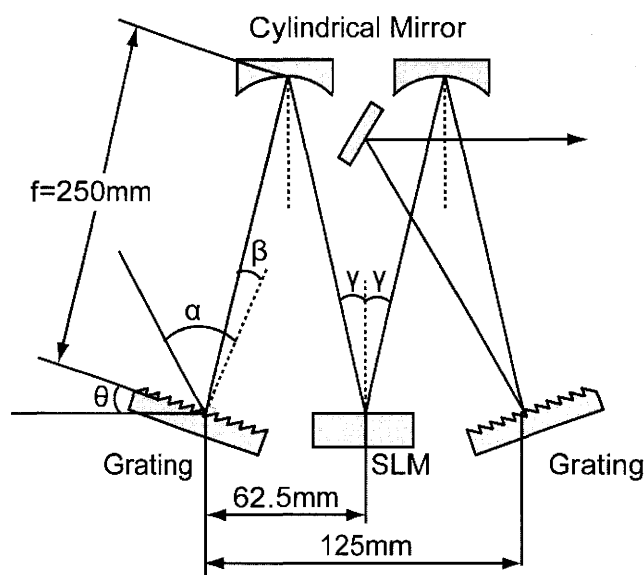


図 3-18 設計した反射型波形整形器

3.3. 反射型波形整形器の動作確認

3.3.1. はじめに

波形整形器は、周波數位相フィルタリングにより光パルスの時間波形を制御する装置である。したがって、波形整形器が設計通りに動作していることを確認するためには、波形整形された光パルスの位相を計測して、計測値と設計された位相フィルターとを比較する必要がある。ただし、従来のフェムト秒光パルスの計測において用いられてきた自己相関法は、パルス幅の評価を目的としているうえに、パルス波形を何らかの関数と仮定するために厳密なパルス幅を求めることはできない。当然のことながら、光パルスの位相を計測することは不可能である。そこで本研究では、周波数分解光ゲート法 (Frequency Resolved Optical Gating, FROG)²³⁾、フーリエ変換スペクトル干渉法 (Fourier Transform Spectrum Interferometry, FTSI)²⁴⁾、ならびにこれらの計測法を融合させることで厳密な位相計測を可能とする TADPOLE 法 (Temporal Analysis, by Dispersing a Pair Of Light E field)²⁵⁾を構築して、波形整形された光パルス进行评估した。また、周波數位相フィルタリングによって波形整形を行う場合には、任意の光パルスに整形するためのフィルターをいかにして設計するかが重要となる。その根幹となるアルゴリズムとしては様々なものが提案されているが、最も簡便な方法は反復フーリエ法 (Iterative Fourier Transform Algorithm, IFTA) である²⁶⁾。反復フーリエ法は、フーリエ変換と逆フーリエ変換を繰り返す中で、計算過程で生成されるスペクトルと入射光パルスの実スペクトルとを置換し、さらに計算過程で生成される時間波形と所望の時間波形とを置換することで位相を再構築する手法である。以下では、各種計測法、反復フーリエ法を用いた周波数フィルターの作成方法の原理を解析すると共に、自作したこれらの計測装置を用いて波形整形器の動作を確認した結果について述べる。

3.3.2. 周波数分解光ゲート法(FROG: Frequency Resolved Optical Gating)

周波数分解光ゲート法は、偏光ゲート型、カー効果型、第二高調波型等、検出する信号によって様々なタイプが存在するが、感度が高いために最も広く用いられているのが第二高調波 (SHG: Second Harmonic Generator) を利用した SHG-FROG である。SHG-FROG の基本構成は自己相関器の構成と類似しており、検出部を分光器に置き換えて SHG 自己相関信号の分光計測を行う計測法である。すなわち、図3-19に示すように、被測定光パルスを2分岐して、一方に遅延時間 τ を与えた後に、2つのパルスを SHG 結晶 (一般的に BBO) に集光して第二高調波を発生させる。このようにして得られた第二高調波のスペクトルを分光器にて測定するが、この際に遅延時間 τ を変えながら第二高調波のスペクトルを繰り返し測定する。これらのスペクトルを波長、遅延時間およびスペクトル強度を軸にとって3次元データ化することにより FROG 像を取得する。最後に、得られたデータを解析することによって光パルスの位相を再構築する。ただし、FROG では反復演算により二次元情報を解析するためにデータ数が制限される。そのために、レーザーから出力される光パルスのように位相変化が滑らかな場合には有効であるが、波形整形後の光パルスのように複雑な位相情報を有する光パルスの計測には適さない。この解析方法について以下に詳細を述べる。

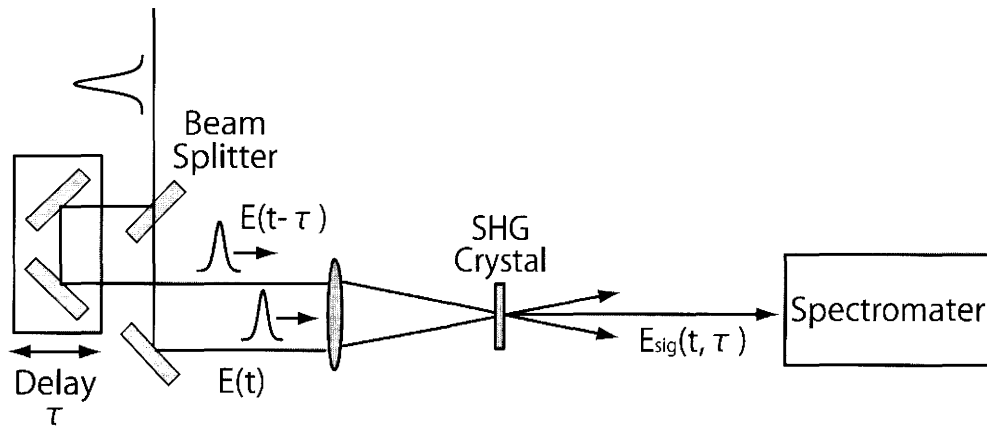


図3-19 SHG-FROGの概念図

以下に、図3-20に示す計算アルゴリズムのフローチャートに基づいて解析手順を説明する。

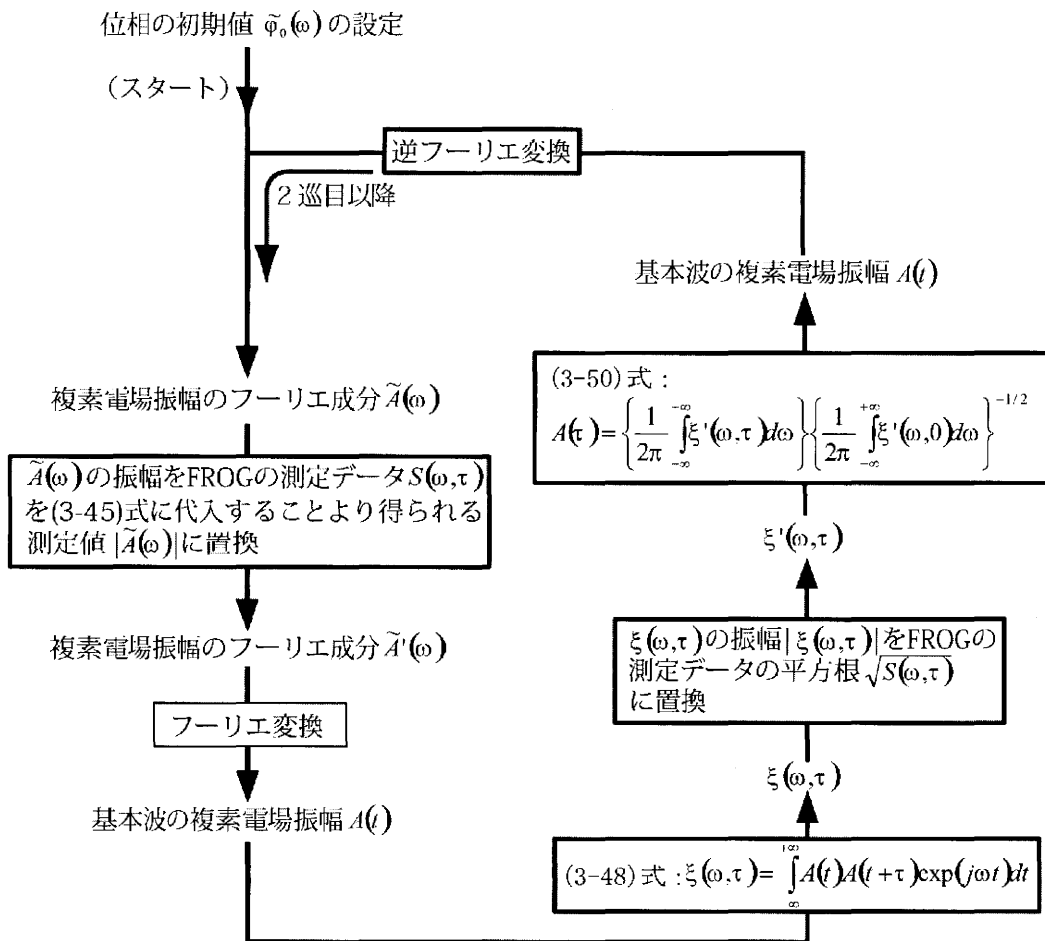


図3-20 SHG-FROG解析アルゴリズムのフローチャート

被測定光パルスの電場 $E(t)$ を

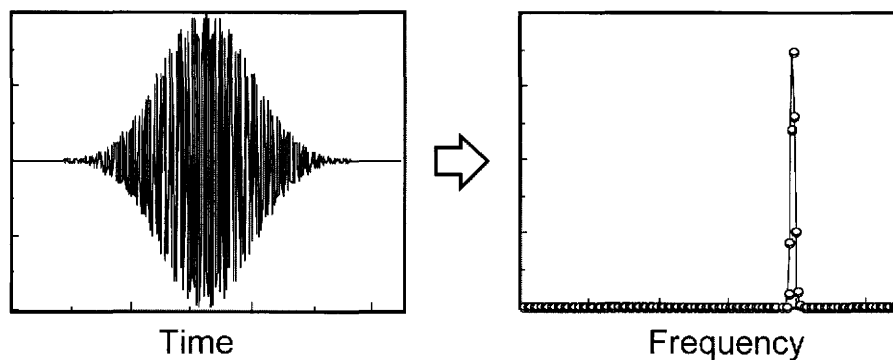
$$E(t) = A(t) \exp(-j\omega_0 t) \quad (3-42)$$

と定義する。ただし、 ω_0 は搬送波の角周波数である。また、包絡線 $|E(t)|$ とチャープの項 $\exp\{-j\varphi(t)\}$

をまとめて複素電場振幅 $A(t)=|E(t)|\exp\{-j\varphi(t)\}$ とする。一方、被測定光パルスのフーリエ変換を

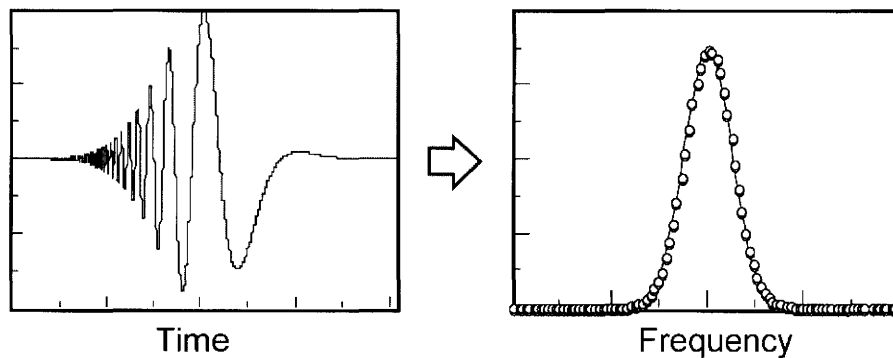
$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\omega}(t) \exp(j\omega t) dt \quad (3-43)$$

と定義する。この場合、図3-21 (a)に示すように、電場のフルスケールを T [s]、測定点数を N とすると、フーリエ成分 $\tilde{E}(\omega)$ は、図3-21(b)に示すようにDC成分から $2\pi/T$ [rad/s]までの範囲に N 個のデータが分散した形となる。ところが、実際に必要とされるのは搬送波の角周波数 ω_0 の近辺のスペクトルであるから、この部分だけををとってみると分解能の低いスペクトル波形が得られることになる。一方、図3-22(a)に示すように、被測定光パルスの電場から搬送波の成分を取り除いた複素電場振幅 $A(t)=|E(t)|\exp\{-j\varphi(t)\}$ をフーリエ変換することによって搬送波の角周波数 ω_0 の近辺のフーリエ成分 $\tilde{A}(\omega)$ を得ることができる。この場合、上記の領域に N 個のデータが分散するために、図3-22(b)に示すように分解能の高いスペクトルを得ることができる。本計算アルゴリズムでは、時間領域、周波数領域共に搬送波の成分を取り除いた形で取り扱われる。最終的に得ようとしているのはパルスの時間領域での強度波形及び位相波形であるから、搬送波の成分を取り除いても問題はない。



(a) 被測定光パルスの電場波形 (b) 被測定光パルスのスペクトル波形

図3-21 搬送波を含めた場合の被測定光パルスの電場とスペクトルの関係



(a) 被測定光パルスの電場波形 (b) 被測定光パルスのスペクトル波形

図3-22 搬送波を含めない場合の被測定光パルスの電場とスペクトルの関係

解析手順

- (a) まず複素電場振幅のフーリエ成分 $\tilde{A}(\omega)$ の位相の初期値 $\varphi_0(\omega)$ を任意に設定する。(二巡目

以降では、ループを一巡した結果得られる位相を次のループの初期値とする。)

- (b) 先に述べたように、SHG-FROGでは第二高調波に含まれる複素電場振幅の相関信号が分光計測される。この相関信号 $S(\omega, t)$ は

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} A(t)A(t+\tau) \exp\{j(\omega - 2\omega_0)t\} dt \right|^2 \quad (3-44)$$

と表される。また、被測定光パルスの搬送波の角周波数 ω_0 の近辺のみのフーリエ成分 $\tilde{A}(\omega)$ の振幅 $|\tilde{A}(\omega)|$ は相関信号 $S(\omega, t)$ を用いて

$$|\tilde{A}(\omega)|^2 = \int_{-\infty}^{+\infty} \sqrt{\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} S(\omega', \tau) d\tau \right\} \exp(-j\omega't) d\omega'} \times \exp\{j(\omega + \omega_0)t\} dt \quad (3-45)$$

と表される。そこで、フーリエ成分 $\tilde{A}(\omega)$ の振幅を、SHG-FROGの信号 $S(\omega, t)$ を(3-45)式に代入して得られる値に置き換えることにより、実測パラメータが導入されたスペクトル $\tilde{A}'(\omega)$ が得られる。

- (c) (b)で得られた被測定光パルスのフーリエ成分 $\tilde{A}'(\omega)$ を逆フーリエ変換することにより、複素電場振幅 $A(t)$ が

$$A(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{A}'(\omega) \exp(-j\omega t) d\omega \quad (3-46)$$

と求められる。

- (d) 図3-19に示すように、上記のパルスを2分岐し、一方に遅延時間 τ を与える。この時の電場をそれぞれ $E_\omega(t)$ および $E_\omega(t+\tau)$ とする。これらの2つのパルスをSHG結晶内で交差させた時に発生する第二高調波には、2つの基本波のそれぞれの第二高調波 $\{E_\omega(t)\}^2$ および $\{E_\omega(t+\tau)\}^2$ と2つの基本波の相関成分 $E_\omega(t) \times E_\omega(t+\tau)$ が含まれるが、自己相関器と同様に結晶後段にアパーチャを配置することによって相関成分だけを取り出すことができる。したがって、分光器で観測される第二高調波の電場 $E_{2\omega}(t)$ は

$$\begin{aligned} E_{2\omega}(t) &= E_\omega(t)E_\omega(t+\tau) \\ &= [A(t)\exp(-j\omega_0 t)] \times [A(t+\tau)\exp\{-j\omega_0(t+\tau)\}] \\ &= A(t)A(t+\tau)\exp\{-j\omega_0 \tau\} \exp(-j2\omega_0 t) \end{aligned} \quad (3-47)$$

と表される。そこで、実際に計測されるSHG-FROGの信号に反映する、2つの複素電場振幅 $A(t)$ および $A(t+\tau)$ の積のフーリエ変換を

$$\xi(\omega, \tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} A(t)A(t+\tau) \exp(j\omega t) dt \quad (3-48)$$

と定義する。

- (e) (3-44)および(3-48)式より

$$S(\omega, \tau) = |\xi(\omega - 2\omega_0, \tau)|^2 \quad (3-49)$$

が得られる。SHG-FROGの測定系で得られる信号 $S(\omega, t)$ の平方根が、2つの複素電場振幅 $A(t)$ および $A(t+\tau)$ の積のフーリエ変換 $\zeta(\omega, \tau)$ の振幅 $|\zeta(\omega, \tau)|$ と(3-49)式により関係つけられていることがわかる。繰返し演算では、 $\zeta(\omega, \tau)$ の振幅とSHG-FROGの測定データ $S(\omega, t)$ の平方根 $\sqrt{S(\omega, \tau)}$ とを置き換えることによって、実測パラメータを随時導入して、最初に設定した位相項 $\varphi(\omega)$ を真の値に近づけていく。

- (f) 複素電場振幅 $A(\tau)$ は、振幅が置換された後の $\zeta'(\omega, \tau)$ を逆フーリエ変換することにより

$$A(\tau) = \left\{ \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \xi'(\omega, \tau) d\omega \right\} \left\{ \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \xi'(\omega, 0) d\omega \right\}^{-1/2} \quad (3-50)$$

と求められる。

- (g) 被測定光パルスの搬送波の角周波数 ω_0 の近辺のみのフーリエ成分 $\tilde{A}(\omega)$ は、(3-50)式を逆フーリエ変換することにより

$$\begin{aligned} \tilde{A}(\omega) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} A(t) \exp(-j\omega t) dt \\ &= |\tilde{A}(\omega)| \exp\{j\varphi(\omega)\} \end{aligned} \quad (3-51)$$

と求められる。

- (h) 以上の工程で、被測定パルスのフーリエ成分の位相 $\varphi(\omega)$ がある程度回復される。この状態で回復された位相項の値と真の値との差が無視できるくらい小さければ、この時のスペクトルを計算の出力 $\tilde{A}_r(\omega)$ として出力する。ただし、通常は初期に設定した位相が任意であるために、ここで得られた位相項の値と真の値との差は大きい。そこで、回復された位相項 $\varphi(\omega)$ はそのままにして、振幅 $|\tilde{A}(\omega)|$ のみをSHG-FROGの信号 $S(\omega, t)$ を(3-45)式に代入して得られる値に置き換える。実測パラメータを随時導入することにより、位相項が真の値に近づくことになる。

以上の(a)から(h)の過程を繰り返すことにより、位相 $\varphi(\omega)$ が真の値に近づいていき、パルス波形(位相)が再構築されることになる。

次に、周波数分解光ゲート装置(FROG)の光学系について説明する。図3-23は構築したFROGの構成図である。FROGは、被測定光パルスを2分岐した後一方の光パルスに遅延時間を与える光学系と、2分岐された光パルスがSHG結晶上で重ね合わされた際に発生する自己相関信号のスペクトルを観測する分光器により構成される。図3-23に示す構成では、光学素子の波長分散の影響を避けるために、ハーフミラー以外は全て金蒸着ミラーによる反射光学系を用いた。集光用の凹面鏡の曲率半径は150 mmとした。分光器は、スリット幅を50 μm 、凹面鏡の曲率半径を250 mmとすることで、0.5 nm以下の分解能が得られる。分光器の検出器には紫外域に感度を有する裏面入射CCD(浜松ホトニクス、S7030-0906)を用いた。裏面入射CCDは、90%以上

の量子効率が得られると共に紫外域での高感度を特徴とする微弱光検出用イメージセンサであるため、SHG-FROGに適した検出器である。一方、パルス幅100 fs以下の超短パルス光を計測する上で最も重要となるのがSHG結晶の厚みである。SHG結晶の分散は時間的なレスポンス関数として振る舞い、この関数の半値幅 t_ω は

$$t_\omega = \left(\frac{1}{v_g^{SHG}} - \frac{1}{v_g^{fund}} \right) / L \quad (3-52)$$

により表される。ただし、 v_g はSHG結晶の群速度、 L はSHG結晶の厚みである。言い換えると、SHG結晶は第二高調波のスペクトル幅を抑制するフィルターとして振る舞い、その関数は

$$F(\omega) = \left[\frac{\sin(t_\omega \omega / 2)}{t_\omega \omega / 2} \right]^2 \quad (3-53)$$

と表される。文献²⁷⁾によると、フィルターの半値幅(=2.78/ t_ω)が第二高調波(トランスフォーム限界な光パルスを用いた場合)のスペクトル半値幅の1.4倍以上であれば、波形再構築時の誤差を10%以内に留める事ができる。例えば、トランスフォーム限界($\Delta v \Delta \tau = 0.32$)な光パルスのパルス幅を $\Delta \tau = 60$ fsとすると、この光パルスのスペクトル幅は、 $\Delta v_{fund} = 5.3$ THz($\Delta \lambda = 11.0$ nm)と求められる。第二高調波のスペクトル半値幅は上記基本波のスペクトルを $\sqrt{2}$ 倍($1/2\sqrt{2}$ 倍)するとして、 $\Delta v_{SHG} = 7.5$ THz($\Delta \lambda = 3.9$ nm)と求められる。一方、300 μm 厚のBBOの場合は $t_\omega = 56.6$ fs、300 μm 厚のKTPの場合は $t_\omega = 23$ fsであるから、波形再構築時の誤差を10%以内に留めるためには

$$2.78/t_\omega > 1.4 \times \Delta v_{SHG} \quad (3-54)$$

を満足させる必要がある。上式に先に求めた諸数値を代入すると、 $t_\omega < 265$ fs が得られる。したがって、この場合のSHG結晶の最大の厚みはBBOの場合が1.4 mm、KTPの場合が3.5 mmと求められるが、本装置では、誤差を更に小さくするために300 μm 厚のBBOを用いることとした。その結果、本装置では、CCD蓄積時間を5 s、積算回数を1回として、繰返し96 MHz、パルス幅60 fsの光パルスを計測する場合に必要とされる最小光強度は30 μW という高感度が実現され、低強度から高強度までの広い範囲における光パルスの評価が可能となる。

一方、FROG計測では測定点数が限られるため、測定時間範囲を十分に考慮して設定する必要がある(波長範囲は時間軸のフルスケールの逆数×データ数となる)。本装置ではパルス幅が60 fs程度の光パルスを対象としているため、測定時間範囲を13.3 fs×128点= ±850 fs(2 μm 間隔)、あるいは13.3 fs×256点= ±1.7 ps(1 μm 間隔)とした。原理的には、データ数を増やすことによって測定分解能を向上させることも可能であるが、ステージの移動量を1 μm 以下で制御する場合には干渉計等によって光路長を厳密に計測する必要があるということと、2次元データを取り扱うために計算時間が膨大になるので現実的ではない。

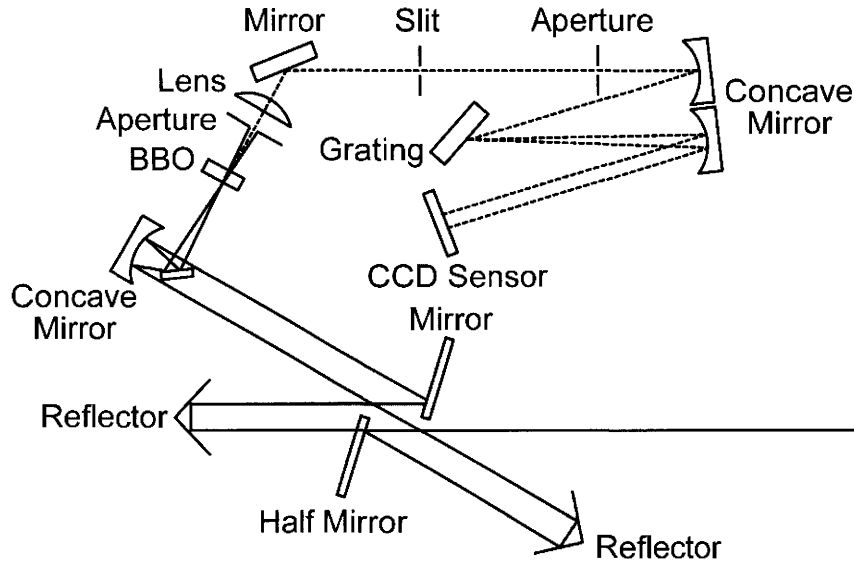


図 3-23 周波数分解光ゲート装置の構成図

3.3.3. フーリエ変換スペクトル干渉法 (FTSI: Furrier Transform Spectrum Interferometry)

フーリエ変換スペクトル干渉法は、周波数領域における被測定光と参照光との干渉成分を解析することにより、参照光に対する相対位相を求める手法である。一次元データの線形解析であるため、複雑な位相情報を有する光パルスの計測も可能である。以下に、その解析原理を述べる。

参照光 $E_0(t)$ 、および被測定光 $E(t)$ がそれぞれ

$$E_0(t) = e_0(t) \exp[-j\omega t] \quad (3-52)$$

$$E(t) = e(t) \exp[-j\omega t] \quad (3-53)$$

により表されるものとする。マイケルソン干渉系を用いて上記の2つの光を同軸上に重ね合わせ、さらに参照光に対して被測定光に遅延時間 τ を与える。この場合、前記の光を分光器で計測した場合に検出される信号 $S(\omega)$ は、合成電場 $\{E_0(t) + E(t)\}$ のフーリエ変換 $\mathfrak{F}\{E_0(t) + E(t)\}$ の強度として

$$\begin{aligned} S(\omega) &= |\mathfrak{F}\{E_0(t) + E(t)\}|^2 \\ &= |\mathfrak{F}\{e_0(t) \exp[-j\omega t] + e_0(t) \exp[-j\omega(t - \tau)]\}|^2 \\ &= |E_0(\omega) + E(\omega) \exp[j\omega\tau]|^2 \\ &= \{E_0(\omega) + E(\omega) \exp[j\omega\tau]\} \times \{E_0(\omega) + E(\omega) \exp[j\omega\tau]\}^* \\ &= \{E_0(\omega) + E(\omega) \exp[j\omega\tau]\} \times \{E_0^*(\omega) + E^*(\omega) \exp[-j\omega\tau]\} \\ &= |E_0(\omega)|^2 + |E(\omega)|^2 + E_0(\omega) E^*(\omega) \exp[-j\omega\tau] + E_0^*(\omega) E(\omega) \exp[j\omega\tau] \end{aligned} \quad (3-54)$$

と表される。(3-54)式において第3項と第4項とは複素共役の関係にあるため、その和は実部の2倍となる。そこで、 $E_0^*(\omega) E(\omega) \exp[j\omega\tau]$ の実部を $\text{Re}\{E_0^*(\omega) E(\omega) \exp[j\omega\tau]\}$ 、さらに $f(\omega) = E_0^*(\omega) E(\omega)$ とおくと(3-54)式は

$$S(\omega) = |E_0(\omega)|^2 + |E(\omega)|^2 + 2 \text{Re}\{f(\omega) \exp[j\omega\tau]\} \quad (3-54)'$$

により表される。(3-54)'において $|E_0(\omega)|^2$ および $|E(\omega)|^2$ は参照光および被測定光のスペクトル成分である。これらは干渉系において一方の光を遮断することによって測定することができる。そこで、(3-54)式から各スペクトル成分を取り除くと(3-55)に示される干渉成分 $S(\omega)$ ' が得られる。

$$\begin{aligned} S(\omega)' &= 2 \operatorname{Re}\{f(\omega)\exp[j\omega\tau]\} \\ &= f(\omega)\exp[j\omega\tau] + \{f(\omega)\exp[j\omega\tau]\}^* \end{aligned} \quad (3-55)$$

(3-55)式において第1項を逆フーリエ変換すると

$$\begin{aligned} \mathfrak{F}^{-1}\{f(\omega)\exp[j\omega\tau]\} &= \int f(\omega)\exp[j\omega\tau]\exp[-j\omega t]d\omega \\ &= \int f(\omega)\exp[-j\omega(t-\tau)]d\omega \\ &= f(t-\tau) \end{aligned} \quad (3-56)$$

が得られる。一方、第2項は第1項の共役複素関数であり、フーリエ変換の関係式において

$$\mathfrak{F}^{-1}\{f(\omega)\} = \int f(\omega)\exp(j\omega t)d\omega = f(t) \quad (3-57)$$

$$\mathfrak{F}^{-1}\{f^*(\omega)\} = \int f^*(\omega)\exp(j\omega t)d\omega = f(-t) \quad (3-58)$$

が成り立つので、第2項の逆フーリエ変換は

$$\mathfrak{F}^{-1}\{f(\omega)\exp[j\omega\tau]\}^* = f(-t-\tau) \quad (3-59)$$

により表される。(3-56)および(3-59)式は複素共役の領域において波形の時間反転を意味するものである。(3-55)の逆フーリエ変換は

$$\mathfrak{F}^{-1}\{S(\omega)\} = f(t-\tau) + f(-t-\tau) \quad (3-60)$$

により表される。(3-60)式をそのまま逆フーリエ変換したのでは再び干渉成分、すなわち実関数に戻るだけで位相成分を得ることはできない。そこで、(3-60)式において一方の項を削除する。すなわち、 T をパルス幅の数倍の値とした場合に $t < -T$ の領域を0とする。これを実行するためには、(3-59)式にヘビサイド関数 $\Theta(t)$ を乗ずればよい。すなわち

$$f(t-\tau) = \Theta(t) \times \mathfrak{F}\{S(\omega)\} \quad (3-61)$$

一方、 $\mathfrak{F}\{f(t-\tau)\} = f(\omega)\exp(j\omega\tau) = E_0^*(\omega)E(\omega)\exp(j\omega\tau)$ であるから、求める被測定光 $E(\omega)$ は

$$\begin{aligned} E(\omega) &= \frac{\mathfrak{F}\{f(t-\tau)\}\exp(-j\omega\tau)}{E_0^*(\omega)} \\ &= \frac{\mathfrak{F}[\Theta(t) \times \mathfrak{F}\{S(\omega)\}]\exp(-j\omega\tau)}{E_0^*(\omega)} \end{aligned} \quad (3-62)$$

により表される。 $E_0(\omega)$ は参照光の電場関数であり、 $S(\omega)$ は干渉系により得られた干渉成分であるため、(3-62)式を用いて被測定光の電場関数を得ることができる。ただし、参照光の位相が不明であるため、得られる位相は参照光の位相に対する相対位相となる。尚、 $\tau > T$ となるように τ を選択すると $f(t-\tau)$ および $f(-t-\tau)$ が重ならないようになる。

3.3.4. TADPOLE: Temporal Analysis, by Dispersing a Pair Of Light E field

フーリエ変換スペクトル干渉法では、参照光に対する相対位相が求められても絶対位相を求めることができない。ただし、FROG 等によって参照光の絶対位相が求められていれば、被測定光の絶対位相計測も可能となる。この手法が TADPOLE である。レーザーから出力される波形整形前の光パルスの位相は比較的滑らかであるため、FROG を用いればその位相情報を厳密に計測することが可能である。一方、フーリエ変換スペクトル干渉法では複雑な位相情報を有する光パルスの計測も可能であるため、上記2つの計測法を融合させることにより、波形整形後の光パルスのように複雑な位相情報を有する光パルスの絶対位相を求めることが可能となる。

次に、TADPOLE の光学系について述べる。図 3-24 は構築したフーリエ変換スペクトル干渉装置の構成図である。実線部分が波形整形器（被測定光）の光路、点線部分が参照光の光路である。片端面に AR コートが施された厚さ 1 mm のガラス基板により抜き出された波形整形器入力前の一部の光（参照光）と、波形整形器伝播後の整形光パルス（測定光）とが、AR コートが施された厚さ 1 mm のガラス基板により同軸上に合成され、その干渉光がマルチチャンネル分光器で計測される (FTSI)。また、参照光は光路上に配置された可動ミラーにより FROG へと導光されその位相特性が計測される。FTSI により計測される参照光に対する整形光パルスの相対位相特性と、FROG により計測される参照光の絶対位相特性とから、整形光パルスの絶対位相特性が求められる。また、FROG と同様に、ミラーによる分散が生じないように、干渉系のミラーは全て金蒸着の金属ミラーとした。

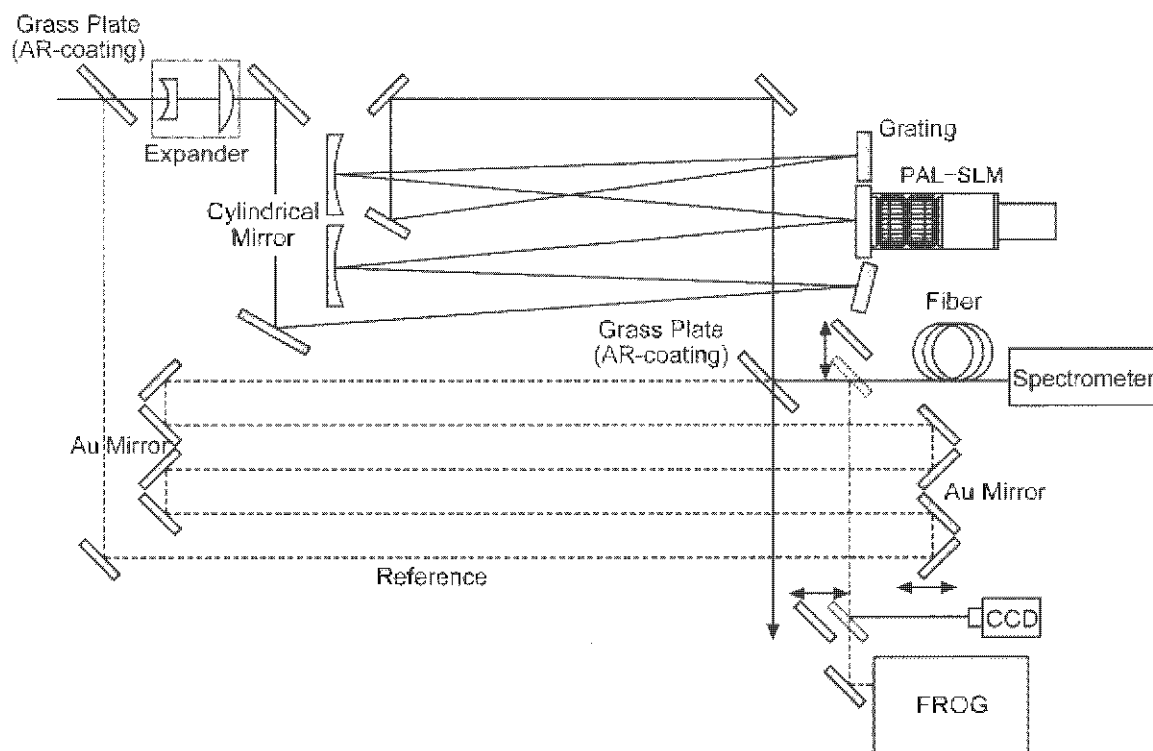


図 3-24 フーリエ変換スペクトル干渉装置の構成図

3.3.5. 反復フーリエ法による周波数フィルターの作成

以下に、図 3-25 に示す計算アルゴリズムのフローチャートに基づいて手順を説明する。

解析手順

- (a) まず、波形整形される光パルスの複素電場 $E_m(t)$ を作成する。FROG を用いて被変調光パルスを計測することで得られる振幅および位相を用いることでより厳密なフィルターを作成することができるが、ここではトランスフォーム限界(位相=0)なパルス波形(sech^2)とする。
- (b) 波形整形される光パルスの複素電場 $E_m(t)$ のフーリエ変換から、波形整形される光パルスのスペクトル $|E_m(\omega)|$ を作成する。
- (c) トランスフォーム限界(位相=0)なパルス波形(sech^2)を合成することで、出力複素電場 $E_{out}(t)$ を作成する。
- (d) スペクトル $E_m(\omega)$ を逆フーリエ変換する。
- (e) 得られた強度波形を、出力複素電場の強度波形 $|E_{out}(t)|$ に置換する。
- (f) 置換された出力複素電場をフーリエ変換する。
- (g) 置換された出力複素電場のフーリエ変換から得られるスペクトル強度波形を、波形整形される光パルスのスペクトル強度波形 $|E_m(\omega)|$ に置換する。
- (h) 置換後のスペクトルを逆フーリエ変換する。
- (i) 逆フーリエ変換後のパルス強度波形と(b)において作成した出力パルス強度波形との残差を計算する。
- (j) (e)～(i)を繰返し、(i)において求められる残差が設定値を下回った時点で計算を終了する。最終的に得られたスペクトルの位相が所望の周波数フィルターとなる。尚、上記の手法は線形的アルゴリズムであるため、最終的に生成される位相フィルターが局所解に陥り易い。この場合には、焼きなまし法(Simulated Annealing, S.A.法)²⁹⁾や遺伝的アルゴリズム(Genetic Algorithm, G.A.法)³⁰⁾等を用いることによって、より厳密な位相フィルターを作成することも可能である。

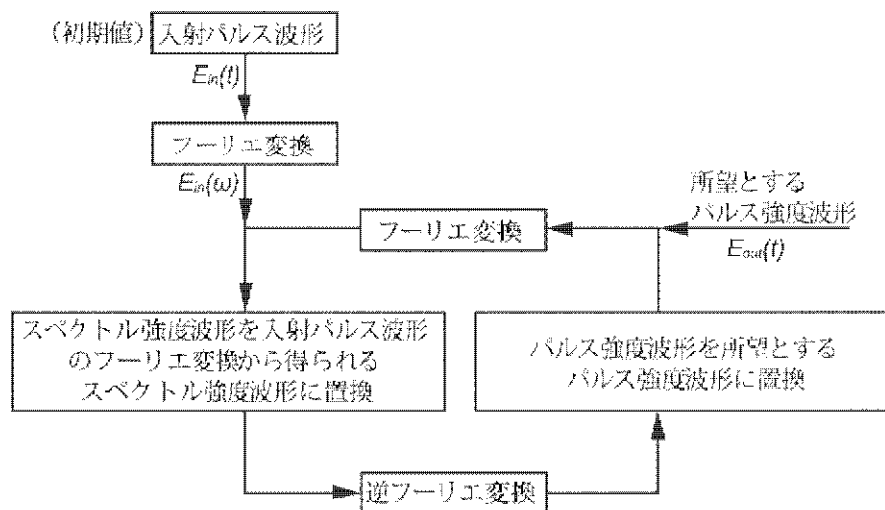


図 3-25 反復フーリエ法による周波数フィルターの作成手順

3.3.6. 波形整形器によるパルス列整形、ならびにTADPOLEによる評価

波形整形器の動作確認とTADPOLEの性能評価を兼ねて、フェムト秒光パルスに対してサイン変調を行い、TADPOLEを用いて整形された光パルスの評価した。まず、FROGにより参照光を計測した。同時に、光スペクトラムアナライザと自己相関器によってそのスペクトルおよびパルス波形を計測し、FROGによる解析結果と対比することでFROG計測の正当性を評価した。図3-26(a)は光スペクトラムアナライザで測定した参照光のスペクトル波形、(b)は自己相関波形、(c)はFROGにより取得されたデータ、(d)および(e)はFROGデータの解析結果である。スペクトル波形およびパルス幅ともよく一致していることから、FROG計測の正当性が確認された。

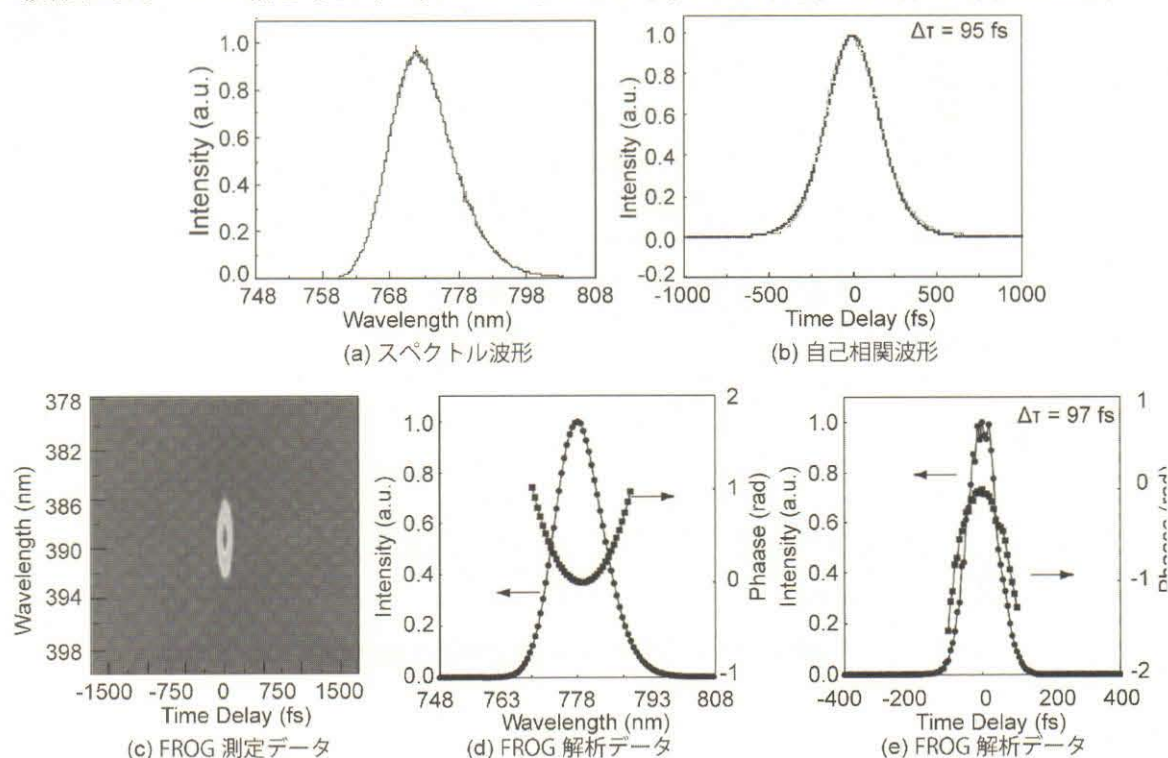


図 3-26 参照光の計測結果

次に、サイン変調が施された光パルスを TADPOLE により計測した結果を図 3-27 に示す。(a) および(b)は、FTSI 計測において他方の光路を遮断することで参照光および変調光を単独で計測した場合のスペクトルである。前記スペクトルを(c)に示される干渉スペクトルから差し引くことによって、(d)に示す干渉成分だけが抽出される。この干渉スペクトルを解析した FTSI による結果が(e)であり、その位相成分が波形整形器に入力された周波数フィルタ(g)とよく一致しており、構築した波形整形器が正常に動作していることも確認された。FTSI による観測結果から FROG により計測された参照光の位相を差し引いた結果が(f)であり、TADPOLE を用いることで FROG 単体では計測が困難であった複雑な位相変調を計測できることが確認された。

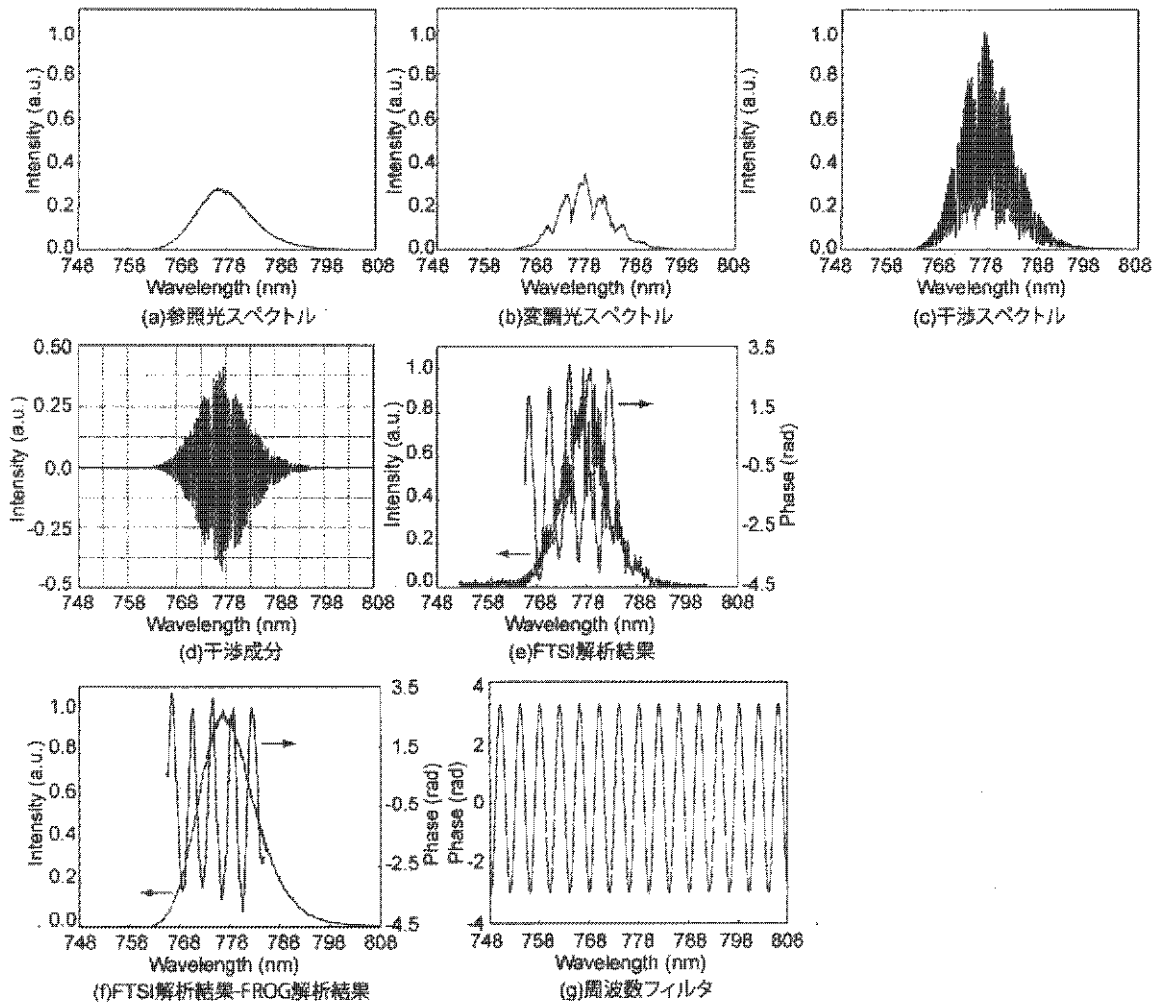


図 3-27 TADPOLE によるサイン変調波形整形光パルスの測定結果

3.4. 高強度フェムト秒レーザー用波形整形器の開発

3.4.1. はじめに

3.2.2で述べたように、光アドレス型空間光変調器は α -Siに照射される書き込み光の光強度を制御することによって、光アドレス型空間光変調器に入射する読み出し光の位相変調量を制御するデバイスである。一方、読み出し光は α -Si前段に配置された誘電体多層膜鏡で全反射され、さらに後段の遮光膜によって誘電体多層膜鏡を透過する「漏れ光」を遮断する構成となっている。このために、 α -Siに到達する光量は入射光強度の0.1%以下に減衰される。ところが、平均強度が1 W以上に達する高強度フェムト秒を変調する場合には、「漏れ光」の光強度が書き込み光の光強度に匹敵するために、書き込み光による位相変調に「漏れ光」による位相変調が重畳されてしまう。したがって、再生増幅フェムト秒レーザーのように高強度のフェムト秒レーザーの波形整形を行う場合には、「漏れ光」による位相シフトが考慮されたデバイスを開発する必要が生じた。本項では、開発した高強度フェムト秒レーザー用光アドレス型空間光変調器について詳細を述べる。

3.4.2. 光アドレス型空間光変調器の高耐光化

波形整形器へ入射可能な最大入射光強度を把握するために、図3-28に示す実験構成により、従来の光アドレス型空間光変調器の光強度依存性を評価した。光アドレス型空間光変調器は純粋な位相変調器であるため、光アドレス型空間光変調器の液晶分子の配向に対して偏光方向が 45° の傾きとなるように偏光子を配置し、光アドレス型空間光変調器に印加する電圧を変化させると、位相変調特性を強度変調として計測することができる。

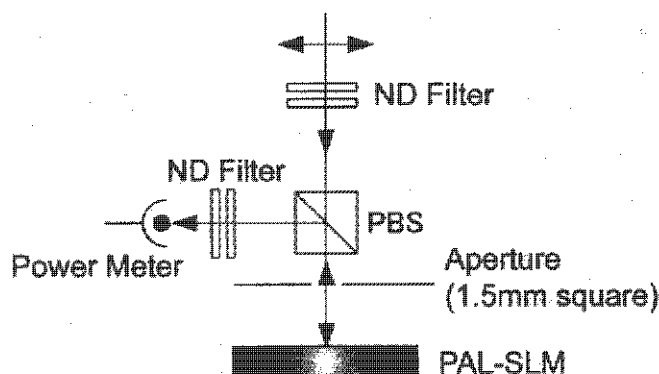


図3-28 入射光強度に対する光アドレス型空間光変調器の位相シフトを計測するための構成

そこで、光アドレス型空間光変調器に印加する電圧を $3 V_{pp}$ 固定として、入射光強度に対する位相シフトを計測した。被変調光の平均強度に対する影響と、ピーク強度に対する影響とを評価するために、被変調光にパルス幅 96 fs、中心波長 815 nm、繰返し周波数 76 MHzのオシレーターの出力光と、パルス幅 45 fs、中心波長 815 nm、繰返し周波数 1 kHzの再生増幅器の出力光とを用いた。この時の結果を図3-29に示す。ピークパワーの異なる高繰返し光パルス(96 fs、76 MHz、815 nm)と低繰返し光パルス(45 fs、1 kHz、815 nm)を用いて比較した結果、位相シフトが平均入射光強度に依存し、位相が1度ずれる時の入射光強度は共に 200 mW/cm^2 であることが確認された。

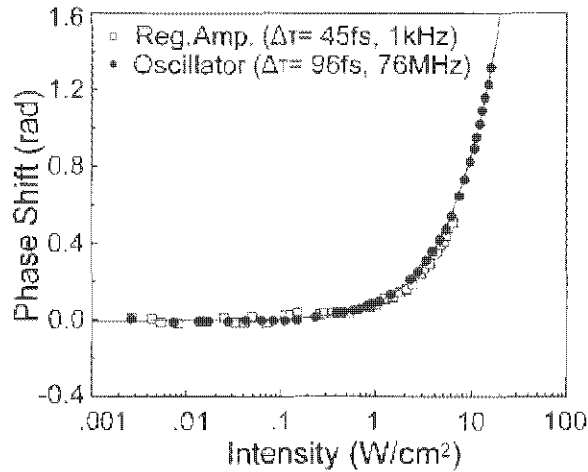


図3-29 市販光アドレス型空間光変調器の入射光強度依存性計測結果

位相シフトの原因について、光アドレス型空間光変調器の構造を考慮した検討を行った結果、素子内部の誘電体多層膜ミラーおよび遮光層を透過する漏れ光の影響であることが確認された。そこで、高強度レーザー用に改良された素子を用いて位相シフトを測定したところ、図3-30に示す結果が得られた。改良された素子では、位相が1度ずれる時の入射光強度は 2 W/cm^2 と、従来のデバイスに対して1桁強い強度まで使用可能であることが確認された。

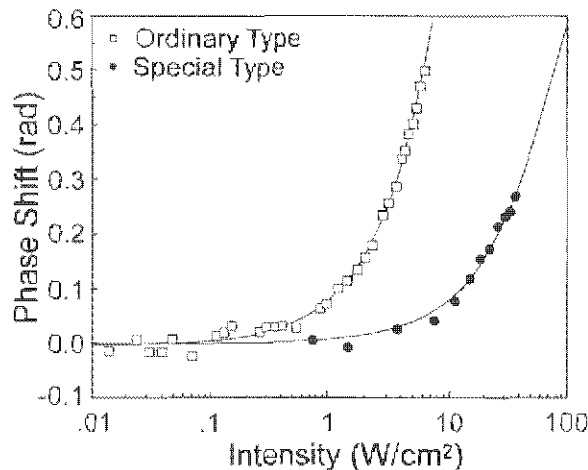


図3-30 改良された光アドレス型空間光変調器の入射光強度依存性計測結果

3.4.3. 波形整形器の耐光性評価

次に、上記の高強度フェムト秒レーザー用光アドレス型空間光変調器を波形整形器に組み込み、システム自体の耐光性を評価した。ガリレオ式ビームエキスパンダー(1.5倍)を用いて入射光のビーム径を13 mmに拡大した状態で、空間光変調器中央付近での光強度が 2 W/cm^2 に達する入射光強度を算出した。その結果、システムへの入射光強度が680 mWに達すると、空間光変調器中央付近での光強度が 2 W/cm^2 に達し、位相が1度ずれることが判明した。以上より、本システムにより、高強度フェムト秒光パルスを直接波形整形することが可能であることが確認された。

3.4.4. 波形整形光パルスの加工への応用

フェムト秒光パルスは、ピーク強度が極めて強いために透明媒質中において容易に非線形効果が誘起される。例えば、通常は光が吸収されない波長域においても、2光子吸収過程を利用することで透明媒質に光を吸収させることが可能となる。この現象を利用することで、ガラス内部における光導波路の作成、マイクロ流路の作成(化学エッチングを併用)、ガラスの切断等、様々な加工においてフェムト秒レーザーが利用されている。また、非線形効果を利用した加工では、光強度が強い集光部中央付近が選択的に変質あるいは加工されるために、従来のレーザー加工と比較して微細な加工が可能となる。また、フェムト秒レーザーを用いた加工では、分子振動の時間領域で光が消失するために熱生成が生じにくい特徴を有する。ところが、比熱的な加工を得意とするフェムト秒レーザー加工であっても、パルスエネルギーが大きい場合には、照射時間に伴って熱が蓄積される。特に透明材料内部の加工では、加工部周辺に発生する蓄積熱によって加工品質が劣化する。すなわち、従来のフェムト秒レーザー加工では、加工品質を維持するためにレーザー照射によって発生する熱が蓄積されないエネルギー以下で加工を行う必要があるため、レーザーの出力を十分に利用することができず、必然的に加工速度が制限されていた。そこで本研究では、波形整形技術を用いて生成されたパルス列を透明媒質の内部加工に適用することで、加工品質を維持しながら加工速度の向上を図った。

実験装置の概略を図3-31に示す。試料には、加工状態を側面から観測するために透明媒質であるアクリルを用いた。加工は大気中で行った。図3-24に示す波形整形器により位相変調が加えられたフェムト秒再生増幅光(平均強度 300 mW)を、平凸レンズ(焦点距離 200 mm)によりアクリル板表面に集光して穴あけ加工を試みた。レンズと試料との位置関係を固定したまま 20 分間光を照射し続けた後に、試料側面から加工部を CCD カメラにて観測した。

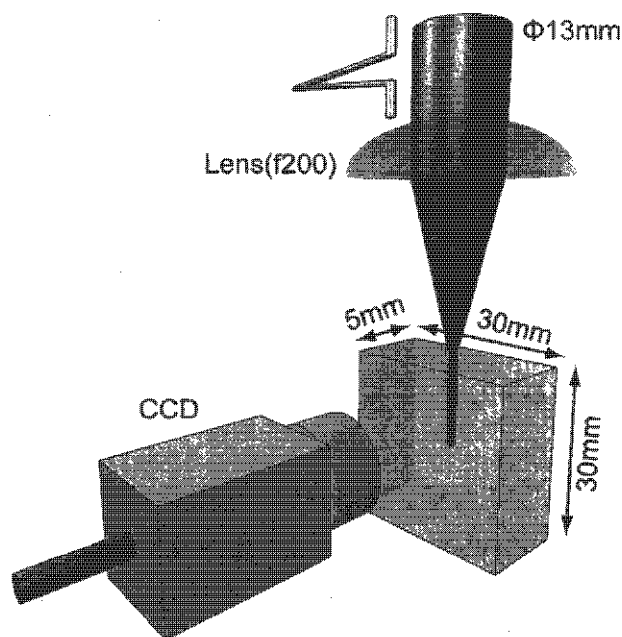


図 3-31 透明材料加工のための実験構成、ならびに観測系

フェムト秒光パルスに対して、サイン変調および矩形変調を行うと、そのビート成分としてパルス列を生成することができる。図 3-31 および図 3-32 は、それぞれサイン変調光を TADPOLE で計測した結果、そして矩形変調光を TADPOLE で計測した結果である。これらの結果より、波形整形器により設計通りの変調が加えられ、矩形変調の場合にはダブルパルスが、そしてサイン変調の場合にはさらに多いパルス列が生成されていることが確認された。

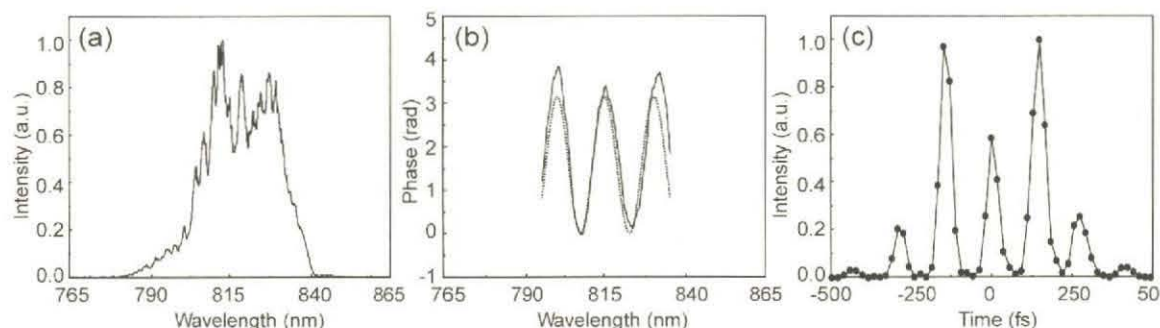


図 3-31 TADPOLE によるサイン変調波形整形光パルスの測定結果

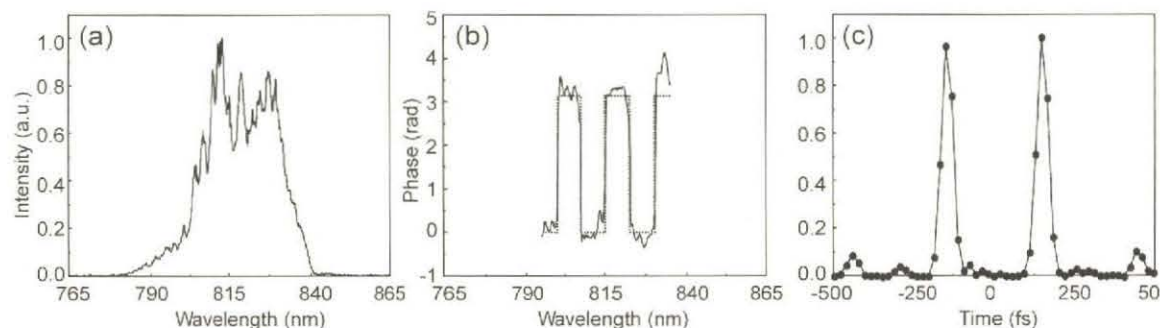


図 3-32 TADPOLE による矩形変調波形整形光パルスの測定結果

非変調光、ならびに上記パルス列を用いて加工を行った結果を図 3-33 に示す。比較のために、パルス列以外に、長さが 25cm の BK7 ガラスに相当するチャープを与えた光パルスによる加工結果、ならびに変調をかけずに強度だけを低減した光パルスによる加工結果を併記する。左から(a)波形を制御しない場合、(b)図 3-31 に示すサイン変調を加えた場合、(c)図 3-32 に示す矩形変調を加えた場合、(d) 長さが 25cm の BK7 ガラスに相当するチャープを与えた場合、(e) 変調をかけずに強度だけを低減した場合の加工結果である。これより、サイン変調を加えることにより加工量が大幅に改善されることが確認された。

さらに、波形整形により加工量、加工状態が改善された要因を検討するために、偏光光学測定法を用いて(a)波形を制御しない場合、(b)サイン変調を加えた場合、(c)矩形変調を加えた場合の加工部分周辺を観測した。測定結果を図 3-34 に示す。図 3-34 より、位相変調を全く加えない状況では加工部分周辺の広範囲にわたってひずみ(輝度が高い部分)が生じていることが明らかになった。これに対して、波形整形光パルスを用いた場合には、周辺部の変質は観測されず、波形を整形することにより加

工状態が改善されることが確認された。

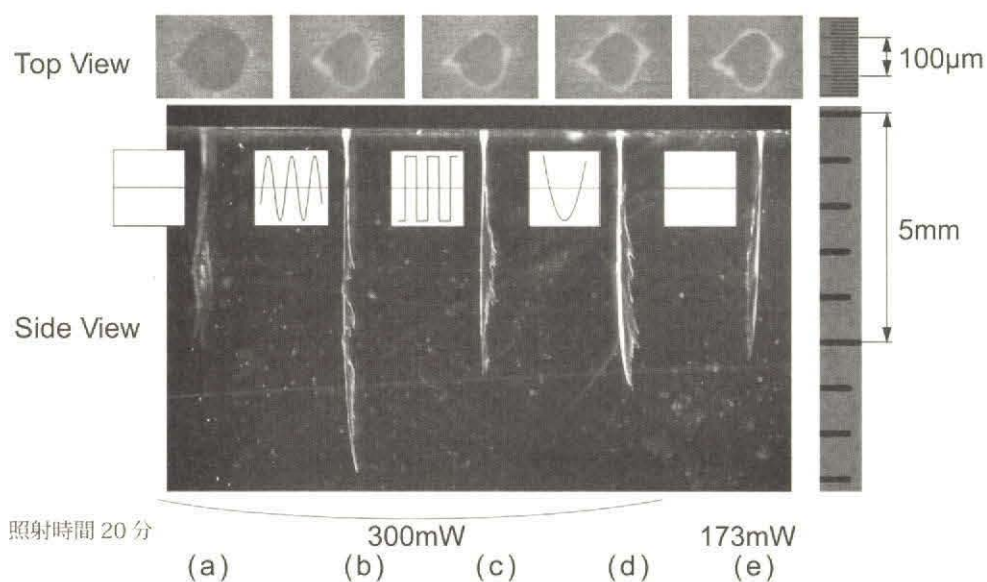


図 3-33 波形整形光パルスによるアクリル加工結果

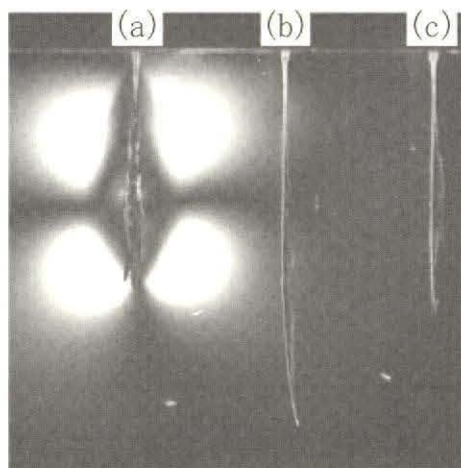


図 3-34 偏光光学測定法による加工部計測結果

加工部周辺の変質は、加工時に発生した熱が要因であると推測される。すなわち、位相変調を全く行わない状態では、光パルス照射時の加工量が大きいために、生成された加工片が外部に排出されない。これらの加工片は、加工部周辺に付着し、レーザー光、あるいは散乱光を吸収して熱を発生する。また、加工片が外部に排出されないために、加工自体が進展しないと考えられる。一方、波形整形された光パルスの場合には、パルス列とすることで1パルスあたりの加工量が少ないために、加工片が外部に排出されやすく、結果として熱が発生せず、加工量、加工状態が共に改善されたと考えられる。矩形変調(ダブルパルス)の場合より、サイン変調(マルチパルス列)の場合に加工量が多いことも同様な要因だと考えられる。

3.5. 高耐光型小型波形整形器の開発

3.5.1. はじめに

これまでに開発を進めてきた波形整形器では、2対の回折格子と凹面鏡が用いられていたために、被変調光の波長帯域が光学系構築時の波長帯域に限定される。すなわち、一旦構築した波形整形器を、光学系構築時の波長帯域とは異なる波長帯域で使用する場合には、入射側の回折格子と出射側の回折格子とを再調整する必要がある。結果として、波形整形器を含めた光学系全体を調整する必要があるために、光学系の再現性に乏しいという欠点を有していた。特に、広帯域波長可変性を有する Ti:Sapphire レーザーを用いる場合には、レーザーの発振波長を制御することが頻繁にあるため、波長を変える度に光学系全般を再調整する手間がユーザーの負担を増加させる要因となる。また、波形整形器の光学系そのものが大掛かりとなるために、使用面積が限られた光学台上で実験を行う場合に、波形整形器が光学台の大部分を占有するといった問題が生じる。そこで、光学系の再現性向上と共に、波形整形器が占有する面積の低減を目的として、操作性に優れた小型波形整形器を開発した。

3.5.2. 高効率小型波形整形器の開発

開発した Offner タイプ²⁸⁾の小型波形整形器の構成を図 3-35 に、概観図を図 3-36 に示す。回折格子には、溝本数 1200 本/mm の金蒸着ホログラフィック回折格子 (Spectrogon) を用いた。これまでの波形整形器では、特定波長で最大回折効率を得られるブレード回折格子が用いられてきたが、近年における回折格子の製造技術の向上に伴ってホログラフィック回折格子でも高い回折効率を得られるようになったためである。さらに、ブレード回折格子は入射光の波長がブレード波長から外れると回折効率が急激に低下するが、ホログラフィック回折格子の場合には広範囲の波長域にわたって高い回折効率が維持される。その結果、ホログラフィック回折格子を用いることによって、波形整形器自体も広帯域化されることになる。また、凹面鏡には曲率半径 500 mm の広帯域誘電体多層膜鏡を用いた。空間光変調器には従来品 (浜松ホトニクス, X7550、有効領域:20mm×20mm、画素数:480(H)×480(V)) よりも画素数が増加した光アドレス型空間光変調器 (浜松ホトニクス, X8267、有効領域:20mm×20mm、画素数:768(H)×768(V)) を用いることにより、波形整形器の解像度向上を図った。さらに、変調部の分光方向開口部を 23 mm とすることにより、883(H)×768(V) pixel の画素数による制御を可能とした。

本構成では、回折格子により分光された被変調光が、凹面鏡によって回折格子上部に配置された空間光変調器に結像される。この際、空間光変調器に約1°の角度で射入射させることにより、入射光と被変調光とが波形整形器入射部において空間的に分離される。この部分にミラーを配置することで、波形整形された光を入射方向とは異なる方向に抜き出すことが可能となる。上記構成では、被変調光の波長が変えられた場合には回折格子を回転させるだけで光学系が再現される。また、1枚の回折格子と凹面鏡とが用いられるために、コスト削減の観点からも有効である。さらに、上面から見て入射光と被変調との光軸が重なる構造であるため、波形整形

器が光学台に占める面積が大幅に低減されるという特徴を有する(幅8 cm×長さ46 cm×高さ23 cm)。また、波形整形器のスループット(入射光に対する出射光の比率)も68%という高効率化も実現された。さらに、従来と同様に高強度レーザー用に開発された、高耐光性光アドレス型空間光変調器が用いられているため、フェムト秒再生増幅光パルスを直接制御することも可能である。

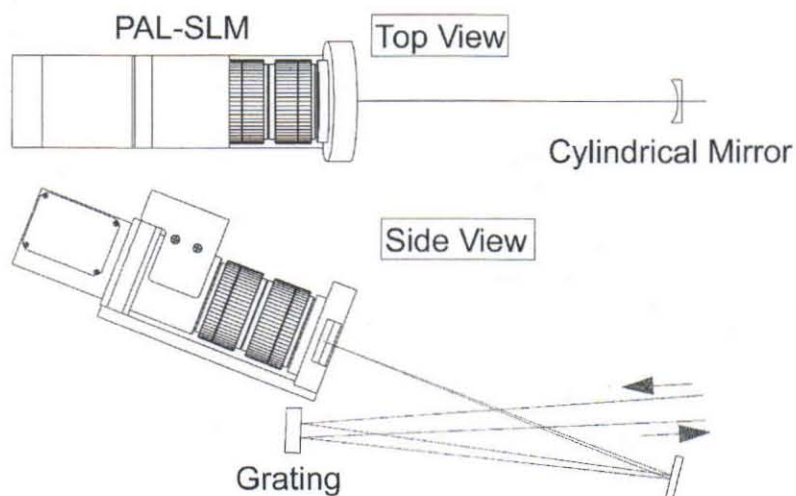


図 3-35 高効率小型波形整形器の構成

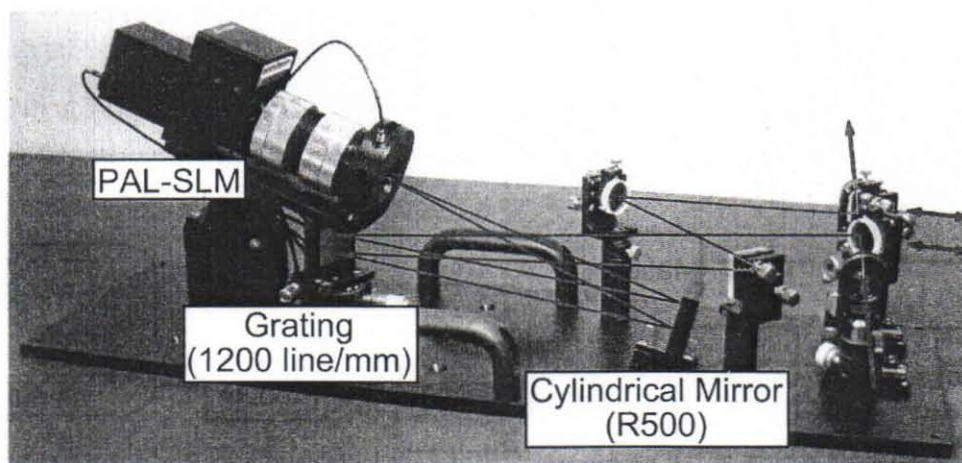


図 3-36 高効率小型波形整形器の概観図

3.6. 適応型光パルス反応制御装置の開発

3.6.1. はじめに

強い電場強度を有するフェムト秒光パルスを用いることによって、光と物質との相互作用を制御することが可能となる。従来は、レーザー光の高強度化、あるいは短パルス化というアプローチからその相互作用を制御する試みがなされてきた。しかし、レーザーから出力される時間波形が常に最適な条件になるとは限らないため、近年ではパルス波形を制御することによってさらに反応効率を向上させる研究が進められている。一方で、フェムト秒レーザーを用いた反応系では、相互作用を制御する上での最適パルス波形自体が多くの場合には既知でないことがその応用範囲を限定していることも事実である。多くの物質系における光と物質の相互作用がブラックボックス的であるため、最適パルス波形を解析的に導くことが困難である反応系も数多い。このような場合、反応効率を制御信号として、この信号を波形整形器にフィードバックする閉ループ制御系を構築することにより、最適パルス波形を自動的に生成する手法が有効となる。本研究では、この概念に基づいた反応制御装置を開発すると共に、様々な反応制御系に適用することでその効果を実証した。

3.6.2. 適応型光パルス反応制御装置の概要

図 3-37 に、本研究で開発した反応制御装置の概念を示す。反応効率を指標値としてその値が増加するように光パルスを適応させることから、この装置を適応型光パルス反応制御装置 (REaction Controle system using Adaptive Pulse Synthesis, RECAPS) と名付けた。適応型光パルス反応制御装置では、波形整形器により任意の位相変調が施された光パルスを物質に照射し、その反応効率を示す信号を検出する。検出された信号強度の増減に基づいて波形整形器に表示される位相フィルターを更新する。ここまでが一連の操作となり、信号強度がある設定値を上回るまで前記操作を繰り返す。

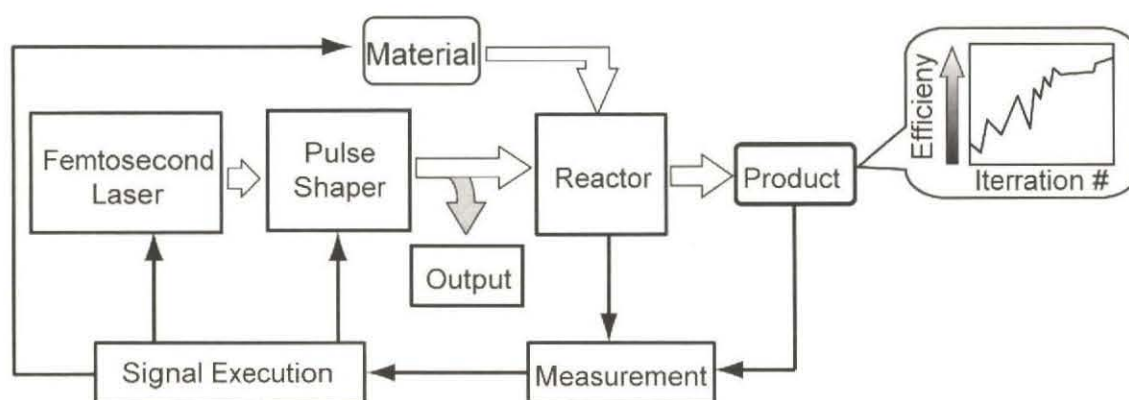


図 3-37 適応型光パルス反応制御装置の概念図

ただし、信号強度が増加した場合のフィルターを採択し、信号強度が低下した場合のフィルターは採択しないという線形アルゴリズムでは、最終的に生成される位相フィルターが局所解に陥り易いため、S.A.法や、G.A.法等を用いて最適解が導出されるように工夫がなされている。本研究では、最も簡便な手法である S.A.法を用いて反応制御を試みた。S.A.法の概念について以下に述べる。

本研究で用いた S.A.法の手順を、図 3-38 に示すフローチャートに従って述べる。

- (1) **初期設定** 初期温度、温度減衰比 Ratio、位相フィルター位相分解能(最大 $2\pi/255$)、データ数(位相フィルター分解数、最大 512ch)を任意の値に設定する。温度の初期値が高いと収束までに時間がかかる。また、温度減衰比が小さいと収束に時間がかかるが、逆に大きいと収束が速まる反面 S.A.法のメリットが活かされないために局所解に陥りやすくなる。
 - (2) **評価関数の初期値取得** 評価関数となる信号強度の初期値 V_0 を取得する。これ以降のルーチンでは、この評価関数が大きくなるように変調パターンを制御する。
 - (3) **位相フィルター作成・表示** 1ch の位相変調量を確率 random(2)で、 $+2\pi/16$ もしくは $-2\pi/16$ 変化させる。
 - (4) **評価関数取得** 評価関数となる信号強度を取得し、これを V_1 とする。
 - (5) **評価関数比較** $V_0 < V_1$ の場合は、無条件で(3)における位相フィルターを採用する。 $V_0 > V_1$ であっても、確率 $\exp\{-(V_0-V_1)/T\} < \text{random}(X)/X$ で、(3)における位相フィルターを採用する。ある確率で採用することによって、局所解からの脱出が図られる。
 - (6) 位相フィルターの他のチャンネルに対しても(3)–(5)を繰り返す。
 - (7) (3)–(6)終了後に温度を $T=T \times \text{Ratio}$ に下げる。温度 T を下げることによって(5)における確率が小さくなるために、評価関数が小さくなった場合の採用頻度が減少する。
 - (8) (3)–(7)を所定回数、もしくは評価関数が最終目標値に達するまで行う。
- 以上の行程により、評価関数(信号強度)が大きくなり、最適な位相フィルターが生成される。

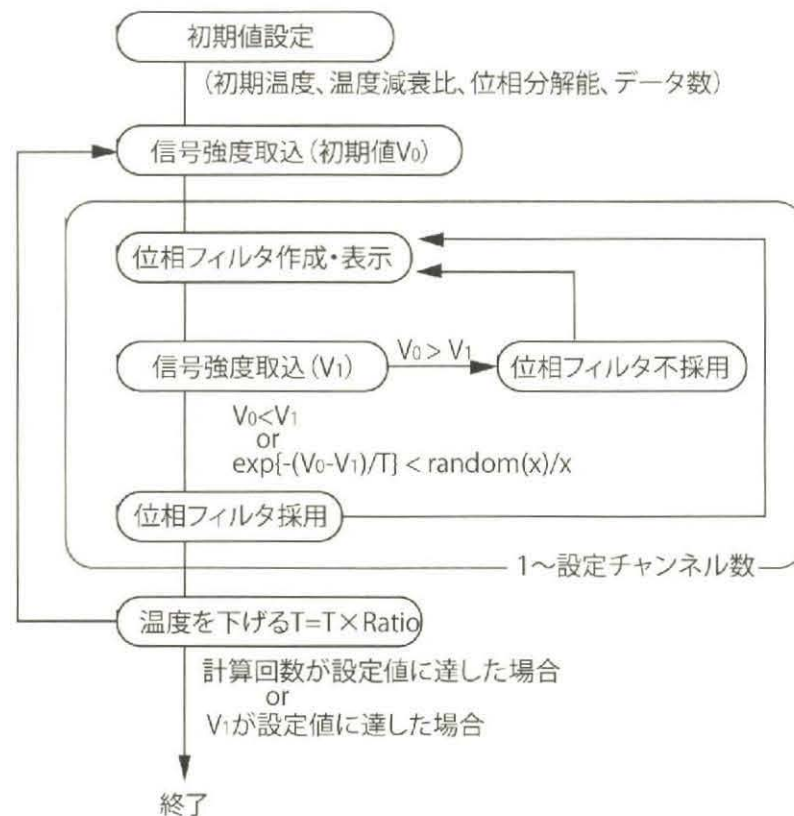


図 3-38 本研究での S. A. 法のフローチャート

3.6.3. 適応型光パルス反応制御装置の応用

適応型光パルス反応制御装置の効果を解析的に検証するために、フェムト秒光パルスがガラスブロックや光ファイバーを伝播する際に生じる波長分散を自動的に補償する制御を行った。前記実験は線形分散を補正するものであるが、非線形効果によって生じる波長分散に対しても有効であることを実証するために、非同軸光パラメトリック増幅器 (Non-collinear Optical Parametric Amplifier, NOPA) において発生する波長分散の自動補償を行った。

いずれの実験においても、システムには制御対象に関する先見情報を持たせないため、自動制御による最適化が図られれば、適応型光パルス反応制御装置の有効性が実証されることになる。これによって、複雑な過程に伴う反応を制御する場合にも、その過程を理論的に解析することなく自動的に最適なパルス波形が得られる有効な手段となることを実証することを目的とした。

3.6.3.1. 波長分散補正

フェムト秒光パルスは、レンズやフィルター等、光学系に配置された様々な光学素子を伝播する際に波長分散が生じる。特に、高強度フェムト秒レーザーを用いる場合には、線形分散に加えて非線形分散が生じるために、試料直前において最適なパルス波形が得られなくなる。例えば、ガラスセル内に注入された試料にフェムト秒レーザーを集光する場合には、ガラスセル内を光が集光される状態で伝播するため、非線形効果を伴ってパルス波形が歪む。そのために、トランスフォーム限界な光パルスを用いていても、実際に試料に照射される光パルスの波形はトランスフォーム限界とはならないために、計測結果の定量的評価の妨げとなる。あるいは、ガラス内部加工を行う場合においては、ガラス内部の加工位置を変えるごとにパルス波形が変化するために、加工位置での光密度が変化する。これに伴い最適な加工状態が得られなくなるため、加工品質や加工精度を悪化させる要因となる。このような場合、波形整形器を用いて光学系入射前のパルス波形を制御する事で、集光点において常に最適なパルス波形を得ることが可能となる。ただし、いずれの場合においても光パルスが受ける波長分散を解析的に求めることが困難であるため、適応型光パルス反応制御装置を用いることによって自動的に最適なパルス波形を得ることが可能となる。以下では、適応型光パルス反応制御装置によって波長分散を自動的に補正できることを検証するために、第二高調波を指標値として、その強度を自動的に増加させる(すなわちパルス幅を圧縮する)実験について詳細を述べる。

図 3-39 に適応型光パルス反応制御装置を用いた反応制御のための構成を示す。波形整形器により変調された光パルスは、長さ 25 cm の BK7 ガラスにより波長分散が与えられた後に、レンズによって SHG 結晶 (BBO) に集光され、第二高調波を発生させる。その後、色ガラスフィルターによって第二高調波だけを抜き出し、これを光電子増倍管 (PMT) により観測する。PMT の出力電圧をコンピューター (PC) に取り込み、その信号強度が増加(=BK7 ガラスで生じた波長分散を補償)するようにフィードバック制御を行う。位相フィルター作成のためのアルゴリズムとして S.A.法を用いた。図 4-40 および図 4-41 は、FROG により BK7 ガラス伝播前の光パルスならびに伝播後の光パルス进行评估した結果である。BK7 ガラスによって与えられた分散によってパルス幅が 91 fs から 278 fs にまで広げられた。

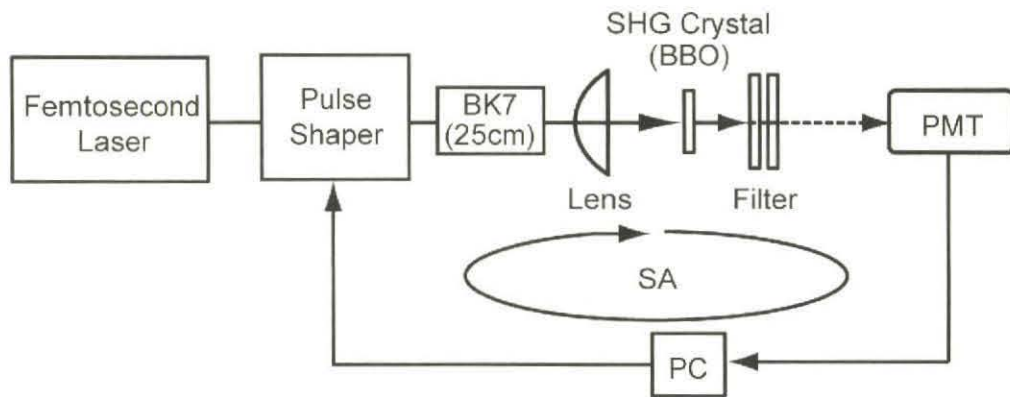


図3-39 波長分散自動補正のための制御システム概念図

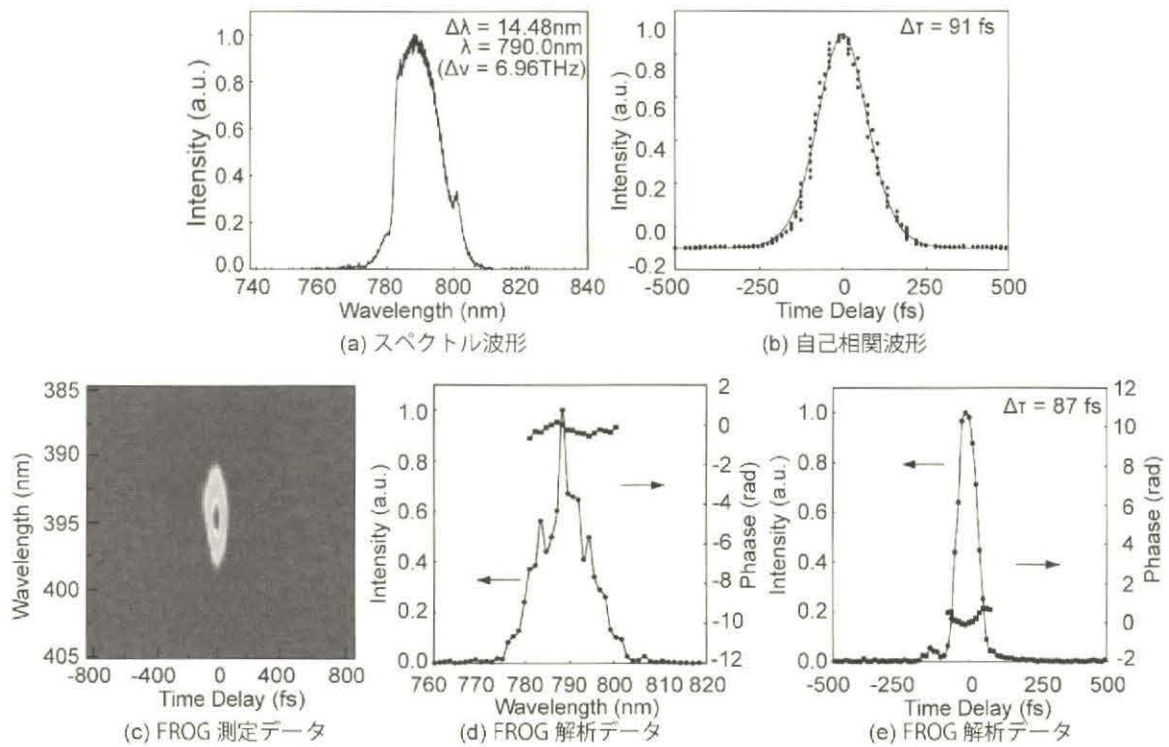


図3-40 分散媒質伝播前の光パルス計測結果

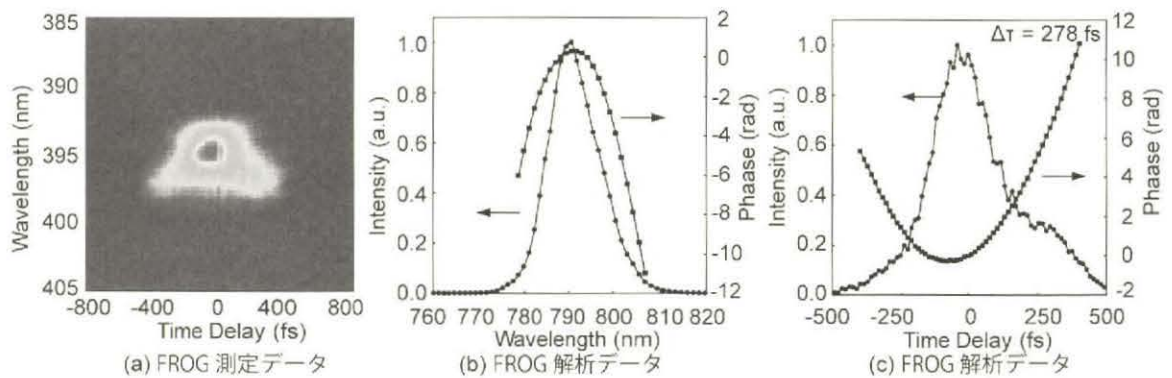


図3-41 分散媒質伝播後の光パルス計測結果

上記光パルスに対して自動制御を行った場合のPMT出力電圧の変化を図3-42に示す。S.A.法の特徴として、制御開始直後は位相フィルターがランダムに展開されるためにPMT出力電圧が低下するが、その後温度Tの低下に伴ってPMT出力電圧が増加し、最終的に一定値（最適値）に達する。試行回数が200回に達した際の位相フィルターを図3-43に示す。比較のために、長さ25cmのBK7ガラスの波長分散（符号反転）を併記した。作成された位相フィルターはBK7ガラスによって与えられた波長分散（図中点線）とよく一致し、これより先見情報を与えられていないにも関わらず適応型光パルス反応制御装置が、与えられた波長分散を補正する位相フィルターを自動的に作成したことが確認された。尚、作成された位相フィルターのピークと理論値のピークが一致していないのは搬送周波数が異なるためで、時間領域では時間的なシフトを意味するものであり、波形そのものに影響はない。最後に、前記位相フィルターが施された光パルスをFROGで計測した結果を図3-44に示す。この結果からも、与えられた波長分散が自動的に補正されていることが確認され、適応型光パルス反応制御装置が有効に機能していることが確認された。

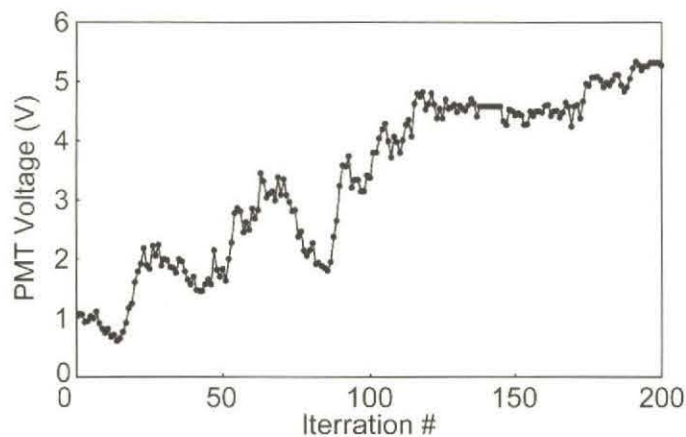


図3-42 自動制御実行時のPMT出力電圧の変化

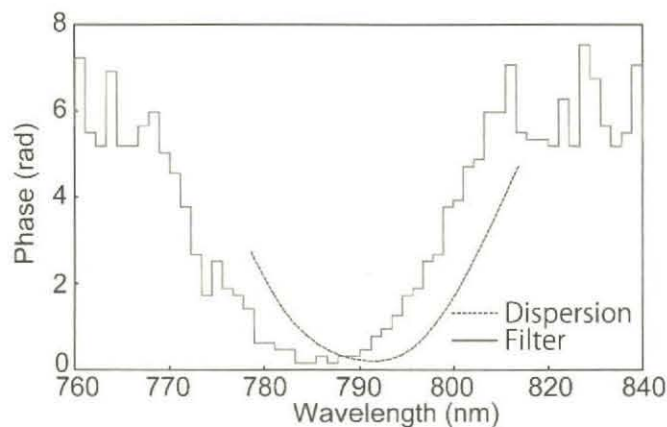


図3-43 自動制御により作成された位相フィルター

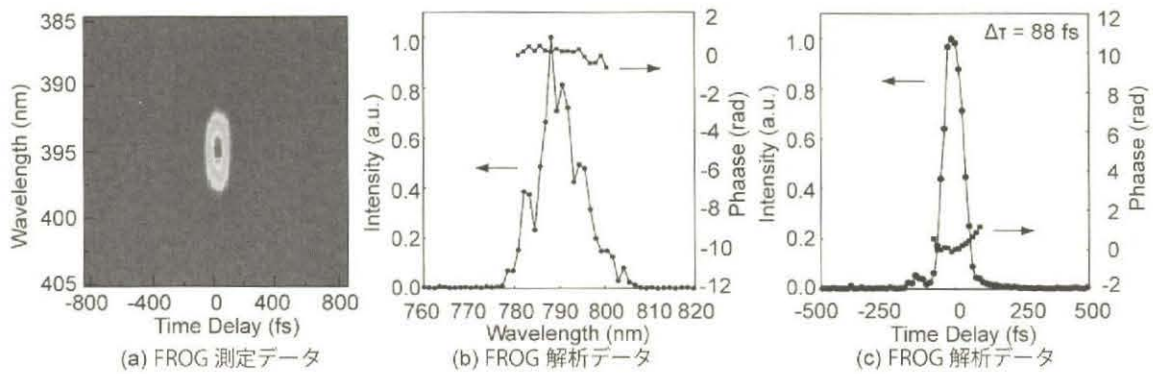


図3-44 自動制御後の光パルス測定結果

3.6.3.2. マルチモードファイバーを用いたフェムト秒光パルスの長距離伝送

近年、フェムト秒レーザーは物性評価等の基礎研究分野のみならず、顕微応用、ガラス加工等の様々な産業分野においても用いられるようになった。ところが、フェムト秒レーザーは光学素子の波長分散を受けて時間波形が歪むという問題が生じるために、伝送手段として光ファイバーを用いることができず、通常は空間を伝送させていた。一方で、フェムト秒レーザーの利便性を向上させるために、ファイバー伝送の要求が高まっている。非線形性が生じない程度の光強度で、さらにファイバー伝送時に生じる波長分散が2次位相分散だけであれば、2.2.3項で述べた回折格子対を用いてその分散を相殺することも可能である。しかし、長距離の光ファイバーを用いる場合には回折格子対では補償できない高次の分散が時間波形を歪ませる要因となる。さらに、ファイバー内部で非線形現象が生じる場合には、波長分散の補正は困難を極めることとなる。本研究では、適応型光パルス反応制御装置を用いてこれらの波長分散を自動補正することで、フェムト秒光パルスの長距離伝送を可能とした³¹⁾。詳細を以下に示す。

フェムト秒光パルスの長距離ファイバー伝送のための構成を図3-45に示す。レーザーには、パルス幅 30 fs、中心波長 810 nm、繰返し周波数 82 MHzのTi:sapphireレーザーを用いた。前記レーザー光は、波形整形器を伝播した後に回折格子対によって波長分散(2次位相分散)が与えられる。この際、後段の光ファイバーおよびガラスブロックの有する2次位相分散が打ち消されるように回折格子対の間隔を調整した。光ファイバーにはコア径 50 μm、長さが 96 mのステップ・インデックス型マルチモードファイバーを用いた。最終段にTF-5ガラスブロック³²⁾を用いたのは、再生増幅フェムト秒光パルスを伝送させる場合に光ファイバー出射端面の破壊を避けるためである。

ガラスブロックには、材質がTF5($n = 1.73655$, $dn/d\lambda = -0.0509376$, $d^2n/d\lambda^2 = 0.18024$, $d^3n/d\lambda^3 = -0.987683$ at 810 nm)、長さが10 cmのものを用いた。図3-46に示すように、光はガラスブロック内を18回伝播伝播した後に、自己相関器へと導光される。このような構成とすることで、小型でありながらも波長分散を増やすことが可能となるため、ファイバー出射端でのパルス幅を広げることが可能となる。すなわち、光ファイバー出射端面の破壊を回避することが可能となる。

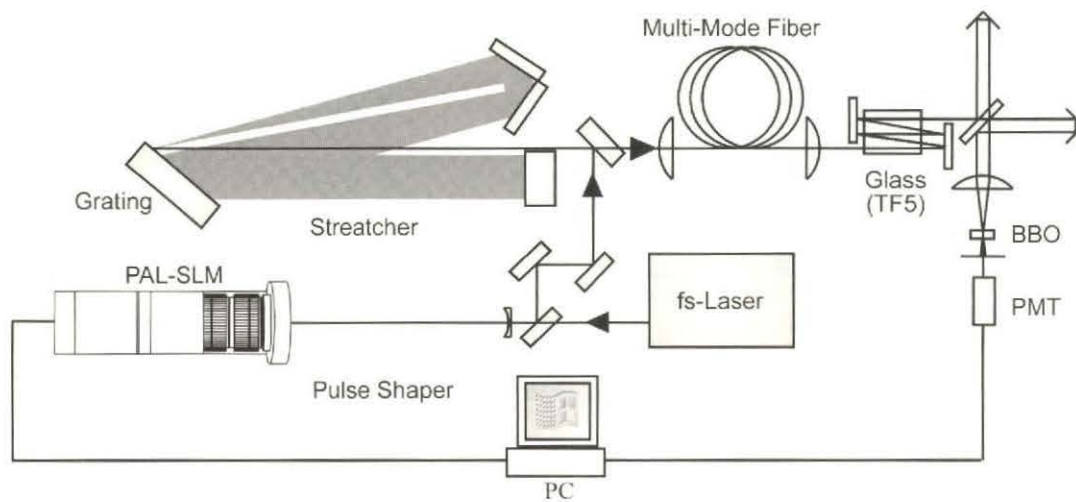


図3-45 長距離光ファイバー伝送時の分散自動補正の概念図

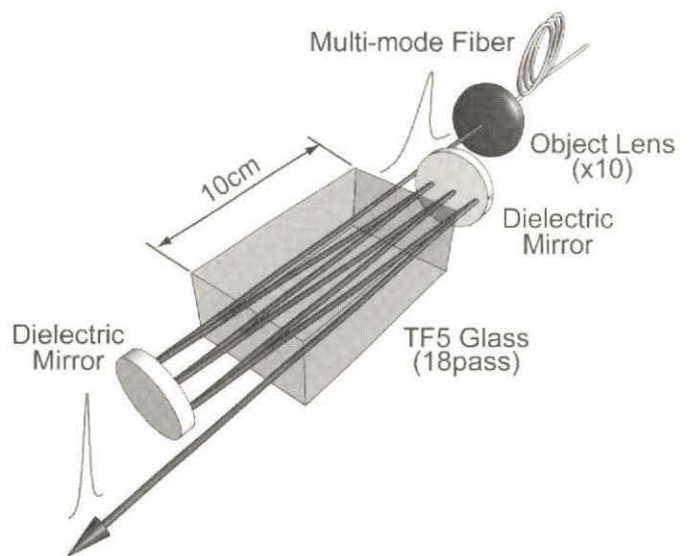


図3-46 ガラスブロック伝播光学系

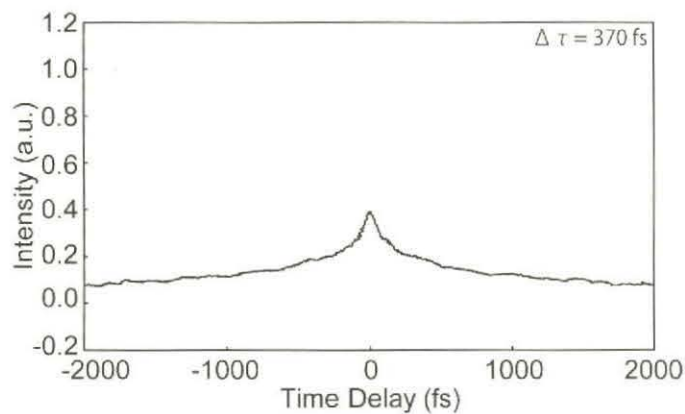


図3-47 ガラスブロック伝播後の光パルスの自己相関波形

次に、自己相関器の捜引をSHG強度が最大となる位置に固定し、PMTで観測されたSHG強度を指

標値としてフィードバック制御を行った。パルスストレッチャーにより波長分散が与えられた光パルスを光オシロスコープ(浜松ホトニクス、OOS-01)で計測した結果、ファイバー入射前の段階でパルス幅が30 fsから382 psに伸延されていることが確認された。その後、前記光パルスが光ファイバーおよびガラスブロックを伝播することで回折格子対の2次位相分散と光ファイバーおよびガラスブロックの2次位相分散とが相殺される。この点を確認するために、ガラスブロック伝播後の光パルスを自己相関器で計測した結果を図3-47に示す。

パルス幅が最短になるように回折格子対を調整したにもかかわらず、パルス幅は370 fsにまでしか圧縮されていない。また、裾の部分の広がりや顕著である。これは、光ファイバーの有する3次位相分散の影響と推測されるため、実測スペクトルデータをもとに解析を行った。

図3-48は波形整形器伝播後の実測スペクトルと、システムに残留する3次位相分散である。3次位相分散は2.3.3項に述べた手法により算出した計算値である。スペクトル帯域が広いほど3次位相分散が急激に増大することがわかる。

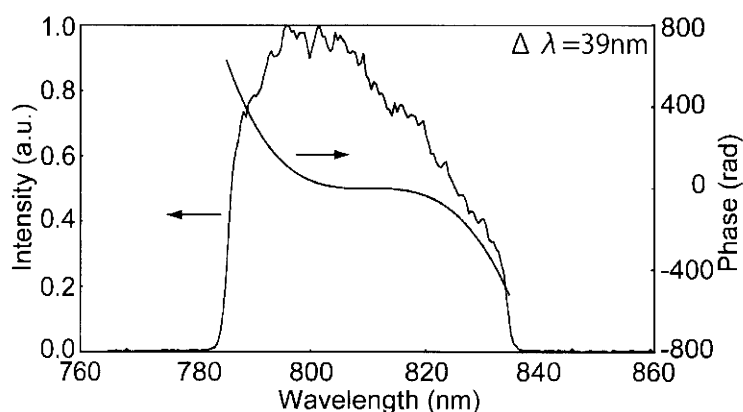


図3-48 スペクトル波形およびシステムに残留する3次位相分散

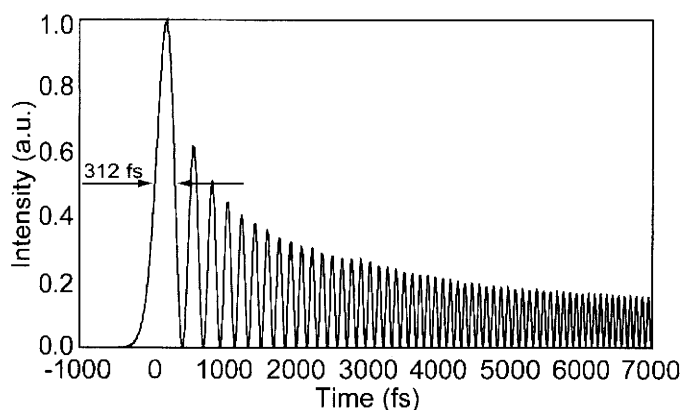


図3-49 3次位相分散を伴う光パルスの時間波形

上記スペクトルをフーリエ変換すると、図3-49に示す時間波形が得られる。この結果から、3次位相分散によってメインパルスのパルス幅が広がるばかりでなく、メインパルスの後にサテライトパルス列が発生することが確認された。

次に、以下の手順に従って上記時間波形から自己相関波形を算出した。基本波の中心角周波数が ω_0 、時間領域での位相が $\phi(t)$ である光パルスの複素電場 $E_1(t)$ は(3-63)式により表される。

$$E_1(t) = \sqrt{I_1(t)} \exp[-j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] \quad (3-63)$$

と表される。ただし、

$$\begin{aligned} I(t) &= \left\{ \sqrt{I_1(t)} \exp[-j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] \right\} \times \left\{ \sqrt{I_1(t)} \exp[-j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] \right\}^* \\ &= |E_1(t)|^2 \end{aligned} \quad (3-64)$$

である。この光パルスを二つに分岐した後、一方に遅延時間 τ を付与した上で、共軸(コリニア)に再度重ね合わせたときの合成複素電場 $E_0(t)$ は

$$E_0(t) = \sqrt{I_1(t)} \exp[-j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] + \sqrt{I_1(t-\tau)} \exp[-j\{\omega_0(t-\tau) + \phi(t-\tau)\}] \quad (3-65)$$

と表される。したがって、(3-65)式により表される合成複素電場 $E_0(t)$ を非線形(SHG)結晶に入射した場合に発生する第二高調波の複素電場 $E_2(t)$ は

$$\begin{aligned} E_2(t) &= \{E_0(t)\}^2 \\ &= \left\{ \sqrt{I_1(t)} \exp[-j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] \right\}^2 \\ &= I_1(t) \exp[-2j\{\omega_0 t + \phi(t)\}] \end{aligned} \quad (3-66)$$

となる。上記複素電場を応答時間がパルス幅に比べて極めて長い検出器を用いて測定したときの出力信号 $S_2(t)$ は

$$\begin{aligned} S_2(t) &= \int_{-\infty}^{\infty} |E_2(t)|^2 dt \\ &= 1 + 2G_2(\tau) + 4 \operatorname{Re}[F_1(\tau) \exp(-j\omega_0 \tau)] + \operatorname{Re}[F_2(\tau) \exp(-j\omega_0 \tau)] \end{aligned} \quad (3-67)$$

となる。ただし、 $G_2(\tau)$ は2次の強度自己相関関数であり、

$$G_2(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_1(t) I_1(t-\tau) dt \quad (3-68)$$

また、 $F_1(\tau)$ および $F_2(\tau)$ はそれぞれ基本波および第二高調波の干渉項(相関関数)であり、それぞれの干渉項の振幅は

$$F_1(\tau) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} \{I_1(t) + I_1(t-\tau)\} E_1(t) E_1^*(t-\tau) dt \quad (3-69)$$

$$\begin{aligned} F_2(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} \{E_1(t)\}^2 \{E_1^*(t-\tau)\}^2 dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} E_2(t) E_2^*(t-\tau) dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} I_1(t) I_1(t-\tau) \exp[-2j\{\phi(t) - \phi(t-\tau)\}] dt \end{aligned} \quad (3-70)$$

と表される。(3-68)式で示される2次の強度自己相関関数 $G_2(\tau)$ のフーリエ変換 $\mathfrak{F}\{G_2(\tau)\}$ は

$$\begin{aligned}\mathfrak{F}\{G_2(\tau)\} &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G_2(\tau) \exp(-j\omega\tau) d\tau \\ &= |\mathfrak{F}\{I(t)\}|^2\end{aligned}\tag{3-71}$$

となる。すなわち基本波の振幅 $I(t)$ のフーリエ変換の2乗が求める2次の強度自己相関関数 $G_2(\tau)$ のスペクトルとなる。これより、自己相関関数は基本波の振幅 $I(t)$ のフーリエ変換の2乗をフーリエ変換することにより求められる。

以上の手順に従って、図3-49に示される時間波形から自己相関波形を求めた結果が図3-50である。図3-47に示される実測値と図3-50に示される計算値とが、中央付近の波形がよく一致し、裾が広がっているという点でも傾向が一致している。裾の強度が異なるのは3次位相分散以外の影響と推測される。これより、フェムト秒光パルスの長距離ファイバー伝送においては3次位相分散を補正する必要があると同時に、発生する波長分散を理論的に算出することが困難であることも明らかとなった。

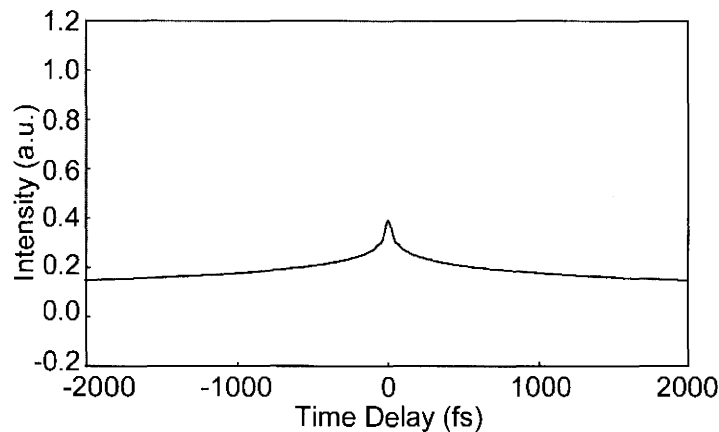


図3-50 3次位相分散を有する光パルスの自己相関波形計算値

そこで、適応型光パルス反応制御装置を用いて3次位相分散と未知の波長分散の自動補正を行った。指標値としたPMTの強度変化を図3-51に示す。波形整形器で用いられている光アドレス型空間光変調器は分光方向に883画素の分解能を有するが、フィルター作成時に全画素を更新したのでは制御時間が膨大になるため、段階的に分解能を増加させることにした。すなわち、第一段階では16画素、第二段階では8画素、第三段階では4画素、第四段階では2画素を一つの電極と見立てて制御を行った。ただし、2画素を一つの電極と見立てた場合は逆に指標値が低下したため、一連の制御の中で指標値が最大となった時の位相フィルターを最適値とした。尚、分解能変更時に強度が低下するのは、分解能変更と同時に温度がリセットされるためである。

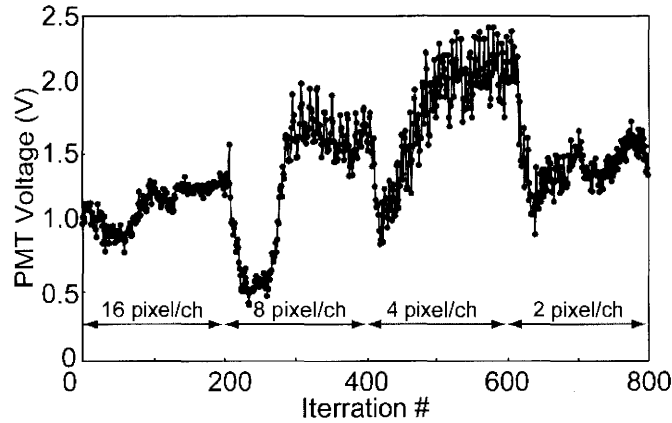


図3-51 自動制御実行時のPMT出力電圧の変化

以上の制御過程において、PMT出力電圧が最大となった時の位相フィルターを表示した場合の出力光の自己相関波形を図3-52に示す。自動補正によって高次波長分散が補正されて、その結果パルス幅が 370 fsから 164 fsに圧縮された。入射時のパルス幅にまで圧縮されていないのは、マルチモードファイバー伝播中に生じた伝播モード分散によると推測される。この点について以下に補足する。

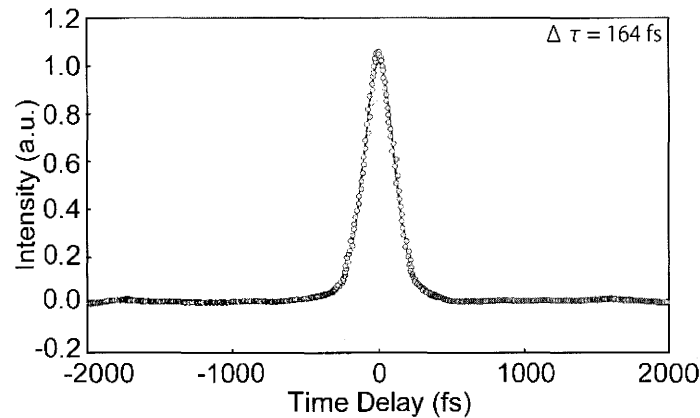


図3-52 自動制御後の自己相関波形

一般に、ステップ・インデックス型の光ファイバーでは、伝播モードがランダムになるためにフェムト秒レーザーを伝送させることが困難とされている。これに対して、本研究では光ファイバー導光時に入射光の光軸と光ファイバーの軸とを綿密に調整することにより、高次伝播モードの発生を抑制させている。高次伝播モードが抑制されている場合には、出射光の空間モードがガウス分布に近い強度分布となるため、高次伝播モードの有無は光ファイバー出射光のファーフィールドパターンを観測することにより明らかとなる。図3-53は光ファイバー出射光のファーフィールドパターンを観測した結果であり、ガウス分布に近い強度分布となっていることから、高次伝播モードの発生が抑制されていることが確認された。しかし、上記の調整を行ったとしても、マルチモードファイバーでシングルモード伝播させることは不可能であるため、1次以上の低次伝播モードがパルス幅を広げる要因となる。そのために、入射時のパルス幅にまで圧縮されなかったと考えられる。

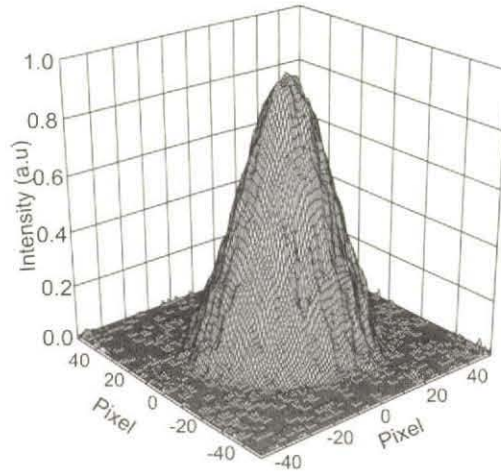


図3-53 光ファイバー出射光のファーフィールドパターン

3.6.3.3. 波形整形による非同軸光パラメトリック増幅光のパルス圧縮

非同軸光パラメトリック増幅 (Non-collinear Optical Parametric Amplifier, NOPA)³³⁾は、角周波数 ω_p のポンプ光から $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ (エネルギー保存則) を満足する角周波数 ω_s のシグナル光、および角周波数 ω_i のアイドラ光へのエネルギーの移行である。この場合、位相整合条件と運動量保存則とを満足させる必要があるが、ポンプ光とシグナル光とが同軸となる通常の構成では、限られた波長領域でしか位相整合条件を満足させることができない。そこで、ポンプ光とシグナル光とがある角度 α を成すような非同軸の配置とすることで、位相条件を満足する波長帯域を広げることが可能となる。非同軸の状態での位相整合条件について以下に補足する。

任意の波長 λ における、BBO結晶の常光線に対する屈折率 $n_o(\lambda)$ および異常光に対する屈折率 $n_e(\lambda)$ はそれぞれ

$$n_o(\lambda)^2 = 2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354\lambda^2 \quad (3-72)$$

$$n_e(\lambda)^2 = 2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.01667} - 0.01516\lambda^2 \quad (3-73)$$

と表される³⁴⁾。また、タイプ I 位相整合 (異常光 \rightarrow 常光+常光) での位相整合角 $\theta(\lambda_s, \alpha)$ は、ポンプ光 (波長 λ_p) とシグナル光 (波長 λ_s) とがなす角度を α 、アイドラ光の波長を λ_i とすると

$$\theta(\lambda_s, \alpha) = \cos^{-1} \left[\frac{1}{\sqrt{n_o^{-2}(\lambda_p) - n_e^{-2}(\lambda_p)}} \sqrt{\frac{1}{\lambda_p \left(\frac{n_o(\lambda_s) \cos \alpha}{\lambda_s} + \sqrt{\left(\frac{n_o(\lambda_i)}{\lambda_i} \right)^2 - \left(\frac{n_o(\lambda_s)}{\lambda_s} \sin \alpha \right)^2} \right)^2 - n_e^{-2}(\lambda_p)} \right] \quad (3-74)$$

と表される³⁵⁾。 $\lambda_p = 790 \text{ nm}$ 、 $\alpha = 3.7^\circ$ とした場合の位相整合角は図 3-54 により表され、広帯域にわたっ

て位相整合条件が満足されることが確認される(520~800 nm で 0.5°以下)。すなわち、520~800 nm の光を同時に増幅できることになる。

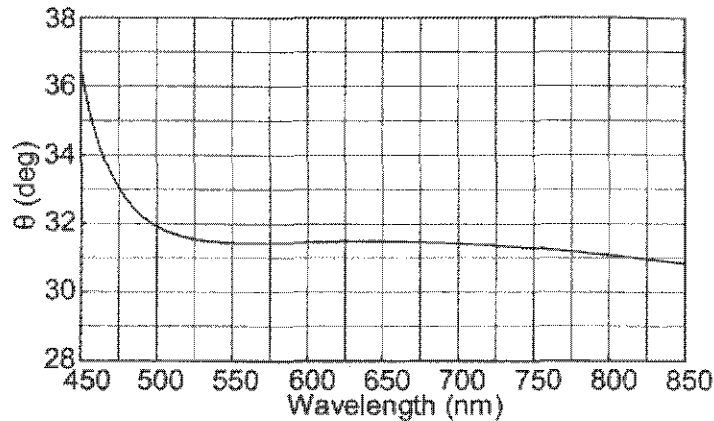


図 3-54 位相性合角計算結果

ポンプ光とシグナル光とがある角度 α を成すような配置、すなわち非同軸の構成とすることによって、位相整合条件を満足させる波長帯域が広げられるが、増幅時にポンプ光とシグナル光との波面が一致しないために、増幅帯域が制限されるという問題が生じる。そこで、プリズムを用いてポンプ光の波面を傾けることによってシグナル光との波面を整合させた。図3-55に示すように、プリズムの頂角を α_{apex} 、屈折率を $n(\lambda)$ 、入射角を $\phi_1(\lambda)$ 、出射角を $\phi_2(\lambda)$ とすると、波面の傾き角 γ_{prism} は

$$\tan \gamma_{prism} = -\lambda \frac{d\phi_2(\lambda)}{d\lambda} = -\frac{\sin \alpha_{apex}}{\cos \phi_1(\lambda) \cos \phi_2(\lambda)} \lambda \frac{dn}{d\lambda} \quad (3-75)$$

と表される。

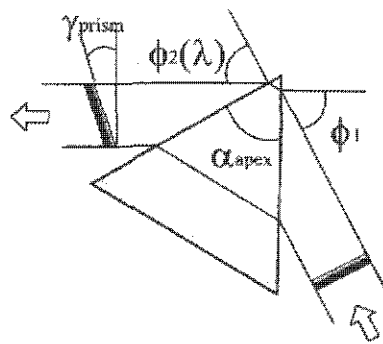


図 3-55 プリズムを用いたパルスフロント制御

(3-37)式より、プリズムの材質を合成石英、頂角を $\alpha_{apex}=60^\circ$ 、中心波長を $\lambda=625\text{ nm}$ ($dn/d\lambda=-0.02996$) とした場合に、 $\gamma_{prism}=3.7^\circ$ とするためには入射角を $\phi_1(\lambda)=47.1^\circ$ とすればよい。この場合の出射角は $\phi_2(\lambda)=47.5^\circ$ となり、角度調整の上でも有利となる。

一方、非線形過程を経て生じた白色光は、ポンプ光に比べてパルス幅が広がっている。この状態で増幅を行っても、ポンプ光と時間的に一致した波長成分のみが増幅されることとなる。増幅前に白色

光を圧縮することでポンプ光と白色光とを時間的に重ねることも可能であるが、ピーク強度が大きいポンプ光によって増幅用の結晶が損傷を受けてしまう。そこで、ポンプ光のパルス幅を白色光のパルス幅に合わせることにした。図 3-56 に示される構成では、ポンプ光の光路上に合成石英ブロックを配置することでポンプ光のパルス幅を拡げた。合成石英ブロックと上記プリズムの分散によって、白色光のパルス幅とポンプ光のパルス幅とが一致し、位相整合条件を満足させる全波長成分の増幅が可能となる。尚、ポンプ光を結晶の手前の適切な位置に集光させると、集光後のビーム広がりや結晶入射時の屈折角とが相殺されて、白色光とポンプ光の相互作用領域が拡大される。

以上の設計を元に構築した非同軸光パラメトリック増幅器の構成を図 3-56 に示す。フェムト秒光パルスのパラメトリック増幅では、SHG 結晶の損傷や結晶内部での非線形効果等によりパラメトリック増幅の際に用いるポンプ光 (SHG 光) には上限が生じる。そこで、フェムト秒レーザー (Spectra Physics、Hurricane) を分岐して 2 段増幅の構成とすることにより、高出力化および広帯域化を図った。

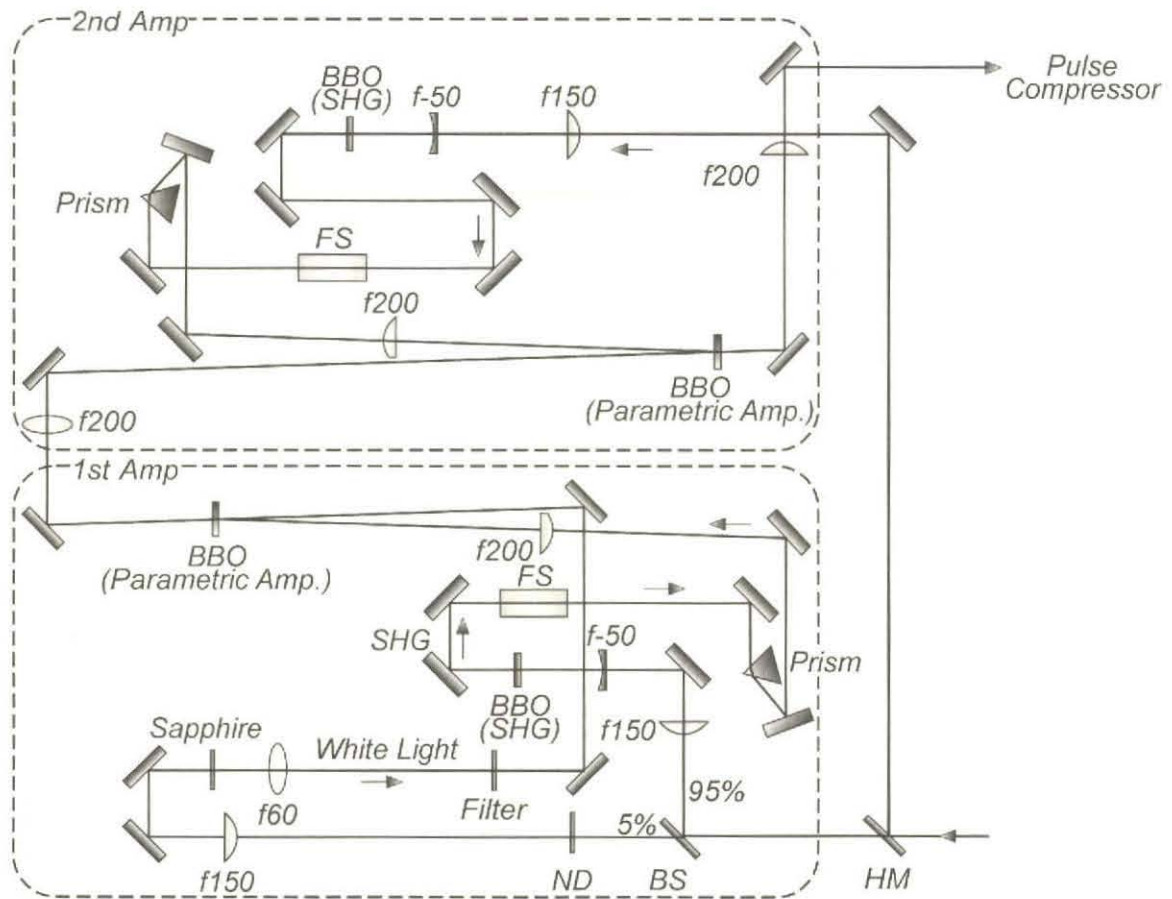


図 3-56 NOPA の構成

第 1 段増幅部では、ビームスプリッターにより分岐された 95% の光を、平凸レンズ (f150) および平凹レンズ (f50) の縮小光学系により 1/3 に縮小した後に、厚さ 400 μm の BBO により波長変換することでポンプ光を発生させた。白色光の全帯域の光を同時に増幅させるためには、白色光のパルス幅とポンプ光のパルス幅を一致させる必要があるため、ポンプ光の光路に長さ 3 cm の合成石英を配置した。さらに、白色光の波面とポンプ光の波面の傾きを一致させるため

に、ポンプ光側に合成石英プリズム（頂角 60° ）を配置することによりポンプ光の波面を傾けた。波面が傾けられたポンプ光を、焦点距離 200 mm の平凸レンズによりパラメトリック増幅用のBBO結晶（厚さ 1 mm ）に集光して、パラメトリック増幅を行った。

一方、残り 5% の基本波は、可変 ND フィルターにより非線形効果による位相歪みが生じない程度に減光された後に、焦点距離 150 mm の平凸レンズにより厚さ 1 mm のサファイヤ基板に集光され、白色光を発生させる。この際、集光点をサファイヤ基板の出射面側とすることで非線形効果等による高次分散を低減させることが可能となる。発生した白色光は、焦点距離 60 mm の両凸レンズにより、緩やかにパラメトリック増幅用の BBO 結晶に集光される。緩やかに集光することによって、結晶内部におけるポンプ光と白色光との相互作用領域を多くすることができる。この際、色ガラスフィルタ（SCHOTT、BG40）を用いて、白色光に変換されなかった基本波を除去した。

増幅された光は、焦点距離 200 mm の両凸レンズにより第2段増幅器内の BBO 結晶（厚さ 1 mm ）に集光され、再度増幅される。2段増幅することによって、光強度が増加するとともに空間モードが改善された。2段増幅された光は、焦点距離 200 mm の平凸レンズによりコリメートされながら下記パルス圧縮器に導光される。

パルス圧縮器の構成を図 3-57 に示す。NOPA の出射光は S 偏光であるため、ペリスコープを用いて P 偏光とした。プリズムには頂角 69° の合成石英ブリュースタープリズムを用いた。プリズムの間隔を 39 cm とした場合に波形整形器を出射した直後のパルス幅が最短となった。圧縮された光は波形整形器へと導光される。



図 3-57 パルス圧縮器

非線形効果である自己位相変調により発生した白色光には高次位相分散が含まれる。ただし、パルス圧縮器では2次位相分散を補正することができても、これらの高次分散を補正することができない。そこで、適応型光パルス反応制御装置を用いて高次位相分の補償を試みた。適応型光パルス反応制御装置を用いたパルス圧縮について以下に述べる。

構築した適応型光パルス反応制御装置を用いたパルス圧縮系の概念を図 3-58 に示す。プリズム対によるパルス圧縮器により可能な限り圧縮されたパラメトリック増幅光は、波形整形器においてランダムな位相変調が加えられた後にフリンジ分解 SHG 自己相関器に入射される。フリンジ分解 SHG 自己相関器の一方の光路を遮断することにより発生する第二高調波の強度信号を指標値として、その強度が増加するように S.A.法によるフィードバック制御を行った。

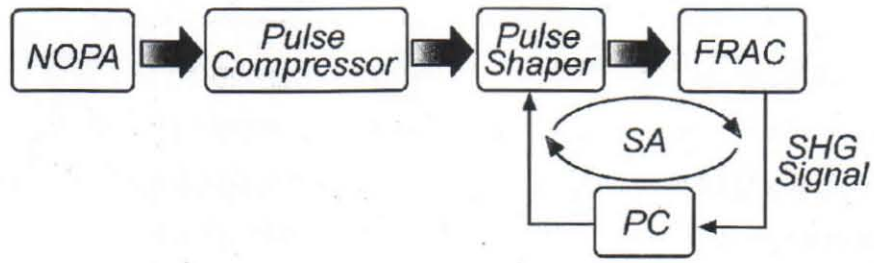


図 3-58 適応型光パルス反応制御装置を用いたパルス圧縮器の概念

以下に、実験結果を記す。基本波はパルス幅 130 fs、中心波長 790 nm、繰返し 1 kHz、平均強度 700 mW の再生増幅光である。この場合、1 段増幅後の光強度は 0.2 mW、2 段増幅後の光強度は 3.8 mW、パルス圧縮後の光強度は 2.1 mW、波形整形器後の光強度は 1.1 mW であった。

増幅後の白色光のスペクトルを図 3-59 に示す。また、フリンジ分解自己相関器により前記光パルスを計測した結果を図 3-60 に示す。

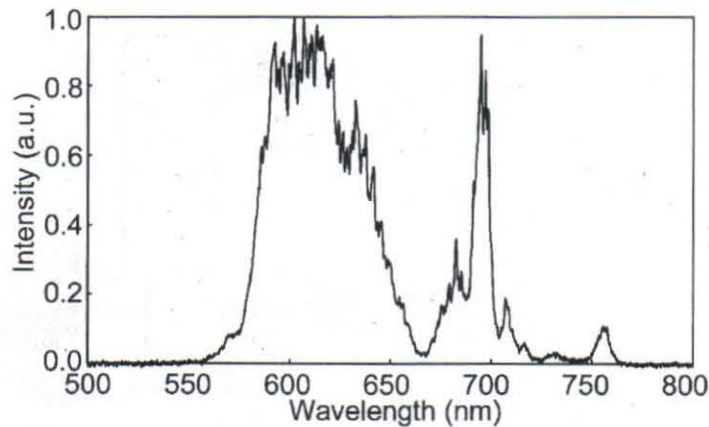


図 3-59 パラメトリック増幅光のスペクトル

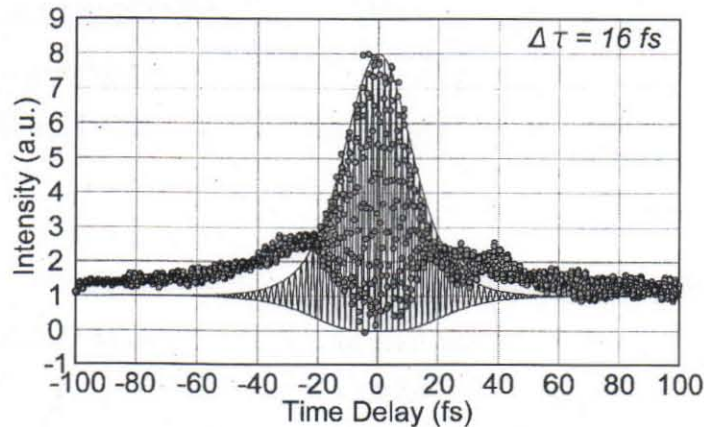


図 3-60 フィードバック制御前の自己相関波形

上記計測で用いたフリンジ分解SHG自己相関器の構成を図3-61に示す。SHG結晶には厚さ 20 μm のBBOを用いた。ビームスプリッターにペリクル(エドモンド, 39479-H)を、集光光学系に放物面鏡(コヒーレント, 43-8853)を用いることで、光学系の分散の影響を最小限にとどめた。第二高調波と基本波とを分離するために、結晶直後に色ガラスフィルタ(HOYA, U330)を2枚配置し、第二高調波だけを光電子増倍管(PMT: Photomultiplier Tube, 浜松ホトニクス, H5783-06)およびロックアンプ(Stanford Research Systems, SR810)によりロックイン検出した。また、リフレクター後方にギャップセンサ(キーエンス, EX-501, EX-008, 分解能 300 nm)を配置することでリフレクターの移動量を計測し、この信号とロックインアンプの信号とをデータ収録ボード(National Instruments, PCI-6251)を介してコンピュータに入力してフリンジ分解SHG自己相関波形を得た。

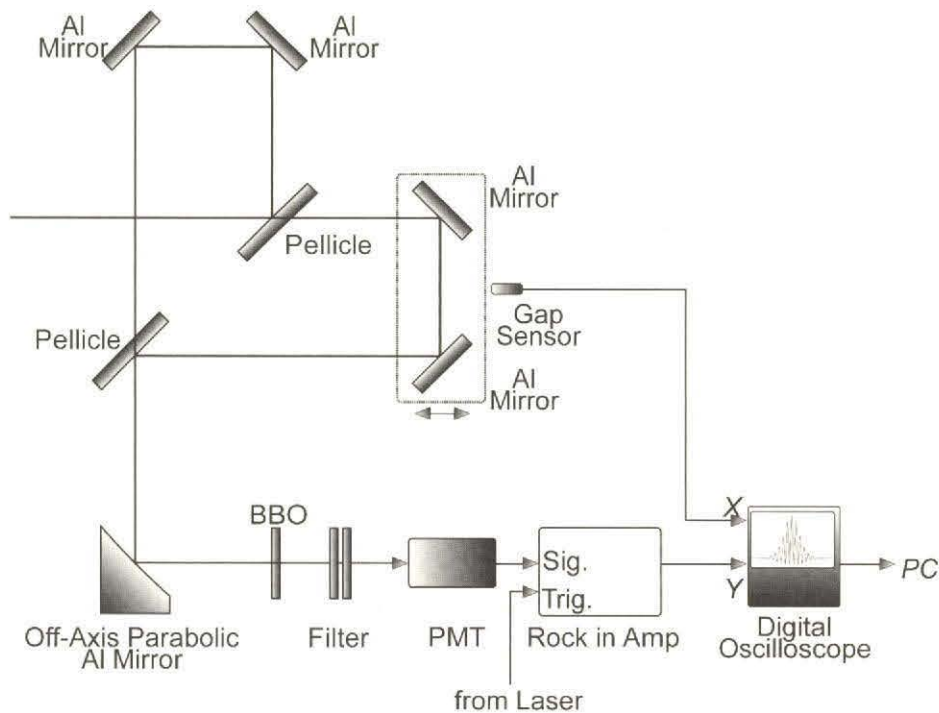


図 3-61 フリンジ分解 SHG 自己相関器の構成

上記構成により得られたフリンジ分解自己相関データは、下記手順により解析されてパルス幅が評価される。角周波数 ω の被測定光パルスの電場を $E(t)=A(t)\cos\{\omega t+\phi(t)\}$ とする。前記光パルスを分岐し、一方に遅延時間 τ を与えた場合の強度に対する2次の自己相関信号 $G_2(\tau)$ は

$$\begin{aligned}
 G_2(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t-\tau)dt \\
 &= \int_{-\infty}^{\infty} |E^2(t)E^2(t-\tau)|dt
 \end{aligned}
 \tag{3-76}$$

と表される。フリンジ分解自己相関波形関数 $I_{FRAC}(\tau)$ は、 $E(t)$ および $E(t-\tau)$ の合成電場 $\{E(t)+E(t-\tau)\}$ の第二高調波 $\{E(t)+E(t-\tau)\}^2$ を光検出器で検出する際に得られる電気信号 $|\{E(t)+E(t-\tau)\}^2|^2$ を積分した結果であり

$$I_{FRAC}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \left[\{E(t) + E(t-\tau)\}^2 \right] dt \quad (3-77)$$

と表される。(3-76)式および(3-77)式より

$$I_{FRAC}(\tau) = 1 + 2G(\tau) + 2F_1(\tau) + F_2(\tau) \quad (3-78)$$

が得られる。ここで、 $F_1(\tau)$ および $F_2(\tau)$ は ω および 2ω で振動する $\phi(t)$ を含んだ相関関数であり、それぞれ

$$F_1(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} [A^2(t) + A^2(t-\tau)] A(t) A(t-\tau) \times \cos\{\omega\tau - \phi(t) + \phi(t-\tau)\} dt \quad (3-79)$$

$$F_2(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} A^2(t) A^2(t-\tau) \times \cos 2\{\omega\tau - \phi(t) + \phi(t-\tau)\} dt \quad (3-80)$$

と表される。ここで、 $A(t) \propto \text{sech}(t/T)$ 、 $\phi(0)=0$ とすると、パルス幅は $\Delta\tau=1.763T$ で与えられ、2次の自己相関信号 $G_2(\tau)$ および包絡線関数 $g_{envelope}(\tau)$ はそれぞれ

$$G_2(\tau) = \frac{3\{(\tau/T)\cosh(\tau/T) - \sinh(\tau/T)\}}{\sinh^3(\tau/T)} \quad (3-81)$$

$$g_{envelope}(\tau) = 1 + 3G_2(\tau) \pm \frac{3\{\sinh^2(\tau/T) - 2(\tau/T)\}}{\sinh^3(\tau/T)} \quad (3-82)$$

と表される。上記関数を用いて得られたデータに対してフィッティングを行い、この時の T からパルス幅を算出する。

上記手法により得られる理論値と得られたデータ(図3-60中○表示)が裾の部分で一致していないことから、ファイバー伝送時の結果と同様に高次分散が補正されていないと推測される。そこで、適応型光パルス反応制御装置を用いて残留波長分散の補正を行った。制御実行時の第二高調波の信号強度の変化を図3-62に示す。

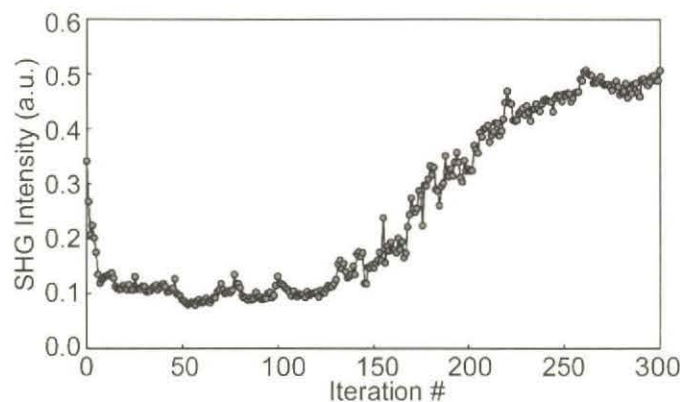


図 3-62 自動制御実行時の PMT 出力電圧の変化

上記制御により生成された位相フィルターを用いた場合の光パルスをフリンジ分解自己相関器により計測した結果を図3-63に示す。自動制御により、パルス圧縮器では圧縮できない高次位相分散が補正されたことにより、パルス幅が16 fsから12 fsにまで圧縮された。以上により、非線形過程で発生する未知の波長分散に対しても適応型反応制御装置が有効に機能してい

ることが確認された。

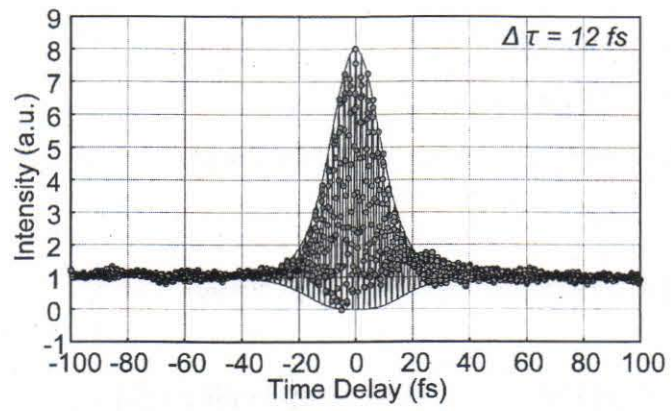


図 3-63 フィードバック制御後の自己相関波形

3.7. あとがき

周波数領域において光パルスの振幅および位相を制御し、これをフーリエ変換することによって時間領域にける光パルスの振幅および位相を高い自由度で制御する波形整形は、その原理が極めて単純であるために、現在では様々なデバイスを用いた波形整形器が考案され、様々な応用に展開されている。この場合、位相を制御するために用いられるデバイスの耐光性、位相変調不均一性、平面度等を厳密に考慮する必要がある。本章では、光アドレス型空間光変調器を用いることによって、空間光変調器の諸特性を厳密に考慮した上で、小型でありながら高い波長分解能を有する波形整形器を開発した。特に、高強度フェムト秒レーザーを用いる場合には、入射光強度に依存した位相シフトあるいはデバイスの損傷等が懸念される。我々は、空間光変調器の耐光性を評価すると共に、その結果を踏まえてデバイスを改良することによって、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する光アドレス型空間光変調器ならびに波形整形器を開発した。また、任意の反応効率を制御信号として波形整形器にフィードバックする閉ループ制御系を構築することにより、その反応を最適化するパルス波形を自動的に生成することが可能な適応型光パルス反応制御装置 (RECAPS) を開発した。また、本装置を様々な応用分野に展開することで、時間的な位相の制御 (波形整形) の有用性を示した。

次章 (第4章) では、空間的な位相の制御 (光波面制御) を実現するために、LCOS 型空間光変調器の耐光性の向上を試みた。さらに、光波面制御を行うための光学系をモジュール化すると共に、透明材料の内部加工ならびに球面収差の補正に適用した結果について述べる。

3.8. 第3章の参考文献

- 1) E. D. Potter, J. L. Herek, S. Pedersen, Q. Liu, and A. H. Zewail; "Femtosecond laser control of a chemical reaction", *Nature* **355**, 66-68 (1992).
- 2) Richard N. Zare; "Laser control of chemical reactions ", *Science*, **279**, 1875-1879 (1998).
- 3) Paul Brumer, and Moshe Shapiro; "Laser control of molecular processes", *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **43**, 257-282 (1992).
- 4) Paul Brumer, and Moshe Shapiro; "Laser control of chemical reactions", *Scientific American*, 34 (1995).
- 5) A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber; "Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses", *Science*, **282**, 919-922 (1998).
- 6) I. Brener; "Coherent control of terahertz emission and carrier populations in semiconductor heterostructures", *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**, 2457-2469 (1994).
- 7) A. M. Weiner, J. P. Heritage, and E. M. Kirschner, "High-resolution femtosecond pulse shaping" *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**, 1563-1572 (1988).
- 8) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 吉田成浩, 伊ヶ崎泰則, 細田誠; 「高強度レーザー用反射型波形整形システムと周波数分解光ゲート法によるその特性評価」, *レーザー研究*, **28**, 511-515 (2000).
- 9) A. M. Weiner; "Femtosecond pulse shaping using apatial light modulator", *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 1929-1960 (2000).
- 10) D. Meshulach, D. Yelin, and Y. Silberberg, "Adaptive real-time femtosecond pulse shaping," *J. Opt. Soc. Am. B*, **15**, 1615-1619 (1998).
- 11) T. Brixner, M. Strehle, and G. Gerber, "Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses," *Appl. Phys. B*, **68**, 281-284 (1999).
- 12) Taro Ando, Tsuneyuki Urakami, Haruyasu Itoh, and Yutaka Tsuchiya; "Optimization of resonant two-photon absorption with adaptive quantum control", *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 4265-4268 (2002).
- 13) Rabitz, H., deVivie-Riedle, R., Motzkus, M. & Kompa, K.-L.; "Whither the future of controlling quantum phenomena?", *Science*, **288**, 824-828 (2000).
- 14) Naohisa Mukohzaka, Narihiro Yoshida, Haruyoshi Toyoda, Yuji Kobayashi, and Tsutomu Hara; "Diffraction efficiency analysis of a parallel-aligned nematic-liquid-crystal spatial light modulator," *Appl. Opt.*, **33**, 2804-2811 (1994).
- 15) Y. Igasaki, F. Li, N. Yoshida, H. Toyoda, T. Inoue, N. Mukohzaka, Y. Kobayashi and T. Hara; "Hlgh efficiency electrically addressable phase-only spatial light modulator", *Opt. Rev.*, **6**, 339-344 (1999).
- 16) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 青島紳一郎, 土屋裕; 「高強度波形整形パルス光の加工への応用」, *電気学会 光・量子デバイス研究会資料*, OQD-03-9 (2003).
- 17) D. Strickland and G. Mourou; "Compression of amplified chirped optical pulses," *Opt. Commun.*, **56**, 219-221 (1985).
- 18) Akira Suda, Yu Oishi, Keigo Nagasaka, Pengqian Wang, and Katsumi Midorikawa; "A spatial light modulator based on fused-silica plates for adaptive feedback control of intense femtosecond laser pulses", *Opt. Express*, **9**, 2-6 (2001)
- 19) Don A. Gregory, Richard D. Juday, Jeffrey Sampsell, Richard Gale, R. W. Cohn, and Stanley E.

- Monroe, Jr., "Optical characteristics of a deformable-mirror spatial light modulator", *Opt. Lett.*, **13**, 10-12 (1988).
- 20) D. Psaltis, W. E. Ross, R. H. Anderson; "Two-dimensional magneto-optic spatial light modulator for signal processing", *Opt. Eng.*, **22**, 485-490 (1983).
 - 21) Marc M. Wefers and Keith A. Nelson; "Generation of high-fidelity programmable ultrafast optical waveforms", *Opt. Lett.*, **20**, 1047-1049 (1995).
 - 22) J. Glückstad, L. Lading, H. Toyoda, and T. Hara; "Lossless light projection", *Opt. Lett.*, **22**, 1373-1375 (1997).
 - 23) R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbugel, B. A. Richman, and D. J. Kane, "Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating", *Rev. Sci. Instrum.*, **68**, 3277-3296 (1997).
 - 24) L. Lepetit, G. Chériaux, and M. Joffre; "Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy", *J. Opt. Soc. Am. B*, **12**, 2467-2474 (1995).
 - 25) David N. Fittinghoff, Jason L. Bowie, John N. Sweetser, Richard T. Jennings, Marco A. Krumbügel, Kenneth W. DeLong, Rick Trebino, and Ian A. Walmsley, "Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses", *Opt. Lett.*, **21**, 884-886 (1996).
 - 26) Frank Wyrowski and Olof Bryngdahl; "Iterative Fourier-transform algorithm applied to computer holography", *J. Opt. Soc. Am. A*, **5**, 1058-1065 (1988).
 - 27) Baltuska, A. Pshenichnikov, M.S. Wiersma, D.A.; "Second-harmonic generation frequency-resolved optical gating in the single-cycle regime", *IEEE J. Quantum. Electron.* **35**, 459-478 (1999).
 - 28) Abe Offner; "Unit power imaging catoptric", U.S. patent 3748015 (1990).
 - 29) S. Kirkpatrick, C. D. Gelatt Jr., and M. P. Vecchi; "Optimization by simulated annealing", *Science*, **220**, 671 - 680 (1983).
 - 30) L.B. Booker, D.E. Goldberg and J.H. Holland; "Classifier systems and genetic algorithms", *Artificial Intelligence*, **40**, 235-282 (1989).
 - 31) Haruyasu Itoh, Tsuneyuki Urakami, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; "Femtosecond pulse delivery through long multimode fiber using adaptive pulse synthesis", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, 5761-5763 (2006).
 - 32) M. Hirasawa, N. Nakagawa, K. Yamamoto, R. Morita, H. Shigekawa, and M. Yamashita, "Sensitivity improvement of spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction for the characterization of low-intensity femtosecond pulses", *Appl. Phys. B*, **74**, S225-S229 (2002).
 - 33) A. Shirakawa, I. Sakane, M. Takasaka, T. Kobayashi, "Sub-5-fs visible pulse generation by pulse-front-matched noncollinear optical parametric generation", *Appl. Phys. Lett.*, **74**, 2268-2270 (1999).
 - 34) K. Kato, "Second-harmonic generation to 2048 a in β -BaB₂O₄", *J. Quantum Electron.*, **QE-22**, 1013-1014 (1986).
 - 35) Akira Shirakawa, and Takayoshi Kobayashi; "Noncollinear phase- and group-velocity matching of optical parametric amplifier for ultrashort pulse generation", *IEICE Trans. Electron*, **E81-C**, 246-253 (1998).

第4章 空間光変調器を用いた光波面制御

4.1. まえがき

近年、レーザー加工¹⁾、顕微鏡²⁾、光ピンセット³⁾、眼底カメラ⁴⁾などの分野において、光波形成形、光波面補償等を可能とする空間光変調器の需要が高まりつつある。一方、ナノテクノロジー分野において、光集積回路向けの微細加工技術として、高強度フェムト秒レーザーによる透明材料の内部局所加工が注目され、光導波路⁵⁾、光メモリー⁶⁾、回折格子⁷⁾、ビームスプリッター⁸⁾、光カプラー⁹⁾等の光学素子へと展開されつつある。こうした微細加工では、レーザー光を1点に集光して材料を走査する「1点走査加工」が行われていた。ところが、「1点走査加工」においては、加工品質を維持するために光密度が制限され、これに伴って加工速度も制限されていた。こうした中、ホログラムを用いた波面制御技術を用いた多点形成技術が注目されるようになった。集光点を多点とすることで、レーザーの有するエネルギーを余すことなく使用することが可能となるために、加工速度を飛躍的に向上させることが可能となるためである。さらに、空間光変調器に計算機ホログラム¹⁰⁾を表示する手法では、コンピュータ制御によって任意の場所に任意の集光形状を形成することが可能となるため、柔軟性に富んだ加工が可能となる。

一方、対物レンズにより透明試料内部にレーザー光を集光する内部加工や顕微観察では、異なる屈折率を有する材料の境界面における屈折に伴って球面収差が発生し、これが加工精度を劣化させる要因となる。特に、対物レンズの開口数が多いほど、あるいは加工位置が深いほど球面収差によって集光部が肥大化するため、その影響が顕著となる。非線形過程を用いるフェムト秒レーザー内部加工においては加工精度を悪化させる要因となり、顕微観察においては解像度を劣化させる要因となる。そのため、空間光変調器を用いてレーザー光の波面を制御することによって球面収差を補正しようという試みがなされ^{11,12)}、レーザー加工等の産業応用へと展開されつつある。

しかし、光の波面を制御するためには、ユーザーが専用の光学系を構築する必要があるために光学系が煩雑になるばかりで無く、綿密な光学調整を行うための熟練した技術が要求された。これが、波面制御技術の産業界への展開を阻んでいた。

本研究では、LCOS型空間光変調器¹³⁾の高強度フェムト秒レーザー光に対する耐光性を向上すると共に^{14,15)}、光学系をモジュール化することで、レーザー加工における波面制御技術の実用化を図った。この際、計算機ホログラムを用いた「3次元一括多点形成技術」を開発し、この技術を透明材料の内部加工に適用することで加工効率の向上を図った。また、光線を逆追跡することで球面収差を補正するパターンを算出する手法を考案し、この手法を用いることによって球面収差の精密な補正を試みた¹⁶⁾。以下ではLCOS型空間光変調器を用いた波面制御技術の詳細を述べる。

4.2. 高強度フェムト秒レーザー用LCOS型空間光変調器の開発

4.2.1. はじめに

図 4-1 に LCOS 型空間光変調器の構造(断面)を示す。アドレス部は、シリコン基板に形成された CMOS アクティブマトリクス回路上に画素電極が配置されている。画素電極部の画素数は 800×600 画素(SVGA)、画素ピッチは 20 μm 、開口率は 95 %である。光変調部は、シリコン基板と、対向するガラス基板の間に保持されたネマチック液晶層から成り、光アドレス型空間光変調器と同様に液晶分子は基板に平行に配向されている。コンピューターのグラフィックスボードからの出力画像(DVI)が専用のコントローラーを介して、CMOS アクティブマトリクス回路に書き込まれ、その書き込み信号(8 bit = 256 階調)の強度に応じて、画素電極と対向するガラス基板上に形成された透明電極との間の電圧が制御される。この電圧変化に伴って液晶分子が傾き、屈折率が変化することにより、読み出し光に位相変化が与えられる。LCOS 型空間光変調器では、書き込み画像の信号レベルの増加に従って位相変調度が線形に増加し、 2π 相当の線形な位相変調量が得られる。さらに大きい位相変調が必要とされる場合は、所望の位相量を 2π で折り返し表示することにより実現される。また、入射光強度に対する0次光回折光強度の比で表される光利用効率が 90 %以上にまで高められている。

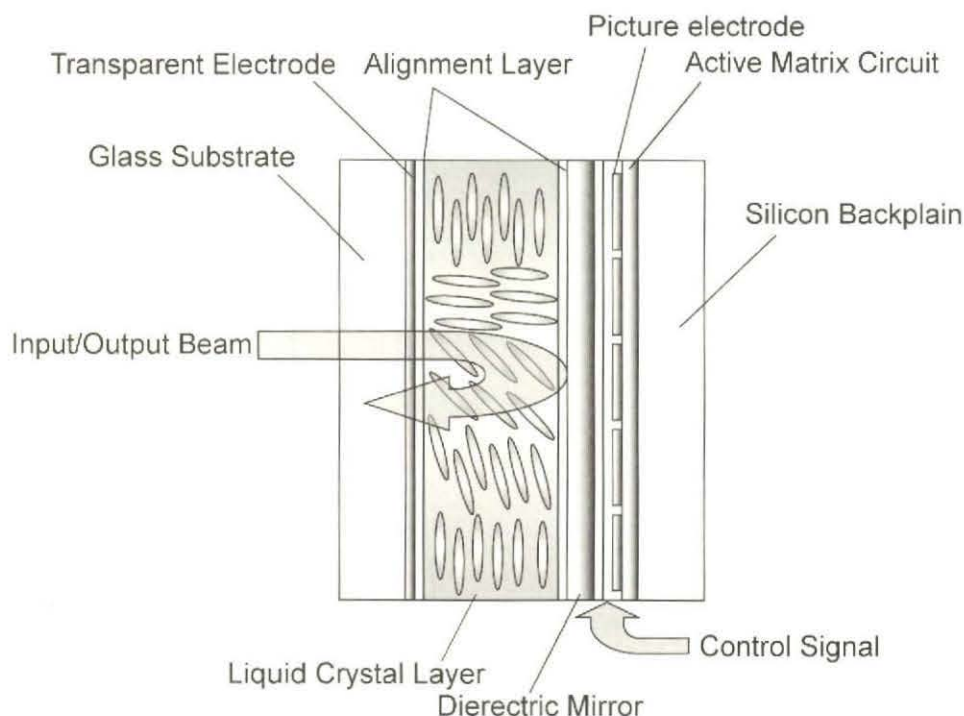


図 4-1 LCOS 型空間光変調器の構造

一方、LCOS 型空間光変調器をフェムト秒レーザー加工へ応用する場合には、LCOS 型空間光変調器の耐光性が問題となる。波形整形器に用いられた光アドレス型空間光変調器の開口部が 20 × 20 mm であったのに対し、LCOS 型空間光変調器の開口部は 16 × 12 mm と小型化が図られている。その反面、入射可能ビーム径が 20 mm から 12 mm(面積比 70 %)に縮小されるため、光アドレス型空

間光変調器と同程度の最大入射光強度を維持するためにはデバイスの耐光性を向上させる必要がある。次項では、LCOS 型空間光変調器の耐光性向上の取り組みと、その成果を述べる。

4.2.2. LCOS型空間光変調器の破壊しきい値の向上

LCOS 型空間光変調器の高強度フェムト秒レーザーによる破壊においては、レーザー光を長時間照射した場合に発生する液晶層における蓄積熱に依存した熱的破壊が支配的であると考えられる。この場合、液晶の熔融に始まり、最終的に画素電極の破壊に至る。前記蓄積熱は、レーザーの発振波長域における光吸収に伴い発生するものと、フェムト秒レーザー光特有の効果である多光子吸収に伴い発生するものが存在する。特に、高強度フェムト秒レーザーとして広く用いられている Ti:sapphire レーザーは 800 nm 付近で発振・増幅するものが多く、2光子吸収に伴う吸収波長域である 400 nm 付近では液晶の吸収率が急激に増加し、素子破壊を生じる要因となる。したがって、高強度フェムト秒レーザーに対する LCOS 型空間光変調器の耐光性を向上させるためには、2光子吸収の効果を低減させることが重要となる。特に、図 4-2 に示すように反射側液晶層の境界面において入射光と反射光とが重畳され、光強度が増大する領域が発生するため、デバイスの破壊はこの部分での液晶熔融が支配的となる。

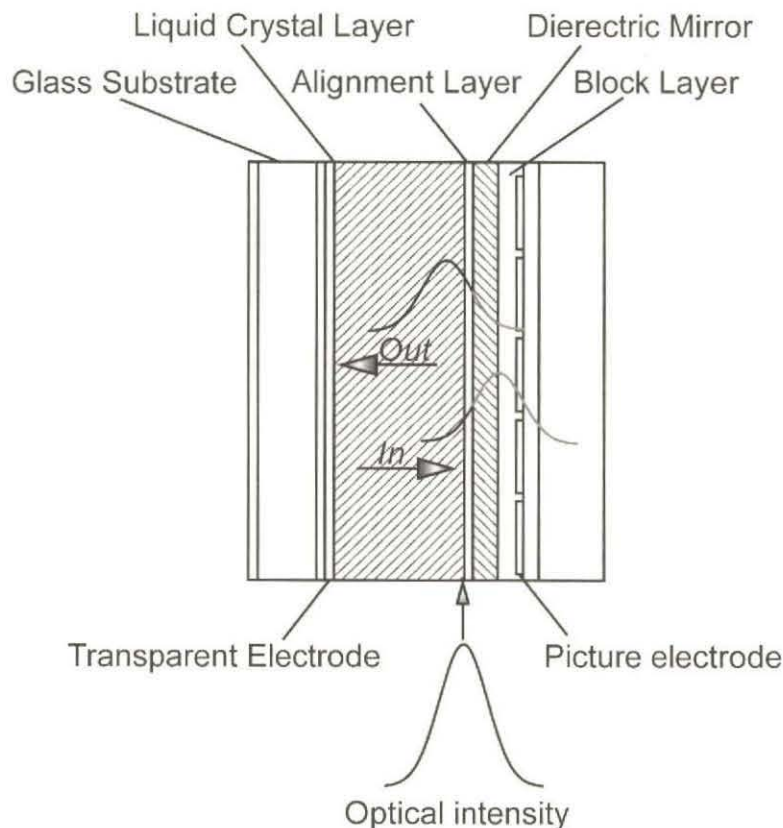


図 4-2 LCOS 型空間光変調器の反射側液晶界面における光強度増加の概念図

この領域における光強度を低減させるために LCOS 型空間光変調器内部に位相シフト層を導入した。位相シフト層の導入によって、図 4-3 に示すように入射光と反射光との位相がシフトする。その結

果、液晶界面における入射光と反射光との重複状態が緩和され、光強度が低減される。光強度が低減することにより2光子吸収に伴う光吸収が低減され、これに伴って素子の耐光性が向上する。さらに、アルミ画素電極上に緻密な誘電体多層膜鏡を形成することで、LCOS 型空間光変調器を構成する反射層の反射率向上を実現した。これにより、反射層後段に配置されるアクティブマトリクス回路等に到達する光量が減少し、回路に蓄積される熱量が緩和されたことも耐光性向上の要因の一つとなる。

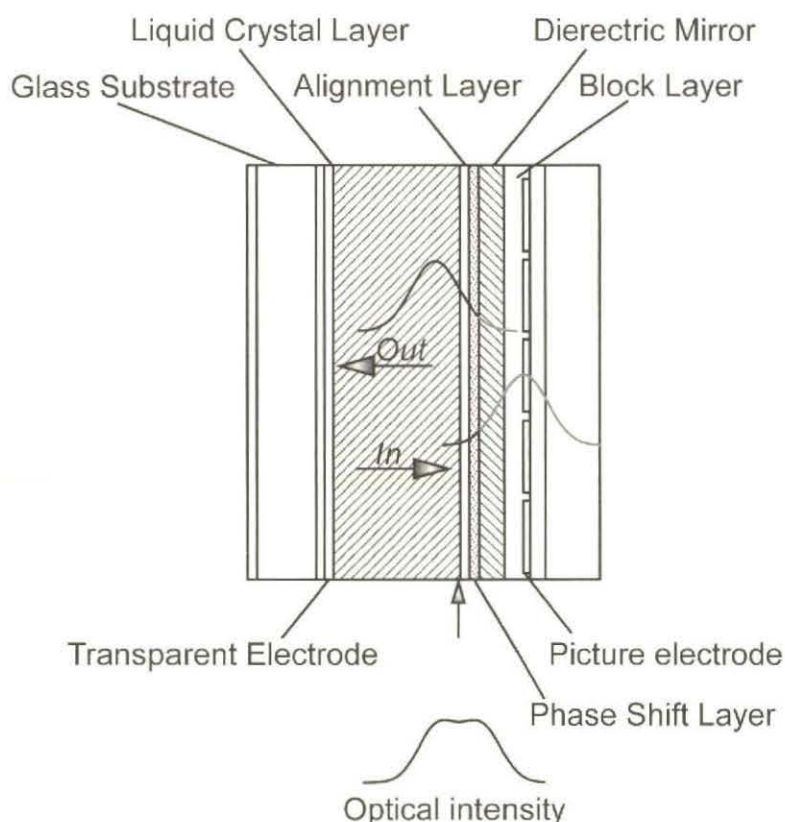


図 4-3 位相シフト層導入による反射側液晶界面における光強度低減の概念図

上記位相シフト層の効果を確認するために、図 4-4 に示す構成により従来の LCOS 型空間光変調器と、位相シフト層が導入された LCOS 型空間光変調器の耐光性を評価した。レーザーには、Ti:sapphire 再生増幅器(コヒーレント社、Legend-USP、パルス幅 50 fs、中心波長 800 nm、繰返し周波数 1 kHz)を用いた。平凸レンズ(合成石英、f1000)を用いて前記再生増幅フェムト秒レーザー光を集光し、LCOS 型空間光変調器をレンズ側から集光点方向へと移動することで LCOS 型空間光変調器上での単位面積当たりの強度を制御した。様々な光強度の条件で再生増幅フェムト秒レーザー光を照射し、目視で損傷が確認される直前の位置での光強度を損傷しきい値とした。尚、サンプル上でのビーム径を計測する場合には、光路上に片面 AR コートが施されたガラス板を配置して、集光レンズから結像光学系における観測点(スクリーン)までの距離が、レンズからサンプルまでの距離と等しくなる状態で、ビーム径を計測した(損傷しきい値を計測する場合にはガラス板を取り除いた)。尚、ビーム径を計測した結果に対してフィッティングを行うことで光路上の任意の位置における光強度を算出した。また、LCOS 型空間光変調器上での光強度は、ISO11254 に準拠して下記過程に基づいて算出した。

強度がピーク強度の $1/e^2$ の強度となる半径を ω_2 、 P をビームの全パワー、 r をビーム断面における中心からの距離とする。この場合、ガウシアンTEM₀₀ビームの放射強度分布は

$$I(r) = \frac{2P}{\pi \times \omega_2^2} \times e^{-2r^2/\omega_2^2} \quad (4-1)$$

と表される。損傷しきい値付近における光学素子の損傷はガウス分布の中心で発生するため、中央のエネルギー密度で評価する。中央のエネルギー密度 I_2 は、全パワーをビーム径 ($1/e^2$ の強度の半径) をもとに計算した面積で割った平均エネルギー密度の2倍に相当し

$$I_2 = \frac{2P}{\pi \times \omega_2^2} \quad (4-2)$$

により表される。

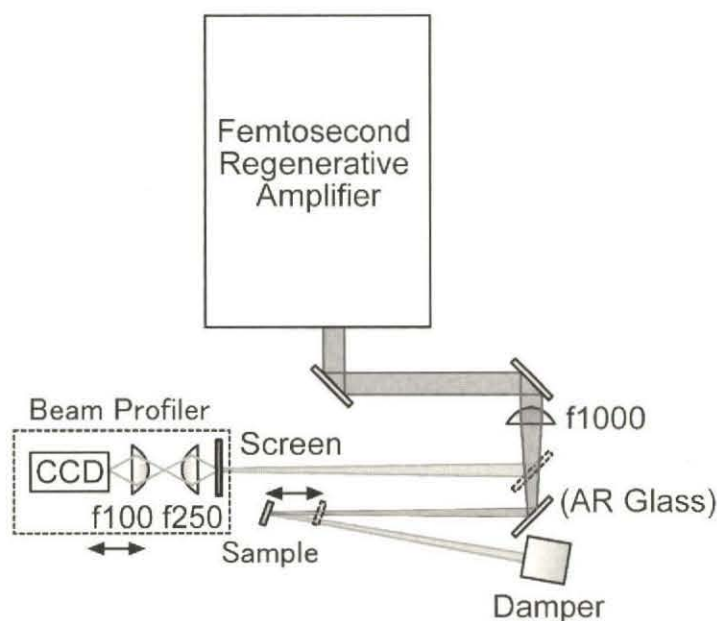


図 4-4 耐光性評価のための光学系

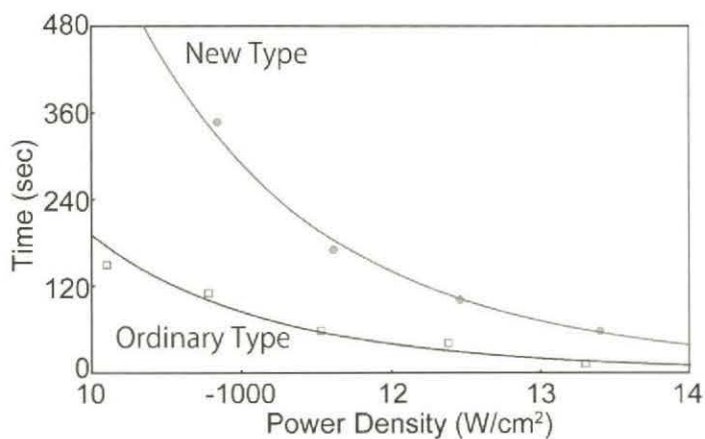


図 4-5 LCOS 型空間光変調器の耐光試験結果

従来の構成の LCOS 型空間光変調器のしきい値と、位相シフト層を導入した LCOS 型空間光変調

器のしきい値を計測した結果を図4-5に示す。これより、位相シフト層を導入(New Type)することにより、LCOS型空間光変調器の耐光性が向上することが確認された。さらに、損傷しきい値が光強度に依存すると同時に、照射時間にも依存することが明らかになった。この点について以下に考察する。図4-6に損傷開始時、および照射を継続した場合のLCOS型空間光変調器の状態を示す。これより、レーザー光が長時間照射されることによって蓄積熱が発生し、この蓄積熱によって液晶が溶融し、最終的にデバイスが破壊されることが明らかになった。

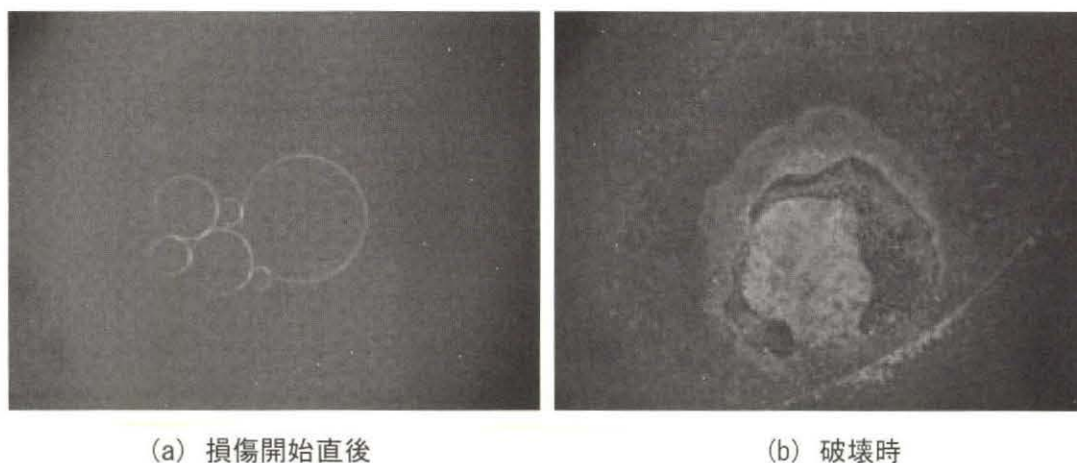


図4-6 損傷試験時のLCOS型空間光変調器の状態

4.2.3. LCOS型空間光変調器の動作しきい値の向上

位相シフト層の導入によって、LCOS型空間光変調器の破壊しきい値が向上したが、光波面を制御する上では、位相変調特性が変化しないことも重要な要素である。照射光強度に依存する位相変調特性の変化は、蓄積熱による液晶特性の変化であり、その蓄積熱の発生量は多光子吸収に伴い発生する光吸収に大きく依存する。その光吸収は使用する液晶材料の特性に依存するため、様々な液晶材料に対して動作しきい値を評価することで液晶の最適化を図った。

位相変調特性の変化を確認するためには、レーザー光照射前におけるLCOS型空間光変調器の反射光の波面と、照射後における反射光の波面とを比較すればよい。例えば、耐光性(動作しきい値)の低い素材を用いたLCOS型空間光変調器に、高強度フェムト秒レーザー光(パルス幅50 fs、中心波長800 nm、繰返し1 kHz、平均強度2.7 W、ビーム直径($1/e^2$)11 mm)を連続して10時間照射した場合の光波面の変化を観測したところ、図4-7に示すようにレーザー光が照射された中央部分の波面変化が確認された。すなわち、レーザー光が照射された部分の位相変調特性が変化したために、所望の波面制御を行えないことになる。一方、様々な液晶材料を評価した中で最も動作しきい値が高い液晶材料では、上記照射実験においても位相特性が変化しないことが確認された。この場合のLCOS型空間光変調器上での光強度は 5 W/cm^2 であった。すなわち、位相シフト層の導入、誘電体多層膜鏡の反射率向上、ならびに液晶材料の最適化を図ることにより、 5 W/cm^2 の耐光性を有する素子の開発に成功した。

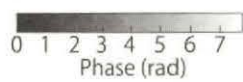


図 4-7 位相シフト観測結果

4.3. 光波面制御モジュールの開発

4.3.1. はじめに

これまでに述べてきた空間光変調器は、主にデバイス単体として販売されているために、空間光変調器を用いて波面制御を行う場合には、ユーザーが専用の光学系を構築する必要があった。この場合、光学系が煩雑になるばかりで無く、綿密な光学調整を行うための熟練した技術が要求されるため、空間光変調器は主に基礎研究分野において用いられてきた。そこで、我々は空間光変調器を産業用途へ適用させるために、LCOS 型空間光変調器の性能を最大限に活用し、かつ顕微鏡システムや加工システム等の既存の光学システムへの導入を容易にする光波面制御モジュールを開発した。以下では、開発した光波面制御モジュールの詳細を述べる。

4.3.2. 直進型光波面制御のジュールの開発

開発した光波面制御モジュール(直進型)の概念図を図 4-8 に示す。ビームスプリッターにより合成された被変調光と照明光は、プリズム型の誘電体多層膜鏡により LCOS 型空間光変調器へと導光される。この際、被変調光(レーザー光)の偏光を LCOS 型空間光変調器の配向方向(水平)とし、照明光の偏光を LCOS 型空間光変調器の液晶分子の配向方向に対して垂直な直線偏光とすることにより、LCOS 型空間光変調器によりレーザー光は変調されるが照明光は変調されない構成とすることが可能になる。照明光と LCOS 型空間光変調器により変調されたレーザー光は、プリズム型の誘電体多層膜鏡により再び入射光の光軸上に戻される。これにより、装置の小型化、安定性・操作性の向上が実現されるだけでなく、光波面制御モジュールを既存の光学系の光軸上に配置するだけで、容易に波面制御を行うことが可能となる。

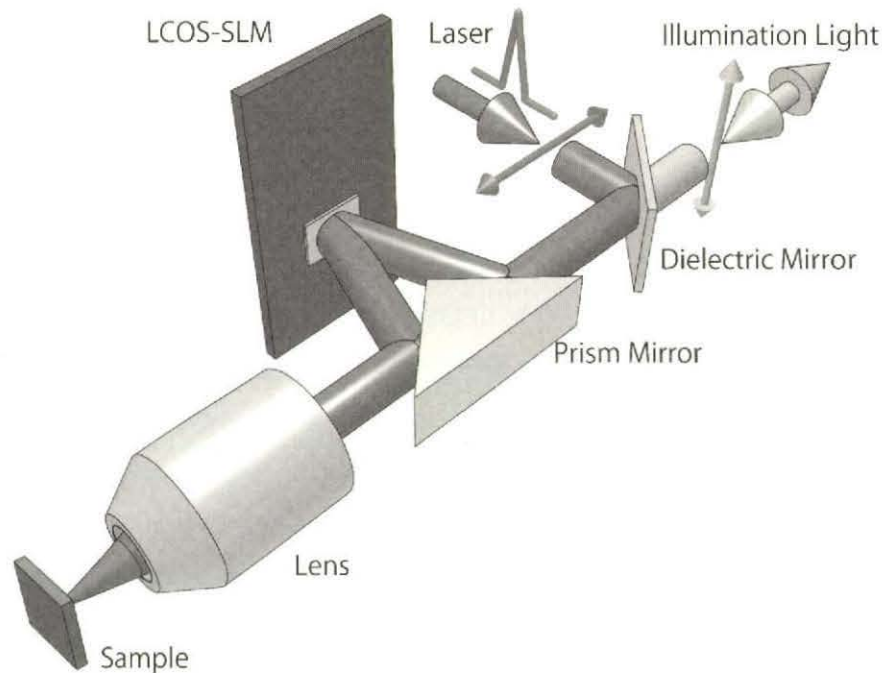


図 4-8 光波面制御モジュール(直進型)の概念図

上記概念に基づいて設計された光波面制御モジュールの概観を図 4-9 に示す。モジュールの入出射部には C マウントネジが施されているため、顕微鏡や加工機等に容易に組み込むことが可能であるだけでなく、市販の光学部品、あるいは CCD カメラや分光器といった光検出器等を容易に取り付けられる構造となっているため、上記部品を取り付けるだけで容易に光学系を構築できるという利点を有する。

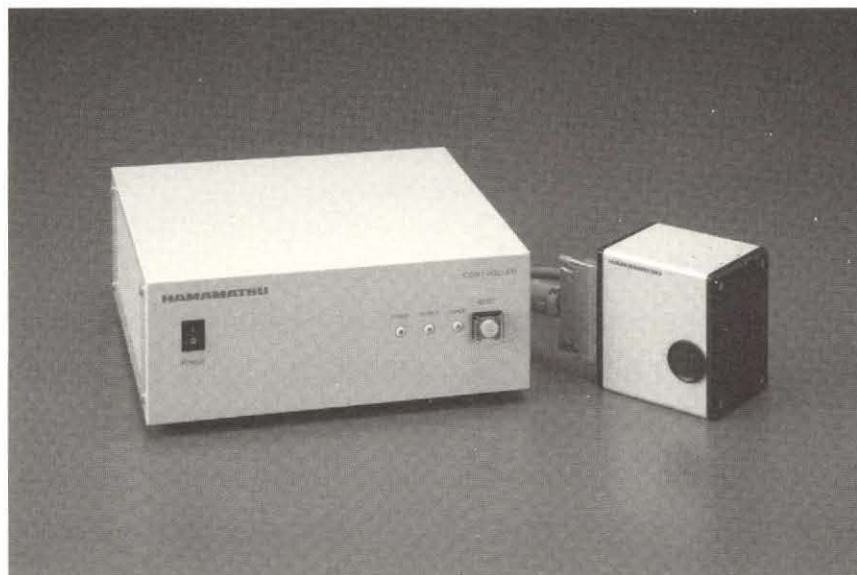


図 4-9 光波面制御モジュールの概観

直進型の光波面制御モジュールは、照明光がレーザー光と共に LCOS 型空間光変調器を伝播する。そのため、照明光が LCOS 型空間光変調器で変調されないようにその偏光を LCOS 型空間光変調器の液晶分子の配向方向に対して垂直となるようにする必要がある。通常、照明光にはランプ等のランダム偏光光源が用いられるために、垂直偏光とするためには偏光子により一方向の偏光だけを抜き出す必要があるが、この際に光量の 1/2 が無駄になるとともに装置内部に熱を発生させ、光軸を歪ませる要因となる。また、偏光子の波長帯域も有限であるため、光学フィルター等を用いて照明光の帯域を偏光子の帯域にあわせる必要がある。また、本研究で開発した高強度レーザー用 LCOS 型空間光変調器では、LCOS 型空間光変調器の耐光性を向上させるために、レーザー波長の帯域に合わせた誘電体多層膜鏡が用いられる。そのため、LCOS 型空間光変調器を伝播する照明光の波長成分のうち、レーザー光の波長帯域以外の成分が減光されてしまう。また、レーザー光と照明光とを同軸上に合成するために、モジュール外部にビームスプリッターを配置する必要があるため、最終的に必要とされる光学部品の点数が増加すると共に、システムが煩雑になる。さらに、サンプルの観測は、サンプルからの散乱光を観測することになるため、その観測光には LCOS 型空間光変調器の液晶分子の配向方向と同じ偏光の成分が含まれ、この成分が LCOS 型空間光変調器で変調されることにより観測光学系の解像度が劣化してしまう。

そこで、プリズム型誘電体多層膜鏡の反射特性を改良することにより、照明光が LCOS 型空間光変調器を伝播しない構成を考案した。この時の光波面制御モジュールの概念を図 4-10 に示す。

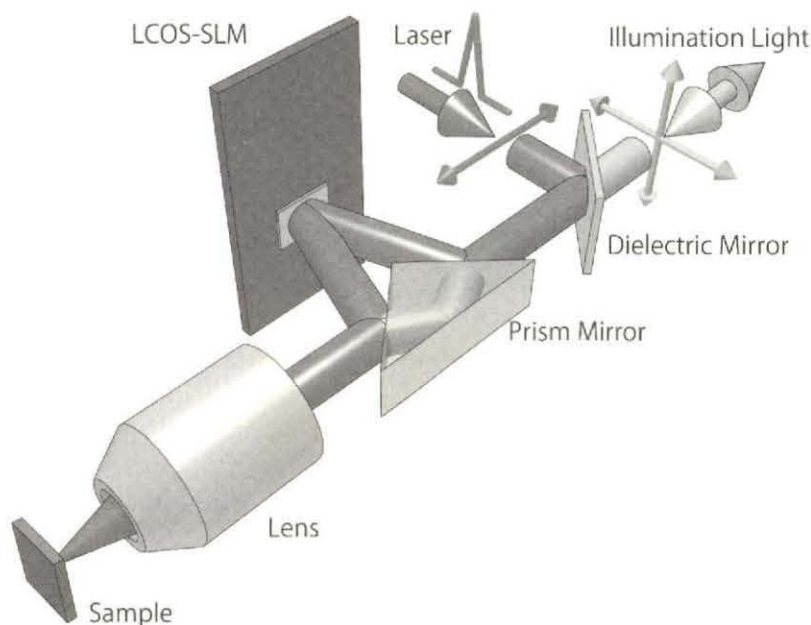


図 4-10 照明光が LCOS 型空間光変調器を伝播しない光波面制御モジュールの概念図

プリズム型ミラーに用いられた誘電体多層膜鏡の分光特性を図4-11に示す。レーザー光の波長帯域(800±25 nm)は全反射、照明光の帯域(500～700 nm)は透過する特性とすることで、照明光はプリズム内部に入射した後にプリズム底面で全反射され、その後プリズム外に出射された後に再びレーザー光と同じ光軸上を伝播することになる。また、サンプルからの観測光も同じ光路を伝播するために照明光ならびに観測光がLCOS型空間光変調器で変調されることが無い。その結果、観測光学系の解像度が維持され鮮明な画像を得ることが可能となった。また、照明光の偏光を制御する必要がないと共にLCOS型空間光変調器の反射特性の影響を受けないために光量ロスが生じない利点を有する。

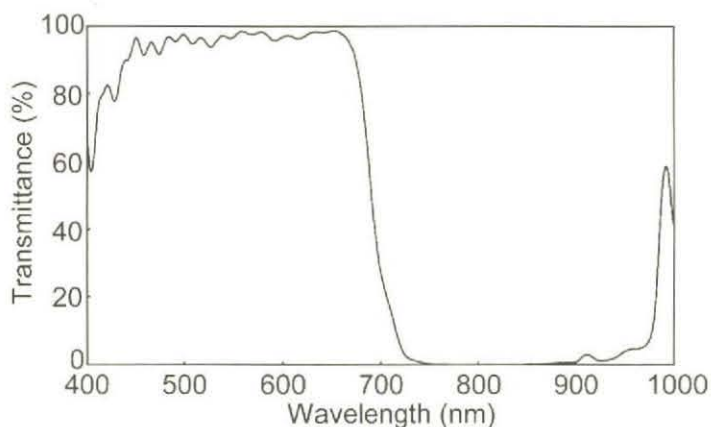


図4-11 プリズム型誘電体多層膜鏡の反射特性

図4-12にプリズム端面で反射するタイプのモジュールを用いた場合の観察像と、プリズム内部を伝播するタイプのモジュールを用いてテストチャートを観察した結果を示す。前者の場合、誘電体多層膜鏡の影響を受けて画像全体が赤みを帯びていると共に、エッジ部分がぼやけている。これに対して、後者の場合には鮮明な画像が得られている。

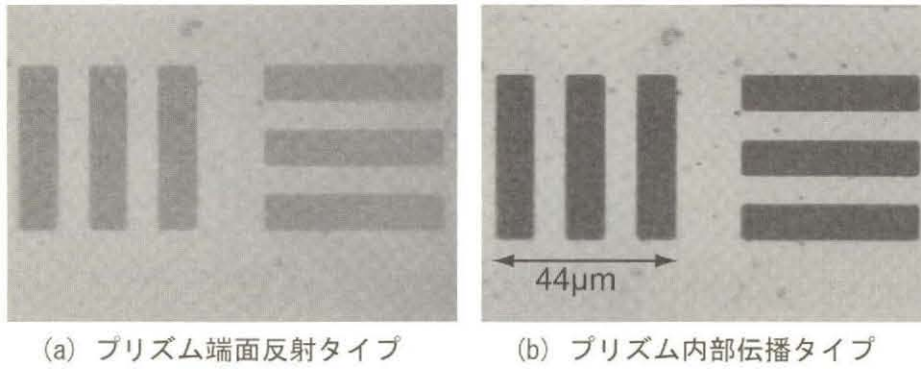


図 4-12 テストチャート観察結果

4.3.3. 90° 反射型光波面制御のジュールの開発

これまでに述べてきた直進型光波面制御モジュールは、既存の光軸上に配置するだけで光学系に改良を施す事無く波面制御を可能とする。一方、光学系に用いられている 90°反射鏡を光波面制御モジュールに置き換えることで、既存のシステムに大きな改良点を施さずに波面制御を行う必要がある場合も想定される。そこで、直進型光波面制御モジュール同様に汎用性に優れた 90°反射型の光波面制御モジュールの開発を図った。

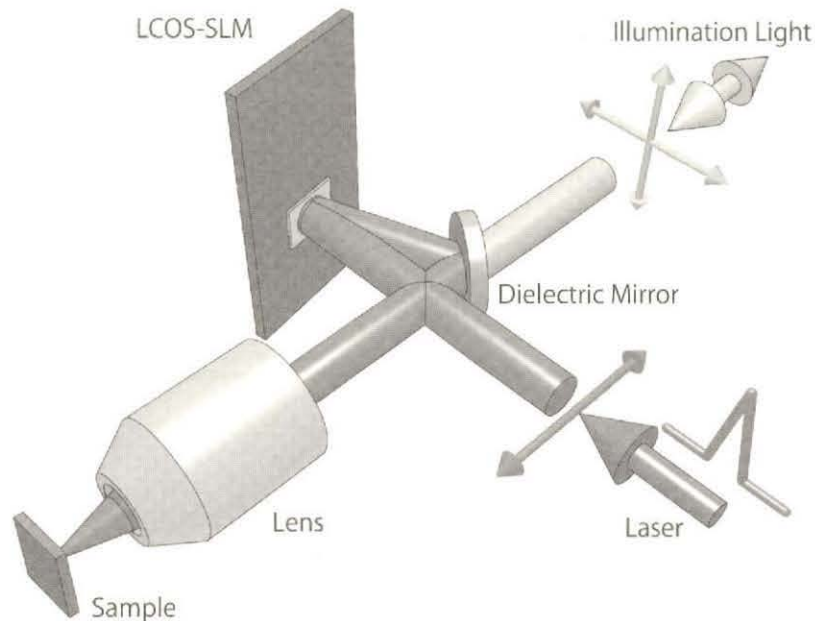


図 4-13 90° 反射型の光波面制御モジュールの概念図

図 4-13 は開発した 90°反射型光波面制御モジュールの概念図である。90°反射型光波面制御モジュールでは、被変調光と照明光とがモジュール内部に配置されたビームスプリッターにより合成されるため、使用上は 90°反射鏡と同様な取り扱いとなるため、操作性が向上すると同時にシステムの簡略化が図られる。また、照明光が LCOS 型空間光変調器を伝播しないため、照明光がプリズム内部を伝播する直進型光波面制御モジュールと同様に鮮明な観測像が得られる特徴を有する。

4.4. 結像モジュールの開発

4.4.1. はじめに

対物レンズを用いて光を集光する際に入射光の波面を制御する場合、厳密な波面制御を行うためには位相面と対物レンズの射出瞳面とを一致させる必要がある。ところが、空間光位相変調器を用いて波面制御を行う場合には、対物レンズの射出瞳面上に空間光変調器を配置することが困難である。この場合、リレーレンズ系を用いて空間光変調器の変調面を対物レンズの射出瞳面に結像する必要がある。さらに、空間光変調器の有効領域を有効に利用するためには空間光変調器の変調面を対物レンズの射出瞳面に縮小投影する必要がある。これまでに述べてきた光波面制御モジュールは、LCOS 型空間光変調器からモジュール出射部までの距離を約 70 mm に抑えることで上記影響を低減させていたが、後述する球面収差補正や鮮鋭なホログラム再生像を得るためには LCOS 型空間光変調器の変調面を対物レンズの射出瞳面に縮小結像するための光学系が必要になる。そこで、本研究では縮小結像光学系をモジュール化すると共に、光波面制御モジュールとの結合により高精度な波面制御を行えるユニットを開発した。

4.4.2. 結像モジュールの詳細ならびに光波面制御モジュールとの結合

図 4-14 に結像モジュールの概念図を示す。LCOS 型空間光変調器の有効領域を対物レンズの射出瞳に縮小投影する際の縮小率に応じてリレーレンズの焦点距離を選択する必要があるが、本構成では LCOS 型空間光変調器への入射光の最大ビーム外径 12 mm を射出瞳径 6 mm の対物レンズに結像することを想定して、レンズの焦点距離を 200 mm および 100 mm とした。また、8 枚の折り返し誘電体多層膜鏡を用いることによりモジュールの小型化を図った。ただし、レーザー光によって誘電体多層膜鏡が破壊されないように、焦点位置が誘電体多層膜鏡から離れた位置となるように注意する必要がある。また、本モジュールの入射部および出射部に施された C マウントにより、光波面制御モジュールと直接結合することが可能となる。

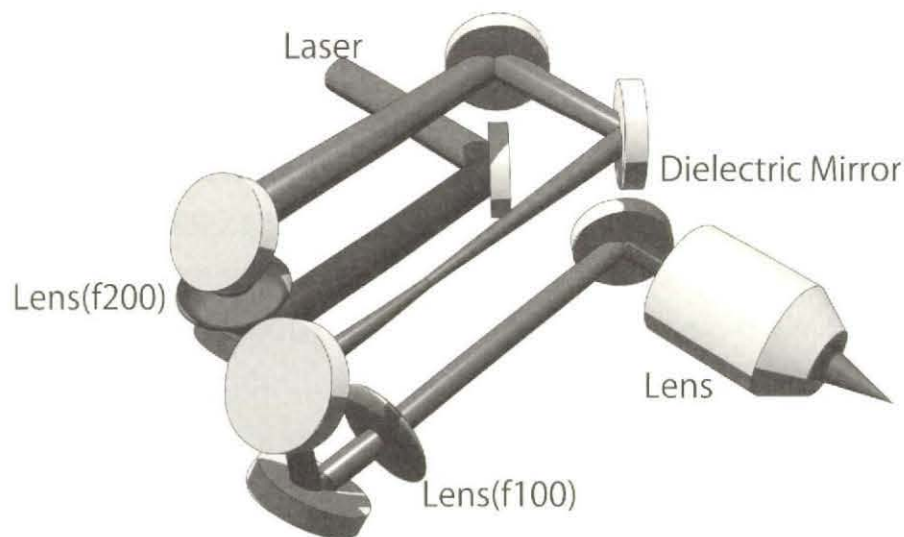


図 4-14 結像モジュールの概念図

4.5. 光波面制御技術による3次元同時多点形成

4.5.1. はじめに

ホログラム技術はレーザー光を任意の形状に形成することを可能とするが、従来のガラスホログラムを用いた場合には所望の形状に応じたガラスホログラムを作成する必要があった。これに対し、空間光変調器はコンピュータ制御による書き換え可能なデバイスであるため、コンピュータにより作成された計算機ホログラム(Computer Generated Hologram, CGH)を表示することで任意の形状を容易に形成することが可能となる。また、計算機ホログラムを書き換えることにより、その形状を随意書き換えることが可能であるため、光情報処理、レーザー加工、光ピンセット、あるいは顕微観察に有用なデバイスである。特にフェムト秒レーザー加工においては、ホログラム技術によって集光点を多点とすることによって加工速度の向上が図られる。また、ホログラム技術を用いた従来の多点形成においては、同一平面内に多点が形成されていたために、立体的な加工を行う場合には、試料を移動させると共にホログラムを書き換える必要があった。これに対して、本研究では1枚の計算機ホログラムで立体的に多点を形成させる技術を開発すると共に、作成された計算機ホログラムをレーザー加工に適用することで加工速度の向上を図った。

4.5.2. 光波面制御モジュールを用いた3次元一括多点加工

図4-15に、位相ホログラムを用いた光波面制御技術により任意のビーム形状を生成する光波形成の概念図を示す。空間的にガウシアン強度分布を有するレーザービームの空間パターン形状を、空間光変調器に書き込まれる計算機ホログラムによって、任意の出力パターン(a~d)へとリアルタイムに順次変化させることができる(A→a, B→b, C→c, D→d)。最下部の出力パターン(d)の例では、空間光変調器によって一本の光ビームが190本の光ビーム(「HPK」の文字)に分岐されていることになる。多点を形成できるホログラムの技術は、特にレーザー加工において効力を発揮する。すなわち、従来のレーザー加工においては、レーザー光を1点に集光した状態で加工対象物あるいはレーザー集光系を移動させることにより加工を行う1点走査加工が行われていたため、広範囲の加工を行う場合には膨大な加工時間を要していた。また、フェムト秒レーザーを用いた微細加工においては、加工品質を維持するために最大入射光強度が制限されるため、従来の1点走査加工ではレーザー出力光の大半を無駄にしていたため、非常に非効率な加工であった。例えば、市販されるフェムト秒再生増幅器では数mJ出力が得られるにも関わらず、ガラス内部に導波路を形成するために要するエネルギーは数10 μ Jであるため、レーザーから出力される光のうち、9割以上の光が無駄に捨てられていた。この様な場合、ホログラム技術によってレーザー光が100点に集光されれば、レーザーの全出力を利用できるために、その加工速度は100倍に増加することになる。さらに、集光点を立体的な多点に形成することができれば、加工対象物を走査しないで一括で多点加工を行うことが可能となる。以下では、ホログラムによってレーザー光を立体的に多点に集光する技術の原理と、実際にフェムト秒レーザー加工に適用した結果を述べる。

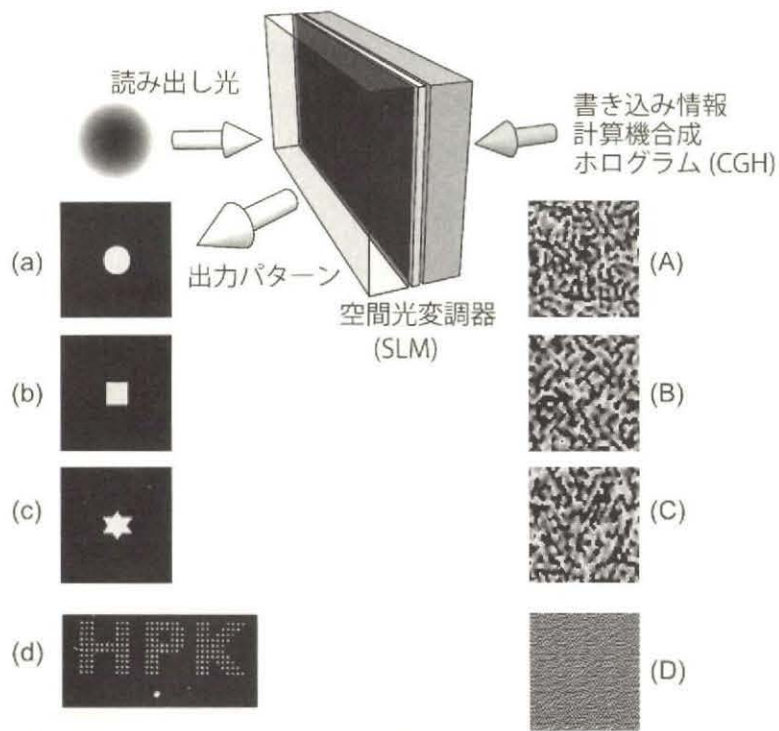


図 4-15 位相ホログラムを用いた光波形成の概念図

任意のビーム形状を生成するためには、空間光変調器に書き込まれる計算機ホログラムの作成技術が重要となる。本研究では、光波面制御技術を用いて透明材料内部における3次元一括加工を行うために、位相フレネルレンズと計算機ホログラムとを併用した位相ホログラム作成技術を開発した。開発した位相ホログラムによる3次元ビーム生成の概念図を図 4-16 に示す。

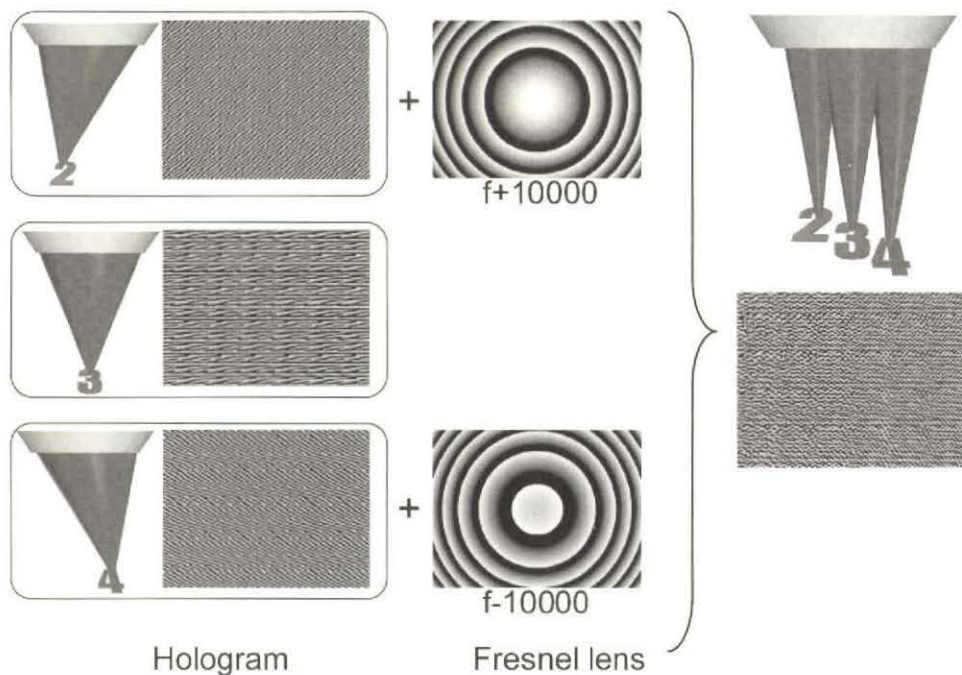


図 4-16 位相ホログラムによる3次元ビーム生成の概念図

位相ホログラムは、奥行き方向を制御するための位相フレネルレンズパターンと、2次元のビーム形状を生成する計算機ホログラムとを足し合わせることで作成される。例えば、“2”という数字のビーム形状を生成する計算機ホログラムと、焦点距離が +10 m の位相フレネルレンズパターンとを足し合わせると、計算機ホログラムだけで生成される“3”という数字のビーム形状より手前の位置に“2”という数字のビーム形状が生成される。逆に、“4”という数字のビーム形状を生成する計算機ホログラムと、焦点距離が -10 m の位相フレネルレンズパターンとを足し合わせると、計算機ホログラムだけで生成される“3”という数字のビーム形状より深い位置に“4”という数字のビーム形状が生成される。さらに、これらの3枚の位相ホログラムを合成することにより、“2”、“3”、“4”という数字のビーム形状が、それぞれ異なる奥行き方向に一括形成される。

この位相ホログラムを光波面制御モジュールに入力し、He-Ne レーザーで読み出すことにより三次元の光パターンを生成した結果を図4-17に示す。再生像はレンズに近いほうから、“2”、“3”、“4”という数字が生成されていることが確認できた。開口数が 0.3 の対物レンズ (NIKON, CFILUPlanFLUORX10) で再生した場合、それぞれの光パターンの間隔は、およそ 57 μm 間隔であり、この場合には 38 点を同時に加工できることになる。

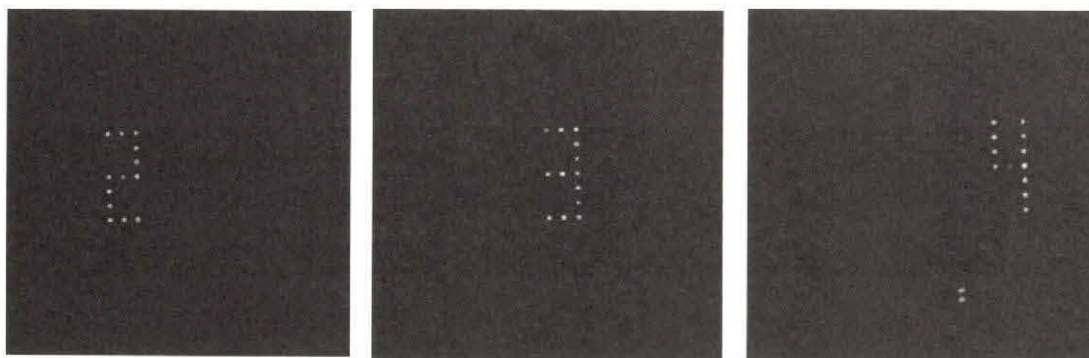


図 4-17 He-Ne レーザーによる立体多点形成観測結果

次に、フェムト秒再生増幅器 (コヒーレント社、Legend-USP、パルス幅 50 fs、中心波長 800 nm、繰り返し周波数 1 kHz) を用いて、BK7 ガラスの内部加工を行った。まず、従来の手法により作成したホログラムを用いて同一平面内に“234”というパターンを形成した場合の加工結果を図 4-18 に示す。

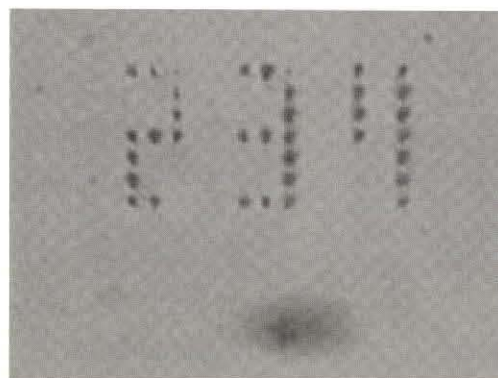
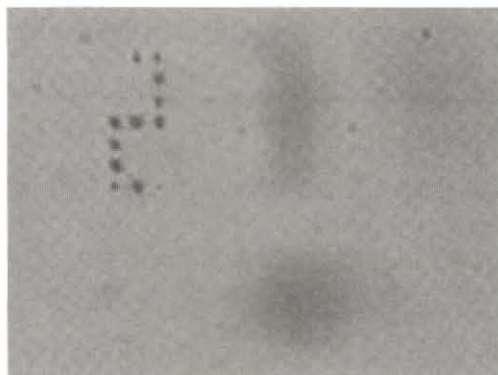
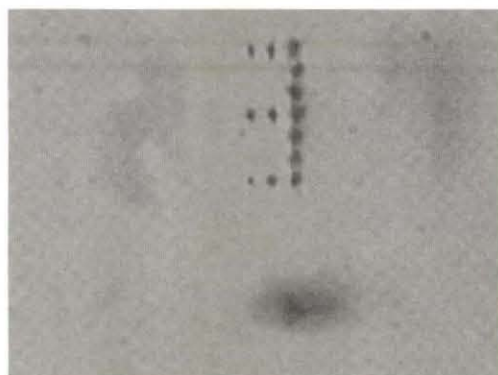


図 4-18 従来の手法によるホログラムを用いた同一平面内多点加工観測結果

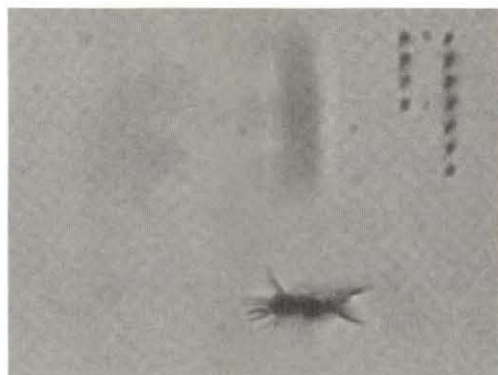
次に、本研究で開発したホログラムにより3次元一括多点加工を行った結果を図 4-19 に示す。(b) “3”の観測位置が対物レンズ焦点位置の加工結果を観測した結果に相当し、(a) “2”は観測系の焦点位置を手前方向 $57\ \mu\text{m}$ の位置にシフトさせた場合、(c) “4”は逆に観測系の焦点位置を奥行き方向 $57\ \mu\text{m}$ の位置にシフトさせた場合の加工結果を観測した結果である。これより、1枚のホログラムで立体的な一括多点加工が行われていることが確認された。



(a) 集光レンズの焦点位置より手前 $57\ \mu\text{m}$



(b) 集光レンズの焦点位置



(c) 集光レンズの焦点位置より奥行き方向 $57\ \mu\text{m}$

図 4-19 立体多点加工観測結果

4.6. 光波面制御技術による球面収差補正

4.6.1. はじめに

透明材料内部にレーザー光を集光するとき、材料界面での屈折率ミスマッチによって球面収差が発生する。球面収差は、集光領域を肥大化させると共にピーク強度も低下させるため、光ピンセット、微細加工、高分解能顕微観察等においてその性能を劣化させる要因となる。これらの問題を回避するために、近年ではデフォーダブルミラーや空間光変調器等を用いた球面収差補正が、様々な研究機関で実現されている。Booth 等は、発生する球面収差を解析的に計算し、その逆パターンの変位を入射波面に加えることで、即時補正を可能としている¹⁷⁾。彼等の手法は簡便に球面収差を補正できるという点で有効であるが、その一方で、レンズの開口数が大きい場合や、集光位置が深い場合には収差を精密に補正できないという問題が生じる。これに対し我々は、そのような場合においても精密な補正を可能とする新しい手法を考案した¹⁶⁾。我々の手法では、逆光線追跡法に基づいて、補正パターンが作成される。さらに、補正パターンの PV 値を最小とすることが可能なため、画素数あるいは位相変調度が有限である空間光変調器を用いる場合に適した手法である。

4.6.2. 球面収差補正の概念

本手法での補正パターン計算の概念図を図 4-20 に示す。屈折率が均一な媒質中を光が伝播する場合、入射平面波はレンズによって曲率半径がレンズの焦点距離 f に等しい球面波に変換され、最終的に同一位置 O に集光される。この球面で定義される面を、補正パターンを算出するときの参照球面とする (図 4-20 の円弧 AC)。一方、屈折率 n_1 の媒質から屈折率 n_2 の媒質へと光が伝播する場合、光線が境界面で屈折するために球面収差が発生し、光線が光軸と面内の両方の方向に広がる。これに対して、我々の手法では、全ての光線が同一点に集光すると仮定し、仮想集光点 O' を始点として各光線の逆追跡を行って、補正パターンを算出する。以下では、補正パターンの算出方法を説明する。

レンズの主点 C から距離 $f-d$ の位置に媒質が配置され、集光点が O から O' に変わる場合を考える。この時、参照球面上の点 A を発する光線 ABO' の光路長 $\Phi(\theta)$ は(4-3)式により表される。補正パターンは参照球面上での位相変位量と定義できるので、光線 ABO' の光路長 $\Phi(\theta)$ と主軸上の光線 CDO の光路長 $\Phi(0)$ との差分 $\Phi(\theta)-\Phi(0)$ より補正パターンを計算することができる。

$$\begin{aligned}\Phi(\theta) &= n_1 \times \overline{AB} + n_2 \times \overline{BO'} + n_2 \times \overline{BO'} \\ &= \frac{n_1 \times (f \times \cos \theta - d)}{\cos \theta_1} + \frac{n_2 \times d}{\cos \theta_2}.\end{aligned}\quad (4-3)$$

(4-3)式を用いて光路長を算出するためには、光線 AO の角度 θ に対応する、光線 ABO' の入射角 θ_1 および屈折角 θ_2 を求める必要がある。 θ_2 はスネルの法則により θ_1 から計算できるが、 θ_1 を θ から解析的に求めることは困難である。そこで、以下に示す様に探索的に θ_1 を求めることにした。

図 4-20 から、 θ と θ_1 との関係は

$$h_1 = (f \times \cos \theta - d) \times \tan \theta_1, \quad (4-4)$$

$$h_2 = d' \times \tan \left\{ \sin^{-1} \left(\frac{n_1}{n_2} \sin \theta_1 \right) \right\}, \quad (4-5)$$

$$h = h_1 + h_2 = f \times \sin \theta, \quad (4-6)$$

で表される。これらの式を解くことで

$$\theta = \theta_1 + \sin^{-1} \left\{ \left(\frac{\cos \theta_1}{f} \right) \times \left(\frac{d' n_1 \sin \theta_1}{\sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \theta_1}} - d \times \tan \theta_1 \right) \right\} \quad (4-7)$$

が得られる。すなわち、 θ_1 から θ が計算できるので、 θ_1 を変化させて θ を評価し、 θ が所望の角度になるまでこの操作を繰り返す。これにより光線 ABO' の θ_1 が決定できる。得られた値を(4-3)式に代入することで補正パターンが作成される。

一方、深い位置では球面収差が増大するので、これを補正するためには大きな位相変調量が必要となる。しかし、空間光変調器の解像度と位相変調量は有限であるため、広い深さ範囲に対応するためにはこの点を考慮して補正パターンを設計する必要がある。本手法では、補正パターンの PV 値が最小となるように集光点 O' を設定することで、広い深さ範囲での球面収差補正を可能とした。例えば、光源の波長を 660 nm、レンズの焦点距離を $f=3.6$ mm、開口数を 0.55、射出瞳径を 4 mm、試料の屈折率を $n_2 = 1.49$ 、屈折が存在しない場合の集光位置を $638 \mu\text{m}$ とすると、PV 値は $\Delta d = 362 \mu\text{m}$ で最小となり、それ以外の値では PV 値が大きくなる。

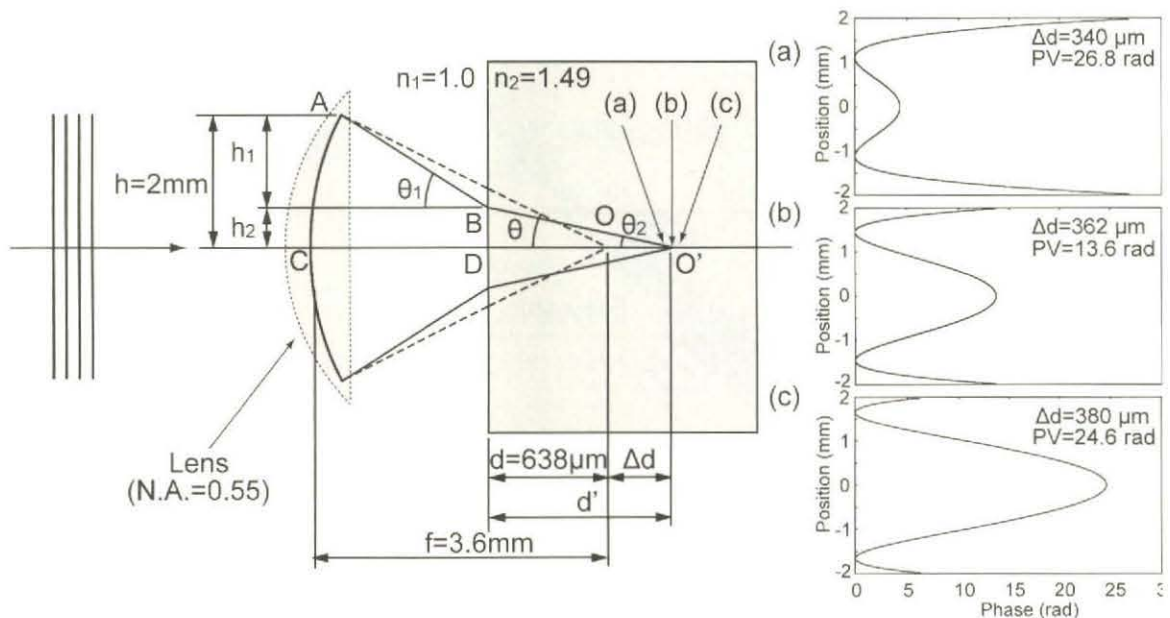


図 4-20 逆光線追跡法により補正パターンを作成するための概念図

4.6.3. 球面収差補正の検証システムの構築

本手法による球面収差補正の効果を確認するために、図 4-21 に示す構成を用いて集光部の変化を観測した。波長 660 nm の半導体レーザー(三菱電機製、ML101J27-01)は、焦点距離 120 mm の平

凸レンズによって平行光に変換された後に、光波面制御モジュールに内蔵されたプリズムミラーを介して LCOS 型空間光変調器(浜松ホトニクス製, X10468-01, 有効領域:16×12mm, 画素数:800×600)へと導光される。その後、LCOS 型空間光変調器によって補正パターンが与えられたレーザー光は、焦点距離 $f=200\text{ mm}$ および $f=100\text{ mm}$ の平凸レンズを用いた両側テレセントリックリレーレンズ(結像モジュール)によって、対物レンズ(オリンパス製, LMPlan50IR, N.A. = 0.55, $f=3.6\text{ mm}$)の瞳面に縮小率 1/2 で転像される。集光部の観測を容易にするために、試料には弱い散乱のあるアクリル(三菱レイヨン製、アクリルライト L 302, $n_2=1.49$)を用いた。集光部は、対物レンズ(ミットヨ製, MPlanNIR50, N.A. = 0.42)、長さ 5 cm のエクステンションチューブ、2倍エクステンダー(ペンタックス、2-EX)、および CCD カメラ(ソニー、ST-30)を用いてアクリル側面より拡大観察される。

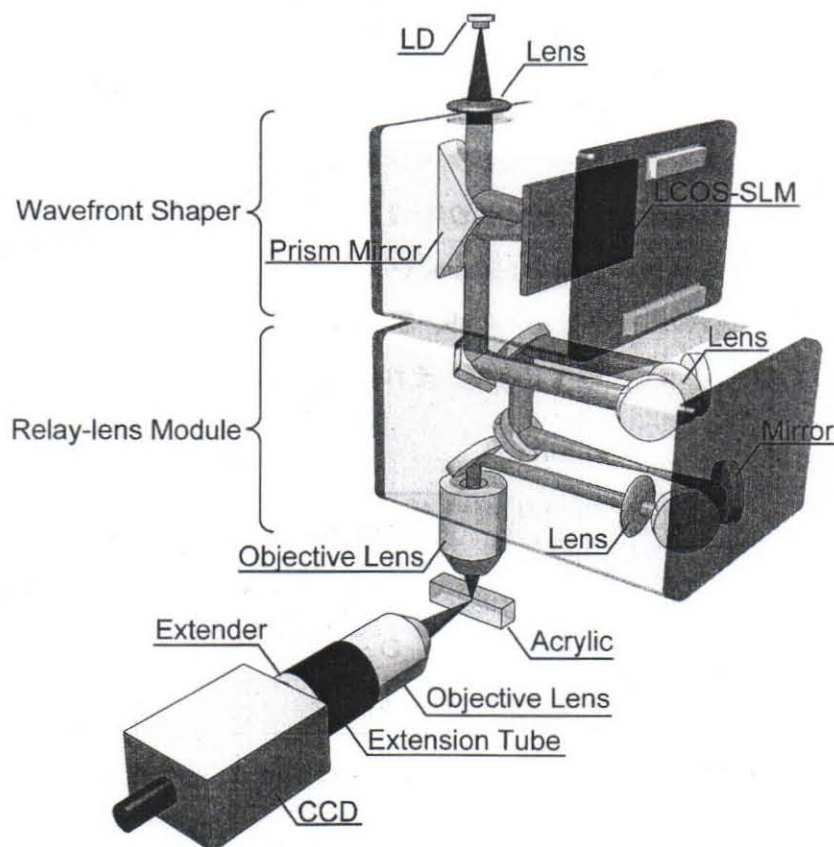


図 4-21 球面収差補正の効果を確認するためのシステム概念図

4.6.4. 球面収差補正の検証

本手法の効果を確認するために、球面収差を補正した場合と補正しない場合の集光部を観測した。図 4-22 は球面収差を補正しない場合の集光部を観測した結果である。アクリルブロック入射面から集光位置までの距離は、それぞれ (a) $d'=100\text{ }\mu\text{m}$ 、(b) $d'=500\text{ }\mu\text{m}$ 、そして(c) $d'=1000\text{ }\mu\text{m}$ である。球面収差を補正しない場合には、強度分布が光軸方向に対して非対称であると共に、光軸伝播垂直方向と水平方向共に集光部が肥大化していることが確認された。集光位置が深くなるほどその影響は大きくなり、ピーク強度もこれに伴って低下する。

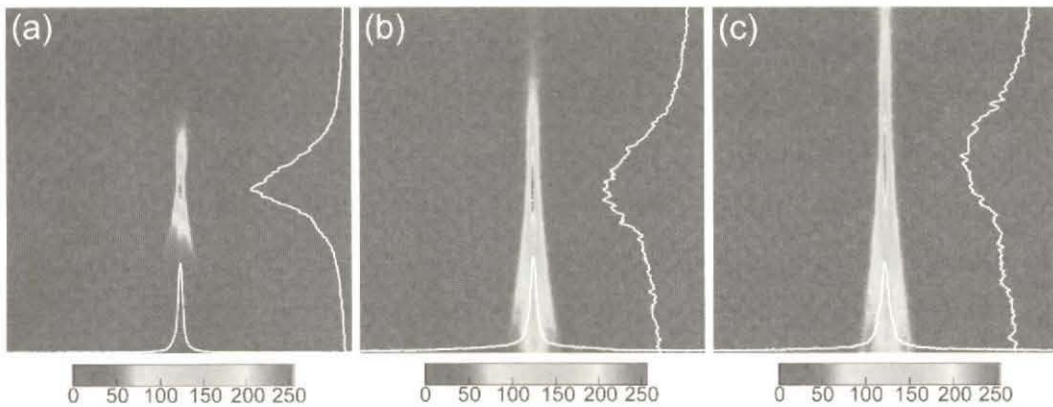


図 4-22 球面収差を補正しない場合の集光部観測結果 (集光部の深さはそれぞれ (a) $d=100 \mu\text{m}$, (b) $d'=500 \mu\text{m}$, (c) $d'=1000 \mu\text{m}$ 。画像は $60 \mu\text{m} \times 60 \mu\text{m}$ に相当。断面強度分布を併記)

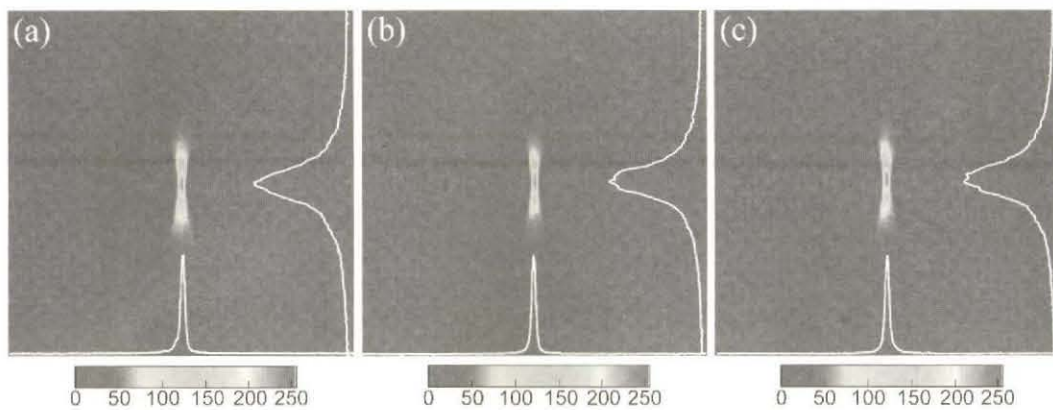


図 4-23 球面収差を補正した場合の集光部観測結果 (集光部の深さはそれぞれ (a) $d=100 \mu\text{m}$, (b) $d'=500 \mu\text{m}$, (c) $d'=1000 \mu\text{m}$ 。画像は $60 \mu\text{m} \times 60 \mu\text{m}$ に相当。断面強度分布を併記)

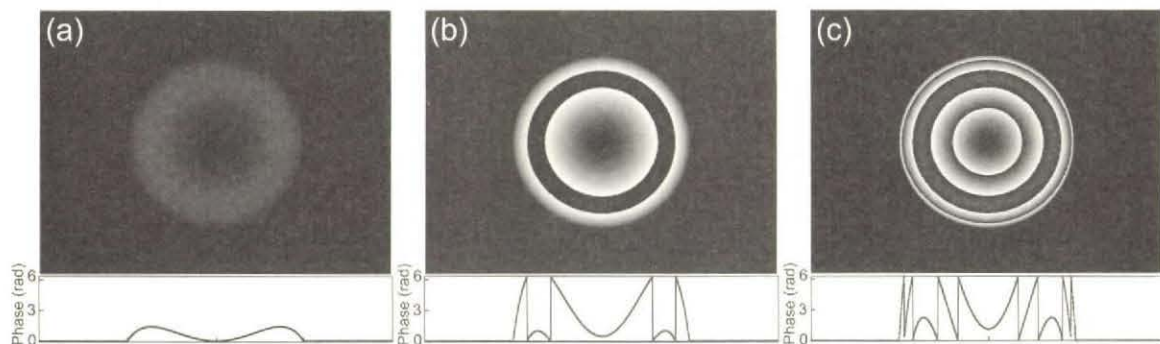


図 4-24 球面収差を補正するために与えられた補正パターン (集光部の深さはそれぞれ (a) $d=100 \mu\text{m}$, (b) $d'=500 \mu\text{m}$, (c) $d'=1000 \mu\text{m}$ 。)

この状態で、本手法により球面収差を補正した場合の集光部を観測した結果が図 4-23 である。また、それぞれの場合において入射波面に与えられた補正パターンを図 4-24 に示す。LCOS 型空間光変調器の最大位相変調量 2π を超える位相変調量は 2π で折り返される。屈折が生じない場合の集光位

置はそれぞれ64 μm 、319 μm 、そして638 μm であった。いずれの場合においても、光軸方向に対して対称な強度分布が得られていると共に、球面収差を補正しない場合と比較して、光軸伝播垂直方向と水平方向共にその大きさが圧縮された。例えば、集光位置が $d'=1000 \mu\text{m}$ の場合には、光軸伝播方向に関しては半値全幅(FWHM)で36 μm から7 μm に、これに直交する方向に関しては2 μm から1 μm に圧縮された。これらの結果より、本研究において開発された球面収差補正方法が、深い領域においても有効に機能していることが明らかになった。

次に、本研究の手法と従来の手法とを比較するために、参考文献 17)に示される従来の手法を用いて上記実験と同様な実験を行い、それらの集光部を比較した。従来の手法で作成される補正パターンは、ゼルニケ多項式によって表される。球面収差は、ゼルニケ多項式のうち2次、4次、6次ならびに8次の項の和として表されるが、2次の項は集光位置の光軸方の移動を表すため補正パターンを作成する際にはこれを無視した。この場合、集光位置の移動量は $z = 2\sqrt{3}\cot(\theta/2)dA_{20}$ で表されるため、図 4-20 における実際の集光位置 d' は $d+z$ となる。したがって、従来の手法で実際の集光位置を $d'=1 \text{ mm}$ とするためには、屈折が生じない場合の集光位置を $d=735 \mu\text{m}$ 、集光位置の移動量を $z=265 \mu\text{m}$ とすればよい。この場合の補正パターンは図 4-25 中の点線で示される。比較のために、本研究の手法により作成された補正パターンを実線で示す。本研究の手法で実際の集光位置を $d'=1 \text{ mm}$ とするためには、屈折が生じない場合の集光位置を $d=638 \mu\text{m}$ 、集光位置の移動量を $\Delta d=362 \mu\text{m}$ とすればよい。この結果より、従来の手法により作成された補正パターンの PV 値は、本研究の手法により作成された補正パターンの PV 値の 1.5 倍大きいことがわかる。すなわち、従来の手法では空間光変調器によって与えられる位相量が本研究の手法と比較して 1.5 倍大きいことになる。

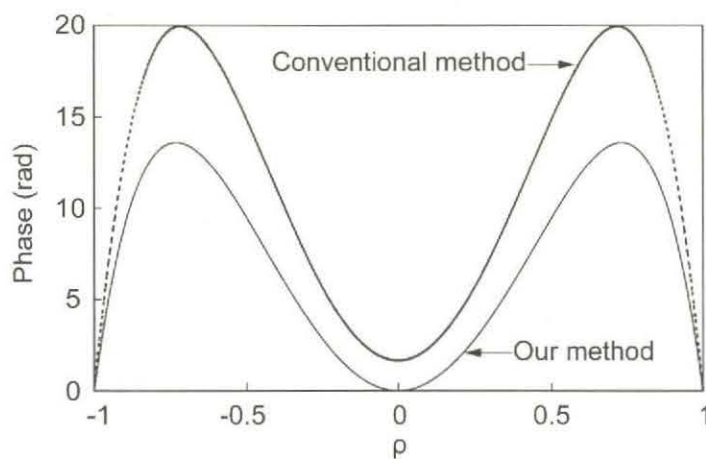


図 4-25 従来法を用いた場合と本研究の手法を用いた場合の補正パターン (集光位置 $d'=1 \text{ mm}$ 、横軸はレンズ射出瞳の半径を 1 とした場合の相対値)

次に、従来法を用いた場合と本研究の手法を用いた場合の集光部を比較した。図 4-26 は従来法を用いて球面収差を補正した場合の集光部を観測した結果である。図 4-23 に示される本研究の手法を用いた場合と比較すると、集光部が光軸方向に関して非対称でであると共に、集光部が肥大化している様子が確認された。

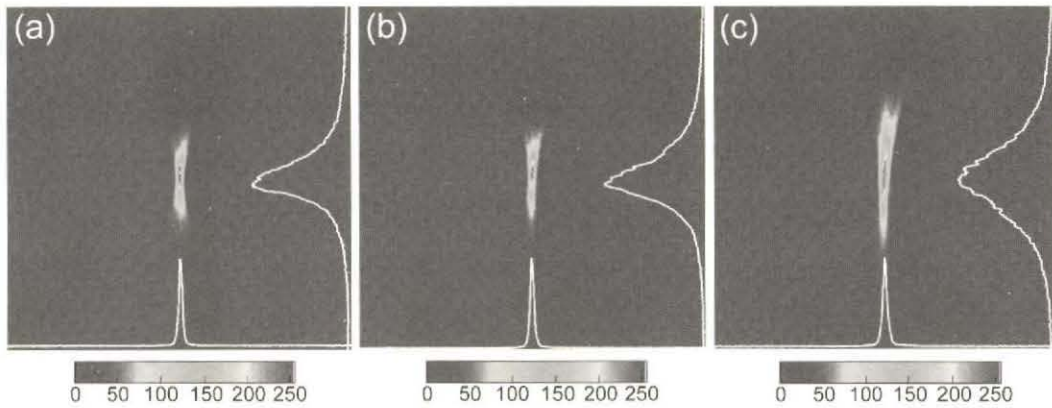


図 4-26 従来法を用いて球面収差を補正した場合の集光部観測結果（集光部の深さはそれぞれ(a) $d=100\ \mu\text{m}$, (b) $d'=500\ \mu\text{m}$, (c) $d'=1000\ \mu\text{m}$ 。画像は $60\ \mu\text{m}\times 60\ \mu\text{m}$ に相当。断面強度分布を併記）

さらに、本手法では設計通りの位置に集光されるのに対し、従来法では設計通りの位置には集光されないことが明らかになった。図 4-27 は設計値に対する実際の集光位置を計測した結果であり、従来法による結果を点線で、本研究の手法による結果を実線で示した。本研究の手法では設計値に対して 6 %程深い位置に集光されたのに対して、従来法では 16 %程深い位置に集光されることが明らかになった。以上の結果から、従来法に対する本研究の手法の優位性が示された。

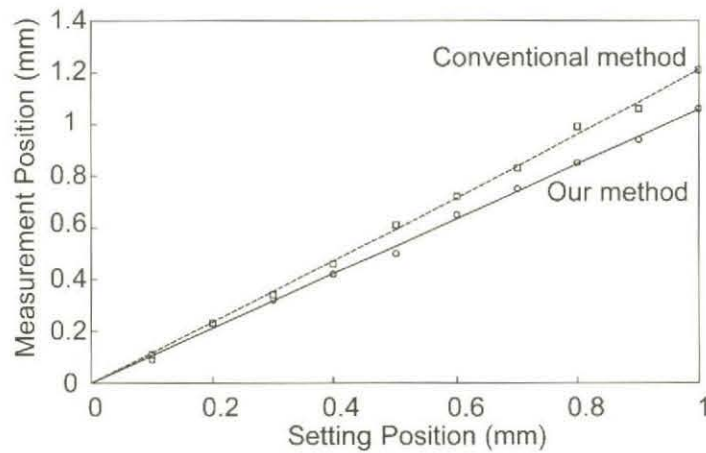


図 4-27 従来法と本研究の手法を用いた場合の設計値に対する実際の集光位置

4.7. あとがき

近年では、顕微鏡、眼底カメラあるいは透明材料の内部加工などの分野において、媒質伝播中に生じる波面歪を補償することを可能とする光波面補償の需要が高まりつつある。また、光ピンセットやレーザー加工等の分野においては、光の波面を積極的に制御することで集光部に任意の形状を形成する波形成型の需要が高まりつつある。これらの技術は、顕微観察における解像度の向上、加工品質の向上、あるいは加工効率の向上を可能とするものであり、様々な分野への展開が期待される。本章では、波面制御技術の開発と、LCOS 型空間光変調器を用いた波面制御モジュールの開発ならびにその応用について述べた。波面制御技術の開発においては、従来は同一平面内に多点が形成されていたのに対して、本研究では立体的な多点形成を可能とする技術を考案した。さらに、この技術を透明材料内部加工に適用することで、その効果を実証した。また、光を透明材料内部に集光する場合に、集光状態を悪化させる要因となる球面収差を補正する技術を開発した。同時に、実際に集光部を観測することによって収差補正技術が有効に機能することを実証した。一方、光波面制御の技術のモジュール化に関しては、再生増幅された高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する LCOS 型空間光変調器を開発し、これを内蔵する光波面制御モジュールを開発した。また、より高精度な波面制御を実現するために、LCOS 型空間光変調器の位相変調面を対物レンズの射出瞳に縮小転像する結像モジュールも同時に開発した。

今後の展望として、本研究で開発したモジュールの形態に捕らわれず、光波面を制御するためのモジュールを様々な用途に適した形態に発展させる必要がある。また、光波面制御技術が必要とされる分野を開拓すると同時に、その有用性を実証することが急務である。特に、フェムト秒レーザーの応用分野においては、光波面制御技術は未だ周知されていない技術である。先に述べた波形整形器と相まって、その応用分野が拡大されることが強く望まれる。

4.8. 第4章の参考文献

- 1) B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. Alvensleben and A. Tunnermann, "Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids", *Appl. Phys. A*, **63**, 109-115 (1996).
- 2) W. Denk, J.H. Strickler, W.W. Webb, "2-Photon laser scanning fluorescence microscopy," *Science*, **248**, 73-76 (1990).
- 3) A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm, and Steven Chu, "Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles," *Opt. Lett.*, **11**, 288-290 (1986).
- 4) T. Shirai, T. H. Barnes, and T. G. Haskell, "Adaptive wave-front correction by means of all-optical feedback interferometry," *Opt. Lett.*, **25**, 773-775 (2000).
- 5) K. Miura, Jianrong Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu, and K. Hirao, "Photowritten optical waveguides in various glasses with ultrashort pulse laser", *Appl. Phys. Lett.*, **71**, 3329-3331 (1997).
- 6) Martin J. Booth, Michael Schwertner, Tony Wilson, Masaharu Nakano, Yoshimasa Kawata, Masahito Nakabayashi, and Sou Miyata, "Predictive aberration correction for multilayer optical data storage", *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 031109 (2006).
- 7) Nobuhito Takeshima, Yoshihiro Narita, Shuhei Tanaka, Yutaka Kuroiwa, and Kazuyuki Hirao, "Fabrication of high-efficiency diffraction gratings in glass", *Opt. Lett.*, **30**, 352-354 (2005).
- 8) D. Homoelle, S. Wielandy, Alexander L. Gaeta, N. F. Borrelli, and Charlene Smith; "Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses", *Opt. Lett.*, **24**, 1311-1313 (1999).
- 9) Alexander M. Streltsov and Nicholas F. Borrelli, "Fabrication and analysis of a directional coupler written in glass by nanojoule femtosecond laser pulses", *Opt. Lett.*, **26**, 42-43 (2001).
- 10) C. Slinger, C. Cameron, and M. Stanley; "Computer-Generated Holography as a Generic Display Technology", *IEEE Computer*, **38**, 46-53 (2005).
- 11) Eirini Theofanidou, Laurence Wilson, William J. Hossack, and Jochen Arlt, "Spherical aberration correction for optical tweezers", *Opt. Commun.* **236**, 145-150 (2004).
- 12) C. Mauchair, A. Mermillod-Blondin, N. Huot, E. Audouard, and R. Stoian, "Ultrafast laser writing of homogeneous longitudinal waveguides in glasses using dynamic wavefront correction", *Opt. Express* **16**, 5481-5491 (2008).
- 13) T. Inoue, H. Tanaka, N. Fukuchi, M. Takumi, N. Matsumoto, T. Hara, N. Yoshida, Y. Igasaki, and Y. Kobayashi; "LCOS spatial light modulator controlled by 12-bit signals for optical phase-only modulation", *Proc. SPIE* **6487**, 64870Y (2007).
- 14) 伊藤晴康, 大林寧, 原勉; 「空間光変調器によるレーザー光波面制御」, *機能材料*, **29**, 28-36 (2009).
- 15) 伊藤晴康, 大林寧, 田中博, 原勉; 「空間光変調器を用いた高強度フェムト秒レーザー光波面制御」, *オプトニクス*, **328**, 218-223 (2009).
- 16) Haruyasu Itoh, Naoya Matsumoto, and Takashi Inoue; "Spherical aberration correction suitable for a wavefront controller", *Opt. Express*, **17**, 14367-14373 (2009).
- 17) M. J. Booth, M. A. A. Neil, and T. Wilson, "Aberration correction for confocal imaging in refractive-index-mismatched-media", *J. Microsc.* **192**, 90-98 (1998).

第5章 結論

1969年にサブピコ秒のパルスの発生が実現されて以後、フェムト秒レーザー技術は飛躍的な発展を遂げ、現在ではパルス幅が10フェムト秒より短い光パルスを放つレーザーが開発されるまでに至った。同時に、半導体レーザー励起固体レーザーの第二高調波を励起光源とするなどして、フェムト秒レーザーの小型化も図られている。しかしながら、固体レーザーの第二高調波を励起源とする手法は、構造が複雑であると共に電気-光変換効率が低い。産業界においてフェムト秒レーザーの応用分野を進展させるためには、レーザー装置の小型化および低コスト化が必要不可欠であり、そのようなフェムト秒レーザーの登場が待ち望まれている。

一方、時間幅が短く(超高速性)、非常に高いレーザー強度を持つ(超高電界)フェムト秒レーザーは、物質中で非常に高速に起こる緩和現象等の観測、熱の影響が少なく周囲の組織を傷つけない特徴を利用した医療応用、多光子吸収等の非線形過程を利用した透明材料の内部加工、あるいは超精密微細加工等の様々な分野に応用されつつある。フェムト秒レーザーの「超高速性」を用いることによって、これまで観測し得なかった超高速現象を観測できるようになった。高速カメラの例から容易に推測されるように、パルス幅が短くなることは、これを光源(=超高速フラッシュ)として観測する超高速現象の時間分解能がパルス幅と同程度に短くなることを意味する。これによって、これまで観測することができなかった物理現象の超高速時間領域での詳細なメカニズムが解明されるようになった。フェムト秒レーザーの効用はこれだけにとどまらず、その「超高電界」を利用して様々な非線形効果を誘起することで様々な応用が展開されるようになった。パルス光による物質の破壊は主としてレーザーのエネルギーによって決定されるため、パルスエネルギーが小さくピーク強度が大きいフェムト秒レーザーを用いることによって物質を破壊せずに大きな非線形効果を起こすことができる。例えば、フェムト秒レーザーを透明材料内部に集光する場合、集光部以外にはダメージを与えず、集光部だけが変質あるいは変形されるため、ガラスの割断やガラス内部の局所加工等が可能となる。また、フェムト秒レーザーを用いた従来の応用では、その「高速性」と「超高電界」といった特性だけが着目されていたが、これらの特性に「光の位相」という新たな付加価値を融合させることにより、既存の研究分野の進展のみならず、新たな研究分野の開拓、さらには産業界においてフェムト秒レーザーを展開させることが可能になると期待されている。そのためには、光の位相制御技術そのものを向上させるとともに、フェムト秒光パルスの「発生技術」、「制御技術」、「計測技術」等の超高速光技術を総合的に機能させると共に、装置を小型化するなどして操作性に優れたシステムを開発する必要がある。

これらの要求に応える為に、本研究では半導体レーザーで直接励起することで実現される小型の全固体フェムト秒レーザーの開発を目指した。さらに、フェムト秒レーザーの時間的な位相(時間波形)制御技術ならびに空間的な位相(波面)制御技術を開発すると共に、これらの技術をシステム化することによりフェムト秒レーザーの応用展開を図った。

第2章では、フェムト秒レーザー装置の小型化を実現するために、半導体レーザーで直接励起する

ことが可能な Cr:LiSAF レーザー媒質に着目し、小型な全固体フェムト秒レーザーの実現を図った。フェムト秒光パルスを発生させるためには発振波長帯域の広いレーザー共振器を構築する必要があるため、CW発振状態において 100 nm 以上の連続波長可変を実現することにより、レーザー共振器の発振波長帯域を確認した。次に、能動モード同期法によるピコ秒パルスの発生を試みた結果、88 nm の帯域にわたって 146~200 ピコ秒の光パルスが得られ、パルス発振動作時においてもレーザー共振器の帯域が維持されることを確認した。これらの基礎評価を踏まえて、半導体レーザーでの直接励起による小型な全固体フェムト秒レーザーの実現を試みた。この際、波長分散を補正するために用いるプリズム対の間にレーザー媒質を配置する新たな構成を考案し、この構成を用いることによってレーザー共振器を 25×16cm にまで小型化することに成功した。

第3章では、時間的な位相(時間波形)制御技術を開発すると共に、光アドレス型空間光変調器を用いることによって、小型でありながら高い波長分解能を有する時間波計制御装置(波形整形器)を開発した。同時に、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する光アドレス型空間光変調器を開発することで、再生増幅フェムト秒レーザーの時間波形制御を可能とした。さらに、波形整形された高強度フェムト秒光パルスを透明材料の内部加工に適用することで光と物質の相互作用を制御できることを実証した。また、光と物質の相互作用が未知の状態においても、反応効率に関する情報を波形整形器にフィードバックすることで、その反応効率を自動的に向上させることが可能な適応型反応制御装置を開発した。そして、制御アルゴリズムとしてシミュレーテッドアニーリング法を用いることで、ガラス媒質や光ファイバー伝播時に生じる波長分散、あるいは非同軸光パラメトリック増幅時に生じる波長分散を自動的に補正できることを実証し、制御系の有意性を実証した。

第4章では、高強度フェムト秒レーザーに対して十分な耐光性を有する LCOS 型空間光変調器を開発すると共に、波面制御を行うための光学系をモジュール化することでレーザー加工における波面制御技術の実用化を図った。従来のフェムト秒レーザー加工においては、レーザー光を1点に集光した状態で試料を走査する「1点走査加工」が用いられていたために、加工効率が悪く、産業界への応用展開を阻む要因となっていた。これに対して、本研究では、計算機プログラムを用いた「3次元一括多点形成技術」を開発し、この技術を用いることで加工効率を大幅に向上させることに成功した。また、レーザー光を透明材料内部に集光する場合に、球面収差が発生することで集光部が肥大化し、これが加工精度を劣化させる要因となる。従来は、発生する球面収差を解析的に算出し、球面収差に相当する補正パターンを与えることによって球面収差を補正する試みがなされていたが、レンズの開口数が多い場合、あるいは集光位置が深い場合には球面収差を精密に補正することができなかった。そこで、本研究では、光線を逆追跡することで球面収差を補正するパターンを算出する手法を考案し、この手法を用いることによって球面収差が精密に補正されることを実験的に検証した。

以上のように、本研究ではフェムト秒光パルスの発生・制御技術の開発だけでなく、これらの技術が広く活用されることを念頭において各技術のシステム化を図った。さらに、開発したシステムを用いて様々な応用研究を展開させることで、その技術の実用性を実証した。ただし、本論文で取り上げたフェムト秒光パルス発生技術、制御技術そして計測技術は、フェムト秒レーザーを取り巻く技

術の中のほんの一部に過ぎない。基礎科学研究の分野では、これ以外にも様々な超高速光技術に関する研究開発が進められている。これらの超高速光技術が学術分野だけにとどまらず、近い将来、身近な技術として実用化されることを期待する。その実現にあたっては、個々の技術が革新されるだけでなく、様々な分野の技術を融合させることで、複合的に研究を推進する環境整備も必要になるであろう。我々も、その一役を担えるよう研究を推進していく所存である。

最後に、学術分野で開発された超高速光技術が産業界に浸透すると同時に、産業界において実用化された技術が基礎科学にフィードバックされるという良き循環系が構築され、超高速光技術がより一層発展することを期待する。

謝辞

本論文は、浜松ホトニクス株式会社に入社以来、18年に渡って携わってきた超高速光技術に関する研究における成果をまとめたものであり、こうした機会を与えていただいたことに深く感謝いたします。

本論文をまとめるにあたり、御指導・御鞭撻頂いた、静岡大学工学部機械工学科川田善正教授に心から感謝の意を表すと共に、適切な御指示を賜った大坪順次教授、廣本宣久教授、齋藤隆之教授、杉田篤史准教授に深謝いたします。

本研究の機会を与えてくださり、また研究遂行にあたり御助言をいただいた浜松ホトニクス株式会社晝馬輝夫代表取締役社長、鈴木義二常務取締役中央研究所長、ならびに原勉中央研究所長代理、また研究当初より直接ご指導くださり、終始御鞭撻いただいた、青島紳一郎第3研究室室長に心から感謝の意を表す。

本研究は、中央研究所第3研究室、ならびに第4研究室において遂行されたものであり、長年にわたり同じ研究グループで実験データの解析等にご協力頂いた浦上恒幸氏に感謝する。また、本研究遂行中、種々御協力いただいた井上卓氏に感謝する。

本研究は、その他多くの人の御協力によるものであり、厚くお礼申し上げる次第である。

論文リスト

A 学位論文申請資格に関わる論文

主著の原著論文

- (1) Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, Makoto Hosoda, and Yutaka Tsuchiya; “Short cavity all-solid-state femtosecond Cr:LiSAF laser”, Jpn. J. Appl. Phys., **36**, 6380-6382 (1997).
- (2) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 吉田成浩, 伊ヶ崎泰則, 細田誠; 「高強度レーザー用反射型波形整形システムと周波数分解ゲート法によるその特性評価」, レーザー研究, **28**, 511-515 (2000).
- (3) Haruyasu Itoh, Tsuneyuki Urakami, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Femtosecond pulse delivery through long multimode fiber using adaptive pulse synthesis”, Jpn. J. Appl. Phys., **45**, 5761-5763 (2006).
- (4) Haruyasu Itoh, Naoya Matsumoto, and Takashi Inoue; “Spherical aberration correction suitable for a wavefront controller”, Opt. Express, **17**, 14367-14373 (2009).

共著の原著論文

- (1) Taro Ando, Tsuneyuki Urakami, Haruyasu Itoh, and Yutaka Tsuchiya; “Optimization of resonant two-photon absorption with adaptive quantum control”, Appl. Phys. Lett., **80**, 4265-4268 (2002).

B 学位論文内容に関わる論文

主著の原著論文

- (1) Haruyasu Itoh, Tsuneyuki Urakami, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Development of a reflection-type, high-power laser pulse shaping system”, Proceeding of APLS2002, 542-545 (2002).

共著の原著論文

- (1) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, Kazuyoshi Kuroyanagi, Yoshihiro Takiguchi, Yasushi Ohbayashi, and Yutaka Tsuchiya; “All solid-state Cr:LiSAF laser”, IEEE Trans. Instrum. Meas., **44**, 972-976 (1995).
- (2) 青島紳一郎, 伊藤晴康, 黒柳和良, 土屋裕; 「全固体Cr:LiSAFレーザーによる44フェムト秒パルスの発生」, レーザー研究, **23**, 996-1001 (1995).
- (3) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, and Yutaka Tsuchiya; “Transform-limited 30-fs pulse generation”, Jpn. J. Appl. Phys., **36**, 2698-2700 (1997).
- (2) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, and Yutaka Tsuchiya; “Compact diode-pumped Cr³⁺:LiSrAlF₆ femtosecond laser”, Jpn. J. Appl. Phys., **36**, L114-L116 (1997).
- (3) Masatoshi Fujimoto, Haruyasu Itoh, Hironori Takahashi, Shin-Ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Programmable shaping of a subterawatt, femtosecond laser pulse by modulating the spectral phase of the preamplified pulse”, Opt. Comm., **280**, 404-407 (2007).

- (4) Yoshiyuki Ohtake, Taro Ando, Norihiro Fukuchi, Naoya Matsumoto, Haruyasu Itoh, and Tsutomu Hara; “Universal generation of higher-order multiringed Laguerre-Gaussian beams by using a spatial light modulator”, *Opt. Lett.*, **32**, 1411-1413 (2007).
- (5) Taro Ando, Yoshiyuki Ohtake, Takashi Inoue, Haruyasu Itoh, Naoya Matsumoto, and Norihiro Fukuchi; “Shaping tight-focusing patterns of linearly polarized beams through elliptic apertures”, *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 021116 (2008).

C その他の論文

共著の原著論文

- (1) Shun-ichi Kamemaru, Haruyasu Itoh, and Jun-ichi Yano; “Character recognition by feature extraction using cross-correlation signals from a matched filter”, *Opt. Eng.*, **32**, 26-32 (1993).
- (2) Masayoshi Kamiya, Haruyasu Itoh, and Shin-ichiro Aoshima; “Monitoring of target material change in femtosecond laser processing by measurement of spectral reflectance”, *Proceeding of APLS2002*, 542-545 (2002).
- (3) 西川慎二, 伊藤晴康, 東孝憲, 青島紳一郎, 土屋裕; 「真空コアの中空ファイバで伝送させた高強度フェムト秒レーザーパルスによる比熱加工」, *レーザー研究*, **34**, 514-518 (2006).

D 口頭発表など

主著の口頭発表

- (1) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 大林寧, 平野伊助; 「85nm波長可変LD励起Cr:LiSAFレーザー」, 第39回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 911 (1992).
- (2) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 大林寧, 平野伊助; 「LD励起Cr:LiSAFレーザーのモード同期」, レーザー学会学術講演会第20回年次大会講演予稿集, 30pV6 (1993).
- (3) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 黒柳和良, 大林寧, 土屋裕; 「全固体フェムト秒レーザーの試み」, 光学連合シンポジウム浜松'94 講演予稿集, 23Da11 (1994).
- (4) 伊藤晴康, 黒柳和良, 瀧口義浩, 大林寧, 青島紳一郎; 「Cr:LiSAFレーザーのカーレンズモード同期」, レーザー学会学術講演会第14回年次大会講演予稿集, 20aIII12 (1994).
- (5) Haruyasu. Itoh, S. Aoshima, K. Kuroyanagi, Y. Ohbayashi, Y. Takiguchi, and Y. Tsuchiya; “Development of tunable all solid-state femtosecond laser”, *Abstract of International Workshop on Femtosecond Technology*, 54 (1994).
- (6) Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, Kazuyoshi Kuroyanagi, Yasushi Ohbayash, and Yutaka Tsuchiya; “Development of tunable all solid-state femtosecond laser II”, *Abstract of International Workshop on Femtosecond Technology*, 39 (1995).
- (7) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 大林寧, 土屋裕; 「全固体フェムト秒Cr:LiSAFレーザー」, 第56回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 27p-P-4 (1995).

- (8) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 大林寧, 土屋裕; 「小型全固体Cr:LiSAFフェムト秒レーザー」, 第43回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 27a-A-1 (1996).
- (9) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 土屋裕; 「小型全固体Cr:LiSAFフェムト秒レーザーのパルス繰返し可変制御」, 第44回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 9p-M-1 (1996).
- (10) Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Transform limited 30-fs pulse generation from all-solid-state Cr:LiSAF laser”, Abstract of International Workshop on Femtosecond Technology, 51 (1996).
- (11) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 土屋裕; 「全固体フェムト秒Cr:LiSAFレーザーからの30フェムト秒パルスの発生」, レーザー学会学術講演会第16回年次大会講演予稿集, 25pVII6 (1996).
- (12) Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Compact diode-pumped Cr:LiSAF femtosecond laser”, Abstract of International Workshop on Femtosecond Technology, 81 (1997).
- (13) 伊藤晴康, 青島紳一郎, 細田誠, 土屋裕; 「小型全固体Cr:LiSAFフェムト秒レーザーのパルス繰返し可変制御II」, 第44回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 30p-NB-10 (1997).
- (14) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 青島紳一郎, 土屋裕; 「高強度レーザー用反射型波形整形器の開発」, 第63回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 26p-YC-4 (2002).
- (15) Haruyasu Itoh, Tsuneyuki Urakami, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Development of a reflect type, high-power laser pulse shaping system”, Technical Digest of APLS 2002, WePB11 (2002).
- (16) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 青島紳一郎, 土屋裕; 「適応型反応制御システムによる高次分散の自動補償」, 第63回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 31p-ZB-10 (2003).
- (17) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 青島紳一郎, 土屋裕; 「高強度フェムト秒レーザーパルス光の波形制御」, 第63回応用物理学関係連合講演会講演予稿集(招待講演), 1p-ZN-2 (2003).
- (18) 伊藤晴康, 浦上恒幸, 青島紳一郎, 土屋裕; 「高強度波形整形パルス光の加工への応用」, 電気学会光・量子デバイス研究会資料, OQD-03-9 (2003).
- (19) 伊藤晴康, 井上卓, 福智昇央, 松本直也, 原勉; 「高強度フェムト秒レーザー用波面制御モジュールの開発」, レーザー学会学術講演会第28回年次大会講演予稿集, D4-31pVI3 (2008).
- (20) 伊藤晴康, 井上卓, 福智昇央; 「空間光位相変調器を用いた球面収差補正の検討」, 応用物理学学会学術講演会予稿集, 4a-V-2 (2008).

共著の口頭発表

- (1) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, Kazuyoshi Kuroyanagi, Yoshihiro Takiguchi, Yasushi Ohbayashi, Iisuke Hirano, and Yutaka Tsuchiya; “Tunable picosecond all solid-state Cr:LiSAF laser”, Abstract of IMTC'94, 937-940 (1994).
- (2) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, Hironori Takahashi, Makoto Hosoda, and Yutaka Tsuchiya; “All-solid-state Cr:LiSAF femtosecond lasers and their application to measurement”, Abstract of International Workshop on Femtosecond Technology, 52-53 (1997).

- (3) 青島紳一郎, 伊藤晴康, 細田誠, 土屋裕; 「全固体Cr:LiSAFフェムト秒レーザー」, 電子情報通信学会・フェムト秒ナノフォトニクス研究会講演予稿集, (1997).
- (4) Shin-ichiro Aoshima, Haruyasu Itoh, Makoto Hosoda, and Yutaka Tsuchiya; “Compact femtosecond laser”, Abstract of CRL International Topical Workshop on Space Laser Communication, 76-83 (1997).
- (5) Masayoshi Kamiya, Haruyasu Itoh, and Shin-ichiro Aoshima; ”Monitoring of target material change in femtosecond laser processing by measurement of spectral reflectance”, Technical Digest of APLS 2002, WePA36 (2002).
- (6) Tsuneyuki Urakami, Haruyasu Itoh, Shin-ichiro Aoshima, and Yutaka Tsuchiya; “Characteristic and application of a reaction control system using adaptive pulse shaping”, Abstract of International Workshop on Femtosecond Technology, 110 (2002).
- (7) Yoshiyuki Ohtake, Taro Ando, Naoya Matsumoto, Takashi Inoue, Norihiro Fukuchi, Haruyasu Itoh, Naohisa Mukohzaka, and Tsutomu Hara; “High-quality generation of higher-order Laguerre-Gaussian beams using liquid crystal on silicon spatial light modulator”, Proceedings of the SPIE, **6905**, 690507-690507-9 (2007).