# 単一サイクルパルスの探究の進歩をもたらすスペクトル広がり

ジェフ・ヘクト

光パルスのスペクトル幅をオクターブに広げる技術はパルス長の単一サイクル光への圧縮が可能になる。現在はエルビウムドープレーザによるわずか1.3サイクルのパルス長が最短記録になっている。

単一サイクルパルスは究極の超高速光のように思われる。パルスの連続性は時間を単位にして測定されることが多く、時間尺度での超高速物理学はアト秒（$10^{-18}$秒、as）領域に到達し、現在は80asが最短記録になっている。しかしながら、従来のアト秒パルスにはいつでも数サイクルの高周波電磁波が含まれていた。単一サイクルパルスはより強力な測定手段となり、高速できれいなアト秒パルスの生成が可能になると期待されている。

最近の研究は近赤外（NIR）レーザのスペクトル広がりを用いることで単一サイクル領域に到達している。独マックスプランク量子光学研究所（Max Planck Institute for Quantum Optics）のTi：サファイアレーザによる実験は、1.5サイクルパルスを実現している。独コンスタンツ大学（University of Konstanz）のアルフレッド・ライテンストルファー氏（Alfred Leitenstorfer）のグループは、エルビウムファイバレーザを使用して1.3サイクルの記録を達成している。これらの結果はパルス生成の高度な制御が可能になったことを実証している。

## 変換限界

超高速パルスの生成限界は不確定性原理にもとづく変換限界に相当する。つまり、パルス継続時間（時間の不確実性：$\Delta t$）とスペクトル幅（周波数の不確実性：$\Delta \nu$）の積が少なくとも0.441に等しくなければならない。

$$\Delta t \times \Delta \nu \geqq 0.441$$

この式は短いパルスが非常に広いバンド幅から生成されることを示している。1フェムト秒（fs）のパルスを生成するには、少なくとも441THzのスペクトル幅、つまり可視スペクトルの全体にわたる帯域幅が必要になる。3fsパルスは1fsパルスに必要な帯域幅の3分の1に相当する約150THzのスペクトルが必要になる。

パルスのサイクル数はレーザの中心周波数とパルス継続時間に依存する。波長が長いほど、そのパルス長のサイクル数は少なくなる。最短パルスの生成に必要な最大帯域幅をもつレーザには、NIRを放射するTi：サファイアレーザとエルビウムドープファイバレーザがあり、このような帯域の単一パルスは数ミリ秒にわたり発振する。

どのようなパルス継続時間であっても、単一サイクルパルスの生成には1オクターブよりも広いスペクトル幅が必要になる。Ti：サファイアレーザとErドープファイバレーザの本来の利得帯域幅は1オクターブに達しないが、非線形光学技術を使ってパルスを延伸すると、より広い波長のスーパーコンティニュアムの発生が可能になる。この技術は最近の数年間に大きく進歩し、単一サイクル領域に近づく少数サイクルパルスの生成にとって十分な広帯域スーパーコンティニュアムが得られるようになった。

## Ti：サファイアレーザ

初期の成功は2003年であった。北海道大学の山根啓輔氏と同僚は、790nmに中心をもつTi:サファイア増幅器からの継続時間30fs以下のレーザパルスを2つのビームに分岐し、その1つをアルゴン充填中空光ファイバに入射した。ファイバを通過したビームは495～1090nmの1オクターブ以上に拡大した。次に、彼らはビームを位相補償装置に入れてチャープを取り除き、彼らが計算した3.0fsの変換限界に近い3.4fsの1.56サイクルパルスを発生させた[1]。

ごく最近、独ライプニッツ大学ハノーバー校（Leibniz University Hannover）量子光学研究所のステファン・ラウシュ氏（Stefan Rausch）と同僚は、600から1200nm以上を放射する1オクターブ広がりのTi：サファイア発振器を開発した。彼らは特別設計の分散鏡とパルス成形装置を使用してシステムのキャリアエンベロープオフセット位相を安定化し、約2サイクルの4.4fsパルスを発生させた。80MHzの繰返し速度での平均パワーは90mWに達したが、パルスエネルギーは約1.25nJの小さい値であった[2]。

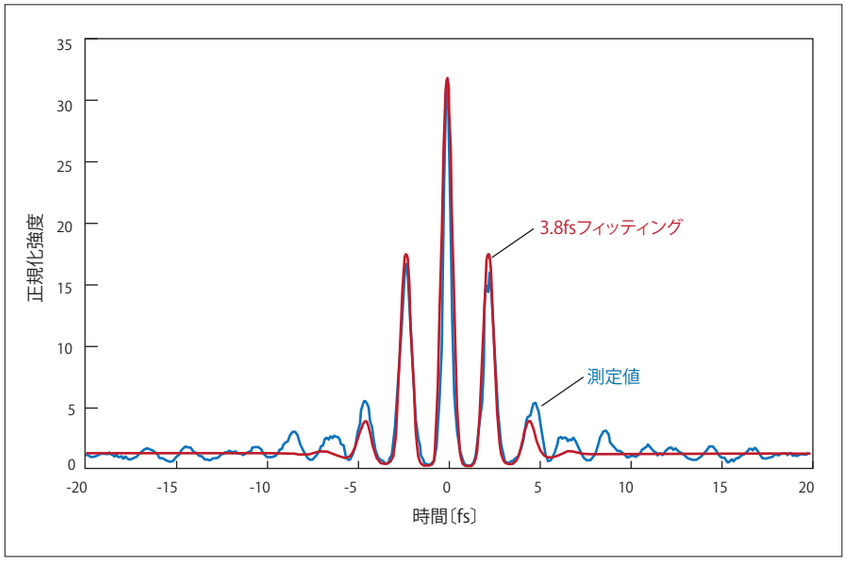


図1　マックスプランク量子光学研究所のチームは約1.5サイクル（測定されたFWHM）の3.8fsパルスを発生させた。（資料提供：E・グーリールマキス氏）

2サイクル以下のパルスは広帯域パラメトリック増幅器を用いることでも生成され、出力が1200～2100nmの範囲に広がる中心1.6μmの8.5fsパルスが得られている。これは長波長での最短パルスになる[3]。

マックスプランク量子光学研究所の研究チームはTi：サファイアから、さらに短いパルスを発生させた。このパルスは約1.5サイクルの半値全幅（FWHM）と、はるかに高いパルスエネルギーが得られている。Ti：サファイアの近赤外帯域幅は十分に広く、分散管理を適切に行うと、少数レーザサイクルパルスを生成できるが、ナノジュールのパルスエネルギーしか得られない。高調波発生に必要なミリジュールレベルへの増幅はスペクトル帯域幅を縮小する利得狭まりが起こる。希ガスを充填した中空コアファイバでの自己位相変調はスーパーコンティニュアムを発生し、帯域幅の圧縮と回復を可能にするが、そのパワーはマイクロジュールレベルに限られている。マックスプランクのグループは増幅器にチャープミラー圧縮器を取付けて1mJのパルスを生成し、ネオンを充填した中空コアファイバで圧縮して、720nmの搬送波長において継続時間4fs以下の1.5サイクルパルスを発生させた（図1）[4]。

独マックスプランク量子光学研究所アト秒物理部門（Max Planck Laboratory for Attosecond Physics）のエレフテリオス・グーリールマキス氏（Eleftherios Goulielmakis）によると、キャリアエンベロープ位相を安定化した自己参照単一サイクルパルスの生成は、軟X線領域のアト秒パルスの発生手段になる。彼によると、その他のグループも赤外のマルチサイクルフェムト秒パルスの高次高調波を生成してアト秒パルスを発生させているが、この場合の一連のアト秒パルスは、各サイクルのピークの1つがIRパルスになる。単一サイクルの場合、IRパルスのすべてのエネルギーは単一アト秒パルスの生成に使われるが、高次高調波発生は基本的に効率が制約されるので、このことは重要になる。

グーリールマキス氏とその共同研究

者は2008年に、このような方法を利用してわずか80asの記録的に短い継続時間をもつ高次高調波を発生させた[5]。彼らの報告によると、ガスジェット中のネオン原子のイオン化による3.3fs、720nmの1.5サイクルパルスの電場からは、単一IRパルスのピークの直後に、単一の高次高調波パルスが発生した。ピーク電場によりガス原子から引き出された電子はイオン化されたガスと再結合し、電場が降下すると、極端紫外線（XUV）またはX線領域の光子を放出した。マルチサイクルパルスから起動される高次高調波アト秒パルスの発生は一連のアト秒パルスを生成した（図2）。変換効率はわずか$10^{-6}$のレベルだが、IRパルスのエネルギーは約0.5nJのアト秒パルスの発生にとって十分であった。

## エルビウムファイバレーザからの圧縮

エルビウムドープファイバはTi：サファイアレーザの利得帯域幅との整合が悪く、それ自体からのパルス発生は100fs領域に限られる。しかしながら、Erドープファイバレーザはシリカファイバが異常分散をもつ1550nmバンドの光を放射するので、広帯域スーパーコンティニュアムの発生が可能になる。コンスタンツ大学のライテンストルファー氏のグループは、このような非線形効果を利用して、エルビウムの帯域を1オクターブ以上に拡大した。

ライテンストルファー氏のグループは第1回の実験において、49MHzにモード同期したErファイバマスタ発振器と低雑音Erファイバ増幅器を組み合わせて8nJのパルスエネルギーを発生させた。シリコンプリズムを使ってパルスを70fsへ圧縮し、予備圧縮ファイバを通して高非線形ファイバに入射し、560nm（FWHN）の広がりをもつスーパーコンティニュアムを発生させた。もう1組のプリズム対を用いてパルスを7.8fsへ再圧縮したが、これは1.17μmに中心をもつ2サイクルパルスに相当し、当時のファイバレーザから得られる最短パルスの記録であった[6]。

単一サイクルパルスに必要な広いスペクトル幅を創成するために、ライテンストルファー氏は別のアプローチを採用し、単一ファイバ発振器からの出力を一対の増幅器と非線形ファイバとに分離して、帯域の異なる二つのスーパーコンティニュアムを生成した。初期の研究では二つの分離した光源を組み合わせて単一スーパーコンティニュアムを生成しようとしたが、この試みは失敗に終わった。しかし、彼らはファイバレーザ技術の基本的な安定性を生かして、超広帯域スーパーコンティニュアムと単一サイクルパルスの生成に成功した[7]。

40MHzでモード同期したファイバ発

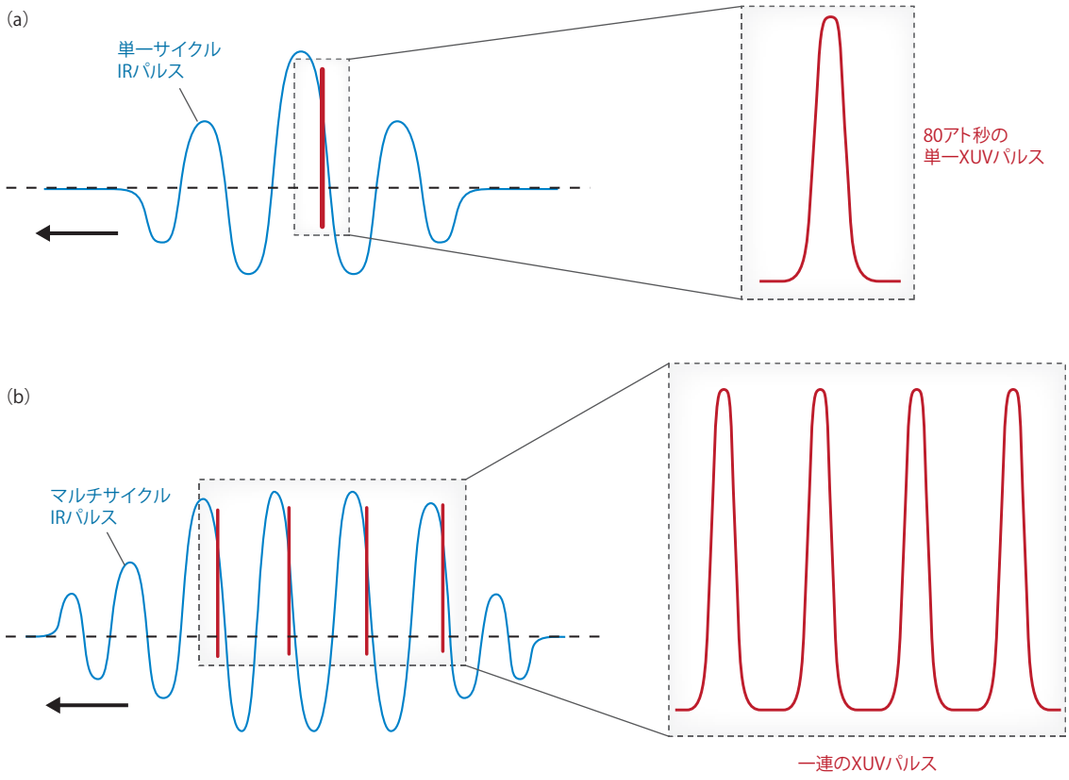


図2　単一サイクルIRパルスは強力な電場で周囲のガスをイオン化し、次に、電場が減衰すると、電子は原子エネルギー準位に落下してXUV光子を放出する。電場は1回だけ鋭いピークになるので、単一XUVだけが放射される（a）。マルチサイクルIRパルスの電場はすべてのサイクルでピークを付けて原子をイオン化し、原子が電子を捕獲すると、再結合放射のバーストが起こり、一連のパルスが発生する（b）。

振器の出力は、二つのファイバ増幅器に分離することで、モード同期パルス列の330mWの平均パワーに増加した。次に、それぞれの増幅器の出力は分離したシリコンプリズム対により圧縮され、二つの異なる高非線形ファイバに結合された。その1つからは1125nmに中心のある広帯域分散波が発生し、もう1つからは1770nmに中心のある広帯域ソリトンが発生した。二つのスーパーコンティニュアムをフィルタリングすると、1つの波長は1450nm以下、もう1つは1600nm以上が残った。これらのパルスを個別に眺めると、短い波長のパルスは2サイクルの長さ、長い波長のパルスは数サイクルの長さになった。しかしながら、ライテンストルファー氏によると、これらのパルスは遅延線を使って混合することで、中心部では建設的干渉が起こり、周辺部では破壊的干渉が起きて、900から2100nmの広がりをもつ単一スーパーコンティニュアムが生成された。生成された4.3fsパルスの長さは1.3サイクルであったが、これは単一サイクルパルスの最短記録になる(図3)。

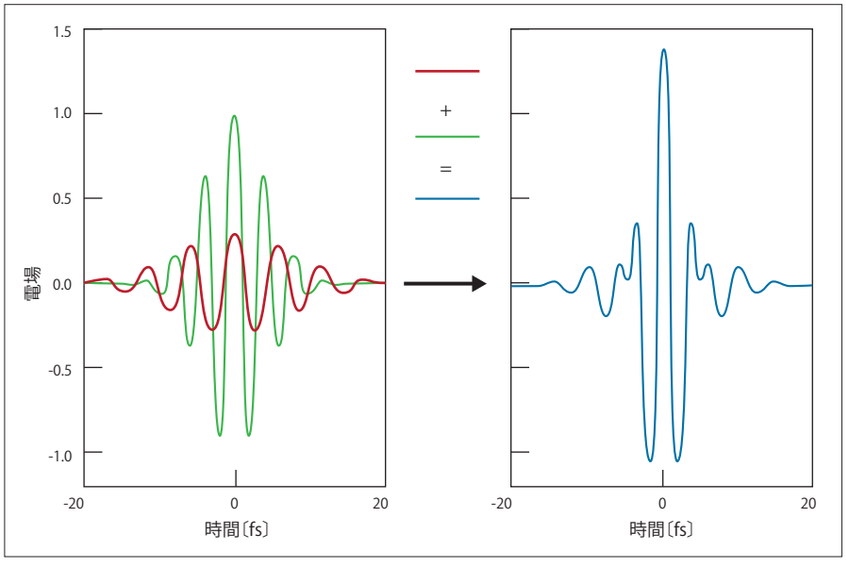


図3　単一パルスを生成するために、コンスタンツ大学の研究者たちはEr：ファイバレーザのフェムト秒パルスを用いて、短波長のスーパーコンティニュアム(緑色)と長波長のスーパーコンティニュアム(赤色)を混合した。その結果、スーパーコンティニュアムが干渉し、中心部の建設的干渉による単一ピークと周辺部の破壊的干渉によるスロープをもつ単一パルスが生成された。(資料提供:ライテンストルファー氏)

## 発展動向

単一サイクルパルスの開拓者たちは研究をさらに拡張している。ライテンストルファー氏のグループは、その位相同期技術をErファイバ増幅器に適用することに成功した[8]。ライテンストルファー氏によると、これは単一サイクルパルスにとって重要な位相制御に向けての大きな一歩になる。彼は「単一サイクルパルスの極端な非線形過程では、それが余弦波と正弦波のいずれのパルスであるかということが重要になる」と述べているが、それは、余弦波の場合は鋭いピークが原パルスの中央にあり、正弦波の場合は原パルスの両側に負と正の大きな山があることによる。彼はツリウムドープファイバの1.8から2.2μmにまで広がる非常に広い帯域も利用しようとしているが、彼によると、この広帯域には単一サイクル技術のもう1つの可能性がある。このファイバレーザによるアプローチは、その低コスト(10万ドルの範囲)に大きな利点があり、精密測定への利用に適している。

グーリールマキス氏はアト秒の最先端に加えて、単一サイクルよりさらに短いパルスの合成も研究している。彼は「単一サイクルではなく、光のサブサイクル限界における制御の可能性を追求する」と語っているが、彼によると、サブサイクル波の合成には赤外から可視までの数オクターブにわたる波長や周波数が必要になる。これはマイクロ波領域で使われている強力な技術を光波領域で複製することが目標になる。このことが成功すれば、原子運動のフェムト秒からアト秒スケールでの制御が可能になる。


参考文献
(1) K. Yamane et al., "Optical pulse compression to 3.4 fs in the monocycle region by feedback phase compensation," Opt. Lett., 28, 2258(Nov. 15, 2003)
(2) S. Raush, "Controlled waveforms on the single -cycle scale from a femtosecond oscillator," Opt. Exp., 16, 9729(June 23, 2008).
(3) D. Brida et al., Opt. Lett., 33, 741(2008).
(4) A.L. Cavalieri et al., "Intense 1.5 -cycle near infrared laser waveforms and their use for the generation of ultra-broadband soft-x-ray harmonic continua," New J. Phys., 9, 242(2007).
(5) E. Goulielmakis et al., "Single -cycle nonlinear optics," Science, 320, 1614(June 20, 2008).
(6) A. Sell et al., "8 -fs pulses from a compact Er:fiber system: quantitative modeling and experimental implementation," Opt. Exp., 17, 1070(Jan. 19, 2009).
(7) G. Krauss et al., "Synthesis of a single cycle of light with compact erbium -doped fibre technology," Nat. Photon., 4, 33(2010); dot: 10.1038/NPHOTON.2009.258.
(8) G. Krauss et al., "All -passive phase locking of a compact Er:fiber laser system," Opt. Lett., 36, 540(Feb. 15, 2011).


LFWJ