

フェムト秒増幅器のトレンドー チタンサファイア対イッテルビウム

マルコ・アリゴーニ、スティーブ・ブッチャー、ジョセフ・ヘンリック

チタンサファイアおよびイッテルビウムフェムト秒増幅技術、一方は成熟し、もう一方はとともダイナミックな状態にあるこれら2つのコア技術は、現時点では互いに補完的なパフォーマンスを提供しており、いずれを選択するのが最適なのかは、用途次第である。

増幅されたフェムト秒レーザパルスは、高いピークパワー（電界）と非常に短いパルスによって、非線形的なプロセスと優れた時間分解能を達成するため、多数のアプリケーションに採用されている。長年にわたり、超高速発振器／増幅器システムに最適な利得材料といえば、間違いなくチタンサファイア（Ti:サファイア）であった。最近では、イッテルビウム（Yb）をドープした結晶、特にファイバが、ますます幅広い種類のフェムト秒増幅器に使用され、そうした増幅器は、パルスエネルギーと平均出力の面で、かなり異なる（つまり補完的な）性能特性を備えている。本稿では、これら両方の技術とその応用分野の現状について概説し、柔軟な拡張性を備えるYbが今、2つの技術の間のギャップを埋め、チタンサファイア技術がこれまで適用されていた領域に、どのように影響を与え始めているかについて紹介する。

チタンサファイア増幅器

チタンサファイア結晶は利得が高いため、ミリジュール（mJ）あたりの価格が最も低く、最高のパルスエネルギーと最短のパルス幅の増幅器が実現でき、他の追従を許さない。2段階の増幅（一般的には、シングルパス増幅器と再生増幅の構成）を使用することに

より、商用の増幅器（米コヒレント社 [Coherent] の「Legend Elite HE+」シリーズなど）で、極低温冷却を行うことなく、1kHzで13mJを超えるパルスエネルギーが達成可能である。実際、キロヘルツレベルのチタンサファイア増幅器の設計における制約要因は、利得結晶からの熱抽出と、レーザ上準位の寿命が比較的短いことである。このことにより、これらのミリジュール／パルス増幅器は、熱電（TE）冷却または水冷式であり、7～15Wの平均出力レベルと1～10kHzの繰り返し周波数で、最適な性能を示す。その高いパルスエネルギーと、最小で25 fsという短いパルス幅により、数百ギガワットものピークパワーが得られる。

チタンサファイアは、今や成熟した増幅器技術であるため、新しいモデルは大抵、パワーやキャリアエンベロープ位相（Carrier Envelope Phase：CEP）の安定性など、出力仕様が段階的に改善されている。特にワンボックス型の製品については、信頼性と環境的安定性を高めてメンテナンス間隔を向上させる取り組みが絶えず続けられている。チタンサファイアは、700～1080nmの範囲でチューニングが可能だが、増幅器は一般的に、チューニング曲線の800 nmのピーク付近で最適な動作が得られるように設計され、1

つ以上のチューナブルな光パラメトリック増幅器（optical parametric amplifier：OPA）を励起することにより、幅広いチューナビリティが達成される。

チタンサファイア増幅器の 応用分野

高いパルスエネルギー、短いパルス幅、高いピークパワーというユニークな組み合わせによりチタンサファイア増幅器はこれまでに、物理学、化学、生物学、材料科学における様々なアプリケーションを可能にしている。非常に高度な用途の1つがアト秒物理学である。高調波発生（High Harmonic Generation：HHG）を用いて、極紫外線（XUV）波長で超広帯域パルスを生成し、これを圧縮することにより、光キャリアがパルスエンベロープに固定されている場合に（CEP安定化）、アト秒スケールの孤立パルスを生成するというものである。

別の電磁スペクトルでは、チタンサファイア増幅器は、テラヘルツパルスの生成に非常に適している。これらは、例えば半導体材料の調査に利用できる。集積回路では、過渡電界が1cmあたり数十MV（メガボルト）に達する場合がある。固体物理学者は、それ以上の電界強度で基本的な電荷輸送メカニズムがどのように変化するかを解明したいと考えている。多くの半導体材料の標準的な破壊電界強度は、約1MV/cmである。そのため、これらの材料を試験するためにそれよりも高い静的電界を印加すると、直ちに故障（燃

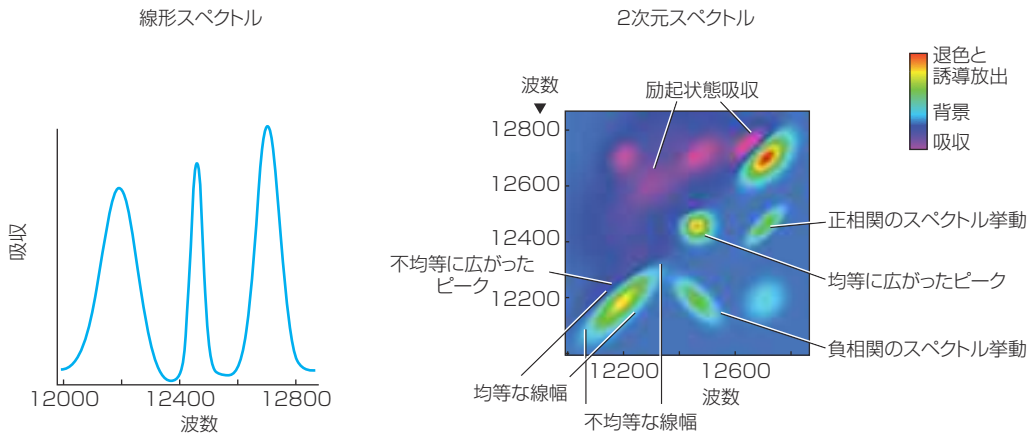


図1 2次元電子スペクトルにはさまざまな種類の情報が含まれている。(提供:米フレミング・グループ社[Fleming group])

焼)が生じる。更に高い磁場を安全に印加するための解決策の1つは、サブピコ秒のテラヘルツパルスを使用することである。

独レーゲンスブルク大(University of Regensburg)のルパート・フーバー教授(Rupert Huber)の研究室では、安定性の高いチタンサファイア増幅器を、出力にテラヘルツ波数の差がある2個のチューナブルOPAの励起し、固有のCEP安定性に優れたテラヘルツパルスを生成している。このパルスは、100MV/cm近い過渡電界の影響下におけるセレン化ガリウム試料内の電子の挙動(ブロッホ振動など)の調査に使われている。テラヘルツ検出器において8 fsのプロープパルスにより、試料からの信号に電気光学的な「ストロボスコープ」のゲーティングを適用することにより、ブロッホ振動や、そうした高い電界において短時間でのみ出現するコヒーレント及び干渉導電メカニズムに関する、重要な情報を含むデータを得ている。

チタンサファイア増幅器の利用が増加しているもう1つの分野は、2次元分光法である。試料からの光学信号(放射、高調波変換など)を、OPAからの超広帯域パルスの波数の関数として記

録することにより、独特の組み合わせの構造的および動的データが得られる(図1)。ほとんどの2次元分光測定は、時間領域で行われ、フーリエ変換(FT)アルゴリズムによって周波数領域に変換される。1つの周波数の光を使用する代わりに、広帯域光のウルトラファーストパルスを用いることにより、すべての周波数を同時に記録することができる。

コヒレント社の「Astrella」など、ワンボックス型のチタンサファイア増幅器は、簡易操作で安定していることから、上記のような比較的複雑で、データの取得に数時間から数日もの時間を要する実験に最適である。例えば、米カリフォルニア大バークレー校(University of California, Berkeley)のグラハム・フレミング教授(Graham Fleming)の研究室では、2次元分光法を用いて、次世代の太陽電池に使われる可能性のあるペロブスカイトフィルムの基礎物理学の調査を行っている。米カリフォルニア大サンディエゴ校(University of California, San Diego)のウェイ・シオン教授(Wei Xiong)の研究室では、独自の種類の2次元分光法を用いて、人工光合成での重要性が期待されるCO₂削減触媒の研究を行っている。

イッテルビウム増幅器とその応用分野

チタンサファイア増幅器は成熟した技術だが、Ybはそれよりも15年以上新しいため、性能向上という点ではよりダイナミックである。チタンサファイアとは異なり、Ybはゲインファイバへの添加剤としても利用可能である。このことにより、光学励起による熱負荷をより大きな表面積/体積の長い経路に拡散させることができる。これにより、バルク材料の添加剤として使用した場合でも、Ybのレーザ発振特性に対する熱感度を低減させることが可能で、チタンサファイアよりも高い励起平均出力が得られ、極低温冷却は不要である。

また、量子欠損がはるかに小さいため(励起波長980nm / 発振波長1040nmのYbと励起波長532nm / 発振波長800nmのチタンサファイアを比較)、熱として失われるエネルギーが小さい。最後に、ダイオードからの波長980nmの励起の方が、LD励起のレーザを用いて532nmに波長変換するレーザよりも安価である。そのためYbは、チタンサファイアよりも低いワットあたりコストで、はるかに高い平均出力にスケールアップできる。実際、

表1 チタンサファイア増幅器とYb増幅器の主要な性能特性の比較

主要パラメータ(標準)	チタンサファイア	イッテルビウム
パルスあたりエネルギー	5~15mJ	50 μJ~2mJ
平均出力	5~15W	20~100W
パルス幅	25~100fs	200~350fs
繰り返し周波数	1~10 kHzで固定	1 kHz~1 MHz超で調整可能
励起	DPSS CW / パルス緑色レーザ	980 nmのCWダイオード
コスト効率	mJあたりコストで有利	Wあたりコストで有利
出力と繰り返し周波数の柔軟性	制約あり	優れている

Yb増幅器は、デスクトップコンピュータほどのサイズで数十Wの出力を実現できる

平均出力向上の一方で、一般的なYb増幅器は、フェムト秒領域ではパルス出力が数mJまでに限定され、チタンサファイア増幅器のような10mJレベルのパルス出力には到達できない。Ybファイバシステムは、非常に小さなファイバコア内部のピーク出力に起因する限界があり、Ybバルクシステムには通常、達成可能なエネルギーとパルス幅の間にトレードオフがある。

Ybのゲイン帯域幅はチタンサファイアほど広くないため、必然的にパルスは長くなる。そのため、バルクのチャープパルス増幅(Chirped-Pulse Amplification: CPA) (あるいは、ファイバの自然分散)後の再圧縮によるパルス幅は、約250~300fsとなる。多くの用途に対して十分に短いパルス幅だが、励起プローブや2次元分光法などの時間分解実験に用いられるチタンサファイア増幅器の時間分解能(及びスペク

トル帯域幅)には一致していない。ただし、この制約を克服するための複数の方法が存在する。

チタンサファイア増幅器と同様に、Ybシステムにおいても、波長チューニングにOPAが用いられている。ハイブリッド設計を採用するOPAにより、有効チューニング範囲を維持しつつ、パルス幅を大幅に縮小することができる。このようなOPAは、ノンコリニア段に、非常に広範囲の波長チューニングを実現する高出力コリニア段が続く構造となっており、40~50fsの短いパルス幅を生成する。

Yb増幅器のコンパクトな構造も、増幅チューナブルシステム全体に付加的なメリットをもたらす。例えば、独クラス5フォトニクス社(Class 5 Photonics)の光パラメトリックチャープパルス増幅器(Optical Parametric Chirped Pulse Amplifier: OPCPA)である「White Dwarf」には、コヒーレント社のYbファイバ増幅器「Monaco」とOPCPAが1つのコンパクトなボッ

クスに搭載されている。これによってこのOPCPAは、Ybベースのシステムの性能を、超短パルス(9fs未満)の領域と、約50 fsのパルス幅で幅広いチューニングが可能な領域にまで拡張し、シングルボックスでカスタマイズ可能なパフォーマンスを提供している。

つまり、研究者は現在、チタンサファイアとYbの2つの高性能技術が選択できる状態にある(表1)。現時点では、チタンサファイアでしか得られない高いパルスエネルギーとピークパワーが必要な用途を除き、高繰返周波数での柔軟性と高平均出力を備えるYb増幅器は、数多くのウルトラファーストのアプリケーションに採用されている。Ybのこれらの用途は、2つのカテゴリに主に分類される。

50~250kHzの繰り返し周波数では、ポンププローブと過渡吸収分光法の研究に用いられている。チタンサファイアよりも繰返周波数が高いため、より短時間でS/N比に優れたデータが取得できる。このことは、関係する電子ダイナミクスが非常に高速で、試料の励起にある程度のエネルギーしか必要としないため、固体材料研究に当てはまる。例としては、グラフェン、量子ドット、ナノ粒子などの2次元材料や、特殊なフォトリック特性を持つメタマテリアル、周囲温度の半導体や新しい太陽電池の研究などがある。ただし、特に中赤外域では、液相および気相の多くの実験で、チタンサファイアレーザにしか1~5kHzの繰り返し周波数で供給できないエネルギーが必要となる。その低い繰返レートは、試料の回収率やシステムの取得速度によって決定される。

1~10MHzというYbレーザでしか得られない繰り返し周波数を必要とする用途は、神経科学における脳深部イ

イメージングのための三光子顕微鏡法や、二光子励起光遺伝学といった、イメージング手法に関連する。この範囲の繰り返し周波数は、画像走査において基本的に必要となる。従来のラスタースキャンでは、ほとんどの多光子顕微鏡が 512×512 の撮像領域(26万2000ピクセル)で動作する。数Hzの画像更新レートと、3個以上のピクセルあたりパルス数で動作するには、MHzレベルの繰り返し周波数が必要である。ビデオレートのイメージングには、さらに高い周波数が必要になる。

一例として、米アレン研究所(Allen Institute)のジャック・ウォーターズ氏(Jack Waters)率いるチームは、Yb増幅器/OPAの組み合わせを使用して、コリン作動性神経と皮質神経回路の間の通信を研究している。コリン作動性神経とは、アセチルコリンを放出して他のネットワークに伝達する神経である。脳神経核に存在し、皮質に軸索を投射する。このチームは、1300nmで三光子励起したカルシウム指示薬を使用している。この長い波長は、脳組織における拡散が小さいだけでなく、マウス頭蓋骨を透過することができるため(図2)、ガラス窓が不要である。視野を制限するガラス窓は、マウス皮質の全体的な影響を観察する研究の妨げとなる。

パフォーマンスギャップの橋渡し

ウルトラファースト増幅器の最新動向として、Ybの柔軟性を活用し、標準的なYb増幅器とチタンサファイア増幅器の間の性能ギャップを埋めようとする動きがある。つまり、高パルスエネルギーと高繰返周波数の両方を達成しようというものである。コヒレント社の「Monaco HE」はその一例で、25Wの平均出力と最大250kHzの繰り返し

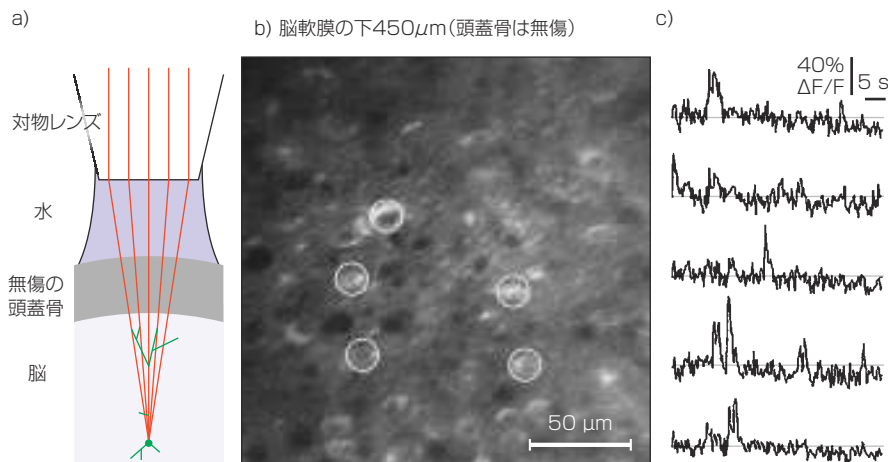


図2 無傷のマウス頭蓋骨を通して、カルシウムイメージングを行った様子。a)は、アクリル板やカバースリップなしの構成図、b)は、Emx1-IRES-Cre;CaMk2a-tTA;Ai94マウスの時間平均投影像(フレームレート:10Hz、無傷のマウス頭蓋骨を通して1300nmで三光子励起、厚さ:約300 μ m、顕微鏡焦点:脳軟膜の下450 μ m)、c)は、GCaMP発現の体細胞からの自発的なカルシウム過渡応答((b)の円部分に対応)。(提供:米アレン研究所)

周波数を達成する。この種の増幅器は、10kHz以下で2mJのパルスあたりエネルギーを、小さなワンボックス型構造で供給可能である。ちなみに、20 W、10 kHzのチタンサファイア増幅器には、極低温冷却に加えて、40平方フィート(3.7m²)の卓上スペースが必要である。

これまでチタンサファイア増幅器が使用されていた多数の用途に、この新しい動作領域とその本質的な柔軟性のメリットがあると期待されている。例えば、固体試料に対する多次元や時間分解の分光法、テラヘルツ分光法、光電子放射分光法などである。そのすべての用途が、キロヘルツから数百キロヘルツに繰り返し周波数が増えることによる、データ蓄積の高速化の恩恵を

受ける。それと同時に、柔軟な繰り返し周波数により、1つまたは2つのOPAを組み合わせた単一のウルトラファーストレーザシステムで、さまざまな種類の試料の研究を行うことができる。

ウルトラファースト増幅器の動作領域は、科学用レーザ技術、つまり、胸躍る最先端科学を支える最先端レーザ性能の頂点に位置する。後にノーベル賞を受賞したジェラルド・ムル氏(Gérard Mourou)とドナ・ストリックランド氏(Donna Strickland)の重大な研究によって、超高速パルスのCPAが実証されてから35年近くの年月が経過したが、ウルトラファースト増幅器とその応用分野の開発が、直ちに減速する気配はまったく見られない。

著者紹介

マルコ・アリゴニ(Marco Arrigoni)は、米コヒレント社(Coherent)のマーケティング担当ディレクター、スティーブ・ブッチャー(Steve Butcher)は、同社科学マーケティングマネージャー、ジョセフ・ヘンリック(Joseph Henrich)は、同社シニア製品ラインマネージャー。e-mail: marco.arrigoni@coherent.com URL: www.coherent.com.