

# 超短パルスレーザーの基礎：パート 1

オリビア・ホイラー

本稿は、超短パルスレーザーについて解説する2部構成記事の前編である。

よく晴れた春の日の午後、窓の外を眺めている状況を思い浮かべてほしい。緑の木々や咲き始めた花々を愛で異なるパルス幅に対するパルス帯域幅っていると、輪郭のぼやけた小さなダーツが横切るのが見えた。その動きを目で追うと、やがてその物体が停止し、美しいハチドリであることに気づく。見るのは今年初めてだ。そこでスマートフォンを取り出し、暖かい季節の到来を知らせるこの使者を、写真に収めてソーシャルメディアにアップしようと思ったが、ハチドリは撮影ボタンの音に驚いて飛び去った。多くの「いいね」が付くに違いなかった写真には、画面を横切る大きなぼやけた物体しか写っていなかった。

これに似た失望感が、科学コミュニティ内における超短パルスレーザーの開発の動機付けとなった。羽ばたくハチドリを捉える代わりに、パルス幅がフェムト秒～ピコ秒 ( $10^{-15} \sim 10^{-12}$  秒) レベルのこれらのレーザーは、分子振動<sup>(1)</sup> や電子運動<sup>(2)</sup>、さらには量子現象<sup>(3)</sup> などの事象を捉えるために使用される。超短パルスレーザーは1秒の1000兆分の1のタイムスケールで、基礎的な物理現象に対する私たちのアクセスを拡大するとともに、産業プロセスに革新をもたらし続けている。

## 超短パルスレーザー固有の特長

超短パルスレーザーは、その非常に短いパルス幅により、それよりも長いパルス幅のパルスレーザーや連続波 (Continuous Wave : CW) レーザとは

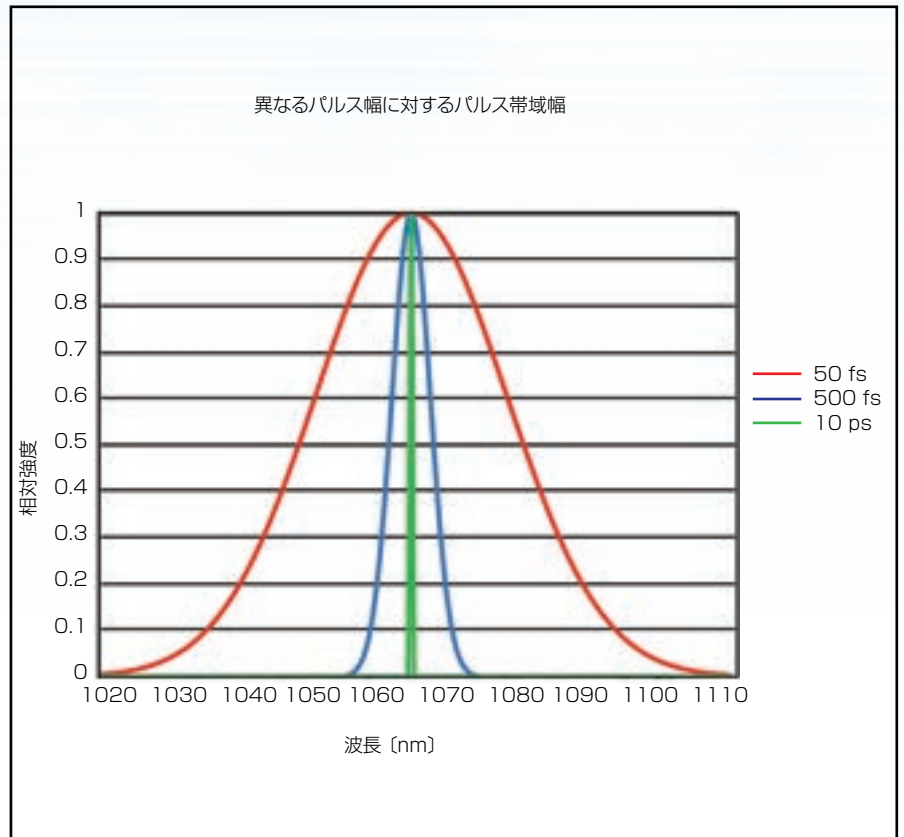


図1 10ps(緑色)、500fs(青色)、50fs(赤色)のレーザーパルスを生成するために必要な最小スペクトル帯域幅

異なる、主要な特長を備えている。それだけの短いパルスを生成するには、広いスペクトル帯域幅が必要である。特定幅のパルスを生成するための最小帯域幅は、パルスの形状と中心波長によって異なる。一般的にこの関係は、不確定性原理に基づく時間帯域幅積 (Time Bandwidth Product : TBP) によって表される。ガウシアンパルスの場合、TBPは次の式で表される。

$$TBP_{Gaussian} = \Delta\tau\Delta\nu \approx 0.441$$

ここで、 $\Delta\tau$ はパルスの時間幅、 $\Delta\nu$ は周波数帯域幅である<sup>(4)</sup>。基本的にこの式は、スペクトル帯域幅とパルス幅の間に相互関係があるに違いないことを示している。つまり、パルスが短くなるほど、それを生成するために必要な帯域幅は広くなる。図1は、さまざまなパルス幅を実現するために必要な最小帯域幅を示している。

広いスペクトル帯域幅に加えて、驚くほど高いピーク出力も、非常に短いパルス幅がもたらす結果の1つである。これを示すために、10WのCWレーザー

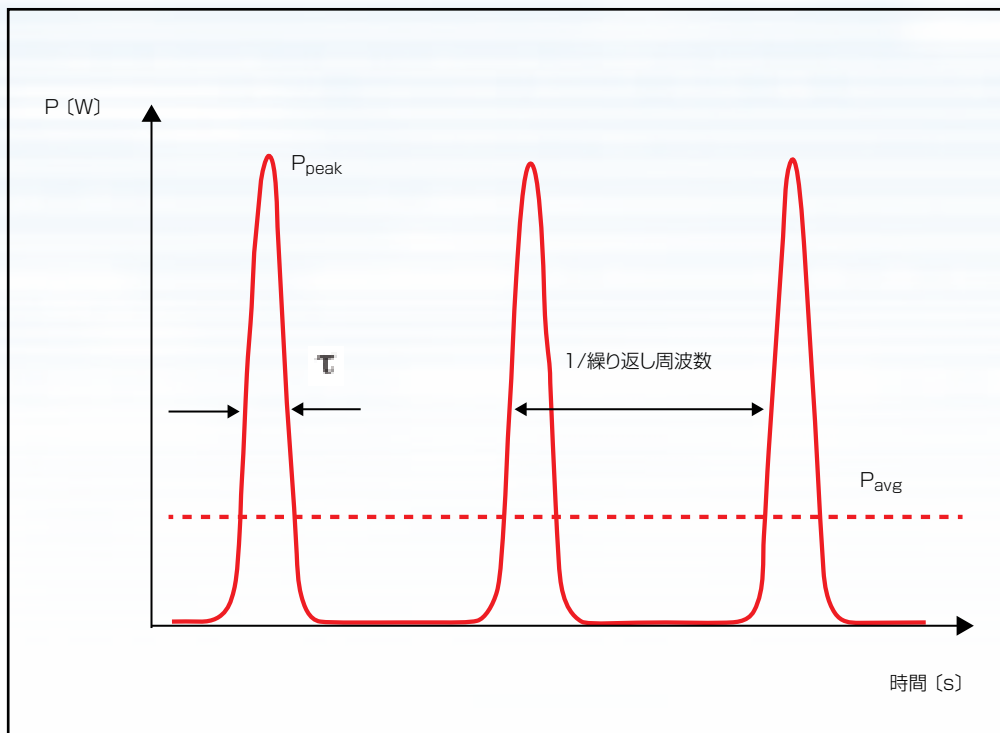


図2 パルス幅 $\tau$ と特定の繰り返し周波数を備えるレーザーの平均出力 $P_{avg}$ とピーク出力 $P_{peak}$ を示した図

と10Wの超短パルスレーザーのピーク出力の違いを調べてみよう。超短パルスレーザーのパルス幅は150fs、繰り返し周波数は80MHzとする。これは、多くの市販の超短パルスレーザー源の一般的な属性である。

CWレーザーの場合、平均出力とピーク出力は等しい。このレーザーは、常に10W、すなわち10J/sを出力する。超短パルスレーザーの場合、平均出力はやはり10Wで、CWレーザーと同じである。2つのレーザー源の違いは、超短パルスレーザーはほんの短い時間の出力で、10Wの平均出力を達成することである。図2は、平均出力とピーク出力の違いを示している。

超短パルスレーザーの場合、10Wは1秒あたりに出力される8000万個のパルス(この数は繰り返し周波数に基づく)に分散される。一見すると、このレーザーのマイクロジュール未満のパルスエネルギーは、ごく少量に思えるかもしれない。しかし、このエネルギー

がわずかに150fsの時間に凝集されることを考慮すると、このレーザーは80W以上という莫大なピーク出力を持つことになり、その大きさは平均出力の1万倍を超えている。このような非常に高いピーク出力と広いスペクトル帯域幅によって、超短パルスレーザーは幅広い種類の応用分野で有効に活用されているが、これらの特長は、同レーザーに固有の技術的課題の一部の要因にもなっている。

### 超短パルスレーザーの技術的課題

独自のプロジェクトまたはプロセスに超短パルスレーザーを適用する際には、その広いスペクトル帯域幅、驚くほど高いピーク出力、非常に短いパルス幅について考察し、それらを適切に管理する必要がある。一般的に、その中で最も単純な作業は、レーザーの広いスペクトル出力の管理である。これまでは主にCWレーザーや、より長いパルス

幅のパルスレーザーを扱っていたという場合は、手持ちの光学部品では、超短パルスレーザーパルスの帯域幅全体を反射または透過できない可能性がある。朗報は、多くのサプライヤーがそうしたニーズを念頭に置いて、超短パルスレーザーの光学系を設計しているため、超短パルスレーザーの帯域幅を十分にカバーするミラーやレンズなどの光学部品は、かなり簡単に調達可能だということである。

光学部品のレーザー損傷しきい値(Laser Damage Threshold : LDT)も、超短パルスレーザーとその他のレーザーの重要な相違点であり、超短パルスレーザーのユーザーに課題をもたらす可能性がある(図3)。ナノ秒レーザーの光学部品を調達する場合、LDTは5~10J/cm<sup>2</sup>程度であるのが一般的である。超短パルスレーザーの光学部品の場合、そのような大きな値は実際にはあり得ず、LDTは高い確率で1J/cm<sup>2</sup>未満で、0.3J/cm<sup>2</sup>に近い値が一般的である。レーザーのパ

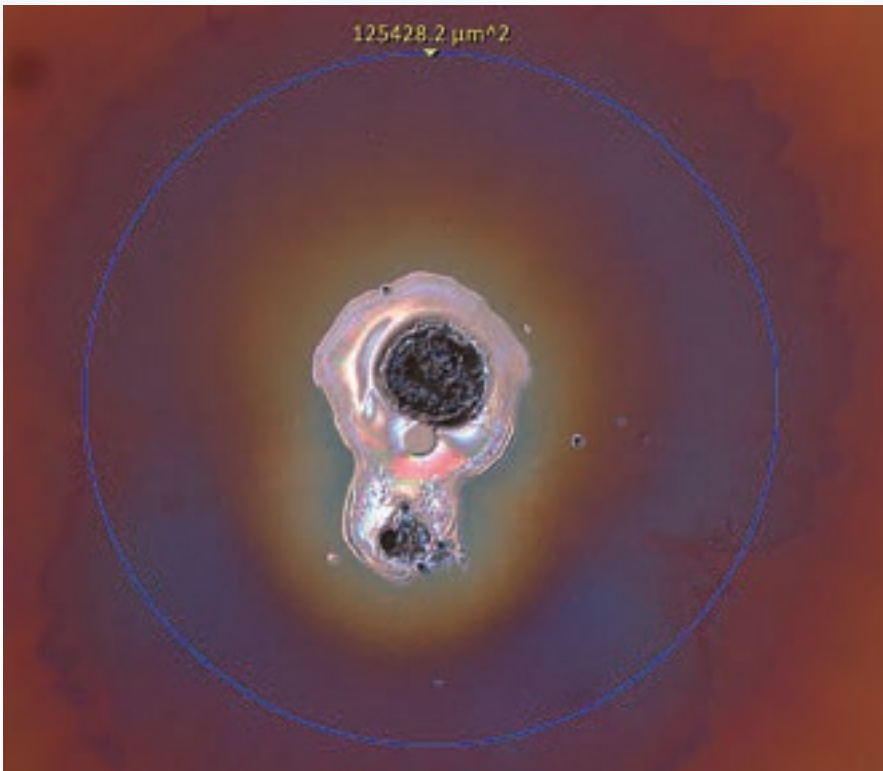


図3 光学面に対するレーザー誘起損傷は、レーザーシステムの性能を低下させ、その効果を無効にし、さらにはレーザーシステムを危険なものにする恐れさえある。超短パルスレーザーはパルス幅が短いため、その損傷メカニズムは従来のレーザーとは大きく異なる

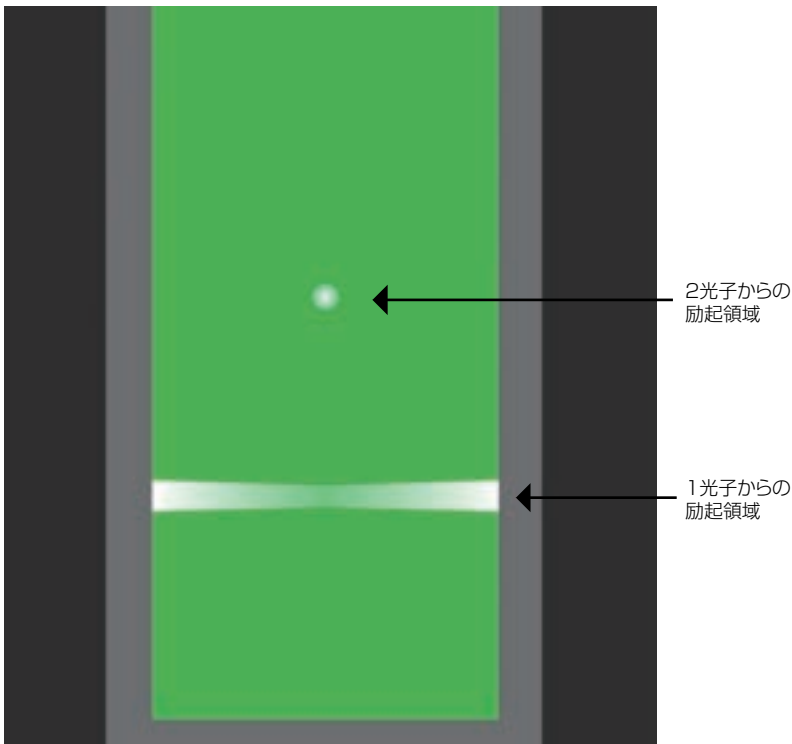


図4 2光子(上)と単一光子(下)の顕微鏡法による信号位置を示した図。単一光子信号は焦点面の外側からの背景信号によって妨害されるのに対し、2光子を重ね合わせると、より小さな焦点体積から信号が生成される。これには、光毒性を防ぎ、試料に対する損傷を最小限に抑える効果がある

ルス幅によってLDT値にこれだけ大きな違いがあることは、生じるレーザー損傷のメカニズムの違いを反映している。

ナノ秒レーザーやさらに長いパルスの場合、主要な損傷メカニズムは本質的に熱的なものである。入射光子を吸収した材料が加熱して、格子の変形につながる恐れがある。熱膨張、格子ひずみ、亀裂、熔融といった影響は、レーザー損傷の熱的経路による一般的な結果である<sup>(5)</sup>。超短パルスレーザーの場合、パルスそのものの持続時間は、周辺材料の格子に熱が伝導する時間よりも短い。その代わりに、超短パルスレーザーの高いピーク出力によって損傷メカニズムは、多光子吸収やイオン化といった、より非線形の経路へとシフトする<sup>(6)</sup>。同じ理由に基づき、ナノ秒パルスを対象に規定されたLDT定格値を、超短パルスにそのまま適用することはできない。従って、特定の用途に対して最も適切な光学系は、その用途と同じ条件下(レーザー波長、パルス幅、繰り返し周波数など)で測定したLDT定格値が十分に高いものということになる。

超短パルスレーザーに伴う最も難しい技術的課題の1つは、レーザーによって提供される非常に短いパルス幅を維持することである。非常に短いパルスは、時間歪みの影響を非常に受けやすく、パルス幅が短いほどその傾向は高まる。レーザーが50fsのパルスを出力したとしても、ミラーやレンズを使用するか、あるいは単に空気を介して、このパルスを実目的位置まで伝達する間に、超短パルスパルスの幅は時間的に拡大する可能性がある。

超短パルスコミュニティでは、この時間歪みを群遅延分散(Group Delay Dispersion : GDD)として定量化する。GDDは周波数に依存する値で、与えられた材料の厚みに線形比例する。ウ

インドウ、レンズ、対物レンズなどの透過型光学部品のGDDは一般的に正であるため、一旦は圧縮されたパルスが透過型光学部品を通ると、パルス幅はレーザーから最初に出力されたときよりも長くなる可能性がある。

ナノ秒やピコ秒など、より長いパルスの場合、GDDは大きな問題ではない。しかし、フェムト秒パルスの場合、レーザービームの経路にある10mmのN-BK7でさえも、中心波長800nmの50fsパルスの幅を12%以上広げる可能性がある。これは、ビームの経路に2つのウィンドウまたはフィルタが配置されている状態とほぼ等価である。時間歪みに対するこの傾向から、GDDの追加が最小限または皆無で、パルス幅が拡大する確率を抑える超短パルスレーザー用の特殊な光学系を使用することが推奨される。

## 超短パルスレーザーの 応用分野

超短パルスレーザーの非常に短いパルス幅と高いピーク出力は、幅広い種類の応用分野にメリットをもたらす。応用分野の例を以下に示す。

**分光法。**超短パルスレーザーはその登場以来、分光法に対して普遍的に適用されている。パルス幅をフェムト秒レベルに短縮することにより、物理学、化学、生物学における動的過程が突如として観測可能となった<sup>(7)</sup>。超短パルスレーザーの出現によって、原子運動の観測が可能となり、分子振動や解離から光合成タンパク質におけるエネルギー伝達に至るまでの基本過程に対する理解が深まっている<sup>(8)</sup>。

**生体イメージング。**超短パルスレーザーの非常に高いピーク出力は、多光子励起顕微鏡法などの生体イメージングの分解能を高めることが可能な、非線

形プロセスに対応する。これらの研究では、2つの光子を空間と時間の両方で重ね合わせて、生体媒質または蛍光ターゲットからの非線形信号を生成することが必要である。この非線形メカニズムは、単一光子プロセスによって行われる研究で問題となっている、背景信号を大幅に低減することによって、イメージング分解能を改善する<sup>(9)</sup>。**図4**は、この背景信号の低下によって、より高い分解能が得られることを示している。

**レーザー材料加工。**超短パルスレーザーは、その非常に短いパルス幅によって、レーザー微細加工と材料加工の分野に革新をもたらしている。LDTに関する部分で説明したように、超短パルスレーザーのパルスそのものは、材料の格子に熱が拡散する時間よりも短い。これは、超短パルスレーザーによって生成される熱影響部(Heat Affected Zone: HAZ)がナノ秒パルスレーザーと比べてはるかに小さいために、カーフ損失は低くなり、より精密な加工が可能になることを意味する<sup>(10)</sup>。この原理は、医療分野にも適用されており、超短パルスレーザーによる高精度な切断が、周辺組織に対する損傷を低減し、患者体験を向

上させるために、日常的に用いられている<sup>(11)</sup>。

## 超短パルスレーザーの未来： パルス幅はさらに短く

超短パルスレーザーの応用分野に関する研究が続けられるのに伴って、新しく改良された超短パルスレーザー源の開発も続けられている。さらに高速な物理過程に関する洞察を得るために、多くの研究者らがアト秒パルスの生成に目を向けている。アト秒パルスとは、極紫外線域(extremeultraviolet: XUV)における $10^{-18}$ 秒レベルのパルスである。

電子運動を追跡する研究は既に、これらのさらに短い超短パルスを使用して行われており、アト秒科学の分野によって、電子構造と量子力学に関する理解はますます深まっていくだろう<sup>(12)</sup>。XUVアト秒パルスを産業プロセスに取り入れる動きは、まだ大きく支持される状態にはないが、フェムト秒やピコ秒のレーザー源がそうだったように、この分野の継続的な研究と進歩によって、この技術がいずれは研究室から製造フロアへと押し出されるであろうことは、ほぼ間違いない。

### 参考文献

- (1) J. Bredenbeck et al., J. Am. Chem. Soc., 126, 5, 990-991 (2004).
- (2) F. V. A. Camargo et al., Nano Lett., 21, 3, 1461-1468 (2021).
- (3) M. Maiuri et al., J. Am. Chem. Soc., 142, 3-15 (2020).
- (4) P. Lazaridis et al., Opt. Lett., 20, 10, 1160-1162 (1995).
- (5) R. Wood, Laser-Induced Damage in Optical Materials, 9-24 (2014).
- (6) X. Jing et al., Opt. Express, 17, 26, 24137-24152 (2009).
- (7) O. Gesner et al., Sci. Rep., 311, 219-222 (2006).
- (8) D. Zigmantas et al., Chem. Phys. Rev., 3, 041303 (2022).
- (9) C. J. R. Sheppard, J. Biomed. Opt., 1, 014511 (2020).
- (10) K. C. Phillips et al., Adv. Opt. Photon., 7, 4, 684-712 (2015).
- (11) C. L. Hoy et al., IEEE J. Select. Topics Quantum Electron., 20, 7100814 (2014).
- (12) J. Li et al., Nat. Commun., 11, 2748 (2020).

### 著者紹介

オリビア・ホイラー (Olivia Wheeler) は、米エドモンド・オブティクス社(Edmund Optics)の超短パルスレーザー光学エンジニア。

e-mail: owheeler@edmundoptics.com URL: www.edmundoptics.com

ILSJ