

修士学位論文

ボース・アインシュタイン凝縮の実現を目指した
ポジトロニウムのレーザー冷却用光源の開発

Development of Optics for Laser Cooling of Positronium
for Achievement of Bose-Einstein Condensation

東京大学 大学院理学系研究科
物理学専攻 浅井研究室

村吉 諄之

2018年1月25日

概要

ポジトロニウム (Ps) は、電子とその反粒子である陽電子の束縛系であり、最も軽い水素様原子である。Ps のボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) は反物質を含む系で初の BEC として最も有力な候補であり、反物質の重力測定や 511 keV γ 線レーザーなどに応用できる。本研究では、Ps の BEC 実現を目指して、Ps をレーザー冷却するための光源開発を行った。

Ps は不安定原子であり、142 ns で γ 線に崩壊する。また、水素原子の 920 分の 1 と軽いため光子吸収の共鳴周波数のドップラー広がりが大きく、冷却過程における温度変化も大きい。BEC 実現のための高速かつ効率的な冷却を行うためには、これらの性質に対応した特殊なスペックを満たすレーザーが必要である。そこで、連続発振 729 nm シードレーザー、波長スペクトル操作、シードレーザーのパルス化、強度増幅、波長変換の 5 段階で冷却用レーザーを作成する。現在はシードレーザーの製作を完了し、シードレーザーをパルス化する Ti:Sapphire 共振器を製作中であり、持続時間 2 μ s, パルスエネルギー 8.7 μ J の 729 nm パルスの生成に成功している。また、パルス強度を増幅するためのマルチパス増幅および波長変換部分についてテスト実験を行い、基本原理を検証した。

今後の課題は、Ti:Sapphire 共振器で発生する 729 nm パルスの安定的かつ継続的な発生、パルスエネルギーの 100 μ J までの増加、テスト実験の結果に基づいたマルチパス増幅部の設計の改良、波長スペクトル操作部分の製作である。これらを達成して Ps 冷却用レーザー開発を完了し、Ps のレーザー冷却を行い BEC を実現する。

目次

概要		i
第 1 章	はじめに	1
1.1	ポジトロニウム	1
1.2	ボース・アインシュタイン凝縮	1
1.3	ポジトロニウムのボース・アインシュタイン凝縮	2
1.4	本論文について	5
第 2 章	ポジトロニウムのレーザー冷却	6
2.1	レーザー冷却の原理	6
2.2	ポジトロニウムのレーザー冷却	6
2.2.1	BEC に向けたポジトロニウム冷却実験の概要	6
2.2.2	レーザー冷却の見積もりと必要スペック	7
2.3	Ps 冷却用レーザーの設計概要	12
第 3 章	外部共振器型半導体レーザー (ECDL)	16
3.1	ECDL の原理	16
3.1.1	ECDL の構成	16
3.1.2	ECDL の発振波長	17
3.2	ECDL の製作	18
3.3	ECDL の性能評価	20
3.3.1	ECDL の出力強度	20
3.3.2	ECDL の波長設定	20
3.3.3	ビートの観測による ECDL の線幅の測定	21
3.3.4	ECDL の中心周波数の安定性	22
第 4 章	Ti:Sapphire 共振器	25
4.1	原理	25
4.1.1	Ti:Sapphire パルスレーザー	25
4.1.2	Hänsche-Couillaud 法による共振器の lock	28

4.2	プロトタイプ共振器の作製と評価	30
4.2.1	プロトタイプ共振器のまとめ	39
4.3	共振器のアップグレード	40
4.4	まとめと展望	45
第 5 章	マルチパス増幅方式による 729 nm パルスの強度増加	46
5.1	マルチパス増幅の原理	46
5.2	テスト実験	49
5.3	まとめと展望	55
第 6 章	非線形結晶を用いた波長変換	57
6.1	LBO 結晶を用いた第 2 高調波発生 (SHG) の理論的基礎	57
6.2	SHG の検証実験	62
6.3	まとめと展望	68
第 7 章	レーザー開発のまとめと展望	69
7.1	本実験のまとめ	69
7.2	EOM による周波数スペクトル制御	70
7.2.1	周波数シフト	70
7.2.2	広線幅化	71
第 8 章	BEC に向けての展望	73
8.1	高密度陽電子源の開発	73
8.2	Ps 生成用シリカ cavity の開発	74
Appendix A	光学に関する基礎知識と補足	78
A.1	リング型光共振器	78
A.2	ビートの観測による ECDL の線幅の測定	84
A.3	HC 法の補足	87
A.4	BBO 結晶による type1 の SFG	91
A.5	EOM を用いた周波数シフトの補足	94
謝辞		96
参考文献		98

表目次

2.1	Ps 冷却用レーザーの要求スペックパラメータ	11
2.2	冷却用レーザーの各ステップにおける要求スペック	15
7.1	Ps 冷却用レーザーの開発状況のまとめ	69

目次

1.1	BEC 臨界温度と密度の関係	3
1.2	511 keV γ 線レーザー概念図	4
1.3	Ps と Mach-Zender 干渉計による反物質重力の測定の概念図	4
2.1	Ps レーザー冷却の実験セットアップ概念図	7
2.2	Ps 冷却用レーザーの周波数シフトと時間プロファイル	10
2.3	冷却シミュレーションの結果	11
2.4	Ps 冷却用レーザーの設計概要	12
2.5	Ps 冷却用レーザーの各ステップにおける時間波形と波長スペクトル	12
3.1	Littrow 型 ECDL および Littman-Metcalf 型 ECDL の概念図	17
3.2	製作した ECDL の内部の様子	18
3.3	製作した ECDL の外観	19
3.4	ECDL 出力強度の電流依存性	20
3.5	ECDL の発振波長スペクトル	21
3.6	ビート測定の光学系	22
3.7	観測された ECDL のビート信号	23
3.8	測定に使用した波長計	23
3.9	ECDL の周波数ドリフト	24
4.1	Ti:Sapphire 結晶の光吸収断面積・自然放出光スペクトラム (p 偏光)	26
4.2	Ti:Sapphire 結晶の自然放出光スペクトラムと誘導放出断面積スペクトラム	27
4.3	HC 法のセットアップ概念図	29
4.4	共振器の透過光の微分信号と、HC 法における error 信号との比較	30
4.5	LIGHTWAVE210G の写真	31
4.6	共振器内部に設置した Ti:Sapphire 結晶	31
4.7	Ti:Sapphire 共振器プロトタイプ的设计概要	32
4.8	プロトタイプとして製作した Ti:Sapphire 共振器による 729 nm パルス生成の光学系	32
4.9	プロトタイプ共振器のフリーランニング駆動で得られたパルス波形	33
4.10	フィッティングによる光子寿命の測定	33

4.11	プロトタイプ共振器のフリーランニング時における波長スペクトラム	34
4.12	作製したバランス検出器の回路図	35
4.13	作製したバランス検出器	35
4.14	ミラーに取り付けたピエゾ素子	36
4.15	共振点を横切るときの、共振器からの出力光と観測される error 信号の様子	37
4.16	フィードバック制御時における error 信号の振る舞いと共振器の出力	37
4.17	729 nm シード光注入による seeding	38
4.18	729 nm パルスの強度安定性	38
4.19	Ti:Sapphire 共振器の設計	40
4.20	アップグレード後の Ti:Sapphire 共振器の様子	40
4.21	観測された 729 nm パルス (パーシステント表示)	41
4.22	典型的な 729 nm パルスの時間波形	42
4.23	観測された 729 nm パルスの減衰	42
4.24	非 lock 時における共振点付近での error 信号	44
4.25	lock 時の error 信号	44
5.1	マルチパス増幅の概念図	47
5.2	Powerlite7030 の写真	50
5.3	マルチパス増幅に用いた Ti:Sapphire 結晶	51
5.4	マルチパス増幅の光学系	51
5.5	729 nm パルスの 2 パス増幅	52
5.6	729 nm パルスの増幅前および 2 パス増幅後の時間波形	53
5.7	2 パス増幅された 729 nm パルスの時間波形 (実測と計算による予測)	53
5.8	729 nm パルスの増幅前および 6 パス増幅後の時間波形	54
5.9	6 パス増幅された 729 nm パルスの時間波形 (実測と計算による予測)	54
5.10	シミュレーションによるマルチパス増幅後の 729 nm パルス	55
6.1	発生した 729 nm の 2 倍波の写真	63
6.2	365 nm パルス波形を取得するための光学系の様子	63
6.3	365 nm パルス波形を取得するために作製した Photo Detector	64
6.4	365nm パルス波形を取得するために作製した Photo Detector (回路図)	64
6.5	実測された 729 nm パルス波形と 365 nm パルス波形	65
6.6	自作 PD による 729 nm パルスの遅延	66
6.7	実測された 365 nm パルス波形と、729 nm パルスの実測から予測される 365 nm パルス 波形との比較	66
6.8	自作 PD に用いた Si PIN フォトダイオード S5821-02 の感度曲線	67
7.1	リング型共振器と EOM を組み合わせたセットアップ概念図	71
7.2	線幅拡大用の EOM	72

8.1	多段式低速陽電子輝度増強システム	74
8.2	Ps 生成用シリカ cavity の構成	75
8.3	機能性シリカガラスのサンプルと透過率曲線	76
8.4	機能性シリカガラス中で生成した Ps の崩壊数のプロット	77
A.1	bow-tie 型共振器の概念図	78
A.2	bow-tie 型共振器の出力光強度と周回位相	80
A.3	bow-tie 型共振器内部でのエンハンスメントと周回位相	81
A.4	HC 法のセットアップ概要	88
A.5	NPBS を用いて取得した error 信号強度の計算値	90
A.6	PBS を用いて取得した error 信号強度の計算値	90
A.7	SSB 変調器の概念図	94

第 1 章

はじめに

1.1 ポジトロニウム

ポジトロニウム (Ps) は電子とその反粒子である陽電子の 2 体束縛系であり、最も軽い水素様原子である。Ps はボソンであり、その基底状態には全スピン 0 の一重項 (1^1S_0) であるパラポジトロニウム (p-Ps) と、全スピン 1 の三重項 (1^3S_1) であるオルソポジトロニウム (o-Ps) の 2 種類が存在する。

Ps は粒子・反粒子系であるため不安定原子であり、対消滅して複数の γ 線に崩壊する。この過程は QED であるため、荷電共役変換 C に対する固有値を保存する。Ps に対する荷電共役変換の固有値は、

$$C = (-1)^{L+S} = \begin{cases} 1 & (\text{p-Ps}) \\ -1 & (\text{o-Ps}) \end{cases} \quad (1.1)$$

である。ここでは基底状態の Ps を考えているので $L = 0$ である。光子の荷電共役変換の固有値は $C = -1$ で表され、 n 個では $C = (-1)^n$ である。このため、p-Ps は偶数本の、o-Ps は 3 本以上で奇数本の γ 線に崩壊する。 n 個の光子に崩壊する過程は n 回の電磁相互作用を介するため、 $O(\alpha^n)$ (α は微細構造定数) の抑制を受ける。更に崩壊後の位相空間の大きさによっても抑制を受ける。このため、p-Ps は 2 光子崩壊が支配的であり、o-Ps は 3 光子崩壊が支配的となる。

Ps の崩壊率は過去に測定されており、p-Ps は $7990.9 \pm 1.7 \mu\text{s}^{-1}$ [1] (寿命に直すと $125.14 \pm 0.03 \text{ ps}$) であり、o-Ps は $7.0401 \pm 0.0007 \mu\text{s}^{-1}$ [2] (寿命に直すと $142.04 \pm 0.01 \text{ ns}$) である。先述の理由により多数の光子に崩壊する方が強い抑制を受けるため、最低でも 3 つ以上の γ 線を放出する o-Ps の方が、主に 2 光子崩壊をする p-Ps よりも寿命が 3 桁以上長くなっている。

本研究では主に o-Ps を用いるため、今後特に断りが無ければ単に Ps と書いた時は o-Ps を指す。

1.2 ボース・アインシュタイン凝縮

ボース・アインシュタイン凝縮 (BEC : Bose-Einstein Condensate) とは、Bose 統計に従う粒子集団に対して起こる量子力学的な現象であり、系を臨界温度以下に冷却することで全粒子数と同オーダーの個数の粒子が同時に最低エネルギー準位を取る現象である。この節では BEC の一般的な性質に関して簡単にまとめる。なお、ここで取り扱うのは相互作用を無視できる 3 次元理想気体ボース粒子とする。

ボース粒子系の密度を n と表すとき、BEC の臨界温度 T_c は (1.2) 式 の様に表される。また、温度 T

が T_c を下回るときには、BEC 状態にある、あるいは基底状態にあるボース粒子の密度 n_{BEC} は (1.3) 式 の様に表せる [3]。

$$T_c = \left(\frac{n}{\zeta\left(\frac{3}{2}\right)} \right)^{\frac{2}{3}} \frac{2\pi\hbar^2}{mk_B}. \quad (1.2)$$

$$n_{\text{BEC}} = n \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^{\frac{3}{2}} \right]. \quad (1.3)$$

ここで、 m はボース粒子の質量、 k_B は Boltzmann 定数である。 ζ はリーマンのゼータ関数であり、 $\zeta\left(\frac{3}{2}\right) \simeq 2.612$ を満たす。

熱的ド・ブroy波長 $\lambda_D(T) = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{mk_B T}}$ を使って BEC の条件 ($T \leq T_c$) を書き直すと、

$$n\lambda_D(T)^3 \geq \zeta\left(\frac{3}{2}\right) \simeq 2.612 \quad (1.4)$$

となる [3]。ここで、(1.4) 式の左辺は位相空間密度と呼ばれ、1 量子状態あたりに属する平均的粒子数を表している*1。したがって、BEC は定性的には系の個々のボース粒子達のド・ブroy波が重なり合うことによって起こるものと考えられる。

BEC 状態にある粒子は単に同じエネルギー準位 (基底状態) にあるだけでなくコヒーレンスを持ち [4]、各粒子のド・ブroy波の波長・位相がそろって全体として 1 つの波のように振る舞うことが知られている。レーザーは光子が全体として波長・位相がそろってコヒーレンスを持っているものであるが、BEC 状態はこれに類似している。BEC 状態の粒子集団を重ね合わせることによる物質波の干渉の観測も行われている [5]。

1.3 ポジトロニウムのボース・アインシュタイン凝縮

BEC の実現は様々な物質において検証されてきた。初めての BEC の実現は 1995 年であり、アルカリ原子 (ルビジウム [6]、ナトリウム [7]) の希薄系において達成されている。水素原子でも 1998 年に BEC が実現している [8]。また、実粒子に限らず、励起子 (エキシトン) のような安定でない擬粒子においても BEC は実現している [9]。

一方で、反物質を含む系での BEC は未だ達成されておらず、今後の検証が期待されている。そのような中で特に Ps による BEC の実現が有力視されており、1994 年より Ps を BEC させる提案がなされている [10]。Ps の有利な点の 1 つとして (1.2) 式 で示されているように BEC 臨界温度は質量に反比例し、水素の 920 分の 1 の質量という最も軽い原子である Ps は、同じ数密度であれば最も高い BEC 臨界温度となることが挙げられる。

また、Ps で BEC を実現するもう 1 つの有利な点として、反物質を含む物質の中では非常に作りやすいことも挙げられる。Ps の構成要素の 1 つである陽電子はシンプルな素粒子であるため、例えば反陽子

*1 熱的ド・ブroy波長 λ_D は粒子の平均的な位置の揺らぎ、あるいは波束の幅と考えることができ、系の運動量の揺らぎ Δp は $\frac{\hbar}{\lambda_D}$ と表すことができる。系全体の体積を V 、全体の粒子数を N とし、また、位相空間密度を ρ と表すと、 $\rho = \frac{N}{V\Delta p^3/\hbar^3}$ とすることが出来る。 $V\Delta p^3$ は位相空間内において粒子が存在する部分を表しており、それを h^3 で割った値はその範囲に属する粒子の状態数の数である。すなわち、 ρ は 1 つの量子状態に属する粒子数の平均となる。

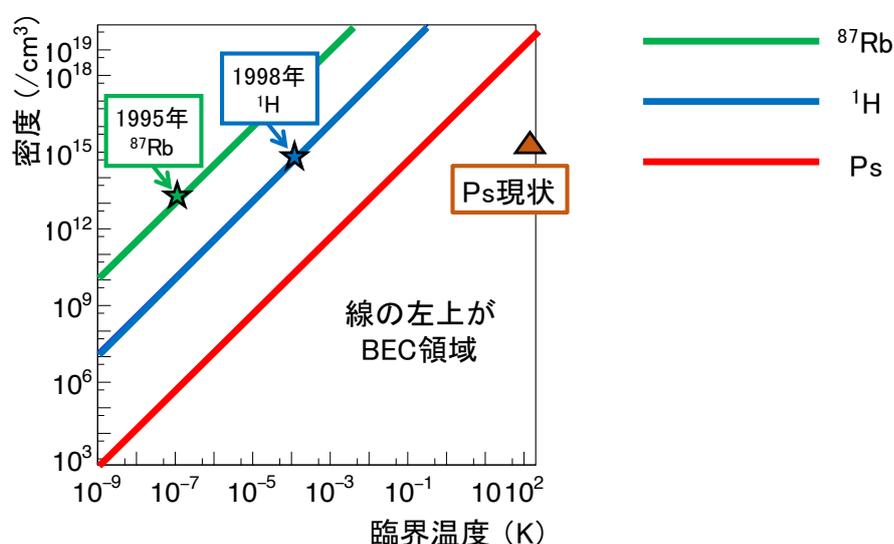


図 1.1 BEC 臨界温度と密度の関係。図に描かれている線の左上側の領域が BEC の条件を満たす。

など複合系の反物質よりも手軽に扱うことが出来る。実際に放射線源や、あるいは人工的に γ 線からの対生成によって容易に陽電子を得ることが出来る。

Ps の BEC 実現にあたっては、(1.4) 式から分かるように高密度・低温両方が大事である。Ps 集団全体での到達温度のうち最も低い測定値は 150 K であり、ポジトロニウムを極低温のシリコンに衝突させて熱化させることで達成している [11]。また、Ps の高密度化に関しては、最大で 10^{15} cm^{-3} の密度が達成されている [12]。

比較・参考として、図 1.1 にルビジウム、水素、Ps における密度と臨界温度の関係のグラフを掲載する。Ps の場合、例えば密度 10^{18} cm^{-3} 、温度 14 K で BEC が達成出来る。

Ps の BEC の実現は世界初の反物質を含む系での BEC の実現であることにとどまらず、更なる応用も期待されている。まず、511 keV の γ 線レーザーの実現が挙げられる。BEC によってコヒーレント状態にある o-Ps に p-Ps とのエネルギー差に相当する 203 GHz のサブテラヘルツ波を照射することによって、コヒーレントな p-Ps の集団を得ることが出来る (図 1.2 参照)。コヒーレントであるため、p-Ps の崩壊・511 keV γ 線の放出は協調的に起こる。さらに Ps 集団を棒状に生成することにより、 γ 線の放出方向に指向性を持たせることが出来る。このようにして back-to-back に 2 方向に進む、コヒーレントであり 2 方向でスピンエンタングル状態にある γ 線レーザーを作ることが出来る [13, 14]。

さらに、BEC 状態の Ps を使って陽電子に働く重力の精密測定を行うことも考えられている [15]。反物質に対する弱い等価原理は未検証であり、物質・反物質の対称性を検証する上で大きな意義がある。BEC している Ps の集団はレーザーのようにコヒーレンス性を持つため、前節で触れたように原子波の干渉を観測することが可能である。ここで、文献 [15] で提案されている方法では、Ps をレーザーにより励起させて $n = 25$ の Rydberg 状態にし、寿命を約 1 ms と長くしている。Ps は BEC 状態にあったためコヒーレンス性を持ち、原子レーザーとして使うことが出来る。そこで、地面に対して垂直な向きに

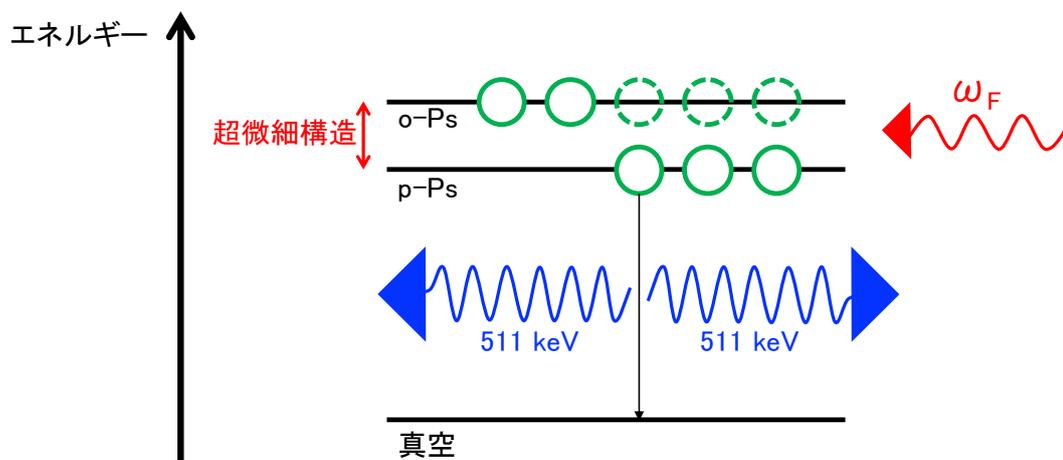


図 1.2 511 keV γ 線レーザー概念図。BEC 状態にありコヒーレントな o-Ps に、 $\omega_F = 203$ GHz のサブテラヘルツ波を照射することでコヒーレントな p-Ps の集団を作り出す。p-Ps の崩壊で back-to-back に放出される 2 つの γ 線は互いにスピンエンタングルメントしている。

Mach-Zender 干渉計を作り（図 1.3）Ps のビームを通すと、重力ポテンシャルの変化によって位相の進み方が変化するために、2 つの経路では位相差が存在する。そのため、干渉パターンは Ps に働く重力を反映したものになる。Ps に働く重力のうち、物質である電子の分については既知であるため、電子の寄与を差し引くことにより陽電子に働く重力の大きさを調べることが出来る。

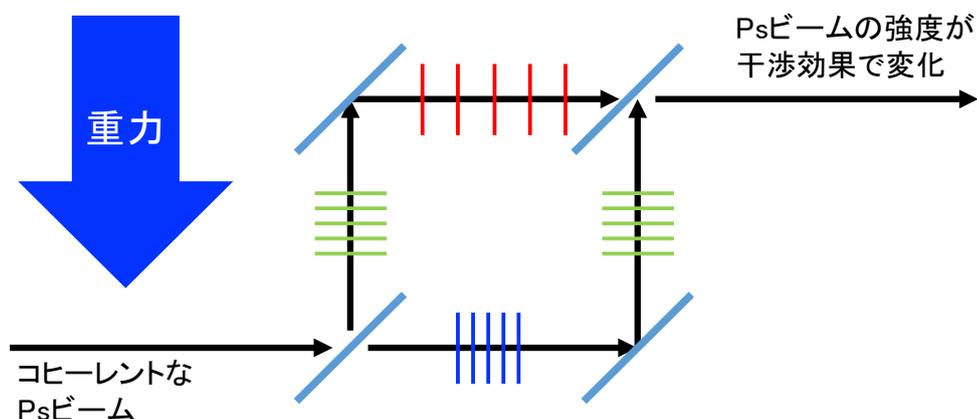


図 1.3 Ps と Mach-Zender 干渉計による反物質重力の測定の概念図。コヒーレントな Ps のビームを Mach-Zender 干渉計を通して透過強度を見る。重力による位置エネルギーが増加すると運動エネルギーは減少して位相の進み方は遅くなる。そのため干渉計を地面に対して垂直な向きに作ると、Ps に働く重力に応じて 2 つの経路で位相差が生じ、干渉パターンに影響を及ぼす。

1.4 本論文について

Ps の BEC を達成するには Ps の短い寿命の中で高密度、低温を達成することが必要となるが、特に後者の低温化を達成するために Ps のレーザー冷却用光源の開発に取り組んだのが本研究の主な内容である。

本論文の構成は以下のようになっている。

第2章：まずレーザー冷却の原理について述べる。次に、シミュレーション結果から、一定の要求水準を満たせばレーザー冷却により BEC の実現が可能であることを述べ、本研究で目標とすべきレーザーの構成とスペックについてまとめる。

第3章：シード光としての 729 nm 連続発振レーザーの開発について述べる。

第4章：729 nm パルスを発生させるための Ti:Sapphire 共振器の開発状況について説明する。

第5章：729 nm パルスの強度を増大させるためのマルチパス増幅機構のテスト実験の結果について述べる。

第6章：729 nm 光を 243 nm に変換する途中過程として、729 nm 光から 2 倍波の 365 nm 光を発生させるテスト実験の結果について述べる。

第7章：Ps 冷却用レーザーの開発状況について、現時点における達成事項および、今後の課題についてまとめる。

第8章：Ps の BEC 実現に向けての今後の展望について述べる。

第2章

ポジトロニウムのレーザー冷却

2.1 レーザー冷却の原理

本研究において採用するレーザー冷却法はドップラー冷却と呼ばれるものである。ここではまず、ドップラー冷却法と呼ばれるものの原理について、Ps の場合に即して簡単に説明する。

気体原子は一般的に離散的なエネルギー準位を持っており、対応したエネルギー（波長、周波数）を持つ光子を吸収・放出することで準位間の遷移が起きる。Ps の場合、共鳴周波数 1.23 PHz（243 nm の波長）の光子 1 つを吸収して基底状態である 1S 状態から 2P 状態に励起される。2P 状態にある Ps は時定数 3.2 ns[16] で周波数 1.23 PHz の光子 1 つを放出して 1S 状態に戻る。ここで Ps が速度を持っているとき、すなわち、有限温度の時に共鳴周波数より少し周波数が小さい光をあらゆる方向から照射することを考えてみる。このとき Ps の慣性系で考えると、ドップラー効果により Ps の進行方向と反対方向に進む光の周波数は共鳴周波数に近づき、逆に同じ方向に進む光の周波数は共鳴周波数から遠ざかるように見える。したがって、今述べたような状況下では Ps は進行方向と反対方向の光子を選択的に吸収して 2P 状態に励起され、運動量を失う。2P 状態に励起された Ps は時定数 3.2 ns で共鳴周波数の光子を放出し、その反跳による運動量変化を受けるが、放出される光子の方向はランダムなので全体で平均すると温度に対して寄与しない。

また、2P 状態に励起された Ps は誘導放出によって入射レーザーと同じ周波数の光子を放出する過程も存在する。このとき Ps は加速方向に反跳を受けるが、元々 2P 状態に励起される際に同じ分だけ既に減速しているため、このサイクルも Ps の温度変化には寄与しない。

以上のようにして、全体で見れば Ps の集団は 2P 状態への励起と自然放出のサイクルを繰り返すことで速度を失い、冷却されていく。これがドップラー冷却の原理である。

2.2 ポジトロニウムのレーザー冷却

2.2.1 BEC に向けたポジトロニウム冷却実験の概要

Ps の BEC 実現に向けての、実験全体の想定セットアップの概要を示す。(1.2) 式で説明したように、BEC の達成には高密度・低温化することが必要である。また、Ps は 142 ns の寿命で崩壊してしまうため、これらを高速に行う工夫が必要である。それを満たすセットアップ概念図を図 2.1 に示し、本研究で

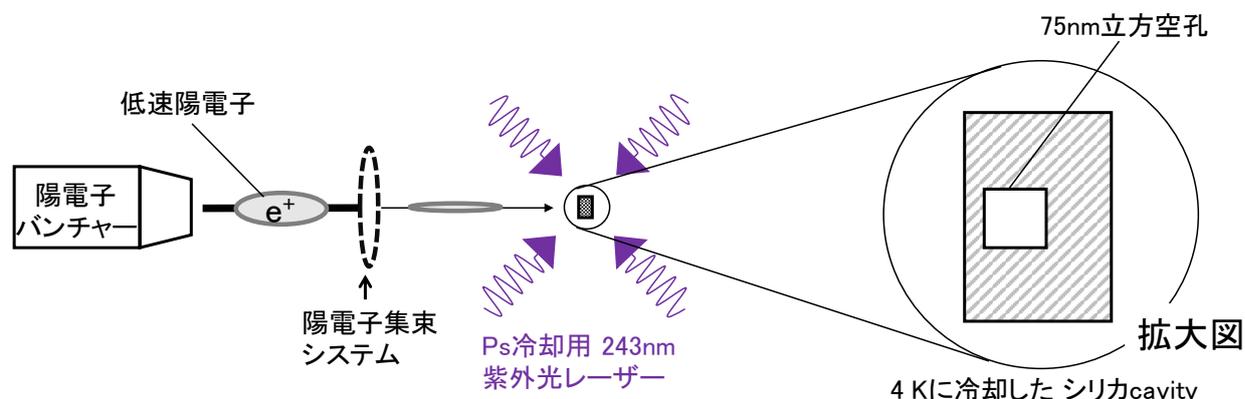


図 2.1 Ps レーザー冷却の実験セットアップ概念図。

想定している Ps の生成および冷却の手順の概要を以下に説明する。

はじめに、陽電子蓄積装置と収束システムを組み合わせることで高密度・低速な陽電子ビームを用意する。次に、この陽電子ビームを低温に冷却したシリカに入射させて高密度な Ps を生成させる。このとき、シリカは Ps に対して負の化学ポテンシャルを持つため [17] シリカに空孔を作っておけば、シリカ内部で生成した Ps は拡散されるうちに空孔中に放出され、保持される。低温なシリカ中で生成・保持された Ps はシリカとの衝突によって運動エネルギーを失い、冷却されていく。このプロセスが熱化と呼ばれるものである。しかし、温度の減少が進むとシリカとの衝突頻度が下がり、更にカップリングするフォノンのモード数も減少するために衝突あたりの冷却効率も低下してしまうため、冷却効率は低温であるほど悪くなっていく。そのため、Ps の寿命のうち熱化のみで BEC 臨界温度に達するまで冷却を行うことは困難である。

そこで Ps の冷却の 2 段階目として、シリカは紫外光に対して透明 [18, 19] であることを利用して、243 nm 紫外光レーザーを照射することにより高速冷却を実現する。243 nm は 1S-2P 準位間のエネルギー 5.6 eV に対応する。

以上は定性的な説明であるが、シミュレーションにより上記のセットアップで Ps の BEC が実現可能であることが示されている。このことは次節で説明する。

2.2.2 レーザー冷却の見積もりと必要スペック

Ps の冷却は熱化とレーザー冷却の 2 段階で行うが、熱化による冷却は約 300 K から効率が悪くなる [20, 21] ため、レーザー冷却は 300 K 以下の温度における使用を想定し、見積もりを行う。

光子の角周波数を ω とすると、その光子 1 つが持つ運動量の大きさは $\frac{\hbar\omega}{c}$ であるから、質量 m の粒子が 1 つの光子を吸収する際の速度変化は $\frac{\hbar\omega}{mc}$ である。Ps の場合は $m = 1022 \text{ keV}/c^2$ であり、光子の波長が 243 nm のとき 1 回の光子吸収で起こる速度低下は $1.5 \times 10^3 \text{ m/s}$ と計算出来る。

1S-2P 準位間において、自然脱励起の時定数は 3.2 ns である。ここで、Ps に十分な光量の 243 nm 光を照射して 1S-2P 遷移を飽和させることを考える。このとき、1S 状態から 2P 状態への励起と、誘導放

出による 2P 状態から 1S 状態への脱励起がつり合っており、全体の半分の Ps が 1S 状態、もう半分が 2P 状態となる。このとき、2P 状態の Ps の寿命は $100 \mu\text{s}$ のオーダーになる [22, 23] ので、1S 状態の Ps と比較すれば十分長寿命である。したがって、飽和状態では Ps の実効的な寿命が 142 ns から 2 倍の 284 ns に増加するとみなせる。また、1 回の冷却サイクルに要する時間は、平均すると自然脱励起の時定数の 2 倍である 6.4 ns となる。

ここで、Maxwell-Boltzmann 分布において、速度の最頻値 v_p 、速度平均 v_{mean} 、二乗平均速度 v_{rms} はそれぞれ、

$$v_p = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \quad (2.1)$$

$$v_{mean} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}} \quad (2.2)$$

$$v_{rms} = \sqrt{\frac{3k_B T}{m}} \quad (2.3)$$

のように表すことが出来る。いずれも $\sqrt{\frac{T}{m}}$ に比例する量であり、温度の 2 乗根に比例して、また、粒子の質量 m の 2 乗根に反比例して大きくなる量である。これらの値の比は、

$$v_p : v_{mean} : v_{rms} = 1 : \frac{2}{\sqrt{\pi}} : \sqrt{\frac{3}{2}} \simeq 1 : 1.13 : 1.22 \quad (2.4)$$

となり、いずれもおよそ同じ程度の大きさとなる。

(2.2) 式を用いて 300 K の時の Ps の平均速度を計算すると、 $v_{mean} = 7.6 \times 10^4 \text{ m/s}$ となる。1 回の冷却サイクルでの速度低下は $1.5 \times 10^3 \text{ m/s}$ であるから、十分低温まで冷却を行うためには冷却サイクルを約 50 回繰り返す必要がある。実効的な 1 回の冷却サイクルの時間は 6.4 ns なので、必要なレーザー冷却時間はおよそ 300 ns と見積もることが出来る。

また、レーザー冷却を最適化するためには Ps の速度分布を考慮する必要がある。(2.3) 式のように、温度および Ps の質量に応じて速度分布は広がっている。特に、Ps は水素の 920 分の 1 という軽さのために、非常に広がった速度分布を持つ。ここで、速度 v に対応する周波数 ν のドップラー効果による周波数の変化は

$$\nu' = \nu \left(1 - \frac{v}{c}\right) \quad (2.5)$$

のように表すことができる。これによって Ps の共鳴周波数の中心値は変化し、(2.1) 式を用いて計算すると、 300 K の時に -200 GHz 、 10 K のときに -40 GHz の変化となる。すなわち、 300 K から 10 K まで冷却する想定ではおよそ 160 GHz の周波数のシフトが存在する。つまり、Ps の温度変化に合わせて冷却用レーザーの周波数を変化させることでより冷却効率が上がると考えられる。

また、(2.1) 式を用いて速度分布に伴う吸収スペクトルの広がり（ドップラー広がり）は、

$$\begin{aligned} \sigma_D &\simeq \nu \left(\frac{2k_B T}{mc^2}\right) \\ &= \frac{1}{\lambda} \sqrt{\frac{2k_B T}{m}} \end{aligned} \quad (2.6)$$

と表すことができ [24]、300 K では $2\sigma_D \simeq 550$ GHz となり、単一周波数ではなく広がった周波数を持つレーザーで冷却する方が高速に Ps が冷えることが考えられる。また、例えば 10 K では $2\sigma_D \simeq 100$ GHz となり、冷えた Ps を冷却用レーザーで逆に加熱することが無いように留意する必要もある。

以上を踏まえて、シミュレーションにおける Ps 冷却用レーザーのパラメータの設定を以下：

- 40 μ J のパルスエネルギー
- 300 ns のパルス持続時間
- 共鳴周波数からのレーザー中心周波数のシフト：-300 GHz \rightarrow -240 GHz (300ns で変化)
- 140 GHz の線幅
- 100 μ m のビーム半径

の様に設定する。冷却用レーザーの時間波形および周波数スペクトルは共に Gaussian を仮定している。シミュレーションにおける Ps 冷却用レーザーの周波数シフトおよび時間プロファイルの様子は 図 2.2 に示す。また、シミュレーションにおける Ps の生成状況については、

- Ps の生成時の密度： 4×10^{18} cm⁻³
- 生成時の初期温度：6000 K^{*1}

を仮定している。Ps はシリカの $75 \times 75 \times 75$ nm³ 立方空孔中に作る想定であり、空孔 1 つあたりの Ps 生成個数は 1,700 個である。

冷却用レーザーの設定パラメータは、実際にシミュレーションを行いながら決定したものである。各パラメータについて以下に簡単に説明を行う。

パルスエネルギー 40 μ J およびビーム半径 100 μ m は、仮定した個数・密度の Ps の 1S-2P 遷移を飽和させるのに必要な強度およびビームプロファイルである。パルス持続時間 300 ns (2σ) は先に説明した見積もりとほぼ同等の値である。レーザーの中心周波数の時間変化は、より高温側の Ps を選択的に冷却しつつ、既に冷却された Ps の再加熱を防ぐことが冷却の効率化につながることで決まる。

実際に、以上で説明したパラメータを設定した場合のシミュレーション結果を 図 2.3 に示す。図 2.3 の 4 つ全ての図について、赤の実線はレーザーを照射した場合、黒の実線はレーザーを照射しなかった場合のグラフである。(a) は残存する Ps の個数を表しており、レーザーを照射した場合は Ps の寿命が実効的に伸びるために、Ps 個数の時間による崩壊・減衰もレーザーを照射していない場合に比べてゆっくりになっていることが分かる。(b) は全体の中で 2P 状態に励起されている Ps の割合を示しており、レーザーを照射した場合は初めの 200 ns 程度は飽和に近い状態になっていることが伺える。(c) は Ps の温度の時間変化と BEC 臨界温度との比較である。赤の点線はレーザーを照射した場合の、黒の点線は照射しなかった場合の臨界温度を示している。Ps の崩壊による減少によって個数密度も低下していくため、いずれも BEC 温度は時間が経つにつれて低くなっていく。冷却用レーザーを照射した場合には Ps 生成からおおよそ 350 ns~600 ns の間の時間で BEC 温度を下回っていることが分かる。一方、レーザーを照射しない場合は BEC 臨界温度を下回ることはない。(d) は残存している Ps のうち、BEC 状態にあるものの割合 R_C を表しており、 $1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^{\frac{3}{2}}$ で表される ((1.3) 式 参照)。冷却用レーザーを照射した際に

*1 0.8 eV[25] に相当

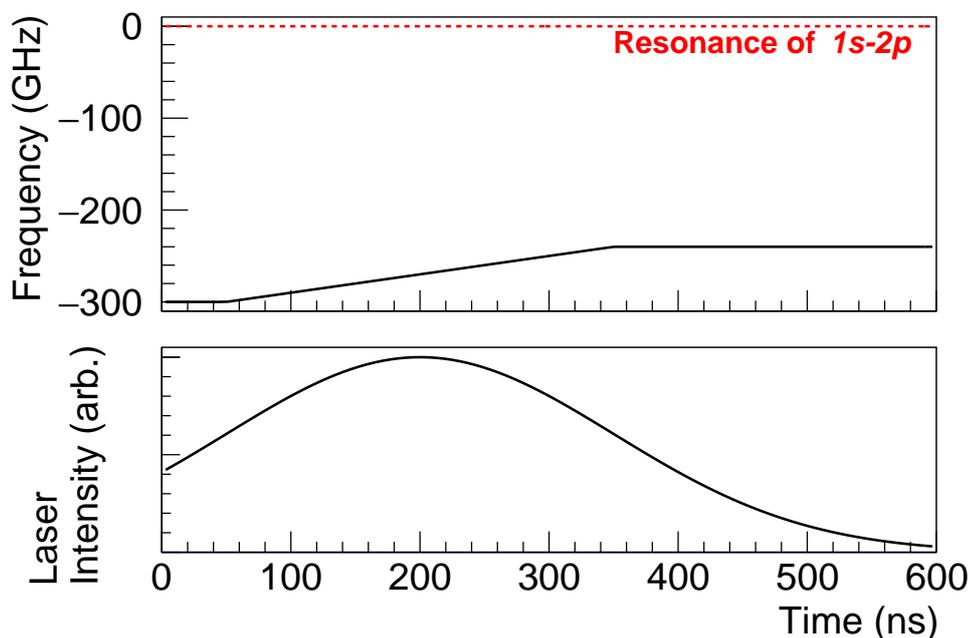


図 2.2 Ps 冷却用レーザーの周波数シフトと時間プロファイル [21]。上図が冷却用レーザーの 1S-2P 共鳴周波数からの離調の時間変化を表す。下図は冷却用レーザーの時間プロファイルを表しており、 $t=0$ ns で Ps を生成する想定である。

は Ps 生成から 450 ns 付近で、最大で 40 % 以上の残存 Ps が BEC に至っていることが分かる。

以上のようにして、シミュレーションで設定したスペックを満たす冷却用レーザーによって、冷却を大幅に加速し、10 K 以下まで到達出来ることが分かった。この到達温度により、Ps の初期密度 $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ を達成出来れば BEC が実現することが確かめられた。

ここで、実際に実験で冷却用レーザーを用いる際には、プロファイル、特に強度のばらつきが生じることが予想される。レーザー強度が強過ぎれば Ps の電離を引き起こす恐れがあり、弱すぎれば BEC に至らない可能性がある。そのため、レーザー強度のばらつきは有効なデータの統計量を小さくしてしまうと考えられる。したがって実験効率も考慮した上で、

- 243 nm パルスの強度のばらつきが $\pm 10\%$ 以内

であることが必要になる。以上を踏まえて、表 2.1 に Ps 冷却用 243 nm パルスレーザーの要求スペックをまとめる。

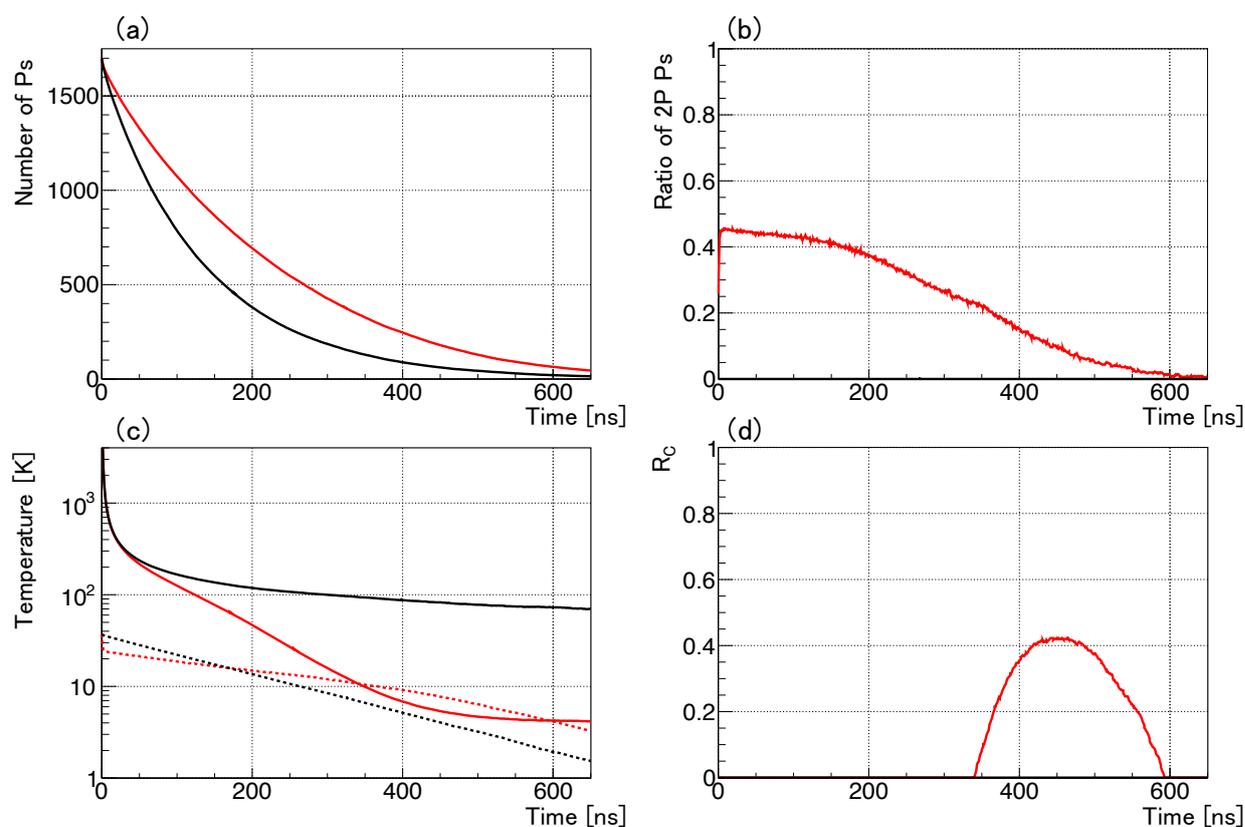


図 2.3 冷却シミュレーションの結果。いずれの図においても赤線は冷却用レーザーを照射した場合を、黒線はレーザーを照射しなかった場合を表している。(a) は残存する Ps の個数を、(b) は 2P 状態に励起されている Ps の割合を表す。(c) は Ps の温度 (実線) および BEC 臨界温度 (点線) を表す。(d) は残存している Ps のうち、BEC 状態にあるものの割合を表している。

表 2.1 Ps 冷却用レーザーの要求スペックパラメータ

周波数プロファイル, 時間プロファイル, ビームプロファイルはすべてガウス関数型を仮定している。

項目	値	備考
パルスエネルギー	40 μ J	
中心周波数	1.23 PHz - $\Delta(t)$	波長: 243 nm + $\Delta'(t)$
周波数シフト $\Delta(t)$	$\Delta(0 \text{ ns}) = 300 \text{ GHz}$ $\Delta(300 \text{ ns}) = 240 \text{ GHz}$	波長: $\Delta'(0 \text{ ns}) = 60 \text{ pm}$ 波長: $\Delta'(0 \text{ ns}) = 48 \text{ pm}$
線幅 (周波数広がり) (2σ)	140 GHz	波長: 28 pm
パルス持続時間 (2σ)	300 ns	
ビーム半径 (1σ)	100 μ m	
強度安定性	$\pm 10 \%$ 以内	

2.3 Ps 冷却用レーザーの設計概要

前節で説明した必要スペックを達成するために、Ps 冷却用レーザーの設計は主に5つのステップに分けて考えている。図2.4に、Ps 冷却用レーザーの設計のブロック図を、図2.5に設計における各ステップでの時間波形および波長スペクトルの変化の様子を掲載する。

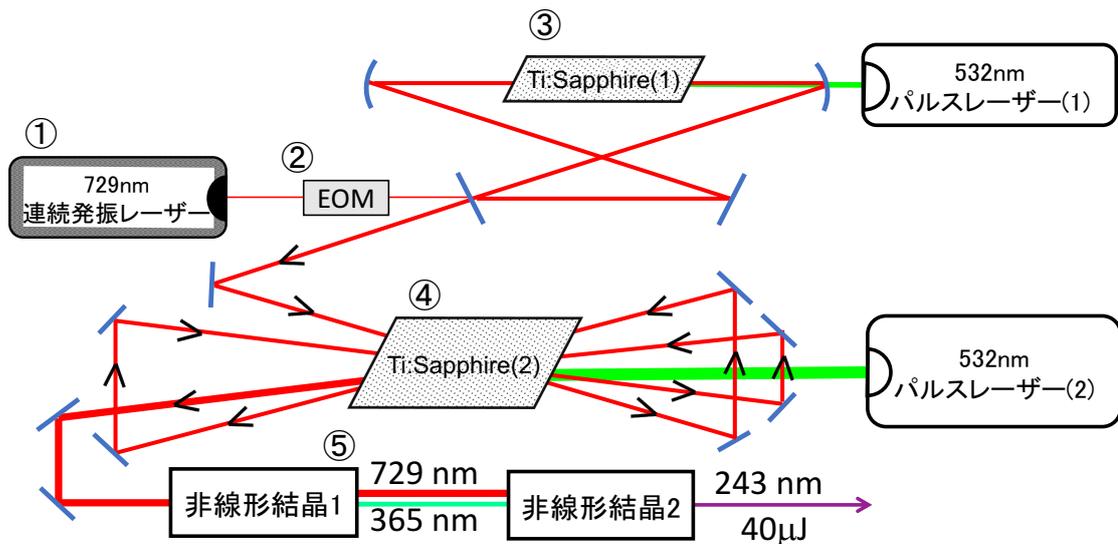


図 2.4 Ps 冷却用レーザーの設計概要

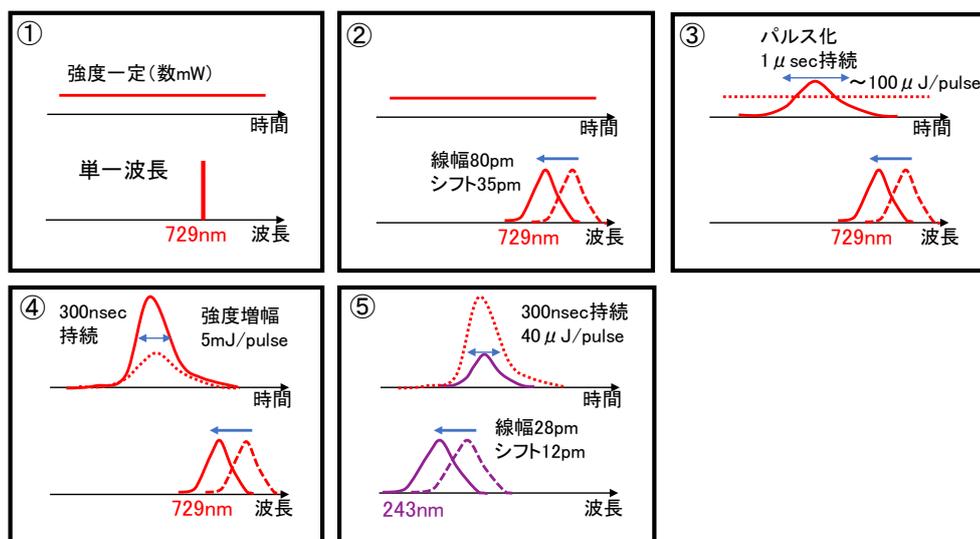


図 2.5 Ps 冷却用レーザーの各ステップにおける時間波形と波長スペクトル

各ステップについて簡単に説明する。

①729 nm 連続発振レーザー

波長が単一で十分に安定した、数 mW 程度の強度の 729 nm 連続発振 (CW) レーザーをシード光として用意する。CW であり波長が 729 nm であるのは、必要素子や既存の技術の存在といった意味で、以降のステップでの波長の操作がしやすいためである。このレーザーに以降の各ステップに必要な操作を加えることで必要な波長である 243 nm のレーザーが達成出来る。最終的に 10 GHz オーダーの精度で波長スペクトルを制御・操作するため、発振波長を決定する役割を担うシード光の波長はそれよりも十分高精度 (1 GHz 以内) である必要がある。なお、最終的に得られる 243 nm パルスのエネルギーは基本的に以降のステップによって決定し、シード光の強度は支配的な影響は及ぼさない。そのため、要求される強度はシード光として十分機能する程度の水準 (~mW 程度) である。

②EOM による波長スペクトル操作

EOM(Electro-Optic Modulator) という素子を用い、電気光学変調という効果を使うことによってシード光に波長操作を加える。波長の操作は 2 段階に分かれており、1 段階目ではシード光の波長を高速にシフトさせる。さらに、2 段階目ではシード光の中心波長の周りに多数のサイドバンドを立てることによって、実効的に線幅 (周波数、あるいは波長の広がり) を広くする。

③Ti:Sapphire 共振器による長時間持続パルス光発生

729 nm のゲイン媒質としての Ti:Sapphire 結晶と励起用光源としての Nd:YAG532 nm パルスレーザー、そしてリング共振器を組み合わせることでパルス発振 Ti:Sapphire レーザーを構成出来る。さらにシード光を注入することで、誘導放出によりシード光の持つ波長スペクトルを保持したパルス光を発生させることが出来る。また、発振パルスの時間プロファイルは共振器の特性や励起強度などの条件によって変化するため、適切な設計の下で十分長い持続時間を持つパルスを生成することが可能である。

④マルチパス増幅によるパルス強度の増加

大強度の Nd:YAG532 nm パルスレーザーで励起した Ti:Sapphire 結晶を用いて、パルスの持つエネルギーを十分に増加させる。Ti:Sapphire 共振器におけるパルス化の場合と同様、誘導放出による効果であるので波長スペクトルは変化しない。Ti:Sapphire の持つ蛍光寿命 3.2 μ s にしたがって増幅の効果が小さくなっていくため、時間波形が短く変形してしまうことに注意が必要である。また、増幅される 729 nm パルスにジッターがあり、増幅のタイミングがばらついてしまうと波形および強度のばらつきにつながってしまうことも留意する必要がある。

⑤非線形結晶による波長変換

結晶における電場の非線形効果を利用することにより、最終的に元の 3 分の 1 の波長である (3 倍波) 243 nm の光を得ることが出来る。結晶は 2 種類使用し、1 つ目で 729 nm 光から 2 倍波の 365 nm 光を得る。更に、これら 2 つのビームを 2 つ目の結晶で合わせるにより、729 nm と 365 nm の光子の合計分のエネルギーを持つ 243 nm の光を発生させることが出来る。なお、波長変換に際して 2 つ目のス

トップで行なった波長シフトおよび波長の広がりは大きさは $1/3$ になる^{*2}。注意点として、非線形効果による波長変換の効率は一般に 100 % にはならずロスが存在するため、パルスあたりエネルギーの大きさは小さくなるのが 1 つ目に挙げられる。2 つ目に、波長変換を行うとパルス幅が短くなることに留意する必要がある。729 nm から $1/3$ の波長の 243 nm の光を生成する場合の変換効率は基本波の瞬間強度の 3 乗で効いてくるため、パルスの裾が短くなってしまうからである。更に、このことは 729 nm パルスの強度のばらつきも 3 乗で大きくしてしまうことも注意が必要である。

以上が冷却用レーザーの設計の概要である。各ステップの詳細な原理や開発状況については以降の章で説明する。上記の説明を踏まえて、前節までで説明した最終的なレーザースペックの達成のために各ステップで要求される性能を表 2.2 にまとめる。

^{*2} なお、周波数空間で見ると周波数シフト及び周波数の広がりの効果はそれぞれ 3 倍に大きくなっている。

表 2.2 冷却用レーザーの各ステップにおける要求スペック

	項目	要求・目標値
ステップ① CW シード光	中心波長	729 nm
	中心波長（周波数）安定性	1.8 pm (1 GHz)
	波長広がり（線幅）	1.8 pm (1 GHz)
	強度	数 mW 以上
ステップ② 波長操作	波長シフト（300 ns）	35 pm (20 GHz)
	波長広帯域化	80 pm（線幅 50 GHz）
ステップ③ Ti:Sapphire 共振器によるパルス化	パルス持続時間	1 μ s 以上
	パルスエネルギー	100 μ J 以上
	強度安定性	5 % 以内
	ジッター	\pm 10 ns 以内
ステップ④ マルチパス増幅	パルス持続時間	300 ns 以上* ¹
	増幅後のパルス強度	5 mJ* ²
ステップ⑤ 波長変換	パルスエネルギー	40 μ J
	パルス持続時間	300 ns 以上 * ³
	波長シフト（300 ns）	12 pm (60 GHz)
	波長広がり（線幅）	28 pm (140 GHz)

各要求値・目標値はそれぞれのステップにおける動作原理を元にした計算・シミュレーションの結果、243 nm パルスが生成された際に最終的な要求スペックを満たすように設定されている。

Ti:Sapphire 共振器における発生パルスの安定度の目標値、すなわち強度安定性および、ジッターは共に、最終的に生成する 243 nm パルスの強度ゆらぎが \pm 10 % 以内に収まるために設定している。5 % の強度安定性は、波長変換時に強度揺らぎが 3 乗で大きくなることから、また、ジッター \pm 10 ns は第 5.3 節におけるシミュレーション結果から算出している。

*¹ ピーク強度の 72 % を超える時間が 300 ns 以上になることを指す。

*² 強度のピーク付近 300 ns 間に含まれるエネルギーの大きさを指す。

*³ ピーク強度の $\frac{1}{e}$ を超える時間が 300 ns 以上になることを指す。

第 3 章

外部共振器型半導体レーザー (ECDL)

本研究においては 729 nm シード光として、発振波長を精度良く制御できる安定した光源が必要になる。第 2 章の表 2.2 で見たように、Ps 冷却用レーザーのシード光は、

- 数 mW 以上の強度
- 発振波長の中心が 729 nm
- 線幅が 1 GHz 以下（波長の広がり が 1.8 pm 以下）
- 周波数の安定性（ドリフト）が 1 GHz 以下（波長ドリフトが 1.8 pm 以下）

といったスペックを満たす必要がある。

そこで、今回は外部共振器型半導体レーザー (ECDL) というタイプの連続発振レーザーをシード光として採用し、自作した。本章では ECDL の仕組みの概要と、実際に製作した ECDL の性能について述べる。

3.1 ECDL の原理

3.1.1 ECDL の構成

ECDL (External Cavity Diode Laser) は、半導体レーザー (LD) に共振器を組み合わせた構成のレーザーである。中でも発振波長が tunable な、半導体レーザー (LD) とコリメートレンズ、そして回折格子を組み合わせた構成のものが多く使われ、主に Littrow 型と Littman-Metcalf 型の 2 種類が存在する。図 3.1 に Littrow 型 ECDL および、Littman-Metcalf 型 ECDL の概念図を掲載する。Littrow 型では LD と回折格子の間で、Littman-Metcalf 型では回折格子を挟んでミラーと LD の間で共振器が形成されており、いずれも回折格子における回折角によって共振を起こす波長が決定される。共振を起こしている波長の光が独占的に LD でのゲインを消費して発振に至るようになるため、発振波長は単一化し、線幅は元の LD の場合に比べてかなり狭窄化する。Littrow 型 ECDL の場合は回折格子の角度を、Littman-Metcalf 型 ECDL の場合はミラーの角度を調節することで回折角を変化させることができ、発振波長を tunable にすることが出来る。

Littrow 型の利点として、ECDL を構成する素子の数が少ないためロスが小さいことと、比較的簡単に

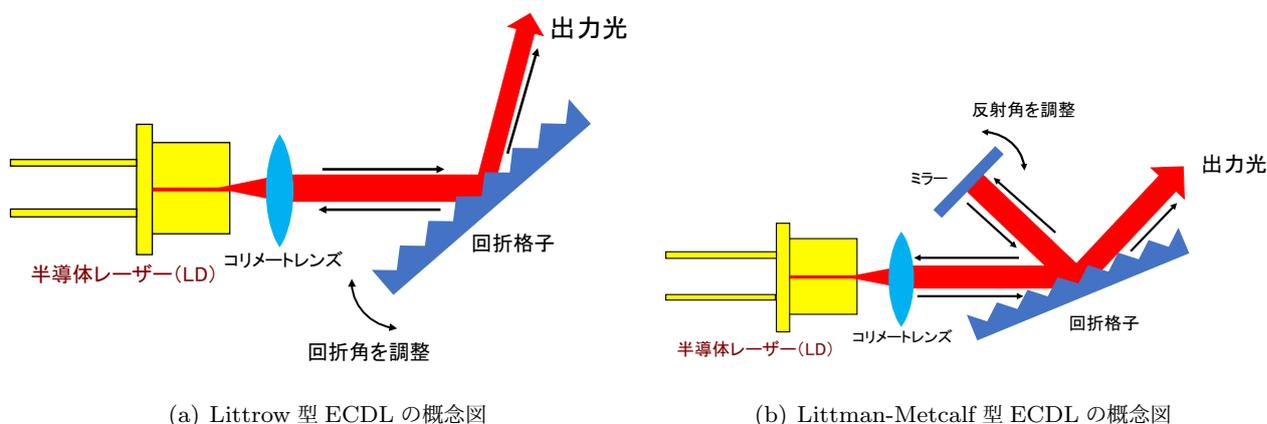


図 3.1 Littrow 型 ECDL および Littman-Metcalf 型 ECDL の概念図

(a)Litrow 型：1 次回折光が LD に戻るようになっており、回折格子と LD の間で共振器が形成される。出力光は 0 次回折光（回折格子における反射光）として取り出される。(b)Littman-Metcalf 型：1 次回折光をミラーで打ち返して再度回折させて LD に戻っており、回折格子を挟んでミラーと LD 間で共振器が形成されている。出力光は 0 次回折光（回折格子における反射光）として取り出される。

作ることが出来る点が挙げられる。デメリットとしては波長を調節するために回折格子の角度を調整すると、出力光である 0 次回折光（反射光）の向きも変わってしまう点が挙げられる。一方で Littman-Metcalf 型の場合は発振波長の調整に際して回折格子ではなくミラーの角度を調整するので、出力光となる 0 次回折光の向きは変化しない。また、LD からの光は 1 次の回折を 2 回経てから戻される（Littrow 型では 1 回）ため、波長選択の分解能が良くなる。その代わりに、Littrow 型ではミラーで打ち返された光の 0 次回折光はどこにも使われずロスになってしまうため、出力強度が低くなってしまうデメリットがある。

本研究においては最終的に広線幅のレーザーの実現を目標としているので、安定なシード光源として使える水準であればそれ以上に線幅を狭くする必要性は無い。また、必要な発振波長も決まっているため一度発振波長を設定すればその後は基本的に調整は不要であり、出力光の向きが発振波長によって変化することは大きなデメリットにはならない。そのため、より単純な構成であり、強度も大きくなる Littrow 型 ECDL を本研究では作成した。

3.1.2 ECDL の発振波長

3.1.1 節で述べたように、ECDL の発振波長は、基本的には回折格子における 1 次回折角で決定される。回折格子の溝の間隔を d 、回折格子に対する入射角を θ 、欲しい光の波長を λ としたときに、今回採用する Littrow 型 ECDL の場合は 1 次回折光が入射光線の方へ戻っていく必要がある。このような条件は、

$$2d \sin \theta = \lambda \quad (3.1)$$

と表すことが出来る。つまり、(3.1) 式にしたがって回折格子の角度を設定・調整することによって基本的な発振波長を選択することが出来る。

なお、発振波長は厳密には LD 自体の発振特性と、LD と回折格子間で形成される共振器の特性との兼ね合いによって決定される。

発振波長を十分な精度で制御するためには、上記のことを考慮しないといけない。LD の発振特性は流れるカレントおよび、LD の温度によって変化してしまう。また、ECDL 全体の温度が変化するとミラーマウント等の構成部品の熱膨張により、各素子間の距離や角度に変化を起こす。さらに、気圧の変動は空気の屈折率を変化させてしまう。これらの要因によって共振器特性は影響を受けてしまう。機械振動や音による外乱も、共振器特性を不安定にする。

ECDL の発振波長を安定させるためには、以上の要因を考慮し、対処する必要がある。

3.2 ECDL の製作

本節では ECDL の実際の製作過程について説明する。

実際に製作した ECDL の内部および外観の様子をそれぞれ 図 3.2、図 3.3 に示す。3.1.2 節で、空気

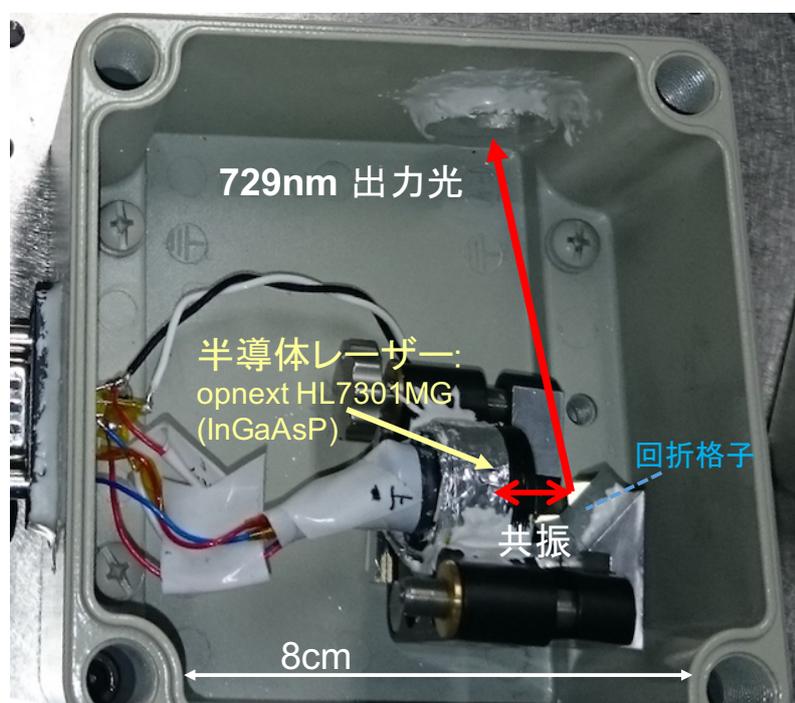


図 3.2 製作した ECDL の内部の様子。密閉式のアルミダイキャストボックスの中に作ることで空気の外乱を避けている。ECDL 本体はミラーマウントに LD と回折格子を取り付けることで作られており、回折角の微調整によって発振波長を調整出来るようにしてある。LD 付近にはサーミスタ抵抗が、ミラーマウント下部には TEC 素子を取り付けてあり、LD の温度をフィードバック制御出来る。

振動、気圧変化等の外乱が発振波長の安定性を低下させることを説明した。これを防ぐため、ECDL は密閉式のアルミダイキャストボックス内に作ってあり、配線用 9 ピン D-Sub コネクタやビーム出力を取り出すウィンドウの接着部分などをトルシールで塞ぐことによって、空気の外乱を可能な限り遮断している。

ECDL の本体は LD と回折格子をミラーマウントに接着することで構成している。このことによって回折格子の取り付け角度を微調整して、729 nm の 1 次回折光が LD の方向に正しく戻るようにするこ

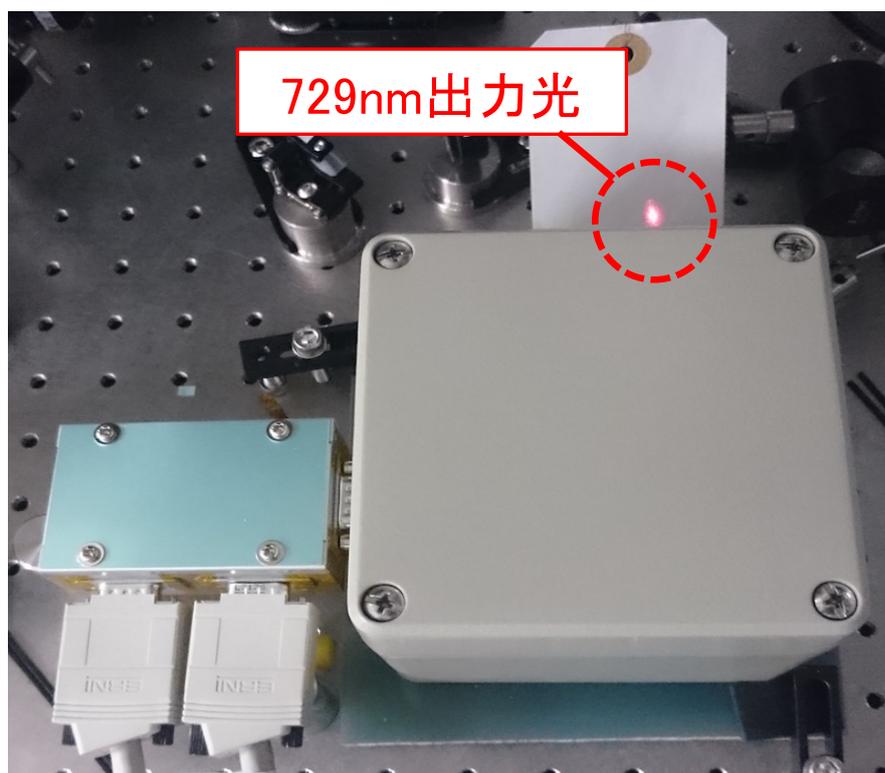


図 3.3 製作した ECDL の外観。写真中に見える赤いスポットが実際の実出力光である。ECDL の箱が固定されているガラスエポキシ板と光学定盤の間には機械振動を除去するためのソルボセインシートが挟んである。9 ピン D-sub コネクタによって ECDL 内部の配線と、LD カレント制御および温度フィードバック制御のためのコントローラ 2 台とを接続している（写真左）。

とが可能になる。発振波長が 729 nm の ECDL を製作するためには LD 自体が 729 nm 付近でゲインを持っている必要があるため、今回は標準で 730 nm 発振の LD (opnext 社製、型番 HL7301MG) を用いている。回折格子は溝の数が 1800/mm の可視光反射型ホログラフィック回折格子を用いており、(3.1) 式にしたがって回折角 41° に設定し、自作した治具によってミラーマウントに取り付けている。LD に流すカレントは、Thorlabs 社製の LDC201CU をコントローラとして用いることで一定に保っている。

3.1.2 節で説明したように、ECDL の温度変化は発振波長のドリフトや不安定性につながる。そのため、LD 付近に 10 k Ω サーミスタ抵抗を取り付けて温度を測定できるようにし、更にミラーマウント下部に TEC 素子 (ペルチエ素子) を配置することによって、LD 付近の温度をフィードバック制御出来るようにしてある。制御は PID 制御で行っており、制御用コントローラは Thorlabs 社製の TED200C を利用している。

ECDL 本体はガラスエポキシ板上に固定してあり、光学定盤との間にソルボセイン製のシートを配置した上で固定・使用している。これは、機械振動が ECDL 内部に伝わるのを防ぐためである。

3.3 ECDL の性能評価

作製した ECDL が要求される性能を満たしていることについての確認実験を行った。結果について以下で順に説明していく。

3.3.1 ECDL の出力強度

パワーメータに ECDL の光を入射させることにより、ECDL に流すカレントと出力強度の関係を調べた。そのグラフを図 3.4 に示す。レーザーとしての発振閾値は 25 mA 程度であり、75 mA のカレントを

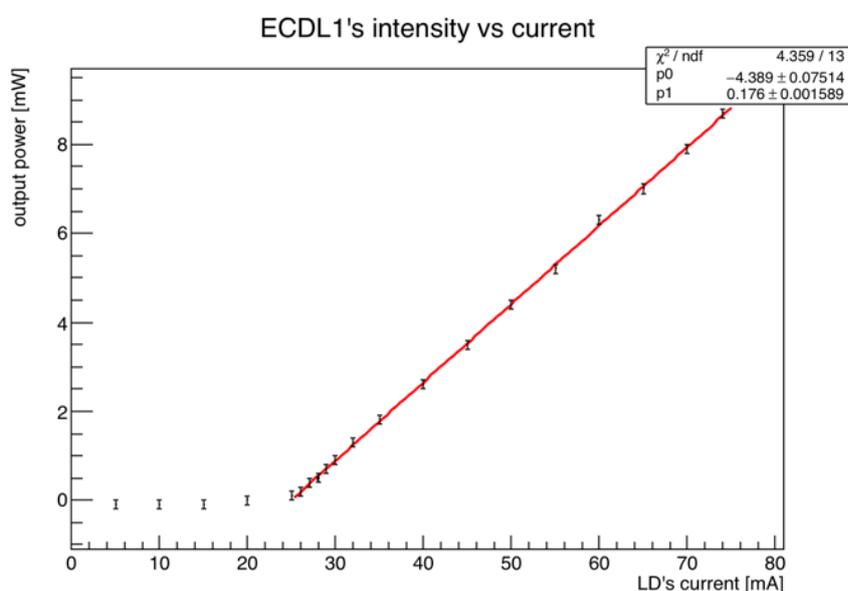


図 3.4 ECDL 出力強度の電流依存性。LD の温度を 30°C に保った状態で測定した。

流した時に最大 8.7 mW の出力が出ていることを確認した。mW オーダー以上の強度が出ていればシート光としては問題なく使用出来るため、作製した ECDL は十分な強度を持つことが分かった。

3.3.2 ECDL の波長設定

ECDL の光をファイバーに入れ、光スペクトラムアナライザ (ANDO 製、型番: AQ6317B) に接続することで ECDL の発振波長を確認した。ミラーマウントの角度を調整することにより ECDL の回折角を少しずつ変えながら発振波長をモニターし、729 nm に合わせるという方針で発振波長を設定した。調整後のスペクトルの図を図 3.5 に示す。

なお、光スペクトラムアナライザは内部の回折格子による分光で波長スペクトルを取得しているため、測定精度は主に回折格子の分解能によって決定する。今回使用したものでは分解能は 0.01 nm (6 GHz) であり、GHz 以下の精度で波長を確認するのは困難である。線幅の測定および、中心周波数 (波長) の安

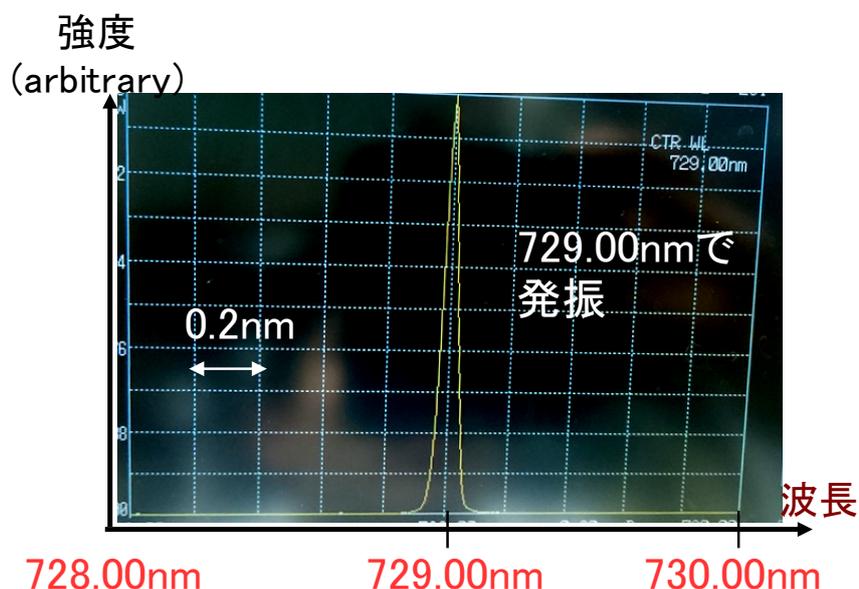


図 3.5 ECDL の発振波長スペクトル。回折格子の角度をミラーマウントで調節しながら波長をモニターし、729 nm に中心波長を設定した。

定性の評価は独立した方法で行った。(それぞれ 3.3.3 節、3.3.4 節を参照。)

3.3.3 ビートの観測による ECDL の線幅の測定

3.3.2 節で触れたように、線幅（波長の広がり）が非常に細い光の波長スペクトルを回折格子・光スペクトルアナライザで直接測ることは困難である。また、光の周波数は数百 THz に達するため、光検出器で光による電場の振動の周波数を直接測定するのも現実的ではない。対応する超高速な光検出器が一般には存在しないからである。そこで、そのようなレーザーの線幅の測定手段として、ビート（うなり）の検出がある。

2つの異なるレーザーについて偏光を合わせた上で光路を重ねると、その光強度はそれぞれの周波数の差の周期で振動する。これがビートである。2つのレーザーの中心周波数が比較的小さければ現実に存在する光検出器、スペクトラムアナライザでビートを検出することが出来る。ここで、観測されるビートは2つのレーザーの線幅に応じて周波数の広がりを持っており、両者の線幅の合計を FWHM とするような Lorentzian となる。原理・導出は第 A.2 節を参照されたい。

ビートの測定を行う上で、重ね合わせる2つのビームの光電場は無相関である必要がある。測定するレーザーの線幅が細くない場合はコヒーレント時間^{*1}はあまり長くないので、ビームを2つに分けて片方を長いファイバーで遅延させ、周波数変調を加えた後に重ね合わせる方法がある（自己遅延ヘテロダイン法）。ただし、ECDL のように MHz 以下の狭線幅となるレーザーのコヒーレント時間は長く、実験室で使える現実的な長さのファイバーでは十分な遅延時間を達成出来ない。

*1 およそ線幅の逆数になる。第 A.2 節を参照のこと。

そこで、同じ ECDL をもう 1 台作成し、発振周波数を 1 MHz 程度ずらして光路を重ねることでビートを観測を試みた。その際の光学系の写真を図 3.6 に示す。ビートを観測するためには偏光を 2 つの ECDL

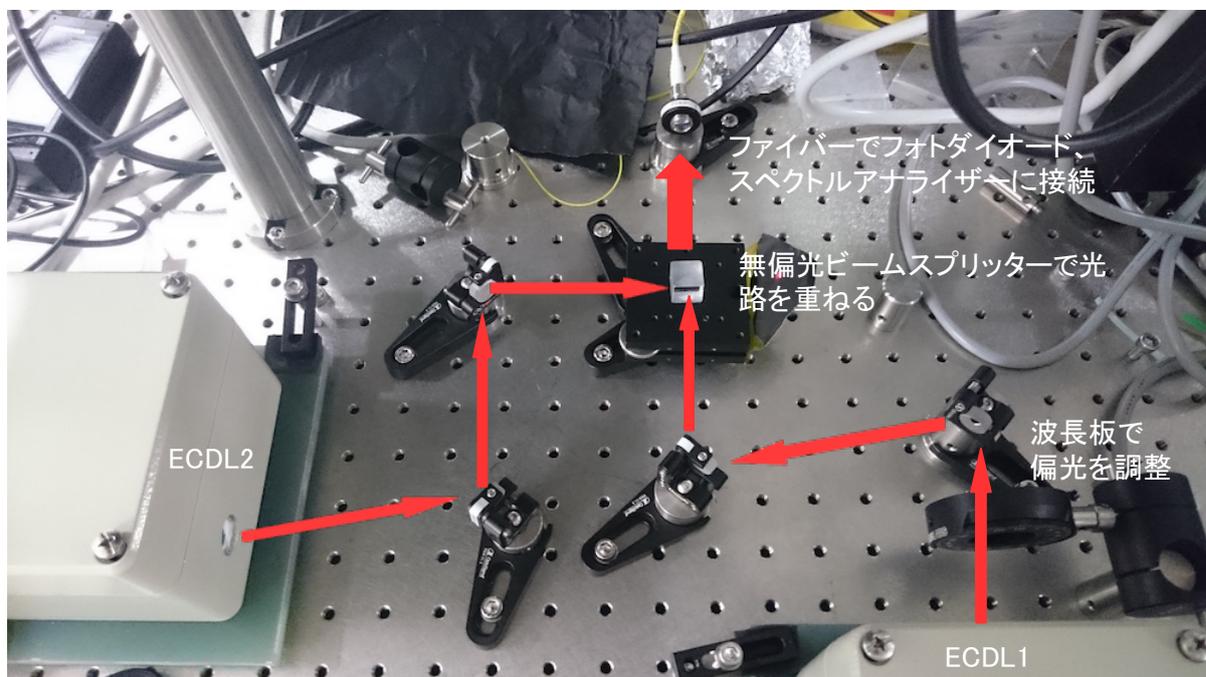


図 3.6 ビート測定のための光学系。2 台の ECDL の出力光を、偏光と光路を重ね合わせてファイバーに入力している。

で合わせる必要があるため、片方のビームの偏光の向きを $\lambda/2$ 波長板で調整している。2 本のビームは無偏光ビームスプリッター (NPBS) を用いて重ね合わせ、重なったビームはシングルモードファイバーに入射させている。ファイバーはバイアス電圧型のシリコン光検出器 ; Thorlabs 社製 DET025AFC/M に接続されており、光強度の時間変化は電気信号へと変換される。

この電気信号のフーリエ変換をとることでビートに対応する周波数スペクトル観測することが出来る。そこで、信号を電気信号スペクトラムアナライザで見ることにより実際に得られたビートの様子を図 3.7 に示す。測定の結果、ビート信号として FWHM で 50 kHz 以下の細かいピークが観測された。すなわち 2 つの線幅の合計が 50 kHz 以下となるので、1 つの ECDL 単体の線幅はより細くなっている。ECDL の線幅の要求値は 1 GHz 以下であるが、それを十分に満たす水準であることが確認された。

3.3.4 ECDL の中心周波数の安定性

3.3.3 節では線幅、すなわち瞬間的な周波数 (波長) の安定性を確認した。一方、ここでは長期的な中心周波数の安定性についての確認を行った。

セットアップとしては、ECDL の光をファイバーに入れて波長計 (図 3.8) に接続することで ECDL の中心周波数を読み取り、データロガー (HIOKI 製、8420) を用いてデータ取得を行った。実際に測定した結果を図 3.9 に示す。データ取得は 4 時間あまりに渡って行った。その間に渡ってはモードホップを起こすことなく、周波数の中心値のドリフトは 0.8 GHz 以内に収まっている様子が確認された。要求ス

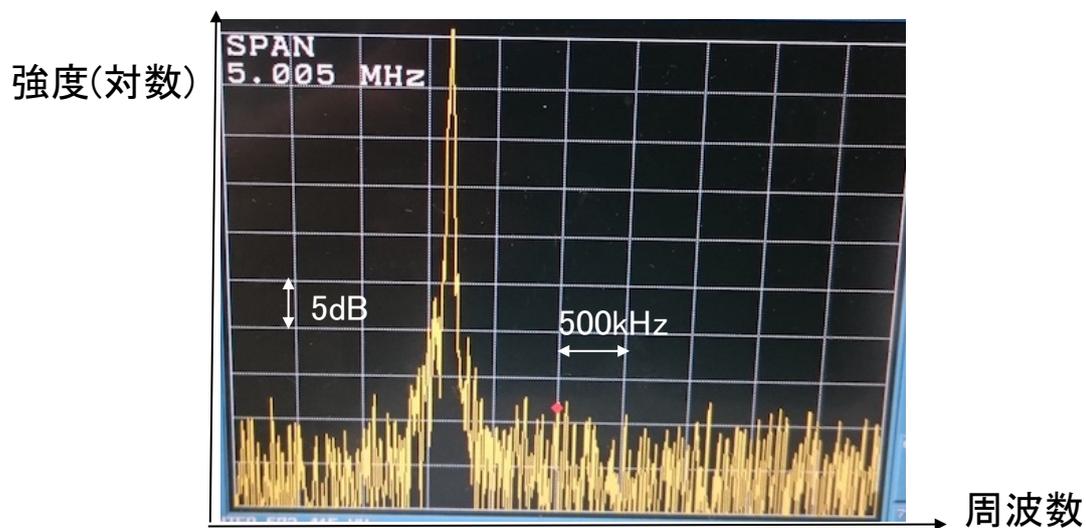


図 3.7 観測された ECDL のビート信号。 sweep time は 10 ms、RBW は 30 kHz である。ビートに対応するピークの FWHM は 50 kHz 以下になっている。



図 3.8 測定に使用した波長計。 ADCMT 社製であり、型番は 8471 である。 He-Ne レーザーを用いたマイケルソン干渉計方式の波長計であり、毎秒 10 回の測定を行うことができる。

ペックは 1 GHz 以内での安定性であり、これを満たしていることを確認した。

以上によって、製作した ECDL が冷却用レーザー光源のシード光としての要求スペックを全て満たすことを確認し、製作は完了した。

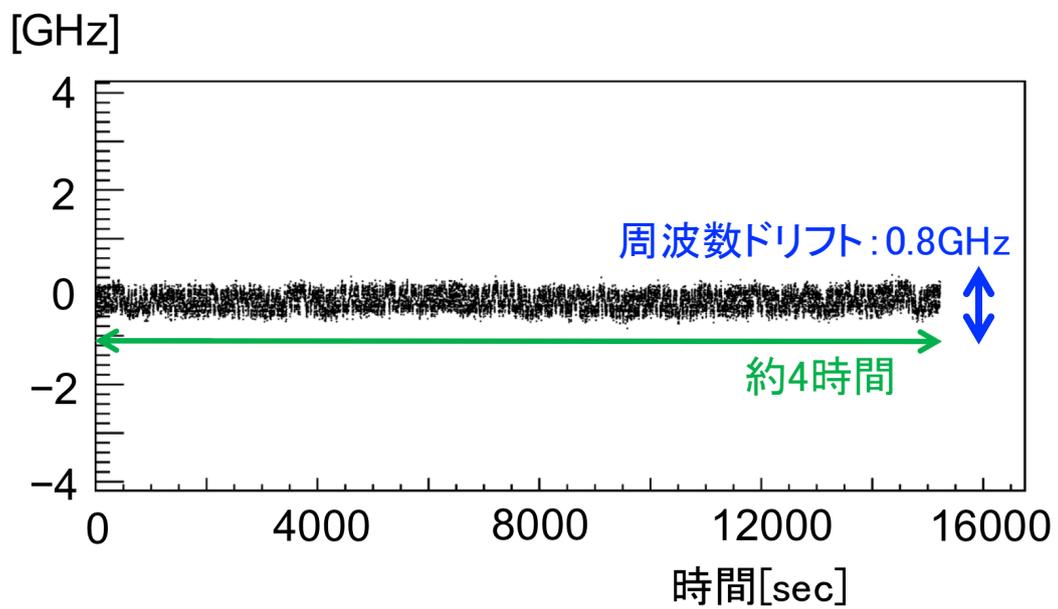


図 3.9 ECDL の周波数ドリフト。縦軸が周波数のシフトを表す。4 時間あまりに渡って 0.8GHz 程度以内に周波数のドリフトが収まっていることを確認した。

第 4 章

Ti:Sapphire 共振器

第 2 章の第 2.3 節で説明した 3 番目のステップに相当する部分である、Ti:Sapphire 共振器を作成した。これはリング型共振器と Ti:Sapphire 結晶を組み合わせた機構のことであり、CW729 nm シード光をパルス化させ、十分な持続時間を持たせるために用いている。

要求されるスペックについて再度まとめると、

- パルス持続時間：1 μs 以上
- パルスあたりのエネルギー：100 μJ
- パルス毎の強度の安定性：5 % 以内
- パルスのジッター： ± 10 ns 以内

のようになる。特に、 μs 程度の持続時間を持つパルスの発生は同種のレーザーでは稀である。

この章では Ti:Sapphire 共振器についての動作原理および、共振器の開発状況の説明を行う。

4.1 原理

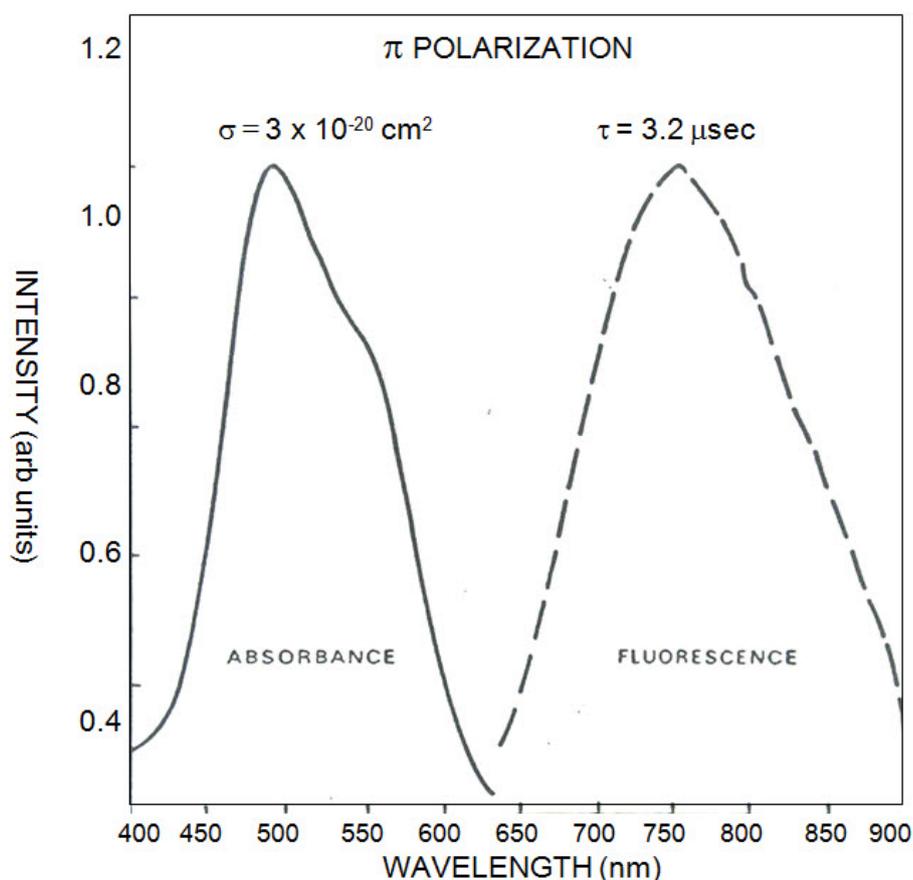
4.1.1 Ti:Sapphire パルスレーザー

ここでは Ti:Sapphire 結晶と共振器を組み合わせることで出来るパルスレーザーに関して説明する。なお、リング型共振器そのものの性質に関しては、第 A.1 節を参照されたい。まずは CW レーザーをシード光として注入することは考えず（フリーランニング）、1 つの独立したレーザーとしてその仕組みの概要について述べる。次に、CW シード光と組み合わせることによって、シード光と同じ波長スペクトルを持つパルスが生成する（injection locking）ことに関して説明する。

フリーランニング時における Ti:Sapphire パルスレーザー

ここでは Ti:Sapphire 結晶と共振器を組み合わせることでパルスレーザーを作ることが出来る原理について説明する。まずは Ti:Sapphire 結晶について説明する。Ti:Sapphire 結晶とは、Sapphire に Ti^{3+} イオンをドーブした結晶であり、赤い見た目をしている（図 4.6 など）。重要な性質として、ドーブされている Ti^{3+} イオンによって、p 偏光（あるいは π 偏光）に対して、例えば図 4.1 のような吸収断面

積、自然放出光スペクトラムを持つ。吸収帯は約 490 nm をピークとしておよそ 400~600 nm の範囲に広がっており、放出帯も約 650 nm~900 nm 以上と、赤色から赤外域までかなり広範囲に渡っているのが顕著な特徴である。この性質のため、例えば Nd:YAG パルスレーザーの 2 倍波 (532 nm) など、強度を出しやすく取り扱いやすい波長の光で Ti:Sapphire 結晶を励起し、誘導放出により赤色から赤外光の波長帯にあるレーザーを増幅する用途によく使われる。特に、波長が tunable なレーザーの作製や、光周波数コムなど広い波長帯域が必要なレーザーの作製に利点があり、本研究は前者の場合に相当する。このよ



π-polarized absorbance and fluorescence from Ti:Sapphire at 300 K.

図 4.1 Ti:Sapphire 結晶の光吸収断面積・自然放出光スペクトラム (p 偏光) [26]

うな Ti:Sapphire 結晶をリング型共振器の内部に入れ、パルスレーザーをポンプ光として注入し、励起することを考える。Ti:Sapphire 結晶における吸収帯域は 図 4.1の左側のグラフに示されるように、およそ 490 nm をピークとして 400 nm~600 nm に広がっている。よく普及しているレーザーとして Nd:YAG パルスレーザーがあり、その 2 倍波による 532 nm パルス光がポンプ光としてよく用いられる。励起された Ti:Sapphire 結晶は 図 4.1の右側のグラフに示されるような広帯域の光を自然放出光として発する。このような自然放出光の中には共振器における共振モードが一部含まれている (カップリングを持つ)。したがって、自然放出光のうち、共振条件を満たす周波数であり、共振器を 1 周したときに元に戻るような

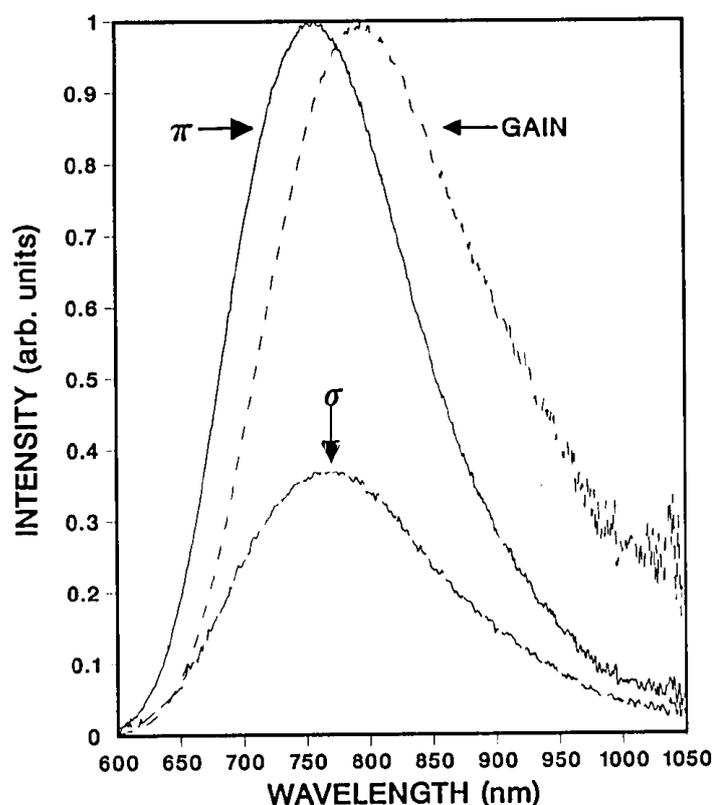


図 4.2 Ti:Sapphire 結晶の自然放出光スペクトラムと誘導放出断面積スペクトラム [27]。横軸は波長を表す。縦軸は任意単位である。 π 、 σ のグラフはそれぞれ p 偏光、s 偏光の自然放出光スペクトラムに対応し、GAIN は誘導放出断面積の波長スペクトラムを表している。

空間モードの光の成分が共振器中に蓄積されエンハンスされる。このとき、Ti:Sapphire 結晶は励起されてゲインを持っているため、共振器中に蓄積された光は誘導放出により増幅される。ここで、誘導放出断面積の波長依存性は図 4.2 中に示される。Ti:Sapphire によるゲインが共振器を 1 周する際のトータルのロスを上回る場合には、増幅は Ti:Sapphire 結晶に蓄積されたエネルギーを使い切るまで続く。これが Ti:Sapphire パルスレーザーの発振であり、誘導放出により増幅された光なのでコヒーレンス性を持つ。増幅が終わった後は共振器の持つロスに応じて減衰していくため、時間波形はパルス状になる。

ここで、発振が起きる周波数は Ti:Sapphire の放出する広帯域の光のうち、共振器における共振条件を満たすあらゆる周波数が候補となる。実際には共振器を構成するミラーや光学素子などの特性と合わせて発振周波数が決定するが、一般には次節で説明するようなシード光の注入を行わない場合（フリーランニング）は、多数の縦モードが共存するマルチモード発振となる。また、共振器内に光アイソレータなど光の進行方向を制限する素子を置かない場合は、共振器を順方向、逆方向に周回する光がともにパルス発振をおこすため、出力光は 2 方向に発生する。

injection seeding

前節で説明したように、一般にフリーランニングの Ti:Sapphire レーザーの発振波長・周波数は単一の縦モードとはならず、不定かつ広帯域なものになってしまう。

そこで、Ti:Sapphire レーザーの発振波長を制御するための方法として、Injection seeding がある。シード光として CW レーザーを Ti:Sapphire 共振器に入射させると、共振条件を満たして入れば内部で強度がエンハンスされ、蓄積される。このような状況下で Ti:Sapphire 結晶にポンプレーザーを当てて励起することを考える。フリーランニング時では Ti:Sapphire 結晶の出す自然放出光の一部がエンハンスされ、誘導放出によるパルス発振を起こしたが、シード光が十分な強度で共振器内に蓄積されていれば自然放出光よりも速く誘導放出による増幅・パルス発振を起こす。自然放出光由来の縦モードが発振を起こす前に、シード光に対応するモードが発振を起こして Ti:Sapphire 結晶のゲインを使い切ってしまうため、発振周波数はほぼ完全にシード光と同じものになる。これが、injection seeding である。なお、フリーランニング時にはパルスの発振方向は2つ存在したが、injection seeding により発生するパルス光はシード光と同方向になる。

周波数スペクトルを制御した CW729 nm レーザーをシード光として Ti:Sapphire 共振器に注入することで、必要とする周波数スペクトルを持つパルスレーザーを生成することが出来る。

4.1.2 Hänsche-Couillaud 法による共振器の lock

第 4.1.1 節で、injection seeding を行うためには CW シード光の周波数が Ti:Sapphire 共振器の共振条件を満たす必要があることについて触れた。Ti:Sapphire 共振器の共振器長やシード光の発振周波数は外気の温度変化などに伴いドリフトする他、機械的振動や音などの外乱の影響を受けるため、常に共振条件を満たすようにするにはフィードバック制御を行う必要がある。

フィードバック制御を行うためにはどの程度共振から外れているかを示す error 信号を取得する必要があるが、今回は Hänsche と Couillaud によって 1980 年に紹介された方法 [28] を用いた。本論文では今後、この方式のことを HC 法と略記する。

HC 法は共振器の特性に偏光依存性がある際に用いられる手法である。例えば s 偏光と p 偏光とで片方は低ロスだが、もう一方はより大きいロスを感じるような共振器に対して両偏光が混じった光を入射させることを考える。このとき共振条件下では片方の偏光のみが共振器にため込まれるようになるが、もう一方の偏光はほとんど共振器内に入らない。そのため、共振条件付近では共振器を通過して出てくる光の偏光状態が変化するようになる。

具体的には、s,p 偏光の混じった直線偏光の光を共振器に入射させたとき、完全に共振条件を満たして入れば共振器の透過光は直線偏光になる*1が、共振条件からのずれに応じて円偏光成分が混じるようになる。この円偏光成分の回転方向は共振条件からのずれの向きを反映するものであり、フィードバック制御に用いる error 信号として有用である。すなわち、完全に共振条件を満たす時の直線偏光を完全に円偏光に変換するように $\lambda/4$ 波長板を配置する。このとき、共振条件から少し外れて円偏光が共振器の透過光に

*1 ただし、s 偏光と p 偏光の光はそれぞれが感じる共振器のロスに応じて損失を受ける。このロスの大きさは異なるため、透過光の偏光の向きは一般に入射光のものとは異なるものになる。

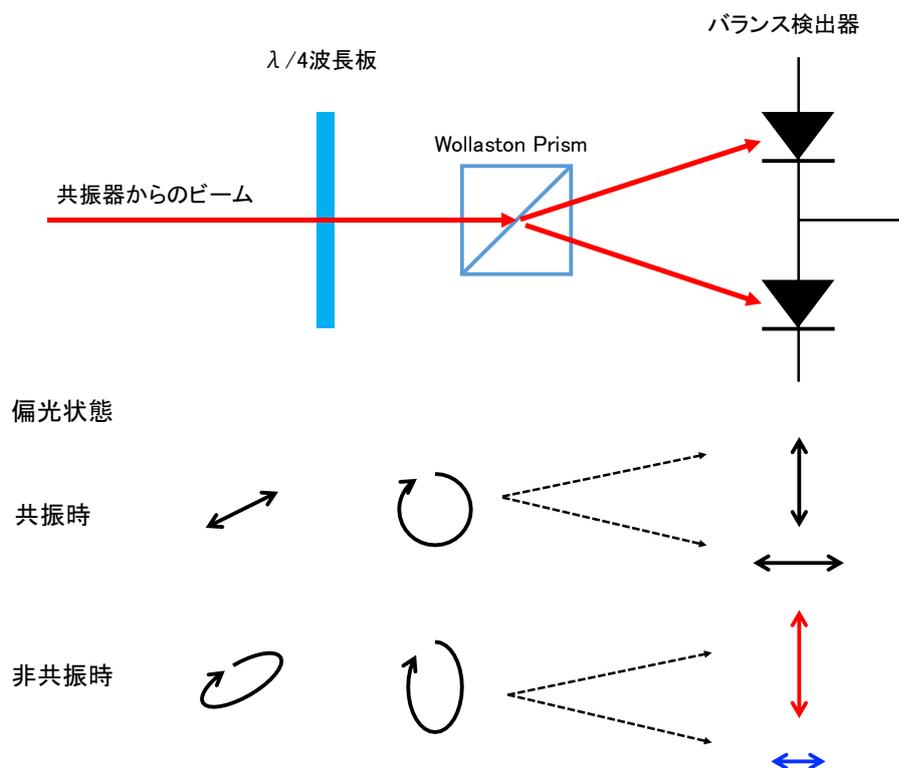


図 4.3 HC 法のセットアップ概念図。共振時は共振器の透過光（出力光）は完全に直線偏光になり、 $\lambda/4$ 波長板で偏光を適切に変えることにより、完全な円偏光に変換される。これを Wollaston Prism などの偏光素子に通すと、1:1 の p 偏光と s 偏光に分離される。これをバランス検出器、すなわち 2 つのビームの光強度の差を検出する光検出に入れると、両偏光は同強度なので信号の大きさは 0 になる。一方で、共振からずれて円偏光が透過光に混じった場合を考えると、円偏光成分は $\lambda/4$ 波長板によって直線偏光成分に変換される。その結果、Wollaston プリズムで分離される p,s 偏光のバランスが変化し、バランス検出器が有意な信号を得る。このとき、信号の正負は透過光に混じる円偏光成分の向き、すなわち共振条件からのずれの方向を反映する。

混じる場合を考えると、円偏光成分は $\lambda/4$ 波長板によって直線偏光に変換される。

このとき、この直線偏光の s 偏光および p 偏光の割合および大きさは、透過光の円偏光成分の向きと大きさに依るものである。この円偏光の向きはすなわち共振条件からのずれの向きを示すものであるから、フィードバック制御をするべき「向き」を決めることができる。これが、HC 法の概要である（概念図を図 4.3 に示す。）。なお、式などの導出に関しては第 A.3 節を参照されたい。

error 信号としては分散型の波形を得ることができ、本実験で行っているように例えば error 信号に応じて共振器長を調整することによって共振条件の維持が可能になる。

HC 法の利点として、

- 裾が広く、SN が良いため lock に便利
- 比較的セットアップが簡単

といった点が挙げられる。例えば、共振器での（反射光を含まない）透過光強度、あるいは共振器内にお

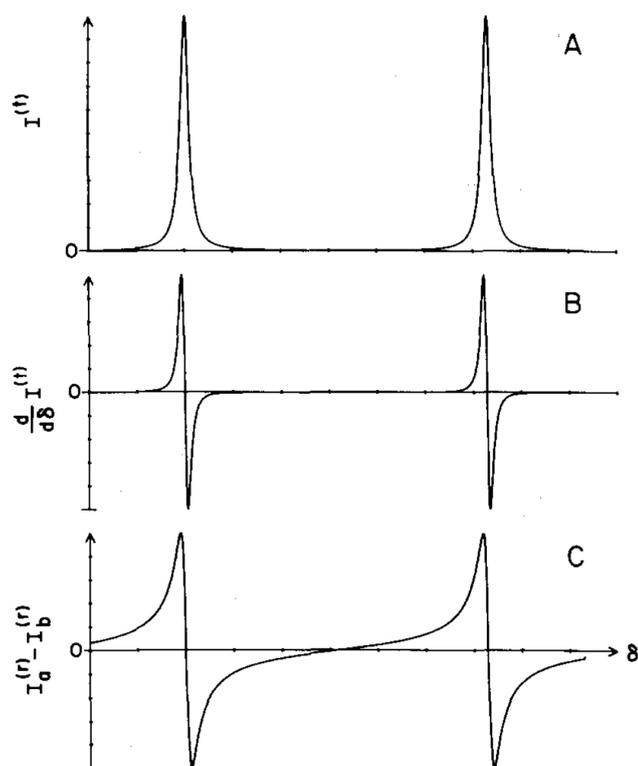


図 4.4 共振器の透過光の微分信号と、HC 法における error 信号との比較 [28]。A は共振器の透過光の強度を表し、B はその微分信号を表す。C は HC 法における error 信号である。

ける光強度を微分した信号も、共振からのずれの方向が分かるために原理的にはフィードバック制御に使える。しかし、図 4.4 のように、HC 法における error 信号の方がより裾が広がっており、共振からのずれが大きいところまで error 信号が有意に値を持つ。そのため、HC 法の方がフィードバック制御において有利であると言える。

また、後者についてであるが、HC 法において必要な素子は $\lambda/4$ 波長板と、Wollaston Prism などの偏光素子、そして偏光素子で分離した 2 本の光線の光強度の差分を検出するバランス検出器である。例えば同じく共振器を対象にしたフィードバック方法であり、偏光依存性の少ない Fabry-Pérot 共振器によく使われる PDH 法 [29] では、EOM を利用して共振器に注入する光に変調を加える必要があり、より多くの素子・装置を使用しなければならない。

4.2 プロトタイプ共振器の作製と評価

本節では最終的な設計を見積もるための原理検証として作製した Ti:Sapphire 共振器のプロトタイプについて述べる。Ti:Sapphire 結晶の励起に用いた LIGHTWAVE210G (Nd:YAG532 nm パルスレー

ザー) の写真を 図 4.5、また、共振器内で用いた Ti:Sapphire 結晶を 図 4.6に示す。LIGHTWAVE210G



図 4.5 LIGHTWAVE210G の写真。共振器中の Ti:Sapphire 結晶を励起するのに用いた 532 nm パルスレーザーのヘッド部分を撮影したものである。



図 4.6 共振器の内部に設置した Ti:Sapphire 結晶。結晶の形状は brewster-cut になっている。サイズは縦横が共に 4 mm であり、長さが 20 mm である。

はパルス強度および繰り返し数が可変であり、典型的には繰り返し数 1 kHz で使用でき、最大でパルスあたり 1 mJ のエネルギーを出すことができる。

次に、プロトタイプ共振器の設計について 図 4.7に示す。また、実際に製作したものを 図 4.8に示す。パルス持続時間を十分長くすることが最大の目的であるので、アウトプットカップラーの強度反射率は

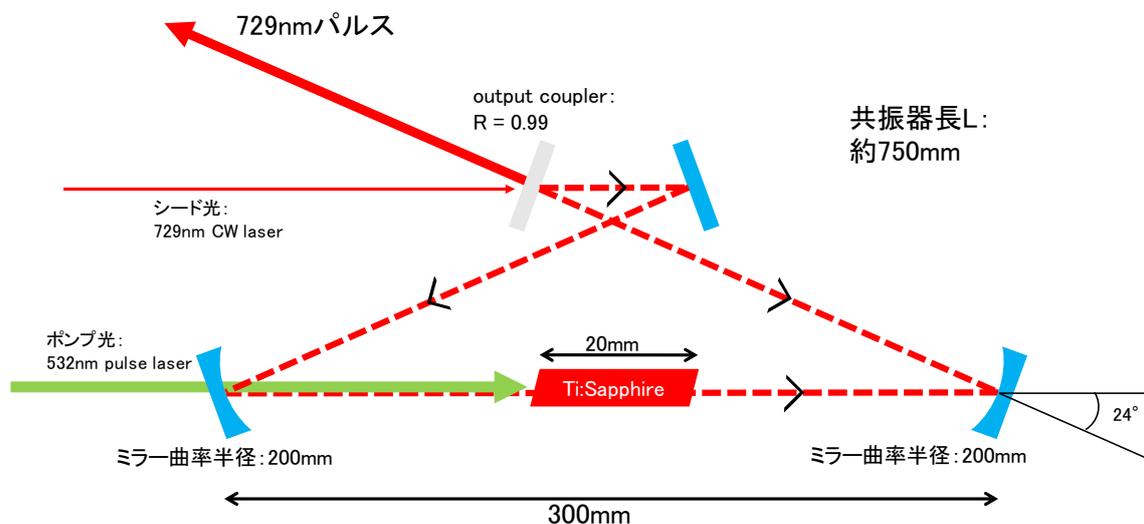


図 4.7 Ti:Sapphire 共振器プロトタイプ的设计概要。共振器長の设计値は 750 mm であり、凹面ミラー間の距離は 300 mm と 450 mm である。アウトプットカップラーの強度反射率は 99 % である。

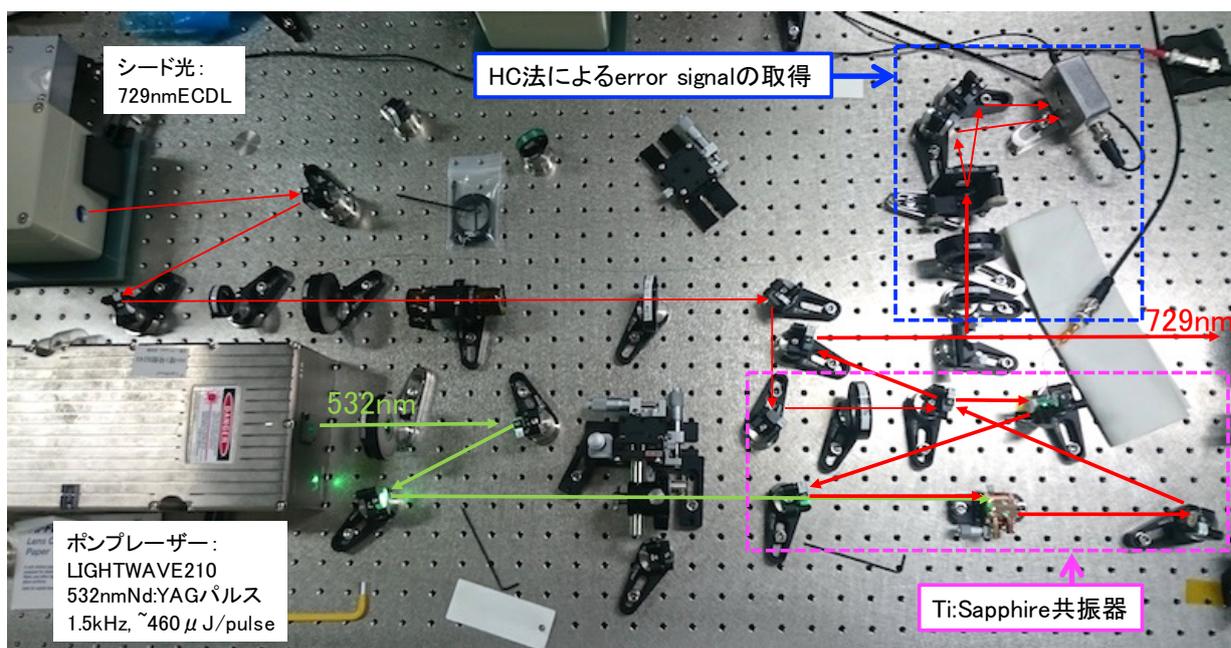


図 4.8 プロトタイプとして製作した Ti:Sapphire 共振器による 729 nm パルス生成の光学系

99 % とし、Ti:Sapphire 共振器としては高フィネスになるように設計した。これによってパルスの減衰時間（光子寿命）をなるべく長くする狙いがある。

今回製作した共振器はロスが少ないために発振パルスが強くエンハンスされることから、最大強度でポンプするとミラーの損傷を引き起こすリスクがあった。そのため、LIGHTWAVE210G によるポンプは最大強度ではなく、460 μJ に強度を弱めて行った。

次に、シード光を注入しないフリーランニングの場合において得られた発振波形を掲載する（図 4.9）。データの取得は、Thorlabs 社製の Photo Detector : DET10N/M を用いて行っており、共振器のミラー

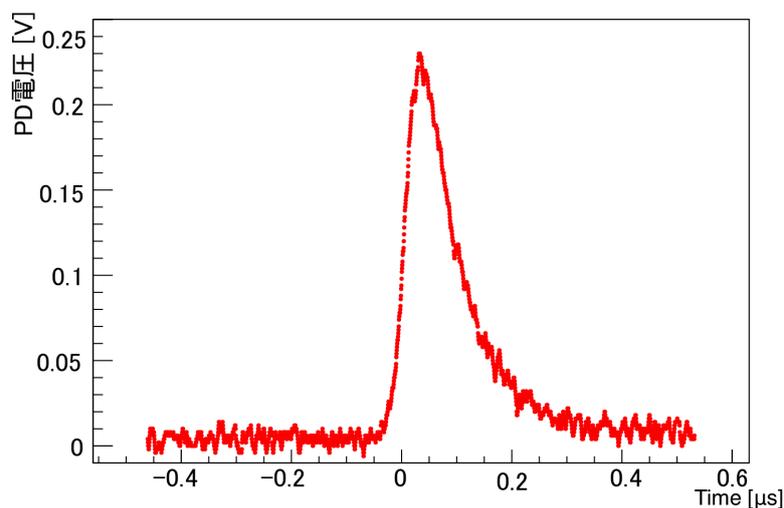


図 4.9 プロトタイプ共振器のフリーランニング駆動で得られたパルス波形。FWHM で 100 ns のパルス持続時間を持っている。

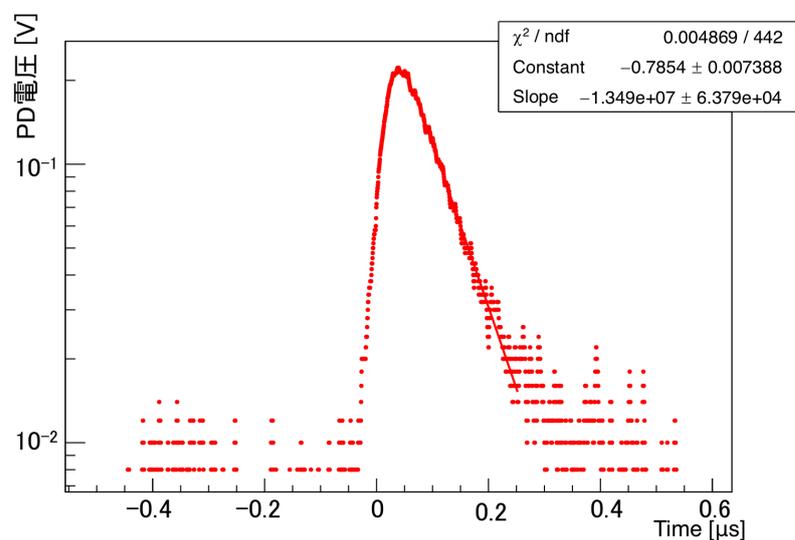


図 4.10 フィッティングによる光子寿命の測定。図 4.9で示した発振パルスの減衰部分を指数関数でフィッティングしたもの。縦軸は Log スケールにしてある。

からの漏れ光の一部を取得している。結果、FWHM で 100 ns の持続時間を持つ赤色光のパルスが得られた。発振光は output coupler から 2 方向に出ており、合計で 1 回の発振あたり 28 μJ のエネルギーを持つ。また、共振器のロスを測定するためにパルスの減衰部分を指数関数でフィッティングした（図 4.10）。

なお、パルスのピーク付近は Ti:Sapphire のゲインが残っているため指数関数的な減衰にはならない。また、十分にパルスが減衰してしまうとノイズが優勢になってしまい、やはり指数関数とは合わなくなる。フィッティング区間は以上を踏まえて設定した。この結果、 74.1 ± 0.4 ns の光子寿命を持ち、共振器長が設計値が 750 mm であるため、一周あたり 3.37 ± 0.02 % のロスがあることが分かった。うち、output coupler の透過によるロスが 1 % あるので、output coupler 以外のミラーや Ti:sapphire 結晶などでのロスの合計は 2.4% となる。

また、フリーランニング時における発振パルスを光スペクトラムアナライザにつないで、発振波長のスペクトルを観察した（図 4.11）。フリーランニング時においては、760 ~ 800 nm に渡って発振波長が広

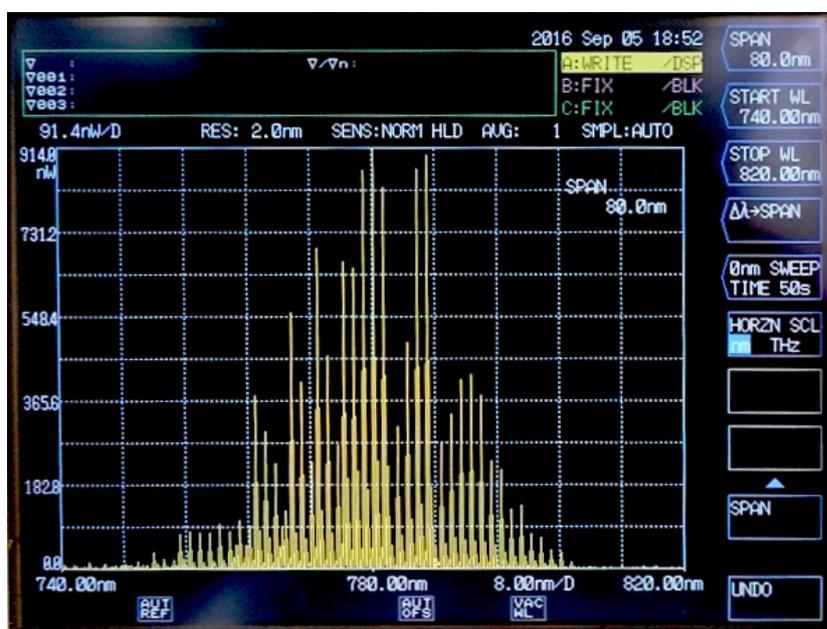


図 4.11 プロトタイプ共振器のフリーランニング時における波長スペクトラム。光スペクトラムアナライザを用いて取得した。

がっている様子が分かる。これは、フリーランニング時は Ti:Sapphire からの自然放出光が種となってパルス発振を起こすことに起因しており、およそ図 4.1 と似たスペクトルになっている。完全に一致しないのは、Ti:Sapphire の自然放出光スペクトラムだけでなく、誘導放出断面積のスペクトラム（図 4.2）や共振器特性の波長依存性も効いてくるからである。

次に、シード光の注入と共振の lock について述べる。本実験では、Ti:Sapphire 共振器からの出力光を偏光ビームスプリッター（PBS）で分離することにより共振を lock するための error 信号を得た。PBS を用いるのはほぼ p 偏光であるパルス光が error 信号に混じることを極力避けるためである^{*2}。HC 法によるフィードバック制御のために用いるバランス検出器を作成した。回路図を図 4.12 に、実際に製作し

^{*2} PBS を用いて問題無く error 信号を取得出来る理由は第 A.3 節を参照されたい。この他に HC 法による共振の lock とパルス光の発生を両立する手段としては音響光学素子（Acousto-optic modulator, AOM）を用いたシャッター機構を使うものがある [30]。しかし、必要な素子の数を多くなり実験系が煩雑になること、また、PBS を用いたセットアップによって十分にパルス光の lock への影響を減らすことが出来たことから、本実験では採用しなかった。

たものの写真を 図 4.13 に掲載する。これは同一種類の Photo Detector による 2 つの受光面を持つてお

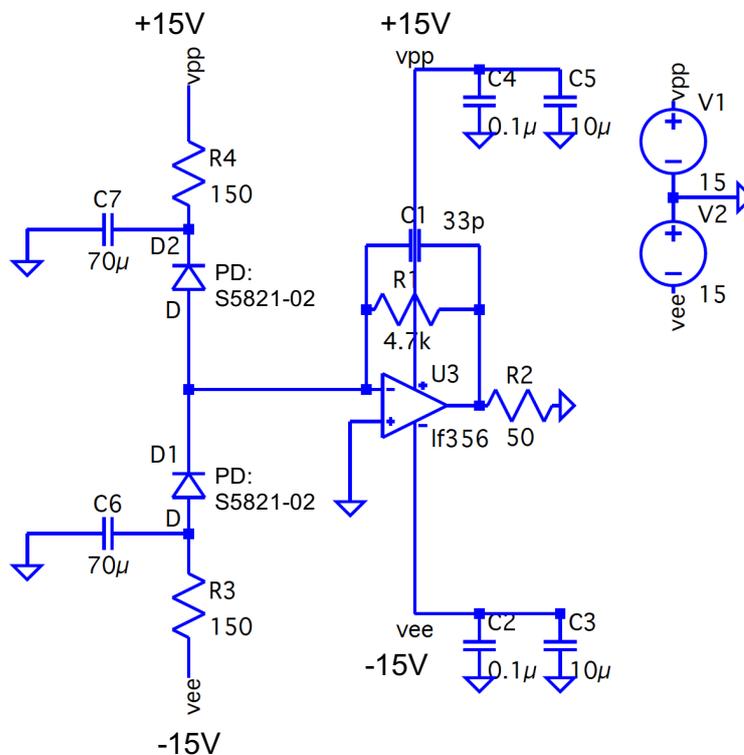


図 4.12 作製したバランス検出器の回路図。同一種類の Photo Detector により 2 つの受光面を持ち、片方が正の出力、もう片方が負の出力に対応する。光電流を電圧に変換するトランスインピーダンスアンプ部分が 2 つの Photo Detector で共通に使われているために 2 つの受光面に対するゲインが共通する。



(a) 作製したバランス検出器の外観



(b) 作製したバランス検出器の内部

図 4.13 作製したバランス検出器

り、片方が正の出力、もう片方が負の出力に対応する。図 4.3において、Wollaston Prism で分離した s 偏光と p 偏光をそれぞれの受光面に入れることで error 信号を取得することが出来る。実際のフィード

バック制御は、共振器を構成する1枚のミラーにピエゾ素子を付けて（図4.14）、error信号に対応して印加電圧を調整することにより行った。フィードバック制御はサーボコントローラ（Newport社製、

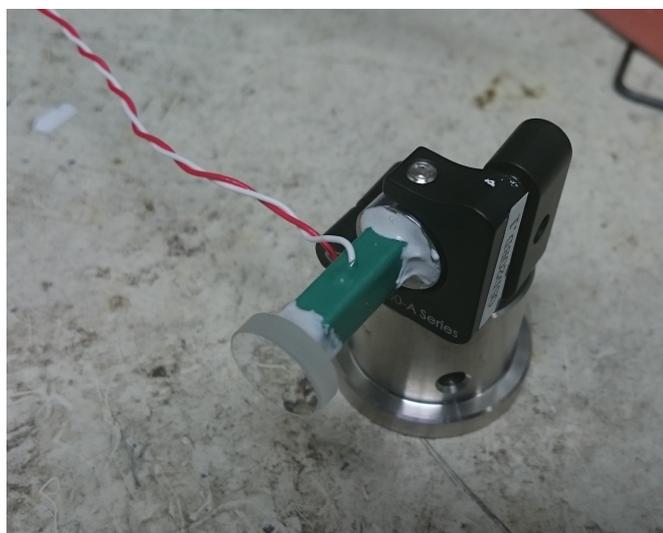


図4.14 ミラーに取り付けたピエゾ素子。印加電圧を調整することでミラー位置がわずかに前後し、共振器長を微調整出来る。

LB1005) を用いて error 信号を PI フィルターにかけ、その出力を 30 V~100 V 駆動の 10 倍反転増幅器にかけることで行う。実際に HC 法によって得られた error 信号を図 4.15に示す。この際にはポンプ光の注入は行っておらず、Ti:Sapphire 結晶はゲインを持っていない。ここでは、error 信号と同時に共振器からの出力光（output coupler における反射光と共振器の透過光が混ざったもの）も同時に PD（Thorlabs 社製、DET10C/M）で取得している。温度変化などによる共振器長のドリフトによって一瞬だけ共振点を横切っており、その際に error 信号特有の分散型の信号が見られる。第 A.1 節で説明するように、共振器の出力光は共振時に低下するが、その様子が実際に確認されている。

次に、得られた error 信号を用いてフィードバック制御を行った際の error 信号および、共振器の出力光の挙動を図 4.16に掲載する。フィードバックをかけると、分散型をしている error 信号のゼロ点（共振点）付近で細かく振動をすることになる。このため、error 信号は細かく振動をしているような挙動を示す。このとき、共振器からの出力光は共振の良さに応じて低くなる（第 A.1 節参照）。

次に、532 nm ポンプ光を Ti:Sapphire 結晶に照射してゲインを与え、injection seeding が起きるかどうかを見た。その様子を 図 4.17に示す。729 nm パルスは出力光を回折格子で分けて、シード光と同じ波長の光を Photo Detector（Thorlabs 社製、DET10C/M）に入れて観測した。自然放出光パルスは光アイソレータを用いて取得した。4.1.1 節で説明したように、injection seeding による 729 nm パルスと異なり自然放出光によるパルス発振は 2 方向に起こり、片方は戻り光としてシード光の方向に進行する。光アイソレータはこの戻り光を反射させることでシード光源への到達を防ぐと同時に、自然放出光パルスのみを取り出す働きをする。光アイソレータを用いて自然放出光パルスを同種類の Photo Detector に入射することによりパルス波形を取得した。

観測の結果、シード光の lock が起きると自然放出光のパルスの波高が少し低くなり、729 nm パルスが

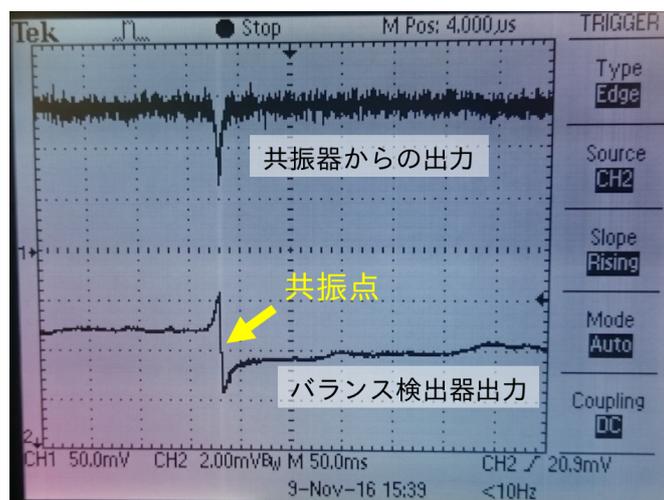


図 4.15 共振点を横切るときの、共振器からの出力光と観測される error 信号の様子。結晶にポンプ光を照射していない状態で、ECDL の光をシード光として注入して error 信号と出力光の光強度（上のグラフ）を見た。

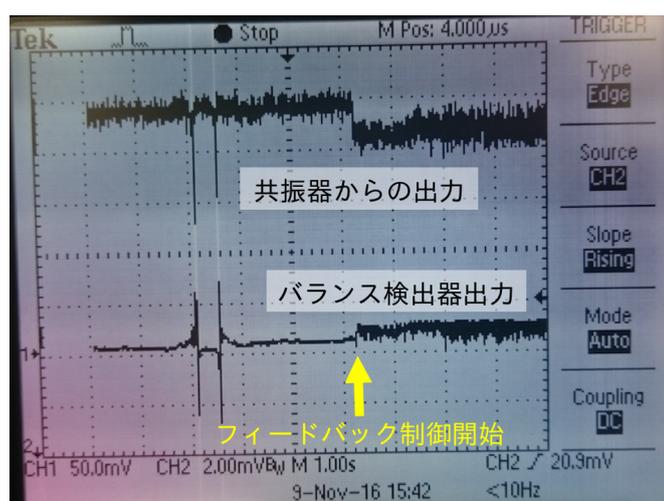


図 4.16 フィードバック制御時における error 信号の振る舞いと共振器の出力

発生する様子が見られた。発生した 729 nm パルスの強度平均は最大で $10 \mu\text{J}$ である。これは、パワーメータを用いて 729 nm 光の平均強度を取得し、パルスの繰り返し数で割ることによって求めた値である。

ここで、図 4.17 で示された状況は、injection seeding は部分的に起こっているものではないことを表す。すなわち、完全に injection seeding が起きれば 729 nm パルスのみが発生し、自然放出光による発振パルスは発生しないはずだからである。このような状況が起きる原因として挙げられるのは Ti:Sapphire 結晶におけるゲインの波長依存性である。図 4.1 で示した誘導放出断面積に比例した大きさのゲインを持つため、波長がピーク波長よりも短い 729 nm パルスは強度の成長が遅いため支配的なモードになることが出来なかったと考えられる。

次に、HC 法による共振の lock がどの程度安定して継続するかを調べるために 729 nm パルスの強度

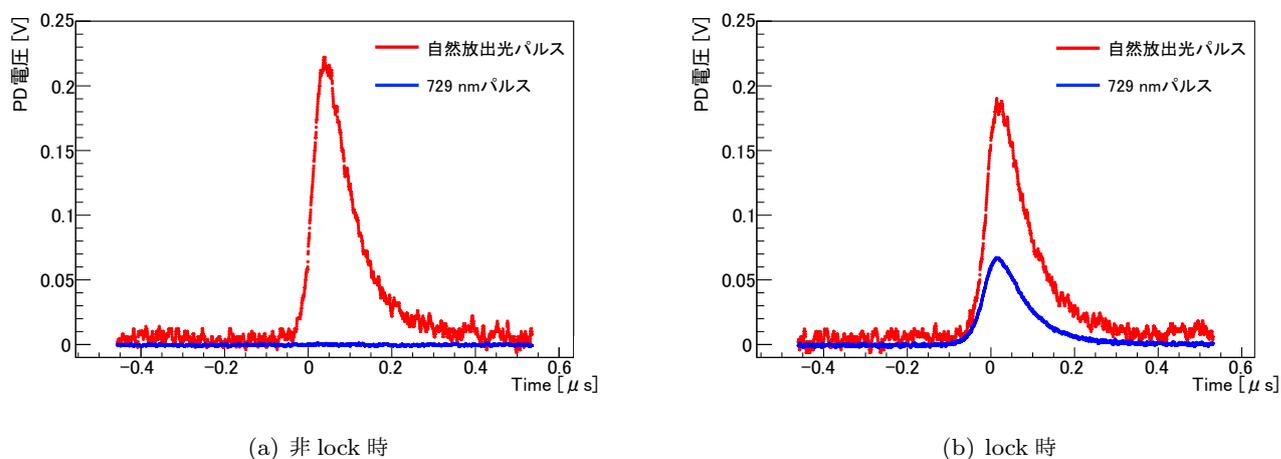


図 4.17 729 nm シード光注入による seeding。赤線は自然放出光によるパルスを表しており、青線は 729 nm パルスの時間波形を表している。縦軸は PD 電圧を示しており、自然放出光パルスと 729 nm パルスでは感度および PD への入射強度が異なるため、絶対強度の比較は出来ないことに注意が必要である。左の図 (a) が共振の lock が起きていない時、右の図 (b) は lock が起きた時に得られる時間波形の典型的なグラフを表す。lock が起きているときは自然放出光パルスの波高が 2 割低くなり、729 nm パルスが発生している。

の安定性を計測した。計測は、オシロスコープの画面をカメラで撮影し、画像解析によって波形のピーク値を取得することによって行った。図 4.18 にその結果を示す。測定の結果、少なくとも 10 分間は共

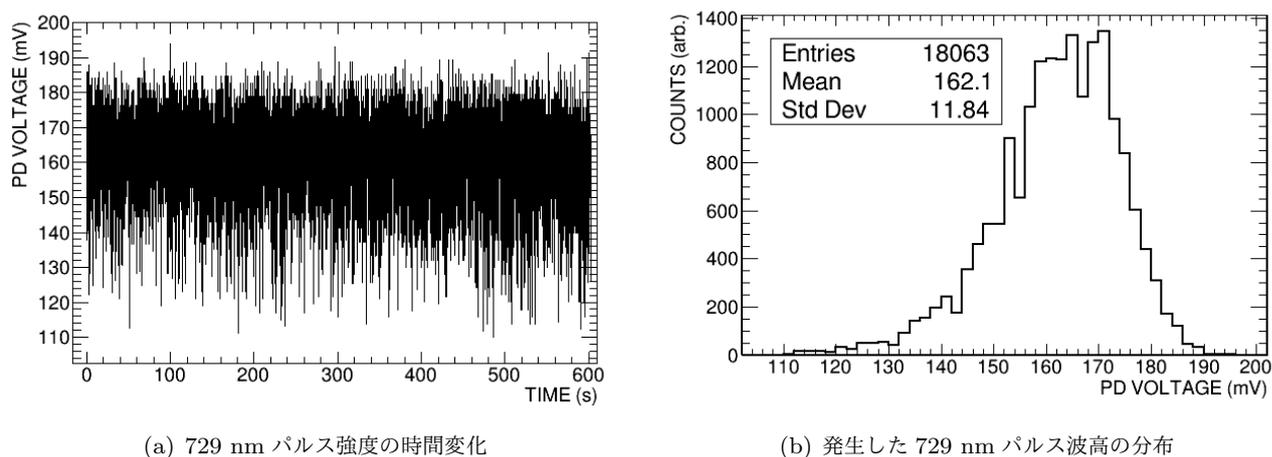


図 4.18 729 nm パルスの強度安定性。左図 (a) は 729 nm パルスの波高 (PD 電圧) の時間変動を 10 分以上に渡って取得したものである。右図 (b) はパルスの波高の電圧値を 1 秒あたり 30 回取得し、ヒストグラムにつめることによって波高のばらつきを表したものである。

振器の lock が持続し、729 nm パルスが生成し続けていることが分かる。また、パルス波高の電圧値を 1 秒あたり 30 回取得しヒストグラムにすることによりそのばらつきを調べた。その結果、最頻値周りで FWHM にして約 12% の強度のばらつきがあることが分かった。

4.2.1 プロトタイプ共振器のまとめ

プロトタイプ共振器では以下の項目：

- 部分的な injection seeding
- パルスあたり 10 μJ の強度
- FWHM で約 100ns の持続時間
- 少なくとも 10 分以上継続した HC 法による共振の lock
- 12% の強度安定性

を達成した。第 2.3 節で説明した要求スペックを満たす上で、パルスあたりのエネルギーは要求スペックを満たすが、injection seeding が十分に起きておらず、自然放出光による不要な波長での発振が起きてしまっていることがまず課題として挙げられる。これは、共振器を構成するミラーについて、赤色・赤外線対応の市販品のミラーを使用したため、729 nm だけでなく Ti:Sapphire の出す自然放出光のピーク付近（約 760 ~ 800 nm）でも反射率が高く、そのために自然放出光での発振は起こりやすい状況であったことが一因として考えられる。誘電体ミラーは特注品を用いることで反射率の波長依存性のある程度調整することができ、729 nm より長波長側での反射率を低くして不要な発振を抑えるなどの対応策が考えられる。

また、要求スペックの達成には持続時間の増大も必要となる。まず、共振器長をより長くすれば、パルスの時間発展が遅くなり、パルス持続時間が長くなることが考えられる。また、共振器の 1 周での損失が 3 % 以上あることもパルスの減衰を早めて持続時間を短くする要因となる。したがって、共振器長を長くし、共振器ミラーをなるべく高反射率のものを使用して、output coupler 以外での損失を抑えることが共振器の持続時間増大のために必要となる。実際、プロトタイプ共振器で用いたミラーは中古品で若干傷がついている状態で使用していた。ミラーを新品に取り替えることでも損失を減らすことが出来ると考えられる。

安定性については、発生する 729 nm パルス強度の安定性は要求スペックの 5 % よりもばらついてしまっているものの、HC 法による継続した共振器の lock が出来ることを確認した。共振器の設計を変更した場合、同様の lock 精度が要求されるかは自明ではない。プロトタイプ共振器における実験は seeding が完全なものでなく、729 nm パルスと自然放出光によるパルスが競合している状態であり、729 nm パルスのみが発生するという最終的に達成すべき状況とは性質が異なるものだからである。ジッターの安定性についてもプロトタイプ共振器においては特に測定していないが、同様の理由による。そのため、lock 精度の向上によるパルス強度およびジッターの安定化は、新しい設計の共振器の中で取り組むべき課題であると考えられる。

4.3 共振器のアップグレード

第 4.2 節での結果を踏まえ、第 2.3 節で説明した要求スペックを満たすために Ti:Sapphire の設計を改良して実験を行った。本節ではその設計と実験現状について述べる。

アップグレードした共振器の設計概要を図 4.19 に示す。また、実際に製作した Ti:Sapphire 共振器の様子を図 4.20 に掲載する。使用している 532 nm ポンプレーザーおよび Ti:Sapphire 結晶はプロトタイプ共振器で使用したものと同一である。

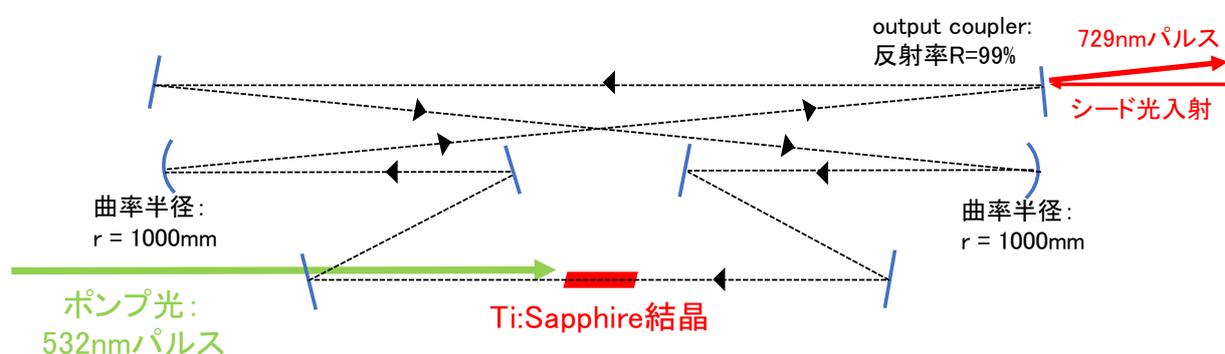


図 4.19 Ti:Sapphire 共振器の設計。共振器長は 3800 mm になっている。

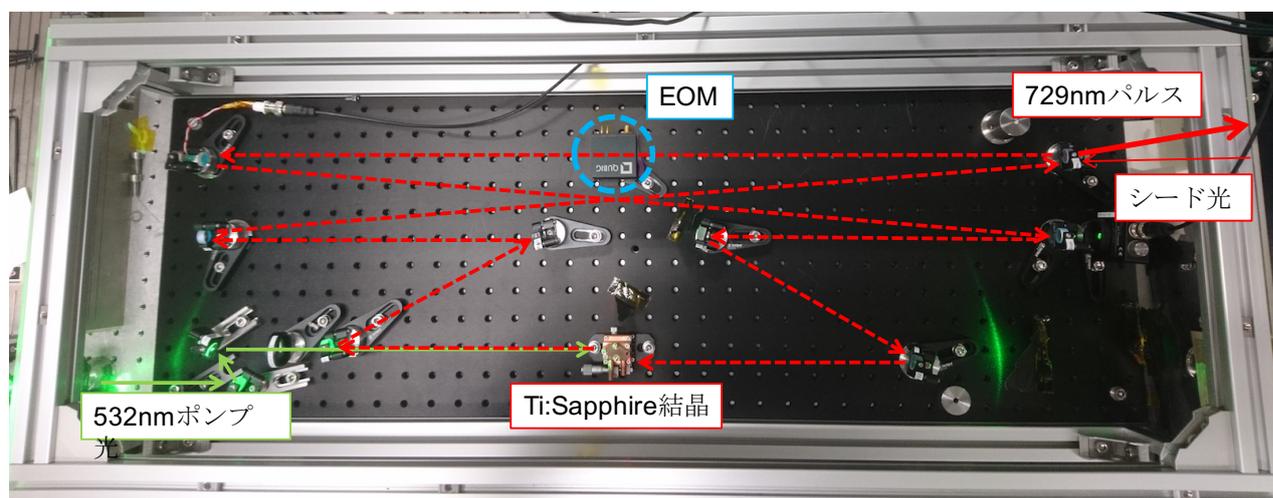


図 4.20 アップグレード後の Ti:Sapphire 共振器の様子。空気の外乱をなるべく除去するために共振器はアクリルの覆いで囲ってある。なお、共振器内部に設置してある EOM については第 7.2 節を参照のこと。

パルス発振の時間発展を遅くするために、共振器長の設計値が 3800 mm と、プロトタイプ共振器と比較して約 5 倍に長くしている。また、(output coupler での透過も含めて) 共振器の 1 周あたりのロスが

プロトタイプ共振器の時の半分である 1.7 % を下回ることを目標に、ミラーを新品や、729 nm 用の特注のものに交換して使用している。また、共振器の設計がコンパクトになるように、ミラーの枚数を増やして共振器の形状を折り曲げている。また、一部の共振器ミラーには波長依存性を持たせており、約 750 nm 以上の波長では反射率が低下し、729 nm では高反射率であるような特注ミラーを使用している。このようにして、729 nm での injection locking、発振が起こりやすい共振器の作製を目指している。

LIGHTWAVE (532 nm ポンプレーザー) のエネルギーは $590 \mu\text{J}$ にして駆動した。これは、LIGHTWAVE のエネルギーを増加させると内部で熱レンズ効果が起き、532 nm パルスの空間プロファイルが悪化することを防ぐためである。励起光のプロファイルが汚くなると発振する 729 nm パルスの空間プロファイルにも悪影響を与える。上記の励起強度においては、シード光を注入して共振の lock を起こした時のみにパルスが発生し、フリーランニング時において自然放出光によるパルスは発生しなかった。これは、共振器長が長くなったために単位時間あたりに共振器内の光がゲイン媒質である Ti:Sapphire 結晶を通過する回数が減ってしまうことに起因する。すなわち、Ti:Sapphire に蓄積されたエネルギーは自然放出の時定数 $3.2 \mu\text{s}$ で減衰していくため、上記の状況下では増幅初期の光強度が弱い自然放出光は十分成長しきる前にゲインが消失してしまう。また、自然放出光の中で誘導放出断面積が大きく、特に発振しやすい波長 (800 nm 付近) の損失を共振器ミラーで大きくして発振を妨げていることも一因と考えられる。

ここで、実際にシード光の共振を lock させた際に得られた 729 nm パルスをオシロスコープで観察した様子を 図 4.21 に示し、典型的な波形を描画したものを 図 4.22 に掲載する。lock がかかっている際に

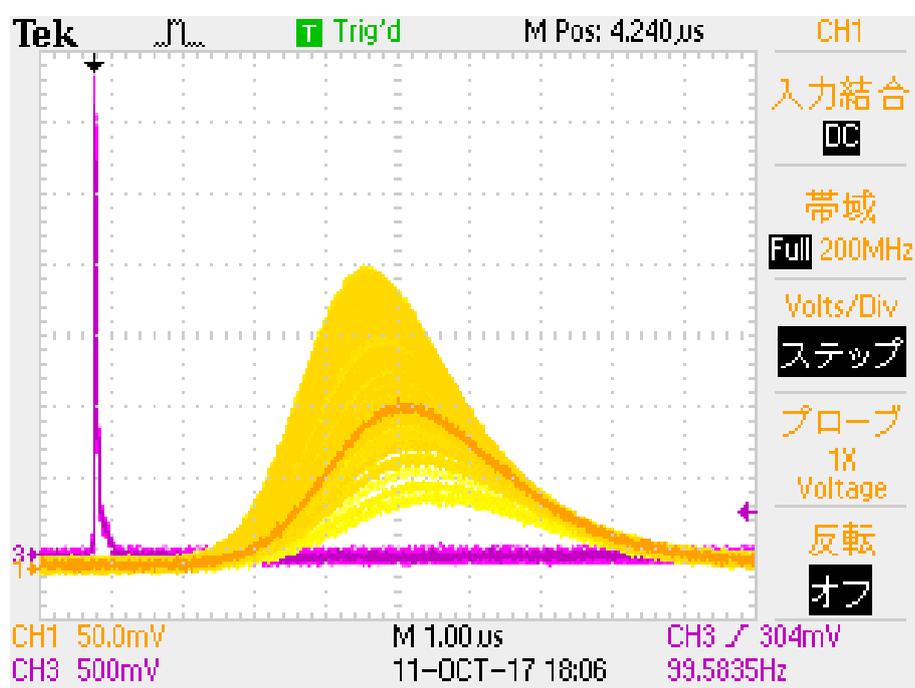


図 4.21 観測された 729 nm パルス (パーシステント表示)。マゼンタ表示はタイミング取得用の 532 nm パルス。黄色表示が発生した 729 nm パルスの波形である。パーシステント時間は 5 秒間である。

発生した 729 nm パルスは強度および、立ち上がりのタイミングが揺らいでいる様子が確認された。これ

は HC 法による共振器の lock が不安定であることを意味する。すなわち、HC 法による共振器の lock が良いと共振器内部に蓄積・エンハンスされる 729 nm 光の強度が強くなり、その結果パルス発振に至るまでの時間が短くなること、また、そのために Ti:Sapphire 結晶の時定数 $3.2 \mu\text{s}$ での蛍光による損失が少なくなるからである。この場合は波高に関しては最も高い時を 100 % としたとき、最も低いときで 20 %

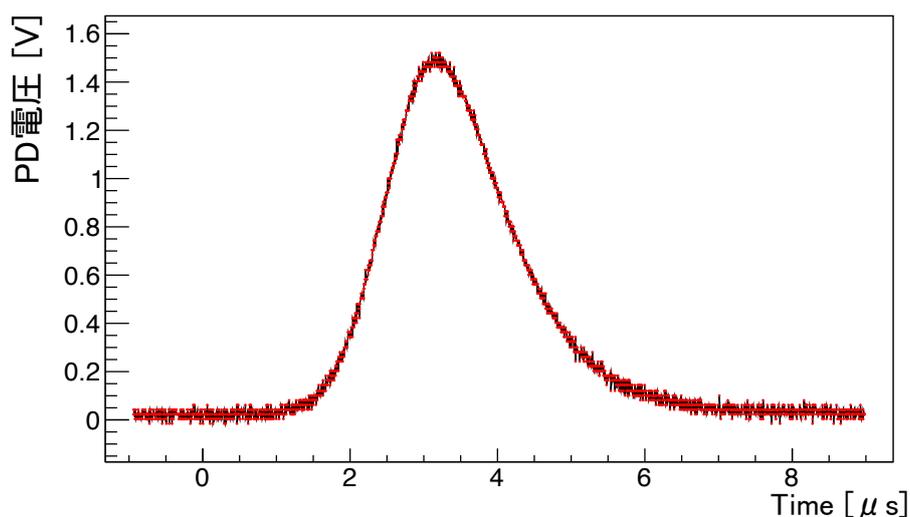


図 4.22 典型的な 729 nm パルスの時間波形。PhotoDetector DET10C/M で 729 nm パルスを取得した。縦軸はオシロスコープ電圧であり、相対的な強度を表す。横軸は時間である。

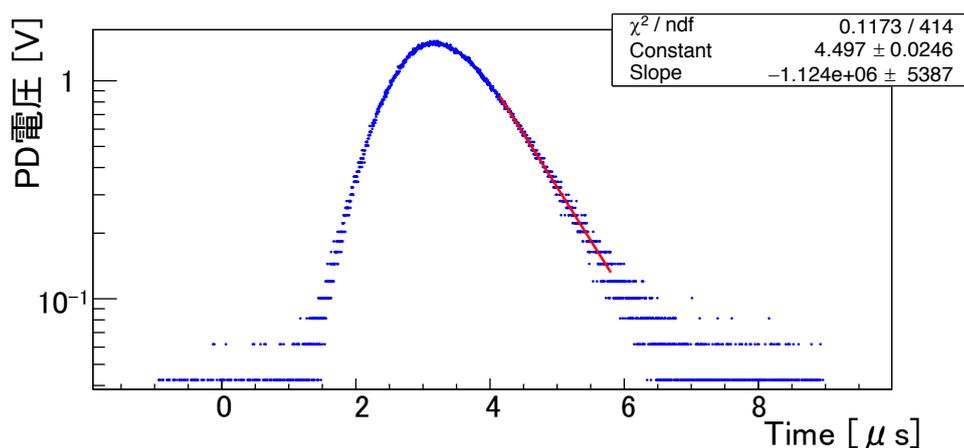


図 4.23 観測された 729 nm パルスの減衰。図 4.22 の縦軸を対数表示にし、パルスの減衰部分を指数関数で Fit した。光子寿命（減衰の時定数）は $890 \pm 4 \text{ ns}$ であった。

にまで下がっている様子が確認された。また、パルス強度がピークに達するタイミングは波高が高い時ほど早く、800 ns ほどのばらつきがある様子が見られた。発生している 729 nm パルスの平均エネルギー

は $8.7 \mu\text{J}$ であった。この値はパワーメータ (Thorlabs 社製、PM160 を使用) で計測された値から求めたものである。パルスの持続時間に関しては FWHM で $2 \mu\text{s}$ となり (図 4.22)、要求値の $1 \mu\text{s}$ を十分上回る水準であった。また、図 4.22 の減衰部分を指数関数で Fit し、減衰の時定数 (= 光子寿命) を測定した (図 4.23)。このとき光子寿命は $890 \pm 4 \text{ ns}$ であり、共振器長の設計は 3800 mm であるので、共振器 1 周あたりのロス は $1.42 \pm 0.07\%$ であることが分かった。

共振の不安定性の考察

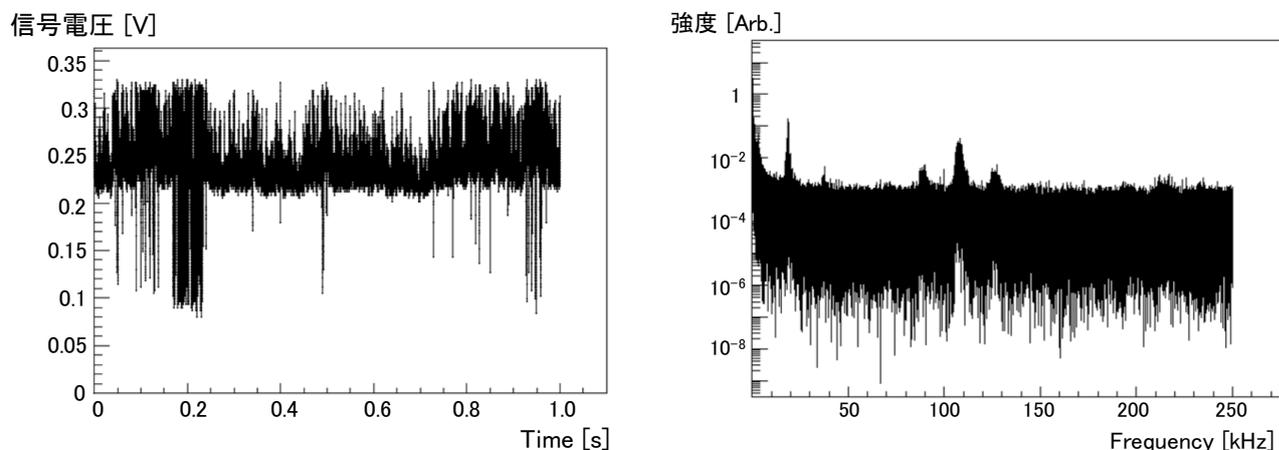
共振器における injection locking、パルス発振の安定性に関しては大きな問題がある。共振器の lock がかかっているときにおいても、図 4.21 のように、パルス波高が最大のを基準として、 $100 \sim 20\%$ で揺らいでいる様子が確認されている。また、共振器の lock 自体も数秒から数十秒しか持続しない状態が続いており、継続的に 729 nm パルスを取り出すことにはまだ成功できていない。これは、共振器長がプロトタイプの時比べて 5 倍に長くなっているため、空気や光学定盤の振動や、共振器長のドリフトといった外乱の影響をより受けやすくなっていることが考えられる。

より具体的に、共振の lock が持続しない原因を探るために error 信号の解析を行った。共振器長およびシード光の波長との関係が共振点付近にいるとき error 信号は小さな擾乱に対しても非常に敏感に変動するため、共振器長または、シード光波長におけるノイズについて調べることができる。フィードバック制御をかけていない状態において、共振点付近で error 信号がゆらいでいる時間変化のグラフを 図 4.24(a) に示す。また、そのスペクトラム解析を行ったグラフを 図 4.24(b) に示す。顕著な特徴として、 19 kHz 付近と 110 kHz 付近 (90 kHz 、 110 kHz 、 130 kHz) の大きく分けて 2 箇所にピークが存在することが分かった。

次に、フィードバック制御を行っている状態での error 信号の様子を取得した。図 4.25(a) に error 信号の時間変化のグラフを、図 4.25(b) にそのスペクトラム解析のグラフを掲載する。図 4.24(b) で現れていた 19 kHz 、 110 kHz 付近のピークは消失している一方で、 40 kHz およびその倍数にあたる周波数にピークが存在する。この 40 kHz は piezo 素子の機械的な共振周波数であり、実際に 図 4.25(a) の中で error 信号が 40 kHz 周期で振動している様子が見られる。 19 kHz 、 110 kHz 付近のノイズはフィードバック制御で抑え込めるものの、その場合は同時に piezo 素子が共振しやすい 40 kHz でもフィードバックゲインを強くせざるを得ず、結果としてノイズの影響を受けている状態か、piezo 素子の発振・共振が起きているかいずれかの状態になってしまう。いずれの状態であってもフィードバック制御が安定している状態ではないため、共振の lock は不安定で継続しないのだと考えられる。

対策として、まずは 19 kHz および 110 kHz 付近に存在するノイズの原因を突き止め、除去することが考えられる。そうすれば 10 kHz 以上の帯域においてフィードバック制御のゲインを高くする必要がなくなり、piezo 素子の共振を防いだ状態で十分なフィードバック制御が出来るようになるからである。現時点で明確な原因は判明していないが、比較的高周波であることから共振器に加わっている機械的・あるいは音響的な振動よりも、電気的なノイズの可能性が高い。バランス検出器の回路や piezo 素子に電圧を加えるためのドライバー、シード光として用いている ECDL の回路などにおいて、意図しない動作が起きていないか今後注意深く調査していく必要がある。

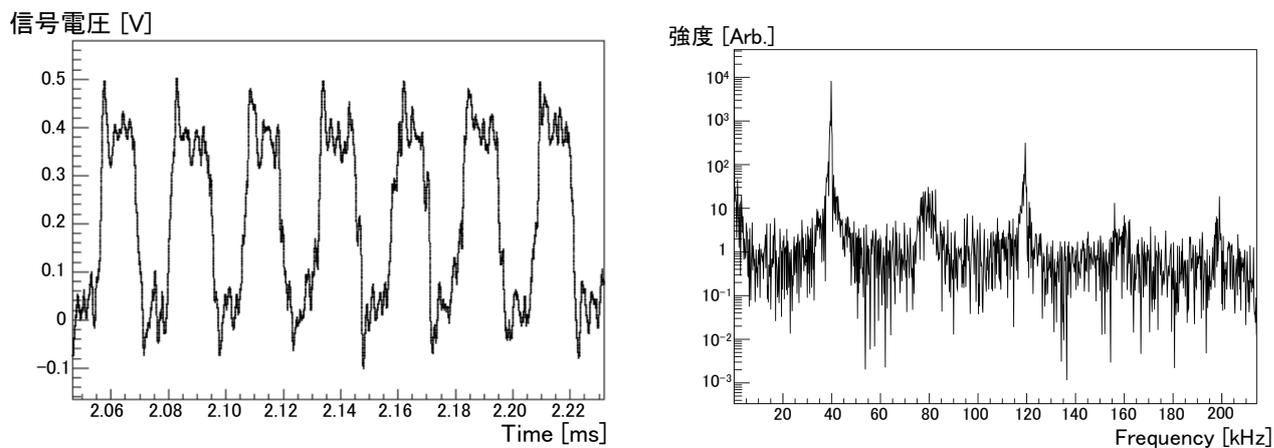
また、フィードバック制御は市販品のコントローラを用いているが、自作回路などを組み合わせることにより、piezo の共振が起きる 40 kHz 付近でのみフィードバックのゲインが上がらないような



(a) 非 lock 時における共振点付近での error 信号

(b) 共振点付近における error 信号のスペクトラム解析

図 4.24 非 lock 時における共振点付近での error 信号。左図 (a) は error 信号強度の時間変化のグラフである。HC 法によるフィードバック制御を行わず、共振器長、シード光周波数が共振点付近でドリフトしているときにデータを取得している。右図 (b) は (a) をスペクトラム解析したものである。19 kHz 付近と 110 kHz 付近にピークが存在する。



(a) lock 時の error 信号

(b) lock 時の error 信号のスペクトラム解析

図 4.25 lock 時の error 信号。左図 (a) は error 信号強度の時間変化のグラフである。HC 法によるフィードバック制御を実施し、共振器長が共振点付近で振動しているときのデータを取得している。右図 (b) は左図 (a) をスペクトラム解析したものである。40 kHz とその倍数にあたる周波数にピークが存在する。

フィルターを組み込むことも考えられる対策である。

4.4 まとめと展望

アップグレードした共振器において達成しているスペックについて再度まとめると、

- パルス持続時間：FWHM で $2 \mu\text{s}$
- パルスの持つエネルギー： $8.7 \mu\text{J}$

となっている。持続時間に関しては要求値の $1 \mu\text{s}$ を十分に上回っている。パルスの持つエネルギーの測定値は $8.7 \mu\text{J}$ であり、要求値の $100 \mu\text{J}$ には届いていない。

まず必要な対策として、ポンプ光強度を強くして Ti:Sapphire 結晶でのゲインを大きくすることが挙げられる。今回の場合ポンプ光 (LIGHTWAVE210G) の強度の制限は、ポンプ光強度を上げると内部の素子の熱レンズ効果によって空間プロファイルが汚くなることで決まっている。ここで、ポンプ光のエネルギーをパルスあたり 0.9 mJ まで増加させて駆動したとき、出力パルスのプロファイルは高次モードの混ざったものになったものの、最大で平均 $70 \mu\text{J}$ のパルスエネルギーが得られている。そこで、業者に依頼して LIGHTWAVE 内部の光学系を調整し、空間プロファイルをより高いパルスエネルギーに対して最適化することが考えられる。また、ここまでで得られている 729 nm パルスの持つエネルギーの値は、HC 法による共振器の lock が不安定な状態で取得したものであり、すなわち、強度がばらついている複数のパルスのエネルギーを平均したものである。lock が継続して安定した状態になればシード光による Injection seeding がより強くなる可能性があり、その場合は 729 nm パルスの立ち上がりが早くなり、Ti:Sapphire 結晶の自然放出光の放出による損失が減少するためにパルスエネルギーが増大する。つまり、lock の安定化によってパルスエネルギーも要求値に達する可能性がある。以上 2 点の改善によって、 729 nm パルスの持つエネルギーを増大させることを目指す。

また、共振の lock の不安定性に起因して継続的に 729 nm パルスを発生させることが出来ておらず、強度ゆらぎについても 80 %、パルスの立ち上がりのタイミングは 800 ns と大きくばらついてしまっている。HC 法による共振を継続的かつ十分に安定したものにするため、まずは共振の不安定性の原因を特定する必要がある。シード光である ECDL や、lock のための電気回路を中心に今後原因を探っていく。

第 5 章

マルチパス増幅方式による 729 nm パルスの強度増加

今回、3 つ目のステップである Ti:Sapphire 共振器では発生させるパルスの持続時間を長くすることに重点を置き、同種の共振器に比べて高フィネスなものにしている。このとき、共振器内部に溜め込まれる光量が大きいため、パルスエネルギーを増大させると共振器内部の光学素子に損傷を与えてしまう。そのため、1 つの Ti:Sapphire 共振器で出力パルスの長持続時間と高強度を両立することは難しい。したがって、本研究では Ti:sapphire 共振器により発生させた 729 nm パルスのエネルギーをマルチパス増幅により増大させる方法を採用した。そこで第 2.3 節で説明した 4 つ目のステップとして、本章ではマルチパス増幅について述べる。マルチパス増幅とはゲイン媒質（ここでは励起された Ti:Sapphire 結晶）による誘導放出を利用したレーザーのアンプ方法の 1 つである。Ti:Sapphire 結晶を用いたものでは、CW レーザーや、持続時間がナノ秒程度かそれ以下のパルスレーザーの増幅に用いられることが多く、本研究のように 100 ns を超える持続時間のパルスの増幅に使う例は稀である。

本研究では、次のステップである波長変換後に十分なエネルギー、持続時間を持つ 243 nm パルスを得るために、目標スペックは以下：

- 増幅後のパルス持続時間について、ピーク強度の 70 % を超える時間が 300 ns 以上
- 300 ns の間に含まれるエネルギーが 5 mJ 以上

のように設定している。本研究では上記のスペックを満たすことの出来る最終的な設計を見積もるために、マルチパス増幅の原理検証実験を行った。

5.1 マルチパス増幅の原理

まずはマルチパス増幅について説明する。マルチパス増幅は第 4 章と同様に、励起されてゲインを持つ Ti:Sapphire 結晶による誘導放出を利用する。概念図を図 5.1 に示す。マルチパス増幅では励起した Ti:Sapphire 結晶を複数回通過させて、レーザーの強度を増幅させる。ただし、Ti:Sapphire 共振器とは異なり共振器としての構造は持たない。参考のために比較をすると、共振器は内部でのエンハンスがあり、また、第 A.1 節で示すように共振器内部で存在出来る空間モードが限定されてしまうため、必ずしも

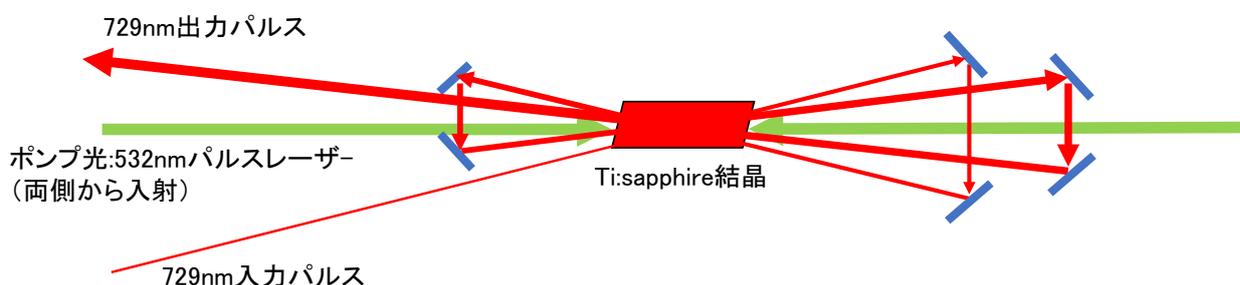


図 5.1 マルチパス増幅の概念図。532 nm パルスレーザーによりポンプされてゲインを持つ Ti:Sapphire 結晶に波長 729 nm のビームを入射させることにより、誘導放出で強度を増幅することが出来る。

ビーム径を太くすることが出来ない。そのため、大強度のパルスを共振器内で発生させることは共振器を構成する光学素子の損傷閾値の観点から困難がある。特に本研究で用いているような、長持続時間のパルスを生成するために 1 周あたりのロスを小さくしている共振器においては、エンハンス効果が高いために光学素子の損傷閾値がよりシビアに効いてくる。共振器と異なり共振によるエンハンス効果がなく、ビーム径も結晶のサイズを超えない範囲で自由に広げることが出来るマルチパス増幅は大強度のパルスを生成する上で利点がある。以下で、マルチパス増幅における強度増幅の理論式について説明する。

励起された Ti:Sapphire 結晶における増幅率を知るためには、単位面積あたりの蓄積エネルギー密度 J_{sto} を求める必要がある。 J_{sto} は以下の式：

$$J_{sto} = P_{abs} t_p \eta_{sto} \eta_{stok} \eta_{quan} \quad (5.1)$$

で表すことが出来る [31]。ここで、

- P_{abs} : 励起光吸収パワー密度 [W/cm^2]
- t_p : 励起パルスの時間幅 [s]
- $\eta_{sto} = \frac{1 - \exp(-t_p/\tau_f)}{t_p/\tau_f}$: 蓄積効率 (自然放出損失)
- $\eta_{stok} = \frac{\lambda_p}{\lambda_L}$: ストークス効率
- η_{quan} : 励起量子効率

である。 τ_f はゲイン媒質の蛍光寿命であり、Ti:Sapphire 結晶の場合は $3.2 \mu s$ である。また、 t_p は Nd:YAG 532 nm パルスの場合には一般に 10 ns オーダーであり、 $t_p \ll \tau_f$ が成り立つので、蓄積効率 η_{sto} は 1 とみなして差し支えない。また、今回は 729 nm 光を増幅するため、ストークス効率は $\eta_{stok} = \frac{532}{729}$ である。Ti:Sapphire 結晶における励起過程は 1 光子吸収で起きるため、励起量子効率 $\eta_{quan} = 1$ である。

上記の値を用いて、パルスレーザーがゲイン媒質を 1 回通過するときの瞬間的な増幅は次式：

$$J_{out} = T J_s \ln \left[G_0 \left\{ \exp \left(\frac{J_{in}}{J_s} \right) - 1 \right\} + 1 \right] \quad (5.2)$$

$$G_0 = \exp \left(\frac{J_{sto}}{J_s} \right) \quad (5.3)$$

のように表すことができる [32]。 J_{in} はゲイン媒質に対する入射光の面積あたりエネルギー密度を表し、 J_{out} はゲイン媒質を 1 回通過して増幅された光の面積あたりエネルギー密度を表す。 T は増幅媒質に対する透過率である。結晶の状態にも依存するものの、Ti:Sapphire 結晶に対する 729 nm 光において反射や吸収による損失は一般に 0.1 % のオーダーであるので、ほぼ $T \simeq 1$ とみなすことが出来る。また、 J_s は飽和フルーエンスと呼ばれる量であり、一般には媒質における吸収が飽和する励起光強度の目安を表す。飽和フルーエンスは誘導放出断面積に反比例する量であり [31]、Ti:Sapphire 結晶では第 4 章の図 4.2 に示した誘導放出断面積の波長スペクトラムにしたがって波長依存性を持つ。文献 [27] から誘導放出のピーク波長である 800 nm 付近における飽和フルーエンスは 0.9 J/cm^2 であり、図 4.2 から 729 nm における値に変換すると 1.4 J/cm^2 となる。

ここで、(5.2) 式について、 $\left(\frac{J_{\text{in}}}{J_s}\right) \ll 1$ 、 $G_0 \left(\frac{J_{\text{in}}}{J_s}\right) \ll 1$ であるような時には、

$$\begin{aligned} J_{\text{out}} &= (TG_0) J_{\text{in}} \\ &\simeq G_0 J_{\text{in}} \end{aligned} \quad (5.4)$$

と近似することが出来る。 G_0 はゲイン媒質を 1 回通過する時の瞬間の増幅率を表す。つまり、入射光はゲイン媒質を 1 回通過する毎に定数 (G_0) 倍だけ増幅される。また、ゲイン媒質を l 回通過する場合、理想的な状況下においてそのトータルの増幅率 G は、

$$\begin{aligned} G &= T^l \exp\left(\frac{lJ_{\text{sto}}}{J_s}\right) \\ &= T^l (G_0)^l \\ &\simeq (G_0)^l \end{aligned} \quad (5.5)$$

と表すことが出来る。ただし、実際のマルチパス増幅においては多数回ビームをゲイン媒質を通過させる必要から斜め方向に結晶に入射させるなど、増幅率を減少させる要因が存在する。また、増幅率 G が大きかったり、あるいは元々エネルギーが大きいパルスを増幅する場合など、増幅後のパルスエネルギーがゲイン媒質の励起エネルギーに対して無視できなくなる場合には (5.4) 式、(5.5) 式は成り立たなくなることに注意が必要である。以下では最終的に得られるパルスのエネルギーに対して励起エネルギーが十分大きく、(5.4) 式、(5.5) 式が成立する場合について考える。

ここまで瞬間的な 729 nm 光の増幅率について述べたが、本研究では 100 ns オーダーの持続時間を持つ 729 nm パルスレーザーの生成を目標としており、これは Ti:Sapphire の蛍光寿命 $3.2 \mu\text{s}$ と比べて無視出来ないスケールの時間である。したがって、ゲイン媒質における増幅率の時間変化も考慮に入れる必要がある。

ここで、(5.3) 式および J_s が定数であることより、 J_{sto} の時間変化が分かれば G_0 、 G の時間変化を知ることが出来る。結晶の励起強度が十分に大きく、729 nm パルスの増幅に伴う Ti:Sapphire 結晶でのエネルギー損失が無視出来る場合においては、 J_{sto} は蛍光寿命 $\tau_f = 3.2 \mu\text{s}$ に従って指数関数的に減衰していく。したがって $t = t_0$ で結晶を励起した場合、 J_{sto} の時間依存性を $J_{\text{sto}}(t)$ と表すことにすれば、

$$J_{\text{sto}}(t) = \begin{cases} 0 & (t < t_0) \\ J_{\text{sto}}(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) & (t > t_0) \end{cases} \quad (5.6)$$

と書ける。 $J_{\text{sto}}(t_0)$ は励起直後での媒質の面積あたりエネルギー蓄積密度であり、(5.1) 式にしたがって求めることが出来る。ここで、励起光のパルス持続時間は十分短いものとして無視している。

次に、(5.5) 式にしたがって $T^l \simeq 1$ とし、 J_{sto} の時間依存性：(5.6) 式を用いることにより、ゲイン媒質 (Ti:Sapphire 結晶) における増幅率 G_0 および G の時間依存性 $G_0(t), G(t)$ は、

$$G_0(t) \simeq \begin{cases} 1 & (t < t_0) \\ \exp \left[\log G_0(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) \right] = G_0(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) & (t > t_0) \end{cases} \quad (5.7)$$

$$G(t) \simeq \begin{cases} 1 & (t < t_0) \\ \exp \left[\log G(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) \right] = G(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) = G_0(t_0)^l \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) & (t > t_0) \end{cases} \quad (5.8)$$

と表すことが出来る。 $G_0(t_0), G(t_0)$ は結晶を励起した直後における、結晶 1 回通過あたり、および l 回通過する際のトータルでの増幅率を表しており、 $G_0(t_0)$ は (5.5) 式にしたがって求めることが出来る。これらの式より、 $G_0(t_0)$ 、あるいは $G(t_0)$ が大きいほど、時間の経過に伴う増幅率 $G(t)$ の減衰も速いことが分かる。

ここで、(5.8) 式に示される $G(t)$ の表式を用いて、マルチパス増幅におけるパルスの時間波形の変化を計算することが出来る。増幅前のパルス時間波形を $f(t)$ と表し、 $t = t_0$ で結晶を励起する場合を考える。この時、増幅後のパルス時間波形を $F(t)$ と表すことにすると、結晶の励起エネルギーが十分大きい場合には $F(t)$ は下記の式：

$$F(t) = f(t)G(t) \simeq \begin{cases} f(t) & (t < t_0) \\ f(t) \exp \left[\log G(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) \right] = f(t)G(t_0) \exp\left(-\frac{t-t_0}{\tau_f}\right) & (t > t_0) \end{cases} \quad (5.9)$$

のように表すことが出来る。

5.2 テスト実験

第 5.1 節で説明したマルチパス増幅の原理検証および、装置の動作確認を目的とした実験を実施した。

結晶を励起する 532 nm ポンプレーザーとして、Nd:YAG パルスレーザー (2 倍波) : Powerlite7030 (Continuum 社製) を用いた。写真を図 5.2 に掲載する。パルスあたりのエネルギーは調整可能であり、最大で 270 mJ まで出すことが出来る。標準的なパルス繰り返し数は 30 Hz である。本実験でも 30 Hz で駆動しているが、外部からの信号で同期を取って使用することも可能であり、その際は 30 Hz 以下の異なる繰り返し数で駆動することも出来る。

次に、今回使用した Ti:Sapphire 結晶の写真を図 5.3 に掲載する。532 nm 光に対して、1 回の通過で 87 % の光量を吸収する特性である。ここで、実際に組んだ光学系の様子を図 5.4 に示す。今回行ったテスト実験では、第 4 章で説明した Ti:Sapphire 共振器により発生させた 729nm パルスをマルチパス増幅用の Ti:Sapphire 結晶に 2 回、および 6 回通過させた。Photo Detector : DET10C/M (Thorlabs 社製) を用いて波形の取得を行っている。Powerlite7030 は 30 Hz で駆動し、パルスあたり 80 mJ のエネルギーが出るように設定した。Ti:Sapphire 結晶に入射する際にはビームスプリッターによって半々に分



図 5.2 Powerlite7030 の写真。レーザーのヘッド部分のものである。Ti:Sapphire 結晶を励起する目的で使用した。パルスの繰り返し数が 30 Hz である Nd:YAG パルスレーザーであり、基本波 1064 nm パルスの 2 倍波によって 532 nm パルスが生成される。

け、結晶の両側から照射している。結晶に入射する際のビーム半径は 1.7 ± 0.1 mm に設定してある^{*1}。

まずは Ti:Sapphire 共振器で発生させた 729 nm パルスを 2 回結晶を通過させて、Photo Detector に入射させて取得した波形をオシロスコープで観察した様子を 図 5.5 に示す。また、増幅前後のパルス波形の変化を比較した様子を 図 5.6 に掲載する。Ti:Sapphire 結晶を 2 回通過した 729 nm パルスと同時に、タイミングの参照としてマルチパス増幅用 Ti:Sapphire 結晶を励起するポンプ光の波形を取得している。また、増幅される 729 nm パルスの元の波形を知るため、Ti:Sapphire 共振器のミラーの漏れ光を Photo Detector を用いて取得している。ポンプ光はグラフにおける $-4.38 \mu\text{s}$ の時点で入射しており、そこからほぼ瞬間的に光強度が 1.39 ± 0.05 倍^{*2}に増加している。結晶を一回通過する際の増幅率： $G_0 = 1.18 \pm 0.02$ となる。まずはこの増幅率が妥当であるかを検討する。

今回、Ti:Sapphire 結晶にはパルスあたり合計 80 mJ のポンプ光をビーム半径 1.7 ± 0.1 mm で入射させている。これは、エネルギー密度 0.88 J/cm^2 に相当し、2 つに分けたポンプ光の片側のエネルギー密度は 0.44 J/cm^2 である。ここで、結晶には両側からポンプレーザーを入射させている。結晶の 532 nm

^{*1} ビーム半径とその誤差は、黒色アルミホイルにビームを照射した際に出来る焦げ跡の大きさを測定することにより求めている。

^{*2} 誤差の見積もりはオシロスコープの値の読み取り誤差に起因する。以後も同様である。

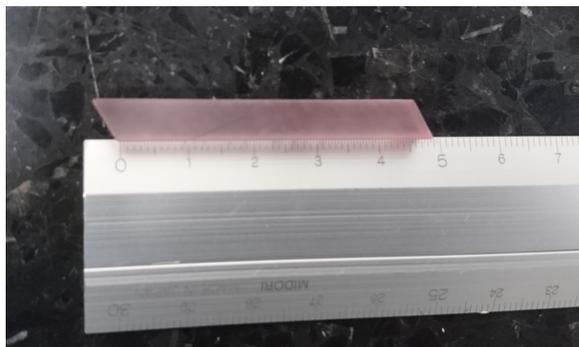


図 5.3 マルチパス増幅に用いた Ti:Sapphire 結晶。結晶の形状は brewster-cut になっている。サイズは縦横が共に 6 mm であり、長さが 47 mm である。532 nm 光に対する吸収係数は 0.43 /cm (吸収長 2.3 cm) となっており、飽和強度に達しない場合は通過した 532 nm 光の 87 % を吸収する。



図 5.4 マルチパス増幅の光学系。写真の中央にある Ti:Sapphire 結晶に両側から 532 nm パルスレーザーを照射して励起する。729 nm パルスは今回は 2 回結晶を通過させている。

光に対する吸収長は 2.3 cm であり、誘導放出のピーク波長における飽和フルエンスは 0.9 J/cm^2 であるので、片側のポンプ光からみると、もう片方のポンプ光によって $2.3 \text{ cm} \times 0.44 / 0.9 = 1.1 \text{ cm}$ より、実効的に 1.1 cm は飽和させられており、実質的な結晶長は 3.6 cm とみなせる。すると、両側からポンプ光を注入した場合は $1 - \exp(-0.43 \times 3.6) = 0.787$ より、79 % のエネルギーが結晶に吸収されると推測出来る。また、結晶には brewster 角 (60.4°) で入射させているために結晶中ではビームの形が横に広がり、 $\cos 60.4^\circ$ 分だけエネルギー密度が小さくなる。このとき、Ti:Sapphire 結晶における $P_{\text{abs}T_f}$ の値は 0.35 J/cm^2 になる。 $J_s = 0.9 \text{ J/cm}^2$ の値を用いて、(5.1) 式、(5.3) 式、(5.4) 式を使って計算すると、ビーム径の誤差も考慮すれば結晶を 1 回通過する毎の増幅率 G_0 は 1.20 ± 0.04 となり、2 パス増幅における実測値： $G_0 = 1.18 \pm 0.02$ とコンシステントな結果であった。

次に、増幅された 729 nm パルスの時間変化が (5.8) 式に従うことの確認を行った。Ti:Sapphire 結晶

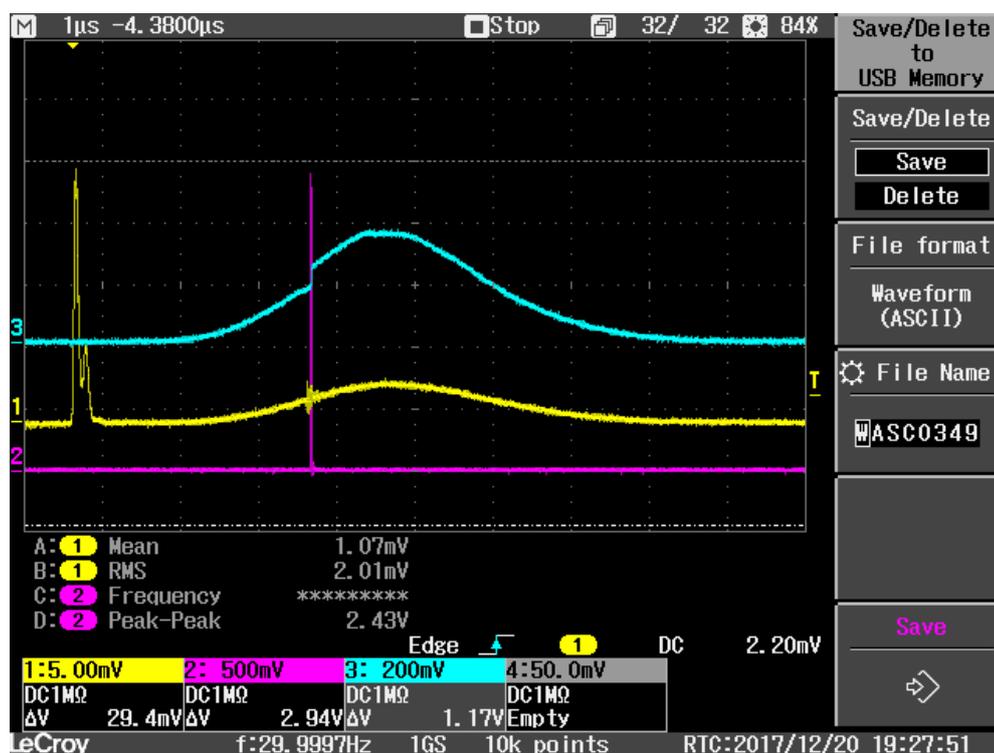


図 5.5 729 nm パルスの 2 パス増幅。黄線 (CH1) は参照用に Ti:Sapphire 共振器のミラーの漏れ光から取得した 729 nm パルス波形と、Ti:Sapphire 共振器で用いているポンプレーザーの波形 ($-4.38\mu\text{s}$ における鋭い波形) を表す。マゼンタ (CH2) はマルチパス増幅用の Ti:Sapphire 結晶を励起するポンプレーザーの時間波形を表す。青線 (CH3) は Ti:Sapphire 結晶を 2 回通過した 729 nm パルスの時間波形を表す。

を通過する前の 729 nm パルス波形を同時に取得しているため、その波形に対して (5.8) 式から予測される時間波形を計算し、規格化した上で実測のパルスと比較を行った (図 5.7)。結果として、2 パス増幅における時間波形の変化は計算と実測とでほぼ一致することが分かった。

次に、結晶の励起パワー・密度は同じ値のままにして、729 nm パルスを 6 回通過させて時間波形を取得した。得られた波形を図 5.8 に示す。ここで、結晶を通過したパルスは瞬間強度が 3.0 ± 0.1 倍に増加する様子が見られる。1 パスあたりの増幅率 G_0 に直すと、 $G_0 = 1.20 \pm 0.01$ に相当する。2 パス増幅の際の増幅率は 1.39 ± 0.05 であり、1 パスあたりの増幅率 G_0 は $G_0 = 1.18 \pm 0.02$ であるので、2 パス増幅の際も 6 パス増幅の際も 1 パスあたりの増幅率 G_0 は有意には変わらないことが分かる。

更に 2 パス増幅の時と同様に、6 パス増幅の際も時間波形の変化が計算により予測出来ることの確認を行った。増幅前の 729 nm パルス波形に対して (5.9) 式による計算で求めた増幅後の予測波形と、実測された増幅後のパルスの比較を行った様子を 図 5.9 に示す。この場合も 2 パス増幅の時と同様に、(5.9) 式を用いた計算により予測されるパルス波形と、実測されたパルス波形は一致することが確認された。

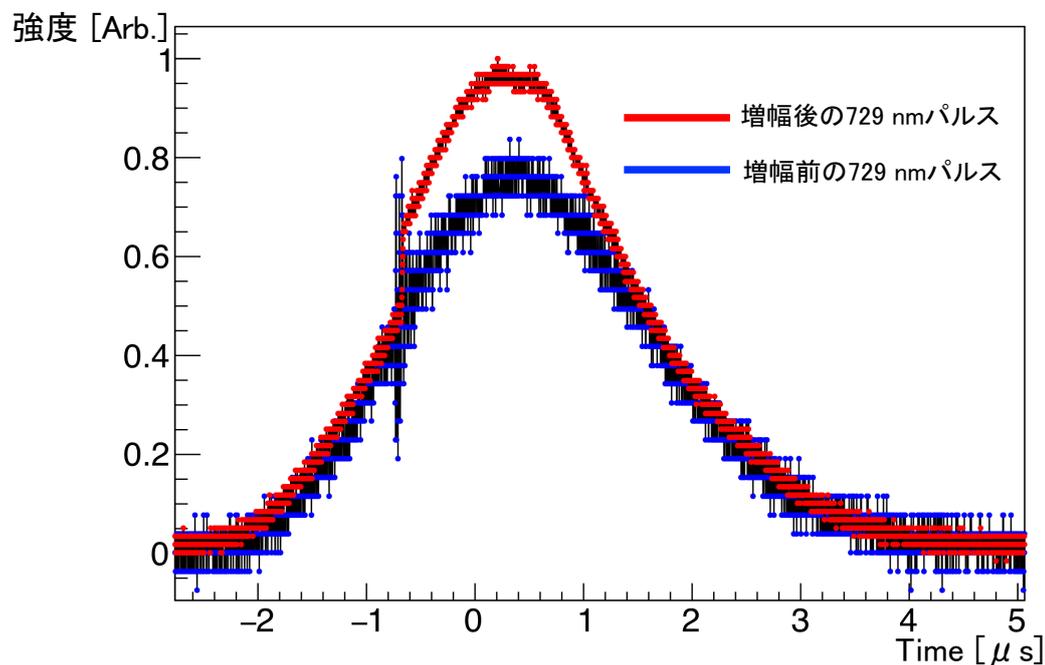


図 5.6 729 nm パルスの増幅前および 2 パス増幅後の時間波形。赤い点によるプロットは結晶を 2 回通過した 729 nm パルスの時間波形を表す。青い点によるプロットは結晶通過前の 729 nm パルスの時間波形を表す。ポンプ光入射時のタイミングで電気的なノイズによるゆらぎが見られる。それぞれの縦軸は任意単位であり、絶対強度の対応関係は無い。

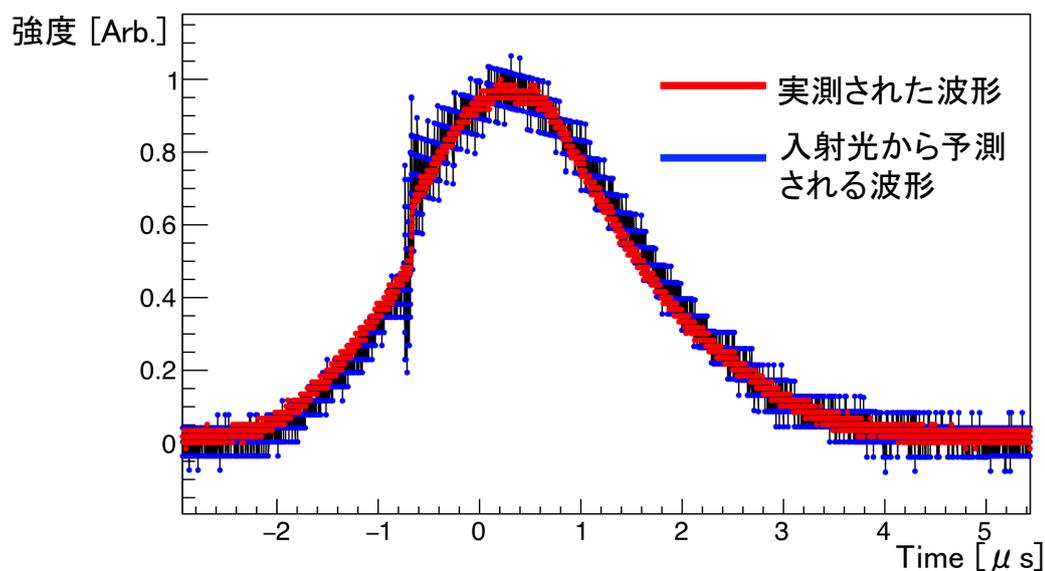


図 5.7 2 パス増幅された 729 nm パルスの時間波形 (実測と計算による予測)。赤い点によるプロットは実測された 729 nm パルス (結晶通過後) の時間波形を表す。青い点によるプロットは、結晶を通過する前のパルス波形から (5.9) 式を元に計算して求めた波形である。それぞれ比較のために規格化してある。

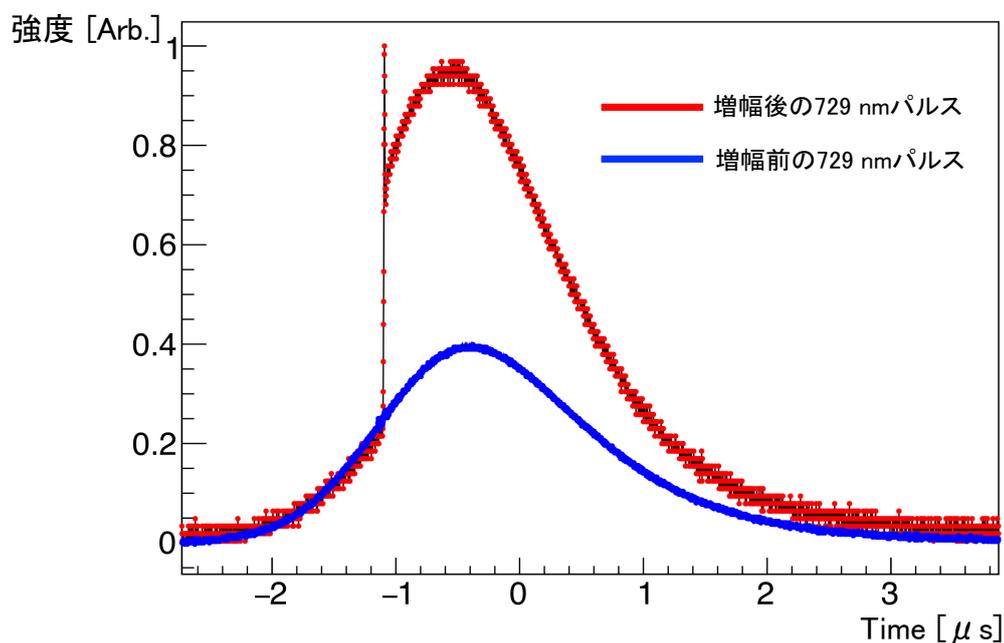


図 5.8 729 nm パルスの増幅前および 6 パス増幅後の時間波形。赤い点によるプロットは結晶を 6 回通過した 729 nm パルスの時間波形を表す。ポンプ光入射時に Photo Detector に混入した 532 nm 光によるノイズによりスパイク状の飛びが存在する。青い点によるプロットは結晶通過前の 729 nm パルスの時間波形を表す。それぞれの縦軸は任意単位であり、絶対強度の対応関係は無い。

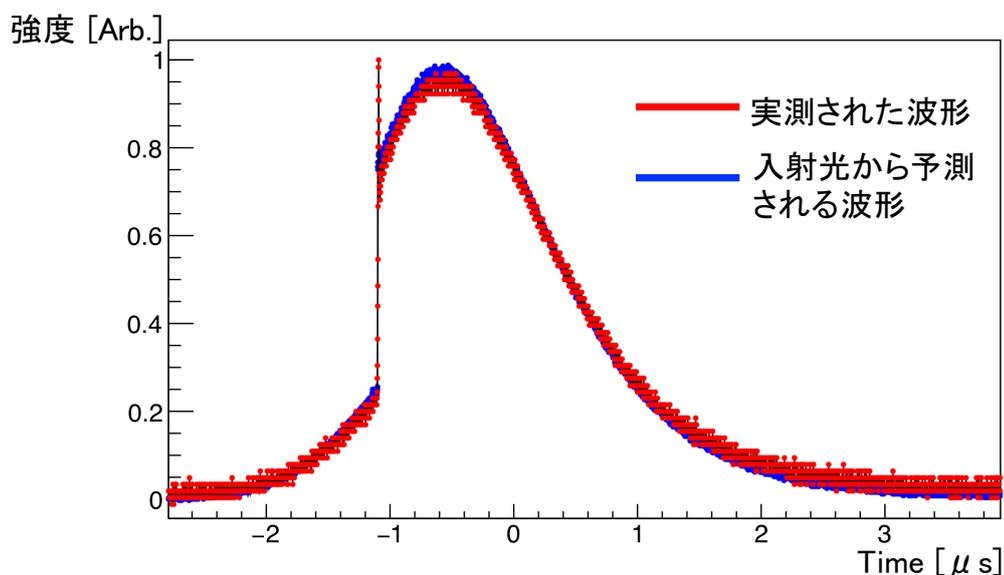


図 5.9 6 パス増幅された 729 nm パルスの時間波形 (実測と計算による予測)。赤い点によるプロットは実測された 729 nm パルス (結晶通過後) の時間波形を表す。青い点によるプロットは、結晶を通過する前のパルス波形から (5.9) 式を用いた計算により求めた波形である。それぞれ比較のために規格化してある。

5.3 まとめと展望

今回のテスト実験を通して、

- Ti:Sapphire 結晶の励起エネルギーと 729 nm 光の増幅率との関係
- 729 nm パルスの増幅による波形の変化

を確認した。増幅率に関しては、セットアップから計算される理論値と実際に測定された値が一致することを確認した。また、増幅によるパルス波形の変化については、今回実験した範囲では理論的な予測と一致することが確認された。

以上を踏まえて、最終的に必要な設計について考察する。マルチパス増幅では既に説明したように、パルスエネルギーと時間波形両方が変化し、特に時間波形については増幅前のパルス波形が増幅後の波形にも強く影響してくる。そこで、今回は第4章の第4.3節における図4.22で掲載された波形において、目標スペックである $100 \mu\text{J}$ のパルスエネルギーを持つ 729 nm パルスを得られた場合を仮定する。このとき、結晶を励起した瞬間の増幅率が 2500 であるとき、(5.9)式を用いたシミュレーションによって、図5.10のような波形を得ることが可能である。1.9 μs に結晶を励起した直後から 500 ns 間に渡ってほぼ

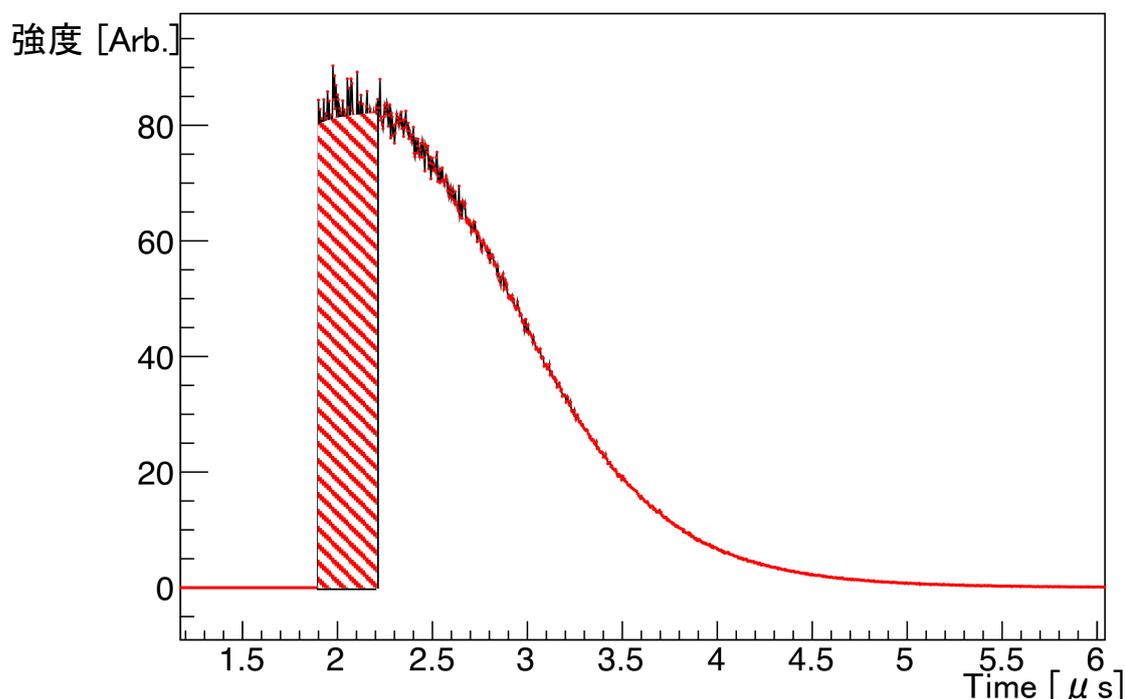


図 5.10 シミュレーションによるマルチパス増幅後の 729 nm パルス。1.9 μs で Ti:Sapphire 結晶を励起している。ここで、励起直後の増幅率は 2500 であること、増幅される 729 nm パルスの時間波形が第4章の図4.22と同じ形であり、 $100 \mu\text{J}$ のパルスエネルギーを持つことを仮定している。縦軸は任意単位である。赤の斜線部分は結晶励起直後 300 ns 間のパルス波形の積分を表し、このシミュレーションにおいては 6 mJ のエネルギーを持つ。

平坦な波形であり、強度のピークから 70 % 以上の範囲は十分に 300 ns を超える。また、増幅後のパルスが結晶励起直後から 300 ns 後までの間に持つエネルギーは 6 mJ となり、目標値である 5 mJ を上回る。したがって、マルチパス増幅によって瞬間的にトータルの増幅率 G について $G \geq 2500$ を達成出来れば、要求されるスペックを満たす 729 nm パルスを生成することが可能である。なお、780 nm のパルスに対してはマルチパス増幅により $G = 2 \times 10^6$ を達成した例があり [33]、 $G \geq 2500$ は現実的に十分達成可能な値である。

ここで、Ti:Sapphire 共振器において発生する 729 nm パルスについて、本研究で達成されたものと 100 μ J のエネルギーを持つものとは波形が異なることが予想される。今回得られたパルスの立ち上がり時間は 1 μ s であり、300 ns を十分に上回っている。パルスエネルギーが高くなるとパルスの立ち上がり時間は一般に短くなるが、300 ns を下回らない限りはマルチパス増幅後のエネルギーは高くなる方のみ修正がかかる*3。

ポンプ直後における瞬間的なトータルの増幅率： $G(0) \simeq (G_0)^l \geq 2500$ を達成するためには、例えば $G_0 = 2.2, l = 10$ であれば良い。そこで、Ti:sapphire 結晶における 532 nm ポンプレーザーの励起エネルギー密度を 1.0 J/cm² 以上にして $G_0 \geq 2.2$ を達成し、Ti:Sapphire 結晶での 729 nm パルスを結晶の通過回数 l について、 $l \geq 10$ とする必要がある。まず励起エネルギー密度に関して、例えば文献 [34] では 6 J/cm² 以上のエネルギーで Ti:Sapphire 結晶を励起しており、ポンプ光のエネルギー密度を 1.0 J/cm² 以上にするには十分に可能である。また、通過回数に関しては $l = 12$ でマルチパス増幅を行なっている例があり [35]、問題なく達成可能である。

励起エネルギー密度を 1.0 J/cm² 以上にして $G_0 \geq 2.2$ を達成する方法について考える。結晶におけるポンプレーザーの集光サイズは変更しないことを仮定する。まず、形状が brewster-cut になっている結晶は内部でのビーム面積が水平方向に広がってしまい、エネルギー密度の低下につながる。そこで、Ti:Sapphire 結晶を 532 nm 対応 AR コート付き垂直ロッド形状のものに変更する。また、今回使用した Ti:Sapphire 結晶はポンプレーザーの 8 割のエネルギーしか吸収していない。そこで、より Ti³⁺ のドーピングが多く、吸収長が短い Ti:sapphire 結晶を用いることでエネルギーの吸収量を増加出来ると考えられる。例えば結晶の長さは今回と同じく 47 mm としたとき、ドーピングを増やして吸収長を 1 cm にすれば、第 5.2 節と同様の計算により 92 % のエネルギーの吸収が見込める。このような Ti:Sapphire 結晶にまっすぐポンプレーザーを照射することを考えれば、パルスあたり 180 mJ のエネルギーで結晶を励起すれば上記の条件を満たすことが出来る。この値は、使用している 532 nm ポンプレーザー、Powerlite7030 の最大パルスエネルギー：270 mJ を下回っているため、レーザーの設定の調整で十分に達成可能である。

まとめると、Ti:Sapphire 共振器で要求スペックを満たす 729 nm パルスが生成されれば、

- 532 nm ポンプレーザー (Powerlite7030) の調整
- 使用する Ti:Sapphire 結晶の変更
- マルチパス増幅における 729 nm パルスの結晶の通過回数の増加

によって、目標とする特性を持つ 729 nm パルスの生成が可能になる。

*3 300 ns 間に持つエネルギーに注目した場合。

第 6 章

非線形結晶を用いた波長変換

第 2.3 節で説明したように、冷却用レーザーの設計の最後のステップにおいて波長変換（729 nm → 243 nm）を行う。300 ns の間に 5 mJ のエネルギーを持つ 729 nm パルスを変換し、以下の特性：

- 40 μJ 以上のパルスエネルギー
- 300 ns 以上のパルス持続時間

を満たすことが要求される。本研究において波長変換は 2 段階：

- 2 倍波生成 (SHG) 729 nm → 365 nm
- 和周波生成 (SFG) 729 nm + 365 nm → 243 nm

に分けて行う設計である。

本実験では、1 段階目にあたる SHG に関して理論検証実験を行った。本章ではその理論的基礎と実験結果について記す。

6.1 LBO 結晶を用いた第 2 高調波発生 (SHG) の理論的基礎

本節では LBO 結晶を用いた第 2 高調波発生 (SHG^{*1}) の原理について述べる。なお、波長変換の第 2 段階にあたる SFG 部分：729 nm+365 nm→243 nm については第 A.4 節を参照されたい。

非線形分極と SFG 変換効率

誘電体に強い電場を加えると非線形な分極が現れる。この応答は一般に分子中の電子分布の移動によって起こるものであり、瞬間的な効果とみなして良い。ここで、分極 P を電場のべきで展開すると、

$$P = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots \right] \quad (6.1)$$

^{*1} 本節で述べる SHG は厳密には type1 の SHG と呼ばれるものである。SHG および SFG において、単一の偏光の基本波を用いるのが type1 である。互いに直交する偏光の基本波を用いるのが type2 である。

となる。 $\chi^{(n)}$ は非線形感受率である。

ここで、誘電体に電場の大きさ $E^{(\omega)}$ 、角周波数 ω の光を入射する場合を考え、(6.1) 式に $E = \frac{1}{2} [E^{(\omega)} \exp(-i\omega t) + c.c.]$ を代入する。3 次以上の非線形感受率は一般に小さいため電場の 2 次の項に注目すると、

$$(6.2)$$

で表される角周波数 2ω で振動する非線形分極の項が現れる。

非等方媒質における非線形分極はテンソルの形になる。 $i = x, y, z$ として、電場ベクトル $\mathbf{E}^{(\omega)}$ の空間成分を $E_i^{(\omega)}$ で表すことにすると、非線形分極の空間成分は

$$\begin{aligned} P_i^{(2\omega)} &= \frac{\epsilon_0}{2} \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega) E_j^{(\omega)} E_k^{(\omega)} \\ &= \epsilon_0 d_{ijk} E_j^{(\omega)} E_k^{(\omega)} \end{aligned} \quad (6.3)$$

のような形で表せる*2。また、非線形係数 $d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}$ である*3。

ここで、結晶へ入射する光の偏光方向の単位ベクトルを \mathbf{a} とし、生成する光の偏光方向に対応する単位ベクトルを \mathbf{b} とすると、実効的な非線形係数 d_{eff} は、

$$d_{\text{eff}} = d_{ijk} a_i a_j b_k \quad (6.4)$$

と表される。

実用上、非線形係数 d_{ijk} を対称性を考慮して 3×6 行列に縮約した形である d_{iK} *4を用いる事が多く、(6.3) 式は

$$\begin{pmatrix} P_x^{(2\omega)} \\ P_y^{(2\omega)} \\ P_z^{(2\omega)} \end{pmatrix} = \epsilon_0 \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |E_x^{(\omega)}|^2 \\ |E_y^{(\omega)}|^2 \\ |E_z^{(\omega)}|^2 \\ 2E_y^{(\omega)} E_z^{(\omega)} \\ 2E_z^{(\omega)} E_x^{(\omega)} \\ 2E_x^{(\omega)} E_y^{(\omega)} \end{pmatrix} \quad (6.5)$$

のように表すことができる。 d_{iK} の各成分は非線形結晶毎に固有の定数であり、 d_{eff} の値を表すためによく用いられる。

ここで、非線形分極ベクトル \mathbf{P}_{NL} は、Maxwell 方程式より導かれる波動方程式：

$$\begin{aligned} \Delta \mathbf{E} &= \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}) \\ &= \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{\text{NL}} \end{aligned} \quad (6.6)$$

*2 共通する添字について和をとっている。

*3 本論文では非線形係数 d の単位が $[\text{pm}/\text{V}]$ となる定義を採用している。非線形係数が $d_{ijk} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}$ で定義される場合もあるため、注意が必要である。

*4 d_{ijk} において、一般に j と k には交換対称性がある。 $xx = 1, yy = 2, zz = 3, yz = zy = 4, zx = xz = 5, xy = yx = 6$ とし、 K を $1 \sim 6$ に対応させて d_{iK} と表している。

によって、光電場と結びついている。電場振幅の空間変化が十分ゆっくりであるという仮定の下、(6.3)式によって、(6.6)式を生成する2倍波の電場成分について解くことができ、通過する非線形結晶の厚み L に渡って積分することで SHG における生成波の強度を求めることができる。

SHG において基本波（入射光）の強度を I_1 、2倍波の強度を I_2 とすれば、

$$I_2 = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{n^3} I_1^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (6.7)$$

という式が成り立つ [36]。但し、後述するように実際は結晶中で SHG が起こる領域に限界が存在する。そのため、(6.7)式は実効的な作用長 L_c を用いて、

$$I_2 = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L_c^2}{n^3} I_1^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (6.8)$$

のように補正出来る。

なお、sinc 関数は

$$\text{sinc}(x) = \frac{\sin(x)}{x}$$

を満たす関数であり、 $x = 0$ で最大値 1 をとる。ここで、 n は結晶中における屈折率を表す。位相角不整合と呼ばれる量 Δk は SHG の場合、

$$\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega) \quad (6.9)$$

と表される。ただし、 $k(\omega)$ は角周波数 ω に対応する角波数を表す。位相整合条件： $\Delta k = 0$ が満たされる場合、(6.8)式は

$$I_2 = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L_c^2}{n^3} I_1^2 \quad (6.10)$$

と表すことができ、基本波のパルスエネルギーを E_1 、2倍波のパルスエネルギーを E_2 、変換効率を η_{SHG} とすると、

$$\eta_{\text{SHG}} = \frac{I_2}{I_1} = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega^2 d_{\text{eff}}^2 L_c^2}{n^3} I_1 \quad (6.11)$$

$$E_2 = \eta_{\text{SHG}} E_1 \quad (6.12)$$

と表される。この(6.11)式、(6.12)式が、基本波から生成される倍波のエネルギーを近似的に見積もる基本式である。

ここで、(6.8)式より、効率的に SHG を行うためには下記条件：

- 位相整合条件 $\Delta k = 0$ を満たすこと
- なるべく大きい有効非線形係数 d_{eff} を選ぶこと
- 入射光強度 I_1 を大きくすること
- 作用長 L_c を大きくすること

を満たすことが重要になる。729 nm の SHG において上記の条件に有利な非線形結晶として、本実験では LBO 結晶（リチウムトリボレート、 LiB_3O_5 ）を採用した。

すなわち、非線形結晶の中でも LBO 結晶は特に高い損傷閾値を持つため、より高強度の光を入射することが可能になる。また、後述する walk-off 角が小さいために作用長 L_c も一般に大きくしやすい。

LBO 結晶における位相整合条件、非線形係数、作用長については次小節以降で説明する。

位相整合条件

本実験において SHG に用いた LBO 結晶における位相整合について説明する。

角波数 k と対応する角周波数 ω についての関係 $k = \frac{n(\lambda)\omega}{c}$ を用いると、SHG の場合における位相整合条件 $\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega) = 0$ は、

$$n\left(\frac{\lambda}{2}\right) = n(\lambda) \quad (6.13)$$

と書き換えることが出来る。ただし λ は、真空中において角周波数 ω に対応する波長であり、

$$\lambda \equiv \frac{2\pi c}{\omega} \quad (6.14)$$

である。

ここで、正常分散媒質中では $\Lambda > \lambda$ であるとき、一般に $n(\Lambda) < n(\lambda)$ が成り立つため、等方媒質を用いて位相整合条件を満たすことは出来ない。しかし、複屈折性を示す結晶を用いることで、屈折率の偏角依存性を利用して位相整合条件を満たすことが出来る場合がある。異常光線の屈折率が常光線の屈折率より小さくなる性質を持つ負結晶を用いれば、

$$n_e\left(\frac{\lambda}{2}\right) = n_o(\lambda) \quad (6.15)$$

によって位相整合条件を満たすことが可能である。ただし、 $n_e(\lambda), n_o(\lambda)$ はそれぞれ異常光線、常光線の屈折率を表す。

ここでは本実験で使用する LBO 結晶に即して、負の二軸性結晶における位相整合について述べる。負の二軸性結晶の屈折率楕円体は、

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1 \quad (6.16)$$

のように表すことができる^{*5}。ここで、 n_i ($i = x, y, z$) は i 方向の屈折率であり、 $n_z > n_y > n_x$ を満たす。このとき、結晶中の異常光線の屈折率角度依存性は、

$$n_e(\theta, \phi) = \frac{n_x n_y n_z}{\sqrt{(n_x^2 \sin^2 \phi + n_y^2 \cos^2 \phi) n_z^2 \cos^2 \theta + n_x^2 n_y^2 \sin^2 \theta}} \quad (6.17)$$

と表す事が出来る。ここで、本実験ではより大きい有効非線形係数 d_{eff} を選ぶために、LBO 結晶の XY 平面 ($\theta = 90^\circ$) において位相整合を達成した。

そこで、XY 平面において位相整合を達成することを考える。 $\theta = 90^\circ$ においては (6.17) 式より $n_e = n_z$ となるため、発生する 2 倍波の屈折率 $n_e(2\omega)$ は、

$$n_e\left(\frac{\lambda}{2}\right) = n_z\left(\frac{\lambda}{2}\right) \quad (6.18)$$

*5 波長依存性はここでは省略した。

を満たす。(type1 の) SHG において、発生する 2 倍波と基本波 (入射光) の偏光は直交し、XY 平面における基本波の屈折率角度依存性は、

$$n_o(\lambda, \phi) = \frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2 \phi}{n_y(\lambda)^2} + \frac{\sin^2 \phi}{n_x(\lambda)^2}}} \quad (6.19)$$

で表すことができる。

位相整合条件：(6.15) 式 および、(6.18) 式, (6.19) 式 より、

$$\sin^2 \phi = \frac{n_z^{-2} \left(\frac{\lambda}{2}\right) - n_y^{-2}(\lambda)}{n_x^{-2} \left(\frac{\lambda}{2}\right) - n_y^{-2} \left(\frac{\lambda}{2}\right)} \quad (6.20)$$

によって位相整合角 ϕ が定まる。各 $n_i(\lambda)$ ($i = x, y, z$) の波長 (角周波数) 依存性はセルマイヤー方程式によって与えられ、LBO 結晶の場合は、

$$\begin{aligned} n_x(\lambda) &= \sqrt{2.454140 + \frac{0.011249}{\lambda^2 - 0.011350} - 0.014591\lambda^2 - 6.60 \times 10^{-5}\lambda^4} \\ n_y(\lambda) &= \sqrt{2.539070 + \frac{0.012711}{\lambda^2 - 0.012523} - 0.018540\lambda^2 + 2.00 \times 10^{-4}\lambda^4} \\ n_z(\lambda) &= \sqrt{2.586179 + \frac{0.013099}{\lambda^2 - 0.011893} - 0.017968\lambda^2 - 2.26 \times 10^{-4}\lambda^4} \end{aligned} \quad (6.21)$$

で与えられる [37]。ただし、波長の単位は $[\mu\text{m}]$ である。以上を用いて、LBO 結晶の XY 平面 ($\theta = 90^\circ$) における位相整合角は $\phi = 39.6^\circ$ と求まる。

LBO 結晶の XY 平面での位相整合における有効非線形係数 d_{eff} は、縮約された非線形係数テンソル d_{iK} の成分を用いて、

$$d_{\text{eff}} = d_{32} \cos \phi \quad (6.22)$$

と表される [38]。ここで、

$$d_{32} = -0.98 \pm 0.09 \text{ [pm/V]} \quad (6.23)$$

である [37]。したがって $\phi = 39.6^\circ$ においては、

$$d_{\text{eff}} = -0.76 \pm 0.07 \text{ [pm/V]} \quad (6.24)$$

となる。

結晶中における作用長

結晶中における非線形効果は、一般には結晶の全長 L にわたって起こるとは限らず、結晶の実効的な厚さとして相互作用長 L_c を考える必要があることは既に述べた。結晶長 L に対して作用長を制限する主な要因として、

- walk-off 現象
- 基本波のビーム広がり

が挙げられる。

まずは walk-off 現象について説明する。複屈折媒質中において、一般に波数ベクトルとポインティングベクトルの向きは異なる。そのため位相整合がとれている場合であっても、結晶中を進行するにつれて発生した2倍波のビームは基本波と空間的に分離してきてしまう。これを walk-off 現象という。

二軸性結晶の XY 平面での位相整合において、walk-off 角 ρ は次式：

$$\tan(\phi + \rho) = \left(\frac{n_x^2}{n_y^2} \right)^2 \tan \phi \quad (6.25)$$

で表すことが出来る [38]。そこで、ビーム1つ分のズレが生じる距離の目安である aperture length (l_a) は、

$$l_a = \frac{\sqrt{\pi} w}{\rho} \quad (6.26)$$

と表される [38]。SHG による2倍波の電場の成長は、aperture length の長さ l_a を超えては起こらない。

次に、基本波のビームの広がりについて考える。考える光線について z 方向に進むガウシアンビームを仮定し、 w_0 を waist 位置におけるビーム半径とすれば、

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2} \quad (6.27)$$

で表される [39]。ここで、 z_R はレイリー長と呼ばれ、

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (6.28)$$

と表すことが出来る [39]。この値はビーム waist からビーム径が $\sqrt{2}$ 倍になるまでの距離に相当する。ここで、共焦点パラメータ b は、

$$b = 2z_R = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda} \quad (6.29)$$

で表され、ビームサイズが $\sqrt{2}$ 倍以内に集光されている長さを表す。(6.7) 式で表されるように SHG の効果は基本波の光強度の2乗に比例するため、実効的に基本波が集光されている範囲でのみ SHG が起こるとみなせる。

以上の議論より、(6.26) 式で示した aperture length : l_a 、(6.29) 式で示した共焦点パラメータ b 、用いる結晶の厚み L のうち最小値をとるものが、非線形結晶中における実効的作用長 L_c に相当すると考えられる。

6.2 SHG の検証実験

本研究では LBO 結晶を用いて、SHG (729 nm → 365 nm) の検証実験を行った。時間波形の変化および、倍波の生成効率が理論による予測とコンシステントなものかどうかを検証することが目的である。SHG の検証実験は第 4.2 節で説明した、プロトタイプの共振器から得られる 729 nm パルスを用いて行った。使用した LBO 結晶のサイズは $3 \times 3 \times 10 \text{ mm}^3$ であり、SHG : 729 nm → 365 nm (タイプ 1) の位相整合角に合わせてカットングしてある。

倍波の生成において、基本波から倍波への変換効率は面積あたりの強度に比例するため、基本波となる 729 nm 光を十分に集光させることが重要となる。そこで、凸レンズで 729 nm パルス光を半径 10.7(1) μm に集光し、LBO 結晶に入射させた。位相整合条件を満たすために、729 nm 光は $\lambda/2$ 波長板を用いて結晶入射時の偏光の向きを調整しており、また、LBO 結晶はミラーマウントに取り付けることで向きを調節出来るようにしてある。実際に発生した倍波の様子を 図 6.1 に示す。



図 6.1 発生した 729 nm の 2 倍波の写真。赤く見える 729 nm パルス光の中に 2 倍波による紫色の光が混じって見える。細長く見えるのは結晶における walk-off 効果と考えられる。

発生した倍波の特性評価を行うため、Photo Detector を用いて波形の観測を行った。光学系の様子を 図 6.2 に示す。倍波は 729 nm パルスの光軸に沿って発生するため、729 nm 光からの分離をする必要が

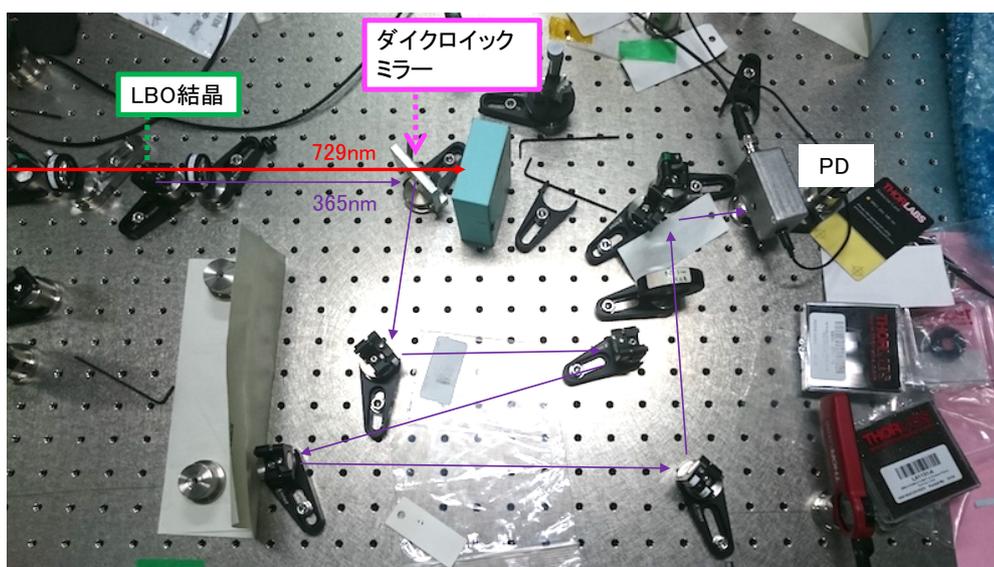


図 6.2 365 nm パルス波形を取得するための光学系の様子。365 nm パルスに混じった 729 nm 光を除去するため、多数のミラーで 365 nm 光を引き回している。

あり、カットオフ波長が 410 nm のダイクロイックミラーを用いてビームの分離を行っている。なお、基

本的にはカットオフ波長より短い波長を持つ光のみが反射されるが、729 nm 光も数 % 程度は反射してしまい、ノイズとして倍波に混じってしまう。そこで、紫外光対応のミラーを 5 枚用いて長距離に渡ってビームを引き回し、729 nm 光によるノイズが観測されなくなるまで減衰させた。

また、365 nm パルス波形を取得するための PD は自作のものを用いた。低強度の倍波を確実に観測するために、なるべく高感度のものを用いる必要があったためである。作製した PD の写真を 図 6.3 に、回路図を 図 6.4 に示す。

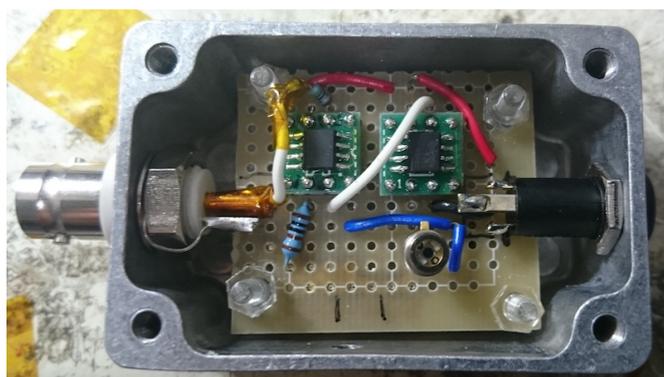


図 6.3 365 nm パルス波形を取得するために作製した Photo Detector

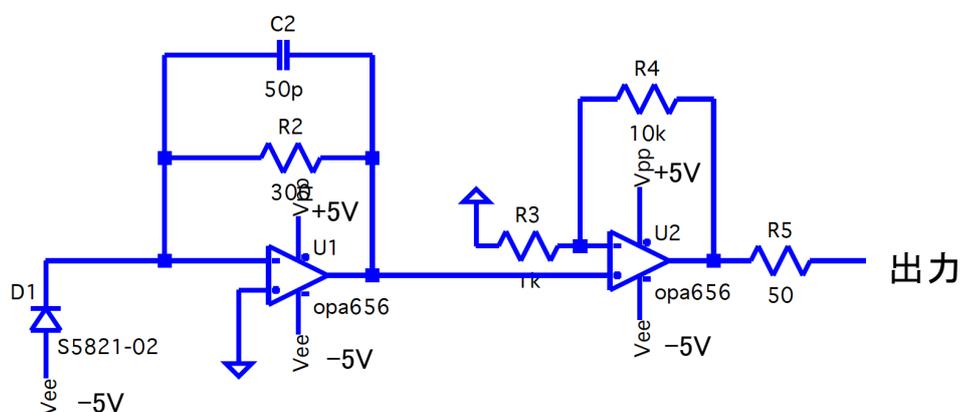


図 6.4 365nm パルス波形を取得するために作製した Photo Detector (回路図)

なお、本実験では比較のために 365 nm パルス波形と同時に、729 nm パルスも別の PD (Thorlabs 社製、DET10C/M) で波形を取得している。実際に得られた波形を 図 6.5 に示す。得られた時間波形を用いて、時間波形の挙動および倍波のパルスエネルギーの検証を行った。このことは次小節以降で議論する。

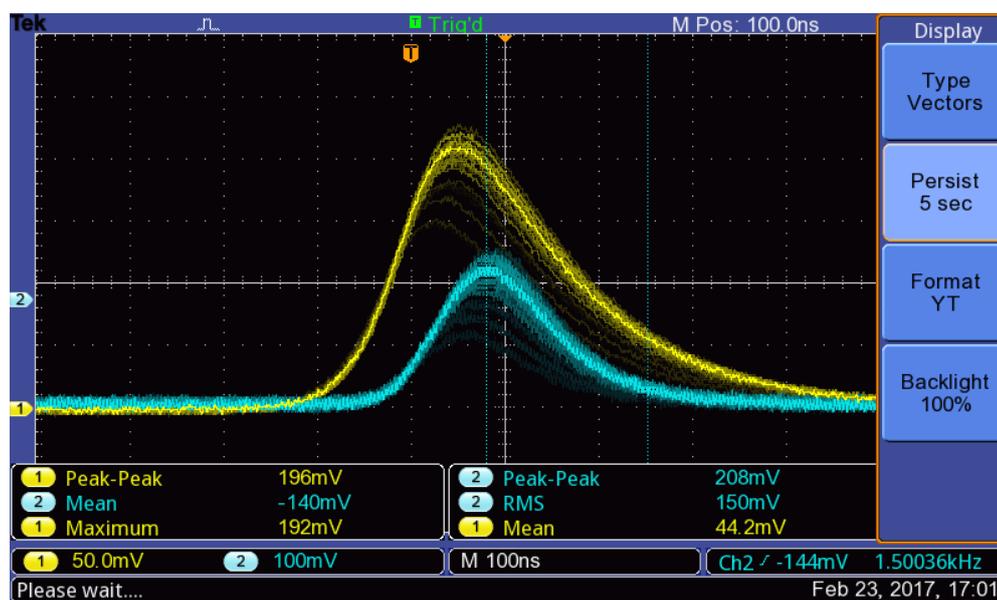


図 6.5 実測された 729 nm パルス波形と 365 nm パルス波形。黄線 (CH1) は 729 nm パルス波形、青線 (CH2) は 365 nm パルス波形を表す。自作 PD 回路の特性から、365 nm パルスの波形には -178 mV のオフセット電圧が存在し、また、時間の遅延が存在する。

時間波形の挙動

非線形光学効果は瞬間的に起こる現象であり、得られる倍波の波形は 729 nm パルス波形の各時刻における瞬間強度を 2 乗して得られる波形と同じ形になるはずである。本節ではそのことを検証する。

図 6.5 における倍波波形には、自作した PD 回路に起因する -178 mV のオフセットおよび、時間の遅延が存在する。そのため、遅延時間の較正を行う必要がある。今回は、共振器のミラーから 729 nm の漏れ光を Thorlabs 社製の PD (DET10N/M) で取得し、自作した PD に対しても同時に 729 nm パルスを入射し、時間波形を比較した。その様子が図 6.6 である。なお、図 6.5 で 729 nm パルスを取得した PD : DET10C/M も、図 6.6 で 729 nm パルスを取得するのに用いた PD : DET10N/M もいずれも $\text{rise-time} < 5$ ns であり、ほぼ時間の遅延は無い。

図 6.6 において、DET10N/M で取得したパルス波形はノイズにより滑らかでない波形になっている。これは、PD への入射光量が小さかったことが主原因である。このため、各点につき、周囲の 10 点 (6 ns 間に相当) での平均をとることで平滑化し、自作 PD で取得した 729 nm パルス波形とピーク位置を比較した。結果、自作 PD には 35 ns の遅延時間が存在することが認められた。そこで、自作 PD のオフセット電圧と遅延時間を考慮した上で得られた 365 nm パルスと、同時に取得した 729 nm パルスの波形の各点の瞬間強度を 2 乗した波形を規格化して同時にプロットした (図 6.7)。

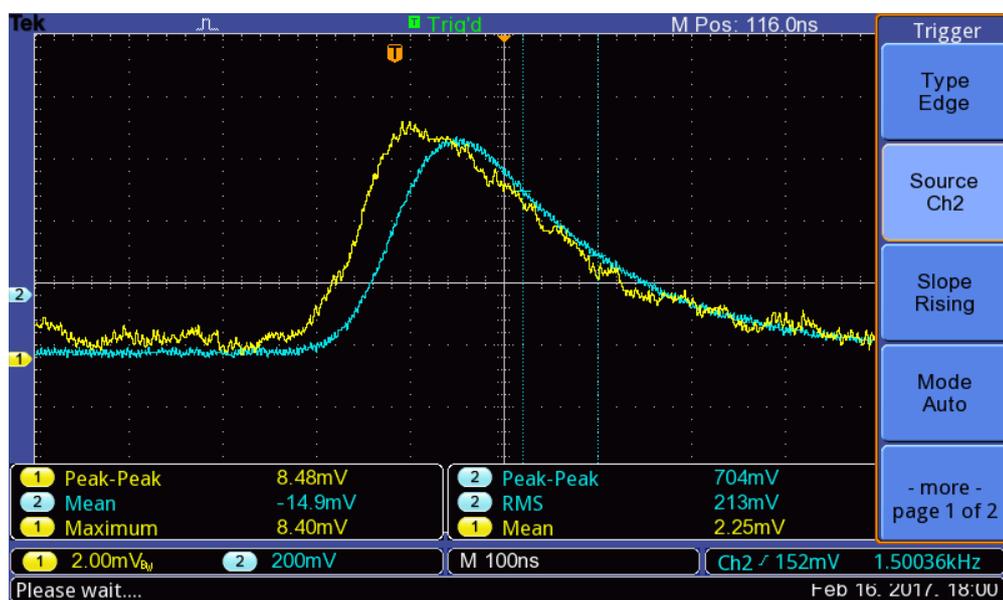


図 6.6 自作 PD による 729 nm パルスの遅延。黄線 (CH1) は DET10N/M (rise-time < 5 ns) で取得した 729 nm パルス、青線は自作 PD で取得した 729 nm パルスを表す。

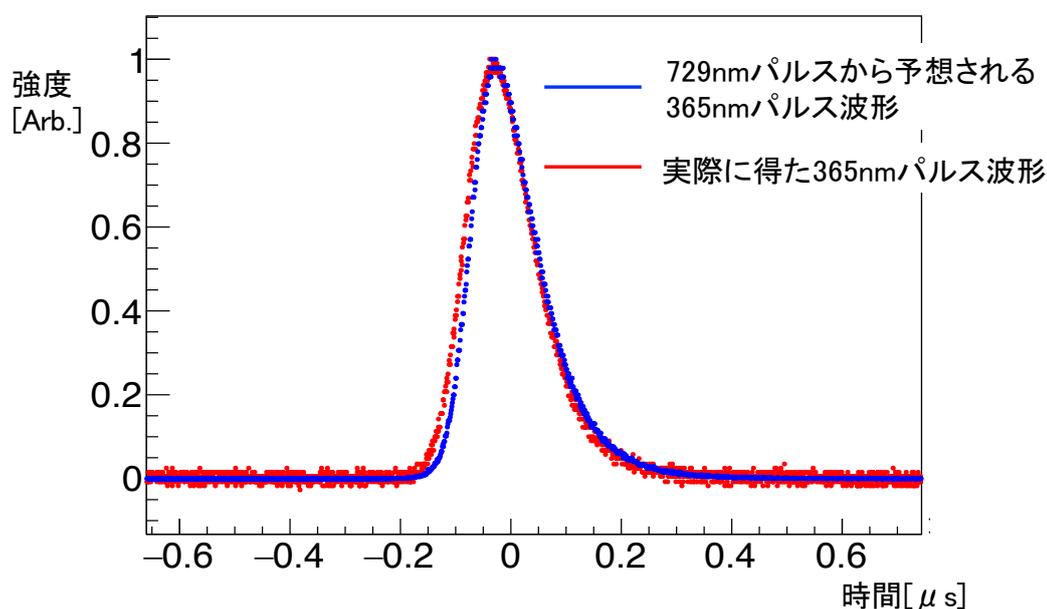


図 6.7 実測された 365 nm パルス波形と、729 nm パルスの実測から予測される 365 nm パルス波形との比較。赤線が実際の倍波パルスを規格化したグラフを表し、青線が倍波と同時に取得した 729 nm パルスの時間波形について瞬間強度の 2 乗を取って規格化したグラフを表す。

プロットの結果、5 ns 以内の誤差で両者の波形は一致することが分かった。したがって、2 倍波の時間波形は 729 nm パルスの時間波形から予測されるものと一致することが確かめられた。

倍波のパルスエネルギー

得られた倍波の時間波形からパルスあたりのエネルギーの推定を行った。エネルギーの計測にあたり、まずは強度の分かっている 729 nm パルスを自作 PD に照射し、得られた波形 図 6.6 を積分した。このことによって、自作 PD における 729 nm での感度を求めることが出来る。また、図 6.8 に示す PD 感度の波長依存性から、365nm における感度を算出出来る。したがって、729 nm の場合に比べて 365 nm 光

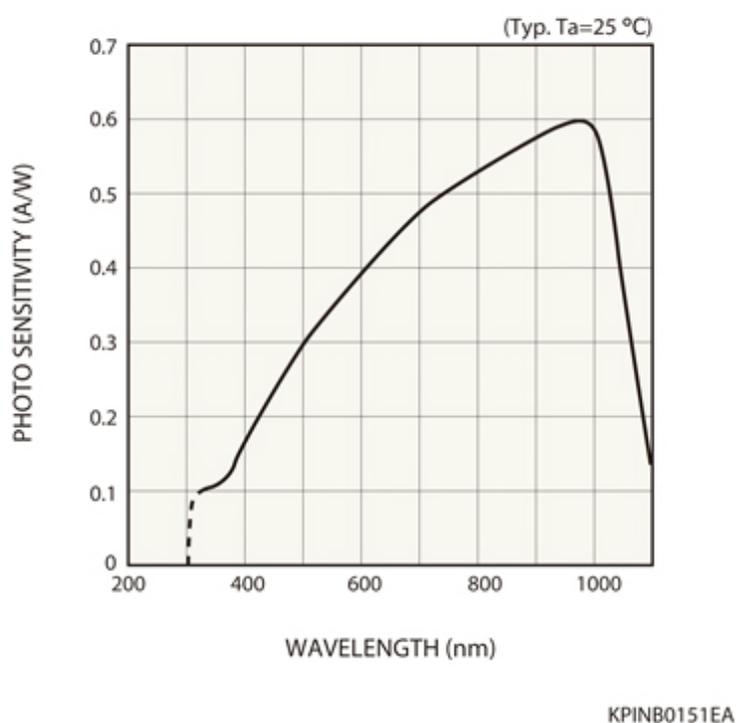


図 6.8 自作 PD に用いた Si PIN フォトダイオード S5821-02 の感度曲線 [40]

の場合は、同じエネルギーを与えた場合の PD 電圧値の大きさは $25 \pm 5 \%$ になる。PD 感度の波長依存性および、PD のオフセット電圧を考慮した上で 図 6.5 に示した 365 nm パルス波形を積分することにより、生成した 365nm 光のパルスエネルギー： 7 ± 2 nJ を得る。

次に、結果の妥当性を考慮する。基本波から倍波への生成効率を近似的に見積もる式である (6.7) 式を用いて計算する。ここで、図 6.5 で得られた 729 nm パルスのエネルギーは $10 \pm 1 \mu\text{J}$ であり*6、パルスの持続時間はピーク値の $1/e$ を基準にすると 250 ± 10 ns である。また、集光点においてビーム半径は $10.7 \pm 0.01 \mu\text{m}$ である。以上の値を用いて、第 6.1 節での議論にしたがって生成される 365 nm パルスのエネルギーを計算すると 7 ± 3 nJ となり、実測値と矛盾しない。

*6 729 nm パルスのエネルギーは、パワーメータによって多数のパルスの積分値を得ることによって測定した。また、図 4.8 の図 4.18 から、パルスあたりのエネルギーのばらつきは 10% とした。

6.3 まとめと展望

729 nm パルスを入射し、2 倍波である 365 nm パルスを得た。また、729 nm パルスと 365 nm パルスの時間波形を比較することによって、729 nm パルスの各時刻における瞬間強度の 2 乗をとることで生成する 2 倍波の波形を再現できることを確認した。さらに、第 6.1 節の (6.11) 式、(6.12) 式によって、729 nm パルスのプロファイルおよびエネルギーから生成する倍波のエネルギーを見積もることが出来ることを確認した。

以上から、今回のテスト実験で 2 倍波 (SHG) における基本原理の検証を達成した。生成出来た 2 倍波のエネルギーが小さかったため、SFG (729 nm + 365 nm → 243 nm) のテストには至っていないが、SHG と SFG は類似の物理現象であり、SFG の場合も基本波のプロファイルを用いて、生成する 243 nm パルスのエネルギー・時間波形を見積もることが出来ると期待される。

ここで、第 7 章において説明したマルチパス増幅により、目標スペックを満たす 729 nm パルス (300 ns 間のエネルギーが 5 mJ) が得られたと仮定する。まず、(6.11) 式、(6.12) 式を用いて、ビーム半径が 0.05 mm であり、LBO 結晶の長さが 7.7 mm 以上であるとき、1 mJ を超えるエネルギーを持つ 365 nm パルスを得ることが出来る。また、SFG により発生する 243 nm パルスの生成エネルギーの見積もりは第 A.4 節の (A.60) 式、(A.61) 式を用いて行うことが出来る。これらの式は (6.11) 式、(6.12) 式と同様に実際の状況を再現するものと考えられるが、あくまで近似的なものであり、厳密な見積もりの式ではないため、ファクター 3 の余裕を持って 120 μ J の 243 nm パルスが得られる条件を考える。パルス持続時間 300 ns、ビーム半径を 0.05 mm に設定し、729 nm パルスおよび 365 nm パルスのエネルギーがそれぞれ 4 mJ と 1 mJ となる場合、BBO 結晶の長さが 1.1 mm 以上であれば 120 μ J の 243 nm パルスを得ることが出来る計算となる。したがって、マルチパス増幅後において要求スペックを満たす 729 nm パルスが得られている場合、上記の条件を満たす LBO 結晶および BBO 結晶を用意すれば、必要な強度・持続時間を持つ 243 nm パルスを得ることが出来る。位相整合条件を満たし、結晶長が 10 mm の LBO 結晶および、2 mm の BBO 結晶は既に確保しており、波長変換部分の準備は完了している。

第7章

レーザー開発のまとめと展望

7.1 本実験のまとめ

Ps 冷却用レーザー開発に向けて、本研究では ECDL および Ti:Sapphire 共振器の製作を行い、マルチパス増幅および波長変換 (SHG 部分まで) のテスト実験を行った。表 7.1 に現在の開発状況をまとめる。

表 7.1 Ps 冷却用レーザーの開発状況のまとめ

	要求スペック	達成値	今後の改善点
① CW シード光： ECDL	中心波長：729 nm	729 nm	(完成)
	強度：数 mW	8.7 mW	
	線幅：< 1 GHz	< 50 kHz	
	周波数ドリフト：< 1 GHz	0.8 GHz	
② 波長操作	波長シフト：35 pm (20 GHz)	-	部品の選定*1
	広線幅化：80 pm (50 GHz)	-	調達済部品の選定*1
③パルス化： Ti:Sapphire 共振器	パルス持続時間：> 1 μ s	2 μ s	(達成)
	パルスエネルギー：> 100 μ J	8.7 μ J	ポンプ強度の増大
	強度のゆらぎ：5 % 以内	80 %*2	シード光の共振フィード
	ジッター： \pm 10 ns 以内	800 ns*2	バック制御の改善
④強度増幅： マルチパス増幅	パルス持続時間：> 300 ns	-	Ti:Sapphire 結晶の交換、 ポンプ強度と増幅回数の増加
	パルスエネルギー：> 5 mJ	-	
⑤ 波長変換	パルス持続時間：> 300 ns	-	(設計、部品調達は既に完了)
	パルスエネルギー：> 40 μ J	-	
	波長シフト：12 pm (60 GHz)	-	
	広線幅化：28 pm (140 GHz)	-	

*1 第 7.2 節で後述。

*2 瞬間の値であり、加えてパルスの発生を持続させる必要がある。

これまでに本文中で説明されていない EOM による周波数スペクトルの制御の今後については、第 7.2 節にて別途説明する。

7.2 EOM による周波数スペクトル制御

第 2.3 節で説明した Ps 冷却用レーザーに要求されるスペックを達成するためには、CW729 nm シード光に対して

- 300 ns の間に 20 GHz だけ周波数を大きくしていく（周波数シフト）
- 50 GHz に線幅を広げる（広線幅化）

の周波数スペクトル操作を加えることが必要になる。本研究においてこの操作は、EOM と呼ばれる素子を用いて行うことを考えている。EOM はニオブ酸リチウム (LiNbO_3) や KTP 結晶（リン酸チタニルカリウム、 KTiPO_4 ）などの電気光学結晶から成り、結晶に電圧を印加して起こる電気光学効果によって変調を達成する装置である。電気光学効果とは、光学結晶に電場を加えることで屈折率が変化する現象である。結晶に印加する電場の大きさを変えることで、結晶を光が通過する際に起きる位相変化量を調節出来る。これが位相変調である。

ここで、印加電圧を RF 周波数 Ω で振動させて変調をかける場合について考える。

EOM に対する入射光の電場が

$$E_{\text{in}} = A \exp(i\omega t) \quad (7.1)$$

のように表せるとき、位相変調をかけた際の EOM からの出射光の電場は

$$\begin{aligned} E_{\text{out}} &= A \exp[i(\omega t - m \sin \Omega t)] \\ &= A \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(m) \exp[i(\omega - n\Omega)t] \end{aligned} \quad (7.2)$$

のように表すことが出来る。但し、 J_n は第 1 種 Bessel 関数を表す。また、 m は変調深さ（単位：rad）と呼ばれる量であり、EOM への印加電圧の振幅に比例する。これはすなわち、基本の周波数 ω に比べて RF 周波数の整数倍だけ周波数の異なる光がサイドバンドとして出現することを意味する。変調深さ m が 1 に比べて十分小さいとき、2 次以上の第 1 種 Bessel 関数の値はほとんど 0 とみなすことができる。したがって、1 次のサイドバンドのみを考えれば良い。一方で、変調深さ m が 1 と比べて無視できない大きさであるときは、2 次以上のサイドバンドも現れてくる。EOM によるサイドバンドの発生・制御によって周波数シフトおよび広線幅化を達成することが出来る。

7.2.1 周波数シフト

周波数シフトは、変調周波数 Ω を時間変化させて 1 次のサイドバンドの周波数を変化させることで達成できる。ただし単一の位相変調型 EOM の使用では、必ず入力光の周波数を中心として高周波、低周波両側にサイドバンドが形成されてしまう。すなわち、元の入力光の周波数と反対側のサイドバンドとで 2 種類の不要な周波数が混じってしまうことになり、冷却用レーザーとしては冷却効率の低下につながって

しまうため望ましくない。そこで、複数の EOM を組み合わせて使うことにより不要な周波数成分を干渉効果で打ち消し、必要な片側のサイドバンドのみを残すことが出来る（詳細は第 A.5 節を参照のこと）。したがって、EOM に加える RF 周波数 Ω を時間変化させることでサイドバンド周波数が変化し、周波数シフトが達成できる。

本研究では 729 nm 光に対して 20 GHz の周波数シフトが要求されるため、 ± 10 GHz の範囲で駆動可能である、非常に広帯域の位相変調型 EOM が必要になる。近い波長である 718 nm では 4.6 GHz の RF 周波数で位相変調型 EOM を駆動した例がある [41]。今後は、729 nm 光で同様の EOM を 10 GHz までの RF 周波数で動作出来るかを確認していく。

7.2.2 広線幅化

CW729 nm シード光の広線幅化は、EOM の変調深さを大きくして多数のサイドバンドを生成することで実現する。今回は 50 GHz にわたってサイドバンドを立てる必要があり、また、変調後のシード光を Ti:Sapphire 共振器に注入する必要がある。したがって、Ti:Sapphire 共振器の FSR に合わせて 79 MHz（第 4.3 節を参照）の間隔でシード光を共振器に注入させる場合、320 次までサイドバンドを生成させる必要がある。通常の EOM にかける変調深さ m は高々 10 程度であり、数百次のサイドバンドの生成は非常に困難である。

そこで、EOM による変調の効果を Ti:Sapphire 共振器によってエンハンスすることが考えられる。実際に線幅が 1 kHz の半導体レーザーに対して EOM を内部に挿入した Fabry-Pérot 共振器を用いて共振器の FSR 毎にサイドバンドを生成し、4 THz 以上に周波数を広げること成功した例が 1993 年に報告されている [42]。共振器と EOM を組み合わせたセットアップの概念図を図 7.1 に示す。EOM の駆動周

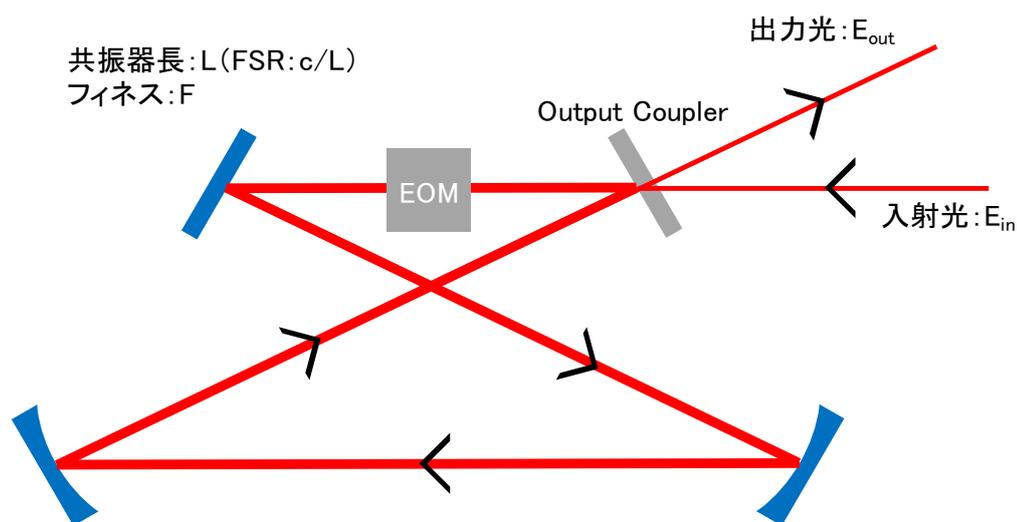


図 7.1 リング型共振器と EOM を組み合わせたセットアップ概念図

波数を共振器の FSR に合わせ、入力光が共振器の共振条件を完全に満たすとき、共振器内部における k

次のサイドバンド成分の強度 $P_{\text{out}}^{(k)}$ は、

$$P_{\text{out}}^{(k)} \propto \left(\frac{\pi}{mF}\right)^2 \exp\left(\frac{-2|k|\pi}{mF}\right) P_{\text{in}} \quad (7.3)$$

と表すことができる [42]。ただし、 F は共振器の Finesse を表し、 m は変調深さを表す。 P_{in} は入射光の強度である。(7.3) 式により、周波数の広がり は $2 \times \text{FSR} \times \frac{mF}{2\pi}$ 程度である。

本実験において作成した共振器は FSR : 79 MHz、Finesse の値 F : 221 である (第 4.3 節参照)。したがって、共振器内において 50 GHz に線幅を広げるには変調深さ $m \simeq 9$ でリング共振器内の EOM を駆動すれば良い。この状態で共振器内の Ti:Sapphire 結晶を励起することによって各サイドバンドがそれぞれパルス発振を起こし、50 GHz の線幅を持った 729 nm パルスが生成されることが考えられる。

ここで、共振器の FSR : 79 MHz において変調深さを最大 10 rad で駆動出来る位相変調型 EOM を Qubig 社より既に調達済みである。入手した EOM の写真を 図 7.2 に示す。この EOM は既に



図 7.2 線幅拡大用の EOM。立方体型 (4 cm × 4 cm × 4 cm サイズ) の装置であり、SMA 端子から RF 電圧を印加することが出来る。

Ti:Sapphire 共振器内に設置済み (図 4.20 を参照) である。また、EOM を共振器内に挿入しても問題なく 729 nm パルスが発生することは確認済みであり、実際に第 4.3 節で示したパルス波形も全て EOM を内部に配置した Ti:Sapphire 共振器から得られている。今後は実際に EOM に RF 周波数を印加して駆動し、実際に線幅が広がることを実験で確認していく予定である。

第 8 章

BEC に向けての展望

Ps 冷却用レーザーの開発の展望は第 7 章で説明した。BEC の達成にはレーザー冷却に加えて Ps の生成密度が重要になる。第 2 章の 2.2.2 節で説明したレーザー冷却のシミュレーションでは、Ps の生成初期段階において $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の密度を仮定している。本章では上記の水準を目標とし、高密度な Ps を生成するための取り組みについて紹介する。

8.1 高密度陽電子源の開発

本研究における設計では Ps の生成にパルス陽電子を用いる。陽電子を得る方法は主に 2 つの候補が考えられる。1 つめは Surko 型トラップ装置を用いる方法であり、 ^{22}Na 線源から得られる陽電子を減速材、バッファーガスにより減速し、電磁場によって捕捉するものである [43]。弱い相互作用による生成であるため偏極陽電子が得やすい利点があるが、線源強度が経年劣化する欠点を持つ。2 つめは加速器を利用する方法である。加速された電子パルスをタングステンに衝突させて制動 γ 線を放出させ、それによる対生成によって陽電子パルスが得られる [44]。この場合偏極陽電子を得るためには電子を偏極させるなどの工夫が必要となる [45]。

以上のような方法により生成した陽電子を蓄積することでパルス陽電子を得ることができ、典型的な方法ではパルスあたり 10^8 個程度の陽電子が含まれる [43]。ここで得られる陽電子パルスは一般にビーム径が太いため、高密度な Ps を生成させるために収束を行う必要がある。本研究では再減速材を用いた輝度増強システム [46] による陽電子の収束を検討している。この方法により、ビームの角度発散を抑えた効率的な収束が可能となり、今までに低速陽電子ビーム径 $25 \mu\text{m}$ が達成されている [47]。本研究ではこの陽電子増強システムを複数段にわたり繰り返し使用することによって、ビーム径をより細くし、超高密度陽電子パルスの実現を目指している (図 8.1)。現時点で、トータルでの陽電子から o-Ps の生成効率を 10 % と仮定すると、 10^8 個の陽電子を含むパルスから $7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ の密度で Ps を生成可能な収束系の設計がなされている。 $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ の生成密度には不足しているため、収束系の電磁場の設定をさらに最適化すること、また、初期の Ps 生成個数を 10^8 個から増加させる方法を検討することにより、更なる高密度化を達成出来る設計を実現していく。

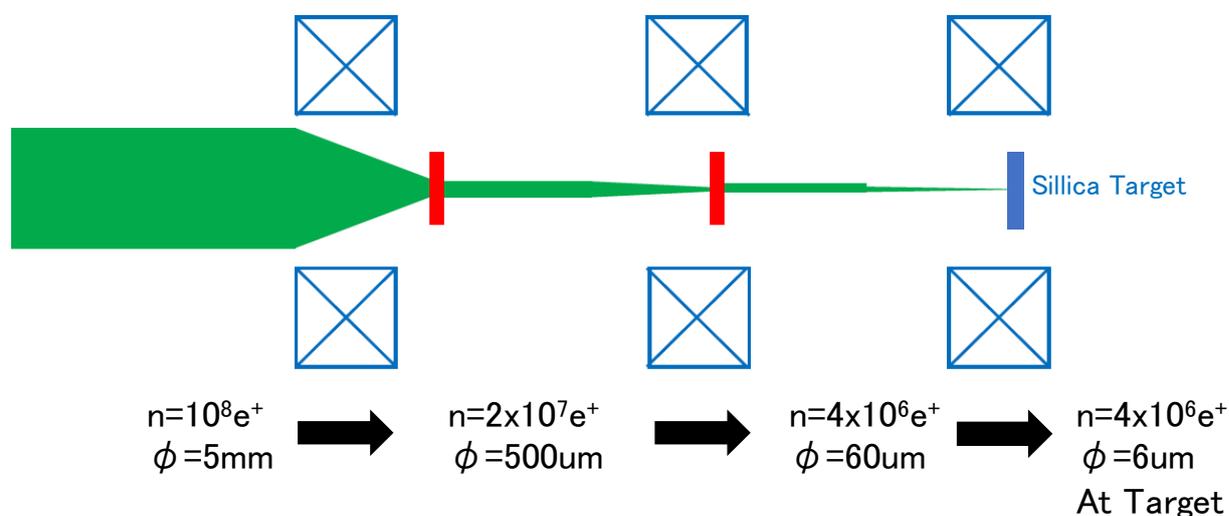


図 8.1 多段式低速陽電子輝度増強システム。低速陽電子輝度増強システムを 2 段に渡って繰り返して使用することにより、高密度陽電子を達成する方法を提案している [48]。収束における陽電子の個数の変化および、ビーム径の変化は空間荷電効果を考慮した上でビーム径方程式を用いて行っている。

8.2 Ps 生成用シリカ cavity の開発

シミュレーションにおいては 75 nm 立方のシリカ空孔に Ps を生成することを仮定した。そこで、Ps を生成し、閉じ込めるシリカ cavity には以下の特性：

- 75 nm 立方の空孔を形成出来ること
- レーザー冷却を行うために、紫外光に対して十分透明であること
- 50 % 以上の o-Ps 生成率

が必要になる。

上記の条件を全て満たすようなシリカ生成材料は現時点では存在しない。例えば、Ps を生成するのによく用いられるシリカエアロゲルは多孔体であり、レイリー散乱により紫外光を強く散乱してしまうためにレーザー冷却との両立が困難である。

そこで、本研究では後述する機能性シリカガラスを材料の候補として、シリカ cavity の開発に取り組んでいる*¹。

機能性シリカガラスはシリカナノ粒子のメソポーラス体を作成し、焼結することで得られる。メソポーラス体に対して微細加工を加えた後に焼結を行うと、その微細加工による形状を保持したままシリカガラスになる。2011 年にはナノインプリンティング法により、直径 650 ± 20 nm の穴の成形および、幅が 340 ± 10 nm、高さが 150 - 180 nm の線パターンの成形に成功している [49]。ナノインプリンティング

*¹ 九州大学グローバルイノベーションセンター藤野研究室との共同研究である。

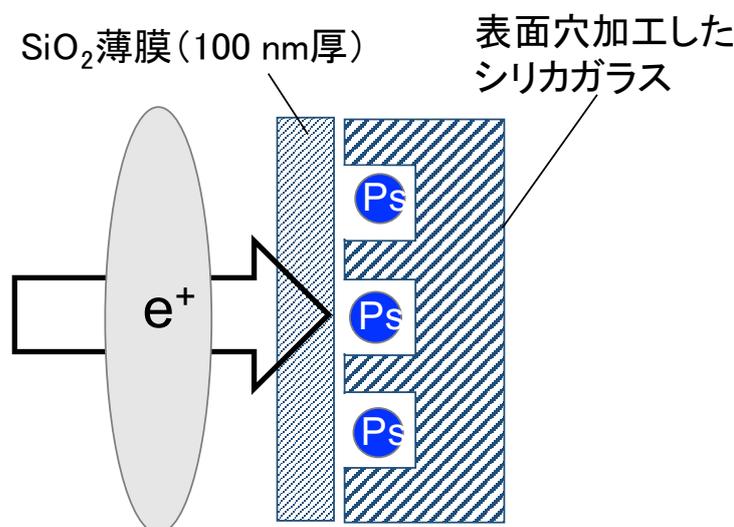


図 8.2 Ps 生成用シリカ cavity の構成。表面を微細加工された機能性シリカガラスをシリカ薄膜でフタをすることにより、75 nm 立方の空孔を持つシリカ cavity を実現する。

法は微細構造を持つモールドをシリカメソポーラス体に押し当てることで微細加工を達成するものであり、モールドの形状によって 10 nm 以下の解像度での成形が可能である [50]。今後、この技術により実際に 75 nm 立方の形の穴が開いた機能性シリカガラスを作製が出来ることを確認していく。さらに、厚さ 100 nm のシリカ薄膜でフタをすることで 75 nm 立方の空孔を持つシリカ cavity の実現を目指す (図 8.2)。

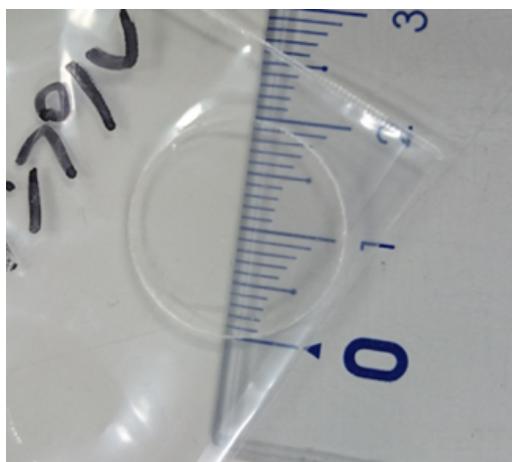
次に、機能性シリカガラスが冷却用レーザーに対して透明であることを確認する必要がある。そこで、表面微細加工をしていない、厚さ 1.1 mm の機能性シリカガラスサンプル：図 8.3(a) を用意し、透過率波長依存性を分光光度計で計測した。得られた測定結果を図 8.3(b) に示す。Ps 冷却用レーザーの波長である 243 nm において透過率は 80 % であり、十分高い透過率を持つことが分かる。ただし、非透過成分の 20 % がシリカガラスにおける吸収に相当する場合、冷却用レーザーによってシリカガラスを加熱してしまう可能性がある。物質中における吸収係数は測定方法の他、製造方法や試料の状態に依存することが知られている [51] が、シリカガラスの 243 nm における吸収係数 k の値として例えば以下の値：

1. $k = 3 \times 10^{-5}$ [52]
2. $k = 10^{-6}$ [53]
3. $k = 10^{-7}$ [54]

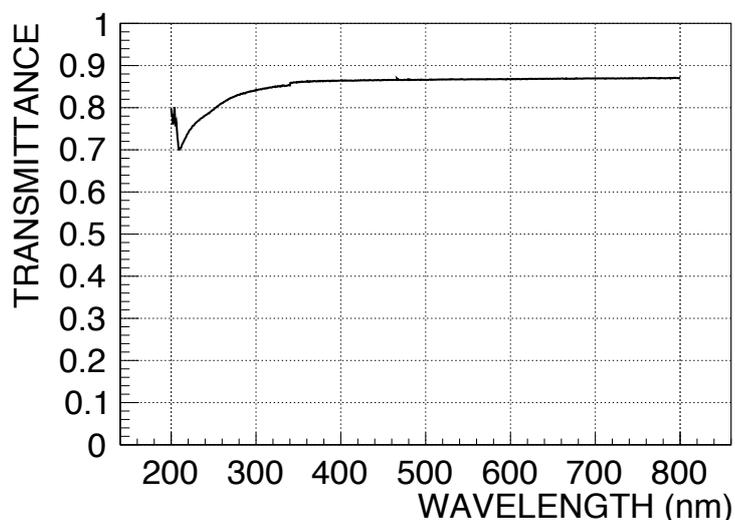
が紹介されている。透過する試料の厚みを a 、光の波長を λ 、光のパルスエネルギーを E_0 としたとき、試料によって吸収されるエネルギーの大きさ E' は、

$$E' = E_0 \left[1 - \exp \left(-\frac{4\pi ka}{\lambda} \right) \right] \quad (8.1)$$

と表される。シリカガラスの厚みを $a = 1$ mm、パルスの繰り返し数を 100 Hz と仮定し、(8.1) 式を用いることにより、上記の各吸収係数 k に対応するパルスエネルギー 40 μ J の 243 nm 光のエネルギー吸



(a) 実際に作成した機能性シリカガラスの写真



(b) 機能性シリカガラスサンプルの透過率曲線

図 8.3 機能性シリカガラスのサンプルと透過率曲線。左図 (a) は実際に作製した機能性シリカガラス（表面の微細加工無し）のサンプルであり、厚さは 1.1 mm である。右図 (b) は (a) に示したシリカガラスの厚み方向の透過率を分光光度計を用いて測定したグラフである。

収はそれぞれ、

1. 0.3 mW
2. 2 μ W
3. 20 μ W

と計算出来る。今回用意した機能性シリカガラスに関して、1. は今回実測された透過率 80 % と矛盾するため棄却出来るが、時間平均で 2. あるいは 3. 程度の発熱が実際のシリカ cavity において起こる可能性がある。4 K 以下まで冷却可能なクライオスタットには 1 W 以上の冷却能力を持つものが存在する [55] ため、平均温度の上昇につながる心配はない。ただし、実際のセットアップではパルスレーザーを集光して照射するため、瞬間的かつ局所的な発熱が起こる。その緩和過程においてシリカ空孔内の Ps 温度が受ける影響については、シミュレーションを行ったり、実際に紫外光パルス照射して実測することにより今後確かめていく。

最後に、機能性シリカガラスにおける Ps の生成率を確かめる必要がある。 ^{22}Na 線源による 0 ~ 546 keV の陽電子を機能性シリカガラスのサンプルに照射することで、シリカガラス内部で o-Ps が生成することは既に確認している（図 8.4）。o-Ps の生成率は 5 割以上であり、通常のシリカガラスと同程度の水準である。

今後は、実際に空孔が存在するシリカ cavity に低速陽電子を照射した場合に、十分な o-Ps が生成し、空孔内部に蓄積されるかを確かめていく。

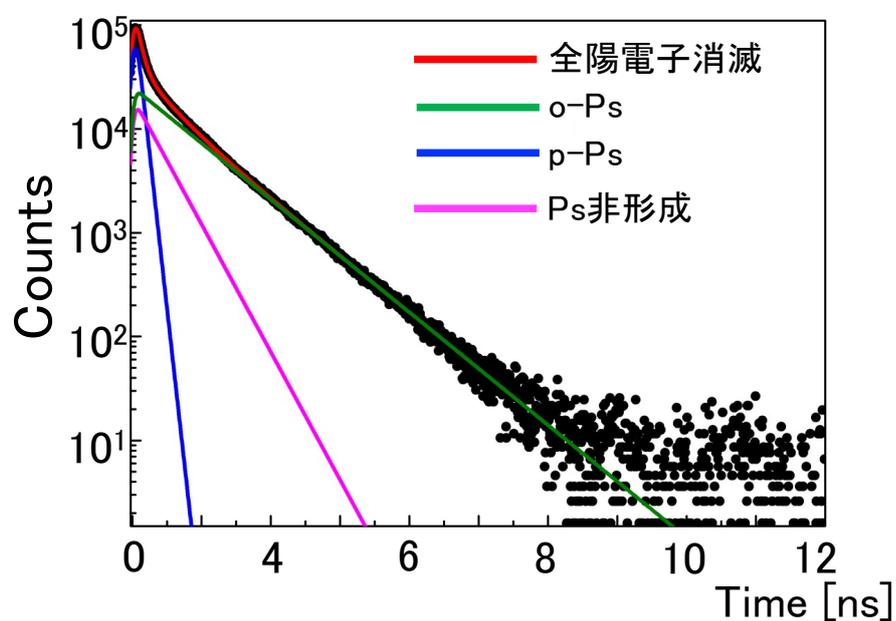


図 8.4 機能性シリカガラス中で生成した Ps の崩壊数のプロット。緑は Fitting より得られた、シリカガラス中で生成した o-Ps の崩壊数を表す。物質中であるため崩壊寿命は 1.6 ns となっている。青はシリカガラス中で生成した p-Ps の崩壊数、マゼンタは Ps を形成しなかった陽電子の崩壊数のグラフである。赤はこれらを合計した Fit 関数を示しており、陽電子消滅の全イベント数に対応する。Fitting 結果より、陽電子の入射数に対する o-Ps の生成率は 54 % であった。

Appendix A

光学に関する基礎知識と補足

本章では光学に関する基礎知識および、本文で詳細を省略した議論の補足を行う。

A.1 リング型光共振器

光共振器は複数のミラーで構成されており、共振条件を満たすことで内部に光を蓄積することの出来る機構である。

特に、本研究では Ti:Sapphire パルスレーザー用にリング型共振器を実際に作成し、使用した。このため、本節では主にリング型共振器の場合に即して、光共振器の基礎的な知識について説明する。

リング型共振器は内部で光が周回するタイプの共振器であり、例えば 図 A.1 に示すような bow-tie 型共振器のようなものがある。共振条件を満たす時に Output Coupler と呼ばれるミラーから光を入射させると、内部に光がため込まれる。ため込まれた光は Output Coupler における入射光の反射に混じる形で外に取り出される。特徴として、内部での光の進行方向が 1 方向に定まり定在波などが発生しないこと、また、共振器から取り出される光が入射光の方向に戻らないことが挙げられる。

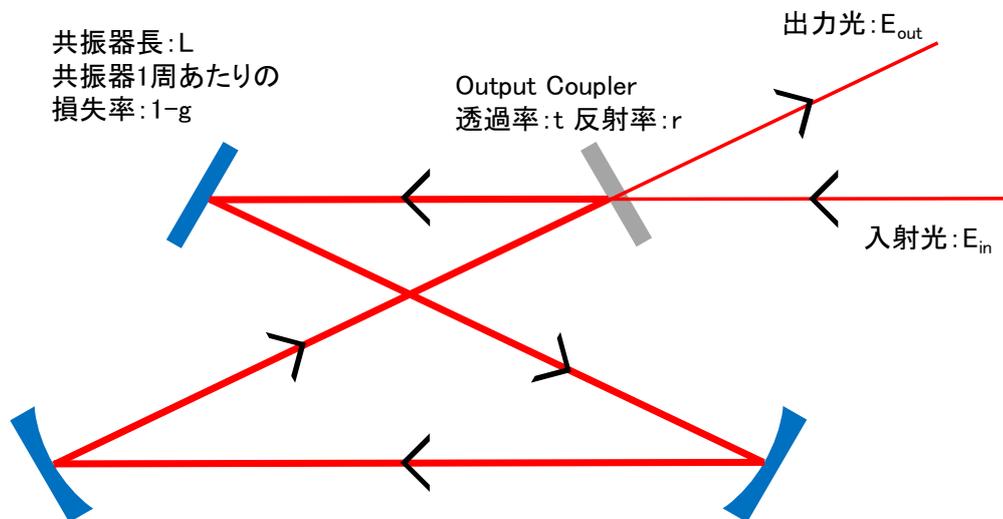


図 A.1 bow-tie 型共振器の概念図

共振条件

共振器における共振は、共振器の1周の長さ L と光の周波数（あるいは波長）とが条件を満たすときに起こる現象であり、共振器内で光が強めあい、溜め込まれる現象である。これは共振器内部における光の干渉効果と考えることができ、逆に共振条件を満たさない場合は内部で光が打ち消しあってしまうため、共振器内に光がため込まれることはない。以下に共振条件についてまとめる。

入射光の電場を E_{in} 、共振器からの出力光を E_{out} とする。また、Output Coupler における、電場に対しての反射率、透過率をそれぞれ r, t とし、 $1 - g$ が共振器を1周する際のトータルの電場の損失率を表すとする。パワーに対する反射率、透過率、損失率がそれぞれ $R, T, 1 - G$ に相当するとすれば、

$$\begin{aligned} R &= r^2 \\ T &= t^2 \\ G &= g^2 \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

が成り立つ。共振器の1周の光路長は L とし、入射光の周波数を ν 、角周波数を $\omega = 2\pi\nu$ とする。このとき共振器を1周するときの位相は $\frac{\omega}{c}L$ となる。ミラーでの反射における位相のずれも考慮*1して E_{out} は、

$$\begin{aligned} E_{\text{out}} &= rE_{\text{in}} + \sum_{n=0}^{\infty} e^{3i\pi n} E_{\text{in}} t \left[\exp\left(-in\frac{\omega}{c}L\right) r^{n-1} g^n \right] \\ &= \left[r - \frac{\exp\left(-i\frac{\omega}{c}L\right) gt^2}{1 - \exp\left(-i\frac{\omega}{c}L\right) gr} \right] E_{\text{in}} \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

となる*2。ここで、 $\frac{\omega}{c}L = \phi$ とし、出力光の強度を I_{out} を計算すると、

$$\begin{aligned} I_{\text{out}} &= |E_{\text{out}}|^2 \\ &= |E_{\text{in}}|^2 \left[r - \frac{e^{-i\phi} gt^2}{1 - e^{-i\phi} gr} \right] \left[r - \frac{e^{i\phi} gt^2}{1 - e^{i\phi} gr} \right] \\ &= I_{\text{in}} \left[\frac{GR^2 + GT^2 + R(1 + 2GT) - 2gr(R + T) \cos \phi}{1 + GR - 2gr \cos \phi} \right] \\ &= I_{\text{in}} \left[(T + R) - \frac{T[1 - G(T + R)]}{1 + GR - 2gr \cos \phi} \right] \\ &= I_{\text{in}} \left[(T + R) - \frac{T[1 - G(T + R)]}{(1 - gr)^2 + 4gr \sin^2\left(\frac{\phi}{2}\right)} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

となる。なお、 $I_{\text{in}} = |E_{\text{in}}|^2$ である。全く無損失の理想的な共振器 ($T + R = 1, G = 1$) を仮定すると、(A.3) 式、すなわち I_{out} は常に I_{in} に一致する。もう少し現実的な状況を反映するため、例えば $T = 0.01, R = 0.99, G = 0.99$ を仮定すると、(A.3) 式は $\phi = 2m\pi$ (m は整数) の時に極小値をとる関数となる。ここで、 $I_{\text{out}}/I_{\text{in}}$ をプロットしてみると、図 A.2 のようになる。

*1 Output Coupler における入射光の反射はミラー基材内部で起こるものであるから自由端反射であり、位相のずれはない。

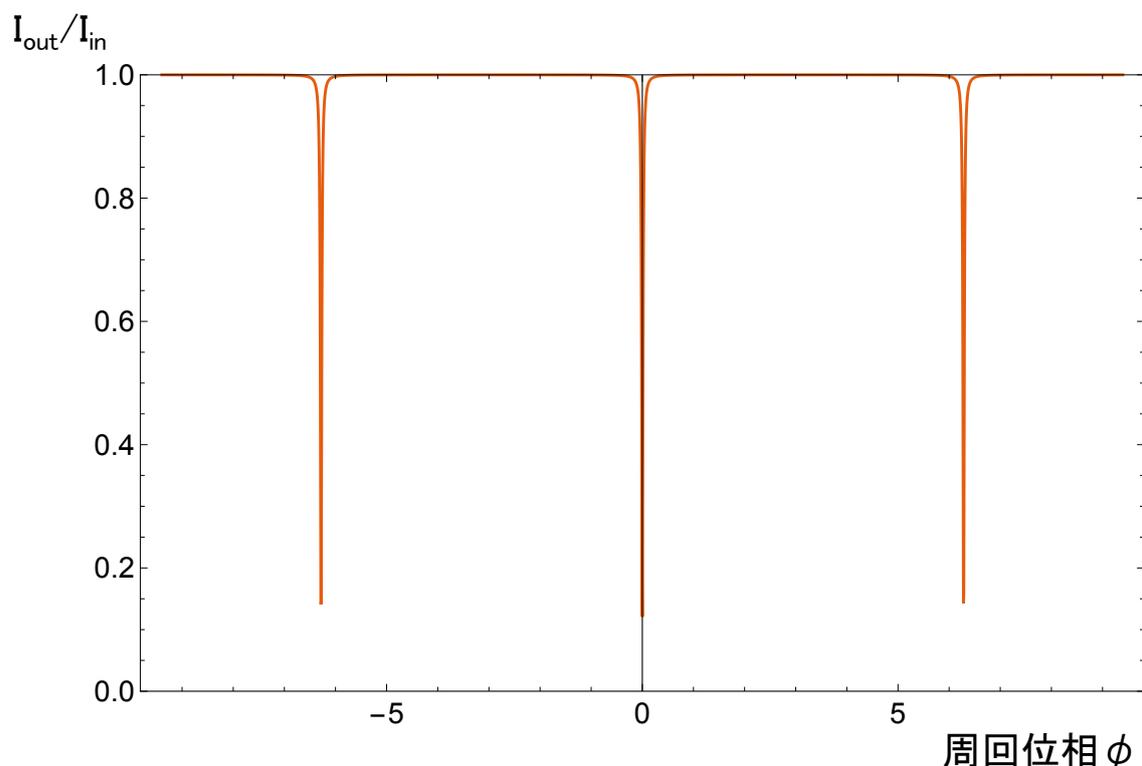


図 A.2 bow-tie 型共振器の出力光強度と周回位相

また、共振器内部での光強度 I_{cavity} も考えてみる。 I_{out} と同様に考えれば、

$$\begin{aligned}
 I_{\text{cavity}} &= |E_{\text{in}}|^2 \left[-\frac{e^{-i\phi}gt}{1 - e^{-i\phi}gr} \right] \left[-\frac{e^{i\phi}gt}{1 - e^{i\phi}gr} \right] \\
 &= |E_{\text{in}}|^2 \frac{GT}{1 + GR - 2gr \cos \phi} \\
 &= |E_{\text{in}}|^2 \frac{GT}{(1 - gr)^2 + 2gr(1 - \cos \phi)} \\
 &= |E_{\text{in}}|^2 \frac{GT}{(1 - gr)^2 + 4gr \sin^2 \left(\frac{\phi}{2} \right)} \tag{A.4}
 \end{aligned}$$

のように計算出来る。(A.4) 式も $\phi = 2m\pi$ を満たす時に極大値を取ることが分かり、 $T = 0.01, R = 0.99, G = 0.99$ を仮定して $I_{\text{cavity}}/I_{\text{in}}$ を計算、プロットすると 図 A.3 が得られる。

一方、共振器内部におけるミラーや Output Coupler での反射は固定端反射であり、位相は π だけずれる。

*2 今回は 図 A.1 のような、4 枚ミラー Cavity の場合について計算したが、偶数枚のミラーから構成されていればその数に関わらず同じ結果となる。

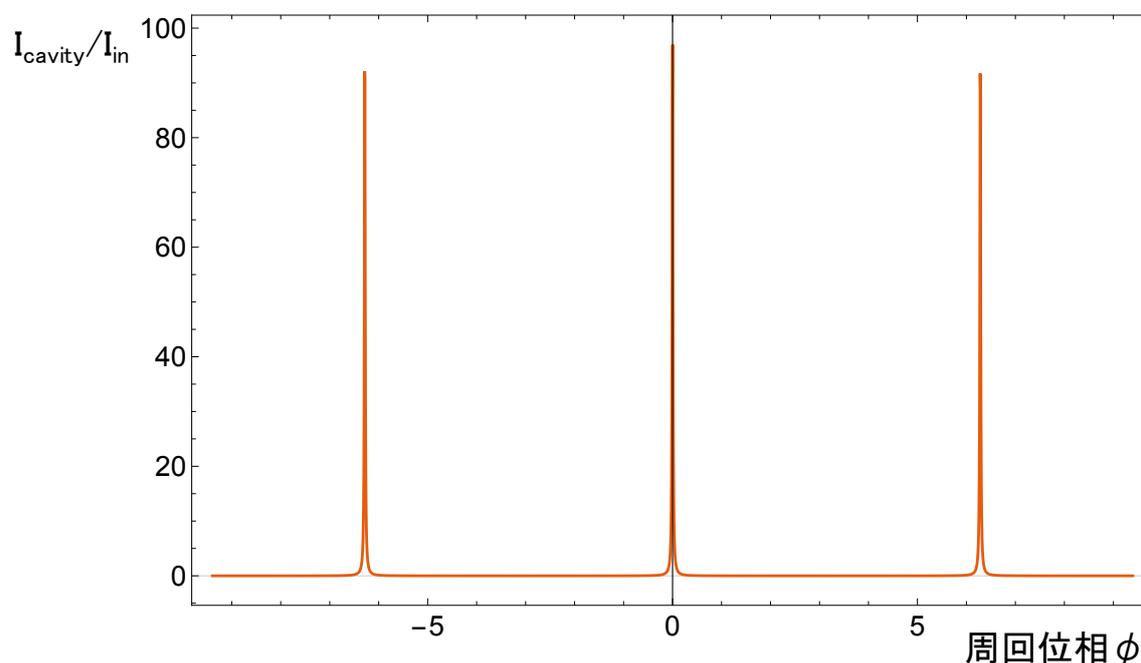


図 A.3 bow-tie 型共振器内部でのエンハンスメントと周回位相

Free Spectral Range(FSR)

共振周波数 (Free Spectral Range, FSR) は一定の間隔となり、 $\Delta\nu$ で表すことにすると、 $\phi = \frac{2\pi\nu L}{c} = 2m\pi$ となるため、

$$\Delta\nu \equiv \nu_{m+1} - \nu_m = \frac{c}{L} \quad (\text{A.5})$$

と表すことが出来る。

光子寿命

共振器に蓄積されている光は単位時間あたり一定の割合で共振器外に放出される。したがって、共振器への光の注入が切れると、共振器内の光強度は指数関数的に減少していく。光子寿命とはこの時定数を指す。

図 A.1のモデルで考えると、共振器を光が1周するのにかかる時間は L/c である。また、共振器を1周する毎に光強度は $(1 - RG)$ だけのロスを受ける。したがって、光子寿命 τ は、

$$\tau = \frac{L}{c(1 - RG)} \quad (\text{A.6})$$

と表せる。

Finesse

光共振器に CW 光を注入するとき、周波数によって内部に蓄積される光量は変化する。このとき、 ν_{FWHM} は入射光の周波数に対して、共振器に蓄積される光量の共鳴ピークの半値全幅を表す。ここで、 $\Delta\nu$ は共振器の FSR を表すとき、光共振器において、Finesse と呼ばれる量 F は、

$$F \equiv \frac{\Delta\nu}{\nu_{\text{FWHM}}} \quad (\text{A.7})$$

と定義される。

この量は光共振器における共振の鋭さ、あるいは共振周波数の精度を表す目安となる。

一般に、 $1 - g, 1 - r$ の値が小さいときは F の値が大きくなり、近似的に

$$F \simeq \frac{\pi}{1 - gr} \quad (\text{A.8})$$

と表される [39]。

共振器の空間モード安定性

共振器を設計する上で、安定したモードが存在や、共振器内部におけるビーム径やスポットサイズを確認する必要がある。モードの安定性及び形状には影響を及ぼさないため、ここでは共振器を 1 周したときのパワーのロスを見逃して考える。

共振器の安定したモードにおいては、ビームの空間分布は 1 周したときに元の分布と同じになるように伝搬しなくてはならない（自己無撞着条件）。そこで、共振器内の任意の参照点における複素ビームパラメータを q_s とし、共振器の 1 周の巡回に対応する光線行列の要素を A, B, C, D としたとき、

$$q_s = \frac{Aq_s + B}{Cq_s + D} \quad (\text{A.9})$$

という条件が満たされる必要がある。 q_s について解くと、

$$\frac{1}{q_s} = \frac{(D - A) \pm \sqrt{(D - A)^2 + 4BC}}{2B} \quad (\text{A.10})$$

となる。ここで、曲率ミラー及び平面ミラー、空間伝搬に対応する行列の行列式は全て 1 である。そうした行列の積で表される行列の行列式も 1 となるため、

$$AD - BC = 1 \quad (\text{A.11})$$

が成立する。また、

$$\cos \theta = \frac{D + A}{2} \quad (\text{A.12})$$

あるいは

$$\theta = \pm \left| \cos^{-1} \left(\frac{D + A}{2} \right) \right| \quad (\text{A.13})$$

とすることにより、(A.10) 式は

$$\begin{aligned}\frac{1}{q_s} &= \frac{D-A}{2B} \pm i \frac{\sqrt{1 - [(D+A)/2]^2}}{B} \\ &= \frac{D-A}{2B} + \frac{i \sin \theta}{B}\end{aligned}\quad (\text{A.14})$$

と変形できる。

一般的に複素ビームパラメータ q について、ビームのスポットサイズ ω 及びビーム曲率半径 R と

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{R} - i \frac{\lambda}{\pi \omega^2} \quad (\text{A.15})$$

のような関係がある。安定したモードであるためには、 ω^2 が正の値を取る必要があるため、

$$\frac{\sin \theta}{B} < 0 \quad (\text{A.16})$$

を満たすことが必要であり、また、この場合 θ も実数である必要があるので、

$$\left| \frac{D+A}{2} \right| < 1 \quad (\text{A.17})$$

であることが、ビームが共振器に閉じ込められる条件となる。このとき、(A.14) 式は

$$\frac{1}{q_s} = \frac{D-A}{2B} + \frac{i \sin \theta}{|B|} \quad (\text{A.18})$$

と変形でき、曲率半径 R 及びビームのスポットサイズ ω は、

$$R = \frac{2B}{D-A} \quad (\text{A.19})$$

$$\omega = \left(\frac{\lambda}{\pi} \right)^{1/2} \frac{|B|^{1/2}}{\left[1 - \left(\frac{D+A}{2} \right)^2 \right]^{1/4}} \quad (\text{A.20})$$

と表せる。

R_{mirror} を 2 枚の凹面ミラーの曲率半径、また、 L_1, L_2 を 2 枚の凹面ミラー間の光路長とする。また、 w_1, w_2 を共振器内に 2 つあるビーム waist におけるビームサイズ（半径）として、(A.20) 式に実際に対応する伝搬行列要素を代入することにより、

$$w_1^2 = \frac{\lambda \sqrt{R_{\text{mirror}}}}{2\pi} \sqrt{\frac{\left(1 - \frac{L_1}{R_{\text{mirror}}} \right) \left(L_1 + L_2 + \frac{L_1 L_2}{R_{\text{mirror}}} \right)}{1 - \frac{L_2}{R_{\text{mirror}}}}} \quad (\text{A.21})$$

$$w_2^2 = \frac{\lambda \sqrt{R_{\text{mirror}}}}{2\pi} \sqrt{\frac{\left(1 - \frac{L_2}{R_{\text{mirror}}} \right) \left(L_1 + L_2 + \frac{L_1 L_2}{R_{\text{mirror}}} \right)}{1 - \frac{L_1}{R_{\text{mirror}}}}} \quad (\text{A.22})$$

を得る。

また、(A.17) 式に具体的に行列要素を代入することにより、共振器における空間モードの安定条件：

$$0 \leq \left(1 - \frac{L_1}{R_{\text{mirror}}} \right) \left(1 - \frac{L_2}{R_{\text{mirror}}} \right) \leq 1 \quad (\text{A.23})$$

を得る。

A.2 ビートの観測による ECDL の線幅の測定

ここでは、本文で割愛したビート観測による ECDL の線幅測定の原理について説明する。

考える 2 本のビームは共に z 方向に進行するものと仮定する。各ビームに対応する指数として $i = 1, 2$ とし、また、空間方向の指数として $\alpha = x, y$ とするとビームの電場は、

$$\mathbf{E}_i(t) = \sum_{\alpha=x,y} \mathbf{e}_\alpha E_{i\alpha} \cos(\omega_i t + \phi_i(t) + \theta_{i\alpha}) \quad (\text{A.24})$$

となる。 \mathbf{e}_α は x, y 方向の基底ベクトルであり、 $E_{i\alpha}$ は電場の空間成分である。また、 ω_i は各レーザーの中心角周波数を表し $\theta_{i\alpha}$ は $t = 0$ における波動の位相を表す定数である。 $\phi_i(t)$ は位相の揺らぎを表し、白色ガウス雑音を仮定する。これがレーザーの線幅に相当する。

2 つのビームを重ね合わせたときの光強度 $P(t)$ は、

$$\begin{aligned} P(t) &= |\mathbf{E}_1(t) + \mathbf{E}_2(t)|^2 \\ &= \left| \sum_{\alpha=x,y} \mathbf{e}_\alpha \left(\sum_{i=1,2} E_{i\alpha} \cos(\omega_i t + \phi_i(t) + \theta_{i\alpha}) \right) \right|^2 \\ &= \sum_{\alpha=x,y} \left[|E_{1\alpha}|^2 \cos^2(\omega_1 t + \phi_1(t) + \theta_{1\alpha}) + |E_{2\alpha}|^2 \cos^2(\omega_2 t + \phi_2(t) + \theta_{2\alpha}) \right. \\ &\quad \left. + 2E_{1\alpha}E_{2\alpha} \cos(\omega_1 t + \phi_1(t) + \theta_{1\alpha}) \cos(\omega_2 t + \phi_2(t) + \theta_{2\alpha}) \right] \end{aligned} \quad (\text{A.25})$$

のように表される。 x 成分と y 成分は直交して 0 になってしまうため、重ね合わせる 2 つのビームの偏光がそろっていないとビートの観測は出来ないことが分かる。そこで、以下では共に x 方向に偏光がそろっており y 成分は全て 0 であるものとして、空間方向の指数を省略して話を進める。その上で (A.25) 式を更に展開していくと、

$$\begin{aligned} P(t) &= E_1 E_2 \cos((\omega_1 - \omega_2)t + (\phi_1(t) - \phi_2(t)) + (\theta_1 - \theta_2)) \\ &\quad + \text{const.} \times \cos(2\omega_1 t + 2\phi_1(t) + 2\theta_1) \\ &\quad + \text{const.} \times \cos(2\omega_2 t + 2\phi_2(t) + 2\theta_2) \\ &\quad + \text{const.} \times \cos((\omega_1 + \omega_2)t + \phi_1(t) + \phi_2(t) + \theta_1 + \theta_2) \\ &\quad + \text{const.} \end{aligned} \quad (\text{A.26})$$

のようになる。2 つ目以降の項は 2 つのレーザーの元の周波数よりも高速に振動する項および定数項であるので、観測の上では意味をなさない。したがって、(A.26) 式において意味のある項のみを $p(t)$ として書き出せば、

$$p(t) = A \cos(\Omega t + (\phi_1(t) - \phi_2(t)) + \Theta) \quad (\text{A.27})$$

と出来る。ただし、 $A = E_1 E_2$ および、 $\Omega = \omega_1 - \omega_2$ 、また、 $\Theta = \theta_1 - \theta_2$ とした。

ここで、線幅を調べるのにあたって知りたいのは $p(t)$ のパワースペクトルである。Weiner-Khinchine の定理によれば、パワースペクトル $I(\omega)$ と自己相関関数 $G(\tau)$ とは Fourier 変換の関係にある。すなわち、

$$G(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(\omega) e^{i\omega\tau} d\omega \quad (\text{A.28})$$

$$I(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} G(\tau) e^{-i\omega\tau} d\tau \quad (\text{A.29})$$

である。自己相関関数 $G(\tau)$ は、時間平均を $\langle \dots \rangle$ と表せば*3、

$$G(\tau) = \langle p(t)p(t+\tau) \rangle \quad (\text{A.30})$$

と書くことが出来る*4。

ここで、 $G(\tau)$ を計算する前に、レーザーの線幅について記す。

$i = 1, 2$ として、各レーザーのポワースペクトルを求める。 $E_i(t)$ の自己相関関数は、

$$\begin{aligned} \langle E_i(t)E_i(t+\tau) \rangle &= |E_i|^2 \langle \cos[\omega_i(t+\tau) + \phi_i(t+\tau) + \theta_i] \cos[\omega_i t + \phi_i(t) + \theta_i] \rangle \\ &= |E_i|^2 \cos \omega_i \tau \langle \cos[\phi_i(t+\tau) - \phi_i(t)] \rangle \\ &= |E_i|^2 \cos \omega_i \tau \langle \cos[\eta_i(\tau)] \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

と表すことが出来る。ただし、 $\eta_i(\tau) \equiv \phi_i(t+\tau) - \phi_i(t)$ である。また、式変形に際して、時間平均が全ての t に渡るため、2つの \cos の相対的な位相のみが効いてくることを用いた。ここで、 $\phi_i(t)$ は白色ガウス雑音を仮定しており、ランダムウォークをすると考えて、

$$\langle \eta_i(\tau) \rangle = 0 \quad (\text{A.32})$$

$$\langle \eta_i(\tau)^2 \rangle = 2D_i|\tau| \equiv \sigma_i(\tau)^2 \quad (\text{A.33})$$

と出来る。 D_i は正の定数であり、 σ_i が η_i のばらつきを表す。このとき、分布関数

$$f_i(\eta_i) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_i^2}} \exp\left(-\frac{\eta_i^2}{2\sigma_i^2}\right) \quad (\text{A.34})$$

を用いて、

$$\begin{aligned} \langle \cos(\eta_i) \rangle &= \int_{-\infty}^{\infty} f_i(\eta_i) \cos(\eta_i) d\eta_i \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_i^2}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(i\eta_i - \frac{\eta_i^2}{2\sigma_i^2}\right) d\eta_i \\ &= \exp\left(-\frac{\sigma_i^2}{2}\right) \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_i^2}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left[-\frac{(\eta_i - i\sigma_i)^2}{2\sigma_i^2}\right] d\eta_i \\ &= \exp\left(-\frac{\sigma_i^2}{2}\right) \end{aligned} \quad (\text{A.35})$$

*3 一般に、関数 $f(t)$ の時間平均は

$$\langle f(t) \rangle = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T dt f(t)$$

のように表すことが出来る。

*4 なお、複素関数 $A(t)$ の場合の自己相関関数は

$$\langle A^*(t)A(t+\tau) \rangle$$

と表される。

のように計算することが出来る。これを用いて (A.31) 式は、

$$\begin{aligned}\langle E_i(t)E_i(t+\tau) \rangle &= |E_i|^2 \cos \omega_i \tau \exp\left(-\frac{\sigma_i^2}{2}\right) \\ &= |E_i|^2 \cos \omega_i \tau \exp(-D_i|\tau|)\end{aligned}\quad (\text{A.36})$$

のようになる。(A.36) 式に Fourier 変換を施すことにより、対応するパワースペクトル ($I_i(\omega)$ とする) は、

$$\begin{aligned}I_i(\omega) &= \frac{1}{2\pi} |E_i|^2 \int_{-\infty}^{\infty} \cos \omega_i \tau \exp(-D_i|\tau|) e^{-i\omega\tau} d\tau \\ &= \frac{1}{2\pi} |E_i|^2 \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i(\omega-\omega_i)\tau} \exp(-D_i|\tau|) d\tau \\ &= \frac{1}{\pi} |E_i|^2 \frac{D_i}{(\omega-\omega_i)^2 + D_i^2}\end{aligned}\quad (\text{A.37})$$

となる。但し、公式

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-a|x|} e^{-i\omega x} dx = \frac{2a}{a^2 + \omega^2} \quad (a > 0) \quad (\text{A.38})$$

を用いた。これは FWHM が D_i の Lorentzian であり、 $\Delta\omega_i = D_i$ となる。

以上を踏まえて (A.27) 式の自己相関関数 $G(\tau)$ を計算すると、

$$\begin{aligned}G(\tau) &= A^2 \cos(\Omega\tau) \langle \cos[\phi_1(t+\tau) - \phi_2(t+\tau) - \phi_1(t) + \phi_2(t)] \rangle \\ &= A^2 \cos(\Omega\tau) \langle \cos[\eta_1(\tau) - \eta_2(\tau)] \rangle\end{aligned}\quad (\text{A.39})$$

となる。ここで、 ϕ_1, ϕ_2 は無相関であるはずなので、

$$\langle \eta_1(\tau)\eta_2(\tau) \rangle = 0 \quad (\text{A.40})$$

である。したがって、

$$\begin{aligned}\langle [\eta_1(\tau) - \eta_2(\tau)]^2 \rangle &= \langle \eta_1(\tau)^2 \rangle + \langle \eta_2(\tau)^2 \rangle \\ &= \sigma_1^2 + \sigma_2^2 \\ &= 2(D_1 + D_2)|\tau| \\ &= 2(\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)|\tau|\end{aligned}\quad (\text{A.41})$$

となる。(A.39) 式は (A.35) 式の計算と (A.41) 式を参考にして、

$$\begin{aligned}G(\tau) &= A^2 \cos(\Omega\tau) \exp\left(-\frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}{2}\right) \\ &= A^2 \cos(\Omega\tau) \exp[-(\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)|\tau|]\end{aligned}\quad (\text{A.42})$$

となる。これに Fourier 変換を施すことにより、パワースペクトル $I(\omega)$ は、

$$\begin{aligned} I(\omega) &= \frac{1}{2\pi} A^2 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} \cos(\Omega\tau) \exp[-(\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)|\tau|] \\ &= \frac{A^2}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i(\omega-\Omega)\tau} \exp[-(\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)|\tau|] \\ &= \frac{A^2}{\pi} \frac{(\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)}{(\omega - \Omega)^2 + (\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2)^2} \end{aligned} \quad (\text{A.43})$$

と計算できる。これは 2 つのレーザーの角周波数の中心値の差 Ω を中心とした FWHM $\Delta\omega_1 + \Delta\omega_2$ の Lorentzian に比例したスペクトルである。このようにして、ビートによって 2 つのレーザーの線幅の合計を観測することが出来ることが分かった。

コヒーレント時間

コヒーレント時間に関して簡単に補足する。

(A.36) 式より、電場の大きさが E 、角周波数 ω 、線幅が $\Delta\omega$ であるレーザーの規格化された自己相関関数は、

$$\frac{\langle E(t)E(t+\tau) \rangle}{|E|^2} = \cos\omega\tau \exp(-\Delta\omega|\tau|) \quad (\text{A.44})$$

と表される。(A.44) 式のうち $\exp(-\Delta\omega|\tau|)$ 部分は、同一レーザーによる電場が線幅の大きさ $\Delta\omega$ に依存して、時間差 τ にしたがって相関を失っていくことを意味する。すなわち、

$$\tau_c \equiv \frac{1}{\Delta\omega} \quad (\text{A.45})$$

として、 τ_c が線幅 $\Delta\omega$ のレーザーのコヒーレント時間を表す。

A.3 HC 法の補足

本文 (4.1.2 節) では、HC 法に関して定性的な説明しか行わなかった。そこで、本章において式の導出・計算についての補足を行う。

ここで、リング型共振器のモデルとしては第 A.1 節の図 A.1 に即したものを考える。ただし、共振器には偏光に依存する特性があり、p 偏光成分のみが共振を起こし、s 偏光成分は共振を起こさない、あるいは共振による効果を見捨てるものと仮定する。

ここで、入射光の電場について、p 偏光の成分は $E_p^{(i)}$ 、s 偏光の成分は $E_s^{(i)}$ と表す。入射光の電場の大きさを $E^{(i)}$ としたとき、適当な実数 θ を用いて、

$$E_p^{(i)} = E^{(i)} \cos\theta \quad (\text{A.46})$$

$$E_s^{(i)} = E^{(i)} \sin\theta \quad (\text{A.47})$$

と表すことが出来る。

また、共振器からの出力光の電場について、p 偏光の成分は $E_p^{(r)}$ 、s 偏光の成分は $E_s^{(r)}$ と表す。

このとき、 $E_p^{(r)}$ は第 A.1 節の (A.2) 式より、

$$E_p^{(r)} = \left[r - \frac{e^{-i\phi}gt^2}{1 - e^{-i\phi}gr} \right] E_p^i \quad (\text{A.48})$$

と表せる。ただし、 ϕ は光が共振器を 1 周した際の位相を表す。 r, t はそれぞれ output coupler における電場の反射率と透過率を表し、 $1 - g$ は共振器を 1 周する際の電場の損失率を表す (第 A.1 節参照)。

また、s 偏光に関しては共振の効果を見捨てるため、

$$E_s^{(r)} = rE_s^i \quad (\text{A.49})$$

と表せる。

ここで、HC 法のセットアップの概念図を図 A.4 に掲載する。

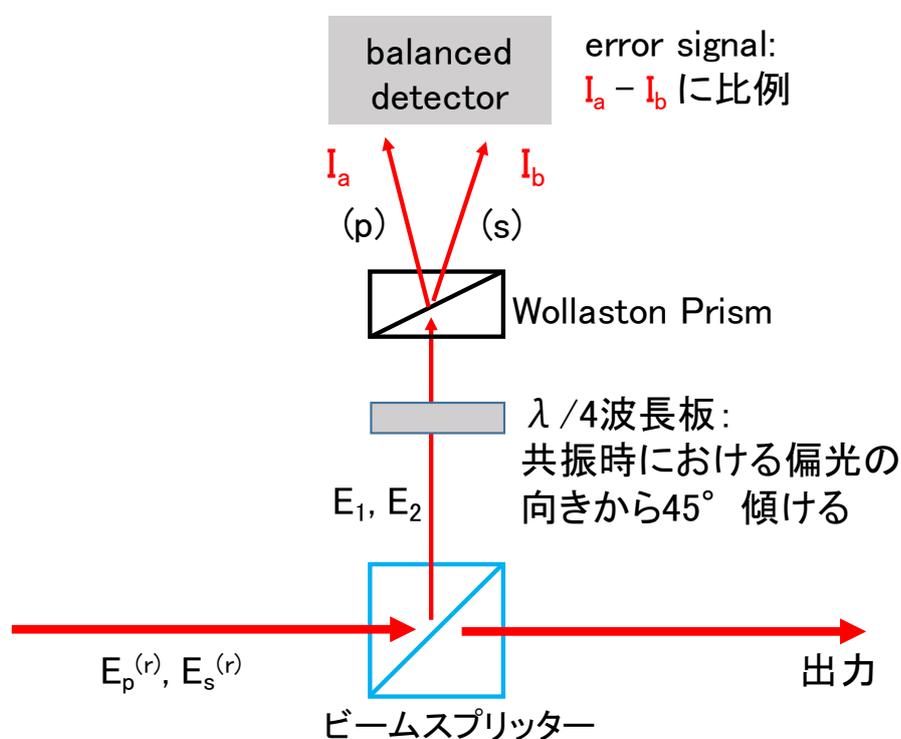


図 A.4 HC 法のセットアップ概要。共振器の出力光からビームスプリッターで分けた光を HC 法のシグナルに利用している。 E_1 は p 偏光成分、 E_2 は s 偏光成分に対応する。

ビームスプリッターで反射された光について、p 偏光の成分を E_1 とし、s 偏光の成分を E_2 とする。このとき、 $0 \leq \alpha_1 \leq 1$ 、 $0 \leq \alpha_2 \leq 1$ として、

$$E_1 = \alpha_1 E_p^{(r)} \quad (\text{A.50})$$

$$E_2 = \alpha_2 E_s^{(r)} \quad (\text{A.51})$$

と表すことができる。

error シグナルを取得するために用いるビームスプリッターは、無偏光ビームスプリッター (NPBS) および、偏光ビームスプリッター (PBS) を想定している。

NPBS を用いる場合、理想的には偏光によらず一定の割合で光を反射するため $\alpha_1 \simeq \alpha_2$ となる。

PBS の場合は、理想的には $\alpha_1 = 0$ 、 $\alpha_2 = 1$ となるが、現実には p 偏光成分もわずかに反射してしまい、 $\alpha_1 > 0$ となる。

$\lambda/4$ 波長板で偏光の変換を受けた後の p 偏光成分を E_a 、s 偏光成分を E_b と表す。このとき、ジョーンズベクトルを用いて、

$$\begin{aligned} E_a &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\pi}{4} & \sin \frac{\pi}{4} \\ -\sin \frac{\pi}{4} & \cos \frac{\pi}{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-\frac{\pi}{4}i} & 0 \\ 0 & e^{\frac{\pi}{4}i} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\pi}{4} & -\sin \frac{\pi}{4} \\ \sin \frac{\pi}{4} & \cos \frac{\pi}{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} (E_1 + iE_2) \end{aligned} \quad (\text{A.52})$$

$$\begin{aligned} E_b &= \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\pi}{4} & \sin \frac{\pi}{4} \\ -\sin \frac{\pi}{4} & \cos \frac{\pi}{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e^{-\frac{\pi}{4}i} & 0 \\ 0 & e^{\frac{\pi}{4}i} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \frac{\pi}{4} & -\sin \frac{\pi}{4} \\ \sin \frac{\pi}{4} & \cos \frac{\pi}{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1 \\ E_2 \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} i (E_1 - iE_2) \end{aligned} \quad (\text{A.53})$$

のように計算できる。

ここで、それぞれに対応する光強度 $I_{a,b}$ は、

$$I_{a,b} = \frac{1}{2} c \epsilon_0 |E_{a,b}|^2 \quad (\text{A.54})$$

となる。バランス検出器の 2 つの受光面で I_a, I_b に対応する光強度を取得するため、観測される error signal は $I_a - I_b$ に比例する。

一般的な HC 法のセットアップにおいては NPBS のように $\alpha_1 \simeq \alpha_2$ となる素子を用いて error 信号を取得する。このとき、得られる error 信号の挙動は以下の式：

$$I_a - I_b \propto \cos \theta \sin \theta \frac{TR \sin \phi}{(1 - G)^2 4G \sin^2 \left(\frac{\phi}{2} \right)} \quad (\text{A.55})$$

のように表される。

$\theta = \frac{\pi}{4}$ 、 $R = 0.99$ 、 $T = 0.01$ 、 $G = 0.99$ を仮定し、 $\alpha_1 = \alpha_2 = 0.1$ としたときの error 信号強度の計算値をプロットしたものを 図 A.5 に示す。

共振器を光が 1 周するときの位相に関して、周期 2π で分散型の error 信号の波形が現れる。特に、共振点である $\phi = 2m\pi$ (m は整数) の付近で鋭い傾きを持つ。

一方で、本実験では error 信号の取得に PBS を利用した。全く p 偏光を反射しない、理想的な PBS では error 信号を取得することは出来ないが、現実的な PBS では 1% 程度の p 偏光の反射が存在する。そこで、 $\alpha_1 = 0.01$ 、 $\alpha_2 = 1$ を仮定した場合の error 信号の挙動を数値計算し、図 A.6 にプロットした。

error 信号の波形および大きさに関して、ほとんど PBS を用いた場合と変わらない結果となった。PBS を用いた error 信号の取得は必ずしも一般的な方法ではないが、問題なく HC 法で使用することが出来る。

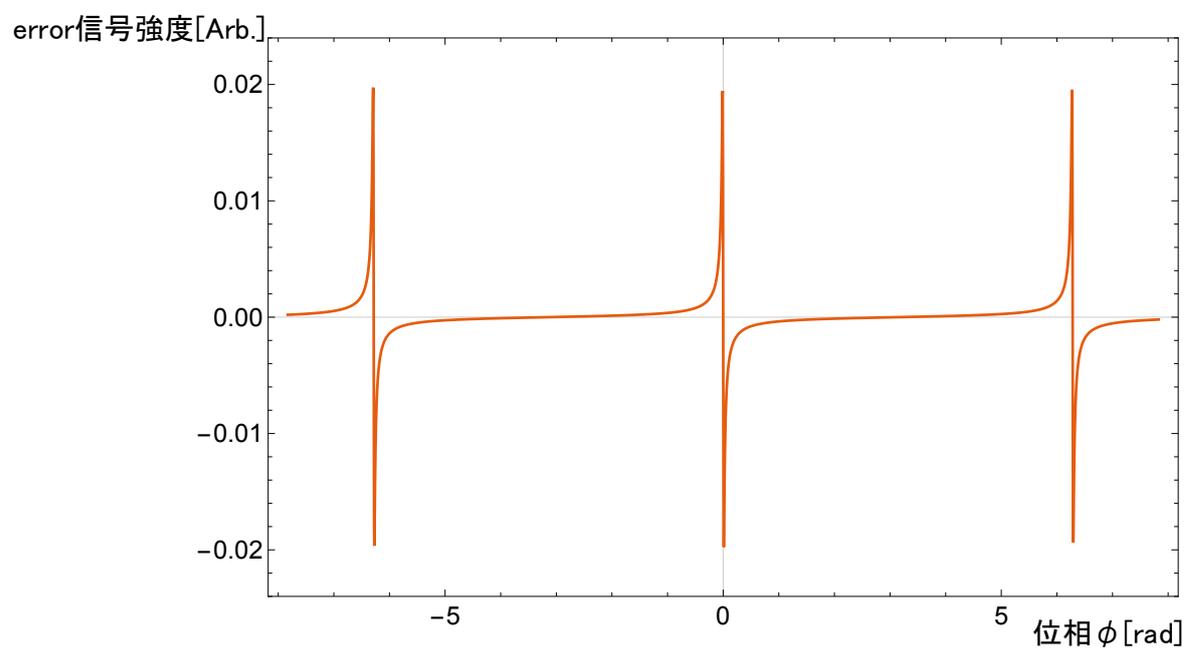


図 A.5 NPBS を用いて取得した error 信号強度の計算値。縦軸は任意であり、横軸は共振器を光が 1 周するときの位相である。 2π 毎の周期で分散型の error 信号が現れる。

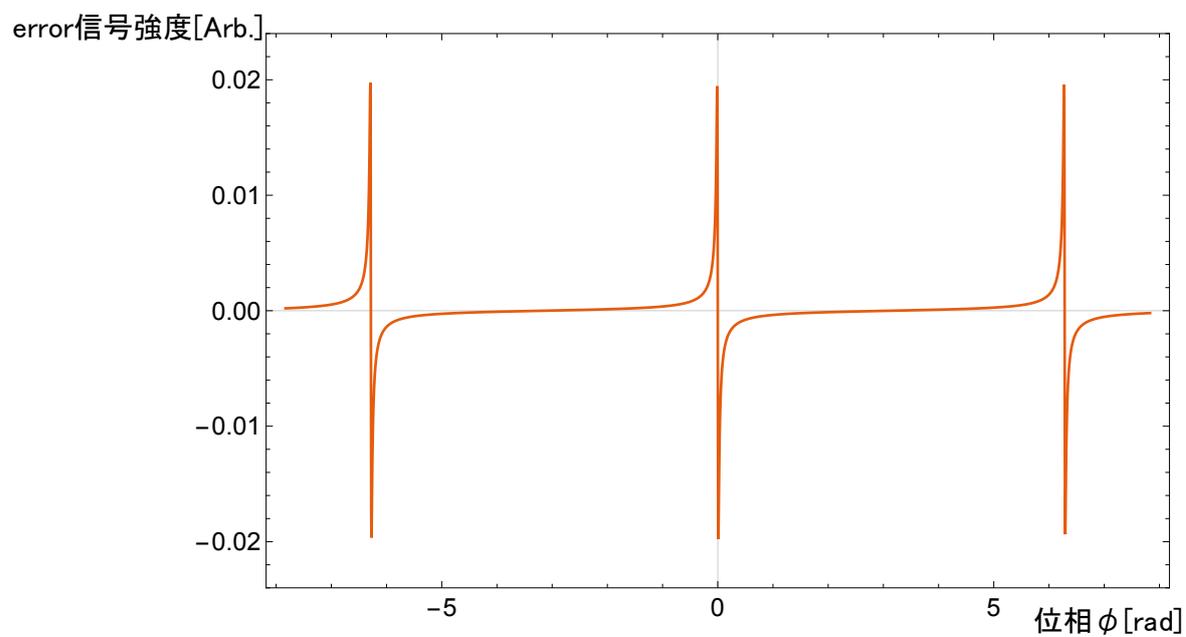


図 A.6 PBS を用いて取得した error 信号強度の計算値。縦軸は任意であり、横軸は共振器を光が 1 周するときの位相である。 2π 毎の周期で分散型の error 信号が現れる。

A.4 BBO 結晶による type1 の SFG

本章では BBO 結晶を用いた type1 の SFG によって、729 nm パルスと 365 nm パルスから 243 nm パルスを生成する場合の理論的考察を行う。

LBO 結晶における type1 の SHG と共通点も多いため、第 6.1 節における議論も参照されたい。

SFG における生成効率

SFG の場合、 ω_1, ω_2 に対応する入射光強度をそれぞれ I_1, I_2 とし、生成する合波(角周波数 $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$) に対応する強度を I_3 として、

$$I_3 = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega_3^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{n_1 n_2 n_3} I_1 I_2 \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (\text{A.56})$$

という式が成り立つ [36]*5。ここで、 n_1, n_2, n_3 はそれぞれ角周波数 $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ に対応した結晶中における屈折率を表す。 L は非線形結晶の厚みである。

有効非線形係数 d_{eff} は、角周波数 ω_1, ω_2 である 2 つの基本波の偏光の向きを表す単位ベクトルを \mathbf{a}_b 、生成波の偏光を表すベクトルを \mathbf{c} としたとき、

$$d_{\text{eff}} \equiv d_{ijk} a_i b_j c_k \quad (\text{A.57})$$

で表されるが SHG の場合と同様に、縮約された非線形係数テンソル d_{iK} を用いて表されることが多い。

位相角不整合 Δk は SFG の場合

$$\Delta k = k(\omega_3) - k(\omega_1) - k(\omega_2) \quad (\text{SFG}) \quad (\text{A.58})$$

と表される。位相整合条件 $\Delta k = 0$ が満たされる場合 (A.56) 式は、

$$I_3 = \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega_3^2 d_{\text{eff}}^2 L^2}{n_1 n_2 n_3} I_1 I_2 \quad (\text{A.59})$$

と表すことが出来る。

ここで、LBO 結晶の場合と同様に実効的な作用長 L_c を用いると (A.59) 式から、エネルギー変換効率 η_{SFG} :

$$\begin{aligned} \eta_{\text{SFG}} &\equiv \frac{I_3}{I_2} \\ &= \frac{2}{\epsilon_0 c^3} \frac{\omega_3^2 d_{\text{eff}}^2 L_c^2}{n_1 n_2 n_3} I_1 \end{aligned} \quad (\text{A.60})$$

と表すことが出来る。

*5 SFG においては一般に、第 6.1 節の (6.7) 式において $\omega_1 = \omega_2 = \omega, \omega_3 = 2\omega$ としても同一の式にはならない。これは、type1 の SFG では 2 つの基本波 (入射光) が同一で区別出来ないために縮退の効果が働くものと解釈出来る。

2つの基本波のうち、角周波数 ω_2 である光のパルスエネルギーを E_2 、生成する角周波数 ω_3 の光のパルスエネルギーを E_3 とする。このとき、(A.60) 式を用いて、

$$E_3 = \eta_{\text{SFG}} E_2 \quad (\text{A.61})$$

と表すことが出来る。(A.60) 式および (A.61) 式が、SFG における生成波のエネルギー E_3 を見積もる基本式となる。

LBO 結晶における SHG の場合と同様に、効率的に SFG を達成するためには以下の条件：

- 位相整合条件 $\Delta k = 0$ を満たすこと
- なるべく大きい有効非線形係数 d_{eff} を選ぶこと
- 基本波（入射光）の強度 I_1, I_2 を大きくすること
- 作用長 L_c を大きくすること

を満たすことが重要になる。

本研究では、729 nm パルスと 365 nm パルスの SFG によって 243 nm パルスを生成する設計を行なっている。LBO 結晶による type1 の SFG では位相整合条件を満たす解が存在しなかった。そのため、本研究では BBO 結晶（ベータバリウムボライト、 $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ）を用いた type1 の SFG を設計に採用した。BBO 結晶は LBO 結晶と比べて、walk-off 角がやや大きく、作用長 L_c を大きくしづらい欠点がある一方で、有効非線形係数 d_{eff} が大きく高効率で SFG を達成出来る。

位相整合、有効非線形係数 d_{eff} 、有効作用長 L_c に関して、以下で個別に検討する。

位相整合条件

位相整合条件： $\Delta k = k(\omega_3) - k(\omega_1) - k(\omega_2) = 0$ について、角波数 k と対応する角周波数 ω についての関係 $k = \frac{n(\lambda)\omega}{c}$ を用いると、

$$\omega_3 n(\lambda_3) = \omega_2 n(\lambda_2) + \omega_1 n(\lambda_1) \quad (\text{A.62})$$

と書き直すことが出来る。但し、 $i = 1, 2, 3$ とした時に λ_i は真空中において ω_i に対応する波長であり、

$$\lambda_i \equiv \frac{2\pi c}{\omega_i} \quad (\text{A.63})$$

を満たす。SFG : 729 nm + 365 nm \rightarrow 243 nm において、 $\lambda_1 = \lambda$ 、 $\omega_1 = \omega$ と表すことにすれば、 $\omega_2 = 2\omega, \omega_3 = 3\omega$ 、 $\lambda_2 = \frac{\lambda}{2}, \lambda_3 = \frac{\lambda}{3}$ がそれぞれ成立する。

第 6 章での SHG に関する議論と同様の理由により、等方媒質によって位相整合条件を満たすことは出来ず、複屈折性を示す結晶を利用する必要がある。

本研究で使用を予定している BBO 結晶は負の一軸性結晶であり、屈折率楕円体は $n_e < n_o$ として、

$$\frac{x^2}{n_o^2} + \frac{y^2}{n_o^2} + \frac{z^2}{n_e^2} = 1 \quad (\text{A.64})$$

と表せる。

このとき位相整合条件は、

$$3n_e \left(\frac{\lambda}{3} \right) = 2n_o \left(\frac{\lambda}{2} \right) + n_o(\lambda) \quad (\text{A.65})$$

と書き直す事が出来る。

また、一軸性結晶内を通過する異常光線の屈折率の角度依存性は、

$$n_e(\theta) = \frac{1}{\sqrt{\frac{\cos^2 \theta}{n_o^2} + \frac{\sin^2 \theta}{n_e^2}}} \quad (\text{A.66})$$

のように表せる*6。

ここで、(A.65) 式の左辺に (A.66) 式を代入して整理することにより、位相整合角 θ を表す以下の式：

$$\sin^2 \theta = \frac{\left(\frac{1}{3}n_o(\lambda) + \frac{2}{3}n_o\left(\frac{\lambda}{2}\right)\right)^{-2} - n_o^{-2}\left(\frac{\lambda}{3}\right)}{n_e^{-2}\left(\frac{\lambda}{3}\right) - n_o^{-2}\left(\frac{\lambda}{3}\right)} \quad (\text{A.67})$$

を得る事ができる。

ここで、BBO 結晶におけるセルマイヤーの方程式 [37] は、

$$\begin{aligned} n_o(\lambda) &= \sqrt{2.7359 + \frac{0.01878}{\lambda^2 - 0.01822} - 0.01354\lambda^2} \\ n_e(\lambda) &= \sqrt{2.3753 + \frac{0.01224}{\lambda^2 - 0.012523} - 0.01516\lambda^2} \end{aligned} \quad (\text{A.68})$$

で表される。但し、波長の単位は $[\mu\text{m}]$ である。

(A.67) 式および (A.68) 式より、 $\lambda = 729 \text{ nm}$ における位相整合角 θ は、

$$\theta = 51.5^\circ \quad (\text{A.69})$$

と定まる。

BBO 結晶の type1 位相整合における有効非線形係数は、縮約された非線形係数テンソルの成分 d_{iK} の成分を用いて、

$$d_{\text{eff}} = d_{31} \sin \theta + (d_{11} \cos 3\phi - d_{22} \sin 2\phi) \cos \theta \quad (\text{A.70})$$

と表される [56]。ただし、

$$d_{11} = 5.8 \times d_{36}(\text{KDP}) \quad (\text{A.71})$$

$$d_{31} = 0.05 \times d_{11} \quad (\text{A.72})$$

$$d_{22} < 0.05 \times d_{11} \quad (\text{A.73})$$

であり [56]、 $d_{36}(\text{KDP})$ は、

$$d_{36}(\text{KDP}) = 0.44 \text{ [pm/V]} \quad (\text{A.74})$$

である [57]。 θ は位相整合角によって一意に定まり、 ϕ は位相整合角には関わらないため、任意の値を選ぶことが出来る。この場合に最も d_{eff} が大きくなるのは $\phi = 0$ のときであり、位相整合角 $\theta = 51.5^\circ$ (type1) における BBO 結晶の有効非線形係数は結局、

$$d_{\text{eff}} = 1.69 \text{ [pm/V]} \quad (\text{A.75})$$

となる。

*6 波長依存性は省略した。

BBO 結晶における walk-off 角

一軸性結晶における異常光線の walk-off 角 ρ は、

$$\tan(\theta + \rho) = \left(\frac{n_o^2}{n_e^2}\right)^2 \tan \theta \quad (\text{A.76})$$

のように表される [38]。位相整合角 $\theta = 51.5^\circ$ において、生成波である 243 nm 光の walk-off 角を ρ_3 とすれば、

$$\rho_3 = 86.5 \text{ [mrad]} = 4.96^\circ \quad (\text{A.77})$$

と計算できる。

LBO 結晶における SHG (type1) の場合と同様に、この walk-off 角 ρ_3 によって決まる aperture length (l_a) は、

$$l_a = \frac{\sqrt{\pi}w}{\rho_3} \quad (\text{A.78})$$

の様に計算される。ただし、 w はビーム半径を表す。

この l_a あるいは、(6.29) 式で示した共焦点パラメータ b のうち小さい方が、実効的な作用長 L_c に相当する。

A.5 EOM を用いた周波数シフトの補足

7.2.1 節の中で、EOM 位相変調器を複数組み合わせることにより周波数シフトを実現出来ることを紹介した。本節ではそのような装置の一例として SSB 変調器の原理について補足する。

まず、SSB 変調器の概念図を図 A.7 に示す。SSB 変調器は、メインの Mach-Zehnder (MZ) 導波路

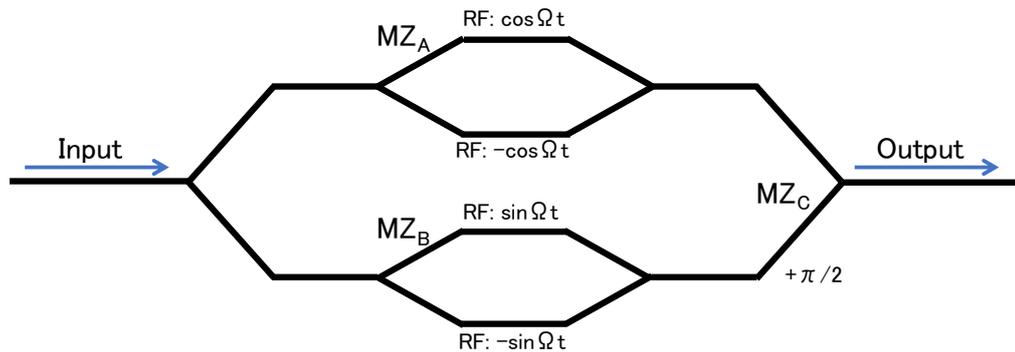


図 A.7 SSB 変調器の概念図

MZ_C に対して、2つのサブの MZ 導波路 MZ_A、MZ_B が並列につながれた構成をしている。各 MZ 導波路は EOM の 1 種であり、電圧を印加することにより 2 つの光路に位相差を生じさせることが出来る。ここで、MZ_A 周波数 Ω の RF 電圧 : $m \cos \Omega t$ を印加し、MZ_B に対してはそのヒルベルト変換を取った

$m \sin \Omega t$ を印加する。また、 MZ_C には DC 電圧を印加して MZ_B を通過した光のみに $\frac{\pi}{2}$ の位相差を加える。このとき、入力光の電場が $E_{in} A \exp(i\omega t)$ で表されるとき、SSB 変調器の出力光の電場 E_{out} は、

$$\begin{aligned} E_{out} &= \frac{A}{4} e^{i\omega t} \left[\{e^{im \cos \Omega t} + e^{-im \cos \Omega t}\} + \{e^{im \sin \Omega t} + e^{-im \sin \Omega t}\} e^{i\frac{\pi}{2}} \right] \\ &= \frac{A}{2} e^{i\omega t} [J_{-3}(m)e^{-3i\Omega t} + J_1(m)e^{i\Omega t}] + \dots \end{aligned} \quad (A.79)$$

のように表すことが出来る。なお、4 次以上の項は無視した。変調深さ m が 1 より十分大きくはない場合、3 次の項も無視して (A.79) 式は

$$E_{out} \simeq \frac{A}{2} J_1(m) e^{i(\omega+\Omega)t} \quad (A.80)$$

のように表すことが出来る。すなわち、SSB 変調器からの出力光は事実上単一周波数とみなすことができ、SSB 変調器に加える RF 周波数 Ω を時間変化させることによって、出力光の周波数シフトを達成することが出来る。

本節では SSB 変調器を紹介したが、これは位相変調器を 4 つ組み合わせることによっても等価な装置を構成することが出来る。

謝辞

指導教員である浅井祥仁教授には興味深い研究テーマを提供して頂きました。また、日頃からミーティングなどを通して研究全般に関して助言・指導して下さい、研究活動を暖かく見守って頂きました。

東京大学の五神真総長には実験環境や数々の光学技術を提供していただき、レーザー開発にあたって手厚い援助・協力をして下さっています。

東京大学工学部の吉岡孝高准教授には、実験装置・場所の提供から実験方針の相談に至るまで全面的に協力を頂いております。光学に関して全く無知であった私に丁寧かつ熱心な指導をして下さり、また、多くの貴重なアイデアを提供して頂きました。

産業技術総合研究所の鈴木良一首席研究員、大島永康主任研究員、Brian Eugene O' Rourke 主任研究員は陽電子源開発にご尽力して下さい、挑戦的な課題の達成に向けて手厚く懇切なご協力を頂いております。

九州大学の藤野茂教授はポジトロニウムを生成するシリカガラスの製作をして下さっています。困難な要求に対して貴重な技術とアイデアを提供して頂いております。

素粒子物理国際研究センターの難波俊雄助教には研究の進め方、考え方に関して基礎から丁寧にご指導を頂きました。

浅井研究室の石田明助教は日頃から研究内容を気にかけて頂き、基本的なところから親身に指導をして下さりました。

浅井研究室の周健治さんはポジトロニウムの BEC プロジェクト全体を推進していらっしゃいます。共同研究者として、先輩として、多くの相談に乗って頂きました。

元浅井研究室（現 Harvard 大）の樊星さんは、右も左も分からなかった私に対して、自身の研究活動の合間を縫って光学実験の基礎から研究の進め方に至るまで熱心に指導して下さいました。

吉岡研究室の蔡恩美助教には、実験の相談や物品の購入に至るまで、親身に対応して頂きました。

五神・湯本・井手口研究室の森田悠介助教には実験部品の購入手続きをして頂き、ご支援を賜りました。理学部フォトンサイエンス研究機構の大間知潤子特任助教は、実験装置の扱い方の指導や、実験についての助言をして頂きました。

元五神研究室の夏沛宇さんは、身近な先輩として親切に実験の相談に乗って頂きました。

tabletop 実験グループの稲田聡明博士、山道智博さん、清野結大さん、上岡修星さん、元特任研究員（現 KEK）の山崎高幸博士には、日頃のミーティングでの議論で貴重なご指摘やアイデアを頂きました。

大塚茂己氏をはじめとする試作室の皆さまには、多くの実験装置の加工を行って頂きました。材料や加工方法の相談にも丁寧に対応して頂きました。

素粒子センター秘書室の皆さま、物理事務・教務の方々は学生生活や研究活動に必要な諸手続きをして頂きました。私が研究活動に勤しむことが出来たのは皆さまのご支援あってのことです。

その他、数えきれないほど多くの方々のご協力・援助を賜りました。この場を借りて深く感謝いたします。

参考文献

- [1] A. H. Al-Ramadhan and D. W. Gidley. New precision measurement of the decay rate of singlet positronium. *Physical Review Letters*, 72(11):1632–1636, March 1994.
- [2] Y. Kataoka, S. Asai, and T. Kobayashi. First test of $O(\alpha^2)$ correction of the orthopositronium decay rate. *Physics Letters B*, 671(2):219–223, Jan 2009.
- [3] Christopher J Pethick and Henrik Smith. *Bose-Einstein condensation in dilute gases*. Cambridge university press, 2002.
- [4] Wolfgang Ketterle and Hans-Joachim Miesner. Coherence properties of Bose-Einstein condensates and atom lasers. *Phys. Rev. A*, 56:3291 – 3293, Oct 1997.
- [5] M. R. Andrews, C. G. Townsend, H.-J. Miesner, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle. Observation of interference between two Bose condensates. *Science*, 275(5300):637 – 641, 1997.
- [6] M. H. Anderson, J. R. Ensher, M. R. Matthews, C. E. Wieman, and E. A. Cornell. Observation of Bose-Einstein condensation in a dilute atomic vapor. *Science*, 269(5221):198–201, 1995.
- [7] K. B. Davis, M.-O. Mewes, M. R. Andrews, N. J. van Druten, D. S. Durfee, D. M. Kurn, and W. Ketterle. Bose-Einstein condensation in a gas of sodium atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 75:3969–3973, Nov 1995.
- [8] Dale G. Fried, Thomas C. Killian, Lorenz Willmann, David Landhuis, Stephen C. Moss, Daniel Kleppner, and Thomas J. Greytak. Bose-Einstein condensation of atomic hydrogen. *Physical Review Letter*, 81(18):3811–3814, Nov 1998.
- [9] Kosuke Yoshioka, Eunmi Chae, and Makoto Kuwata-Gonokami. Transition to a Bose-Einstein condensate and relaxation explosion of excitons at sub-Kelvin temperatures. *Nature Communications*, 2:328, 05 2011.
- [10] P. M. Platzman and A. P. Mills. Jr. Possibilities for Bose condensation of positronium. *Physical Review B*, 49:454 – 458, Jan 1994.
- [11] Sebastiano Mariazzi, Paolo Bettotti, and Roberto S. Brusa. Positronium cooling and emission in vacuum from nanochannels at cryogenic temperature. *Physical Review Letters*, 104(243401), June 2010.
- [12] D. B. Cassidy and A. P. Mills Jr. The production of molecular positronium. *Nature*, 449(195-197), Sep 2007.
- [13] Vladimir Vanyashin. Coherent decay of positronium Bose condensate. *Letters in Mathematical*

- Physics*, 31(2):143–149.
- [14] H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, and G. F. Mkrtchian. Gamma-ray laser based on the collective decay of positronium atoms in a Bose-Einstein condensate. *Physical Review A*, 92(023820), August 2015.
- [15] David B. Cassidy and Allen P. Mills Jr. Physics with dense positronium. *Phys. stat. sol.*, 4(10):3419–3428, July 2007.
- [16] M. Charlton and J. W. Humberston. *Positron Physics*. December 2000.
- [17] Y. Nagashima, Y. Morinaka, T. Kurihara, Y. Nagai, T. Hyodo, T. Shidara, and K. Nakahara. Origins of positronium emitted from SiO₂. *Physical Review B*, 58(19), Nov 1998.
- [18] Rei Kitamura, Laurent Pilon, and Mirosław Janasz. Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature. *Applied Optics*, 46(33):8118–8133, 2007.
- [19] D. B. Cassidy, M. W. Bromley, L. C. Cota, T. H. Hisakado, H. W. Tom, and A. P. Mills Jr. Cavity induced shift and narrowing of the positronium Lyman- α transition. *Physical Review Letters*, 106(023401), Jan 2011.
- [20] K. Shu, X. Fan, T. Yamazaki, T. Namba, S. Asai, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami. Study on cooling of positronium for Bose - Einstein condensation. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 49(10):104001, 2016.
- [21] 周健治. ボース・アインシュタイン凝縮実現を目指したポジトロニウム冷却の研究. 修士学位論文, 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻, 2017.
- [22] A. I. Alekseev. Two-photon annihilation of positronium in the p-state. *Sov. Phys. JETP*, 34:826–830, 1958.
- [23] A. I. Alekseev. Three-photon annihilation of positronium in the p-state. *Sov. Phys. JETP*, 36:1312–1315, 1959.
- [24] Christopher J. Foot. *Atomic Physics*. Oxford University Press, 2005.
- [25] Y. Nagashima, M. Kakimoto, T. Hyodo, K. Fujiwara, A. Ichimura, T. Chang, J. Deng, T. Akahane, T. Chiba, K. Suzuki, B. T. A. McKee, and A. T. Stewart. Thermalization of free positronium atoms by collisions with silica-powder grains, aerogel grains, and gas molecules. *Phys. Rev. A*, 52:258–265, Jul 1995.
- [26] 株式会社ハナムラオプティクス. Ti:sapphire 結晶 (チタンサファイア結晶). <http://www.hanamuraoptics.com/lasercrystal/csi/csi.htm>. 2017年12月22日アクセス.
- [27] P. F. Moulton. Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al₂O₃. *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 3:125–133, January 1986.
- [28] T.W. Hansch and B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Optics Communications*, 35(3):441 – 444, 1980.
- [29] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B*, 31:97–105, June 1983.

- [30] 坪井瑞輝. 深紫外シングルモード全固体レーザーの開発と高速応答中性子シンチレーター開発への応用. PhD thesis, 大阪大学 大学院工学研究科, 2017.
- [31] 時田茂樹. 固体レーザー設計の基礎と実際. http://www.ile.osaka-u.ac.jp/project/LSS/2013LSS/download/LSS2013_tokita_sensei.pdf. 2018年1月16日アクセス.
- [32] Lee M. Frantz and John S. Nodvik. Theory of pulse propagation in a laser amplifier. *Journal of Applied Physics*, 34(8):2346 – 2349, August 1963.
- [33] P. Georges, F. Estable, F. Salin, J. Philippe Poizat, P. Grangier, and A. Brun. High-efficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continuous-wave single-mode laser. *Optics Letters*, 16:144–146, February 1991.
- [34] K. F. Wall, R. L. Aggarwal, R. E. Fahey, and A. J. Strauss. Small-signal gain measurement in a Ti:Al₂O₃ amplifier. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 24:1016–1020, June 1988.
- [35] 内藤兼行. 10fs 超短パルスレーザーポンプ・プローブ計測システムを用いた固体-プラズマ遷移の研究. <http://www.ils.uec.ac.jp/yellow/2008y/yellow/YM/naitoY.pdf>. 2018年1月15日アクセス.
- [36] ヤリーヴ-イェー. 光エレクトロニクス 展開編 原書 6版. 丸善出版, 2014.
- [37] 株式会社ダウ. 非線形光学結晶. http://www.dhow.jp/new_page_2.htm. 2017年12月29日アクセス.
- [38] 佐山周次. 掃引可能な紫外連続コヒーレント光発生に関する研究. PhD thesis, 東京工業大学, 1997.
- [39] ヤリーヴ-イェー. 光エレクトロニクス 基礎編 原書 6版. 丸善出版, 2014.
- [40] 浜松ホトニクス. Si pin フォトダイオード s5821-20. <https://www.hamamatsu.com/jp/ja/product/alpha/KSHI/4103/S5821-02/index.html>. 2017年12月22日アクセス.
- [41] K. Harada, T. Aoki, S. Ezure, K. Kato, T. Hayamizu, H. Kawamura, T. Inoue, H. Arikawa, T. Ishikawa, T. Aoki, A. Uchiyama, K. Sakamoto, S. Ito, M. Itoh, S. Ando, A. Hatakeyama, K. Hatanaka, K. Imai, T. Murakami, H. S. Nataraj, Y. Shimizu, T. Sato, T. Wakasa, H. P. Yoshida, and Y. Sakemi. Laser frequency locking with 46 GHz offset using an electro-optic modulator for magneto-optical trapping of francium atoms. *Applied Optics*, 55:1164, February 2016.
- [42] Motonobu Kouroggi, Ken'ichi Nakagawa, Motoichi Ohtsu, and Senior Member. Wide-span optical frequency comb generator for accurate optical frequency difference measurement. *IEEE journal of quantum electronics*, 29(10):2693 – 2701, October 1993.
- [43] D. B. Cassidy, S. H. M. Deng, R. G. Greaves, and A. P. Mills. Accumulator for the production of intense positron pulses. *Review of Scientific Instruments*, 77(7):073106–073106–8, July 2006.
- [44] K. Wada, T. Hyodo, A. Yagishita, M. Ikeda, S. Ohsawa, T. Shidara, K. Michishio, T. Tachibana, Y. Nagashima, Y. Fukaya, M. Maekawa, and A. Kawasuso. Increase in the beam intensity of the linac-based slow positron beam and its application at the Slow Positron Facility, KEK. *European Physical Journal D*, 66:37, February 2012.
- [45] D. Abbott, P. Adderley, A. Adeyemi, P. Aguilera, M. Ali, H. Areti, M. Baylac, J. Benesch, G. Bosson, B. Cade, A. Camsonne, L. S. Cardman, J. Clark, P. Cole, S. Covert, C. Cuevas,

- O. Dadoun, D. Dale, H. Dong, J. Dumas, E. Fanchini, T. Forest, E. Forman, A. Freyberger, E. Froidefond, S. Golge, J. Grames, P. Guèye, J. Hansknecht, P. Harrell, J. Hoskins, C. Hyde, B. Josey, R. Kazimi, Y. Kim, D. Machie, K. Mahoney, R. Mammei, M. Marton, J. McCarter, M. McCaughan, M. McHugh, D. McNulty, K. E. Mesick, T. Michaelides, R. Michaels, B. Moffit, D. Moser, C. Muñoz Camacho, J.-F. Muraz, A. Opper, M. Poelker, J.-S. Réal, L. Richardson, S. Setiniyaz, M. Stutzman, R. Suleiman, C. Tennant, C. Tsai, D. Turner, M. Ungaro, A. Variola, E. Voutier, Y. Wang, Y. Zhang, and PEPPo Collaboration. Production of Highly Polarized Positrons Using Polarized Electrons at MeV Energies. *Physical Review Letters*, 116(21):214801, May 2016.
- [46] Y. Kuzuya, N. Oshima, A. Kinomura, A. Yabuuchi, K. Sato, and Q. Xu. Evaluation of the optical performance of a brightness enhancement system developed for the KUR slow positron beamline. In *Journal of Physics Conference Series*, volume 791 of *Journal of Physics Conference Series*, page 012012, January 2017.
- [47] N. Oshima, R. Suzuki, T. Ohdaira, A. Kinomura, T. Narumi, A. Uedono, and M. Fujinami. Development of positron microbeam in AIST. *Materials Science Forum*, 607:238–242, Nov 2008.
- [48] K. Shu, T. Murayoshi, X. Fan, A. Ishida, T. Yamazaki, T. Namba, S. Asai, K. Yoshioka, M. Kuwata-Gonokami, N. Oshima, B. E. O'Rourke, and R. Suzuki. Study on Bose-Einstein condensation of positronium. In *Journal of Physics Conference Series*, volume 791 of *Journal of Physics Conference Series*, page 012007, January 2017.
- [49] Hiroshi Ikeda, Shigeru Fujino, and Toshihisa Kajiwara. Fabrication of Micropatterns on Silica Glass by a Room-Temperature Imprinting Method. *Journal of the American Ceramic Society*, 94(8):2319–2322, Mar 2011.
- [50] 平井義彦. ナノインプリンティング法によるナノ構造体の創成. *精密工学会誌*, 70(10):1223–1227, 2004.
- [51] R. Kitamura, L. Pilon, and M. Jonasz. Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature. *Applied Optics*, 46:8118–8133, November 2007.
- [52] M. A. Khashan and A. Y. Nassif. Dispersion of the optical constants of quartz and polymethyl methacrylate glasses in a wide spectral range: 0.2-3 μm . *Optics Communications*, 188:129–139, February 2001.
- [53] E. C. Beder, C. D. Bass, and W. L. Shackelford. Transmissivity and absorption of fused quartz between 0.22 μm and 3.5 μm from room temperature to 1500 degree C. *Applied Optics*, 10:2263–2268, October 1971.
- [54] D. F. Heath and P. A. Sacher. Effects of a simulated high-energy space environment on the ultraviolet transmittance of optical materials between 1050 A and 3000 A. *Applied Optics*, 5:937, June 1966.
- [55] マイサイエンス株式会社. 低振動用冷凍機型クライオスタット (SHI-4XG シリーズ). <https://www.mysci.co.jp/mureibai-shi4xg>. 2018年1月9日アクセス.
- [56] 株式会社ネオトロン. BBO. <http://www.neotron.co.jp/crystal/8.html>. 2018年1月2日アクセス.

-
- [57] GAMDOM OPTICS. KDP. <http://gamdan.com/KDP>. 2018 年 1 月 2 日アクセス.