修士学位論文

ボース・アインシュタイン凝縮を目指した ポジトロニウム高速冷却光源の開発

Development of a cooling laser
for positronium 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

山田恭平

令和 2 年 1 月

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からなる束縛系であり、最軽量の原子である。そのボース・アインシュタイン凝縮 (BEC) は Ps の軽量さに由来する高い BEC 転移温度と、生成の容易さから反物質を含む系として世界初の BEC の有力候補である。Ps-BEC の最大の問題は Ps の 142 ns と短い寿命である。そのため BEC の実現には高速な Ps 冷却が不可欠であり、低温環境に閉じ込めた Ps にレーザー冷却を適用することによる高速冷却が提案された。

本研究で Ps を高速に冷却するためのレーザー光源の開発を行った。Ps を効率よく冷却するためには 243 nm・長パルス・広帯域・高速チャープという性質が必要であり、本研究では Frequency Comb Generator を応用した新しい光学システムの開発を行い、全ての性質を備える Ps 冷却レーザー光源の原理を実証した。また、光源の性質について一般的な条件での数値計算を行い、実験結果との一致が見られた。Ps 冷却のために本研究で実証された長パルス・広帯域・高速チャープ光源は、時間幅やスペクトルプロファイルを調整可能である上、他では見られない高速なチャープ速度が得られる全く新しい光源である。光源の帯域とチャープ速度について定式化することもできたため、他の研究に応用する場合光学系の設計も容易である。

今後の展望として、パルスエネルギーの向上及びレーザーの帯域の拡大により冷却性能の向上を行い、本研究で実証された Ps 冷却レーザーによる世界初の Ps レーザー冷却の実証を行う。

Glossary

記号

i	虚数単位
c	光速 299 792 458 [m/s]
$\mathcal{F}$	Finesse フィネス
T	Cavity round-trip time [s]
f	レーザー周波数 [Hz]
ω	レーザー角周波数 [rad/s] ($\omega = 2\pi f$)
f_m	変調周波数 [Hz]
Ω	変調角周波数 [rad/s] ($\Omega = 2\pi f_m$)
β	変調深さ [rad]
$J_\nu(\beta)$	第 1 種ベッセル関数
n	屈折率
J_{in}	入力フルーエンス [J/cm^2]
J_{out}	出力フルーエンス [J/cm^2]
J_s	飽和フルーエンス [J/cm^2]

略語

Ps	Positronium
o-Ps	ortho-Positronium
p-Ps	para-Positronium
BEC	Bose-Einstein Condensation
FCG	Frequency Comb Generator
LD	Laser Diode
ECDL	External Cavity Diode Laser
PZT	Piezoelectric actuator, Pb(Zr, Ti)O_3
PD	Photo Detector
Ti:S	Ti:Sapphire crystal
BS	Beam Splitter
PBS	Polarization Beam Splitter
HBS	Half Beam Splitter
HWP	Half Wave Plate (1/2 波長板、$\lambda/2$)
QWP	Quater Wave Plate (1/4 波長板、$\lambda/4$)
ND	Neutral Density filter
EOM	Electro-Optical Modulator (電気光学変調器)
FSR	Free Spectrum Range
FWHM	Full Width at Half Maximum
SHG	Second Harmonics Generation
THG	Third Harmonics Generation
SFG	Sum Frequency Generation
OPO	Optical Parametric Oscillator

目次

概要 ii

Glossary iii

第 1 章 Introduction 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
1.2.1 ポジトロニウムのボースアインシュタイン凝縮 . . . 2
1.3 Ps-BEC の実現方法 . . . 3
1.3.1 ドップラー冷却の原理 . . . 4
1.3.2 ポジトロニウムのドップラー冷却 . . . 4
1.4 本論文の構成 . . . 6

第 2 章 ポジトロニウム冷却レーザーの構築 8
2.1 設計 . . . 8
2.2 シードレーザー . . . 12
2.2.1 ECDL とは . . . 12
2.2.2 雑音対策 . . . 12
2.2.3 性能評価 . . . 13
2.3 Frequency Comb Generator . . . 16
2.3.1 光共振器 . . . 17
2.3.2 Ti:Sapphire 結晶 . . . 19
2.3.3 制御系 . . . 20
2.3.4 共振器上流及び下流 . . . 21
2.3.5 サイドバンド生成系 . . . 23
2.3.6 EOM の共鳴周波数と共振器の FSR の調整 . . . 24
2.3.7 EOM のパルス駆動 . . . 27
2.4 パルススペクトル測定系 . . . 30
2.4.1 パルススペクトル測定器の性能評価 . . . 31
2.5 マルチパス Ti:Sapphire 増幅器 . . . 35
2.5.1 Ti:Sapphire 結晶 . . . 35
2.5.2 ポンプレーザー . . . 36
2.5.3 ポンプレーザーのアラインメント . . . 36

2.5.4 729 nm パルスのアラインメント . . . 37
2.5.5 ビーム径 . . . 38
2.6 波長変換 . . . 39

第 3 章 Frequency Comb Generator の理論計算 42
3.1 定常 Frequency Comb Generator の理論計算 . . . 42
3.2 非定常 Frequency Comb Generator の数値計算 . . . 44
3.2.1 方針 . . . 45
3.2.2 setup . . . 45
3.2.3 近似の条件 . . . 46
3.2.4 初期条件 . . . 46
3.2.5 時間発展 . . . 46
3.3 結果 . . . 48
3.3.1 時間波形と定常 FCG . . . 48
3.3.2 理想的な条件: 広帯域・長時間幅かつ、高速なチャープが得られる . . . 49
3.4 まとめ . . . 51

第 4 章 結果 53
4.1 長時間幅のレーザーパルスの観測 . . . 54
4.2 変調周波数の調整と広帯域なスペクトルの観測 . . . 54
4.3 高速な光周波数チャープの観測 . . . 56
4.4 THG により 243 nm 広帯域長時間幅の Ps 冷却レーザーを実現した . . . 59
4.5 まとめ . . . 60

第 5 章 Ps 冷却レーザーの展望 62
5.1 パルスエネルギーと時間幅 . . . 62
5.2 帯域とチャープ速度 . . . 64
5.3 まとめ . . . 65

第 6 章 まとめ 67

付録 A Frequency Comb Generator の数値計算と実験の比較 68
A.1 数値計算の実験との比較 . . . 68
A.2 周波数広がりとその変調深さ依存性 . . . 69
A.3 周波数広がりとその変調周波数依存性 . . . 70
A.4 チャープ速度とその変調深さ依存性 . . . 71
A.5 まとめ . . . 73

付録 B 非理想的な条件での数値計算 75
B.1 非理想的な条件: 変調周波数 f_m と共振器の FSR がずれている場合 . . . 75
B.2 非理想的な条件: 片側だけサイドバンドを立てることが可能 . . . 75

付録 C　非線形結晶を用いた高次高調波生成　77
C.1　非線形結晶による和周波生成　77
C.2　効率の良い和周波生成のために調整すべきパラメーター　77
C.3　実験上の工夫　79
謝辞　81
参考文献　84

図目次

1.1 原子数密度と BEC 転移温度の関係 . . . 2
1.2 Ps-BEC 原子干渉計を用いた電子・陽電子対称性精密検証の模式図 . . . 3
1.3 ガンマ線レーザー発生の模式図 . . . 3
1.4 ドップラー冷却の原理 . . . 5
1.5 Ps の温度変化のシミュレーション . . . 7

2.1 冷却レーザーシステムの写真 . . . 10
2.2 冷却レーザーの概略図 . . . 11
2.3 ECDL の内部の写真 . . . 13
2.4 I-P curve: ECDL の印加電流と出力パワーの関係 . . . 14
2.5 ECDL の出力周波数と環境変化の関係 . . . 15
2.6 Frequency Comb Generator の写真 . . . 16
2.7 モードマッチング後のビームプロファイル . . . 19
2.8 Ti:Sapphire 結晶の吸収断面積スペクトル . . . 20
2.9 Ti:Sapphire 結晶の誘導放出断面積スペクトル . . . 20
2.10 Minilite の出力エネルギー . . . 20
2.11 Ti:Sapphire 結晶上でのビーム径 . . . 20
2.12 制御系の模式図 . . . 21
2.13 光共振器周りの光学系 . . . 22
2.14 EOM の写真 . . . 24
2.15 EOM 非駆動時のスペクトルと EOM 駆動時のスペクトル . . . 24
2.16 図 2.15の拡大図 . . . 24
2.17 変調深さ β と EOM 印加電圧の関係 . . . 25
2.18 EOM ドライバーの周波数安定性 . . . 26
2.19 VNA による EOM の共鳴回路周波数特性の測定結果 . . . 27
2.20 EOM の音響振動による入射レーザーの分裂 . . . 27
2.21 EOM 駆動系のタイミング図 . . . 28
2.22 EOM が十分長時間駆動できていることの証拠 . . . 28
2.23 EOM 駆動システムの模式図 . . . 29
2.24 パルススペクトル測定系の写真 . . . 30
2.25 エタロンの写真 . . . 31
2.26 CCD カメラの写真 . . . 31

2.27 エタロンによる干渉縞 . . . 32
2.28 CCD カメラで撮影したエタロンによる干渉縞 . . . 32
2.29 分光器のレスポンスの測定結果 . . . 32
2.30 ECDL の周波数を変化させながら分光器でスペクトルを測定した結果 . . . 33
2.31 高精度波長系を用いた周波数広がり評価の較正 . . . 34
2.32 干渉縞の位置と幅の関係 . . . 34
2.33 マルチパス増幅系の写真 . . . 36
2.34 マルチパス増幅系のポンプレーザーの伝搬の模式図 . . . 37
2.35 マルチパス増幅系のビームの伝搬 . . . 38
2.36 3 次高調波生成系の写真 . . . 39
2.37 3 次高調波生成後のレーザーを回折格子に当てて分光しスクリーンに当てた結果 . . . 40
2.38 3 次高調波生成後のレーザーを pellin broca prism で分光しスクリーンに当てた結果 . . . 40
2.39 3 次高調波生成時の光スペクトル . . . 41

3.1 第 1 種ベッセル関数の性質 . . . 44
3.2 第 1 種ベッセル関数の最大値を与える次数 . . . 44
3.3 定常 FCG に達するまでの時間発展 . . . 48
3.4 定常 FCG から定期的に短パルスが出力されている様子 . . . 49
3.5 定常 FCG の短パルスを拡大したもの . . . 49
3.6 定常 FCG のスペクトル . . . 49
3.7 定常 FCG のスペクトルを拡大したもの . . . 49
3.8 非定常 FCG の時間波形 . . . 50
3.9 長時間幅のパルス全体のスペクトル . . . 50
3.10 長時間幅のパルスを構成する短パルスのスペクトルの時間変化 . . . 51
3.11 数値計算によって得られた短パルスのチャープ速度 . . . 51

4.1 PD によるレーザーパルスの波形測定箇所 . . . 53
4.2 スペクトル測定箇所 . . . 54
4.3 長時間幅のレーザーパルス波形 . . . 55
4.4 変調周波数を変化させて測定したパルスのスペクトル . . . 56
4.5 パルススペクトルの変調周波数依存性と変調深さの変調周波数依存性 . . . 57
4.6 光周波数チャープ測定時の時間波形 . . . 58
4.7 光周波数チャープ測定時のスペクトル波形 . . . 58
4.8 レーザースペクトルの左右のピーク周波数の時間依存性 . . . 59
4.9 243 nm パルスと 729 nm パルスの時間波形 . . . 60
4.10 図 4.9 の時の 729 nm パルスのスペクトル . . . 60

5.1 243 nm パルスの光共振器中のポンプレーザーパルスエネルギー依存性 . . . 63
5.2 Hybrid EOM . . . 65
5.3 将来の非定常 FCG の概略図 . . . 65

A.1 長パルス光スペクトルの EOM の変調深さ依存性 69
A.2 スペクトル広がりの変調周波数依存性 70
A.3 光周波数チャープ測定時のスペクトル波形 72
A.4 ピークにより評価したチャープ速度の変調深さ依存性 73
A.5 面積により評価したチャープ速度の変調深さ依存性 73

B.1 EOM の変調周波数をずらした時のスペクトルの応答 76
B.2 変調周波数のずれと cut off 周波数の関係 76
B.3 片側のみのサイドバンド生成 76
B.4 片側にだけサイドバンドを立てるメカニズムの模式図 76

C.1 和周波生成時に調整する必要のあるパラメーター 78

表目次

1.1 Ps-BEC を実現するための冷却レーザーの要求値 . . . 6
1.2 Ps に関するシミュレーションの条件 . . . 6

2.1 ECDL を構成する素子 . . . 13
2.2 ECDL の達成性能 . . . 14
2.3 光共振器のスペック . . . 18
2.4 Ti:Sapphire 共振器を構成するミラーのスペック . . . 18
2.5 EOM のスペック . . . 24
2.6 EOM 駆動系の構成要素 . . . 27
2.7 シングルパルススペクトル観測に用いたシグマ光機製エアギャップ型 Fabry-Pérot Etalon のスペック . . . 31
2.8 CCDcamera のスペック . . . 31
2.9 Ti:Sapphire 結晶のスペック . . . 35
2.10 マルチパス増幅系に用いた光学素子 . . . 35
2.11 マルチパス増幅器のポンプレーザー部分光学素子の損傷閾値の一覧 . . . 37
2.12 3 次高調波生成系に用いた光学素子 . . . 40

3.1 自由パラメーター . . . 45
3.2 光共振器のパラメーター . . . 45
3.3 重要な従属パラメーター . . . 46

4.1 レーザーの時間波形測定のために用いたフォトディテクター . . . 53
4.2 実現した Ps 冷却レーザーのスペックと Ps-BEC の要求値 . . . 60

5.1 Ps 冷却レーザーシステムの改善内容 . . . 66
5.2 将来の Ps 冷却レーザーのスペックと Ps-BEC の要求値 . . . 66

C.1 和周波生成時のパラメーターの要求調整精度 . . . 78

第 1 章

Introduction

1.1 ポジトロニウム

ポジトロニウム (Positronium, Ps) は電子・陽電子の束縛系で、質量 $m_{Ps} = 1022$ keV/c^2 の最軽量の原子である。Ps は電子と陽電子の対消滅によって光子へと崩壊するため、有限の寿命を持った不安定原子である。光子への崩壊様式はポジトロニウム のスピンによって異なる。電子・陽電子共に spin 1/2 のフェルミオンであるため、その合成粒子である Ps はスピン 0 または 1 のボソンである。スピン 0 の Ps を p-Ps(パラポジトロニウム)、スピン 1 の Ps を o-Ps(オルソポジトロニウム) と呼ぶ。以下、主量子数 n=1 の基底状態について考える。Ps の電荷共役変換演算子 C に対する固有値はポジトロニウムのスピン S と軌道角運動量 L(基底状態では L=0) を用いて

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

一方、光子に対する C の固有値は、光子数 n を用いて

$$C = (-1)^n \tag{1.2}$$

と書ける。電子陽電子の対消滅では C の固有値は保存するので、p-Ps は偶数個の光子に崩壊し o-Ps は奇数個の光子に崩壊する。崩壊する光子の個数が多くなるほどその確率は小さくなるので、p-Ps の主な崩壊モードは 2 光子崩壊であり、o-Ps の主な崩壊モードは 3 光子崩壊である。Ps の崩壊率は精密測定がなされており、p-Ps の崩壊率は 7990.9±1.7 μs^{-1}[1](寿命 125.14 ps) である。o-Ps の崩壊率は 7.0401(7) μs^{-1}[2](寿命 142.04 ns)、o-Ps の方が寿命が約 1000 倍長く、外部から様々な操作が可能となる。したがって、本研究では o-Ps のボース・アインシュタイン凝縮を実現することを目指す。以下、特に断りのない限り Ps 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 (Bose-Einstein condensation, BEC) は高密度なボース粒子集団を低温まで冷却した時に巨視的な数の粒子が単一の基底状態を占める様になる現象である。ボース粒子の密度が n のと

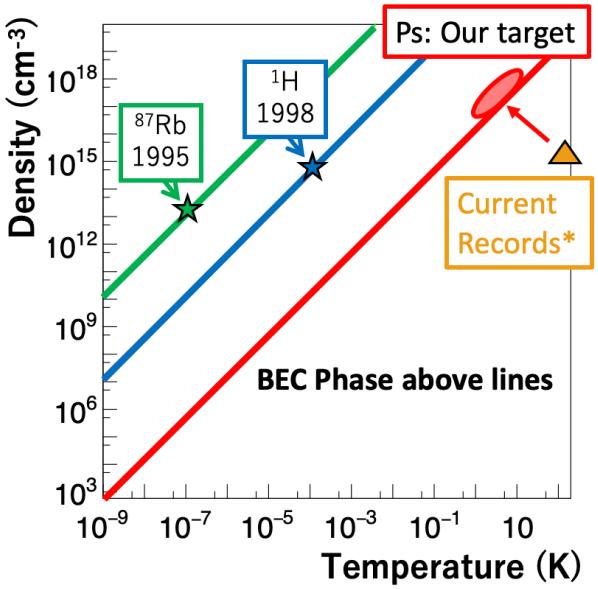


図 1.1 原子数密度と BEC 転移温度の関係。線より上が BEC 領域である。現状達成されている最低温度は 150 K[6] であり最高密度は 10^{15} cm^{-3} [7] である。これらはぞれぞれ独立に達成されており、本研究の目標値は 10^{17} cm^{-3} かつ 10 K である。

き、BEC 転移が起こる転移温度 T_c は次式で与えられる。

$$T_c = \frac{h^2}{2\pi m k_B}\left(\frac{n}{\zeta(3/2)}\right)^{\frac{2}{3}} \tag{1.3}$$

h : プランク定数、m : 原子質量、k_B : ボルツマン定数、$\zeta(3/2) = 2.612$: リーマンのゼータ関数

BEC はレーザーの様なコヒーレンスをもつ [3]、レーザー状態の原子である。BEC はマクロな波動関数で記述することができ、BEC 全体が位相の揃った一つの物質波として振る舞う。

1.2.1 ポジトロニウムのボースアインシュタイン凝縮

希薄原子気体においては BEC は 1995 年に初めて実現された [4, 5]。しかし、反物質を含む系において BEC は未だ実現された例がない。ポジトロニウム (Ps) の BEC は、反物質を含む系として初めての BEC 実現の有力候補である。以下の 2 点がその理由である。

- 質量が軽く、BEC 転移温度が高い。
- 放射性同位体の崩壊やガンマ線による電子・陽電子対生成により陽電子を得、それによってポジトロニウムを生成することができるため、他の反物質原子系と比べて生成及び高密度化が容易である。

現状達成されている Ps の最低温度と最高密度を図 1.1に示す。

Ps-BEC は反物質系で初の BEC であるということだけではなく、Ps-BEC を応用した基礎物理学の検証や、Ps-BEC の産業応用も提案されている。Mach-Zehnder 干渉計を用いて Ps に働く重力を精密に測定することができる [8]。模式図を図 1.2に示す。電子に働く重力効果は既知であるため、その効果を差し引けば陽電子に働く重力効果を測定する事ができ、粒子・反粒子に対する重力相互作用の精密測定を行う事ができる。

また、Ps に特有の応用として Ps-BEC により 511 keV の世界初のガンマ線レーザーを実現できる可能性がある [8–10]。模式図を図 1.3に示す。BEC 状態の o-Ps を p-Ps に遷移させると、p-Ps は対消滅により協調的に 2 本の 511 keV のガンマ線に崩壊するので、511 keV のガンマ線レーザーを得る事ができる。この短波長レーザーを利用した、非破壊の微細構造検査の応用が期待される。

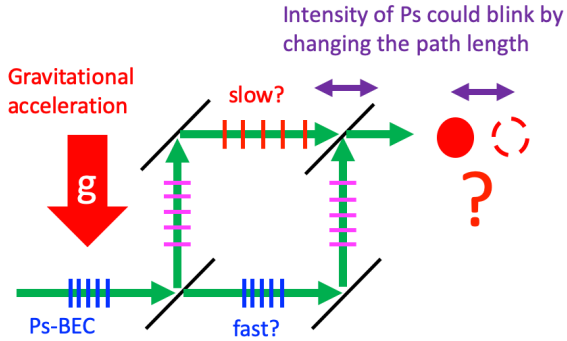


図 1.2　Ps-BEC 原子干渉計を用いた電子・陽電子対称性精密検証の模式図

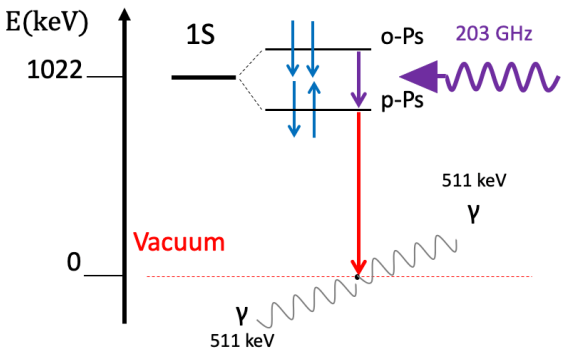


図 1.3　ガンマ線レーザー発生の模式図

また、Ps-BEC 実現のために行う Ps 冷却それ自体にも応用がある。Ps は反粒子を含む水素様原子でありその単純な構造のため、基礎物理学の検証に理想的な系である。Ps は純粋なレプトン系であるため束縛状態の QED の精密検証に用られており、例えば、Ps の 1S-2S 遷移周波数の精密な理論計算や精密測定が行われている [11, 12]。この精密測定においては、2 光子遷移によるドップラーフリーな測定が行われているが、不確かさには 2 次のドップラーシフトが大きく寄与しているため、Ps の冷却が実現されれば、より高精度な QED の検証が可能となる。

1.3　Ps-BEC の実現方法

本研究で目指す Ps-BEC の実現手法について述べる。これは [13] により提案されたものである。

- 瞬間的な (∼ 50ns) 高密度 Ps の生成 (∼ 10^{18} cm^{-3})。
- 高速な (∼ 300 ns)Ps 冷却 (∼ 10 K)

上記 2 つにより、300 ns の冷却後に 10^{17} cm^{-3} かつ 10 K の Ps を作り出し Ps-BEC を実現する。瞬間的な高密度 Ps の生成とその高速な冷却の方法について順に述べる。

瞬間的な高密度 Ps の生成

まず、ナノ秒陽電子ビームを用いる。それに対して、陽電子集束システムを組み合わせる事で、より高密度な陽電子ビームを生成する。高密度な陽電子ビームを Ps 生成材料に入射する。陽電子は生成材料 (シリカエアロゲル、ポーラス状のシリカ SiO_2) の電子と一定の確率で束縛して Ps を生成する。シリカエアロゲルは Ps 生成効率が約 50% である。シリカエアロゲルの Ps に対する仕事関数は負であるため [14]、生成された Ps は材料中の空孔中へと飛び出し、空孔中にトラップされる。空孔中に閉じ込められることにより Ps はより高密度化される。以上により、高密度 (∼ $10^{18}/cm^3$) な Ps の瞬間的 (∼ 50 ns) な生成を行う。

高速な Ps の冷却

シリカ空孔中に生成された Ps の初期温度は 6000 K である [15][1]。Ps 生成材料はあらかじめ 4 K まで冷凍機で冷却しておく。Ps は冷たいシリカと衝突を繰り返すことによって運動エネルギーを失い、熱平衡へと緩和していく。この Ps の冷却過程を熱化という。しかし、Ps の温度が下がるにつれ、Ps とシリカの衝突頻度は下がり冷却効率は下がっていく、そのため熱化のみでは Ps を BEC 転移温度にまで冷却することはできない。そこで、低温で冷却効率の高い Ps のレーザー冷却を併用する[2]。レーザー冷却光源としては Ps の 1S-2P 遷移波長である 243 nm の紫外レーザーを用いる。シリカは 243 nm の紫外光に対して透明であるため [16, 17]、シリカ空孔中に閉じ込められた Ps に対してもレーザー冷却を行う事が出来る。熱化とレーザー冷却により効率的に高速 ($\simeq$ 300 ns) な Ps の冷却を行い、Ps-BEC に十分な低温 (10 K) かつ高密度 ($\simeq 10^{17}$ cm^{-3}) な Ps の生成を行う。

1.3.1 ドップラー冷却の原理

本研究では、Ps のレーザー冷却として最も一般的なドップラー冷却を用いる。ドップラー冷却の原理について説明する。ドップラー冷却の原理を示す模式図を図 1.4に示す。原子の特定の遷移を用いてその励起と脱励起を繰り返すことによって原子の冷却を行う。冷却レーザーとしてはその遷移の共鳴周波数より少し周波数の小さい (エネルギーの小さい) ものを用いる。すると、ランダムに動き回る熱的な原子集団のうち、レーザーと対向する方向に運動する原子はドップラー効果により光のエネルギーを大きく感じ、光子を吸収して励起される。この時、原子は光の運動量分の反跳を受けて減速する。一方、レーザーと同方向に運動する原子については光のエネルギーが十分ではないので、遷移は起こらないため加速されることはない。

その後、原子は励起準位の寿命にしたがって元の準位へと脱励起して共鳴周波数の光を放出する。この時、光の放出する方向はランダムであるため Ps 集団全体として脱励起時の運動量変化はゼロである。従って、原子はレーザーによる励起と脱励起の 1 サイクルによって、平均してレーザーの 1 光子分の運動量を失う。この冷却サイクルを繰り返すことによって原子を冷却していく。

1.3.2 ポジトロニウムのドップラー冷却

ポジトロニウムのレーザー冷却は過去にシミュレーションによる検討や冷却レーザー構築の試みがなされている [18–20] ものの、実験的な実証は未だなされていない。

本研究では、Ps の 1S-2P 遷移 (243 nm = 1.23 PHz) を用いて冷却を行う。1S-2P 遷移を用いるのは、基底状態の Ps 冷却に用いるレーザーが 1 波長で良いため系が単純である上、ドップラー冷却限界が 21.2 mK と十分低く、冷却限界への到達時間も 173 ns と十分早い[3]ためである [18]。

1S-2P 遷移の自然幅はローレンツ広がりであり、その線幅は 2P 状態の寿命が τ で与えられる時に次式で与えられる。

$$\Delta f^{nat}_{\mathrm{FWHM}} = 1/2\pi\tau \tag{1.4}$$

Ps の 2P 準位の寿命は 3.2 ns であるため $\Delta f^{nat}_{\mathrm{FWHM}} \sim 50$ MHz である。また、ガウシアン広がりのドップ

[1] Ps のシリカエアロゲルに対する仕事関数 0.8 eV = 6000 K で決まっている
[2] Ps が高温の時には広帯域のレーザーが必要となるため、レーザーの帯域が一定の時低温の原子の方が冷却効率は高くなる
[3] 真空中で初期温度が室温を仮定している。

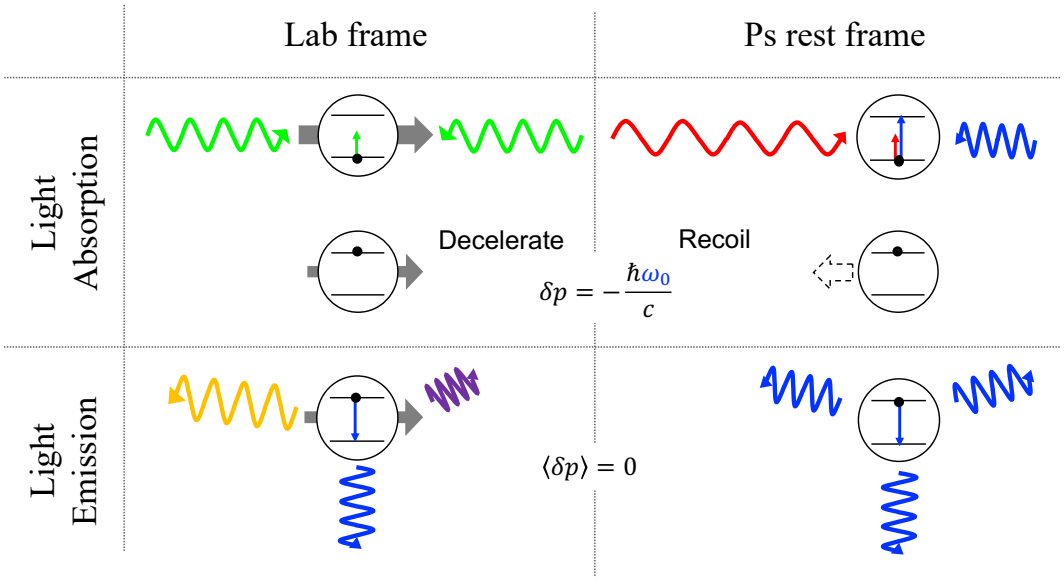


図 1.4　ドップラー冷却の原理

ラー幅は次で与えられる。

$$\Delta f_{FWHM}^{Doppler} = f_0 \sqrt{\frac{kT}{mc^2} 8 \ln 2} \tag{1.5}$$

$m_{Ps} = 1022$ keV/c^2 より、T=1000 K で $\Delta f_{\mathrm{FWHM}}^{Doppler} = 550$ GHz、T=300 K で $\Delta f_{\mathrm{FWHM}} = 300$ GHz である。

(1.5) 式 から分かる様に、Ps は質量が軽いのでドップラー広がりの効果が大きく水素原子と比べても約 30 倍である。したがって、Ps をレーザー冷却するためには周波数帯域の広いレーザー光源が必要である。また、Ps へのドップラー効果は大きいため、Ps が冷却され減速していくにしたがって共鳴周波数は大きく変化する[4]。従って冷却レーザーとしては高速な周波数シフトの性質を備えていることが理想的である。

また、ポジトロニウムは有限の崩壊寿命 (∼ 142 ns) を持つため効率的に冷却を行う必要があり、冷却レーザーとしてはポジトロニウムの寿命程度の時間にわたって 1S-2P 遷移を飽和させるだけのレーザーパワーを備えていることが望ましい。必要なレーザーパワーは自然幅だけを考慮すると、1S-2P の飽和強度は $I_{sat} = 1.4$ W/cm^2 である [18]。300 K におけるドップラー幅を考えると、1.4 W/cm$^2\times$ 300 GHz/50 MHz = 8.4 kW/cm^2 が必要である。このパワーで波長が 243 nm の CW レーザーを実現することは難しいので、パルスレーザーを用いることにすると、ポジトロニウムの崩壊寿命を考慮して、1.4 W/cm$^2\times$ 300 GHz/50 MHz $\times$ 142 ns = 1.2 mJ/cm^2 が必要である。243 nm でこのエネルギーのパルスレーザーを作ることは十分可能である。

したがって、Ps-BEC を目指した冷却レーザーとしては 243 nm で、Ps の崩壊寿命程度の時間幅を持ち、∼ 100 GHz のスペクトル幅を持ち、強度として 1.2 mJ/cm^2 程度のものが必要であることがわかる。

[4] T = 300 K から T=10 K までで共鳴周波数の中心値は 200 GHz 程度変化する。

表 1.1 Ps-BEC を実現するための冷却レーザーの要求値。レーザーの時間プロファイル、周波数プロファイル、空間プロファイルとしては全てガウシアンが仮定されている。

波長	243 nm
周波数離調	-300 GHz
時間幅	FWHM $>$ 300 ns
パルスエネルギー	40 μJ
スペクトル幅	FWHM 140 GHz
高速周波数シフト	300 ns で +60 GHz 線形にチャープ
ビーム径	$\phi = 0.2$ mm

表 1.2 Ps に関するシミュレーションの条件

Ps 初期温度	6000 K
Ps 初期密度	4×10^{18} cm^{-3}
シリカ空孔	$75\times75\times75$ nm^3
シリカ温度	4 K

Ps 冷却レーザーの要求スペック

シミュレーションにより Ps-BEC を実現するための冷却レーザーの要求スペックが算出されている [13]。冷却レーザーの要求値を表 1.1に示す。その他のシミュレーションの条件を表 1.2に示す。

相互作用としては、以下の 4 つが考慮されている。

- Ps の崩壊
- Ps の 2 体弾性散乱
- シリカとポジトロニウムの衝突によるエネルギー交換 (熱化)
- ポジトロニウムと冷却レーザーの相互作用

結果として得られた、Ps 温度の時間発展を図 1.5に示す。Ps とシリカの熱化にレーザー冷却を組み合わせることによって冷却が大幅に加速され、300 ns 後に BEC が実現されることが分かる。以上より、表 1.1を満たす冷却レーザーを用いることによって Ps-BEC が実現可能であることが示された。次章で条件を満たす冷却レーザーの構築について述べる。

1.4 本論文の構成

第 2 章: Ps-BEC を目指した Ps 冷却レーザーの設計と実際に構築した冷却レーザーシステムについて述べる。
第 3 章: Ps 冷却レーザーの心臓部である Frequency Comb Generator の性質について理論的に考察する。
第 4 章: 現状の Ps 冷却レーザーの性能を評価する。
第 5 章: Ps 冷却レーザーの今後の展望について述べる。
第 6 章: まとめ

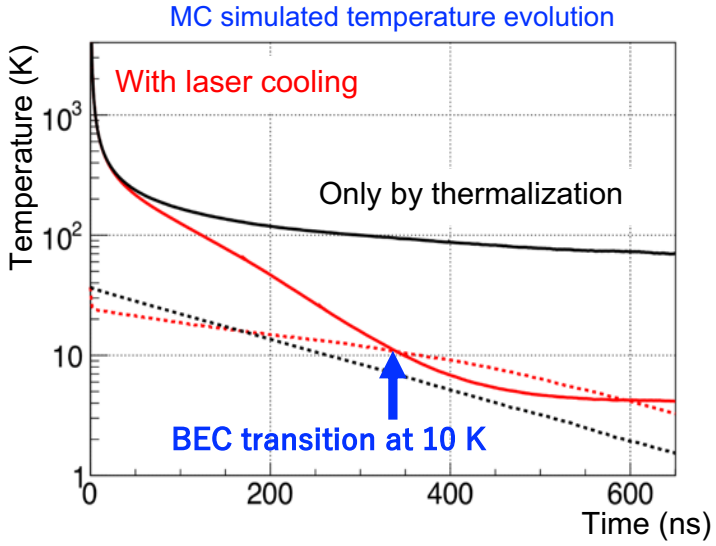


図 1.5　Ps の温度変化のシミュレーション結果 [13]。実線が Ps の温度変化であり、破線が BEC 転移温度の時間変化を示している。黒線が実験値に基づいた熱化のみによる冷却の場合であり、赤線が表 1.1の冷却レーザーを照射した場合である。

第 2 章

ポジトロニウム冷却レーザーの構築

表 1.1の要求を満たす Ps 冷却レーザーを実現するためのレーザーシステムの設計について述べる。Ps 冷却レーザーは 243 nm・長時間幅・広帯域・高速な周波数チャープという性質を備える必要がある。

2.1 設計

方針としては 243 nm の冷却レーザーを実現するために、729 nm において、長時間幅・広帯域・高速な周波数チャープを備えるレーザーを構築し、最後に 3 次高調波生成を行うことによって 243 nm の冷却レーザーを実現する[1]。冷却レーザーシステムの写真を図 2.1に示す。冷却レーザーシステムは以下の 5 つの要素からなる。概略図を図 2.2に示す。

①シードレーザー 第 2.2 節

シードレーザーは冷却レーザーの中心波長を決定する 729 nm の CW レーザーである。Frequency Comb Generator(FCG) の Ti:Sapphire 結晶が、この CW レーザーを種として誘導放出を繰り返し増幅を行うので、シードレーザーと呼ぶ。FCG の光共振器に対して狭線幅で、絶対周波数が安定している必要がある。シードレーザーとしては自作の External Cavity Diode laser (ECDL) を用いる。

②Frequency Comb Generator: 第 2.3 節

長時間幅と広帯域なスペクトルを備える 729 nm パルスレーザーを作り出す、Ps 冷却レーザー系の心臓部である。通常の Frequency Comb Generator では光共振器に閉じ込めた連続発振 (CW) レーザーを光共振器中に配置された Elecro-Optic Modulator(EOM) によって繰り返し位相変調する。EOM は周波数空間で等間隔のサイドバンドを生成するので、これにより繰り返し変調を受けた CW レーザーは高次までサイドバンドが生成され、CW レーザーの周波数を中心として帯域が広がる。周波数空間で等間隔のサイドバンドが立つことから Frequency Comb Generator(FCG) と呼ばれ、対応して時間波形としては等間隔な短パルスが生成されるのが特徴である。

本研究で開発した FCG は光共振器中にさらにレーザーゲイン媒質である Ti:Sapphire 結晶を配置し、それをナノ秒パルスのポンプレーザーで励起する新しい光学システムである。これにより FCG の広帯域なレーザーが繰り返し増幅され、光共振器の光子寿命で決まる時間幅のパルスレーザーが発振される。光共振器の光

[1] 直接 243 nm パルスレーザーを作らず、729 nm のレーザーを用いるのは増幅や波長の操作を行う技術が可視光域の方が発達しているためである。

子寿命を Ps の崩壊寿命程度に設計することで、Ps 冷却に最適な時間幅を持つ広帯域なパルスレーザーを作る事ができる。

③マルチパス増幅: 第 2.5 節

3 次高調波の生成は高次の非線形効果のため生成効率が悪い ($< 1\%$)。そのため十分なパルスエネルギーを備える 243 nm 冷却レーザーを作成するためには大きなエネルギーをもつ 729 nm レーザーを作る必要がある。ポンプレーザーによって励起した Ti:Sapphire 結晶に FCG の出力パルスを何度も透過させることによってパルスエネルギーを増幅する。マルチパス増幅は系がシンプルであることと、大きな出力を得る事が出来るのが利点である。

④パルススペクトル測定系: 第 2.4 節

Fabry Perot Etalon をベースとした自作の分光器により、周波数の広がりを空間的な広がりに変換してその広がりを CCD カメラで撮影する。1 パルスごとに高い分解能でスペクトル測定が可能である点が利点である。

⑤波長変換 (3 次高調波生成): 第 2.6 節

非線形結晶による非線形効果により 3 次高調波を発生させ、729 nm のレーザーを 243 nm に変換する。

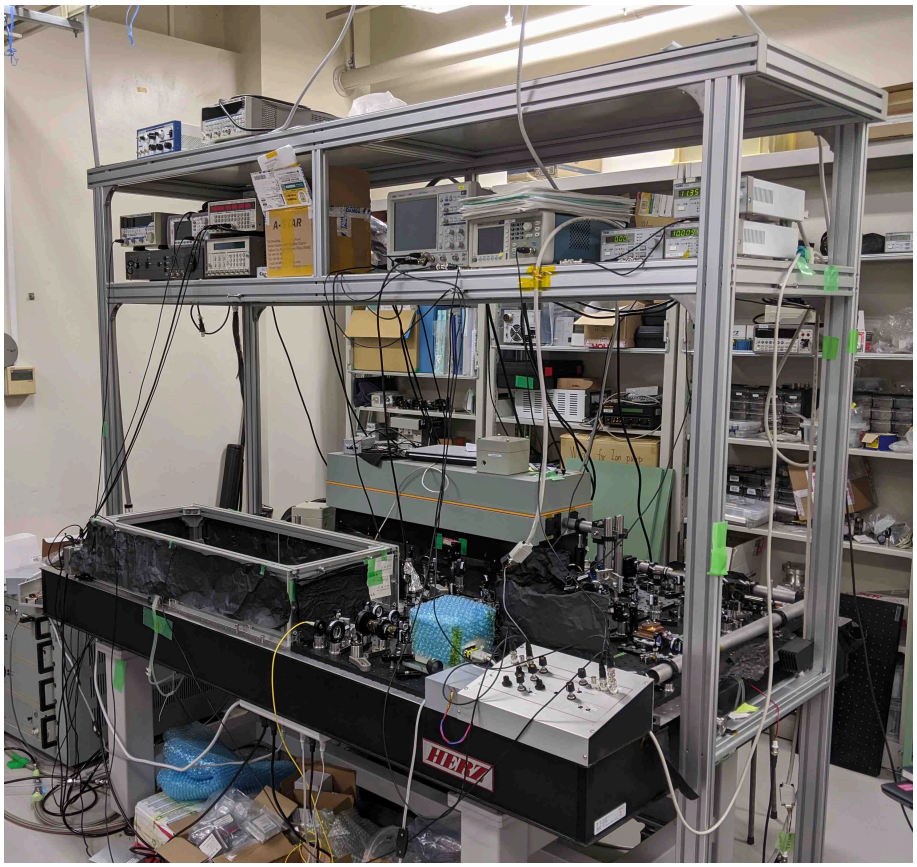


図 2.1　冷却レーザーシステムの写真

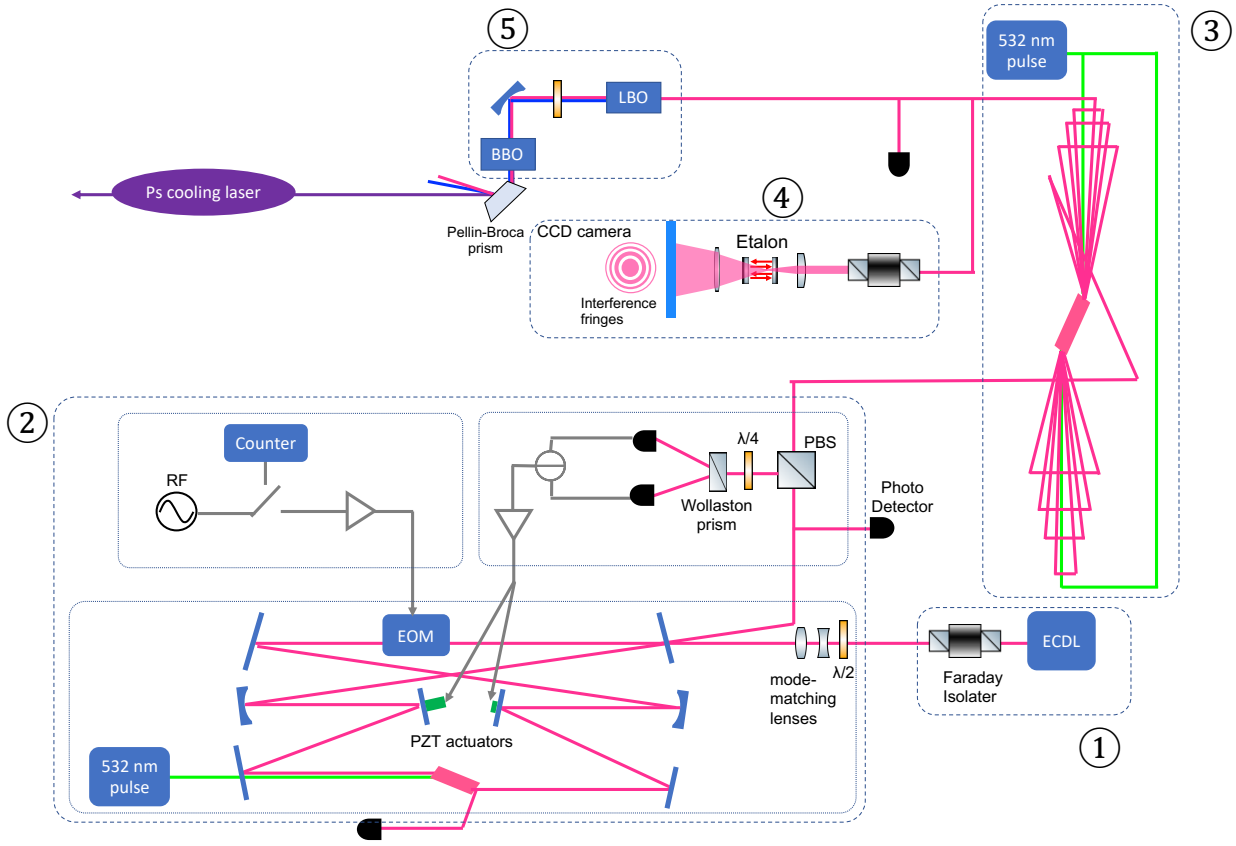


図 2.2 冷却レーザーの概略図

2.2　シードレーザー

シードレーザーとして、外部共振器型半導体レーザー (External Cavity Diode Laser, ECDL) を開発した。本研究で開発した ECDL は [21] において開発されたものを基として、改良を加えている。開発した ECDL の写真を図 2.3に示す。

2.2.1　ECDL とは

ECDL とは半導体レーザー (LD) と外部共振器を組み合わせたレーザーシステムである [22]。周波数選択性のある外部共振器により光学的に LD に対してフィードバックを与える事で、LD が一つの縦モード[2]でレーザー発振 (シングルモード発振) する様になり、LD の線幅を狭窄化する事が出来る。

本研究で開発した ECDL は Littrow 配置の回折格子によって外部共振器を構成する。Littrow では、1 次回折光と入射光の角度が同じであり、回折格子へ入射した光が LD へと戻って外部共振器となる。回折格子の角度を調整する事で、望みの周波数の光を LD へとフィードバックする事で ECDL の発振波長を調整する事が出来る。発振波長は次の様に書ける。

$$2d\sin\theta = \lambda \tag{2.1}$$

d : 回折格子の格子間隔、θ : 回折格子への入射角、λ : 発振波長

LD と回折格子の間にはコリメートレンズがあり LD の出力光を平行光にしている。これによって回折格子の回折光が適切に LD へと戻る。LD への戻り光が多いほど、シングルモード発振が起こりやすいというメリットがある一方、LD が戻り光により焼けやすくなる他、出力パワーが小さくなるというデメリットがある。この ECDL では、十分にシングルモード発振が起こることが確認されたため、LD への戻り量が最小となるように調節している[3]。表 2.1に ECDL を構成する光学素子を示す。

2.2.2　雑音対策

ECDL は LD に印加する電流の雑音や、機械的な振動、温度等様々な要因によって発振周波数が不安定になってしまう。そこで以下に述べる対策を施すことにより、ECDL の安定化を行なった。

回路

ECDL の周波数は印加電流に大きく依存するため、ECDL の LD への印加電流が安定している必要がある。そのため、ECDL の周りの回路においてグラウンドループが存在しない様に電源の取り方には注意をしている。また、ECDL の箱の中で LD に電流を印加する直前にコンデンサーを並列につなぎ、高周波の電流雑音を落としている。

音、振動

ECDL 本体は箱の中に密封しており、箱はガラスエポキシに固定、さらに光学定盤との間にソルボセインシートを挟むことで除振している。ECDL 本体はミラーマウント上に固定されている。ミラーマウントはペ

[2] LD それ自体も光共振器であると考える事ができる。縦モードの意味は 2.3.1 節参照。
[3] LD の出力には偏光があり、回折格子の回折効率には偏光依存性があるので、LD の偏光を戻り量が最小になる様に調整している。

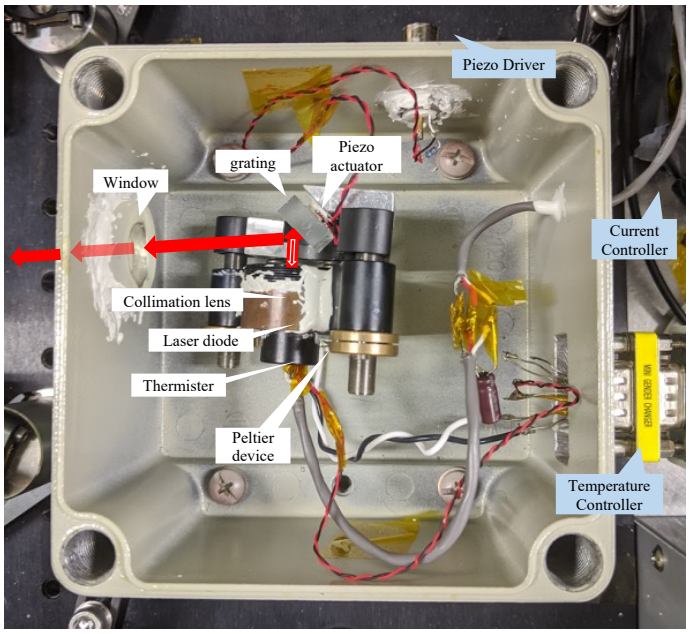


図 2.3　ECDL の内部の写真

表 2.1　ECDL を構成する素子

LD	HL7302MG
回折格子	GH13-18V
サーミスター	TH10K
ペルティエ素子	TEC3-6
ウィンドウ	WG11050-B
電流コントローラー	LDC201CU
温度コントローラー	TED200C

全て Thorlabs 社製

ルティエ素子を挟んで箱にトールシールで固定されており、ミラーマウントと箱の間はアラルダイトによって補強されている。これにより、ECDL 全体が揺れることによる ECDL の発振周波数を揺らぎを抑えている。

温度

LD のそばにサーミスタが設置されており、LD の温度を読み取っている。ECDL 本体のマウントされているミラーマウントの下にはペルティエ素子が挟んであり、温度コントローラを用いてサーミスタから読み取った温度をペルティエ素子にフィードバックして LD の温度が一定となる様に制御している。

2.2.3　性能評価

ECDL の性能を表 2.2に示す。

波長

波長については絶対周波数精度が 60 MHz[4] の波長計 (WS60、High Finesse 社) を用いて波長が 729 nm であることを確認している。波長については、回折格子の角度を微調整することにより微調整する事が可能であり、必要に応じて Ps の 1S-2P 遷移周波数からの離調を調整する事が出来るため、シードレーザーとして必要な性能を備えていると言える。

発振閾値、出力パワー

ECDL の印加電流と出力パワーの関係を測定した。結果を図 2.4に示す。ECDL のレーザー発振には閾値電流があり、I-P curve を外挿することにより、閾値電流は 35 mA であるとわかった。最大出力パワーは 30

[4] 729 nm においては絶対波長精度 0.1 pm

mW である。後述するが (図 4.9、図 3.3)、光共振器中で EOM を駆動した時には光共振器中のシードレーザーパワーが不十分になることがわかっている。これにより、Ti:Sapphire 結晶の自己発振の効果が大きくなり FCG の出力エネルギーが実効的に小さくなるため、ECDL のパワーについては改善が望ましい。この問題を解決する方法については第 5 章で述べる。

表 2.2　ECDL の達成性能

波長	729 nm
パワー	30 mW
周波数安定性	1 GHz 以内

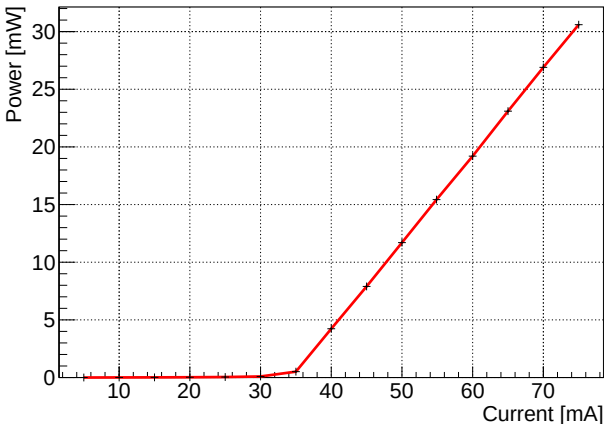


図 2.4　I-P curve: ECDL の印加電流と出力パワーの関係

周波数安定性

ECDL の出力周波数を波長計 (Bristol Instruments, Bristol721 spectrum analyzer) を用いて長時間測定し、その安定性を評価した。周波数の測定と同時に、ECDL の設置されている環境の温度・湿度・気圧をモニターした (TandD 社製：TR- 73U)。測定結果を図 2.5に示す。結果として、長時間にわたって周波数ドリフトが 1 GHz 未満の十分安定した ECDL を得る事ができた。ECDL の発振周波数と環境の湿度や気圧に相関が見られるが、これは ECDL を入れている箱の気密性が悪く湿度や気圧の変化によって外部共振器長が変化し、ECDL の発振条件が変わる事が原因として考えられる。周波数ドリフトについては、Ps 冷却レーザーとしてはシードレーザーを基として、140 GHz の広帯域なレーザーを生成するので、中心周波数が 1 GHz 以内の安定性が得られていれば十分であると言える。

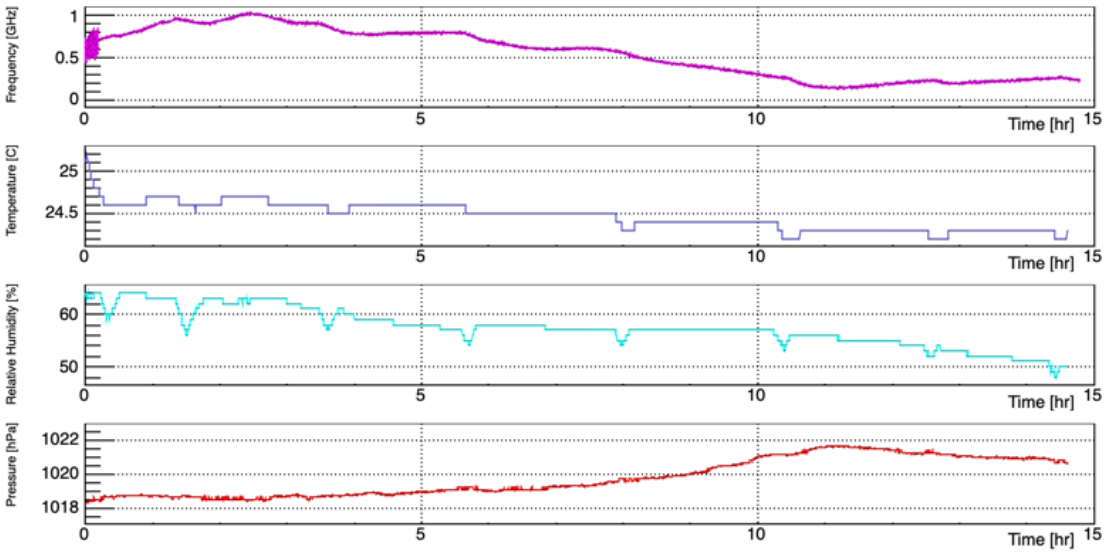


図 2.5　ECDL の出力周波数と環境変化の関係。ECDL の周波数ドリフトは 1 GHz 以内に抑えられている。

2.3　Frequency Comb Generator

Frequency Comb Generator(FCG) は Ps 冷却レーザーシステムの心臓部であり、729 nm で長時間幅・広帯域・高速な周波数チャープという性質を備えるパルスレーザーを作り出す。Frequency Comb Generator の性質の理論的な考察については第 3 章において述べ、本章では実際に構築した FCG の概要について述べる。

FCG は光共振器、電気光学変調器 (Electro-Optic Modulator, EOM)、Ti:Sapphire 結晶からなる。開発した FCG の写真を図 2.6に示す。

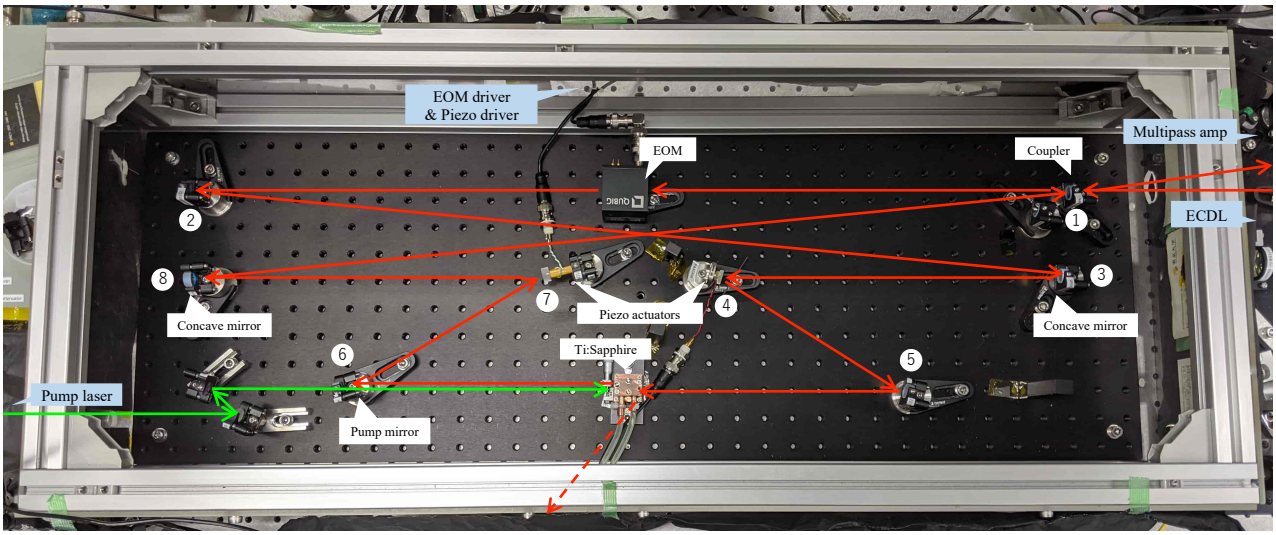


図 2.6　Frequency Comb Generator の写真。表 2.4に光共振器を構成するミラーのスペックを示す。

FCG では連続発振のシードレーザーを光共振器中に閉じ込め、光共振器中に配置された EOM によって繰り返し位相変調する。シードレーザーを効率よく光共振器中に閉じ込めるために、シードレーザーが常に共振するように光共振器長を制御する。EOM は周波数空間で等間隔のサイドバンドを生成するので、これにより繰り返し変調を受けたレーザーは高次までサイドバンドが生成され、シードレーザーの周波数を中心として帯域が広がる。周波数空間で等間隔のサイドバンドが立つことから Frequency Comb Generator(FCG) と呼ばれ、対応して時間波形としては等間隔な短パルスが生成されるのが特徴である。

本研究で開発した FCG は光共振器中にさらにレーザーゲイン媒質である Ti:Sapphire 結晶を配置し、それをナノ秒パルスのポンプレーザーで励起する新しい光学システムである。これにより FCG の広帯域なレーザーが繰り返し増幅され、光共振器の光子寿命で決まる時間幅のパルスレーザーが発振される。光共振器の光子寿命を Ps の崩壊寿命程度に設計することで、Ps 冷却に最適な時間幅を持つ広帯域なパルスレーザーを作る事ができる。

本章では
光共振器について 2.3.1 節、
TiSapphire 結晶によるパルス化について 2.3.2 節、
共振器制御について 2.3.3 節、

光共振器周りの光学素子の役割について 2.3.4 節、
EOM による変調について 2.3.5 節、 2.3.6 節、 2.3.7 節、
で述べる。

2.3.1 光共振器

光共振器は適切に配置されたミラーからなる「光を閉じ込める箱」である。本研究で開発した光共振器はリング型 (Bow-Tie 型) であり、光はその中を周回する。その周期性から、光共振器中で共振できる光周波数は等間隔離散的であり、光共振器の共振周波数間隔を Free Spectrum Range(FSR) と呼ぶ。リング型の光共振器の FSR は次式で与えられる。

$$\mathrm{FSR} = c/L \tag{2.2}$$

c : 光速、L : 光共振器長

光共振器の FSR 間隔の共振モードのことを縦モードと呼ぶ。また、光共振器中では一般にガウシアンビームが共振する。ガウシアンビームの空間モードのことを横モードと呼ぶ。

また、光共振器の共振周波数は Lorentz 広がりの有限の幅を持つ。共振周波数の半値幅は次式で与えられる。

$$\Delta f_{FWHM} = \frac{\mathrm{FSR}}{\mathcal{F}} \tag{2.3}$$

$$\mathcal{F} = -\frac{2\pi}{\ln R}\ [5] \tag{2.4}$$

R : 光共振器 1 周あたりの光のパワーに対する反射率、$\mathcal{F}$: フィネス

ここで、フィネスは光共振器中を光が周回する典型的な回数に相当する。

また、光共振器中に閉じ込められた光のパワーは、光共振器の有限のロスによって徐々に失われたり外部に透過していくことで小さくなっていく。光共振器中の光のパワーが 1/e になるまでの時間を光子寿命と呼ぶ。光子寿命 τ は次式で与えられる。

$$\tau = -\frac{1}{\mathrm{FSR}\ln R} \tag{2.5}$$

光共振器のスペック

本研究で開発した光共振器は FSR や光子寿命を Ps 冷却に最適化して設定している。Ps 冷却レーザーとしては Ps のドップラー幅程度のスペクトル幅を持ち、Ps の崩壊寿命程度の時間幅を持つパルスレーザーが必要である。FCG では光共振器内で変調周波数を FSR に調整した EOM を駆動する事で、EOM により生成されたサイドバンドを光共振器中に全て共振させることによって高次までサイドバンドを生成し、広帯域なレーザーを作り出す。しかし、1 つの Ps の吸収するスペクトル幅は Ps の自然幅によって決まっているので、FSR を大きくしすぎると、レーザーを吸収できない Ps が存在してしまう。そこで、光共振器の FSR は Ps の自然幅 (∼ 50 MHz) と同程度に設定する。一方光共振器の光子寿命については Ps の崩壊寿命 (∼ 142 ns) と同程度に設定し、Ps 冷却に最適な時間幅のパルスレーザーを作り出す。表 2.3に各種パラメーターの値を示す。

[5] 式 $\mathcal{F} \sim \frac{\pi \sqrt[4]{R}}{1-\sqrt{R}}$ と $R \sim 1$ で一致する。

表 2.3　光共振器のスペック

共振器長	3.8 m
FSR	78.7 MHz
フィネス $\mathcal{F}$	122
光子寿命	247 ns

表 2.4　Ti:Sapphire 共振器を構成するミラーのスペック。番号は図 2.6 上の番号と対応する。

1	カップラー	R = 98.0 %
2	特注ミラー	R = 99.9 %
3	凹ミラー	R = 99.8, f = 1000 mm
4	短 PZT 付き特注ミラー	R = 99.9 %
5	特注ミラー	R = 99.9 %
6	ポンプミラー	R = 99.8 %@729 nm, R<0.2 % @532 nm
7	長 PZT 付き特注ミラー	R = 99.9 %
8	凹ミラー	R = 99.8, f = 1000 mm

光共振器は 8 枚のミラーにより構成され、3.8 m の共振器長をコンパクトに折り畳んでいる。光共振器を構成するミラーのスペックは表 2.4に示す。カップラーは反射率が 98%、透過率が 2% のミラーであり、カップラーからシードレーザーを光共振器内に注入する。光共振器からの出力はカップラーを透過して出力される。リング型光共振器の場合光共振器の出力は、入射光のカップラーによる反射光と光共振器内からの透過光が混ざっている。

ポンプミラーは Ti:Sapphire 結晶を励起する 532 nm のポンプレーザーを透過し、729 nm を反射するミラーである。凹面ミラーはガウシアンビームが光共振器中を 1 周した時に空間プロファイルが元に戻るために必要である。残りの 4 枚のミラーは Ti:Sapphire による自己発振を防ぐため[6]、729 nm 高反射かつ 733 nm 以上で低反射のシグマ光機特注ミラーを用いている。光共振器全体はアクリルのケースで囲まれており、音や温度、空気の流れによる共振器の擾乱を防いでいる。

モードマッチング

ガウシアンビームが光共振器中で共振するためには空間プロファイルが光共振器 1 周後に元に戻る必要がある。光共振器の許す空間プロファイルは自己無撞着方程式を解く事で得られ、その解としてこの共振器内には二つのガウシアンビームのウェイストがあり、設計値では、EOM 位置で $w_1 = 0.333$ mm、Ti:Sapphire 結晶位置で $w_2 = 0.206$ mm である。シードレーザーと光共振器のカップリングを良くするためには、共振器へ注入するシードレーザーのプロファイルが共振器モードの許す空間プロファイルと一致する必要がある。これをモードマッチングという。CCD カメラを用いてシードレーザーのビームプロファイルを観察しながら光共振器上流のレンズを調整し、モードマッチングを行った結果が図 2.7である。モードマッチング率 η は光共振器の許すビームプロファイルとビームプロファイルがどれだけあっているかで定義され、両者がガウシアンの TEM00 モードである場合には次のように書ける。

$$\eta = \frac{4w_{\mathrm{beam}}^2 w_{\mathrm{cavity}}^2}{(w_{\mathrm{baem}}^2 + w_{\mathrm{cavity}}^2)^2 + (\lambda d/\pi)^2} \tag{2.6}$$

w : ビームウェイスト、λ : レーザー波長、d : ウェイスト間距離

図 2.7の xy それぞれを fit して得られるビームプロファイルと、光共振器のビームプロファイルについてモードマッチング率を計算すると 95 % 以上となり、十分なモードマッチングが得られていると言える。

[6] 自己発振は 2.3.2 節を参照。

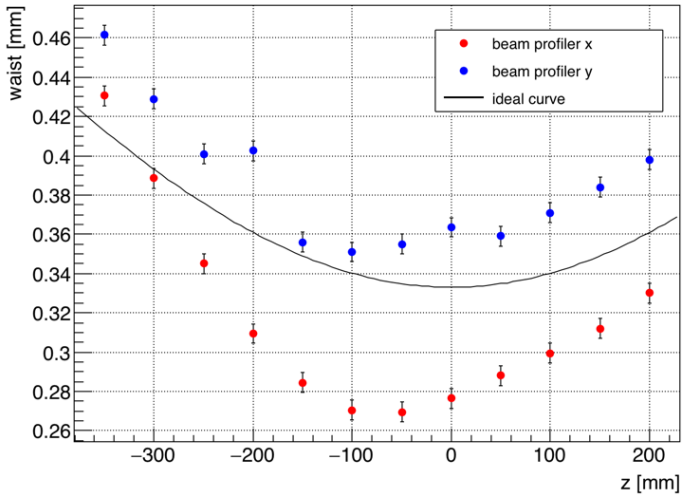


図 2.7 モードマッチング後のビームプロファイル。横軸は EOM 位置の waist からの距離。縦軸はビームウェイストであり、ガウシアンの 2σ に相当する。x, y でビーム径が異なるのは、ECDL の半導体レーザー出力ビームプロファイルが楕円形であることに由来する。

2.3.2 Ti:Sapphire 結晶

Ti:Sappphire 結晶 (Ti:S) は Sapphire 結晶に Ti^{3+} イオンがドープされた結晶であり、近赤外領域の光を増幅するためによく用いられるレーザー媒質である [23]。Ti:S の吸収断面積スペクトルを図 2.8に、誘導放出断面積スペクトルを図 2.9に示す。吸収帯域は 400-600 nm にわたり、放出帯域は 650-900 nm の広帯域に渡るのが特徴である。Nd:YAG レーザーの 2 次高調波 (532 nm) によって Ti:S を励起し、放出帯域の波長の光を入射することで誘導増幅により入射光の増幅を行うのが一般的な用途である。

本研究では、729 nm のシードレーザーを Ti:S により増幅する。シードレーザーの共振が不十分だと、Ti:S の自然発光が増幅される自己発振が起こってしまうため、自己発振の効果が小さくなるように十分なエネルギーのシードレーザーを光共振器中に閉じ込める事が必要である。

FCG に用いた Ti:Sapphire 結晶は 729 nm に対する Brewster cut が施されており、p 偏光のロスが小さい。Ti:S を励起するポンプレーザーとしては Minilite(Nd:YAG SHG, Amplitude 社) を用いた。Minilite は繰り返し 10 Hz、時間幅 5 ns、出力パルスエネルギーは可変で最大 20 mJ である。測定結果を図 2.10に示す。Ti:Sapphire 結晶上での、シードレーザーのビーム径 ($=2\sigma$) は 0.2 mm、ポンプレーザーのビーム径は 0.5 mm に調整している。調整後のビーム径を図 2.11に示す。Minilite の出力は、Ti:Sapphire 結晶に入射する手前で半波長板によりロスが最小となる p 偏光に調整している。

光子寿命の測定

光共振器の光子寿命は光共振器から出力される長パルスのテールを指数関数でフィットすることで評価する。パルスの立ち上がりの時定数は、光子寿命と Ti:S 結晶の増幅率によって決まっている。パルスのテール部分では Ti:S 結晶はエネルギーを使い尽くしており、共振器出力パワーの時間発展はほとんど光共振器の時定数によって決定される。したがってこの方法で光共振器の光子寿命を評価することができる。

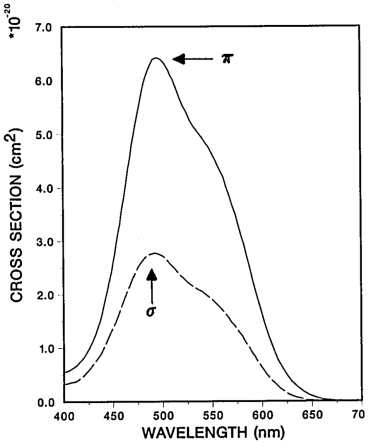


図 2.8　Ti:Sapphire 結晶の吸収断面積スペクトル [23]。π、σ はそれぞれ p、s 偏光に対するスペクトル。

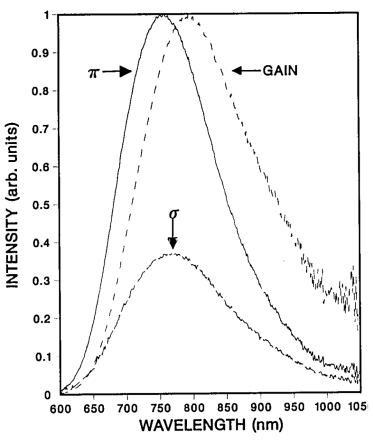


図 2.9　Ti:Sapphire 結晶の誘導放出断面積スペクトル [23]。π、σ はそれぞれ p、s 偏光に対するスペクトル。

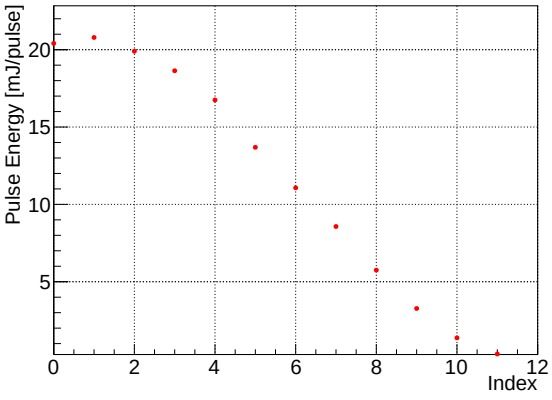


図 2.10　Minilite の出力エネルギー。Minilite は内部の波長板を回す事で出力エネルギーが可変であり、横軸は波長板の回転角に対応する目盛りである。

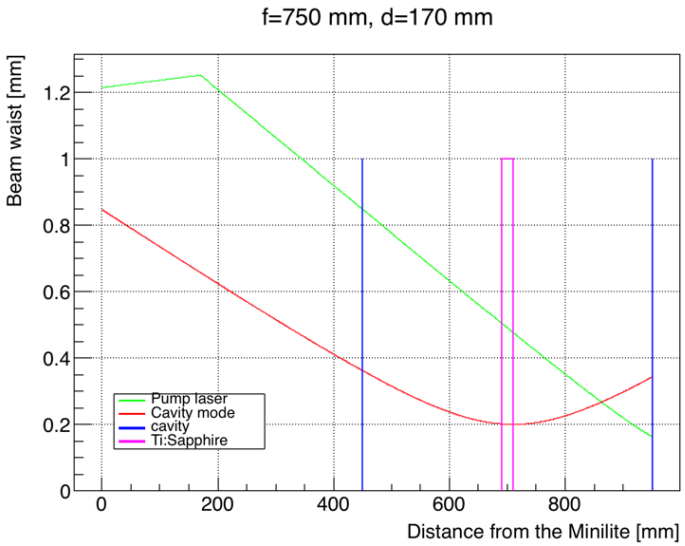


図 2.11　Ti:Sapphire 結晶上でのビーム径。横軸が Minilite の出力口からの距離であり、縦軸がビーム径である。Minilite のビーム径は出力口から 170 mm の位置に f=750 mm のレンズを置いて調整している。

2.3.3　制御系

本研究で開発した FCG ではシードレーザーはフリー発振しており、シードレーザーに対して光共振器長を制御することでシードレーザーの共振を維持する。共振器長とレーザー波長のずれは Hansche-Couillaud 法 [24] によりエラーシグナルに変換する。そのずれをそれぞれミラーが固定された 2 つのピエゾ素子にフィードバックすることで共振器長を制御する。制御システムの概略図を図 2.12に示す。

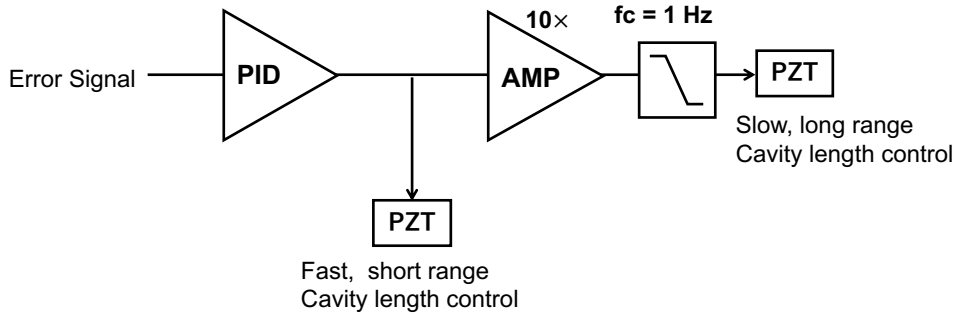


図 2.12 制御系の模式図、PID PID 制御、PZT ピエゾ素子。

Hansche-Couillaud 法

Hansche-Couillaud 法 (HC 法)[24] は偏光依存性のある光共振器に対して用いられる制御手法である。本研究で開発した光共振器は、Brewster cut の Ti:Sapphire 結晶に偏光依存性があり、p 偏光の方がロスが少なく、s 偏光の方がロスが大きくなっている。光共振器に対して p 偏光成分を主とし、s 偏光をわずかに混ぜた直線偏光を入射すると、レーザーが共振する際には p 偏光と s 偏光の比が変化する。光共振器の出力の p 偏光と s 偏光を干渉させ、そのパワーのバランスを検出することによって共振からのズレに比例する電気信号 (エラーシグナル) を作り出す事ができる。エラーシグナルを作り出すこの回路をバランス検出器と呼ぶ。FCG のエラーシグナル生成部分は [21] において開発された。

2.3.4 共振器上流及び下流

FCG の光共振器上流と下流の光学系の写真を図 2.13に示す。それぞれの光学素子の役割について説明する。

- アイソレーター
  アイソレーターは Faraday 効果と偏光ビームスプリッターを利用した光学素子で、レーザーが一方向には透過するものの、反対方向には透過しないようになっている。FCG 中の Ti:Sapphire 結晶が自己発振する光にはシードレーザーと逆向きに伝搬する成分が存在し、それによって ECDL の LD が損傷するのを防いでいる。
- ファイバーカップラー
  光ファイバーを通して ECDL の波長を波長計によって測定するために用いる。ECDL の出力を光共振器に入力するか、ファイバーに入力するかはフリッパーで切り替える。
- 半波長板
  ECDL の偏光を光共振器のロスの少ない p 偏光に調整している。sp 比を調整することでエラーシグナルの大きさを調整することも可能である。
- モードマッチングレンズ
  モードマッチングをするためにレーザーの空間プロファイルを調整する。
- エラーシグナル生成系
  PBS によって光共振器の出力からエラーシグナルを作り出すための成分をサンプルする。4 分の 1 波

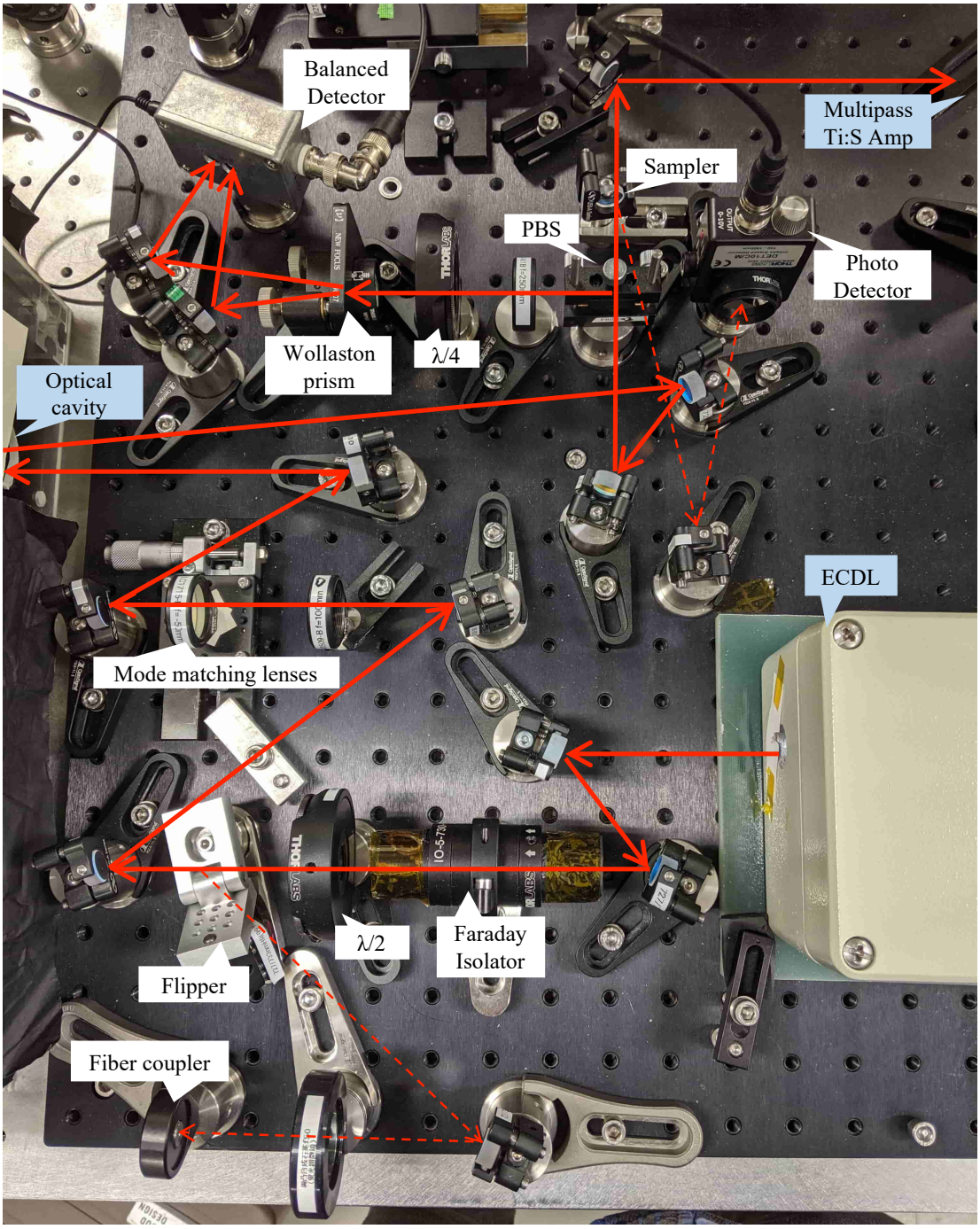


図 2.13　光共振器周りの光学系

長板によって sp 偏光を干渉させ、Wollaston prism により sp 偏光を分離し、それをバランス検出器に入射することで sp 偏光のパワーの差からエラーシグナルを作り出す。光共振器から出力されるパルスレーザーは p 偏光であるため、PBS によって p 偏光成分がほとんどバランス検出器に入らない様にすることでバランス検出器の損傷を防いでいる。

- パルス波形測定系
  サンプラーによって光共振器の出力をわずかにサンプルし、フォトディテクターで出力パルス波形を測定する。

2.3.5 サイドバンド生成系

EOM による位相変調

Electro-optic modulator(EOM 電気光学位相変調器) とは、電気光学結晶を用いた光学変調器である。電気光学結晶は電気光学効果によって、印加された電場強度によって屈折率が変化する。これを利用して電気光学結晶に角周波数 Ω で振動する電圧を印加すると、この結晶を透過する光は角周波数 Ω で位相に変調がかかる。印加電圧は次の様に書く。

$$V_{in}(t) = V_p \sin(\Omega t) = V_p \sin(2\pi f_m t) \tag{2.7}$$

V_p: 電圧振幅、f_m: 変調周波数、Ω: 変調角周波数

EOM による位相変調は次の様に書け、位相変調により変調周波数間隔にサイドバンドが生成されることがわかる。

$$E(t) = e^{i\omega t} \tag{2.8}$$

$$\to e^{i\omega t + i\beta \sin \Omega t} \tag{2.9}$$

$$= e^{i\omega t} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) e^{in\Omega t} \tag{2.10}$$

ここで、Jacobi Anger Equation $e^{i\beta \sin \Omega t} = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) e^{in\Omega t}$ を用いた。

EOM は 729 nm の透過率が高く、共振器の FSR である 78.7 MHz で十分な変調深さの位相変調を加えることのできるものを Qubig 社に特注した。EOM の外観を図 2.14、スペックを表 2.5に示す。

変調深さの測定

EOM で 1 回だけ変調した光のスペクトルを走査型の Fabry-Pérot 干渉計 (SA200-5B, Thorlabs) を用いて測定した。走査型 Fabry-Pérot 干渉計の共振器長を線形に変化させると、共振する光周波数が線形に変化するため、干渉計を透過するレーザーパワーの時間変化が、そのまま干渉計に入力するレーザーのスペクトルに対応する。EOM で 1 回だけ変調したレーザーのスペクトルは (2.10) 式 となるが、4 次以上のサイドバンドを無視して、以下の関数で fit することによって変調深さ β を推定する。上記の理由により、得られるデータの横軸は時間 ($\propto$ 光周波数) であることには注意が必要である。

$$f(x, A, \beta, f_m, \sigma) = A \sum_{n=-3}^{3} J_n(\beta)^2 e^{-\frac{(x - n f_m)^2}{2\sigma^2}} \tag{2.11}$$

σ: 分光器の分解能、f_m: 変調周波数、β: 変調深さ、A: 振幅

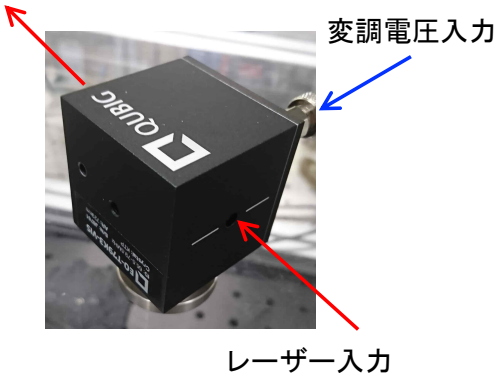


図 2.14　EOM の写真

表 2.5　EOM のスペック

EO crystal	KTP 結晶
aperture size	3×3 mm^2
反射率	R $<$ 0.02 % @729 nm
最大 RF power	30 dBm
最大 変調深さ	2.3 rad @30 dBm

測定結果を図 2.15に示す。図 2.15の EOM 駆動部分の拡大図を図 2.16に示す。共振器長は図の範囲内では線形に変化している。0.6 秒以前では EOM を駆動しておらず、0.6 秒以降では EOM が駆動されている。つまり、図 2.15の左の 2 つの鋭いピークは変調を受ける前の単色レーザーのスペクトルであり、その間隔はスペクトル測定に用いた干渉計の FSR に対応する。図 2.16は EOM による変調を受けたスペクトルで、左右対象にサイドバンドが生成されている。図 2.16のピーク間隔が変調周波数に対応する。サイドバンドのパワーのバランスが変調深さに依存しているので、fit することで変調深さを推定出来る。

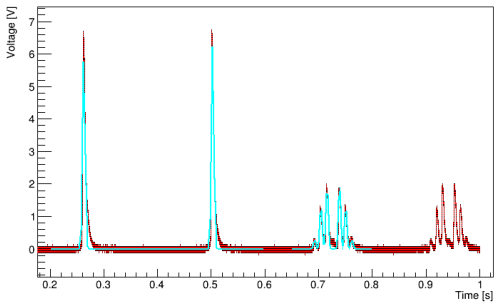


図 2.15　EOM 非駆動時のスペクトルと EOM 駆動時のスペクトル

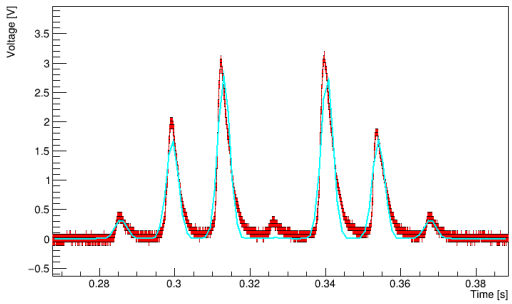


図 2.16　図 2.15の拡大図

EOM の入力電圧振幅 V_p を変化させながら、変調深さを測定した結果を図 2.17に示す。EOM は preset の共鳴周波数が 78.9 MHz であり、その後光共振器の FSR である 78.7 MHz に共鳴周波数を調整したが、$f_m = 78.7$ MHz でも $f_m = 78.9$ MHz のデータシートの値と同様に動作していることが確認できた。

2.3.6　EOM の共鳴周波数と共振器の FSR の調整

Frequency Comb Generator(FCG) で重要なのは、EOM の変調周波数 f_m を光共振器の FSR の整数倍に精密に合わせる事である。f_m が FSR からずれていると、EOM により生成されたサイドバンドが光共振器中で共振しないため、高次までサイドバンドを生成してレーザーを広帯域化させる事が出来ない。

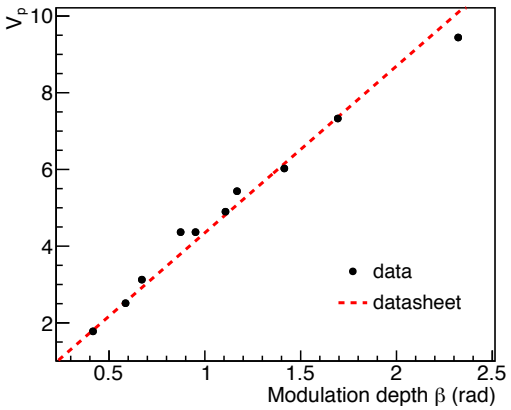


図 2.17　変調深さ β と EOM 印加電圧の関係。黒点は f_m = 78.7 MHz での測定値。破線は f_m=78.9 MHz でのデータシートの値

広帯域化のための要請

本研究で開発した光共振器の線幅は f_{FWHM} = FSR/$\mathcal{F}$ ∼ 640 kHz である。したがって、サイドバンドを N 次まで立てようと考えると、FSR と変調周波数 f_m を f_{FWHM}/N の精度で合わせる必要がある。これは、繰り返し位相変調を行う性質上、高次のサイドバンドでは変調周波数と FSR のわずかなずれが積み重なっていくためである。Ps 冷却レーザーとしては 243 nm で 140 GHz の帯域が必要であるため、729 nm では 140 GHz/$\sqrt{3}$ = 80 GHz の帯域が必要である。これはサイドバンドを ±500 次立てることに相当するので、f_m と FSR の要求調整精度は 1.3 kHz と見積もられる。以下に述べる FSR の測定精度は 100 kHz であり、EOM の共鳴線幅は 1.2 MHz であるので、FSR と EOM の共鳴周波数の調整は 100 kHz の精度で行い、その状態で出力光のスペクトルを観察しながら EOM の変調周波数を 1 kHz の精度で FSR に調整する必要がある。

一方、シードレーザーの光周波数と光共振器の共鳴周波数の要求精度はそこまでは高くなく、光共振器の線幅 f_{FWHM} の 1/10 程度で十分であると考えられる。

また、f_m と FSR の要求調整精度に対して、f_m の変動が十分小さい事、FSR の変動が十分小さい事も重要である。作成した EOM ドライバーの周波数の安定性を Universal Counter(53230A, KEYSIGHT) を用いて測定した結果を図 2.18に示す。EOM ドライバーは起動後周波数が安定するまで 1 時間程度時間がかかるが、それ以降では 4 時間で絶対周波数が 5 kHz 以内で安定していることがわかる。より短い時間内においては、ドライバーの絶対周波数は要求調整精度以内で安定しているため、この EOM ドライバーを用いて広帯域は可能であると考え、EOM ドライバーの周波数制御は行なっていない。FSR の変動の大きさは次の様に評価出来る。

$$\delta\mathrm{FSR} = \mathrm{FSR} \times \delta L/L \tag{2.12}$$
$$= 78.7\ \mathrm{MHz} \times (\text{ピエゾ最大変位 } 8.7\ \mu\mathrm{m}/3.8\ \mathrm{m}) \tag{2.13}$$
$$= 180\ \mathrm{Hz} \tag{2.14}$$

したがって、FSR の変動は要求調整精度に対して十分小さく、広帯域化に影響を与えない。

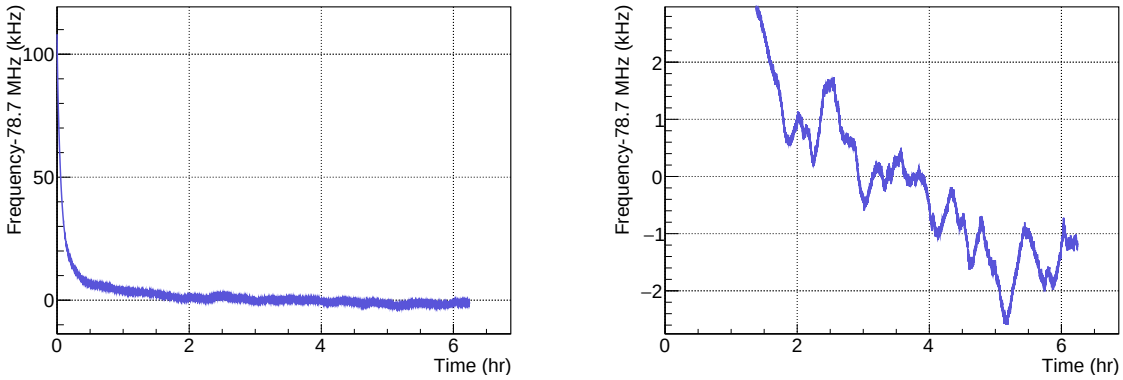


図 2.18　EOM ドライバーの周波数の安定性。EOM ドライバー起動直後から周波数を測定している。周波数が安定するまで 1 時間程度必要であることがわかる。右図は左図の縦軸を拡大したもの。

FSR の測定

- 方法 1
  光共振器の光路長 L を測定し、FSR = c/L を得る。EOM(KTP 結晶 n ≃ 1.8) と Ti:Sapphire 結晶 (n ≃ 1.7) の屈折率を考慮する必要がある点は注意が必要である。
- 方法 2
  EOM 非駆動かつシードレーザーを注入しないで Ti:Sapphire 結晶を励起すると、Ti:Sapphire 結晶の自己発振によるパルスが光共振器から出力される。このパルス波形をフーリエ変換すれば、光共振器の FSR の情報が得られる。TiSapphire 結晶の放出帯域は 650-900 nm と広いため (図 2.9)、自己発振時には共振器内には光共振器の許す複数の縦モードでレーザー発振が行われる。このとき、パルスの時間波形には共振器の縦モード間隔すなわち FSR の整数倍の変調がかかるため、時間波形をフーリエ変換すると FSR の整数倍の周波数にピークが立ち、FSR を測定することができる。

二つの独立な FSR の測定は誤差の範囲で一致し、FSR = 78.7(1) MHz が得られた。

共鳴型 EOM の共鳴周波数の測定

本研究で用いる EOM は共鳴周波数可変な共鳴型 EOM である。共鳴型 EOM では LC 共鳴回路により共鳴周波数において KTP 結晶に加わる電圧を増幅し、大きな変調深さを実現する。効率よく高次までサイドバンドを生成するためには、変調周波数=FSR において EOM の変調深さが大きくなる様に共鳴周波数を FSR と一致させる必要がある。

そこで、共鳴回路の特性を Vector Network Analyzer(MS2024B, Anritsu) を用いて測定し、調整を行なった。EOM には図 2.19に示す様に音響共鳴周波数があり、EOM をその周波数で駆動した際にはレーザーが図 2.20の様に分裂してしまい共振器内のロスが大きくなってしまうため、FSR は EOM の音響共鳴周波数からはずらし、その上で EOM の LC 共鳴周波数を FSR に調整した。後述するが、図 4.5に示す様にこれによって共鳴周波数の調整を十分な精度で行うことが出来た。

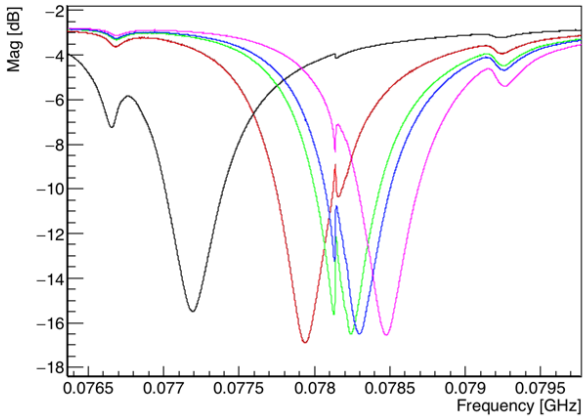


図 2.19 VNA による EOM の共鳴回路周波数特性の測定結果。共鳴周波数を変えて測定した結果を示している。常に 78.1 MHz 周辺に音響共鳴周波数があり、この周波数では図 2.20の様に入射光が分裂してしまう。

図 2.20 EOM を音響共鳴周波数で駆動しレーザーを一回だけ透過させたものをスクリーンに当てた結果。ビームが分裂する。

表 2.6 EOM 駆動系の構成要素

VCO	POS-100+ Mini Circuits
BPF	PBP-70+ Mini Circuits
AMP	ZHL2-8-S+ Mini Circuits
High isolation switch	ZASWA-2-50DR+ Mini Circuits
Universal counter	53230A KEYSIGHT
Function generator	SG-4105 IWATSU

2.3.7 EOM のパルス駆動

光共振器中の EOM は、位相変調を繰り返しサイドバンドを生成する一方 HC 法のエラーシグナルを乱してしまう。したがって、そのままでは EOM によるサイドバンド生成と共振器長制御を両立することは出来ない。そこで、パルス発振の直前の 20 μs にだけ EOM を駆動するようにした。FCG のタイミング図を図 2.21に示す。EOM の駆動時間は光共振器の光子寿命 250 ns よりも十分長いため、パルス発振時におけるスペクトルの広がりは EOM を常時駆動している場合と同じだけの広がりが得られる。これにより、EOM によるサイドバンド生成と共振器長制御を両立する事ができる。共振器の制御帯域は 50 kHz が上限となるが、現状制御帯域は共振器長制御を行うピエゾ素子によって 30 kHz にリミットされているため問題はない。

EOM の駆動回路の模式図を図 2.23に示す。制御電圧を調整して EOM の変調周波数を調整する。Amp の最大入力パワーが 5 dBm、EOM の最大入力パワーが 30 dBm であるため、VCO の出力 RF を一度アテニュエーターで減衰させてから、Amp で EOM の最大入力パワーまで増幅させている。EOM 駆動系の構成要素を表 2.6に示す。

光共振器中の Ti:Sapphire 結晶をポンプレーザーで励起するタイミングに同期して、EOM ドライバーの出力を Universal counter から EOM へスイッチングする。スイッチングの TTL 信号は、ポンプレーザーの Flash 信号を DG645 で delay させ、それをファンクションジェネレーターで 20 μs 幅の TTL 信号に変換し

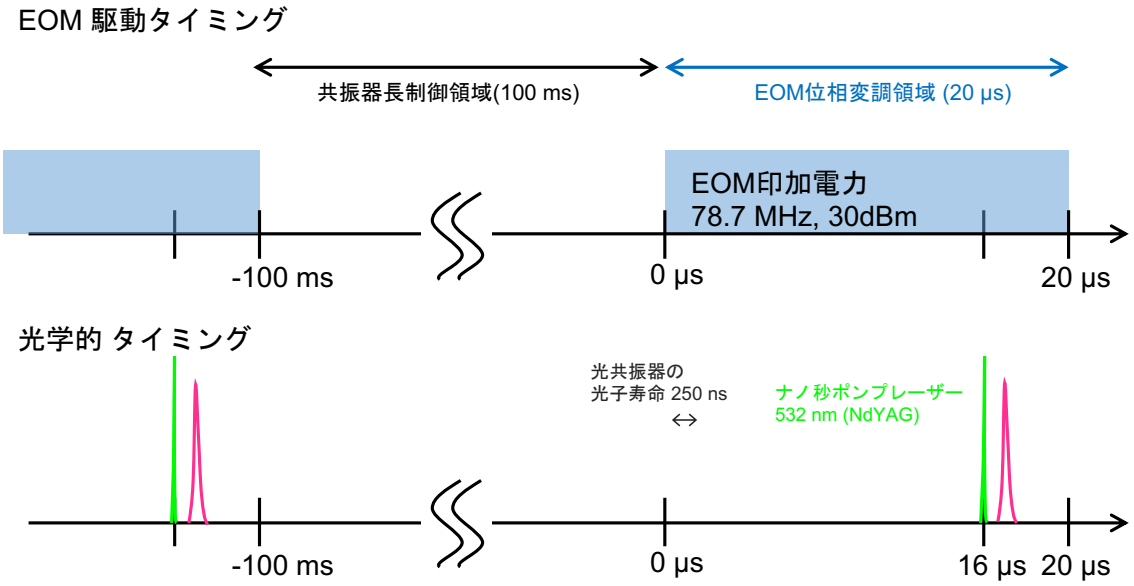


図 2.21　EOM 駆動系のタイミング図

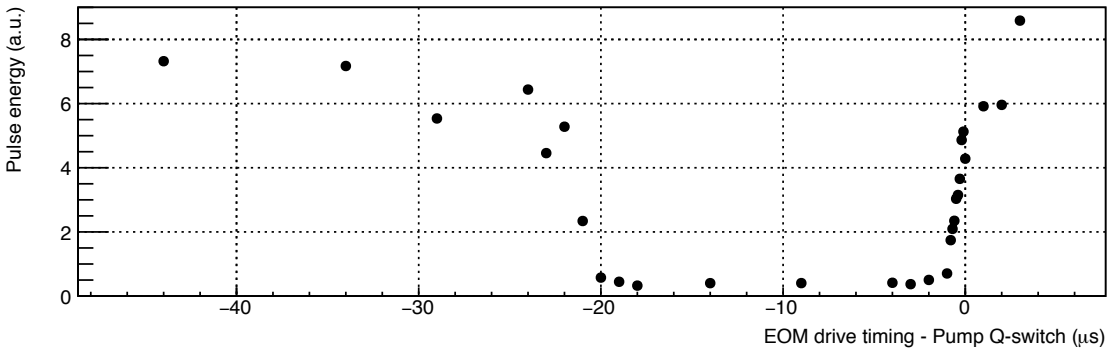


図 2.22　EOM が十分長時間駆動できていることの証拠

て入力する。EOM 駆動開始時間とポンプレーザーのタイミングを変えながら、共振器から出力されるパルスエネルギーを測定した結果を図 2.22に示す。共振器内の Ti:Sapphire 結晶を励起する時に EOM が駆動されている場合には、出力パワーが小さくなっていることがわかる[7]。さらに、出力パワーが小さくなる応答が EOM の駆動時間である 20 μs にわたって一定であるため、EOM の駆動時間 20 μs は十分長い時間であることがわかる。

[7] 出力パワーが小さくなるのは、光共振器中のシードレーザーのパワーが小さくなるためである。

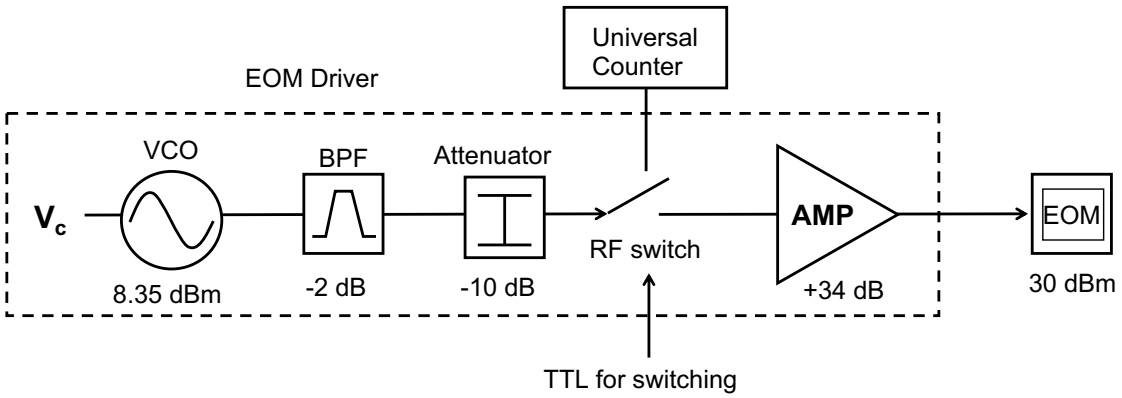


図 2.23　EOM 駆動システムの模式図。Vc: 制御電圧、VCO: Voltage Controlled Oscillator、BPF: Band Path Filter である。

2.4　パルススペクトル測定系

本研究ではレーザーを集光して Fabry-Pérot Etalon(エタロン) へ入射することで光周波数の広がりを空間的な広がりに変換し、レーザーの空間的な広がりを CCD カメラで撮影することによりレーザーのスペクトル広がりを測定する方法をとった [25]。エタロンは 2 枚の平面ミラーが向かい合わせになった光共振器である。写真を図 2.25に示す。

この方法の利点はレーザーパルス 1 発毎にそのスペクトル広がりを測定する事ができる点である。エタロンにレーザーを集光して入射するということは、様々な入射角で光共振器にレーザーを入射するという事である。これはレーザーを様々な共振器長の光共振器に入射することに対応する。レーザーのスペクトル幅が広い場合には、様々な共振器長の共振器に対して共振できるので、透過光の角度分布が広くなる。一方、レーザーのスペクトル幅が狭い場合には透過光の角度分布が狭いため、エタロンの透過光の空間的な広がりからレーザーのスペクトル広がりを求める事ができる。

パルスのスペクトル測定は注入同期型 Ti:Sapphire 共振器の出力パルスと、それをマルチパス Ti:Sapphire 増幅したものについて行なった。パルススペクトル測定系の写真を図 2.24に示す。アイソレーターはエタロンの戻り光が上流の光学系に戻るのを防いでいる。CCD カメラとしては LaserCam-HR(Coherent 社) を用いた。写真を図 2.26に、スペックを表 2.8に示す。

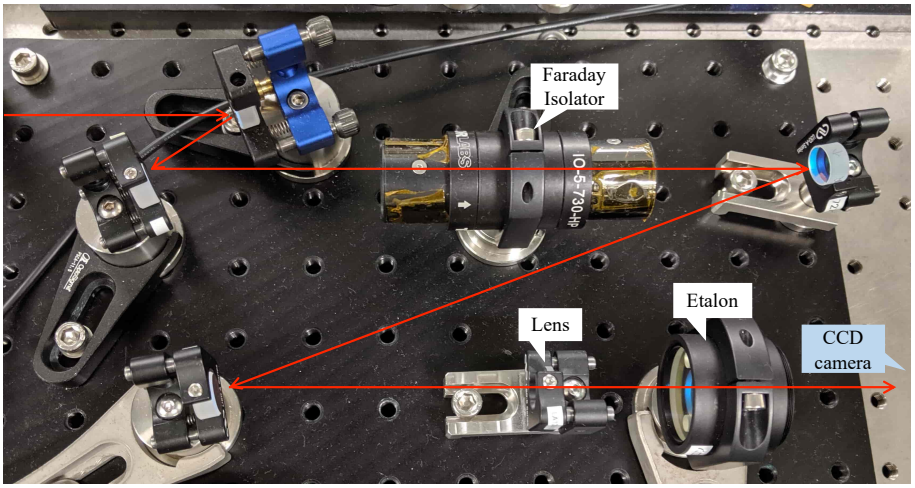


図 2.24　パルススペクトル測定系の写真

測定に用いるエタロンはシグマ光機で特注したエアギャップエタロンを用いた。目標の帯域に渡って測定が可能な様に FSR を設定し、十分な分解能が得られる様にフィネスを決定している。エタロンのスペックを表 2.7に示す。

CCD カメラには、光共振器中の Ti:Sapphire のポンプレーザーの Q-Switch のトリガー信号をトリガーとして与え、光共振器からのパルスの出力と同期して 10 ms の露光時間で干渉縞の撮影を行った。本研究で用いた光共振器はリング型であるため、光共振器からの出力は共振器内からの透過光と反射光が混じっている。そのため、CCD カメラの画像として広帯域パルス成分 (透過光) と狭線幅 CW 成分 (反射光) とが混じっている。CCD カメラの露光時間が 10 ms とパルスの時間幅 ∼500ns と比べて非常に長いため、パルス成分に対して CW 成分のエネルギーが無視できない大きさになり得る。

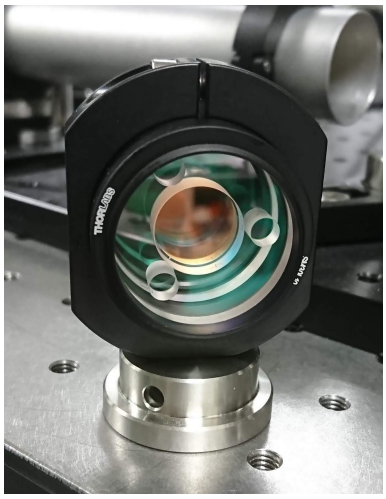


図 2.25　エタロンの写真

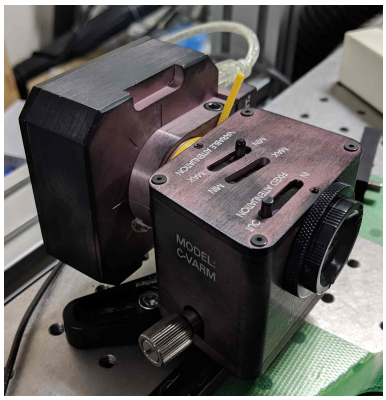


図 2.26　CCD カメラの写真

表 2.7　シングルパルススペクトル観測に用いたシグマ光機製エアギャップ型 Fabry-Pérot Etalon のスペック

	729 nm 用	243nm 用
共振器長	0.2 mm	0.3 mm
FSR	750 GHz	500 GHz
FWHM	2.4 GHz	3.7 GHz

表 2.8　CCDcamera のスペック

LaserCam-HR	Coherent 社
帯域	300 - 1100 nm
立ち上がり時間	150 μs
露光時間	10 ms

2.4.1　パルススペクトル測定器の性能評価

分光器の分解能と非理想的なレスポンス

分光器の分解能は ECDL の出力を分光器に入射して得られる干渉縞の幅から評価した。ECDL のスペクトル幅 (< 1 MHz) は分光器の分解能の設計値 (2.4 GHz) に比べて非常に小さいので、これにより得られた干渉縞の幅は分光器の分解能であるとみなす事が出来る。

エタロンによって得られた干渉縞の写真を図 2.27に示す。干渉縞が複数見られるが、これらは共振の次数が異なる。この干渉縞のうち一つだけを選んで CCD カメラで撮影し、その干渉縞の広がりの変化から光周波数の広がりの変化を評価する。CCD カメラで撮影した干渉縞を図 2.28に示す。図 2.28から評価した、分光器のレズポンスの測定結果を図 2.29に示す。大きな縞に続いて小さな干渉縞がいくつも連なっていることが確認できる。これは、レーザーのスペクトルがこの様な構造をしているわけではなく、スペクトル測定に用いているエタロンを構成する 2 枚のミラーが僅かに平行からずれていることによって引き起こされる [26]。本研究で使用したエタロンは 2 枚のミラーが 3 本のガラス柱によって固定されたエアギャップ型である。共振器

図 2.27　エタロンによる干渉縞。このうち一つの干渉縞の太さを CCD カメラで撮影し、スペクトル広がりを評価する。

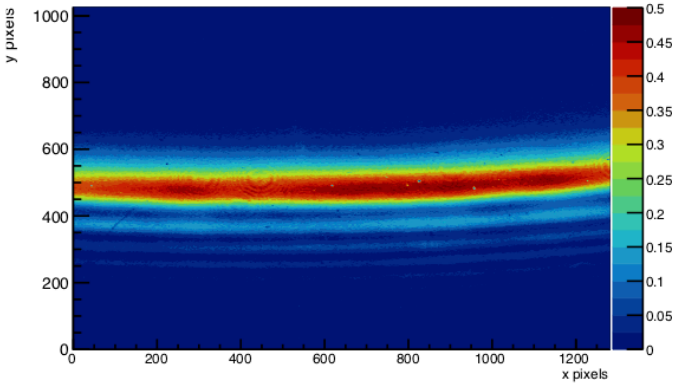


図 2.28　CCD カメラで撮影したエタロンによる干渉縞

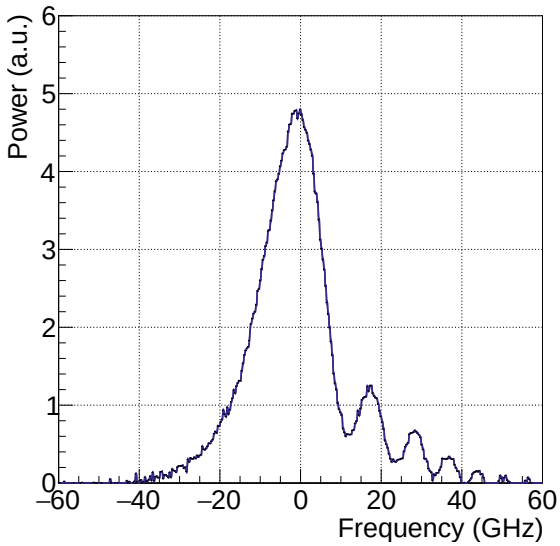


図 2.29　分光器のレスポンスの測定結果。図 2.28の 600≤ x <610 を y 軸に投影し、空間広がりを周波数広がりに変換している。

長が 0.2 mm と短いため支柱のわずかな長さの違いがミラーの平行度に影響しやすい。ミラーが固定されているため平行度を調整するのが困難である事、また現状のレスポンスでも全体の半値幅を読み取る事でレーザーのスペクトル広がりを評価することは出来ると判断し、このエタロンを用いてレーザーの広帯域化の評価を行った。

周波数変換の妥当性

CCD カメラで撮影した干渉縞の広がりから光周波数への変換は、次式によって行う事が出来る。

$$f = \frac{mc}{2d\cos\theta} = \frac{mc\sqrt{r^2+L^2}}{2dL} \tag{2.15}$$

c : 光速、m : 共振の次数、d : エタロンの共振器長、
θ: エタロン入射角、r 干渉縞の中心からの距離、L : エタロンとスクリーン間の距離

波長計 WS-60(High Finesse 社) を用いて、 (2.15) 式 による CCD camera の画像から周波数への変換の妥当性を評価した。WS-60 は自動校正機能付きの高精度波長計であり、絶対周波数精度は 60 MHz である。ECDL に印加する電流値を変えると出力されるレーザーのポインティングを変えることなく、レーザーの周波数のみを変化させることができる。

レーザーの周波数のみを変化させて分光器の応答を測定した結果が図 2.30である。分光器の応答を測定すると同時に ECDL の出力周波数を波長計で測定し、二つの結果を比較した結果を図 2.31に示す。 (2.15) 式 の共振の次数を m=548 とすることによって、二つの測定結果の絶対周波数が最も近くなった。m=548 は Etalon の共振器長が 199.71±0.01 μm であることに対応する、これはエタロンの設計精度 200±2 μm と一致している。図 2.31の結果を fit した直線の傾きは 0.91 であり、 (2.15) 式 により評価する周波数広がりと高精度波長計を用いて評価する周波数広がりは 9% の誤差がある。

(2.15) 式 による周波数広がりの評価は r や L の読み取り誤差により一様に 10% 程度の誤差が生じる。このパルススペクトル測定系では高精度な波長系によるスペクトルの較正が必要である。

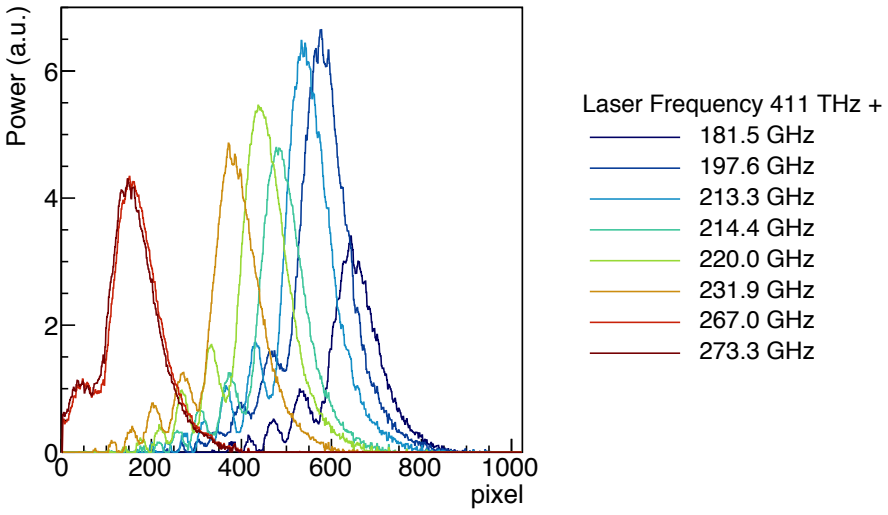


図 2.30　ECDL の周波数を変化させながら、自作の分光器でスペクトルを測定した結果。横軸は用いた CCD カメラのピクセル数、縦軸はパワーである。周波数に応じて CCD カメラに照射されるレーザーのパワーが変化しているが、これは分光器の応答ではなく、ECDL の出力パワーが変化している。

分光器の性能の均一性

本研究で用いるスペクトル測定系はその性質から、スクリーン上で分解能が厳密に一様ではない。エタロンへの入射角を θ とすると、このスペクトル測定系の分解能は次式でかける。

$$f_{\mathrm{FWHM}}(\theta) = \mathrm{FSR}(\theta)\frac{1}{\mathcal{F}} \tag{2.16}$$

$$= \frac{c\cos\theta}{2d}\frac{1}{\mathcal{F}} \tag{2.17}$$

$$= \frac{cr}{2d\sqrt{r^2+L^2}}\frac{1}{\mathcal{F}} \tag{2.18}$$

c : 光速、θ : エタロン入射角、d : エタロンの共振器長、r 干渉縞の中心からの距離、L : エタロンとスクリーン間の距離

(2.16) 式 を用いて、実験時の典型的な値として r = 36 mm、L = 445 mm。CCD カメラのセンサー部の大きさとして、δ r = 5 mm とすると、$\delta f_{FWHM}/f_{FWHM} = \pm 0.13$ である。

スクリーン上での分光器の分解能の分布を測定した結果を図 2.32に示す。スペクトル広がり評価の左右差に CCD カメラのスクリーン上で最大 15 % 程度誤差が生じる。

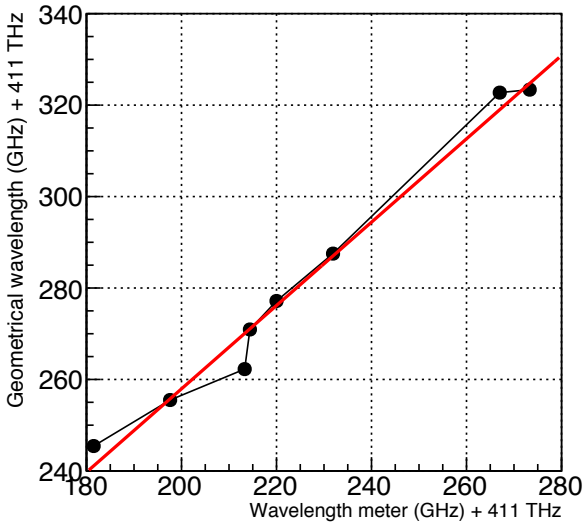


図 2.31　(2.15) 式 により得られた周波数と波長計による測定結果の比較。横軸が (2.15) 式 によって得られた周波数。縦軸が波長計 WS-60 によって測定した周波数。

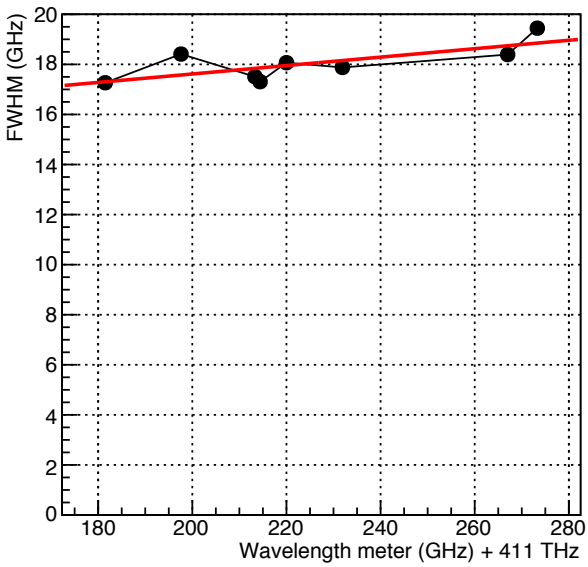


図 2.32　干渉縞の位置と幅の関係。図 2.31の FHWM に対応する。

2.5　マルチパス Ti:Sapphire 増幅器

本レーザーシステムでは Ps 冷却レーザーとして必要な 243 nm(Ps 1S-2P) の波長を得るために 3 次高調波生成により 729 nm を 243 nm に変換する。3 次の非線形効果であるため 3 次高調波生成効率は低い (<1 %) ので、243 nm で十分なパルスエネルギーを確保するためには 729 nm のパルスエネルギーの増幅が必要となる。243 nm で時間幅 300 ns かつパルスエネルギー 40 μJ を実現するために、729 nm で時間幅 500 ns [8]かつパルスエネルギー 5 mJ を実現することを目標とする。

Frequency Comb Generator(FCG) 単体でパルスエネルギー 5 mJ の 729 nm を実現することは出来ない。FCG では広帯域なパルスレーザーを実現するためにパルスレーザーとしては高いフィネス ($\mathcal{F}$ ∼100) の光共振器を用いてため、パルス発振時には光共振器中のレーザーパワーが大きくなり、光共振器中の光学素子が損傷してしまうためである。FCG の最大出力エネルギーは約 500 μJ であった。

729 nm パルスレーザーを増幅する方法として、本研究ではマルチパス Ti:Sapphire 増幅 (以下 マルチパス増幅) を採用する [27–29]。マルチパス増幅はシンプルな系で大きな出力エネルギーを得る事が出来るのが特徴である[9]。増幅原理としては、ポンプレーザーにより励起した Ti:Sapphire 結晶に 650-900 nm の被増幅パルスを複数回透過させることで、誘導導出によりパルスエネルギーを増幅する。

実際に構築したマルチパス増幅系の写真を図 2.33に示す。増幅性能としては、ポンプレーザーの最大出力を用いた時に、入力エネルギー 100 μJ で時間幅 >500 ns のレーザーパルスを時間幅 >500 ns を維持しながら 5 mJ にまで増幅することができている。用いた光学素子を表 2.10に示す。

2.5.1　Ti:Sapphire 結晶

Ti:Sapphire 結晶としては Brewster cut のものを用いる。結晶のスペックは表 2.9に示す。Ti:Sapphire 結晶水冷しており、さらに温度計とペルティエ素子によって結晶温度を約 20 度に保っている。ポンプレーザーは Half Beam Splitter によって 2 つに分割し Ti:Sapphire 結晶を両側から励起している。これにより、高エネルギーのナノ秒ポンプレーザーによる結晶表面の損傷を防ぐとともに、結晶励起効率を上げている。

表 2.9　Ti:Sapphire 結晶のスペック

結晶長	47 mm
端面	6×6 mm^2
Brewster angle	60.4°
Absorption coefficient $\alpha_{532\mathrm{nm}}$	0.50 ± 0.20
Figure of Merit($\alpha_{514\mathrm{nm}}/\alpha_{800\mathrm{nm}}$)	>500

表 2.10　マルチパス増幅系に用いた光学素子

729 nm	BB03-E02	Thorlabs
	BB05-E02	Thorlabs
	B-cating lens	Thorlabs
532 nm	TFMHP-25.4C05-532	シグマ光機
	TBSW41-532	Thorlabs
	A-coating lens	Thorlabs
	V-coating lens	Thorlabs

[8] 3 次高調波生成時に 3 時高調波の時間幅は基本波の $1/\sqrt{3}$ になる

[9] マルチパス増幅は共振器を組まないため系が単純である。また、共振器を組まないためミラーに照射されるレーザーパワーが小さく、ミラー上でビーム径を広げることが容易である。したがって光学素子が損傷しにくく、大きな出力エネルギーを得る事が出来る。

2.5.2　ポンプレーザー

ポンプレーザーとして Powerlite7030(Nd:YAG SHG, Amplitude 社) を用いた。Powerlite は繰り返し 30 Hz、時間幅 5 ns、出力パルスエネルギーは可変で最大 270 mJ/pulse である。Powerlite は本来 Flash lamp Q-SW 共に 30 Hz で駆動されるよう調整されたものであるが、FCG の繰り返し周波数が 10 Hz のため[10]、DG645 をもちいて Flash は 30 Hz、Q-SW は 10 Hz に分周して駆動している[11]。

2.5.3　ポンプレーザーのアラインメント

最大 270 mJ のナノ秒ポンプレーザーを輸送する上で、Half Beam Splitter の損傷閾値が最も低い (表 2.11)。光学素子の損傷を防ぎながら輸送を行うため、レンズによってビーム系を HBS の上流で広げてコリメートし、結晶の直前まで太いまま輸送する。結晶の直前で 2 枚のレンズを用いて十分なエネルギー密度になるようにビームを絞ってコリメートして結晶に入射するようにしている。ポンプレーザーの伝搬の模式図を図 2.34に

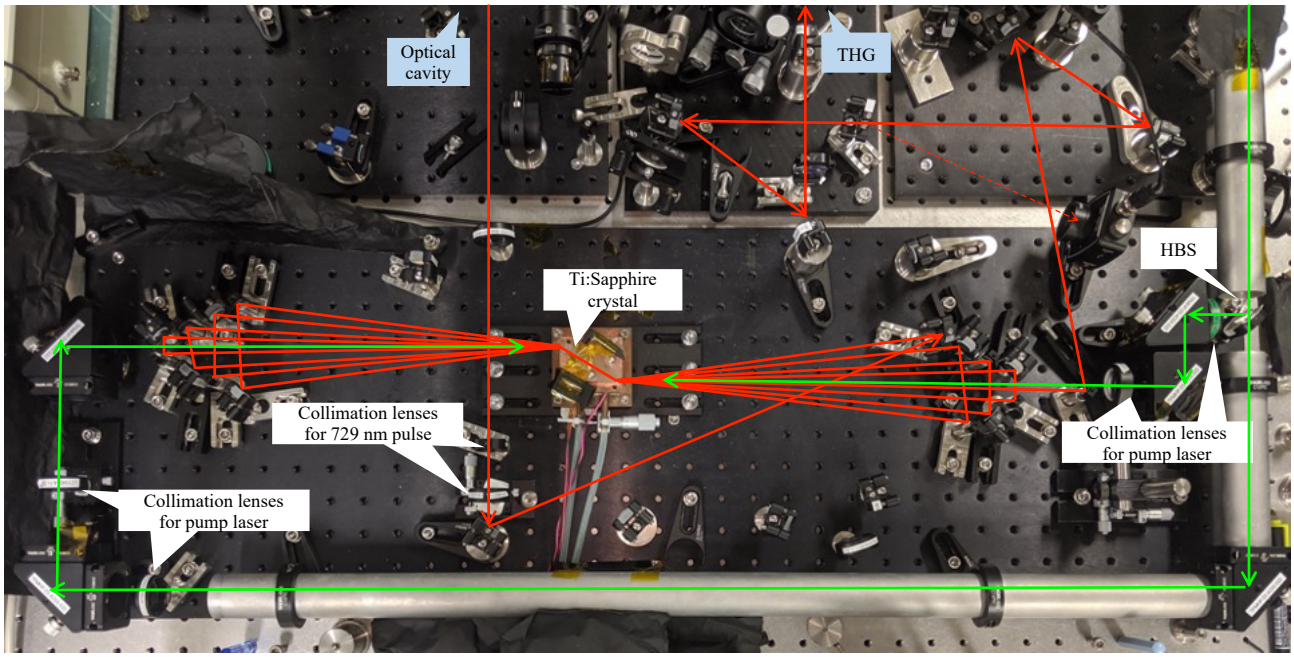


図 2.33　マルチパス増幅系の写真。系は 900 mm × 300 mm のブレッドボード上に構築されている。緑線が Ti:Sapphire 結晶を励起するのに用いるポンプレーザーの光路。赤線が増幅を行う 729 nm パルスの光路を示す。

[10] FCG の Ti:Sapphire 結晶のポンプレーザー Minilite の繰り返しが 10 Hz であるため。

[11] Flash Lamp を 10 Hz としない理由は、Powerlite の内の光共振器が 30 Hz の Flash を受けた時の Nd:YAG 結晶の熱レンズ効果込みで設計されているためである。実際、Flash を 10 Hz で駆動した時には、Laser プロファイルが TEM00 から崩れ、径も 30 Hz 駆動時と比べて広くなることが確認された。また、同様の理由で Powerlite は Q-switch を on にする前に Flash のみの warming up を 30 分程度しっかりと行うことが重要である。warming up が十分でないと、Nd:YAG 結晶が熱平衡に達していないため光共振器内の結晶の熱レンズが適切でなく、ビーム径が絞れ過ぎてしまうため、Powerlite 本体や、Ti:Sapphire 結晶の損傷につながる。

示す。

表 2.11　マルチパス増幅器のポンプレーザー部分光学素子の損傷閾値の一覧。ただし、532 nm, 10 ns, 10 Hz, 0.531 mm

ミラー	26.5 J/cm^2
レンズ	7.5 or 10 J/cm^2
HBS	1 J/cm^2
Ti:S	10 J/cm^2

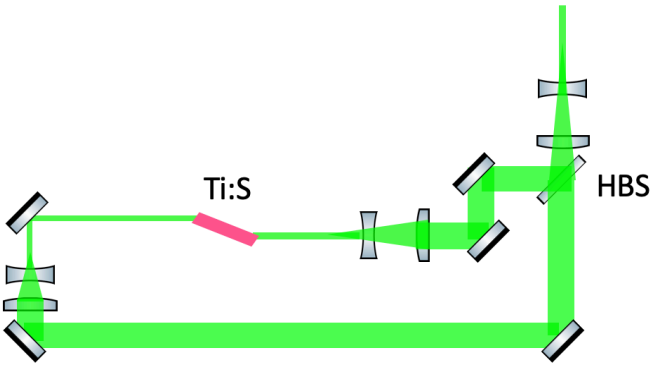


図 2.34　マルチパス増幅系のポンプレーザーの伝搬の模式図

損傷閾値の計算

マルチパス増幅で用いる高エネルギーのポンプレーザーは容易に光学素子を損傷させるので、次式にしたがってポンプレーザーのエネルギー密度を常に計算し損傷閾値と比較することで、光学素子 (特に Ti:Sapphire 結晶) を損傷しないように注意しながら実験を行った。

$$\begin{aligned}\text{Pulse energy density(J/cm}^2\text{)}^{12} = &\text{ Pulse energy(J)}\\ &/\pi\ (2\sigma)^2\\ &\times 2\ \text{(Peak density)}\\ &/2\ \text{(ポンプレーザー 2 分割)}\\ &\times 0.568\ (=\cos(29.6^\circ)/\cos(60.4^\circ), \text{Brewster angle factor})\end{aligned}$$

パルスエネルギーはパワーメーター (30A-P-17, Ophir) を用いて測定し、ポンプレーザーのビーム径は 2 重のビームサンプラーによりエネルギーを落としたうえでビームプロファイラーを用いて測定した。

2.5.4　729 nm パルスのアラインメント

729 nm パルスは Ti:Sapphire 結晶を 8 回透過するように設計した。透過回数は多くするほど結晶のエネルギーを効率よく使用することになり、出力エネルギーが大きくなる。ただし、結晶への入射角が Brewster 角から外れすぎると、結晶面での反射が大きくなりロスが生まれることに加え、729nm パルスが結晶の端面からはみ出すことによる立体的なロスも生まれるため、結晶への入射角は Brewster 角に近くする必要があるが、これは透過回数が多くなるほど難しくなる。そこで、可動ミラーマウントに乗せた $\phi = 1/2$”のミラーと、固定ミラーマウントに乗せた ϕ =7 mm のミラーを交互に用いることで、十分なアラインメントの自由度を確保しながら系をコンパクト化し、8 回の入射角の Brewster 角からのズレを 9 度以内に抑えた。アラインメントの結果、8 回の合計の透過率は最大 60 % 弱となった。

[12] 実際に増幅に使われるエネルギー密度としては Pulse energy density に対して吸収効率と Stokes 効率 (=532/729) が掛かる。

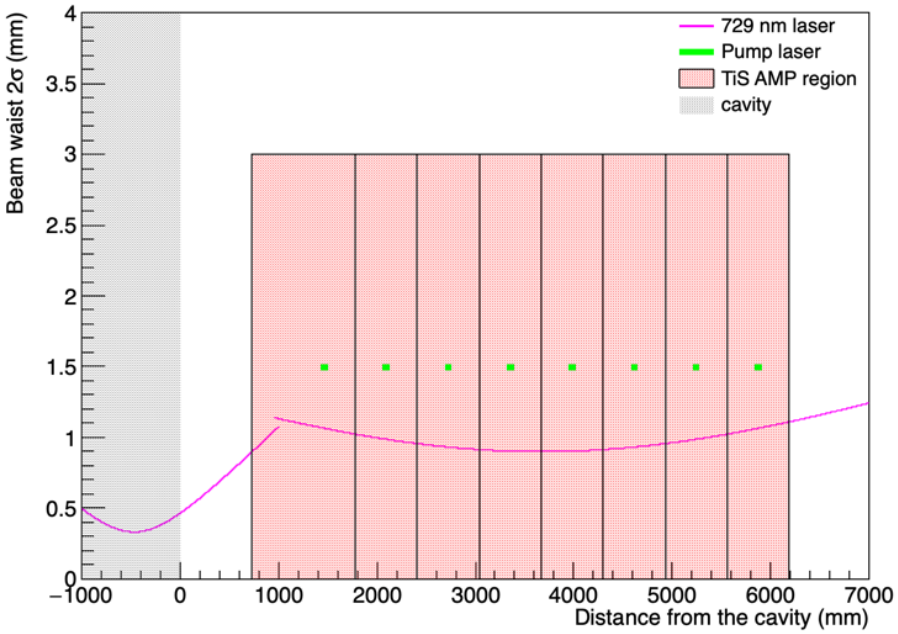


図 2.35　マルチパス増幅系のビームの伝搬。ガウシアンフィット時の 2σ を半径としてプロットしている。ポンプレーザーの伝搬距離は実際には Ti:Sapphire 結晶長さの 40 mm であるが、拡大して表示している。

2.5.5　ビーム径

増幅する 729 nm のパルスのビーム径とポンプレーザーのビーム径は増幅するパルスがポンプレーザーの中に収まるように調整した。調整した結果を図 2.35に示す。729 nm のビームプロファイルは、光共振器が許す横モードからマルチパス増幅系までの距離とレンズの配置を考慮して計算したものをプロットしている。一方、ポンプレーザーについては Ti:Sapphire 結晶の直前でビームプロファイラにより測定したものをプロットしている。

2.6　波長変換

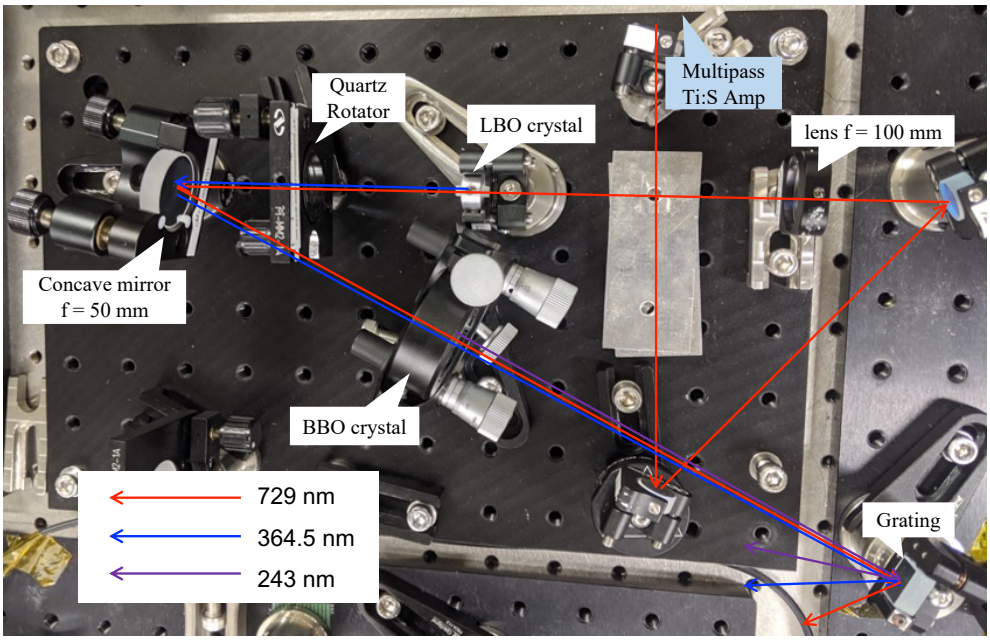


図 2.36　3 次高調波生成系の写真

非線形結晶を用いて 3 次高調波生成を行うことで 243 nm の冷却レーザーを生成する。729 nm を基本波として、それを LBO 結晶を透過させることによって 2 次高調波生成を行い、基本波と 2 次高調波を BBO 結晶に透過させることによって和周波生成を行い 243 nm の 3 次高調波を生成する。3 次高調波生成系の写真を図 2.36に示す。3 次高調波生成系を構成する光学素子を表 2.12に示す。

3 次高調波生成後、基本波と 2 次高調波と 3 次高調波はほとんど空間的に重なって[13]出力される。微弱な 3 次高調波は、回折格子またはプリズムで分光してスクリーンに当てることで確認した[14]。回折格子は回折角から周波数が推測できるため、偽のシグナルとの区別が付きやすいので初めて高次高調波を確認するときに用いた。一方、プリズムを用いた分光は異なる波長の光が重ならない上、望みの周波数のブリュースター角で用いることができるため、レーザーパワーの損失が少ない。従って初めてシグナル確認した時以外はプリズムを用いた分光を行なった。回折格子によって分光した時の様子を図 2.37に、プリズムによって分光した時の様子を図 2.38に示す。

3 次高調波が生成されていることは、分光計を用いて確認した。分光計 (CCS200/M, Thorlabs) を用いて 3 次高調波生成時のレーザーのスペクトルを測定した結果が図 2.39 であり、3 次高調波生成に成功していることがわかる。

CCS200/M は UV まで絶対波長を測定できるが、絶対波長精度が 2 nm であるため、3 次高調波が正確に

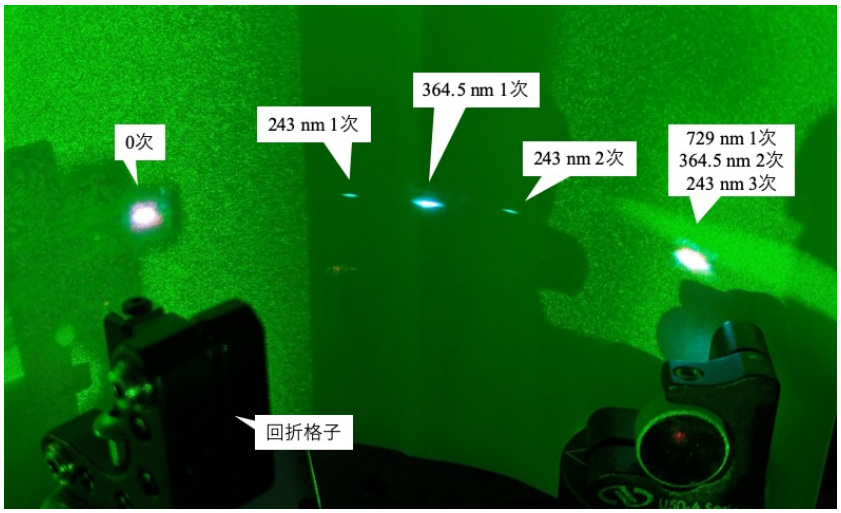
[13] walk off 角の分だけずれる。

[14] スクリーンとしてはフジブロ WP と市販の黄色い蛍光ペンをコピー用紙に塗ったものを試したが、微弱な 243 nm の光を確認するには蛍光ペンが適していた。

243 nm であることは、可視光領域で絶対周波数精度が 60 MHz[15] の波長計 (WS60、High Finesse 社) を用いて基本波の波長が 729 nm であることを確認することで間接的に確認している。

表 2.12　3 次高調波生成系に用いた光学素子

回折格子	GH13-18U, Thorlabs
プリズム	ADBV-10, Thorlabs
グランレーザープリズム	GL10, Thorlabs
Quartz rotator	Crystalline quartz polarization rotator 532nm 45°, Edmund
LBO crystal	$3 \times 3 \times 10$ mm^3, optical axis $\theta = 90°$, ϕ=39.5°
BBO crystal	$5 \times 5 \times$ mm^3, optical axis $\theta = 50.8°$, ϕ=0°
レンズ	LA-1251-B, Thorlabs
凹面ミラー	CM254-050-01, Thorlabs



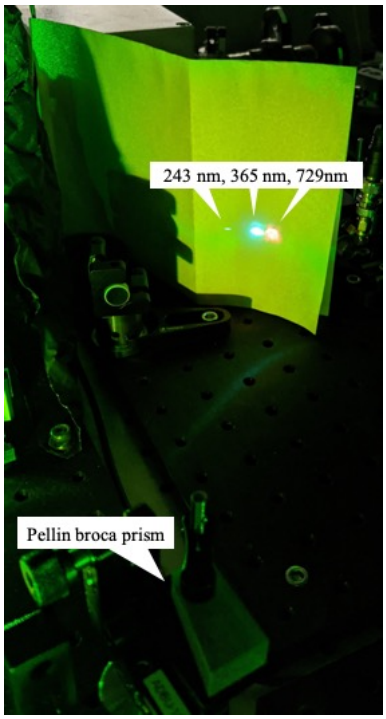


図 2.37　左図: 3 次高調波生成後のレーザーを回折格子に当てて分光しスクリーンに当てた結果。

図 2.38　右図: 3 次高調波生成後のレーザーを pellin broca prism で分光しスクリーンに当てた結果。スクリーン上左の小さな明点が 243 nm、中央の青い点が 364.5 nm、右の赤い点が 729 nm である。

[15] 729 nm においては絶対波長精度 0.1 pm

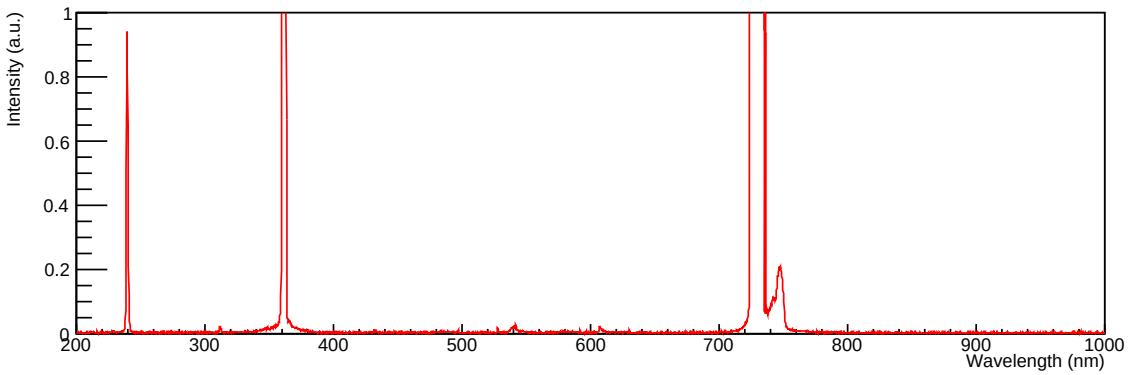


図 2.39　3 次高調波生成時の光スペクトル。右から順に 729 nm・基本波、364.5 nm・2 次高調波、243 nm・3 次高調波のピークが見られ、3 次高調波生成が出来ていることがわかる。

第 3 章

Frequency Comb Generator の理論計算

Ps のレーザー冷却を行う上で重要なことは、広帯域かつ長時間幅のレーザーパルスを用いることである。そのために本研究では Frequency Comb Generator(FCG) 中で Ti:Sapphire 結晶を用いてパルス的なゲインを与えることで、FCG の広帯域なスペクトルを反映しながら光共振器の光子寿命によって決まる長時間幅を持つパルスレーザーを作り出す。

FCG とは光共振器中に位相変調を行う EOM を置くことで高次までサイドバンド生成を行うレーザーシステムであり、[30] によって初めて提案された。EOM の変調周波数は光共振器の許す光周波数間隔である Free Spectrum Range(FSR) と合わせることで、EOM によって生成される周波数空間で等間隔に生成されるサイドバンドが全て光共振器中で共振することになる。さらに、光共振器中に閉じ込められたレーザーは光共振器中を周回するごとに EOM によって変調を受けるので、サイドバンドは高次まで生成され、それらが全て光共振器中で共振する。周波数空間上では、等間隔にサイドバンドが立つ櫛状の構造をしているため Frequency Comb と呼ばれる。時間波形としてはそれらの周波数モードが重なりあって等間隔の短パルスレーザーが発振されるという特徴がある。連続発振の CW レーザーを光共振器中に共振させながら、周波数を調整した EOM を光共振器中で連続駆動させると、等しい短パルスが等間隔に出力されるという意味で、本研究ではこれを定常 FCG と呼ぶことにする。定常とは呼ぶが、CW レーザーではなく短パルスレーザーであることは注意が必要である。

一方、本研究で開発した非定常 FCG では、定常 FCG を初期条件として、光共振器中にパルス的にゲインを印加する。これによって、等しいパルスレーザーが出力される状況から、出力される短パルスのエネルギーが増幅され、その後光共振器中のゲインがなくなると短パルスのエネルギーが小さくなっていくということが予想される。つまり、短パルスのエネルギーが長時間幅のパルス的な構造をもって増幅されることになる。

定常的な FCG の性質についてはよく研究されているが [30–32]、その中でパルス的にゲインを与えた時の非定常的な振る舞いについては研究されておらず、その時間特性や周波数特性は非自明である。

そこでまず、単純な定常的 FCG の振る舞いについて簡単な理論計算によって考察し、その後数値計算によって非定常的な場合の FCG の振る舞いについて考察する。

3.1 定常 Frequency Comb Generator の理論計算

位相変調は数式では次のようにかける。Jacobi Anger expansion より右の等式が成り立つ。

$$E_0 e^{i\omega t} \to E_0 e^{i\omega t} e^{i\beta \sin \Omega t} = E_0 e^{i\omega t} \sum_{k=-\infty}^{\infty} J_k(\beta) e^{i\Omega t} \tag{3.1}$$

位相変調器を光共振器中に配置してレーザーに対して、位相変調を n 繰り返した場合は次のように書ける。

$$E(t) = E_0 e^{i\omega t} e^{i\beta \sin \Omega t} e^{i\beta \sin \Omega (t-T)} e^{i\beta \sin \Omega (t-2T)} \cdots e^{i\beta \sin \Omega (t-(n-1)T)} \tag{3.2}$$

ここで、位相変調が理想的に行われている場合、すなわち $\Omega T \in 2\pi\mathbb{N}$ の時は共振器中の電場は次の様に書ける。

$$E(t) = E_0 e^{i\omega t} e^{in\beta \sin \Omega t} \tag{3.3}$$

ここで重要なのは、変調深さが $n\beta$ の EOM で 1 回変調を受けたレーザーのスペクトルと、変調深さが β の EOM で n 回変調を受け合計 $n\beta$ の変調を受けたレーザーのスペクトルは等しいということである。実際には光共振器には有限のロスが存在し、光共振器一周あたりの反射率を r とすると、

$$E(t) = E_0 e^{i\omega t} r^n e^{in\beta \sin \Omega t} \tag{3.4}$$

さらに、光共振器中には定常的にシードレーザーが注入されているので、光共振器中には共振器中を 1 周、2 周、$\cdots$、n 周した電磁波が足しあわされたものが定常状態として存在する。つまり次の様に書ける。

$$E(t) = E_0 e^{i\omega t} \sum_{n=0}^{\infty} r^n e^{in\beta \sin \Omega t} \tag{3.5}$$

これをフーリエ変換すれば FCG の定常状態のスペクトルが得られる。しかし、このフーリエ変換の結果は単純ではないので、次の様に考えることによって光共振器中の電磁波のスペクトルの近似式を得る。

第 1 種ベッセル関数 $J_k(\beta)$ の性質に注目する。まず、第 1 種ベッセル関数 $J_k(\beta)$ については次の恒等式が成り立つ。

$$J_{-k}(\beta) = (-1)^k J_k(\beta) \tag{3.6}$$

つまり、位相変調によって作られるマイナス方向のサイドバンドは、奇数次のサイドバンドの位相が反転しているという違いを除いてプラス側のサイドバンドと同じである。

図 3.1にベッセル関数の性質を図示する。 (3.4) 式 と Jacobi Anger Expansion より、左図は EOM 入り光共振器により合計 β^{total} の位相変調を受けたレーザーのスペクトルの係数を示している。また、図 3.2にベッセル関数の最大値を与える次数を示す。図より、合計 β^{total} の変調を受けたレーザーは $\nu \sim \beta^{total}$ の次数のサイドバンドのパワーが最大となることがわかる。つまり、1 回あたりの変調深さを β とした時、レーザーは変調が繰り返されて合計の変調が大きくなるにつれて、$\pm\beta$ 次高次のサイドバンドにパワーが移って周波数がシフトするということが起こる。

レーザーは EOM によって一回位相変調を受ける事に、サイドバンドの次数が β だけずれながら光共振器のロスにより減衰を受けていく。光共振器中には定常的に CW レーザーが注入されているので、レーザーの周波数が EOM によってずれながら異なる変調回数の光が重なり合って定常的に広帯域なスペクトルが出力されるというのが定常 FCG の描像である。

以上から、レーザーのスペクトルとしては周波数は光共振器によって許された f_m 間隔の離散的なものとなるが、この離散的な周波数スペクトルの包絡線として、次の関係式が成り立つことが予想できる。

$$P(\nu_0 + \nu) \propto R^{-|\nu|/\beta f_m} \tag{3.7}$$

$$\nu_{\mathrm{FWHM}}^{\mathrm{cw}} \simeq -\frac{2\beta f_m \ln 2}{\ln R} = \frac{\beta f_m \mathcal{F} \ln 2}{\pi}\ (\mathrm{Hz}) \tag{3.8}$$

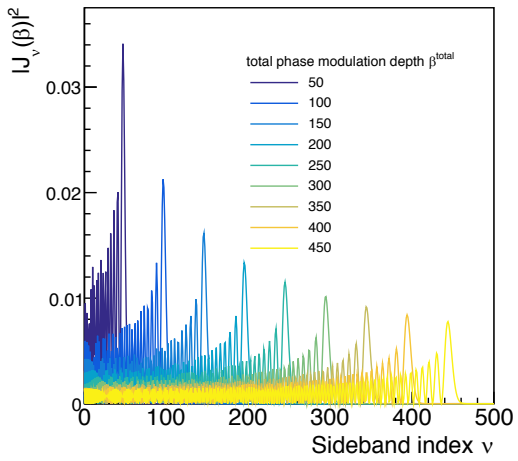


図 3.1 第 1 種ベッセル関数の性質。左図は横軸がサイドバンド次数、縦軸が $J_\nu(\beta)^2$ である。変調深さ β を変えている。

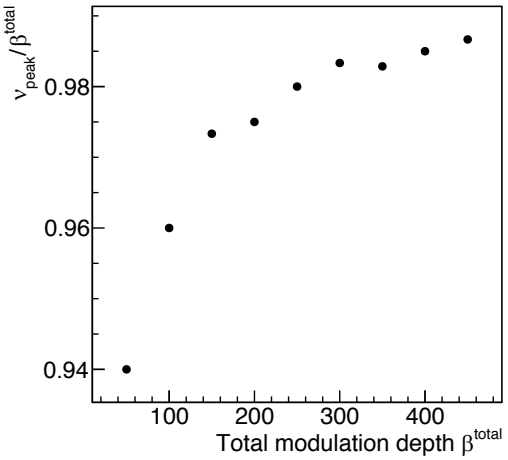


図 3.2 第 1 種ベッセル関数の最大値を与える次数。次数が $\nu \sim \beta$ のサイドバンドのパワーが最大となる。

ここで、$P(\nu)$ はレーザーのパワースペクトルの包絡線、ν^{cw}_{FWHM} は包絡線の半値全幅である。これは [30] における関係式と一致する[1]。また、(3.5) 式 のフーリエ変換及び次節で後述する第一原理的なレーザースペクトルの計算とこの関係式を比較することによって、この関係式が良い近似を与えることは確認できている (図 3.6)。

3.2 非定常 Frequency Comb Generator の数値計算

ここまでは、定常 FCG について議論してきた。定常 FCG ではレーザーは位相変調を受けるたびに周波数が βf_m だけずれながら減衰をうけていくが、光共振器に対して定常的な CW レーザーの注入があるため、変調回数の異なる光が重なり合って広帯域なレーザースペクトルが定常的に得られていることがわかった。

ここから、定常 FCG を初期条件として光共振器内にパルス的にゲインを印加した場合のレーザー発振のダイナミクスについて考える。上で述べた定常 FCG の描像に基づくと、非定常 FCG ではゲインが印加されて光共振器内のレーザーが増幅されていくにつれて、新たに光共振器に注入される増幅を受けていない CW レーザーの寄与は小さくなっていくことが予想される。共振器内で支配的なのは、ゲインを与える直前に光共振器内に存在した電場であり、それらは増幅を受けながら 1 周毎に EOM によって周波数が $\pm\beta f_m$ ずれていく。従って非定常 FCG においては、定常 FCG のスペクトル構造を反映した、± 両方向に光周波数チャープする長時間幅のパルスレーザーが得られることが予想される。チャープ速度は次の様に与えられる。

$$\text{chirp speed} = \pm\beta \mathrm{f_m/T} = \pm\beta \mathrm{f_m FSR\ (Hz/s)} \tag{3.9}$$

次節で後述する第一原理的な数値計算との比較によってこの関係式が良い近似を与えることは確認できている (図 3.11)。

[1] [30] においては、$f_{fwhm} = \beta F 2\ln 2/\pi$ と 2 倍ずれているが、これは光共振器が Fabry-Pérot 型であることと、Ring 型であることの違いによる。Fabry-Pérot 型の場合は光が光共振器中を 1 周する間に EOM による位相変調を 2 回受けるため、帯域が 2 倍広くなる。

定常 FCG については上記の様に容易にレーザーのスペクトルを計算することが可能であり、[30] において数値計算と実験による実証がなされている。しかし、非定常 FCG の場合には光共振器内の電場を (3.5) 式 の様に簡単に計算することは出来ないため、非定常 FCG の厳密な発振の振る舞いは非自明である。そこで、光共振器中のレーザーの時間発展を第一原理的に計算することによって、この系のレーザー発振の時間特性と周波数特性を議論する。

また、第 3.1 節における議論は EOM の駆動周波数と光共振器の FSR が完全に一致しているという理想的な条件でしか成り立たない。以下に述べる数値計算では EOM の駆動周波数と FSR がずれている場合や、レーザーの光周波数が光共振器の共振周波数からずれている場合といった非理想的な条件においても計算可能であるという利点がある。

3.2.1 方針

リング型共振器中の複素電場振幅 E(t) の時間発展を計算し、それをフーリエ変換することで共振器から出力される広帯域長パルスのスペクトルを計算する。Ti:Sapphire 結晶による増幅は Frantz Nodvic 方程式 [33] を用いて記述する。

3.2.2 setup

リング型共振器のパラメーターとしては、測定値に基づいて表 3.2を仮定する。共振器に入力するシードレーザーの波長とパワー (入力フルーエンス)、結晶に蓄えられた、増幅に使われるエネルギー密度 (J_{sto})、EOM の変調深さと変調周波数が自由パラメーターであり、典型値を表 3.1に示す。重要な従属パラメーターを表 3.3に示す。J_{out} は増幅後の出力パラメーターであり、Frantz Nodvic 方程式によってその値が決まる。

表 3.1 自由パラメーター

	典型値
波長 λ	729 nm
変調深さ β	2.3 rad
変調周波数 f_m	78.7 MHz
J_{sto}	0.35 J/cm^2
入力フルーエンス J_{in}	10 mW × dt[2]/0.1 mm^2 J/cm^2

表 3.2 光共振器のパラメーター

共振器長さ L	729 nm×5225387 ≃ 3.8 m
カップラーのパワーに対する透過率 T_r	0.02
光共振器 1 周あたりのパワーに対する反射率 R	0.95
Ti:Sapphire 結晶の蛍光寿命 τ	3.2 μs

[2] dt は数値計算の time step

3.2.3 近似の条件

シードレーザーの線幅は無限小を仮定する。つまり共振器に注入されるシードレーザーは次のようにかける。

$$E_{cw}(t) = E_0 e^{i\omega t} \tag{3.10}$$

ω を $\delta\omega$ の幅のランダム変数に置き換えれば数値計算にシードレーザーと光共振器の相対的な有限の線幅を取り込むことができると考えられる。EOM の周波数線幅も無限小を仮定しているが、これについても同様である。

3.2.4 初期条件

$$E(t) = \frac{|E_0| t_r}{\sqrt{(1-r)^2 + 4r\sin^2(\phi/2)}} e^{i\omega t} \ (t < 0) \tag{3.11}$$

$$E_{cw}(t) = E_0 e^{i\omega t} \ (-\infty < t < \infty) \tag{3.12}$$

$$J_{sto}(t) = \begin{cases} 0 & (t < T_0^{\mathrm{gain}}) \\ J_{sto} & (t = T_0^{\mathrm{gain}}) \end{cases} \tag{3.13}$$

初期条件としては、EOM を駆動せず基底状態の Ti:Sapphire 結晶を仮定する。つまり、シードレーザーが光共振器中に定常的に共振している状態である。 (3.11) 式 の ϕ はレーザー周波数と共振器長の位相ずれである。この条件から、t=0 で EOM による変調を開始し共振器内の電場が定常状態になるまで共振器内の電場を時間発展させていく。定常状態に達したところで、結晶をポンプレーザーによって励起し増幅を開始させる。結晶の励起は一瞬で行われると仮定する。結晶励起時刻 T_0^{gain} は共振器が定常状態に達するのに十分長い時間に設定する。

3.2.5 時間発展

E(t), Jsto(t) を次の様に時間発展させることで、Frequency Comb Generator から出力される電場の時間発展を計算することができる。T = L/c は光共振器を光が一周する時間、G(t)($\in \mathbb{R}$) は電場振幅に対する Ti:Sapphire 結晶のゲイン、E(t)($\in \mathbb{C}$) は光共振器の入り口における電場振幅である。

表 3.3 重要な従属パラメーター

光共振器一周時間 T	L/c = 12.7 ns
カップラーの電場に対する透過率 t_r	$\sqrt{T_r}$
光共振器 1 周あたり電場に対する反射率 r	$\sqrt{R}$
FSR	78.7 MHz
Finesse	122.5
光子寿命	247 ns
変調角周波数 Ω	$2\pi f_m$

電場の時間発展

$$E(t) = E_{cw}(t) + E(t-T)rG(t) \times e^{i\beta \sin \Omega t} \tag{3.14}$$

結晶の時間発展

$$J_{in}(t) = \frac{|E(t)|^2}{2\epsilon_0} c\mathrm{dt} \tag{3.15}$$

$$J_{out}(t) = J_s \log(\exp(\frac{J_{sto}(t)}{J_s})(\exp(\frac{J_{in}(t)}{J_s}) - 1) + 1) \tag{3.16}$$

$$G(t) = \sqrt{J_{out}(t)/J_{in}(t)} \tag{3.17}$$

$$J_{sto}(t+dt) = (J_{sto}(t) - J_{out}(t) + J_{in}(t)) \times e^{-dt/\tau} \tag{3.18}$$

電場の時間発展は (3.14) 式 に示す様に、周期 T の再帰的な式によってかける。時間 T 後の電場は一周前にその場所に存在した電場に対して変調、結晶のゲイン、光共振器のロスを加えることで導ける。

結晶の時間発展は Frantz Nodvic 方程式に基づいて計算する。 (3.15) 式 により結晶に入力するエネルギー密度を計算し、 (3.16) 式 により増幅された出力エネルギー密度を計算する。 (3.17) 式 により電場に対する増幅率を計算し、これを電場の時間発展 (3.14) 式 に用いる。レーザーを増幅すると、その分のエネルギーが Ti:Sapphire 結晶から失われる。さらに Ti:Sapphire 結晶の寿命 τ で結晶のエネルギーが減衰する様子を (3.18) 式 で表している。

参考として 1 周目、2 周目、3 周目の共振器内の電場の時間発展 $\mathrm{E}^{(n)}(\mathrm{t})$ を書き下すと次のようになる。

$$\begin{aligned} E^{(1)}(t) &= t_r E_{cw}(t) \\ &= t_r e^{i\omega t} \end{aligned} \tag{3.19}$$

$$\begin{aligned} E^{(2)}(t) &= t_r E_{cw}(t) + E^{(1)}(t-T) \times r \times G(t) \times e^{i\beta \sin \Omega(t)} \\ &= t_r e^{i\omega t} + t_r e^{i\omega(t-T)} \times r \times G(t) \times e^{i\beta \sin \Omega(t)} \\ &= t_r e^{i\omega t}(1 + e^{-i\omega T} r G(t) e^{i\beta \sin \Omega(t)}) \end{aligned} \tag{3.20}$$

$$\begin{aligned} E^{(3)}(t) &= t_r E_{cw}(t) + E^{(2)}(t-T) \times r \times G(t) \times e^{i\beta \sin \Omega(t)} \\ &= t_r e^{i\omega t} + t_r e^{i\omega(t-T)} \times rG(t) e^{i\beta \sin \Omega(t)} + t_r e^{i\omega(t-2T)} \times rG(t-T) e^{i\beta \sin \Omega(t-T)} \times rG(t) e^{i\beta \sin \Omega t} \\ &= t_r e^{i\omega t}(1 + e^{-i\omega T} r G(t) e^{i\beta \sin \Omega t} + e^{-i2\omega T} r^2 G(t-T) G(t) e^{i\beta(\sin \Omega(t-T) + \sin \Omega t)}) \end{aligned} \tag{3.21}$$

以上に基づいて共振器中の電場振幅を計算することで、光共振器から出力されるパルスの時間波形を計算することができる。さらにここで適当な時間窓をとってフーリエ変換を行うことで、このパルスのスペクトルを計算することができる。

また、 (3.19) 式 - (3.21) 式 からわかる様に、常に $E(t) = t_r e^{i\omega t}(\cdot)$ と因数分解することができるため、スペクトルを評価する上で光の周波数成分の位相項は無視して良い。畳み込み定理から時間空間での掛け算は周波数空間での畳み込みに対応するため、光周波数の位相項を無視して計算した電場のスペクトルは、光の中心周波数周りのスペクトル広がりを計算することに対応する。つまり、数値計算の時間ステップは光の周波数ほど細かく取る必要はなく、EOM により広がる帯域が収まる様に設定すれば十分である。今回は時間ステップを T/16384 $\simeq$ 0.77 ps と設定し、中心周波数周りの計算できる帯域は ±FSR×8192 $\simeq$ ± 650 GHz に設定した。以下の数値計算では光の周波数の位相項は無視する。

3.3 結果

3.3.1 時間波形と定常 FCG

まず、非定常 FCG の初期条件である、定常 FCG を計算する。EOM を駆動しない状態での定常状態を仮定した。つまり、シングルモードのレーザーが光共振器中で共振している状態である。その状態で t=0 で EOM を駆動し始めて、共振器中の電場が定常状態になるまでの時間発展を計算した結果を図 3.3に示す。これにより、t=8000 ns で定常 FCG に達していると判断し、非定常 FCG を計算するために光共振器中にゲインを与えるのは t=8000 ns とした。左図で波形が徐々に黒く潰れているのは、サイドバンドが生成されることで徐々に短パルスが立っていくためである。右図は左図の短パルスがなまされるように時間平均をとったものである。これによると、光共振器中で EOM を連続駆動すると、光共振器中で共振する光の平均パワーが小さくなることがわかる[3]。これは (3.6) 式 からわかる様に、位相変調によって作られるマイナス側のサイドバンドは位相が反転するので、弱め合いが生じて光共振器中に共振する光のパワーが小さくなってしまうことに由来すると考えられる。

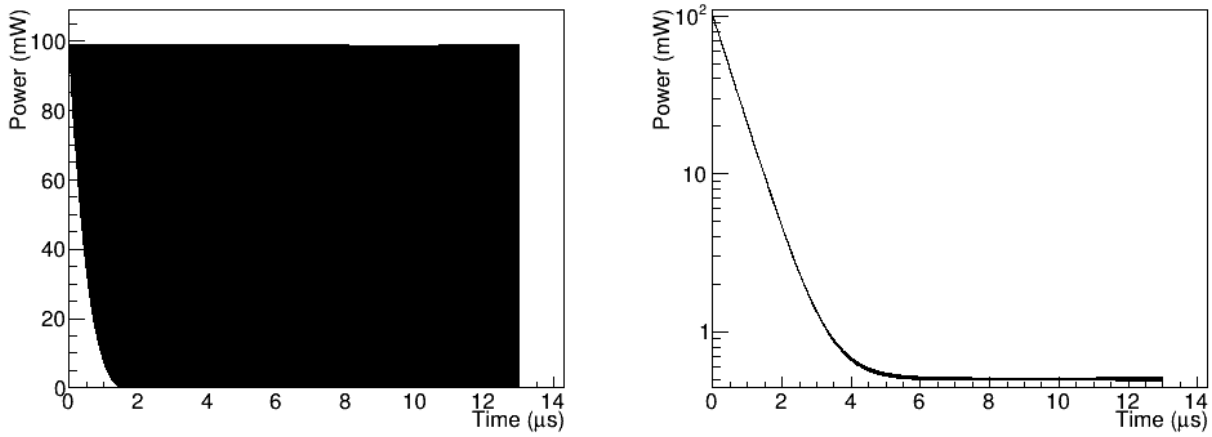


図 3.3 t=0 で EOM を駆動し、定常 FCG に達するまでの時間発展。右図は左図を時間平均したもの。

定常 FCG の時間波形を拡大したものを図 3.4に示す。等間隔に等しい短パルスが発振されているのが確認できる。短パルス発振の時間間隔は T/2 である。つまり、光共振器中を 2 つの短パルスが周回している状況である。短パルスの波形 1 つに注目してさらに拡大したものを図 3.5に示す。パルス波形は Lorentzian であり、その時間幅は約 20 ps となっている。これは理想的な条件での数値計算であり、各サイドバンドの位相関係が揃っているためこの様に短いパルスが得られているが、実際の実験ではここまで短パルスのレーザー発振は起こらないと思われる。

以上によって得られた t=8000 ns 以降の定常 FCG の時間波形をフーリエ変換することによって得られる定常 FCG のスペクトルを図 3.6に示す。サイドバンドのパワーは指数的に減衰していき、その包絡線は (3.7)

[3] これが原因で、光共振器中で EOM を駆動する場合にはシードレーザーのパワーが不十分となり、Ti:Sapphire 結晶の自己発振の効果が大きくなり出力エネルギーが実効的に小さくなってしまう。

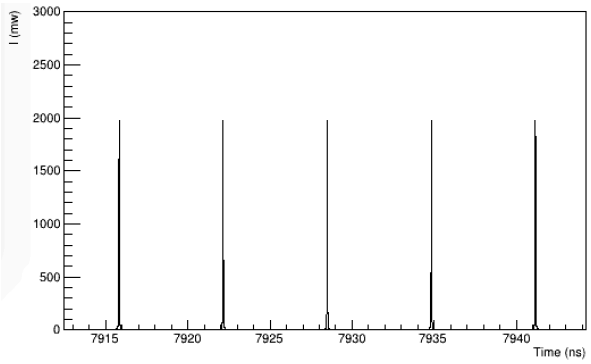


図 3.4 定常 FCG から定期的に短パルスが出力されている様子。パルス間隔は T/2 になっている。

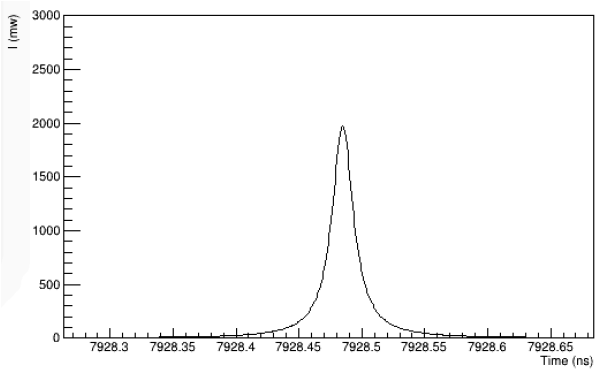


図 3.5 定常 FCG の短パルスを拡大したもの

式 で与えられることが確認できる。スペクトルを拡大したものを図 3.7に示す。第 3.1 節において議論した様に、周波数空間で等間隔にサイドバンドが生成されている。

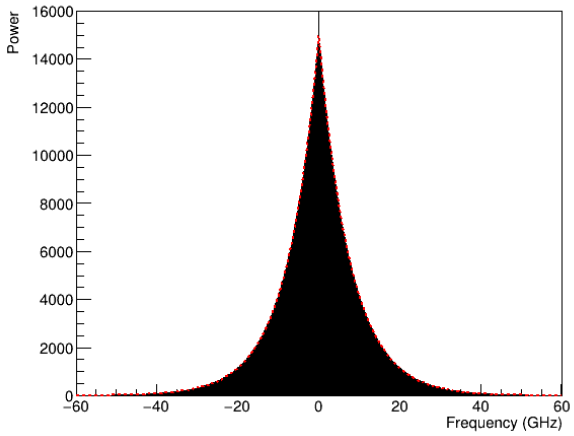


図 3.6 定常 FCG のスペクトル。赤破線は (3.7) 式 。

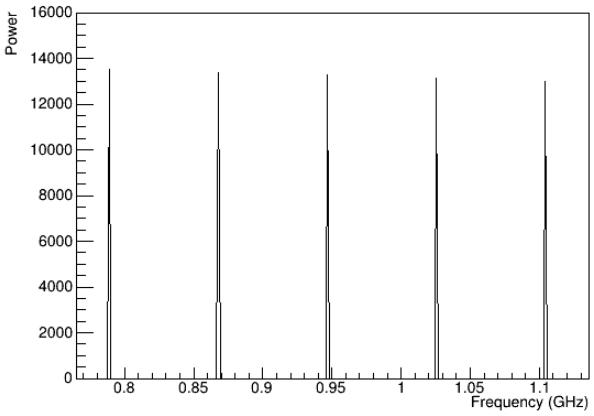


図 3.7 定常 FCG のスペクトルを拡大したもの。等間隔にサイドバンドが生成されている。

定常 FCG を初期条件として、t=8000 ns で光共振器中にゲインを与えることで、非定常 FCG の時間発展を計算した結果を図 3.8に示す。短パルスが維持されながらそれが長時間幅のパルス状の包絡線を持って増幅され、減衰されていく。この時間波形に対して適当な窓関数をかけてフーリエ変換を行うことで、非定常 FCG のスペクトルを評価する。

3.3.2 理想的な条件: 広帯域・長時間幅かつ、高速なチャープが得られる

得られたパルス波形全体に対してフーリエ変換を行って得られたパルスのスペクトルを図 3.9に示す。2 つの山を持つ特徴的な形をしているが、全体として広帯域なスペクトルが得られていることがわかる。

ここで、この長時間幅のパルスは FCG の短パルスから構成されていることから、短パルスひとつひとつの

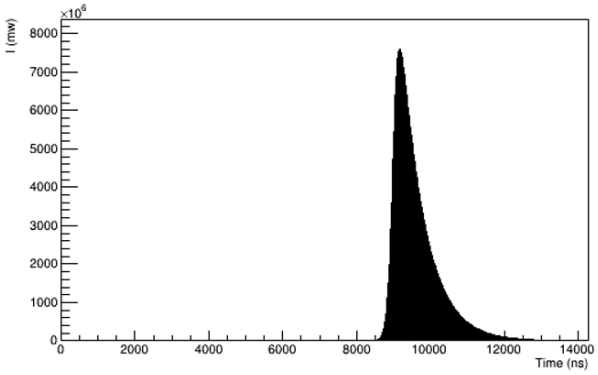


図 3.8 非定常 FCG の時間波形

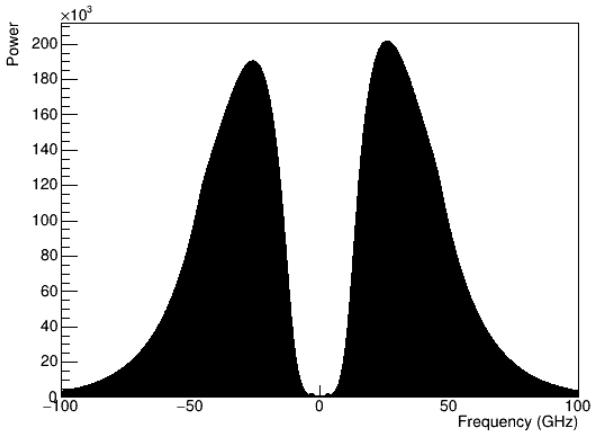


図 3.9 長時間幅のパルス全体のスペクトル

光スペクトルを計算する。短パルスの光スペクトルは、EOM による位相変調によってパルス毎に変化していると考えられる。光が光共振器を 1 周する時間 (=T) の窓関数を長パルス波形に対して掛け、それに対してフーリエ変換を行うことにより、長パルスを構成する短パルス光スペクトルを計算する。窓関数の時間をずらして計算を行い、短パルスのスペクトルの時間変化を評価した。結果を図 3.10に示す。

図 3.10の右図から、非定常 FCG のスペクトルは定常 FCG のスペクトル構造を反映しており、時間が経つにつれて Ti:Sapphire 結晶による増幅と減衰を受けながら、プラスマイナス両方向にチャープして 2 つの山に分かれていくことがわかる。これは、第 3.1 節において議論した位相変調による周波数のシフトが FCG をパルス化することによって顕在化しているということである。

つまり、長パルス全体のスペクトルとして 2 つの山が現れたのは、位相変調による ± 両側への周波数シフトが顕在化したためであり、非常に広帯域な光スペクトルが得られたのは、長パルスを構成する短パルスの光スペクトルが広帯域であり、かつそれがチャープしたもの全体の光スペクトルを見ているためである。

非定常 FCG には、特有の EOM による光周波数チャープが存在するため、この非定常 FCG のスペクトル広がりの大きさは照射対象の持つ時間スケールに依存する点は注意が必要である。例としては、本研究では Ps のレーザー冷却としての応用を考えており、冷却に利用する 1S-2P 遷移の寿命は 3.2 ns である。一方、実際に開発した非定常 FCG では短パルス発振の時間間隔は T/2∼ 6 ns であり、短パルスの時間幅は理想的には約 10 ps である。したがって Ps はこの冷却レーザーを一発ずつ感じると考えられるので、Ps の冷却性能を議論する上では、長パルス全体のスペクトル幅を非定常 FCG のスペクトル幅と考えるのではなく、長パルスを構成する短パルスのスペクトル幅を非定常 FCG のスペクトル幅として考え、それがパルスごとにチャープしていると捉えるべきである。

非定常 FCG のスペクトル幅としては、片側の山に注目するとそのスペクトル幅はおよそ定常 FCG の半分であることが図 3.10から読み取れる。つまり次式が成り立つ。

$$\nu_{\mathrm{FWHM}}^{\mathrm{pulse}} \simeq -\frac{\beta f_m \ln 2}{\ln R} = \frac{\beta f_m \mathcal{F} \ln 2}{2\pi} (\mathrm{Hz}) \tag{3.22}$$

短パルスのピーク周波数の時間変化を図 3.11に示す。数値計算と (3.9) 式 の公式がよく一致していることがわかる。以上から、レーザーの光周波数と EOM の変調周波数が光共振器に対して理想的である場合については、非定常 FCG の振る舞いは定常 FCG に対して行った単純な考察を拡張することで理解できることがわ

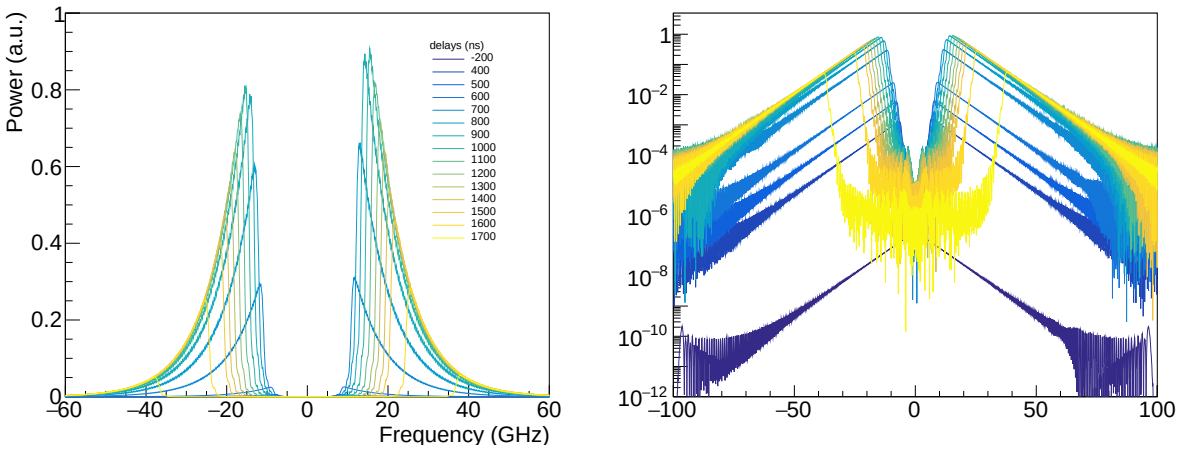


図 3.10　長時間幅のパルスを構成する短パルスのスペクトルの時間変化。左図は縦軸が linear、右図は縦軸が log である。delay はスペクトルを計算した短パルスの時間の gain を与えた t = 8000 ns からの遅れ。

かった。

また、光スペクトルの 2 つの山のうち片側だけを用いることにすれば、非定常 FCG は任意の方向に長時間にわたって高速にチャープする光源としての利用が可能である。

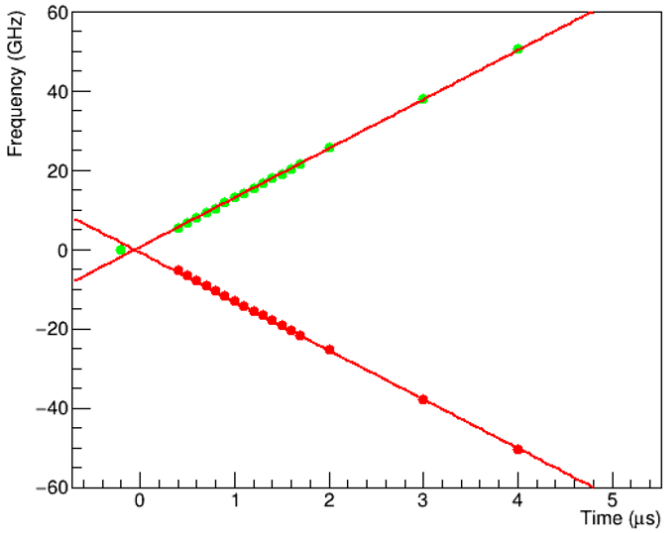


図 3.11　数値計算によって得られた短パルスのチャープ速度。図中の点が数値計算、直線は (3.9) 式 の公式

3.4　まとめ

数値計算により、本研究で開発する非定常 FCG は長時間幅・広帯域・高速な周波数チャープという 3 つの性質を備える事がわかった。Ps 冷却への応用においては、非定常 FCG の長時間幅のパルスを構成する一つ

一つの単パルスのスペクトルとその時間発展が重要であり、第一原理的な数値計算との比較によって、短パルスのスペクトル幅とチャープ速度は (3.23) 式 - (3.27) 式 で与えられるがわかった。これらの数値計算はレーザー周波数、FSR、変調周波数が十分な精度であっている様な理想的な場合に成り立つ。

$$\nu_{\mathrm{FWHM}}^{\mathrm{cw}} \simeq -\frac{2\beta f_m \ln 2}{\ln R}(\mathrm{Hz}) \tag{3.23}$$

$$\nu_{\mathrm{FWHM}}^{pulse} \simeq -\frac{\beta f_m \ln 2}{\ln R}(\mathrm{Hz}) \tag{3.24}$$

$$\text{chirp speed} \simeq \beta f_m \mathrm{FSR}(\mathrm{Hz/s}) \tag{3.25}$$

$$\tau = -\frac{1}{\mathrm{FSR}\ln \mathrm{R}} \tag{3.26}$$

$$\mathcal{F} = -\frac{2\pi}{\ln R} \tag{3.27}$$

本節で述べた数値計算手法はレーザーが理想的に共振していない場合や、変調周波数が FSR からずれているような一般的な場合についても計算が可能である。非理想的な場合における数値計算の結果については付録 B で述べる。

第 4 章

結果

本章では本研究で得られた冷却レーザーの性能について述べる。

フォトディテクター (PD) を用いてレーザーの時間波形を測定し、時間特性の評価を行った。測定に用いた PD は表 4.1に示す。用いた PD の帯域は非定常 FCG の長パルス幅 (> 100 ns) を評価するのに十分であるが、非定常 FCG を構成する短パルス幅 (~ 100 ps) を評価することは出来ない。時間波形の測定は図 4.1に示すように、光共振器の直接出力、マルチパスアンプ後、3 次高調波生成後の 5 箇所で行なった。

自作の Etalon ベースの分光計 (第 2.4 節) を用いてスペクトルの測定を行い、スペクトルの評価を行なった。スペクトル測定は 729 nm に対してのみ行なっている。測定は図 4.2の通り、光共振器から出力されたレーザーパルスをマルチパス増幅系で測定した後に行なった。レーザースペクトル測定の結果は、特に断りのない限り、パルス 9 発分の結果である。

本章の構成としては、まず非定常 Frequency Comb Generator により、長時間幅・広帯域・高速チャープの 3 つの性質をもつ 729 nm のレーザーパルスが得られたことを示す。最後に、この 729 nm レーザーパルスに対して 3 次高調波生成を行うことで得られた、243 nm の Ps 冷却レーザーの性能を評価する。

表 4.1　レーザーの時間波形測定のために用いたフォトディテクター

用途	型番	Bandwidth	Wavelength range	Company
729 nm パルス	DET025A/M	2 GHz	400 - 1100 nm	Thorlabs
243 nm & 364.5 nm パルス	DET10A2	350 MHz	200 - 1100 nm	Thorlabs

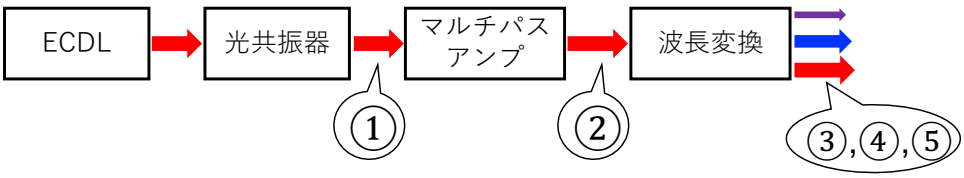


図 4.1　PD によるレーザーパルスの波形測定箇所

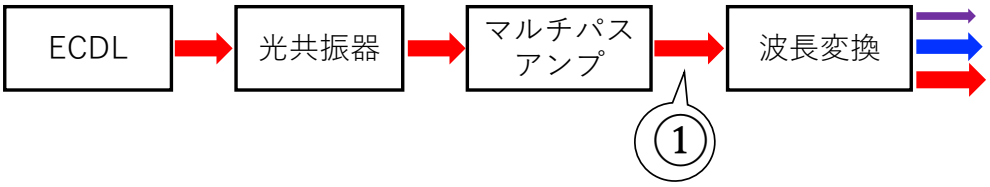


図 4.2 スペクトル測定箇所。729 nm のスペクトル広がりのみ測定を行った。243 nm のスペクトル広がりは、パワーが弱すぎて測定することが出来なかった。

4.1 長時間幅のレーザーパルスの観測

長い光子寿命をもつ光共振器を用いた非定常 Frequency Comb Generator により、長時間幅のレーザーパルスが得られた。結果を図 4.3に示す。図 4.3の上が光共振器の出力、下がマルチパスアンプ後の波形を示しており、光共振器の出力をマルチパスアンプした後の波形についても Ps 冷却に十分な長時間幅を得る事が出来ている[1]。また、図 4.3の左が 100 発の平均波形、右が 1 発の波形を示している。平均波形では潰れているが、1 発の波形では時間波形に変調がかかっている事が良くわかる。これは周波数空間でサイドバンドが生成されていることと対応している。変調の深さがパルスの立ち上がりでは深く、立ち下がりで浅くなっているが、これはパルスの前方は 729 nm でシードされた成分が多いのに対して、パルス後方には Ti:Sapphire の自己発振による成分が多く混じっているためであると考えられる。

パルスエネルギーとしては、光共振器の出力として平均 100 μJ/pulse、マルチパスアンプ後で平均 1 mJ/pulse が典型値として得られた。

4.2 変調周波数の調整と広帯域なスペクトルの観測

Frequency Comb Generator によりレーザーの帯域を広げるためには、変調周波数を光共振器の Free Spectrum Range(FSR) に精密に合わせる必要がある。EOM の変調周波数を光共振器の FSR 周辺でスイープし、光スペクトルの変化を測定した。実際に測定されたスペクトルが図 4.4に示されている。$f_m \simeq \mathrm{FSR} = 78.7$ MHz の周辺で光スペクトルが広がっていくことがわかる。$f_m \simeq \mathrm{FSR} = 78.7$ MHz のスペクトルに注目すると、3 つのピークがある構造をしていることがわかる。中央のピークは 729 nm の CW 成分であり、左右のピークがパルス成分を見ている[2]。変調周波数が FSR からずれるにつれて、パルス成分の CW 成分からのずれが小さくなっていき、全体のスペクトル幅が小さくなる。

光スペクトルの周波数依存性を評価するために、図 4.4の「半値幅」の変調周波数依存性を図 4.5に示す。ここでの「半値幅」は光スペクトルの半値を与える最小周波数と最大周波数の差として定義する[3]。

図 4.5から、変調周波数が FSR と一致するときに最大の周波数広がりが得られていることがわかる。レーザースペクトル幅の周波数応答はガウシアンでフィットすることができた。ベースラインの ~37.9(5) GHz は分光器の分解能に対応する。振幅は 96(8) GHz が得られた。結果として、変調周波数を FSR に調整する事に

[1] 要求値は 729 nm で時間幅が 500 ns 以上。
[2] マルチパス増幅効率が高くなれば高くなるほど中央の CW 成分は相対的に弱くなっていく。
[3] 光スペクトルは単純な形をしていないため、この「半値幅」はそのまま光スペクトル幅には対応しないことには注意が必要である

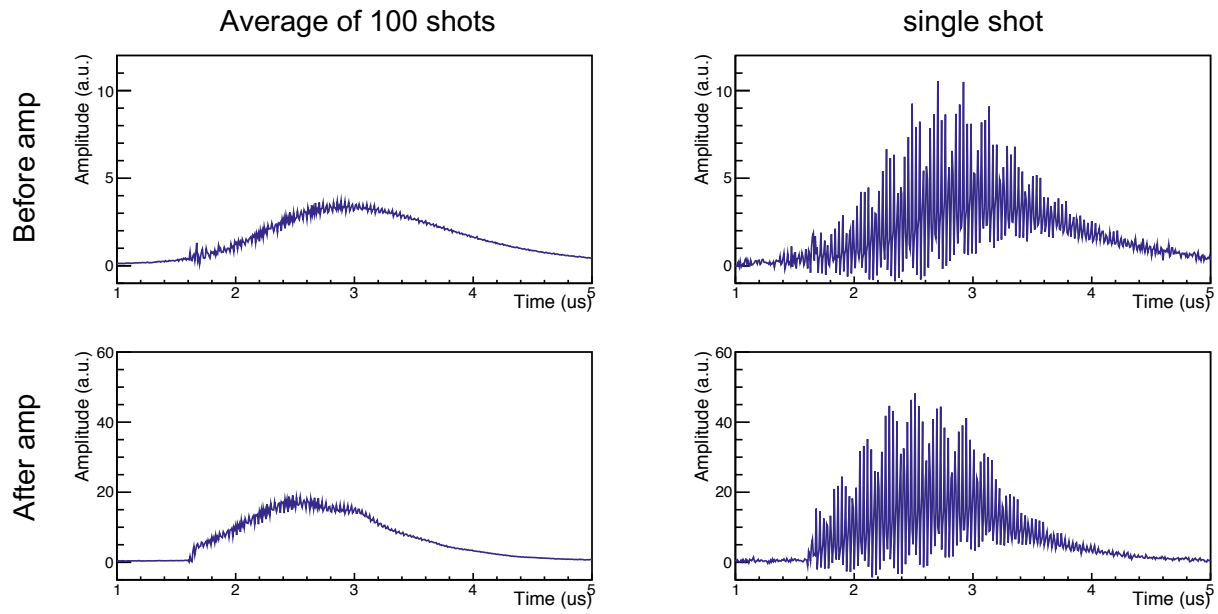


図 4.3　上は光共振器の出力の時間波形、下はその全体をマルチパスアンプした時間波形を示している。マルチパスアンプ後も Ps 冷却に十分な 1 μs 超の長時間幅が得られている事がわかる。左は 100 発のレーザーパルスの平均波形、右は一発の波形を示している。平均波形では潰れているが、一発の波形では時間波形として深く変調がかかっていることがよくわかる。

より半値幅として 128(7) GHz の周波数広がりを得る事が出来た[4]。実験で得られた周波数広がりと理想的な数値計算が一致することは確認出来ており (付録 A)、この周波数広がりは現状の系のほぼ最大性能を実現していると言える。これはサイドバンドの次数としては、半値幅で ±800 次のサイドバンドを生成した事に対応する。中心周波数は 78.710(5) MHz が得られた。これは 2.3.6 節の独立な測定結果と無矛盾である。これ以降の実験において、EOM の駆動周波数は最大の光周波数広がりが得られた f_m =78.70 MHz に固定した。

レーザースペクトル幅の周波数応答幅としては σ = 78(4) kHz が得られた。この周波数幅は光共振器の FWHM = FSR/$\mathcal{F}$ ∼800 kHz の約 1 割である。今回用いている EOM は共鳴型なので、変調深さ β は変調周波数に依存する。したがって、光スペクトルの周波数応答には EOM の周波数応答が畳み込まれているはずである。EOM の変調深さの周波数応答を測定した結果を図 4.5の中央と下に示している。今回用いた共鳴型 EOM の共鳴周波数は十分良く調整されており、EOM の周波数依存性は緩やかなので、光スペクトル幅の周波数応答幅は光共振器の境界条件・変調周波数の安定性・レーザーの共振の安定性によって決まると考えられる。付録 A における数値計算との比較によって、この周波数応答幅はこのうちほとんど光共振器の境界条件のみによって決まっており、変調周波数やレーザーの共振は十分安定していることが分かっている。

[4] 振幅 A、ベースライン b として、広がり = $\sqrt{(A+b)^2 - b^2}$。

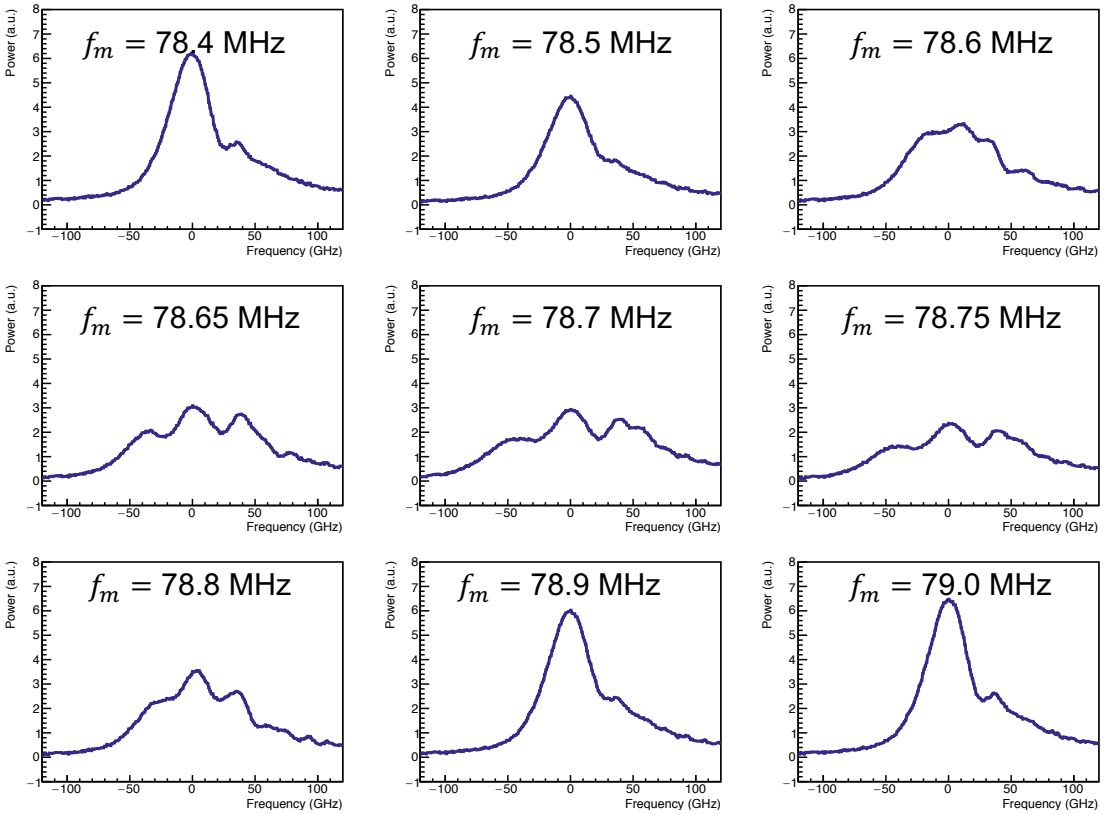


図 4.4 EOM の駆動周波数を変化させながら測定したレーザースペクトルの例。左上ほど EOM の変調周波数が小さく、右下ほど周波数が大きい。

4.3 高速な光周波数チャープの観測

非定常 FCG から発振されるパルスレーザーは高速に光周波数が変化する (チャープする)。しかし、この周波数チャープはパルス持続時間 (∼500 ns) にわたってしか起こらないため、これを測定するには立ち上がり時間が 10 ns 程度に短い高性能なカメラが必要になる。そこで、本研究ではマルチパス増幅をうまく用いることで、立ち上がり時間 1 μs・露光時間 10 ms のカメラを用いてこの高速な周波数チャープの実験的な観測を行なった。

マルチパス増幅を行うレーザーパルスは 500 ns 超の長時間幅であるのに対して、マルチパス増幅ではナノ秒パルスを用いて Ti:Sapphire 結晶を励起するため、マルチパス増幅の立ち上がり時間は 10 ナノ秒スケールである[5]。また、Ti:Sapphire 結晶の寿命は 3.2 μs と長いので、一度レーザーパルスに対して増幅を印加すると、それよりも後ろのパルス成分はおよそ一様に増幅を受ける[6]。したがって、長時間幅のレーザーパルスに対して十分大きな増幅率のマルチパス増幅を適用して光スペクトル測定を行うということは、レーザーパルス

[5] マルチパス増幅系の光路長は約 5 m であるので、多段階のマルチパス増幅を受けるのにかかる時間が 17 ns 程度ある。
[6] 実際は、Ti:Sapphire 結晶のゲインは減衰してゆく。

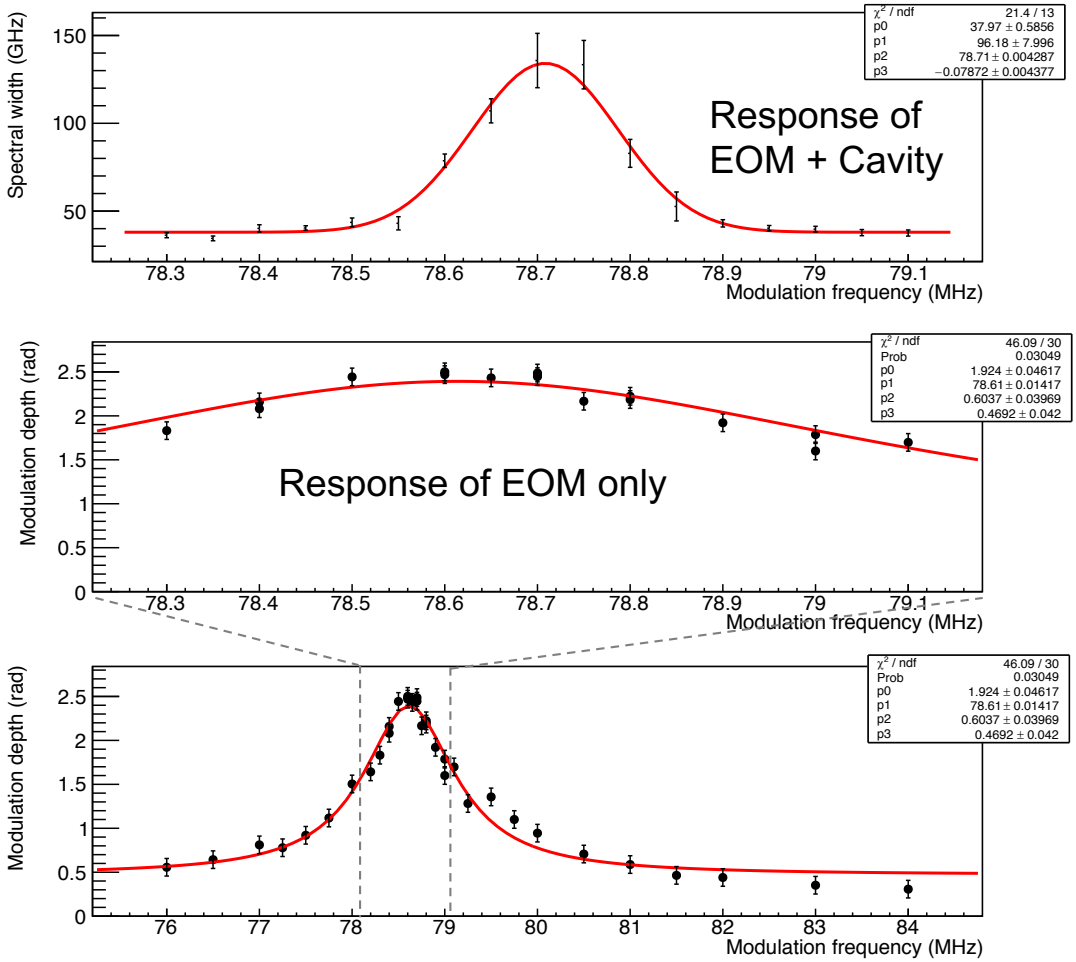


図 4.5　レーザースペクトル幅の EOM 駆動周波数依存性。横軸は EOM ドライバーの駆動周波数。縦軸は図 4.4のスペクトルの半値幅。スペクトル形は複雑だが、ピークの半値を与える最大周波数と最低周波数の差分としての半値幅である。中央図と下図は EOM の周波数依存性を示す。EOM の共鳴回路の共鳴周波数は 2.3.6 節において FSR と一致する様に調整した。

のうち特定の時間より後ろだけを切り取ってスペクトル測定を行うことに相当する。これを利用して増幅を適用する時間を変化させながら光スペクトル測定を行うと、立ち上がり時間の遅いカメラを用いてパルスレーザーの周波数チャープを測定することが可能である。

図 4.6に光周波数チャープ測定時の時間波形を示す。上図に増幅後のレーザーパルス 100 発の平均波形を示している。マルチパスアンプの印加時間は 200 ns 間隔で変化させた。delay は光共振器内の Ti:Sapphire 結晶ポンプレーザーの Q-switch timing とマルチパス増幅のポンプレーザーの Q-switch timing の差である。下図は上図の single shot の波形である。周波数空間で 78.7 MHz 間隔でサイドバンドが生成されていることに対応して、時間波には 78.7 MHz の変調が深くかかっていることが確認できる。

図 4.7にスペクトル測定を行なった結果を示す。スペクトルの左右のピークが、プラス方向とマイナス方向にチャープするレーザーパルス成分に対応する。スペクトルのピークを与えるレーザー周波数の時間変化とし

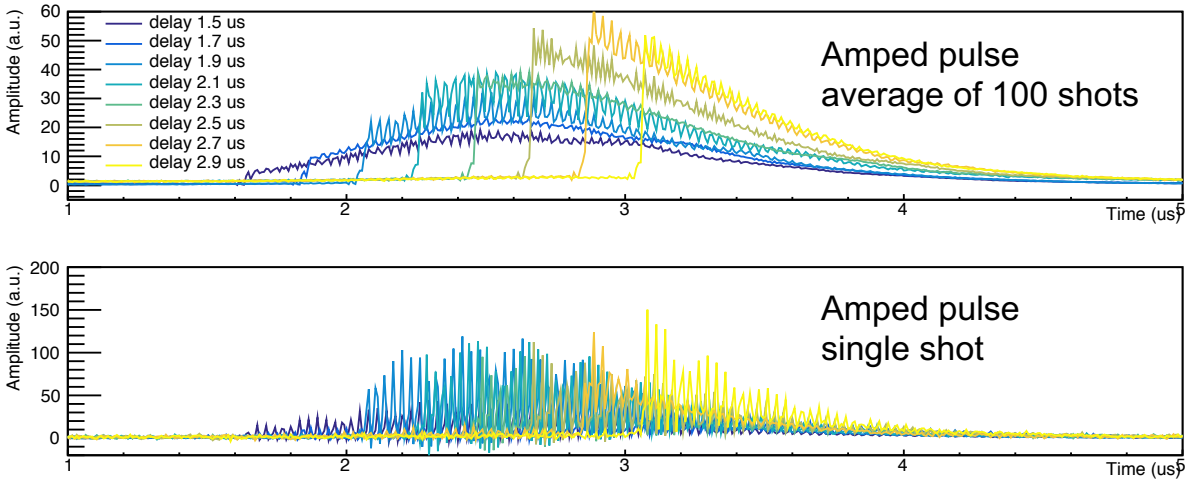


図 4.6 光周波数チャープ測定時の時間波形。マルチパスアンプを印加する時間を変えている。上は 100 発の平均波形、下はシングルショットの波形である。

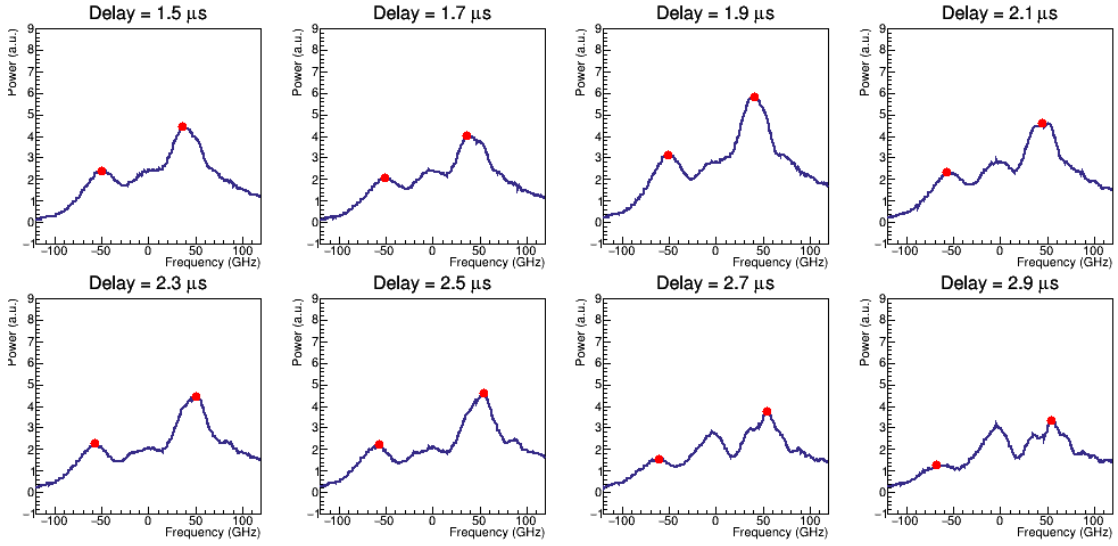


図 4.7 光周波数チャープ測定時のスペクトル波形の例。チャープはスペクトル波形の左右のピークの位置の時間変化として評価している。各スペクトル上の赤点がチャープ速度の評価に用いたピーク点である。

て、レーザーのチャープ速度を評価した。図 4.7のピーク周波数の時間変化を図 4.8に示す。光周波数が時間変化していることから、この光源はプラスマイナス両方向にチャープしていることがわかる。チャープ速度としてはマイナス方向が-8(2) GHz/μs、プラス方向が 15(1) GHz/μs が得られた。実験で得られたチャープ速度と理想的な数値計算が定性的に一致することは確認出来ている (付録 A) ため、このチャープ速度は現状の系のほぼ設計通りの性能が実現できている。

結果として、マルチパス増幅をうまく用いることにより、非定常 FCG が EOM によって繰り返し位相変調を受けることに由来する、光周波数チャープを持つことを実験的に確認することができた。また、この光周波

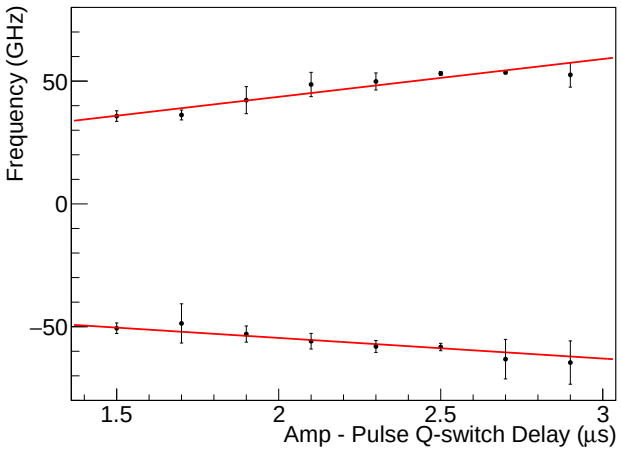


図 4.8　レーザースペクトルの左右のピーク周波数の時間依存性。この傾きをレーザーのチャープ速度と解釈する。

数チャープの速度 ($\sim$ 10 GHz/μs) とその持続時間 ($\sim$ 1 μs) は他の光源では見られない特異な性質である。

チャープ速度やスペクトル構造がプラスマイナスで異なるのは、図 2.29に示した様に用いている分光器の非理想的な振る舞いが原因として考えられる。これは、分光器を構成する Fabry-Perot Etalon をより平行度の高い理想的なものに交換する、または分光器によって得られる干渉縞を分光器の非理想的なレスポンスで deconvolution する等して改善することが可能であると考えられる。他の原因としては付録 B で述べるように、シードレーザーと FSR と変調周波数がわずかにずれていることによって出力スペクトルが左右非対称になっている可能性がある。

4.4　THG により 243 nm 広帯域長時間幅の Ps 冷却レーザーを実現した

ここまで、非定常 FCG により生み出される 729 nm のレーザーパルスが十分な長時間幅・広帯域・高速チャープという Ps 冷却のために必要な 3 つの性質を持つことを示した。しかし、Ps 冷却レーザーとして使用するためには 3 次高調波生成 (THG) により波長を 729 nm から 243 nm へと変換する必要がある。Ps 冷却レーザーとして重要なのは、THG を行なった後の 243 nm レーザーパルスが十分なエネルギー・十分長い時間幅・十分広い周波数帯域・高速なチャープを備えていることである。

243 nm レーザーパルスの時間波形とスペクトルを波形を観測し、Ps 冷却レーザーとしての性能を評価する。しかし、243 nm のレーザーパルスのエネルギーは 729 nm と比べて 2 桁近く小さいため、エタロンを用いた 243 nm レーザーパルスのスペクトル測定を行うことはできなかった。そこで、243 nm レーザーパルスのスペクトルについては THG を行う前の 729 nm レーザーのスペクトルから推定する。

図 4.9に 243 nm パルスの時間特性を示す。Ps レーザー冷却に必要な 300 ns 長時間幅の 243 nm レーザーパルスを得ることが出来た。729 nm パルスに対して 243 nm パルスの時間幅が短いが、これは大きなパルスエネルギーの 243 nm パルスを得るために光共振器中の Ti:Sapphire 結晶のポンプレーザーのパルスエネルギーを大きくしているために Ti:Sapphire 結晶の自己発振の効果が大きくなっているためである[7]。

[7] 729 nm パルスの内、約 2-3 μs の変調の浅い部分が自己発振成分であり、約 1-2 μs の変調の深い部分が 729 nm のシードレーザーでシードされている部分である。波長が 729 nm の部分についてのみ三次高調波生成がなされている。

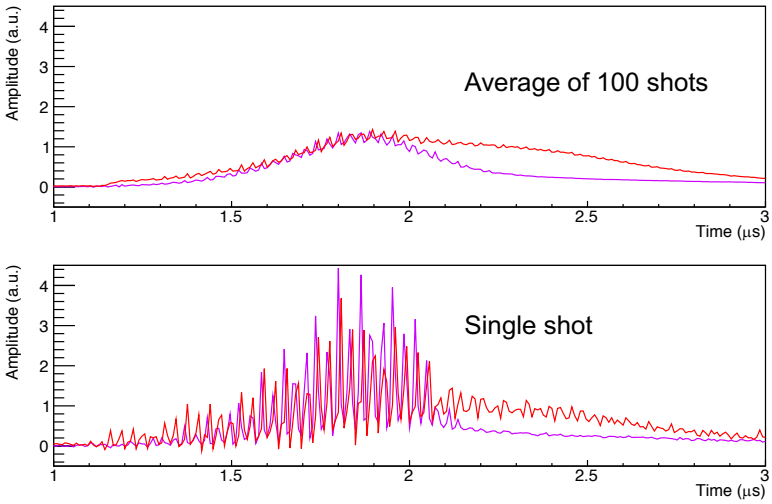


図 4.9 243 nm パルスと 729 nm パルスの時間波形。紫色が 243 nm、赤色が 729 nm である。上は 100 発の平均波形、下は 1 発の波形を示している。

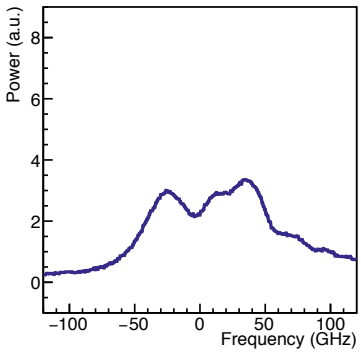


図 4.10 図 4.9 の時の 729 nm パルスのスペクトル

スペクトル広がりについては、243 nm パルスに対して直接測定を行うことは出来なかったが、時間波形に変調がかかっていることから、243 nm についても周波数広がりと高速な周波数チャープは得られていると考えられる。図 4.10は図 4.9の時の 729 nm レーザーパルスに対してスペクトル測定を行なった結果であり、729 nm でスペクトル広がりが得られている状態で 3 次高調波生成を行なっている。パルスエネルギーについてはパワーメーターを用いた測定によって 35±2 μJ の 243 nm パルスが得られている。

4.5 まとめ

結果として、長時間幅・広帯域・高速周波数チャープという 3 つの性質を備える 243 nm パルスレーザーを実現することが出来た。長時間幅は 243 nm に対して直接測定しているが、広帯域と高速な周波数チャープについては 729 nm に対して測定したものから推定している。

表 4.2 実現した Ps 冷却レーザーのスペックと Ps-BEC の要求値

	達成値	要求値 [13]
波長	243 nm	243 nm
有効パルスエネルギー[7]	18 ± 1 μJ	40 μJ
時間幅 (半値幅)	300 ns	300 ns
スペクトル幅 (半値幅)[8]	2.4 GHz	140 GHz
高速周波数シフト[9]	± 42 GHz/μs	+200 GHz/μs

要求スペックと達成した Ps 冷却レーザーのスペックを表 4.2に示す。第 3.2 節において議論した様に、Ps 冷却においては実験によって観測できる非定常 FCG の長パルス全体のスペクトルではなく、長パルスを構成する短パルスのスペクトルが重要となる。そこで、冷却レーザーのスペックとしては (3.24) 式 と (3.25) 式 により与えられる短パルスのスペクトル幅とチャープ速度を示す。 (3.24) 式 と (3.25) 式 を導出する上で用いた数値計算モデル (第 3.2 節) は、付録 A において実験結果と比較しており、実験結果と無矛盾である。

数値計算により、現状の設計では帯域とチャープ速度について Ps-BEC を実現するための要求スペックを満たすことが出来ないことがわかっているが、付録 A において実験結果と理想的な数値計算を比較し、それらに一致がみられることから、現状の系についてはほぼ設計通りの性能を出すことが出来ていると言える。従って、系の改良を行うことで要求スペックを満たす冷却レーザーを実現することは可能であると考えられる。具体的な改良方法については第 5 章で述べる。

[7] 将来的に 243 nm レーザーパルスのうちプラス方向にチャープする成分のみを用いてレーザー冷却を行うため、実現された 243 nm パルスエネルギーの半分を有効パルスエネルギーとする。

[8] 非定常 FCG 短パルスのスペクトル片側の半値幅の推定値 ν_{pulse}^{FWHM} である。非定常 FCG ではスペクトルの片側の山について、スペクトル構造は $\exp(-|f|/\tau)$ で与えられる。和周波生成の位相整合条件が厳しい極限を仮定しており、周波数の 3 倍と 3 次高調波の生成効率の 3 乗がキャンセルするので、3 次高調波のスペクトル幅と基本波のスペクトル幅が等しいと仮定している。

[9] 3 次高調波生成を行う前の 729 nm パルスレーザーのチャープ速度を 3 倍したものである。

第 5 章

Ps 冷却レーザーの展望

Ps 冷却レーザーは、十分なパルスエネルギー・長時間幅・広帯域・高速なチャープの 4 つの性質を満たす必要がある (表 4.2)。この 4 つの条件を満たすためにはどうすれば良いか議論する。

まず、十分なパルスエネルギーと時間幅を両立するためにはどうすれば良いか議論し、次に十分な広帯域と高速なチャープ速度を実現するためにはどうすれば良いか議論する。

5.1　パルスエネルギーと時間幅

図 5.1に光共振器中の Ti:Sapphire 結晶のポンプレーザーのパルスエネルギーを変化させた時の、243 nm パルス (Ps 冷却レーザー) の性能の変化を示す。図 5.1から分かるように、非定常 FCG の長パルス全体のエネルギーとその長パルスの時間幅の間にはトレードオフの関係がある。光共振器内の Ti:Sapphire 結晶のポンプレーザーのパルスエネルギーを大きくすると、Ti:Sapphire 結晶 1 回透過あたりの増幅率が大きくなる。これにより、パルスエネルギーは大きくなるが、パルスの立ち上がり時間が早くなるとともに、結晶のエネルギーをすぐに使い果たしてしまうので、パルスの立ち下がりも早くなってパルス時間幅が短くなってしまう。光共振器内のポンプレーザーのパルスエネルギーを小きくすると、Ti:Sapphire 結晶 1 回透過あたりの増幅率が小さいため、パルスの立ち上がり時間が遅くなるとともに、結晶のエネルギーを使い果たすのにも時間がかかりためパルスの立ち下がりも遅くなってパルス時間幅が長くなる。結晶に与えられるエネルギーが小さい分全体のパルスエネルギーも小さくなる。

したがって、Ps 冷却必要な性能を満たすためには、光共振器内の Ti:Sapphire 結晶のポンプレーザーのパルスエネルギーとしては最低限の時間幅を確保できる大きさに設定し、その後十分なパルスエネルギーを実現出来るようにマルチパス増幅を行う必要がある。

現状の最大パルスエネルギーは 729 nm パルスが 2.5 mJ の時に 243 nm パルスとして 35 μJ である (図 4.9)。これは、3 次高調波生成系の凹面ミラーが損傷することによってリミットされているため、ミラーのコーティングを最適化する。またはミラー上でのビーム径が大きくなるように系を工夫することで改善可能である。マルチパス増幅により、729 nm で FWHM = 500 ns を維持したままパルスエネルギーを 5 mJ にまで増幅した実績がある。3 次高調波の生成効率は基本波のパワーの 3 乗に比例するので、3 次高調波生成系を改良した上で 729 nm パルスを 5 mJ にまで増幅すれば、243 nm で有効パルスエネルギー 40 μJ の目標値を達成する事は十分可能である。

また、243 nm のパルスエネルギーが不十分である原因として、シードレーザーによるシードが不十分であることも挙げられる。図 5.1の中段で、光共振器中のポンプエネルギーが大きいほど 729 nm パルスと

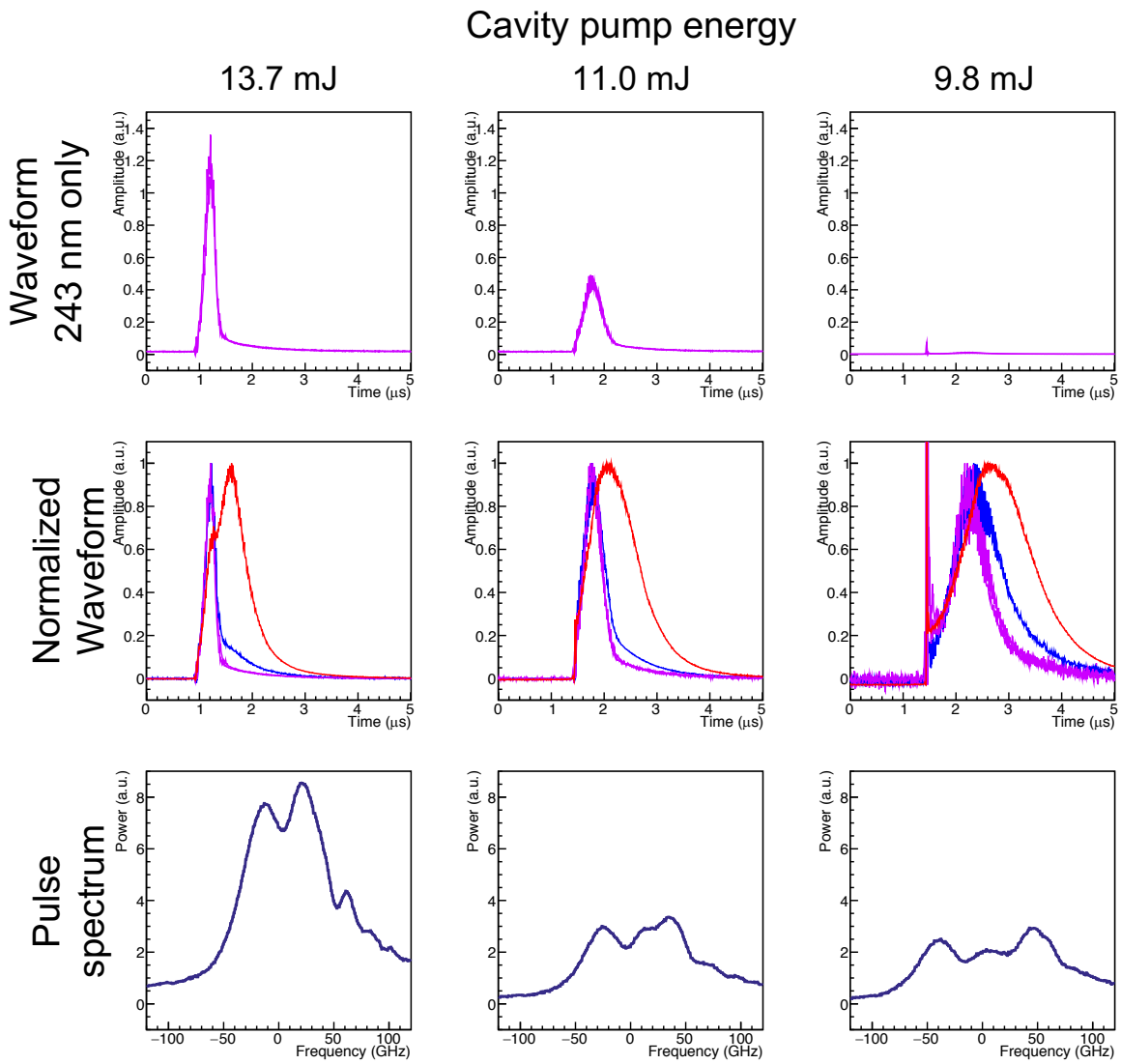


図 5.1　243 nm パルスの光共振器中のポンプレーザーパルスエネルギー依存性。左から順に光共振器内の Ti:Sapphire 結晶をポンプするパルスエネルギーが 13.7 mJ、11.0 mJ、9.8 mJ である。上段は 243 nm パルスの平均波形であり、パルスエネルギーは相対的に比較できる。中断は 243 nm パルス、364.5 nm パルス、729 nm のパルスの平均波形であり、パルス高は規格化されている。下段は 729 nm パルスの光スペクトル。

243 nm パルスの時間幅が大きく異なるのは、シードが不十分なせいでポンプエネルギーが大きい時に特に Ti:Sapphire 結晶が自己発振しやすいためである。シードが不十分になるのは光共振器中で EOM を駆動すると、弱めあいが生じるためである (図 3.3)。この問題は Tapered amplifier を用いてシードレーザーの出力を約 1 W にまで増幅を行うことで改善が可能である。ただし、EOM によるシードレーザーパワーの減衰度合いは実測できていないため[1]、Tapered amplifier による増幅で十分であるかどうかは分かっていない。

[1] 理想的な数値計算によると 1/100 未満に減衰する

5.2　帯域とチャープ速度

Ps 冷却レーザーとしての性能を考える上では、非定常 FCG の長パルスを構成する短パルスに注目し、その短パルスの帯域とチャープ速度について考える必要がある。この帯域とチャープ速度は (3.24) 式 と (3.25) 式 の通り、非定常 FCG を構成する光共振器と EOM のパラメーターのみによって決まっている[2]。したがって、冷却レーザーとして十分な帯域とチャープ速度を確保するためには非定常 FCG 自体を改良する必要がある。非定常 FCG を改良することによって、より広帯域なレーザーを実現する方法は 3 つある。

EOM の変調深さ β を大きくする

EOM の変調深さを大きくすれば、 (3.24) 式 からレーザーの帯域を広げることができる。これは EOM 一回あたりの変調深さを大きくすることで、合計変調深さを大きくし帯域を広げる方向性である。非共振型の EOM の変調深さは次式で与えられる。

$$\beta = \frac{2\pi}{\lambda} \times L \times \frac{1}{2} n^3 r E = \frac{\pi n^3 r}{\lambda} L \frac{V}{d} \tag{5.1}$$

L: 結晶長、d: 結晶幅、r: 電気光学テンソル、n: 屈折率、λ: 波長、V: 印加電圧

現在用いている KTP 結晶の典型的な電気光学係数は r=35 pm/V[34] であり、屈折率が n = 1.753(@ 729 nm)[34]、L=30 mm、d=3 mm であることから $\beta/V = 8.1 \times 10^{-2}$ rad/V である。変調深さ 5 rad を実現するためには、結晶に 61.7 V の電圧を加える必要がある。これは原理上十分達成できる値である。また、変調深さは 2π を超えても問題はない。テラヘルツ光において、2π 以上の位相変調を加えた例がある [35]。

光共振器をリング型から Fabry-Pérot 型に変更する

光共振器をリング型から Fabry-Pérot 型に変更すると、光共振器 1 周あたりの変調回数が倍になる。これは実効的に EOM の変調深さを 2 倍にしたことに対応するので、帯域とチャープ速度を 2 倍に大きくすることができる。注意点としては、戻り光が強くなるため戻り光のアイソレーションを強くする必要がある。また、光共振器からの出力はアイソレーターによって取り出すことになる。

光共振器内の EOM の変調周波数を大きくする

EOM の変調周波数を大きくすれば、 (3.24) 式 からレーザーの帯域を広げることができる (図 5.2)。しかし、問題は EOM により生成されるサイドバンド間隔が広がってしまう事である。Ps を効率的に冷却するためにはサイドバンド間隔は 1S-2P の自然幅程度である必要がある。そこで、もう一つ EOM を光共振器の外で用いれば周波数間隔を狭める事ができる [32]。共振器外の EOM で周波数間隔を狭める実験の結果を図 5.2に示す。このセットアップの利点は、共振器外に新たに配置する EOM は光共振器内の EOM とは違って、変調周波数を光共振器に対して精密に調整する必要がない事である。したがって実装が簡単である。

[2] 図 5.1の下段に注目すると、レーザーの帯域が光共振器中の Ti:Sapphire 結晶のポンプレーザーのパルスエネルギーに依存しているように見えるが、これはパルスエネルギーが小さい場合はパルスの時間幅が長いためにチャープの効果がよく現れて、長パルス全体のスペクトルが広がっているだけであり、長パルスを構成する短パルスのスペクトル広がりはポンプレーザーのパルスエネルギーに依存しない。

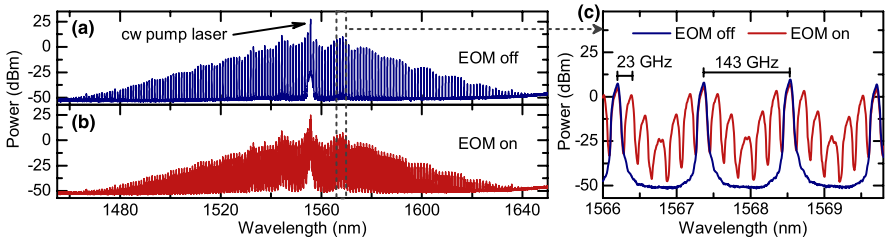


図 5.2　2 つの EOM によりサイドバンド周波数間隔を狭める実験の結果 [32]

光共振器のフィネスを大きくする

光共振器のフィネス $\mathcal{F}$ を大きくすれば、 (3.24) 式 からレーザーの帯域を広げることができる。これは EOM による変調回数を多くすることで、合計変調深さを大きくし帯域を広げる方向性である。$\mathcal{F}$ を大きくする方法としては、光共振器のカップラーの反射率を上げればよい。もう一つの方法としては、光共振器内の Ti:Sapphire を CW ポンプレーザーで励起することにより、光共振器 1 週当たりのロスを下げて実効的に $\mathcal{F}$ を大きくする方法がある [31]。後者の方が、光共振器中のレーザーパワーを大きくすることができるので、EOM を駆動することにより共振器中のレーザーパワーが小さくなって injection-seeding が効きにくくなる問題を同時に解決することができる可能性があり、有利である。T:Sapphire のポンプレーザーとしては CW レーザーとパルスレーザーを合波して使用することになる。

以上 4 つのレーザー帯域拡大方法は全て併用することが可能なので、これらを併用する事で冷却レーザーの目標スペクトル幅を達成する事が可能である。将来の非定常 FCG の概略図を図 5.3に示す。また、 (3.25) 式 からレーザーのチャープ速度についても同時に目標値を達成可能である。

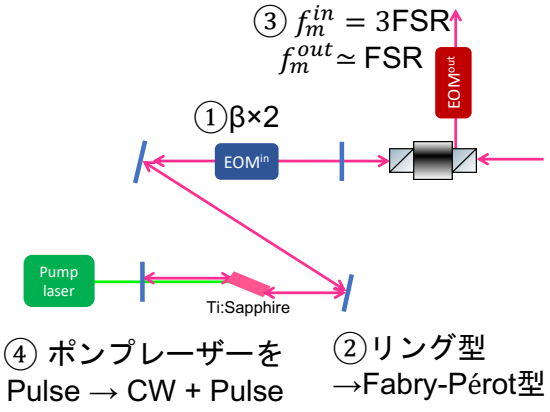


図 5.3　将来の非定常 FCG の概略図

5.3　まとめ

十分な時間幅とパルスエネルギーを確保するには、マルチパス増幅による 729 nm におけるパルスエネルギー改善と 3 次高調波生成系を改善することで目標値を達成可能である。十分なスペクトル幅とチャープ速度

表 5.1　Ps 冷却レーザーシステムの改善内容

	現状	将来
パルスエネルギー@729 nm	2.5 mJ	5 mJ
変調周波数 f_m	78.7 MHz	78.7 MHz × 3
変調深さ β	2.3 rad	2.3 rad × 2 × 2
フィネス $\mathcal{F}$	122	122 × 5

を確保するには EOM と光共振器を改善すればよく、変調周波数、変調深さ、実効的なフィネスを改善すれば目標値を達成可能である。具体的な改善内容を表 5.1に、改善を行った後の Ps 冷却レーザーの予想スペックを表 5.2に示す。

表 5.2　将来の Ps 冷却レーザーのスペックと Ps-BEC の要求値

	現状	将来 (予想)	要求値 [13]
波長	243 nm	243 nm	243 nm
有効パルスエネルギー	18 ± 1 μJ	140 μJ	40 μJ
時間幅 (半値幅)	300 ns	300 ns	300 ns
スペクトル幅 (半値幅)	2.4 GHz	146 GHz	140 GHz
高速周波数シフト[3]	± 42 GHz/μs	± 504 GHz/μs	+200 GHz/μs

[3] チャープ速度は目標値の 2.5 倍となっているが、これはチャープ速度の目標値を小さめに見積もっているため問題はない。Maxwell Boltzman 分布を 300 K から 10 K まで Ps を冷却した時の共鳴周波数の変化は 226 GHz であり、この冷却を 300 ns で行うのでスピードに直すと 755 GHz/μs となる。したがってチャープ速度が大きすぎることで冷却効率が落ちたり、Ps を加熱してしまう恐れはない。

第 6 章

まとめ

本研究では Ps-BEC を実現するための Ps 高速冷却光源の開発を行った。Ps の軽量さとその短い寿命から、冷却レーザーは広帯域・長時間幅・高速な光周波数チャープという性質を備える必要がある。これらの条件を満たす光源を実現するため、非定常的な Frequency Comb Generator(FCG) という新しいレーザーシステムを開発した。非定常 FCG の特性について数値的に解析を行い、それが長時間幅・広帯域であることに加え任意の方向に長時間にわたって高速にチャープする性質を持つことを示した。非定常 FCG の性質を実験的に実証し、実験結果と数値計算の間には一致が見られた。非定常 FCG の性質を定式化したため、他の研究に応用する場合光学系の設計も容易である。

さらに、非定常 FCG を応用し、243 nm・長時間幅・広帯域・高速周波数チャープという性質を備える Ps 冷却光源の原理を実証した。パルスエネルギーの向上及び EOM の改良によるレーザーの帯域の拡大とチャープ速度の向上により、Ps-BEC 実現に十分な性能を実現することが可能である。

今後の展望としては、本研究で実現が実証された Ps 冷却レーザーによる世界初の Ps レーザー冷却の実証を行う。

付録 A

Frequency Comb Generator の数値計算と実験の比較

第 3.2 節における数値計算により、非定常 Frequency Comb Generator(FCG) は広帯域かつ高速光周波数チャープという性質を持つことが示され、第 4 章において、広帯域化と高速周波数チャープが実現していることを実験的に実証した。

非定常 FCG の Ps 冷却における性能を議論するためには非定常 FCG を構成する短パルスの性質を知る必要があるが、短パルス一つ一つの性質を直接観測することは困難である。一方、非定常 FCG の短パルスの性質は数値計算によってそのスペクトル構造とチャープ速度について求められている。

本章では数値計算結果と実験結果を比較することにより、第 3.2 節における数値計算モデルの妥当性、及び数値計算によって得られた短パルスの性質に関する関係式を用いて本研究で得られた Ps 冷却光源の性能を評価することの妥当性を示す。

A.1　数値計算の実験との比較

第 3.2 節の数値計算と実験を比較するためには、表 3.1と表 3.2に示すシミュレーションパラメーターの決定を行う必要がある。パラメーターのうち、波長 λ は波長計による測定が可能であり、共振器長も測定可能である。光共振器 1 周あたりのパワーのロス R は第 2.3.2 節の様に光共振器の光子寿命を測定することで得ることができる。変調周波数は Universal counter で測定可能であり、変調深さも測定可能である。Ti:Sapphire 結晶の飽和フルーエンスは物性値として決まっている。したがって、決定するべきパラメーターは J_{sto} と J_{in} である。

J_{sto} は Ti:Sapphire 結晶に蓄えられた、実際に増幅に使われるエネルギー密度である。Ti:Sapphire 結晶に入射しているポンプレーザーのエネルギー密度は測定可能であるが、実際には結晶の吸収率やロスを考える必要がある上、実際に使われるエネルギー密度を推定することは難しい。J_{in} は Ti:Sapphire 結晶に入射するシードレーザーのエネルギー密度である。この評価にはシードレーザーと光共振器のマッチングの評価をする必要があるが、それは難しいので、数値計算と実験結果を fit することによって J_{sto} と J_{in} を決定する。

数値計算と実験結果の fit はパルスレーザーの時間波形について行った。数値計算においては、光の絶対周波数の位相項を無視し、光スペクトルの広がりを見るのに十分な T/16384~0.77 ps 間隔 (T≃12 ns) で計算を行なっている。しかし、実験で用いている PD の帯域は 5 GHz である上、時間波形の測定に用いたオシロスコープのサンプリング間隔は 8 ns のため、数値計算の結果と実験結果をそのまま比較することはできない。

そこで、数値計算の時間波形をオシロスコープのサンプリング間隔 8 ns で平均して両者を比較し、J_{sto} を決定する。また、実験結果については、波形の single shot の場合、時間波形に変調がかかっているため比較が難しくなるので、100 発の平均波形を数値計算との比較に用いた。

以上によってシミュレーションパラメーターを定め、数値計算によってレーザーの時間波形を計算する。数値計算によって得られた時間波形に対して、実験と対応する窓関数を掛けて[1]、それをフーリエ変換して光スペクトルの広がりを得る。最後に実験的に光スペクトルを測定するのに用いている分光器のレスポンスを畳み込んで実験結果と数値計算を比較する。

また、 2.4.1 節において議論した様に、用いている分光器の性質から実験結果の周波数広がりには 10 % の系統誤差があり、周波数広がりの左右差に最大 15 % の系統誤差がある。

A.2　周波数広がりとその変調深さ依存性

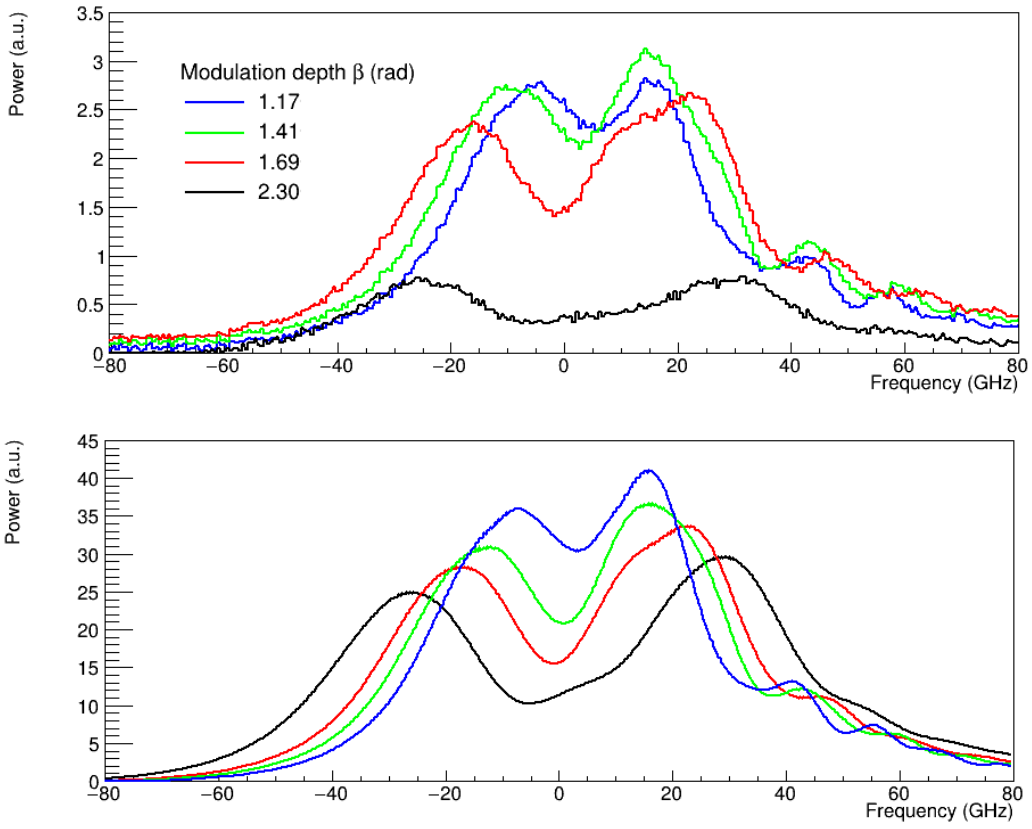


図 A.1　長パルス光スペクトルの EOM の変調深さ依存性。上図は観測データ、下図は数値計算の結果である。

(3.24) 式 から非定常 FCG を構成する短パルスのスペクトル広がりは EOM の変調深さに依存することがわかっているが、同様に非定常 FCG のパルス全体の光スペクトル広がりも EOM の変調深さに依存すると

[1] 例えば、レーザーの光周波数チャープを測定するためにマルチパス増幅を印加するタイミングをずらしながらスペクトル測定をしている場合には、計算されたパルスの時間波形についてマルチパス増幅を印加した時間以降の波形のみを用いてスペクトルを計算する。

考えられる。変調深さの調整は、EOM に印加する RF のパワーを変化させることで行なった。30 dBm が EOM の上限であり、その時の変調深さが $\beta = 2.3$ rad。それに対して 3 dB のアテニュエーターを入れたのが $\beta = 1.89$ rad、5 dB のアテニュエーターをいれたのが $\beta = 1.41$ rad である。EOM の変調を変えた時の、長パルス全体のスペクトルの変化を図 A.1に示す。

数値計算と実験結果で全体のスペクトル構造はよく一致していることがわかる。さらに、EOM の変調深さ β が大きいほど、パルスの光スペクトルの広がりが大きくなっていき、パワーが小さくなっていくというのも数値計算と実験で一致し、数値計算がよく実験を再現していることがわかる。

ここで、図 A.1の測定結果と数値計算の縦軸の絶対値を比較することはできないが、それぞれの図において変調深さの異なるスペクトルのパワーについては相対的に比較できることに注意すると、測定結果の方では変調深さが $\beta = 2.3$ の時にパルスエネルギーが小さいことがわかる。これは、変調深さが大きい時には光共振器中で共振するレーザーのパワーが小さくなるため、Injection seeding が効きにくくなり、729 nm のレーザー発振ではなく Ti:Sapphire 結晶の自己発振が起こりやすくなることが原因として考えられる。数値計算には Ti:Sapphire 結晶の自己発振の効果は入っていない。また、数値計算では EOM の変調周波数と光周波数と光共振器の FSR は全て理想的であることを仮定している。

A.3 周波数広がりとその変調周波数依存性

広帯域なスペクトルを得るためには、変調周波数 f_m を光共振器の FSR に調整する必要がある。周波数広がりの FSR 周りの変調周波数依存性を図 A.2に示す。測定結果として最大スペクトル広がりが 128(7) GHz、周波数応答幅として 79(4) kHz が得られた。一方理想的な数値計算では最大スペクトル広がりが 145 GHz、周波数応答幅が 60 kHz である。結果として、数値計算により見積もった最大性能に対して、88% のスペクトル広がりを実現できたと言える。わずかにスペクトル広がりが小さく、広がりの周波数応答が緩やかな結果が得られているのは、数値計算では光共振器や変調周波数、レーザー周波数が理想的に安定していることを仮定している一方、実際にはそれらに有限の揺らぎが存在するため、その効果によってわずかに緩やかな周波数応答になっていると考えられる。残留周波数揺らぎは $\sqrt{79^2 - 60^2} = 51$ kHz と見積もることができる。しかし、最大性能に対して 88% の周波数広がりが得られていることから、周波数安定性としては十分であると言える。

第 2.3.6 節において変調周波数と FSR の要求調整精度について簡単に議論し、FSR と変調周波数の調整精度は 1 kHz オーダーであると推測したが、図 A.2の数値計算の周波数応答幅は光共振器の境界条件のみによって決まっているので、実際の要求調整精度は 100 kHz 程度であると言える。

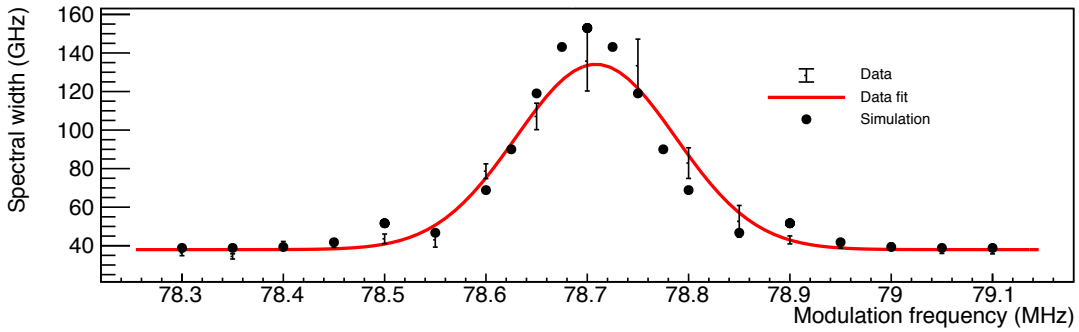


図 A.2 スペクトル広がりの変調周波数依存性。実験値 (図 4.5) と数値計算の比較。

A.4　チャープ速度とその変調深さ依存性

(3.25) 式 から非定常 FCG を構成する短パルスのチャープ速度が変調深さに依存することが分かっている。変調深さを変えながら、長パルスに対してアンプを加えるタイミングを変えた時のスペクトルの変化を測定した結果の一覧を第 A.4 節に示す。実験結果にはスペクトル広がりの中心に、数値計算には無いピークが見られるが、これはシードレーザーの CW 成分である。プラス周波数側にみられる細かいピークは、用いている分光器の非理想的な応答が見えている。

本研究で行なった光周波数チャープの観測では、長時間幅のレーザーパルスに対してステップ関数的な光学アンプを与え、アンプを与える時間を変化させながらパルス全体に対してスペクトル測定を行うことで間接的に光周波数のチャープを観測している。つまり、この方法によって観測するスペクトルの時間変化は、スペクトル測定を行う開始時間のみを変化させていることに対応する。光学アンプが理想的にステップ関数的である場合には、アンプを与えるタイミングの異なる波形の差分を取ることによってスペクトル測定を行う開始時間と終了時間を任意に選ぶことが出来るため、より直接的に光周波数のチャープを測定することが可能であるが、マルチパス Ti:Sapphire 増幅による光学アンプはステップ関数的なアンプからはずれているため、スペクトルの差分をとることは行なっていない。したがってこの観測方法によって見られるスペクトルの時間変化は、非定常 FCG の時間変化をそのまま見ている訳では無いことに注意が必要である。

中心の左右に見られる 2 つの山が非定常 FCG のパルス成分である。非定常 FCG のチャープを評価する方法として、まず、2 つの山のピークの時間変化として評価する方法を取った。ただし、スペクトル測定に用いている分光器のレスポンスが非理想的であることから、ピーク周波数を用いる方法には問題があるため、もう一つの評価方法として、中心周波数からプラス方向についてスペクトルを積分しプラス側の面積の半分を与える周波数をプラス側を代表する周波数とし、同様にマイナス側についてもマイナス側の半分の面積を与える周波数を代表として、その周波数の時間依存性によって光周波数のチャープを評価する方法を取った。この評価方法では、分光器のレスポンスの影響を抑えることができることに加え、光周波数としてピークだけではなくパワーの分布が時間変化していることを示していることになる。

ピーク周波数を用いてチャープを評価した結果を図 A.4に示す。ピーク周波数が時間変化していることから、非定常 FCG がチャープしていることが確認できる。変調深さが大きいほど、ピーク周波周波数の絶対値が大きくなり、その傾きが大きくなるという傾向は、実験と数値計算の間で定性的に一致している。

面積を用いてチャープを評価した結果を図 A.5に示す。ピーク周波数が時間変化していること、変調深さが大きいほどピーク周波周波数の絶対値が大きくなり、その傾きが大きくなるという傾向は、実験と数値計算の間で定性的に一致している。面積を用いた評価方法でもチャープが確認できることから、ピーク周波数だけではなく、パワーの分布として時間変化が見られることが確認できた。

数値計算と実験結果のずれの原因としては、数値計算では、理想的にステップ関数的な光学アンプを仮定してスペクトルの計算を行っているのに対し、実験ではマルチパス増幅による光学アンプを行なっており、その増幅のされ方は一様ではないことが考えられる。

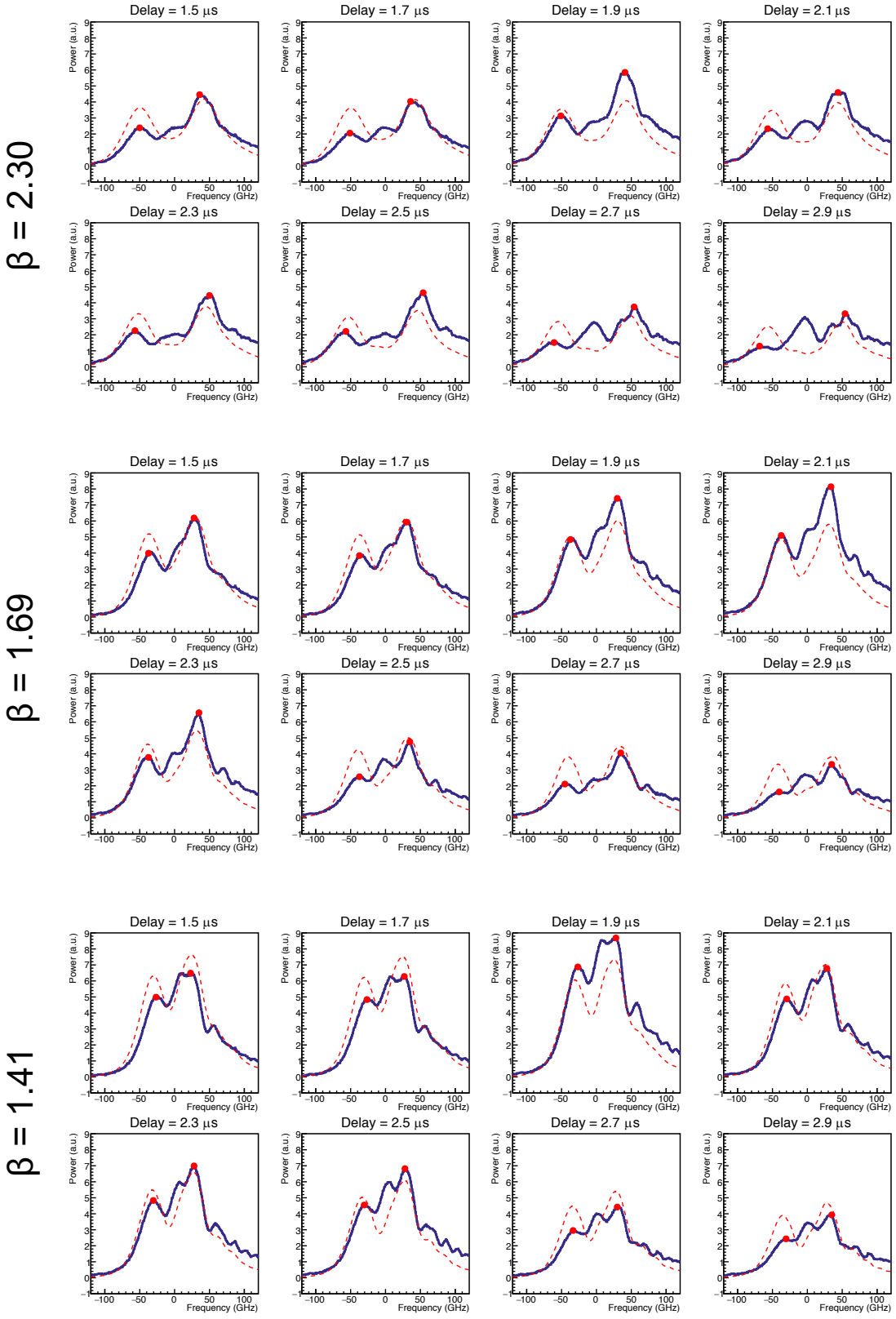


図 A.3 光周波数チャープ測定時のスペクトル波形の例。チャープはスペクトル波形の左右のピークの位置の時間変化として評価している。各スペクトル上の赤点がチャープ速度の評価に用いたピーク点である。赤破線は数値計算の結果。

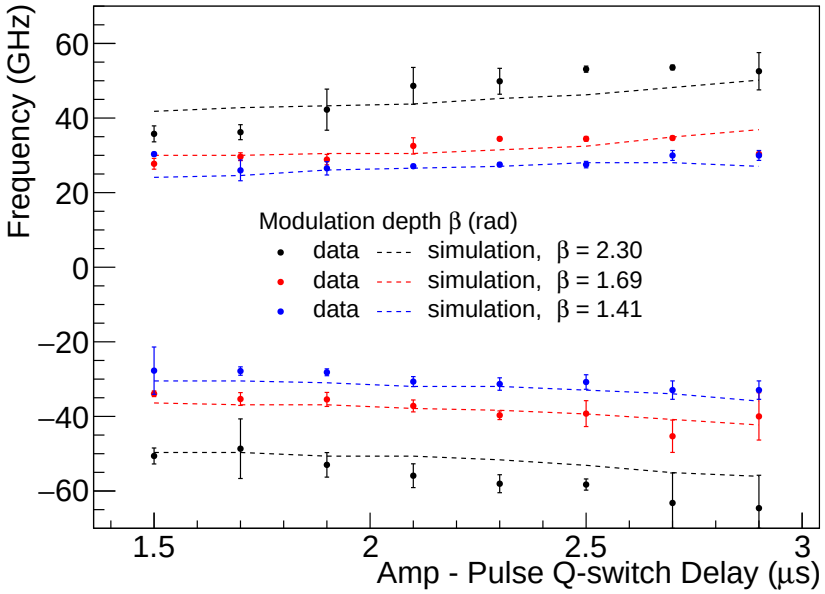


図 A.4　ピークにより評価したチャープ速度の変調深さ依存性。点が実験値であり、破線が数値計算の結果を示している。

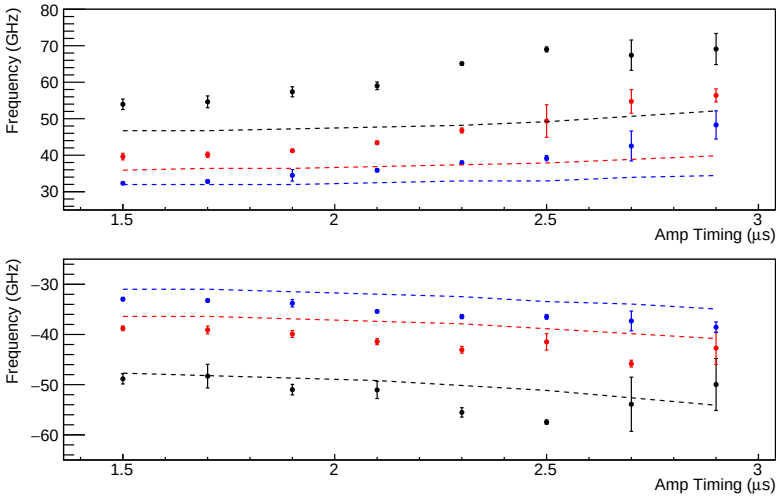


図 A.5　面積により評価したチャープ速度の変調深さ依存性。点が実験値であり、破線が数値計算の結果を示している。変調深さと色の対応は図 A.4と同じである。

A.5　まとめ

実験結果と数値計算について比較を行い、それらの振る舞いが定性的に一致することが確認できた。したがって第 3.2 節における数値計算モデルは妥当であり、数値計算によって得られた関係式を用いて Ps 冷却

レーザーの性能を評価することができる。また、この数値計算はレーザー周波数・FSR・変調周波数の調整が理想であり、それらの安定性も理想的であることを仮定している。この理想的な数値計算と実験結果の間に一致が見られることから、現状の系についてほぼ設計通りの性能を実現することが出来ていると言える。

付録 B

非理想的な条件での数値計算

第 3.2 節において、レーザー周波数と変調周波数と光共振器の FSR が理想的な場合について数値数値計算を行った。第 3.2 節の数値計算手法はレーザーが理想的に共振していない場合や、変調周波数が FSR からずれているような一般的な場合についても計算が可能である。本章で非理想的な場合における数値計算の結果について述べる。

B.1 非理想的な条件: 変調周波数 f_m と共振器の FSR がずれている場合

EOM の変調周波数が光共振器の FSR からずれている場合について考える。変調周波数 f_m のずれを次のようにして特徴づけることにする。

$$f_m/\mathrm{FSR} = \mathbb{N} + \delta_\mathrm{m} \tag{B.1}$$

図 B.1に EOM の変調周波数をずらした長パルスのスペクトルを示す。途中まではサイドバンドが生成されているものの、急激にサイドバンドが立たなくなる周波数が存在することがわかる。また、f_m のずれが大きいほど、サイドバンドが立ちにくくなっている。これは、f_m がずれている場合には高次のサイドバンドになる程わずかなずれが積み重なって、サイドバンドが立ちにくくなるためであると考えられる。その cut off 周波数と変調周波数のずれ δ_m との関係を図 B.2に示す。両者には以下の簡単な関係が成り立つことがわかった。

$$f_{cut} \times \delta_m = 25\ \mathrm{MHz} \tag{B.2}$$
$$order_{cut} \times \delta_m = 0.32 \tag{B.3}$$

B.2 非理想的な条件: 片側だけサイドバンドを立てることが可能

EOM の変調周波数とレーザーの光周波数を同時に光共振器からずらすことを考える。レーザーの光周波数 f_0 と光共振器の FSR とのずれを次のようにして特徴づけることにする。

$$f_0/\mathrm{FSR} = \mathbb{N} + \delta_\mathrm{f} \tag{B.4}$$

δ_m と δ_f をうまく調整すると、サイドバンドを片側にだけ生成することも可能になる。$\delta_m = 10^{-3}$、$\delta_f = 0.3$ として片側にのみサイドバンド生成を行った長パルスのスペクトルを図 B.3に示す。

片側にだけサイドバンドを生成することのできる理由は、図 B.4に示す。横軸は光の周波数、縦軸は光共振器中の光の留まりやすさを表している。光の周波数だけがずれている場合には、すべてのサイドバンドが光共

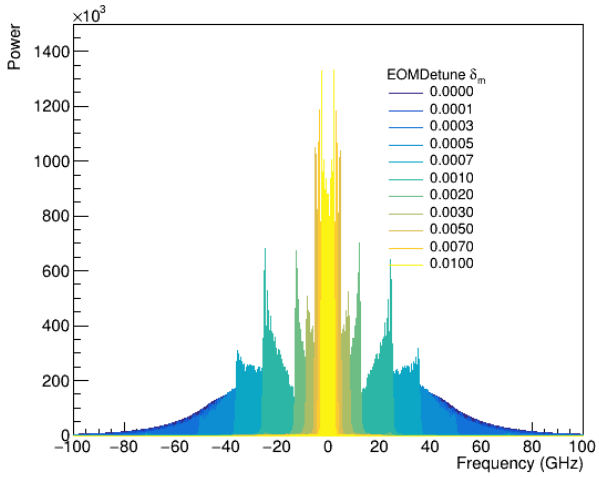


図 B.1 EOM の変調周波数をずらした時のスペクトルの応答

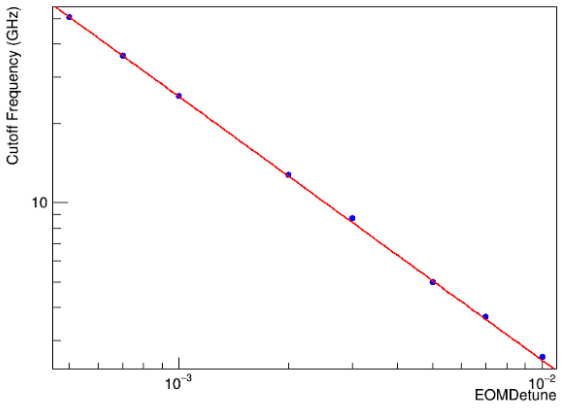


図 B.2 変調周波数のずれと cut off 周波数の関係

振器中で共振しにくくなり、全体的にサイドバンドが立ちにくくなるだけだが、その状態で EOM の変調周波数もずらしてあげると、プラスマイナスいずれかの方向のサイドバンドのみが光共振器の共振周波数に近づいていくので、片側だけサイドバンドが立ちやすい状況になる。

理想的な非定常 FCG においては、スペクトルに 2 つの山が生じそれらが離れるように両側にチャープしていくということを見たが、2 つの山のうち片側だけを利用したい場合、かつもう一つの山が生じているとそれが邪魔になる場合については、この片側にだけサイドバンドを立てる方法を利用することができると考えられる。ただし、両側にサイドバンドを立てる場合よりも、片側だけにサイドバンドを立てる様にする方がレーザーのスペクトル幅を広くすることは難しくなる。

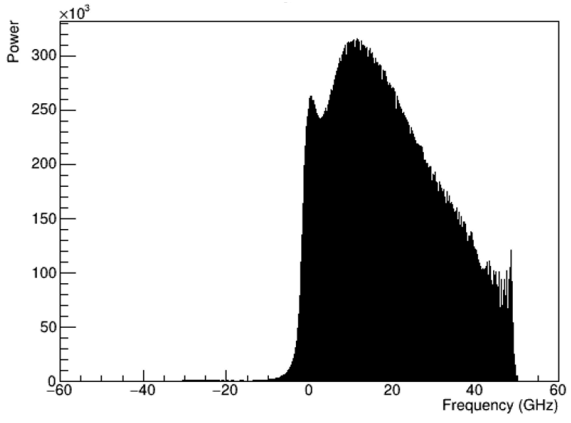


図 B.3 片側のみのサイドバンド生成の結果。レーザー周波数と変調周波数を絶妙にずらすと、片側にだけサイドバンドを生成することができる。

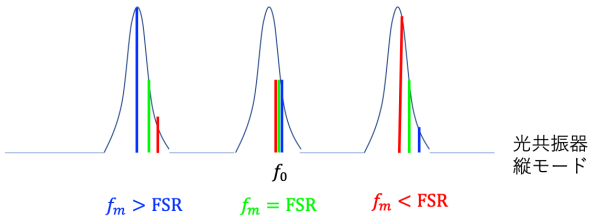


図 B.4 片側にだけサイドバンドを立てるメカニズムの模式図

付録 C

非線形結晶を用いた高次高調波生成

本研究では 243 nm の Ps 冷却レーザーを実現するために、729 nm のレーザーを非線形結晶による 3 次高調波生成によって 243 nm に変換する。729 nm レーザーを LBO 結晶によって 2 次高調波生成を行い、364.5 nm レーザーを作り出す。さらに 729 nm と 364.5 nm の和周波生成を BBO 結晶によって行い、243 nm レーザーを作り出す。

本章では非線形結晶による高次高調波生成について簡単に説明し、効率の良い高次高調波生成を行うために実験上調整すべきパラメーターと要求調整精度について述べる。最後にそれらのパラメーターを調整するための実験上の工夫について述べる。

C.1　非線形結晶による和周波生成

非線形結晶に対して、2 つの周波数の光を入射するとそれらの和周波の電子分極が励起され、その位相整合が保たれている場合に和周波光が発生する。詳しい議論は [36, 37] 参照。

和周波生成効率 η は以下の様に書ける。

$$\eta \propto I_1 I_2 \mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) \tag{C.1}$$

I_1, I_2: 基本波のエネルギー密度、L: 結晶内の作用長、Δk: 位相角不整合

Δk は位相角不整合と呼ばれ、波数 $\boldsymbol{k}$ に対して $\Delta k = |\boldsymbol{k}^3 - \boldsymbol{k}^1 - \boldsymbol{k}^2|$ である。和周波生成効率は基本波のエネルギーに比例し、位相整合が得られている (Δk=0) ときに和周波生成効率が最大になる。2 次高調波生成は 2 つの基本波の周波数が一致する和周波生成の特殊な場合である。

C.2　効率の良い和周波生成のために調整すべきパラメーター

したがって、効率の良い和周波生成を行うためには以下のパラメータを調整する必要がある。調整が必要なパラメーターを図示したものを図 C.1に示す。

1. レーザー相対偏光角 θ_P
2. 結晶入射角度 θ_C
3. レーザー相対入射角度 θ_L
4. 結晶軸角度 θ_A

5. 空間的なずれ δr
6. ビーム直径 σ_1, σ_2

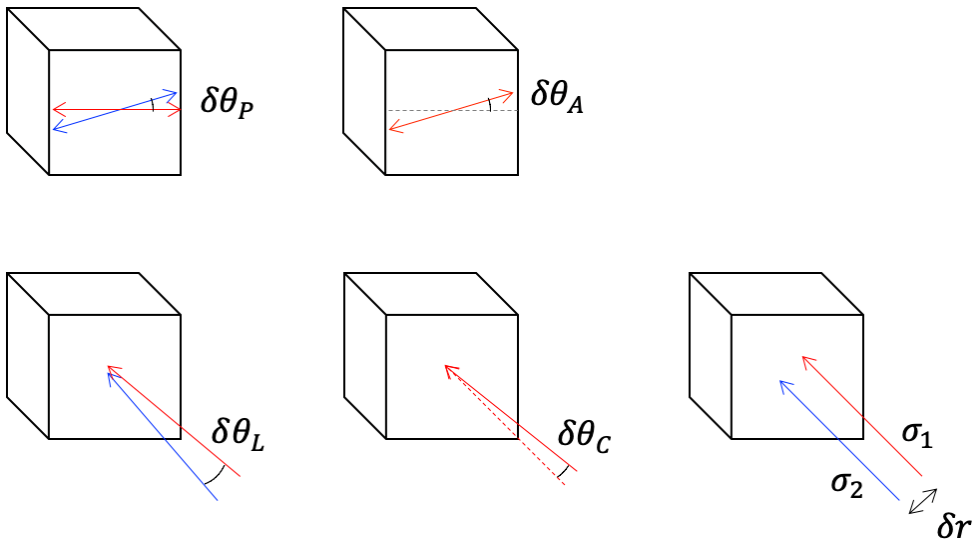


図 C.1 和周波生成時に調整する必要のあるパラメーター。$\delta\theta_P$: 二つのレーザーの相対偏光角度。$\delta\theta_A$: 結晶軸に対する偏光角度。$\delta\theta_L$: 二つのレーザーの相対入射角度。$\delta\theta_C$: 結晶入射角度。$\delta\theta_L$: 二つのレーザーの相対偏光角度。δr: 二つのレーザーの空間ずれ。σ: ガウシアンビーム幅。

(C.1) 式 から、図 C.1がずれているときの和周波生成効率の応答は (C.2) 式 で書ける。式の導出は本節の最後に記す。

$$\frac{\eta}{\eta_0} = \cos(\delta\theta_P)\cos(\delta\theta_A)\mathrm{sinc}^2\left(\frac{k_3\delta\theta_C}{2}\right)\mathrm{sinc}^2\left(\frac{k_3\delta\theta_L}{2}\right)\exp\left(-\frac{\delta^2}{\sigma_1^2+\sigma_2^2}\right) \tag{C.2}$$

また、 (C.2) 式 から要求精度は表 C.1と書ける。結果として、θ_C と θ_L を正確に調整することが特に重要であることがわかる。

表 C.1 和周波生成時のパラメーターの要求調整精度

パラメータ	依存性	最低次	効率 1 割減のずれ
θ_P	$\cos(\delta\theta_P)$	$1-\delta\theta_P^2/2$	25.6 deg
θ_A	$\cos(\delta\theta_A)$	$1-\delta\theta_A^2/2$	25.6 deg
θ_C	$\mathrm{sinc}^2\left(\frac{k_3\delta\theta_C}{2}\right)$	$1-(\pi k_3 L\delta\theta_C)^2/12$	3.86×10^{-4} deg
θ_L	$\mathrm{sinc}^2\left(\frac{k_3\delta\theta_L}{2}\right)$	$1-(\pi k_3 L\delta\theta_L)^2/12$	3.86×10^{-4} deg
$\sigma, \delta r$	$\exp(-\frac{\delta r^2}{2(\sigma_1^2+\sigma_2^2)})$	$1-\frac{\delta r^2}{2(\sigma_1^2+\sigma_2^2)}$	$\delta r=\sqrt{0.2(\sigma_1^2+\sigma_2^2)}=63\ \mu\mathrm{m}(\sigma=0.1\ \mathrm{mm})$

- $\delta r, \sigma$

$$\exp\left(-\frac{x^2}{2\sigma_1}\right)\exp\left(-\frac{(x-\delta r)^2}{2\sigma_2}\right) \tag{C.3}$$

$$= \exp\left\{-\frac{\sigma_1^2+\sigma_2^2}{2\sigma_1^2\sigma_2^2}\left(x-\frac{\sigma_1^2}{\sigma_1^2+\sigma_2^2}\delta r\right)^2\right\}\exp\left(-\frac{\delta r^2}{2(\sigma_1^2+\sigma_2^2)}\right) \tag{C.4}$$

- $\delta\theta_C$

$$|\Delta \boldsymbol{k}_C| \sim \sqrt{2k_3^2 - 2k_3^2 \cos\theta_C} \tag{C.5}$$
$$\sim 2k_3 \sin(\theta_C/2) \tag{C.6}$$
$$\sim k_3\theta_C \tag{C.7}$$
$$\mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta k_C L}{2}\right) \sim 1 - \frac{\pi^2}{3}\left(\frac{k_3\delta\theta_C L}{2}\right)^2 \tag{C.8}$$

- $\delta\theta_L$

$$|\Delta \boldsymbol{k}_L| \sim |k_2\theta_L/2 - k_3\theta_L/2| \tag{C.9}$$
$$\sim k_3\theta_L \tag{C.10}$$
$$\mathrm{sinc}^2\left(\frac{\Delta k_L L}{2}\right) \sim 1 - \frac{\pi^2}{3}\left(\frac{k_3\delta\theta_L L}{2}\right)^2 \tag{C.11}$$

C.3　実験上の工夫

表 C.1を満たすための実験上の工夫について述べる。2 次高調波生成は基本波が同一であることから、調整が容易であるため主に和周波生成について述べる。

偏光の調整 (θ_P, θ_L)

2 次高調波生成と和周波生成ではともに第 1 種位相整合を行う。第 1 種位相整合では 2 つの同じ偏光の入射光から、入射光に対して垂直な偏光の和周波光が生成される。2 次高調波生成時は p 偏光の基本波を LBO 結晶に入射するが、効率的な和周波生成を行うためには BBO 結晶に入射する前に基本波と 2 次高調波の偏光を揃える必要がある。本研究では Quartz rotator [1]を用いて偏光を揃えた。Quartz rotator は基本波と 2 次高調波のポインティングを変えずに偏光のみを調整出来ることが利点である。Quartz rotator としては理想的には 729 nm(基本波) と 364.5 nm(2 次高調波) で AR コーティングが施された適切な厚みの水晶を用いるのが理想的である。しかし、基本波と 2 次高調波の偏光の一致要求精度は高くないので、532 nm で偏光を 45° 回転させる Edmund 社の市販の Quartz rotator を用いた。理想的な Quartz rotator を特注することで、3 次高調波生成効率は改善可能である。

空間的な重なりの保証 (δr, σ)

和周波生成時の基本波と 2 次高調波の空間的な重なりを保証するための工夫について述べる。和周波生成効率は入射光のパワーに比例するため、非線形結晶上では結晶が損傷しない程度にレーザーを細く絞ることが必要である。一方、和周波生成を行うためには非線形結晶上で二つの入射光が空間的に重なっていることが不可欠である。一般に細いビーム系を維持しながら空間的重なりを保つのは難しいため、本研究ではレンズと凹面ミラーを適切に配置することによって、細い二つのビームの空間的な重なりが容易に保証される光学系を構築した。まず、コリメートされた高強度 (∼5 mJ)729 nm パルスを f = 100 mm のレンズで集光する。レンズの 50 mm 後ろのビームウェイスト上に LBO 結晶を配置して効率的な 2 次高調波生成を行う。その 50 mm

[1] 水晶の旋光性 [38] を用いて直線偏光の入射光の偏光角を回転させる光学素子。入射光は水晶の結晶軸に沿って入射する。旋光性には波長依存性があり、偏光回転角は結晶厚に比例する。適切な結晶厚を指定することで二つの入射光の相対偏光角を任意の角度に調整することができる。

後ろに f = 50 mm の凹面鏡を配置し、さらにその 50 mm 後ろに BBO 結晶を配置する。この様な配置により LBO 結晶上の空間プロファイルがそのまま BBO 結晶上に転送される。これにより BBO 結晶上での基本波と 2 次高調波の重なりを保証する。レンズではなく、凹面鏡を用いているのは基本波と 2 次高調波で波長が大きく異なるので、色収差を小さくする必要があるためである。コマ収差を極力小さくするために、凹面鏡の反射光はできる限り垂直に近い角度で打ち返す様にしている。

偏光と結晶軸の調整 (θ_A)

非線形結晶による和周波生成のためには、入射光の偏光角と結晶軸の間の角度を調整する必要がある。したがって 2 つの非線形結晶は回転可能な円形のマウントに対して固定し、その円形のマウントを角度調整が可能なミラーマウントにマウントしており、結晶を回転させる事で、レーザーの偏光に対して結晶軸を調整している。

レーザーの偏光の角度の確認は、半波長板とグランレーザープリズム (GL10, Thorlabs) を用いて行った。グランレーザープリズムは広帯域かつ消光比が高いため、2 次高調波生成後の基本波と 2 次高調波の両方の偏光を同時に確認出来る。

レーザーの入射方向と結晶軸の調整 (θ_C)

非線形結晶や Quartz Rotator は入射光が素子に対して垂直に入射したときにレーザーのポインティングと結晶軸が理想的な角度になる様に設計されている。したがって、まずはレーザーを素子に対して垂直に入射する様にする。垂直な入射を保証するためには、穴の空いた紙にレーザーを通しながら光学素子にレーザーを入射するとよい。戻り光が紙に当たるので、それを確認しながらレーザーが光学素子に垂直に入射する様に調整することができる。

特に調整精度が要求の高い非線形結晶についてはジンバル式のミラーマウント[2]にマウントし、上記の垂直入射調整後に結晶の角度をシンバル式ミラーマウントで調整する。

[2] 通常の 2 軸の角度調整可能なミラーマウントと比較して、角度の粗調と微調が可能かつマウントされた光学素子の中心が動かないという利点がある。

謝辞

本研究を行うにあたり、多くの方々にご指導、ご支援をいただきました。心から感謝致します。

指導教官である浅井祥仁教授にはポジトロニウム高速冷却光源の開発という魅力的な研究テーマを提供いただきました。難波俊雄助教には日頃から研究の考え方についてご指導をいただきました。石田明助教は Ps-BEC プロジェクトを率いてくださっています。プロジェクトについて一から丁寧にご指導をいただきました。浅井研究室の周健治さんは石田明助教とともに Ps-BEC プロジェクトを率いてくださっています。先輩として日頃から多くの相談に乗っていただきました。浅井研究室の上岡修星さんには、日頃から光学技術の相談に乗っていただきました。元浅井研究室の村吉諄之さんと樊星さんには Ps 冷却光源の基幹部分の開発をしていただきました。本研究は村吉さんの研究を引き継いだものです。浅井研究室の橋立佳央理さんは、Ps-BEC プロジェクトのための陽電子集束の研究を行ってくださっています。

東京大学工学部の吉岡孝高准教授には光源開発のためのあらゆる事柄について熱心にご指導をいただきました。多くの研究のアイデアを頂いた他、日頃から研究の相談に真摯に応じてくださいました。吉岡研究室の蔡恩美助教にはレーザー物理や電子回路の基本からご指導をいただきました。吉岡研究室の田島陽平さんとは研究開始当初から共に光源開発を行いました。吉岡研究室の川崎彬斗さんとは M2 から共に光源開発を行いました。本研究成果には田島さんと川崎さんの協力が不可欠でした。吉岡研究室のみなさまには日頃から実験装置を快く使わせていただいたいたことを感謝しております。東京大学の五神真総長には、本研究に不可欠な機材を提供していただいています。

tabletop 実験グループの神谷好郎助教、稲田聡明博士、清野結大さん、成田佳奈香さんは日頃のミーティングで有意義な議論をしてくださいました。試作室の大塚茂巳さん、下澤東吾さんには実験装置の製作を行っていただきました。ICEPP 物理事務室のみなさまには研究に不可欠な様々な手続きを行っていただきました。ICEPP 同期の大石玲誉さん、大矢淳史さん、梶原昇吾さん、舘野元さん、豊田和輝さん、茂木駿紀さん、野内康介さんとは日頃から食事を共にするなど、楽しい研究生活を送ることができました。最後に、友人のみなさまと家族に感謝致します。

参考文献

[1] A. H. Al-Ramadhan and D. W. Gidley, "New precision measurement of the decay rate of singlet positronium", Phys. Rev. Lett. **72**, 1632 (1994).

[2] Y. Kataoka, S. Asai, and T. Kobayashi, "First test of O(α2) correction of the orthopositronium decay rate", Physics Letters B **671**, 219 (2009).

[3] W. Ketterle and H.-J. Miesner, "Coherence properties of Bose-Einstein condensates and atom lasers", Phys. Rev. A **56**, 3291 (1997).

[4] 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**, 198 (1995).

[5] 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 (1995).

[6] S. Mariazzi, P. Bettotti, and R. S. Brusa, "Positronium cooling and emission in vacuum from nanochannels at cryogenic temperature", Phys. Rev. Lett. **104**, 243401 (2010).

[7] H. Saito and T. Hyodo, in *New directions in antimatter chemistry and physics*, edited by C. M. Surko and F. A. Gianturco (Kluwer Academic Publishers, 2001), pp. 101–114.

[8] D. B. Cassidy and A. P. Mills, "Physics with dense positronium", physica status solidi (c) **4**, 3419 (2007).

[9] V. Vanyashin, "Coherent decay of positronium Bose condensate", Letters in Mathematical Physics **31**, 143.

[10] H. K. Avetissian, A. K. Avetissian, and G. F. Mkrtchian, "Self-amplified gamma-ray laser on positronium atoms from a Bose-Einstein condensate", Phys. Rev. Lett. **113**, 023904 (2014).

[11] K. Melnikov and A. Yelkhovsky, "O(m$\alpha^7 \ln^2 \alpha$) corrections to positronium energy levels", Physics Letters B **458**, 143 (1999).

[12] M. S. Fee, S. Chu, A. P. Mills, R. J. Chichester, D. M. Zuckerman, E. D. Shaw, and K. Danzmann, "Measurement of the positronium 1 $^3S_1$–2 $^3S_1$ interval by continuous-wave two-photon excitation", Phys. Rev. A **48**, 192 (1993).

[13] 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**, 104001 (2016).

[14] Y. Nagashima, Y. Morinaka, T. Kurihara, Y. Nagai, T. Hyodo, T. Shidara, and K. Nakahara, "Origins of positronium emitted from SiO_2", Phys. Rev. B **58**, 12676 (1998).

[15] 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 (1995).

[16] R. Kitamura, L. Pilon, and M. Jonasz, "Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature", Appl. Opt. **46**, 8118 (2007).

[17] D. B. Cassidy, M. W. J. Bromley, L. C. Cota, T. H. Hisakado, H. W. K. Tom, and A. P. Mills, "Cavity Induced Shift and Narrowing of the Positronium Lyman-α Transition", Phys. Rev. Lett. **106**, 023401 (2011).

[18] E. P. Liang and C. D. Dermer, "Laser cooling of positronium", Optics Communications **65**, 419 (1988).

[19] H. Iijima, T. Hirose, M. Irako, M. Kajita, T. Kumita, H. Yabu, and K. Wada, "Monte carlo study of ortho-positronium laser cooling", Journal of the Physical Society of Japan **70**, 3255 (2001).

[20] T. Kumita, T. Hirose, M. Irako, K. Kadoya, B. Matsumoto, K. Wada, N. Mondal, H. Yabu, K. Kobayashi, and M. Kajita, "Study on laser cooling of ortho-positronium", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **192**, 171 (2002).

[21] 村吉敦之, "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", 修士学位論文, 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 (2018).

[22] C. E. Wieman and L. Hollberg, "Using diode lasers for atomic physics", Review of Scientific Instruments **62**, 1 (1991).

[23] P. F. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al2O3", J. Opt. Soc. Am. B **3**, 125 (1986).

[24] T. Hansch and B. Couillaud, "Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity", Optics Communications **35**, 441 (1980).

[25] A. Deller, B. S. Cooper, T. E. Wall, and D. B. Cassidy, "Positronium emission from mesoporous silica studied by laser-enhanced time-of-flight spectroscopy", New Journal of Physics **17**, 043059 (2015).

[26] G. Xia, Z. Wu, M. Liu, and Y. Pan, "Transmitted characteristics for a gaussian beam passing through a misaligned fabry-perot interferometer", Optik **114**, 521 (2003).

[27] W. H. Lowdermilk and J. E. Murray, "The multipass amplifier: Theory and numerical analysis", Journal of Applied Physics **51**, 2436 (1980).

[28] P. Georges, F. Estable, F. Salin, J. P. Poizat, P. Grangier, and A. Brun, "High-efficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continuous-wave single-mode laser", Opt. Lett. **16**, 144 (1991).

[29] S. Takeuchi and T. Kobayashi, "Highly efficient Ti: sapphire regenerative amplifier", Optics Communications **109**, 518 (1994).

[30] M. Kourogi, K. Nakagawa, and M. Ohtsu, "Wide-span optical frequency comb generator for accurate optical frequency difference measurement", IEEE Journal of Quantum Electronics **29**, 2693 (1993).

[31] K.-P.Ho and J. M. Kahn, "Optical frequency comb generator using phase modulation in amplified circulating loop", IEEE Photonics Technology Letters **5**, 721 (1993).

[32] P. Del'Haye, S. B. Papp, and S. A. Diddams, "Hybrid electro-optically modulated microcombs", Phys. Rev. Lett. **109**, 263901 (2012).

[33] L. M. Frantz and J. S. Nodvik, "Theory of pulse propagation in a laser amplifier", Journal of Applied Physics **34**, 2346 (1963).

[34] J. D. Bierlein and H. Vanherzeele, "Potassium titanyl phosphate: properties and new applications", J. Opt. Soc. Am. B **6**, 622 (1989).

[35] C.-T. Wang, C.-L. Wu, H.-W. Zhang, T.-H. Lin, and C.-K. Lee, "Polarization-independent 2 pi phase modulation for terahertz using chiral nematic liquid crystals", Opt. Mater. Express **6**, 2283 (2016).

[36] R. W. Boyd, *Nonlinear optics, third edition*, 3rd (Academic Press, Inc., Orlando, FL, USA, 2008).

[37] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric", Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).

[38] A. Yariv and P. Yeh, *Photonics: optical electronics in modern communications; 6th ed.* Oxford Series in Electrical and Computer Engineering (Oxford Univ., Oxford, 2006).