

# フェムト秒白色光パルスの波形整形と広帯域位相整合を用いた3倍波波形整形

## Pulse shaping of white-light pulse laser generated with a noble-gas-filled hollow fiber and its third harmonic generation

王戈(M2), 大石裕(助教)

G Wang, and Y. Oishi

### Abstract

We hereby carry out an experiment for the shaping of ultraviolet broadband femtosecond pulse (the third harmonic generation of white light broadband femtosecond pulse laser) by combining the broadband pulse shaping techniques in infrared with broadband sum frequency mixing (SFM) scheme to fully transfer the laser pulse to ultraviolet.

### 1 はじめに

1980年代超短パルス波形整形技術の発明から、波形整形器 (Pulse Shaper) が進化し続けており [1]. 特に、近年、波形整形技術の発展が目覚ましい。パルスレーザの振幅と位相の同時制御が二層の液晶空間光変調器を用いて実現された [2]. また、モードロック Ti:Sapphire レーザの基本波 (800 nm) 付近では、2 次元整形など高度かつ精密な制御を実現した [3]. この二次元波形整形技術に基づいて、単層の LC-SLM でも振幅位相の同時制御を実現した [4]. また、可視域 (400 nm 中心) と近赤外域 (800 nm 中心) において、振幅位相整形を加えて、フェムト秒パルスの偏光整形も実現するようになった [5].

さらに、短波長領域での波形整形技術への挑戦も進行している。音響光学素子 [6], そして和周波混合 (Sum Frequency Mixing, SFM) による間接的整形スキームを用いて Ti:Sapphire レーザの 3 倍波 (267 nm) の整形実験が報告された [7].

また、フェムト秒パルスは多くの周波数成分が位相を揃った瞬間に生成されるため、広帯域のパルスの制御可能な整形器の開発も進んでいる。800 nm 中心で可視から赤外までの 1 オクターブ近くの広帯域パルスを制御できる波形整形器が T. Binhammer らにより報告された [8].

一方、短波長でかつ広帯域の波形整形が今まで空白である。その原因として、まず AOM は原理上で使用周波数帯が限られ、広帯域に使用することはできない。ま

た、LC-SLM が広帯域に適する一方、紫外で動作しない。波長変換による間接的な方法で紫外での整形が実現できるが、一般の SFM 過程には全帯域で位相整合条件を満たすことが困難ため、限られた狭帯域の変換しかできない。近年、いくつかのより広い範囲で位相整合を実現する手法が提案、実行された [9, 10, 11]. これらの手法を間接的な短波長領域の波形整形に組み込むと、短波長領域での広帯域パルスレーザの波形整形が実現可能になると考えられる。

そこで、我々は広帯域の紫外域パルスレーザの波形整形の実現を目標とした。具体的に、まずは近赤外域での広帯域パルスを整形して、広帯域和周波混合により整形されたパルスを紫外域に変換することによりこの目標を実現したいと考えた。

### 2 白色光パルスの波形整形

まず、近赤外域の広帯域パルスレーザの光源 (白色光) に関して述べる。光源は、チャープパルス増幅器 (Chirp Pulse Amplifier, CPA) によって得る高強度フェムト秒レーザパルスをアルゴンガスが注入された中空ファイバーチャンバーで自己位相変調 (Self Phase Modulation, SPM) により生成した広帯域のパルスを用いる。広帯域化した白色光パルスをチャープミラー対で圧縮することによって、パルスエネルギー約 0.1 mJ、スペクトル幅約 200 nm、時間幅約 12 fs (FWHM) のパルスレーザを得た。スペクトルと時間波形は Fig. 1 で示す。ビーム径は約 8 mm となる。

波長領域とスルーputを配慮して、本実験ではセルマイヤー方程式の計算により知られた、最大の分散能力を持つ SF59 材料から作られたプリズムと  $f=660$  mm の長焦点距離シリンダカルミラーの組み合わせで波形整形に十分な角度分散を実現する。SF59 プリズムのブルースター角が  $62.5^\circ$  で、頂角が  $55^\circ$  になる。このプリズムミラー対を用いて、フーリエ面で集光されたスポットの横幅サイズが  $34\mu\text{m}\sim 48\mu\text{m}$  になる。ここで Jenoptik 製の 640 ピクセル LC-SLM (Jenoptik

SLM-S640) を用いる.ピクセル幅は $100\ \mu\text{m}\times 1\ \text{cm}$  である.また, Fig.1 に示す広帯域パルスを使う場合に, その中の330 ピクセルで整形を行うことになる.

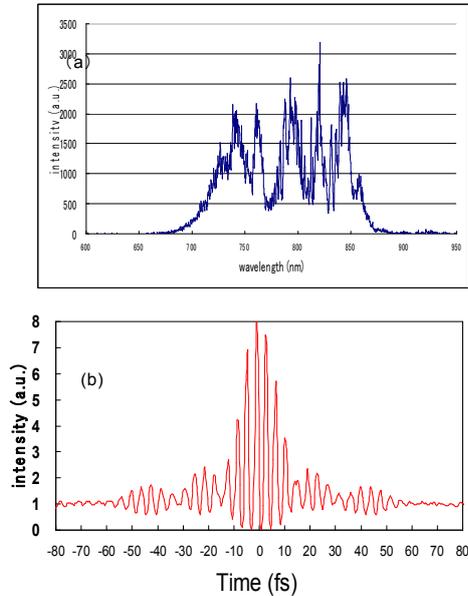


Fig. 1 The spectrum and the pulse duration of white continuum after chirp compensation measured with FRAC

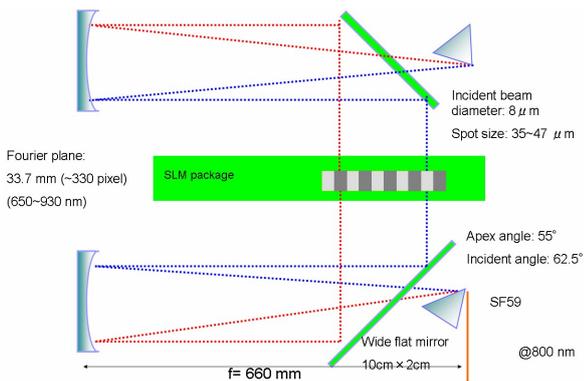


Fig.2 Schematic view of the pulse shaper for broadband pulse laser such as white light with spectrum as broad as showed in Fig.1

また, 白色光を広帯域波形整形器でゼロ分散状態と2次分散の変調を与えた結果を Fig.3 で示す.

### 3 広帯域位相整合による波長変換

波長成分に適切な角度分散をつけることによる広帯域の位相整合条件を満たすことができる[10]. 今回の白色光の全帯域位相整合を得るには,  $7.06\times 10^{-4}\ \text{rad/nm}$

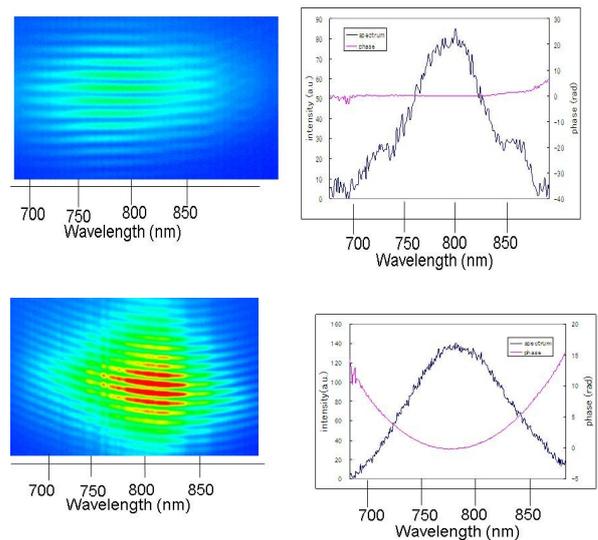


Fig.3 The SSI result of the zero-dispersion status and the pulse applied with  $300\ \text{fs}^2$  using broadband pulse shaper

の分散が必要となる. 実験でこの角度分散を得るには, Fig.4 に示すように, まずはSF10製のプリズムで角度分散をつける. SF10プリズムは  $1.09\times 10^{-4}\ \text{rad/nm}$  の角度分散しかつけないが,  $f=500\ \text{mm}$  と  $f=75\ \text{mm}$  の凹面ミラーによる構成した望遠鏡で角度分散を  $7.06\times 10^{-4}\ \text{rad/nm}$  に増倍する. また, CPA直後で一部のレーザー光を二次高調波(SHG)用のBBO結晶を通して,  $400\ \text{nm}$  のレーザーを生成する. そして, この  $400\ \text{nm}$  の光パルスを  $8\ \text{cm}$  のガラスロッドを透過させ, パルス幅を延ばした. そのパルスと角度分散をつけられた白色光をTHG用のBBOに入射させることにより広帯域の紫外パルスを生み出す. ここで, 厚さ  $50\ \mu\text{m}$ , カット角  $44.3^\circ$  のTHG用BBO (Casteck製)を使う.

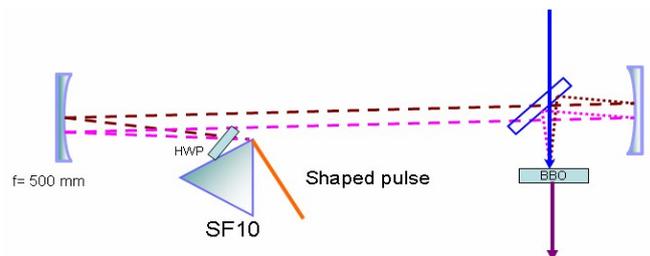


Fig.4 Schematic graph of the set-up used for broadband pulse shaping. The pulse laser is firstly angularly dispersed by a prism, and then the angular dispersion is adjusted to the expected value with a telescope structure.

広帯域THG発生の実験においては, Fig.5のように,

通常の波長変換（約3~4 nm [7]）より広い、7-8 nm のスペクトル幅を持つ光パルスの生成を達成した。また、中空ファイバから生成した白色光を前述のようにチャープミラーで分散補償をしたパルスを使い、広帯域波長変換をした。その結果をFig.6で示す。Fig.5とFig.6のX-FROG測定の解析結果を比較すると、白色光パルスの位相情報の変化が広帯域紫外パルスの位相に反映していることを確認した。

この結果から、分散補償前の白色光から得られたUVパルスの位相が2次分散を有する形をして、分散補償後の白色光から得られたUVパルスの位相はほぼフラットになっている。このように、基本波の位相情報がTHGの位相に転写することを証明した。また、時間幅はFig.4のように、分散補償していないときの116.5 fsから34.5 fsに圧縮した。ただ、設計上にUVパルスには25 nmのスペクトル幅を持つはずが、実験でその30%程度のスペクトルに留まった。

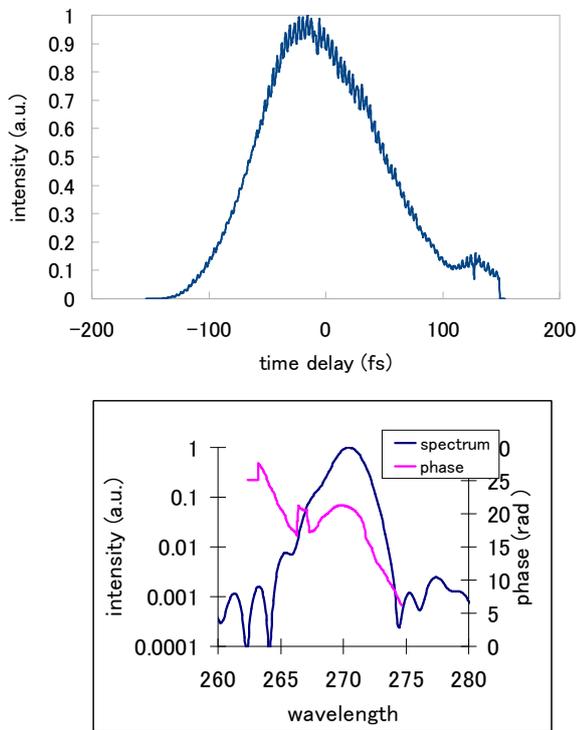


Fig.5. Experimental X-FROG results of the generation of broadband THG pulse. The pulse duration is 116.5 fs and the spectrum bandwidth is 7.2 nm.

## 4 考察

### 4.1 励起用のSHGのチャープのTHG位相への影響

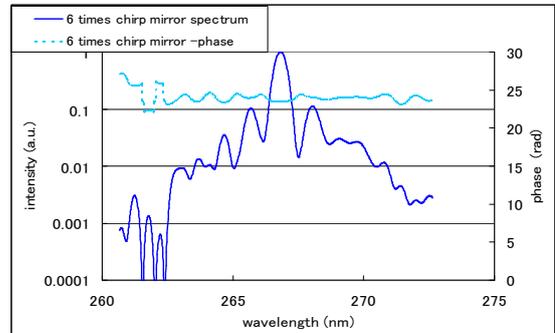
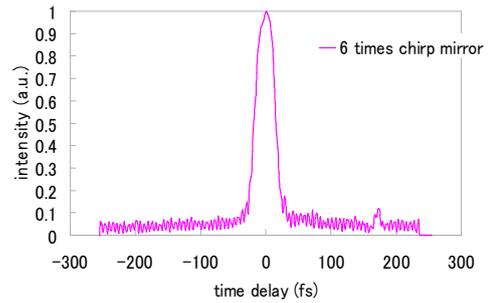


Fig.6: Experimental X-FROG results of the generation of broadband THG pulse from the white continuum with chirp compensation. The pulse duration is 34.5 fs and the spectrum bandwidth is 7.3 nm.

励起用のSHGにはパルス幅を伸ばすため、石英ロッドで大きなチャープをかけたので、そのチャープがTHGの位相のどのような影響をあたえるか調べた。

[7]によると、大きなチャープをかけたパルスと整形されたパルスの和周波を以下のように表現できる。

$$E_{UV}(t) \propto A_{HF}(t)A_{SHG}(t) \exp \left[ -i\phi_{HF}(t) - i\frac{t^2}{2D^2} \right] \times \exp \left[ -it(\omega_{HF} + \omega_{SHG}) \right]$$

この式の中、Dが励起用SHGのチャープ量を示す。また、チャープ量が十分大きくなれば、SHGの振幅も次のように近似できる。

$$A_{SHG}(t) \propto \exp \left[ -t^2 / (2\sigma^2 D^2) \right]$$

即ち、チャープ量が十分大きいなら、その時間波形の形をほぼ定数と近似できる。

シミュレーション計算の結果によると、励起光の時間幅が整形されたパルスの時間幅の2.5~3倍以上に伸ばせば、和周波混合した結果のUVパルスの位相にほぼ影響がない。ただ、スペクトルにはSHGのチャープの影響があるから、THG出力のスペクトルを精密に定めるには電界畳み込みを配慮する必要がある。そのた

め、位相変調のみを目標とすると一定の精度のある波形整形を達成出来ると考えている。

また、SHGパルスに透過させるガラスロッド4 cm, 8 cmの二つの場合のUVパルスの位相への影響を実験で行った。Fig.7で示すように、位相への影響はほぼないと考えて良い。

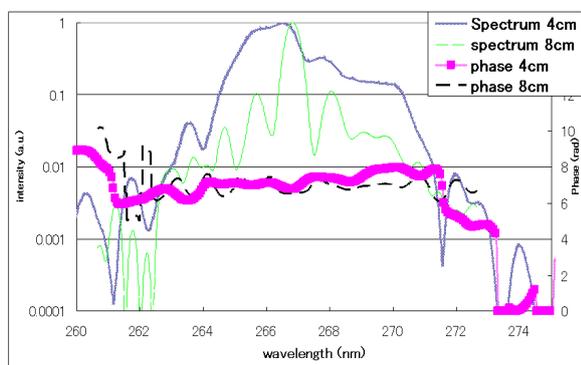


Fig.7. The influence of chirp in the pumping SHG pulse on the spectral phase of output THG pulse

#### 4.2 位相不整合を抑えるには

実験結果のスペクトルは理論どおり広がっていない理由の一つがプリズムで得られた角度分散と各周波数成分の位相整合角間の位相不整合が大きいことが挙げられる。プリズムで得られた角度分散の分布が一定なので、その角度分散と最も接近する位相整合角の分布を持つ波長帯域を探すことが広帯域波長変換には重要である。各種のプリズムと各波長帯域の位相不整合を計算してみた。SF10 プリズムを使い、650~900 nm+400 nm(励起)、550~750 nm+400 nm(励起)、550~750 nm+805 nm(励起)、500~700+805 nm(励起)の4つの場合の位相不整合を比較した。

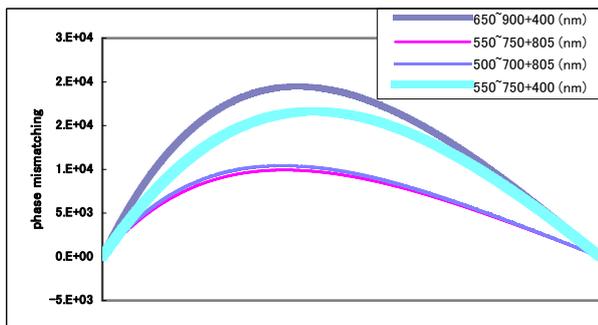


Fig.8 The comparison of phase mismatching of several combination of broadband pulse and pumping laser.

これらの計算から、定性的に、広帯域のパルスと励起用の波長が近いほど、位相不整合が小さくなる傾向が見える。そのため、もしOPAを使い、広帯域のパルスを位相不整合の最も小さい帯域に調整すると、和周波混合の帯域と効率が向上できると考えられる。

## 5 まとめ

本研究では、構築した広帯域波形整形器で2次分散などの変調を白色光に与え、整形を行った。そして、広帯域波長変換系で通常の和周波混合よりひろいUVパルスのスペクトルを実現した。また、白色光パルスの位相情報の変化が広帯域紫外パルスの位相に反映したことを確認した。

## References

- [1] A.M. Weiner, Rev. Sci. Instrum, **71**, 1929 (2000).
- [2] M.M. Wefers and K.A. Nelson, J. Opt. Soc. Am. B, **12** 1343 (1995).
- [3] T. Feurer, J.C. Vaughan, R.M. Koehl, and K. Nelson, Opt. Lett., **27**, 652 (2002).
- [4] J.C. Vaughan, T. Hornung, T. Feurer, and K.A. Nelson, Opt. Lett., **30**, 323 (2005).
- [5] R. Selle, *et al.* Opt. Lett. **33**,803 (2008).
- [6] S. Coudreau, D. Kaplan, and P. Tournois, Opt. Lett., **31**,1899(2006)
- [7] P. Nuernberger, G. Vogt, R. Selle, S. Fechner, T. Brixner, and G. Gerber, Appl. Phys. B., **88**, 519 (2006).
- [8] T.Binhammer *et al.*, IEEE J. Quantum Electron., **41**, 1552(2005).
- [9] Y.Nebekawa *et al.* Opt. Express, **11**, 324 (2003).
- [10]K.Osvay *et al.* J. Opt. Soc. Am. B, **13**, 1431 (1996) .
- [11]T. Kanai, *et al.* Opt. Lett., **28**, 1484 (2003)