

フェムト秒時間分解能ストリークイメージング

Optical Streak Imaging System with Femtosecond Time Resolution

中村葵(M2), 中川桂一(東京大学大学院 D3), 藤井令央(M1), 伊佐文宏(B4)

Aoi Nakamura ,Keiichi Nakagawa ,Leo Fujii and Fumihiko Isa

Abstract

We developed an optical Streak imaging system that can achieve single shot, continuous 1-D image acquisition. Using linearly frequency chirped broad band laser pulses, the instantaneous frequency can exactly corresponds to the time. In experiments, we acquired the space-temporal,2-D image of coherent phonon-polariton waves generated in a LiNbO₃ crystal by a femtosecond laser pulse with an imaging spectrometer.

1. はじめに

ピコ秒からフェムト秒オーダの現象を捉える方法には、ポンプ・プローブ法やストリークカメラなどがある。ポンプ・プローブ法は現象を起こすポンプ光に対して測定用のプローブ光のタイミングをずらしながら何度もデータを取得する方法であり、対象となる現象は再現性のあるものに限られる。また、ストリークカメラは被測定光の時間的・空間的な光強度変化を直接的に観測できるが、1次元空間の現象のみしか捉えることができない。そこで、これらの欠点を補う、つまり複雑で高速な現象を1ショットで2次元撮影できる撮影手法として、SMAP (Spatiotemporal Mapping Photography)が開発された[1]。2009年に世界最高速のカメラとしてSTEAMが発表された[2]が、SMAPはその時間分解能を上回る230 fsを実現している。しかし、SMAPでは今のところ連続して取得できる画像の枚数は限られており、6枚が限界である。この枚数はセッ

トアップ内のミラーの枚数に依存するため、大幅に増やすことは難しい。そこで、この問題点を解決するための方法が本研究において構築したストリークイメージングである。この手法では、1次元空間の情報に限定する代わりに、分光器の分解能で決まる時間分解能で連続的撮影を試みた。実際にフェムト秒レーザパルスで励起されたフォノン伝搬の観察を行うことで原理実証実験を行った。

2. 実験方法

A.CPA を光源とする PCF・高非線形ファイバ入射

2-B において詳細を記述するが、時間窓を 50 ps まで広げるにはスペクトルの広帯域化が必要である。そのために PCF と高非線形ファイバでの広帯域化を図った。本実験のセットアップを Fig.1 に示す。用いたファイバは SC-5.0-1040 (NKT Photonics) と高非線形ファイバ(住友電工)であり、それぞれのパラメータは Table1 にまとめた。SC-5.0-1040 のファイバを使った実験では、CPA から出射された光をエキスパンダを用いてビーム径を 4.2 mm×3.8 mm

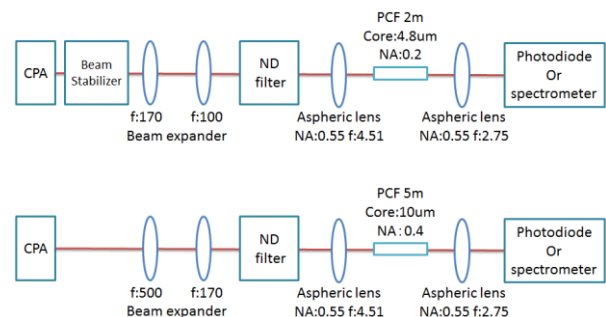


Fig.1 The experimental setup to input to PCF and highly nonlinear fiber. (a) SC-5.0-1040. (b) highly nonlinear fiber.

Table1 Parameter of PCF and highly nonlinear fiber

	SC-5.0-1040	高非線形ファイバ
コア径 (um)	4.8±0.2	10
0 分散波長 (nm)	1040±10	1320
NA	0.20±0.05	0.4

から 2.4 mm×2.3 mm に拡大し、スポットサイズが 3.82 μm × 3.99 μm, NA が 0.25 となるようにセットアップを組んだ。

一方、高非線形ファイバを使った実験では、CPA から出射された光をエキスパンダを用いてビーム径を 4.2 mm×3.8 mm から 1.4 mm×1.17 mm に拡大し、スポットサイズが 6.56 μm × 7.23 μm, NA が 0.15 となるようにセットアップを組んだ。

B. フォノンポラリトン伝播の撮影

フォノンポラリトン伝播のセットアップを Fig.2 に示す。この手法で得られる画像は空間-波長の 2 次元画像である。これでは時間的な変化を捉えることはできないが、プローブ光に線形周波数チャープを与えることによって波長ごとに時間差が生まれたパルスとなるため、空間-時間のイメージングが可能になる。このときの時間窓は波長帯域と周波数チャープの量に依存し、時間分解能は周波数チャー

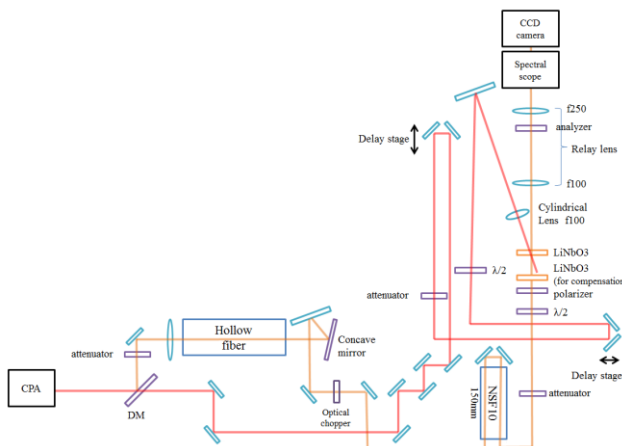


Fig.1 Setup of streak imaging with one pulse.

プの量と分光器の波長分解能に依存する。

本実験では LiNbO₃ 媒質中のフォノンポラリトンの伝播を観察対象とした。この伝搬速度は 4.6×

10⁷ m/s であり、50 ps で約 2 mm 伝搬する。そこで、この現象を撮影するための時間窓を設定し、達成するための波長帯域と周波数チャープ量を計算、波長帯域の拡張は 2-A の方法では広帯域化が難しいことが分かったため(3-A に詳細を記述)、中空ファイバを用いることとした。周波数チャープの付加は光学ガラスを利用して行った。

中空ファイバからのパルス(パルス幅約 50 fs, スペクトル幅約 200 nm)を光学ガラスの材料分散によって 50 ps まで伸長するのに必要なガラス長さの計算方法を以下に示す。

用いたガラスは NSF10(GVD:159.2 fs²/mm @800nm)である。群速度分散β[ps²/km]と分散パラメータD[ps/nm/km]との間には

$$D = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \beta \quad (1)$$

の関係がある。したがって、NSF10 を用いた時の分散パラメータDの値は式(1)より、λ = 800 nm として計算すると

$$\begin{aligned} D &= -\frac{2\pi \times 3 \times 10^8 \text{ m/s}}{(800 \times 10^{-9})^2 \text{ m}^2} \times (-159.2 \times 10^{-30} \\ &\quad \times 10^3 \text{ s}^2/\text{m}) \\ &= 4.689 \times 10^{-4} \text{ s/m}^2 \\ &= 468.9 \text{ ps}/(\text{nm} \cdot \text{km}) \end{aligned}$$

したがって、遅延時間 Δt = 50 ps, 波長帯域 Δλ = 200 nm, ロッドの長さ l m とすると、

$$D \times \Delta\lambda \times l = \Delta t \quad (2)$$

が成り立つので、各値を代入すると

$$l = 0.533 \text{ m}$$

となる。したがって、NSF10 では 533 mm の長さで 50 ps の遅延をつけることができる。ただし、本実験では NSF10 を 150 mm(往復 300 mm)用いた。

続いて、実験セットアップについて順に説明する。

チャープパルス増幅器(chirped pulse amplifier: CPA)の光源(中心波長 800 nm, 繰り返し周波数 1 kHz, パルス幅 50 fs, 平均出力 450 mW)はポンプ光とプローブ光に2分割される。ポンプ光はフォノンを発生するために用い、半長板で縦偏光にし、円筒レンズによって線集光される。一方、プローブ光は中空ファイバを通過後スペクトルは広帯域化され、単一パルスにするために光学チョッパーで繰り返し周波数を低減させる。広帯域化前後のスペクトルを Fig.3 に示す。さらに、光学ガラス NSF10(往復長さ 300 mm, 群速度分散値 159.2 fs²/mm at 800 nm)によって線形周波数チャープを付加される。その光源が LiNbO₃を通り、ビームエキスパンダで 2.5 倍に拡大されて分光器に入射, CCD の受光面にイメージが投影される。CCD カメラは冷却 CCD カメラ BU-52LN/C(ビットラン株式会社)を用い, 受光面は 15.16 mm×15.16 mm であり, ピクセル数は 2048×2048, ピクセルサイズは 7.4 μm×7.4 μm である。本セットアップの波長分解能は分光器の角度分散 (17.7 nm/mm)と CCD のピクセルサイズから計算でき, 線形周波数チャープ量つまり波長-時間の対応関係が分かれば, 時間分解能は波長分解能から一意に決まる。フォノンの観測は, フォノン伝播によるダイナミックな複屈折率変化を透過光の強度変化に変換する偏光顕微鏡の原理で検出した。2枚 LiNbO₃を入れているのは, 一方はフォノンを発生させるため, もう一方は1枚目の LiNbO₃自身の複屈折性を補償するためである。

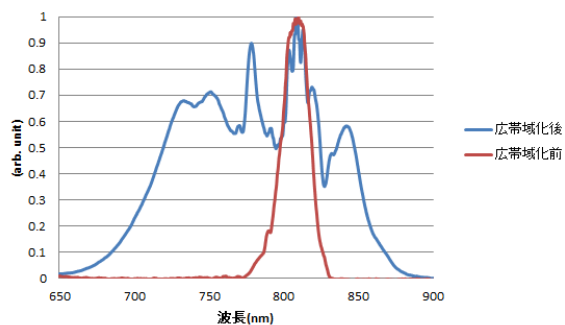


Fig.3 Spectrum after hollow core fiber.

C.画像処理

CCD によって取得した画像は背景画像つまり、フォノンを発生させてないときの画像を引き算し、明度・コントラストの調整を行っている。さらに各波長での空間方向の光強度分布において最大強度を求め、各波長の空間方向の光強度分布を、各波長に対応する最大強度で割り算することによって正規化を行った。さらに、波長方向のエッジ抽出を行うため、Sobel フィルタ処理を行った。これらの画像処理を行うことで、処理前よりもフォノンの見える波長帯域を広げることができる。

3. 実験結果

A.PCF・高非線形ファイバ入射実験

SC-5.0-1040 のファイバを用いたとき、出射側のフォトダイオードで信号を検出していたが、信号が不安定であり、ファイバへのカップリングがうまくいかなかった。これは CPA のピーク強度が高いために、4.8 μm の小さなコア径のファイバ入射が困難であるからだと考えられる。CPA の繰り返し周波数は 1 kHz であるから、平均パワーを 1 mW としても、単位面積当たり 0.04 × 10⁶ J/m² のエネルギーである。したがって、ファイバ入射は難しいと考えられる。高非線形ファイバを用いたときは PCF のときのように信号が不安定になることはなかったが、ファイバ出射側のビームプロファイルを観察したところ、スペクトルが最も広がっているときにはマルチモード (a) (b)

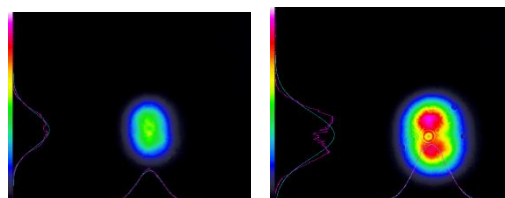


Fig.4 (a)Beam profile with single mode.(b)beam profile with broadband spectrum.

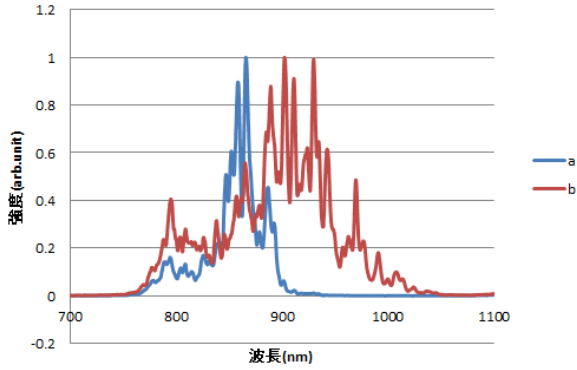


Fig.5 Output spectrum.

チモードの伝搬が見られた。また、ガウシアン分布になるようにファイバのアライメントを行うと逆にスペクトルが狭まってしまうことがわかった。

Fig.4 にそのときのビームプロファイルを、Fig.5 にそのときのスペクトルを示す。シングルモードの伝搬が最も強くなるときに、スペクトルは最も広帯域化するはずである。したがって、a の場合（ガウシアン分布になっているとき）はシングルモードが最も強くなっているのではなく、様々なモードが重なり合っ、シングルモードのように見えているだけだと考えられる。このファイバのカットオフ波長は 1320 nm であり、Fig.5 に見られる波長帯域ではマルチモードが伝搬している可能性は十分にあり、シングルモードのみ伝搬させるのは難しいと考えられる。一方で、シングルモードのファイバを用いるとコア径は小さくなってしまいうため、CPA のパワーに耐えられないのと、安定に入射させることは難しいと考えられる。したがって、次節に述べる中空ファイバでスペクトル広帯域化を行い、光学ガラスで分散を加える方法を用いることとした。

B.フォノンポラリトン伝播の撮影

本実験セットアップによるフォノン伝播の撮影結果を Fig.6 に示す。明度・コントラストの調整までの画像処理を終えている状態である。このときの

時間窓は 28 ps、時間分解能は 19.1 fs である。得られた画像は Y 字型をしているが、Y の二つに分かれた上部(以下枝部)と根幹の下部(以下幹部)それぞれについて、画像から速度を計算する。計算方法は以下のとおりである。

変化の観測される部分の空間軸のピクセル数を Δx 、波長軸のピクセル数を Δy とおくと、ピクセルサイズは 6.7×10^{-3} mm であり、リレー系でサンプル面を 2.5 倍に拡大して CCD カメラで撮影しているので、サンプル面での変化量 Δx_{sample} は

$$\begin{aligned} \Delta x_{sample} &= \Delta x \times 6.7 \times 10^{-3} \times \frac{1}{2.5} \\ &= \Delta x \times 2.68 \times 10^{-3} \text{ mm} \end{aligned}$$

である。一方、波長軸に関して、この分光器の角度分散量は 17.7 nm/mm であるから、波長の変化量 $\Delta \lambda$ は

$$\Delta \lambda = \Delta y \times 6.7 \times 10^{-3} \times 17.7 \text{ nm}$$

となり、さらにこの実験で用いた光学ガラス NSF10 の群速度分散量は 468.9 ps/(nm·km) であり、ガラスの長さは 300×10^{-6} km であるから、時間変化量 Δt は

$$\begin{aligned} \Delta t &= \Delta \lambda \times 468.9 \times 10^{-12} \times 300 \times 10^{-6} \text{ sec} \\ &= \Delta y \times 16.7 \times 10^{-15} \text{ sec} \end{aligned}$$

となる。よって画像から求めた速度 v_{img} は

$$v_{img} = \frac{\Delta x_{sample}}{\Delta t} = \frac{\Delta x}{\Delta y} \times 0.16 \times 10^{12} \text{ m/sec}$$

である。この式から計算を行った結果、枝部は 7.68×10^7 m/s、幹部は 1.22×10^7 m/s となった。LiNbO₃ 中のフォノンの伝播速度の理論値は 4.6×10^7 m/s であるから、枝部はフォノンであると考えられる。一方、幹部はポンプ光が LiNbO₃ の表面から背面まで伝播していく様子であると仮定をし、幾何学的に速度を計算した。Fig.7 にフォノン伝播の様子を図示する。ポンプ光は実際には 75 度の角度を持って媒質中を伝播するので、その速度 v は LiNbO₃ の屈折率 2.2168 も考慮すると

$$v = 1.22 \times 10^7 \times \frac{1}{\cos 75^\circ} \times 2.2168$$

$$= 1.04 \times 10^8 \text{ m/s}$$

となる。真空中の光速は $3.0 \times 10^8 \text{ m/s}$ であるから、幹部はフォノンではなくポンプ光の伝播を捉えたものではないかと考えられる。

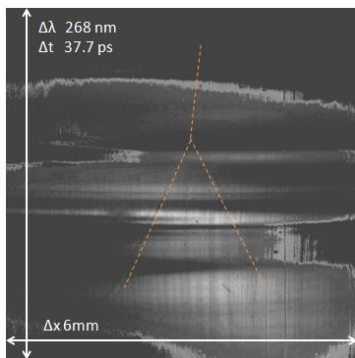
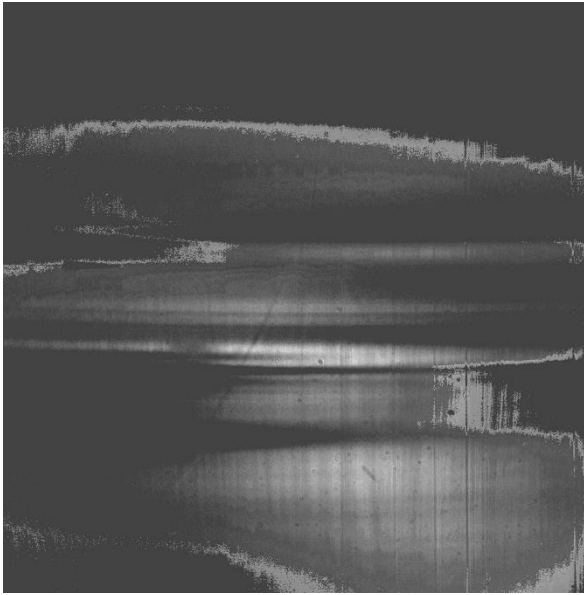


Fig.6 One pulse imaging of phonon propagation NSF10 (300 mm).

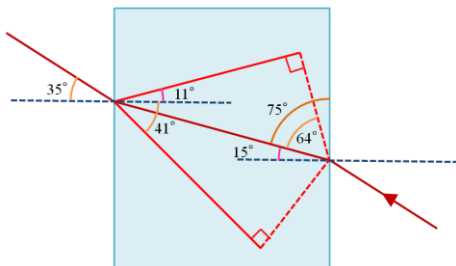


Fig.7 Propagation of phonon polariton

C.画像処理

正規化・フィルタ処理後の結果を Fig.8 に示す。これらの画像処理を行うことによって、処理前よりもフォノンの見える波長帯域が広がった。また、画像処理によって Y 字の枝部の端が若干歪んでいることがわかった。つまり、周波数チャープが線形になっていないということである。現在は波長と時間の対応関係は光学ガラスの分散量から求めているが、この結果から高次の分散が乗っているため、SPIDER などを用いて位相を測定する必要があることがわかった。

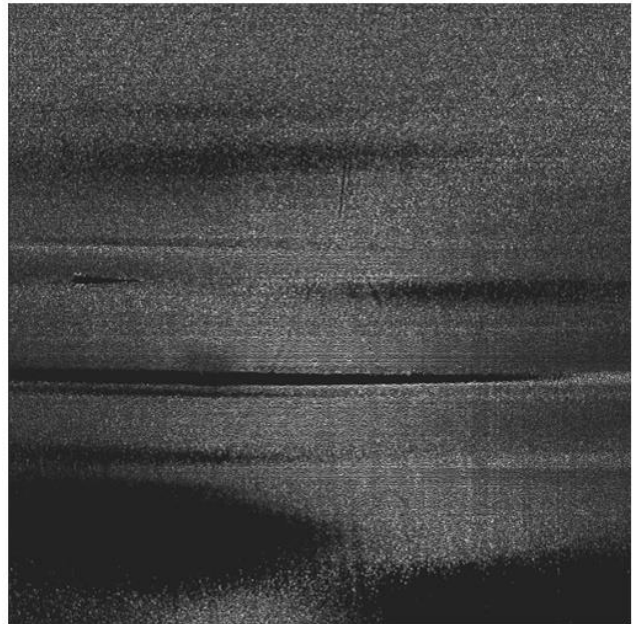


Fig.8 Image after image processing

4. まとめ

フォノン伝播を観測対象とし、時間窓 28 ps、時間分解能 19.1 fs と設定したストリークイメージングの構築を行い、フォノンの伝搬を単一パルスで連続的に撮影することができた。さらに、画像処理によって波長毎の光強度差を抑えることができた。最終的に得られた画像から周波数チャープが線形ではないことがわかり、今後の課題としては位相を

SPIDERなどで正確に測定することが挙げられる.

Reference

[1] 中川さんの論文

[2] Goda K., Tsia K. K., Jalali B.: Nature
458,1145-1149 (2009)