

光ストリークイメージングによる

フェムト秒レーザー誘起ガラス内部屈折率変化の時間分解計測

Time resolved measurement of femtosecond laser induced refractive index change in glasses

by an optical streak imaging scheme

藤井令央, 廣澤賢一

Leo Fujii, Aoi, and Kenichi Hirose

Abstract

We developed a novel interferometric streak imaging scheme with a sub-nanosecond order time window. To demonstrate this scheme, we measure femtosecond laser induced refractive index change in glasses. A time window of 70 ps and temporal resolution of 100 fs is achieved with a one-shot basis 1-D streak imaging.

1. はじめに

サブナノ秒領域の高速現象を可視化する方法として、超高速光パルスを持ちたポンプ・プローブ法があるが、この方法では再現性のある現象に対して繰り返し撮影が必要となる。近年、光学フーリエ変換を応用した新しいアプローチで単発現象の超高速撮影を可能にしたのが STEAM[1] および STAMP[2]である。後者では、線形周波数チャープを加えたフェムト秒レーザーパルスを撮影光源として用い、瞬時周波数と時間を1対1に対応することで、今までにない高速コマ撮りを可能にし、フレームレート 4.4 THz、時間分解能 230 fs の2次元画像を 6 枚連続で取得する実験系が報告されている。しかしこの手法はコマ撮り撮影枚数が光学系のペリスコープでの空間分岐数に依存し、大幅に枚数を増やすことが難しい。本研究では、STAMP の原理をもとに、次元を 2 次元から 1 次元に減らす代わりに、連続画像をサブナノ秒の時間計測窓で撮影する干渉型光学系の構築を行い、実際に超高速現象の連続撮影に適用した

本イメージング方法では、時間窓はフェムト秒レーザーパルスのスペクトル幅と2次分散量に依存し、時間分解能は2次分散量と分光器の波長分解能に依存するため、撮影する現象に応じて2次分散を与える光ファイバの長さを変え、必要な時間分解能、時間窓に調整することが可能であることが大きな利点である。

本研究では可視化する現象としてフェムト秒レーザーパルスによって誘起されるガラス内部の屈折率変化を用いた。

2. 実験方法

実験セットアップを Fig.1 に示す。Ti:sapphire レーザーから発振したフェムト秒レーザーパルスはチャープパルス増幅器に入射し、光チョッパーを通過して繰り返し周波数を落としてから DM でポンプ光 (パワー: 60 μ J) とプローブ光 (パワー: 250 μ J) に分割する。プローブ光は中空ファイバを通過後、光学ガラスによって線形周波数チャープが加え

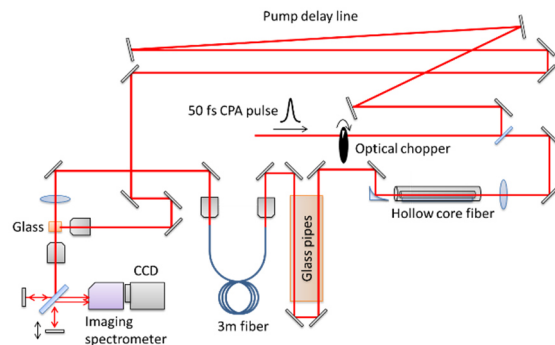


Fig.1 Setup of streak imaging.

られる。この時広帯域パルスは約 20 ps までパルス幅がストレッチされる。このときの中空ファイバ前後のスペクトルを Fig.2 に示す。光学ガラスを通過したのち、広帯域パルスは対物レンズで石英ファイバに入射され、ファイバを 3 m 伝搬し、ファイバの出射口で再び対物レンズによってコリメートされる。この時、用いた光ファイバのカットオフ周波数は 780 nm であり、その波長以下の光はファイバをシングルモード伝搬しないため、時間分解計測に用いることのできる波長帯は 780 ~ 900 nm に制限される。光ファイバ伝搬によって約 70 ps までストレッチされたプローブ光は、アクロマートレンズと NA0.20 の対物レンズによってサンプル内部に集光される。イメージング分光器(SOL instruments, SL100M)に入射したプローブパルスは角度分散によって、電子冷却 CCD によって横軸が空間、縦軸が波長の画像を得られる。一方ポンプ光はプローブ光とのタイミングを合わせるために 10 m 程度のディレイラインを通ったのち NA0.45 の対物レンズによって加工対象の Pr:ZBLAN に集光入射させた。

本実験では、屈折率の動的変化を計測するために、サンプル後のプローブ光に対してマイケルソン干渉計を構築した。ハーフミラーで分割された 2 つのビームは、適度な Delay がついた状態でイメージング分光器のスリットに入射させた。この時イメージング分光器に入射する 2 つのパルスは、スリットと垂直な方向にずらして入射させることで、屈折率変化の起きている領域のパルス位相と起きている領域のパルス位相の差を取得できるようにしてある。

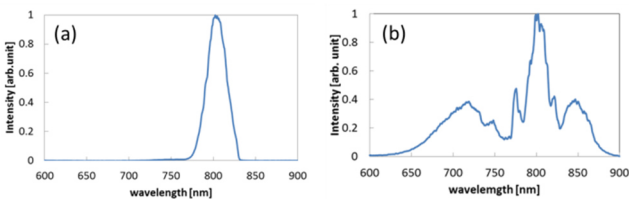


Fig.2 Spectrum (a)before and (b)after the hollow fiber.

3. 実験結果

サンプルを通さずに取得した周波数干渉縞画像を Fig.3 に示す。横軸が周波数で時間に対応する。この時イメージング分光器に入射する 2 つのパルスの各波長は、パルスの時間遅延の分だけ位相差を持つため、周波数干渉縞が観測される。各波長の空間方向のビームプロファイルは変化がないのでこの場合は、周波数干渉縞はそれぞれの位置で直線である。次に、Pr:ZBLAN を設置し、ポンプ光によって屈折率変化を起こした際のプローブ光の空間時間画像を Fig.4 に示す。ここではポンプ光の集光位置において、ガラスが屈折率変化を起こしているため干渉縞に歪みが生じている。干渉縞の歪みから、2 つのパルスの位相差を抽出するため、次の解析を行った。

空間時間画像で得られた周波数干渉縞からガラスの位相情報を抽出する解析のスキームを Fig.5 に示す。CCD で取得した空間時間画像から周波数方向に 1 行の強度データを抜き取ると、1 次元のフリンジデータが得られる。この干渉パターンはシングル光とリファレンス光の電界表現 $E(\omega)$, $E_{ref}(\omega)$ を用いて次のように表せる。

$$S(\omega) = |E_{ref}(\omega) + E(\omega)e^{i\omega\tau}|^2 = S_0(\omega) + f(\omega)e^{i\omega\tau} + f^*(\omega)e^{-i\omega\tau}$$

ここで $S_0(\omega)$ は 2 つのレーザーパルスのスペクトル強度の合計に対応し、

$$S_0(\omega) = |E_{ref}(\omega)|^2 + |E(\omega)|^2$$

で表される。また $f(\omega)$ は 2 つのパルスの干渉項であり

$$f(\omega) = E_{ref}^*(\omega)E(\omega)$$

で表される。この干渉パターンの逆フーリエ変換をとることで干渉パターンの逆フーリエ変換は次の式で表される。

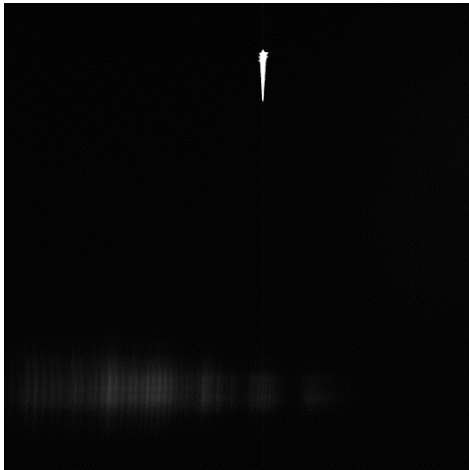


Fig.3 Spectral interferometry without sample

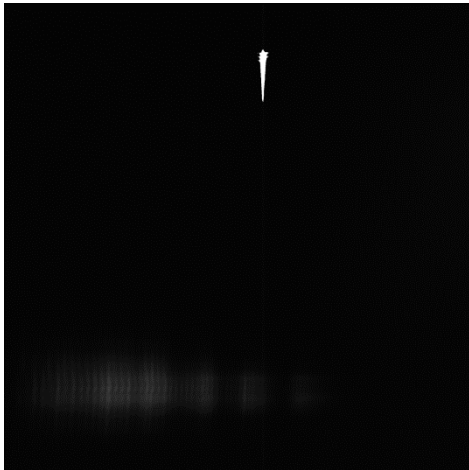


Fig.4 Spectral interferometry with sample and pump pulse

$$FT^{-1}[S](t) = E_{ref}^*(-t) \otimes E_{ref}(t) + E^*(-t) \otimes E(t) + f(t-\tau) + f^*(-t-\tau)$$

この式において、第1項と第2項は $t=0$ を中心としたそれぞれのパルスの自己相関関数に対応し、第3項および第4項はそれぞれ、 $t=-\tau$ と $t=\tau$ を中心とした相互相関関数になっている。このとき、 τ の値が十分に大きくそれぞれの関数が重なり合わなければ、相互相関関数 $f(t-\tau)$ だけをフィルタリングすることが可能であり、それをフーリエ変換によって再度周波数領域に戻すことで関数 $f(\omega)e^{i\omega\tau}$ を得る。

得る。

以上の過程から取得した干渉項の絶対値と偏角は

$$\arg f(\omega) + \omega\tau = \varphi(\omega) - \varphi_{ref}(\omega) + \omega\tau$$

$$|f(\omega)| = |E_{ref}(\omega)| |E(\omega)|$$

で与えられる。ここで得られた $\arg f(\omega)$ が、フェムト秒レーザーによって誘起された、ガラスの屈折率変化に起因した2つのパルスの位相差に対応する。この解析をCCDで得た空間時間画像の各行に行うことで、空間-時間二次元画像を位相-時間二次元画像に置き換えることができる。実際に空間時間画像にこの解析を行った結果をFig.6に示す。

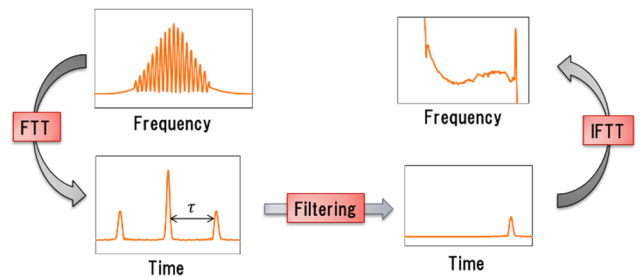


Fig.5 Scheme of phase sampling analysis

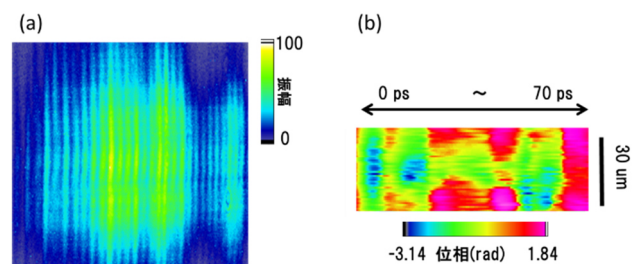


Fig.6 (a) Original 2D spectral interference data, and (b) analyzed phase change dynamics.

位相抽出を行ったFig.6(b)の結果から、ガラスの屈折率の時間変化が確認できる。この結果から加工位置において屈折率が時間的に振動していることが確認できる。さらに、70 psの計測時間窓の範囲

でポンプ光のディレイを動かし、入射のタイミングを早めて同様の計測を行うことで、この後の屈折率変化の様子を追従できる。セットアップ内のディレイ可動域の限界である、337 ps の範囲まで計測を行った結果を Fig.7 に示す。これらを比較することで、フェムト秒レーザー誘起による Pr:ZBLAN の屈折率変化は、レーザーの照射から時間的に振動し、時間の経過とともに振動が収束していく様子が分かった。また、さらにディレイラインを長く構築することで、計測時間窓を遅らせていくことができる。なお、フェムト秒レーザー誘起によるガラスの屈折率変化が時間的に振動しながら変化していくことは三浦らの繰り返しポンプ・プローブ計測によって知られている[3]。これはフェムト秒レーザー照射によって発生する、衝撃波の疎密に起因し、振動周期は結晶の弾性などに依存すると考えられる。

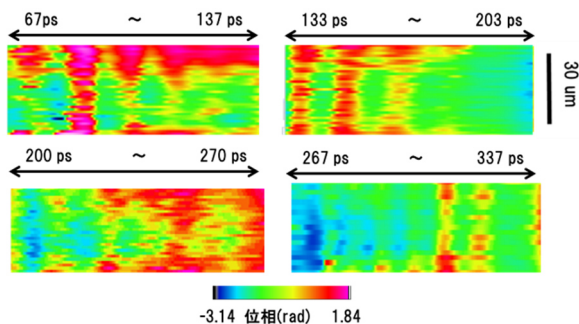


Fig.7 Phase sampling data at each time delay

4. まとめ

フェムト秒ストリークイメージング光学系の構築によって、70 ps の計測時間窓で1ショット1次元画像イメージングを達成し、Pr:ZBLAN のフェムト秒レーザー誘起屈折率変化の時間分解計測を達成した。

本イメージング方法では、計測時間窓はスペクトル幅と光学ガラス及び光ファイバの長さに依存し、時間分解能は光学ガラスと光ファイバの長さおよび分光器の波長分解能に依存するため、撮影する現象の応答時間に対応した線形チャープを与える長

さの光ファイバを用いてセットアップを組むことで、必要な時間分解能、時間窓に調整することが可能である。また、本手法では干渉計を構築したため、得られた空間時間画像から位相情報を抽出することが可能であり、透過強度測定によるイメージングと比較して撮影対象であるガラス材料によるプローブ光への周波数チャープを無視することができる。さらに、単一パルス撮影により、ポンプ・プローブ法のように繰り返し起こらない現象に対しても撮影のできる光学系を構築することができた。

References

- [1] K. Goda, K. K. Tsia, and B. Jalali, *Nature*, **458**, 1145 (2009).
- [2] K. Nakagawa, et. al., *Nat. Photonics* **8**, 695 (2014)
- [3] M. Sakakura, et al., *Opt. Lett.* **29**, 2000 (2004)