

広帯域フェムト秒レーザパルス内差周波発生を用いた

帯域・中心波長可変中赤外パルス発生

Generation mid infrared pulses with tunable wavelength band and center wavelength using difference frequency generation in broadband femtosecond laser pulses

伊佐 文宏 (M1), 藤井 令央 (M2), 鈴木 敬和 (B4), 廣澤 賢一 (助教)

Fumihiko Isa, Leo Fujii, Takakazu Suzuki, Kenichi Hirose

Abstract

We generate a versatile mid-infrared (MIR) laser pulse with a single super-continuum (SC) pulse generated from 800-nm femtosecond laser. MIR pulses are generated through difference frequency mixing (DFM) in a Type-I nonlinear crystal between the short and the long wavelength bands in the SC pulses. Since the two spectral bands in SC light are independently controlled with a 4-f pulse shaper, we can vary wavelength band width, center wavelength, and temporal wave form of the MIR pulses.

1. はじめに

中赤外領域(2-5 μm)には多くの分子の固有振動モードがあり、この波長帯域におけるフェムト秒レーザ波形整形技術は超高速分子分光およびコヒーレント制御に有用である。中赤外領域のフェムト秒レーザパルス波形整形の手法としては光音響変調器 (AOM: Acousto-Optic Modulator) や光音響位相分散フィルタ (AOPDF: Acoustic Optic Phase Dispersion Filter) などの変調器を用いて直接変調する方法[1]、近赤外領域において一般的な液晶空間光変調器 (LC-SLM: Liquid Crystal Spatial Light Modulator) を用いて波形整形したフェムト秒レーザパルスを用いて 2 次の非線形効果によって波形整形された中赤外パルスを間接的に生成するという方法[2]、が存在する。しかし、いずれの波形整形器もスループットに難があるため、たとえば広帯域 OPA の最終段での波形整形は効率面で好ましくない。一方、間接

的なパルス整形を行う後者には、整形したフェムト秒レーザパルスと長パルスレーザを用いた差周波発生や整形パルス励起を用いた OPA でアイドラ光を発生させる方法があるが、いずれの手法も 2 波長の光源が必要となる。また、近年では高効率で直接波形整形を行える可変ミラー型の空間光変調器を用いてパルスの周波数位相を制御する方法[3]も提案されているが、位相整形分解能は高く成らない。

本研究では Ar ガスを封入した中空ファイバによって発生した超広帯域パルスの短波長側と長波長側の光を変換効率が高い Type-I BBO 結晶を用いた差周波混合を行うことによって 2 μm 帯パルスを発生させた。本手法では 1 つの 800 nm 帯フェムト秒光源で中赤外パルスの発生と波形整形を行うことが可能であり、シグナル光とポンプ光の両方に位相変調を加えることができるため、中赤外パルスに任意に位相変調を与えて波形整形するのみならず、中赤外パルスの帯域や帯域幅も可変にすることができる。本手法で発生した MIR パルスをシード光として 800nm レーザ励起の OPA で増幅するのが本研究の最終的な目的になる。

2. Ar ガス封入中空ファイバを用いた広帯域短パルス発生

Fig. 1 に中空ファイバを用いた自己位相変調 (SPM: Self Phase Modulation) および四波混合 (FWM: Four Wave Mixing) による広帯域パルス発生のセットアップを示す。CPA システムにより平

均パワー350 mW、時間幅 50 fs、中心波長 800 nm、スペクトル幅 20 nm となったパルスを用いてフィードバック制御を行うことにより安定化を図るビームスタビライザによって集光スポット位置を安定した状態で、焦点距離 400 mm のレンズを用いて、コア径が 126 μm 、長さが 40 cm の中空ファイバに集光させた。

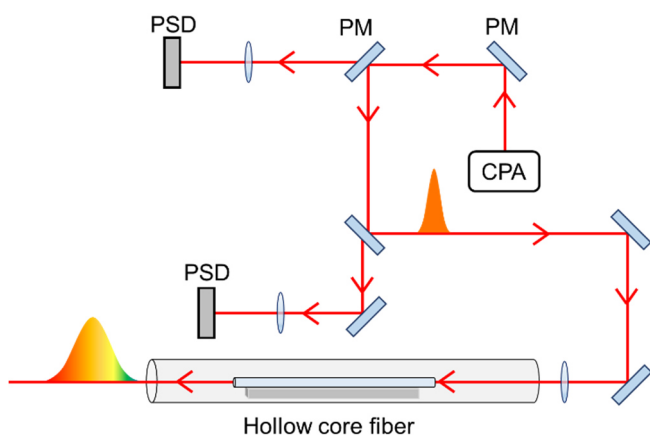


Fig. 1 Schematic of supercontinuum pulse generation using an Ar -filled hollow core fiber. PM: piezo-driven mirror, PSD: position-sensitive detector.

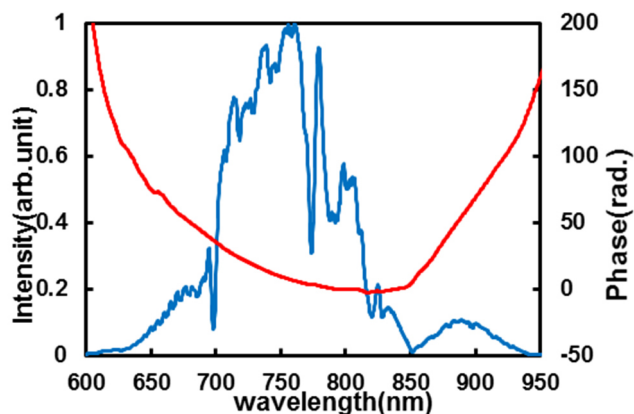


Fig. 2 Spectrum intensity and phase of supercontinuum pulse after hollow core fiber measured by SPIDER measurement.

本実験では、広帯域パルス内で差周波混合を行うため、600 nm - 950 nm の波長帯域が必要であ

る。そこで、中空ファイバの非線形性を高くするために、Ar ガスのガス圧を 200 kPa に設定し、スペクトルを広帯域化させた。この透過後のレーザーパルスは中空ファイバ内を伝播する際に分散が付加されるため、中空ファイバ後の位相を SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction)を用いて計測した。中空ファイバ後のスペクトルと位相を Fig. 2 に示す。

3. 広帯域レーザーパルス波形整形

中空ファイバ後のレーザーパルスは 4-f 波形整形器によって波形整形を行った。一般的な波形成形器は角度分散素子、レンズ、変調器を焦点距離で配置し、光を周波数ごとに分解して変調を加えることで波形整形を行う。本実験では色分散を考慮しレンズではなく凹ミラーを用いた。

角度分散素子に変換効率の向上のために回折格子ではなくプリズムを用いる手法を広帯域レーザーパルス整形には用いられる場合もあるが、プリズムの材料分散量を補償する必要がある。また、プリズムは回折格子に比べ角度分散が小さいため、焦点距離の大きいものを用いないと SLM を十分に使用することができない。実際に SF10 のプリズムを用いて、600-950 nm の広帯域スペクトルが 660 mm 伝播してもフーリエ面での横幅は 28.8 mm となってしまう。隣り合うピクセルで π 以上の位相変調はかけられないため、広がり小さいと、波形成形機で加えられる変調量が小さくなり、このとき最大で補償できる 2 次分散量は $\pm 1087\text{fs}^2$ となる。そして、SLM の 1 つのピクセルサイズは $96.52\mu\text{m}$ であるため、各波長を $f = -660\text{ mm}$ の凹ミラーを用いて 1 ピクセル内に集光させるためには、ビーム径は 8 mm 以上ある必要がある。ビーム径が 8 mm の際にプリズムを 2 回伝播すると約 3700fs^2 の 2 次分散量が付加されてしまう。そのため、加えられる 2 次分散量よりもプリズムの材料分散が上回ってしまう。

また、分散補償のために波形整形器前にプリズム対を用いて分散補償をする方法もあり得るが、そこでまた、一つ目のプリズムの頂角部分での材料分散が大きくなる。さらに広帯域スペクトルの分散補償をする必要があるため、伝播距離は長くなり非常に大きいプリズムが必要となる。

そこで、今回我々は 600 - 1100 nm で回折効率が 70%以上ある広帯域で分散効率の高い回折格子を用いて、4f 波形整形器を構築した。Fig. 3 に広帯域パルス波形整形用の光学セットアップを示す。波形整形器には、角度分散素子として、広帯域で変換効率の高い回折格子(53-*351R, Richardson Gratings)を用いた。このときのフーリエ面幅は 48.2 mm となり、最大補償可能 2 次分散補償量は 1622 fs²となった。実際に波形成形器を透過する際には反射率 90%の大きいアルミミラーで 4 回反射し、回折効率 70%の回折格子で 2 回反射し、透過率 80%SLM を 1 回透過するため、全体のスループットは 25%程度になると見積もられる。

また、長波長側と短波長側のスペクトル成分間での Type-I 差周波混合により中赤外パルスを発生させるために、長波長側の偏光をフーリエ面で半波長板を設置することにより 90°回転させた。また、半波長板を設置したことによる短波長と長波長の時間遅延を抑えるために偏光を同様の半波長板を偏光を回転させないように設置した。このときの波形整形器透過後のスペクトルは Fig. 4 のようになった。

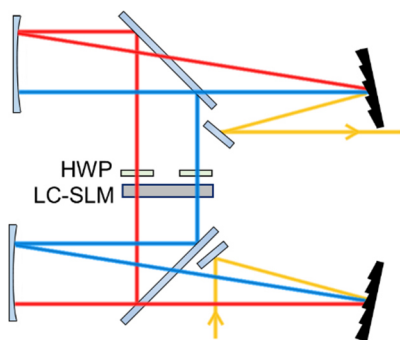


Fig.3 Setup of a 4f pulse shaper. HWP: half wave plate, LC-SLM: Liquid Crystal Spatial Light Modulator

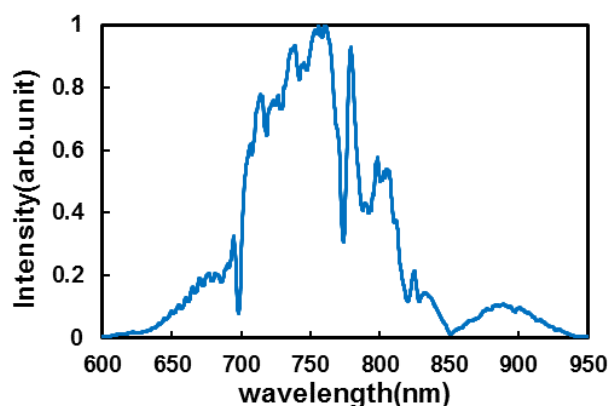


Fig.4 Spectrum intensity after 4f pulse shaper

4. 中赤外パルス発生

波形整形器後の広帯域を厚さ 1.0 mm の Type I BBO 結晶に入射し、差周波混合を行った。中赤外領域では広帯域で位相整合をとることができるため、広帯域の中赤外パルスの発生も可能となる。

まず、広帯域の中赤外パルスを発生させるために中空ファイバ後の広帯域パルスに SPIDER で計測した位相の逆位相を SLM で印加することによりフーリエ限界(FTL)パルスを発生させ、それを BBO 結晶に入射することで最も広帯域の中赤外パルス発生を試みた。すると、Fig. 5 に示すような中赤外パルスの発生が確認できた。このようなスペクトルが現れた原因としては BBO 結晶に入射した位相が FTL になっていなかったことが考えられる。SPIDER で計測した位相を周波数で微分すると Fig. 6 の実線のようになり、このグラフでは縦軸が遅延時間、横軸が周波数を表しているため、このグラフの傾きが 2 次分散にあたることになる。このグラフの短波長部分を見てみると全体が線形になっているのに対し、部分的に大きな変調が存在している。中空ファイバ伝播によりこういった高次分散が発生する理由はないので、短波長部分では強度が弱く SPIDER の計測精度が悪かったためと考えられる。そこで、Fig.6 の実線を直線近似したものを点線として示し、これを広帯域パルスの位相として扱った。

この直線近似によりこの中空ファイバ後の広帯域スペクトルの 2 次分散量は約 560 fs^2 となっていることがわかったとなる。

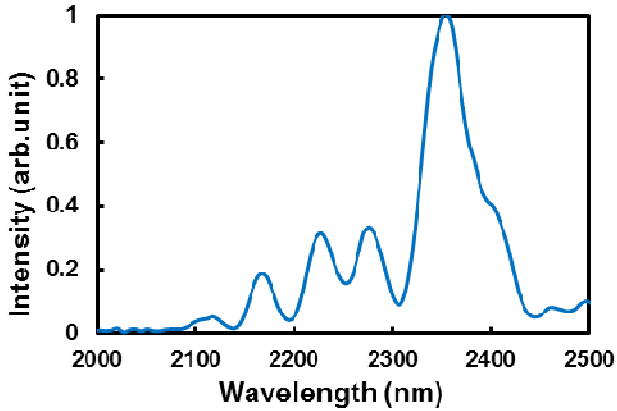


Fig. 5 The result of generated MIR pulses by adding inverse phase measured by SPIDER.

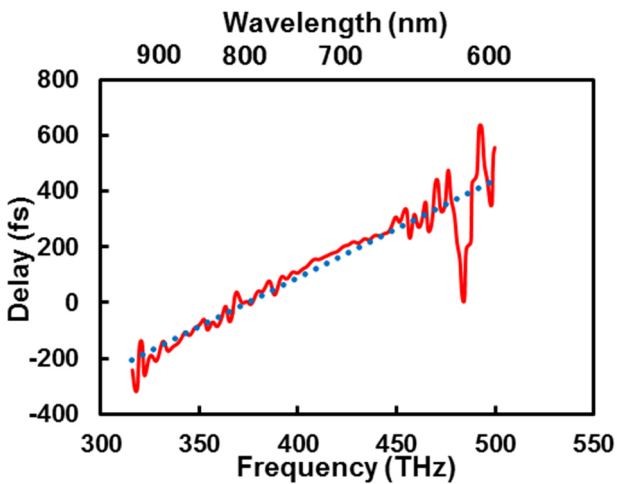


Fig. 6 Temporal frequency change in a pulse. A solid curve is a delay time which was calculated by $d\phi/d\omega$ of super-continuum pulse; and a dotted curve is a linear fit.

この中空ファイバ後のパルスに負の 2 次分散量と時間遅延を加えることにより帯域幅可変の中赤外パルスが差周波混合により発生したことを確認した。Fig. 7 に発生した帯域幅可変中赤外パルスのスペクトルを示す。負分散を加えつつ、長波長と短波長の遅延時間を調整することで $2.3 \mu\text{m}$ を中心として帯域幅可変の中赤外パルスを発生させ、FTL(-

560 fs^2) 近づくに従い発生する中赤外パルスのスペクトルが広帯域化することを確認した。また、負分散を過剰にかけると、再び中赤外パルスのスペクトルは狭帯域化した。

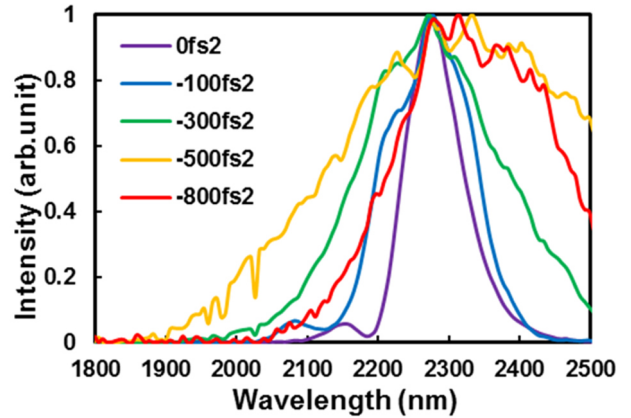


Fig. 7 Measured MIR spectrum intensity when negative GVD was added by 4f pulse shaper and the long wavelength band was properly delayed so that the MIR pulse spectrum peak became $2.3 \mu\text{m}$.

次に波形整形器で 2 次分散を加えず、中空ファイバで発生する 2 次分散量を残したままで、時間遅延を調整することで発生する中赤外パルスの中心波長を操作できることを確認した。時間遅延を 370 fs ~ 440 fs の間で 10 fs ずつ変化させることで Fig. 8 のように発生する中赤外パルスの中心波長は変化し、この中心波長の変化量と加えた時間遅延から 2 次分散量を見積もると約 460 fs^2 となっていた。

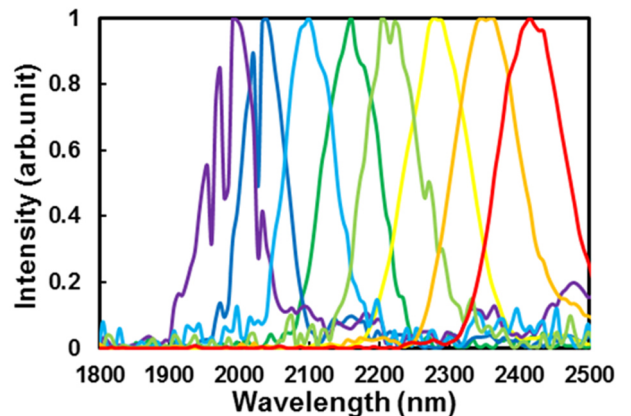


Fig. 8 Measured MIR spectrum intensity when GD

was added for the long wavelength band at a 4f pulse shaper.

また、実際に 460 fs^2 の 2 次分散量が加わっているときに時間遅延を実験と同様に $370 \text{ fs} \sim 440 \text{ fs}$ の間で 10 fs ずつ変化させたときの発生するスペクトルを計算すると Fig. 9 のようになった。発生する波長帯域は一致したが、帯域幅は大きく異なってしまった。これは、白色光が持っている高次分散の影響だと考えられる。

この結果より 460 fs^2 で計算したときと中心波長は一致しているため、SPIDER で計測し、近似した 2 次分散が正確ではなかったと考えられる。

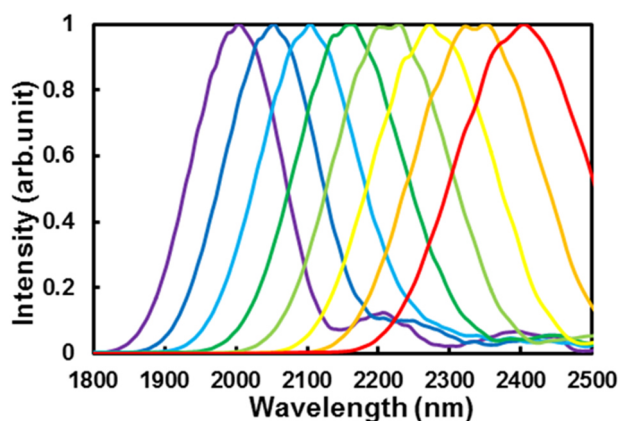


Fig. 9 Calculated MIR spectrum intensity when GD was added for the long wavelength band.

5. まとめ

本研究では新しい中赤外パルスの発生と波形整形を行うコンパクトな手法の実証を試みた。希ガス封入中空ファイバを用いた広帯域パルス発生実験では、Ar ガス封入中空ファイバを用いて、SPM を起こすことによって、超広帯域パルスを発生することができた。また、広帯域パルス波形整形器ではプリズムではなく、広帯域で高効率の回折格子を使用することで 0 分散波形整形器とし、また凹ミラーを用いることにより、色分散をつけずに 4f 光学配置

の波形整形器を構築することができた。差周波混合では波形整形器内で偏光を直交させることにより、厚さ 1 mm の type-I BBO 結晶において広帯域位相整合光学系を構築せずに高効率の位相整合が実現し、中赤外パルスを発生させることができた。また、波形整形器内で時間遅延、2 次分散を調整することで帯域幅・中心波長可変中赤外パルスを発生させた。

References

- [1] S.-H. Shim, D. B. Strasfeld, and M. T. Zanni, “Generation and characterization of phase and amplitude shaped femtosecond mid-IR pulses.” *Opt. Express* **14**, 13120–30 (2006).
- [2] T. Witte, K.L. Kompa, M. Motzkus “Femtosecond pulse shaping in the mid infrared by difference-frequency mixing” *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **76**, 467–471 (2003).
- [3] A. Cartella, S. Bonora, M. Först, G. Cerullo, A. Cavalleri, and C. Manzoni, “Pulse shaping in the mid-infrared by a deformable mirror” *Opt. Lett.* **39**, 1485–8 (2014).