

# 偏光波形整形超広帯域光パルスを用いた差周波混合超短赤外パルス発生と波形整形 Generation and pulse shaping of ultrashort infrared pulses through different frequency mixing using polarization shaped super-continuum pulse

吉清健太(M2), 藤井令央(B4), 廣澤賢一(助教)

K.Yoshikiyo, L.Fuji, and K.Hirosawa

## Abstract

We demonstrated a pulse shaper for super-continuum (SC) pulses generated with an Ar-filled hollow core fiber. And we proposed of new different frequency mixing (DFM) scheme without any other light sources. Because both the two spectral components can independently be shaped, DFM can shape and generate a broadband mid infrared (MIR) pulse, or a wavelength tunable narrow-band sub-pico MIR pulse.

## 1. はじめに

フェムト秒レーザ波形整形技術は任意のパルス波形を整形できる上、目的とするパルス波形が不明な場合でも適応制御によって最適な状態に整形されるので応用性が高く、興味深い研究が数多く展開されている[1,2]。一方、波形整形技術に関する研究も並行して行われ、近年ではSC(Super-continuum)光パルスの位相波形整形[3]や、位相だけでなく振幅位相の同時波形整形[4]、偏光状態がフェムト秒オーダで変化する時間依存偏光波形整形[5]が実現されている。また、整形パルスの波長領域も近赤外領域だけでなく紫外領域から赤外領域まで広がり[6-8]、より幅広い分野での応用が期待できる。特に中赤外波長領域(1-5  $\mu\text{m}$ )は、多くの分子の固有振動モードと共鳴するため、分子の構造解析や制御などに波形整形技術は非常に有用である。

中赤外波長領域の波形整形の手法は、近赤外波長領域で一般的なLC-SLM (Liquid Crystal Spatial Light Modulator)を用いた変調ができないため、次の2通りの手法で行われる。1つ目がAOM (Acousto-Optic Modulator)やAOPDF (Acoustic Optic Phase Dispersion Filter)など違う変調器を用いる直接的な手法である[7]。ただし、この手法は波形整形器全体の効率は低い上、整形できる波長帯域も狭い欠点がある。2つ目の手法は、他の波長領域で波形整形した後に波長変換によって中赤外光パルスを整形する間接的

な手法である[8]。こちらは直接的な手法と比べ、効率が高い一方で、多光源のセットアップとなるため光学系が複雑になる。

そこで本研究では、SC光パルスの短波長側と長波長側を波形整形器内で差周波混合し、中赤外光パルスの発生と波形整形を行う手法の考案と実証を試みた。そのスキームをFig.1に示す。まず、希ガス封入中空ファイバによって発生した中心波長800 nmのSC光パルスを、LC-SLMを用いて短波長側(550-650nm)と長波長側(800-900nm)を波形整形する。波形整形後、非線形結晶として用いて厚さ0.1 mmのtype-I BBO結晶によって両者を差周波混合することで中赤外光パルスが発生する流れである。この手法は、1つの光源で超短赤外パルスの発生と波形整形を行うため、間接的な手法よりもコンパクトであり、また、差周波混合におけるシグナル光とポンプ光の両方に位相変調を与えることができるので、超短赤外パルスに任意の位相変調を与える他に、より広帯域な超短赤外パルスや波長可変狭帯域サブピコパルスの発生が可能となる。

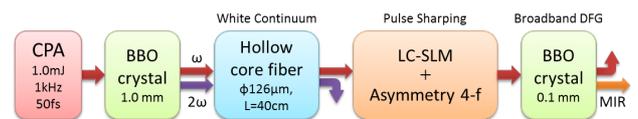


Fig.1 Diagram of ultrashort infrared pulses through different frequency mixing.

## 2. Arガス充填中空ファイバを用いた Super-continuum光パルスの発生

Fig.2に中空ファイバを用いたSPM (Self Phase Modulation)によるSC光パルス発生時のセットアップを示す。CPAからのパルスはビームスタビライザによって光軸を安定した状態で厚さ1.0 mmのtype-I BBO結晶に入射させた。その後、基本波は焦点距離500 mmのレンズを用いてコア径が126  $\mu\text{m}$ 、長さが40 cmの中空ファイバに集光させた。

Fig.3にSPMによって発生したSC光パルスのガス圧変化に伴うスペクトルの変化を示す。この時、入射パルスの強度は600  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ 、時間幅は53.4fs、スペクトル幅は20 nm、集光サイズは水平方向が104  $\mu\text{m}$ 、垂直方向が113  $\mu\text{m}$ 、 $M^2$ 値は水平方向と垂直方向ともに1.10であった。後ほど詳細を説明するが、発生する中赤外光パルスの波長帯域と位相整合条件により、差周波混合に必要な波長帯域はポンプ光が550-650 nm、シード光が800-900 nmである。このため、SC光パルスは550-900 nm以上の帯域を有さなければならない。Fig.3よりガス圧の増加に伴いスペクトルの広帯域化が確認され、ガス圧が120kPaの時では550-900nmまで広帯域化し、さらに中空ファイバ後のパワーも230 mW(透過率35%)を超え、差周波混合に必要な波長帯域は得られた。

Fig.4にSPIDER(Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction)を用いて測定したガス圧は変化に伴うスペクトル位相の変化を示す。この時の入射パルスの強度は600  $\mu\text{J}/\text{pulse}$ であり、結果からも分かるように、広帯域化が促進されると同時に2次分散が付加し、120kPaではおよそ2000  $\text{fs}^2$ に相当する分散が生じた。SPMによって生じた分散の補償には、チャープミラーを用いた方法が一般的であるが、本実験で発生したSC光パルスは波長帯域が550-900 nmと広く、2次分散量も2000  $\text{fs}^2$ と大きいいためチャープミラーによる分散補償は難しいと判断し、次で述べる広帯域波形整形器による補償を試みた。

続いて、よりSCパルスのポンプ光とシード光の成分を強めるため、中空ファイバを用いたIPM (Induced Phase Modulation)によるSC光パルスの発生を試みた。Fig.5に中空ファイバを用いたIPMによるSC光パルス発生時のセットアップを示す。厚さ1.0 mmのBBO結晶から同軸で出射した基本波と2倍波の光パルスは直後のダイクロックミラーによって分割され、基本波の光路に時間遅延を設けることにより時間と空間のオーバーラップを実現した。

Fig.6にSPM効果とIPM効果の比較結果を示す。この時、基本波の入射強度はSPMとIPMともに600 mW、2倍波の入射強度は80 mW、ガス圧は120kPaであった。Fig.6よりわかるように、2倍波側の波長領域ではIPMによるスペクトルの広帯域化は確認できたが、基本波側の波長領域ではIPMによるスペクトルの広帯域化は確認できなかった。これは、

2倍波の強度とレンズなどの光学素子の分散補償の両立ができなかったことが原因であると考えられるため、Fig.7に示すようなチャープミラーを用いて2倍波の強度と分散補償が両立できる新しいセットアップが必要である。

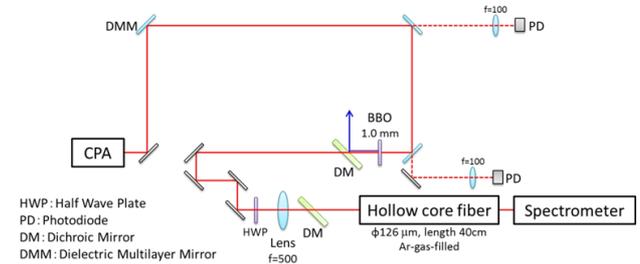


Fig. 2 Schematic for SPM experiment.

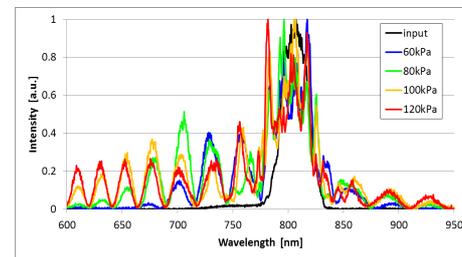


Fig. 3 The result of SC spectra of the fundamental light at various Ar gas pressures.

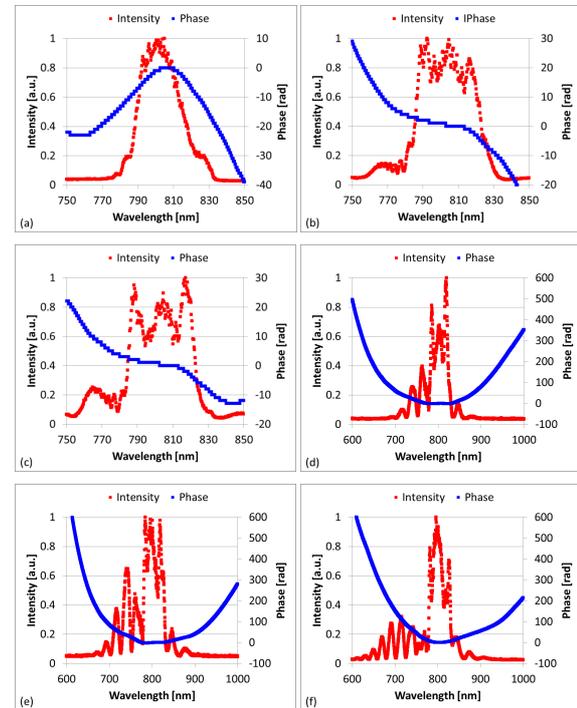


Fig. 4 Spectrum intensity and phase of SC pulses. Ar gas pressures were (a)17kPa, (b)40kPa, (c)60kPa, (d)80kPa, (e)100kPa and (f)120kPa.

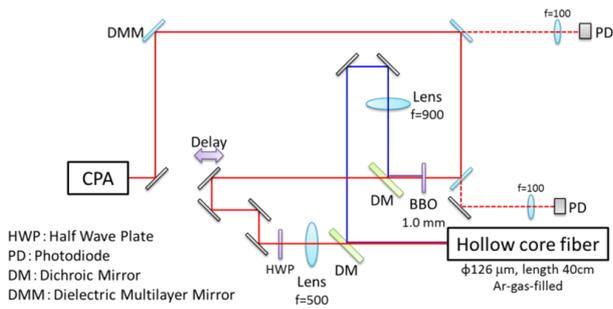


Fig. 5 Schematic for IPM experiment.

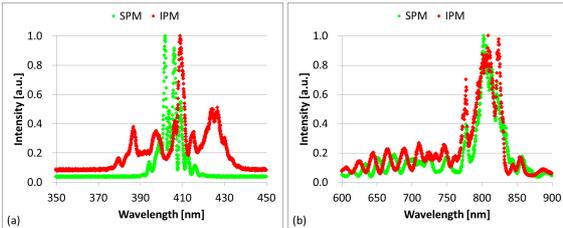


Fig. 6 Comparison of the experimental result of SPM and IPM.

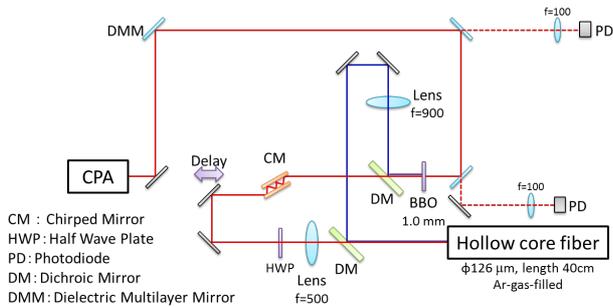


Fig. 7 Improvement for IPM experiment.

### 3. Super-continuum光パルス波形整形

Fig.8にSC光パルスの波形整形用光学系のセットアップを示す。中空ファイバを伝播後のSC光パルスは、広帯域波形整形を実現するため、プリズムと凹面鏡( $f=660$ )を用いて構築した。使用したプリズムは分散量の大きい材料を選定しなければ角度分散によるビームの広がり角は小さく焦点距離が長くなり過ぎてしまうので、本実験ではHOYA社製E-FDS01を用いた。一方で、分散量の大きいプリズムは、プリズム自体の材料分散も大きく、場合によっては波形整形器として機能しない程の分散を持ってしまう可能性がある。実際、Fig.9に示すSSI(Spatial Spectral Interferometry)による分散量の測定結果では、プリズムの分散値は $9000 \text{ fs}^2$ 程度であり、非常に大きな分散が付加していることが確認できた。

本実験で用いた波形整形器は、およそ $2000 \text{ fs}^2$ 以上の分散

を加えると、両端のピクセルの隣り合うピクセルの位相が $2\pi$ を超えてしまい理論上の限界となる。そのため、プリズムによって $9000 \text{ fs}^2$ 以上の分散が付加している現状では波形整形器が正常に機能するのは困難であると判断できる。そこで本実験では、SC光パルスのビームサイズの縮小による分散量の軽減と、非対称4-f光学配置による分散補償の2つの対策を講じた。

まずビームサイズの縮小では、中空ファイバ直後のコリメート用凹面ミラーの焦点距離を $f=500$ から $f=200$ に変更し、ビームサイズを直径 $10 \text{ mm}$ から $4 \text{ mm}$ に縮小した。Fig.10にビームサイズの変更に伴う分散量の変化を示す。この値はプリズムの伝搬距離を幾何学的に見積もった分散量であり、この結果からもビームサイズの縮小によって $9000 \text{ fs}^2$ 付加していた分散量は $4000 \text{ fs}^2$ まで軽減することがわかる。

一方、非対称4-f光学配置による分散補償とは、波形整形器の出口側のプリズムの位置を焦点距離より遠ざけ、各波長の光路長を変化させることによって負の分散を付加させ分散補償する方法である。Fig.11に各位置でのSSIによる位相とビームプロファイルの変化を示す。Fig.11に示すように、プリズムの位置を遠ざけることで負の分散付加され、焦点距離より $70 \text{ mm}$ 遠ざけた位置でプリズムの分散を補償できた。また、ビームプロファイルの変化もこの位置では元のビームより $1.25$ 倍広がってはいるが現状では特に問題はないと思われる。以上よりこれらの対策を用いることで波形整形器のプリズムの分散を補償することに成功した。

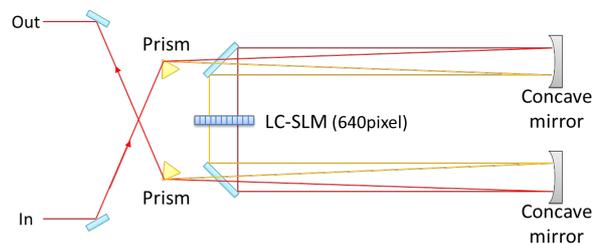


Fig. 8 Schematic for a broadband pulse shaper for 800 nm SC pulses.

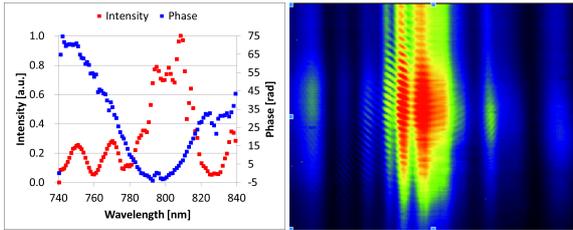


Fig. 9 SSI image and Spectrum intensity and phase by SSI measurements.

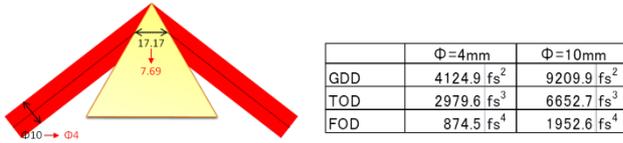


Fig. 10 The amount of dispersion by prisms in pulse shaper accompanying reduction of beam size.

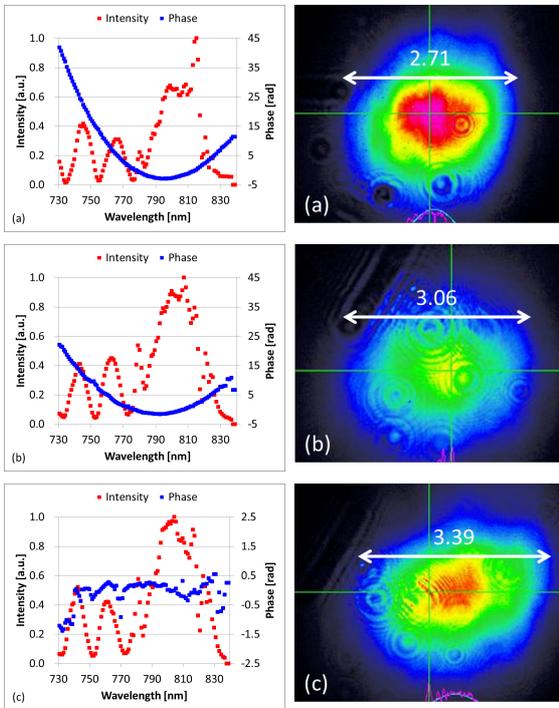


Fig. 11 Spectrum intensity and phase by SSI measurement and output beam profiles from pulse shaper. Prism position in pulse shaper were (a)0 cm, (b)4 cm and (c)7 cm.

#### 4. 超短赤外パルス発生と波形整形の計算

Fig. 12にSC光パルスを用いた差周波混合の実験光学系を示す。フーリエ面に配置された半波長板によってSC光パルスの長波長側の偏光方向はS偏光となり、短波長側の偏光方向と直行する。差周波混合に用いる結晶は厚さ0.1mm

のtype- I BBO結晶であり、長波長側と短波長側の位相整合条件を満足すれば差周波発生が起こる。

差周波混合によって発生する波長、位相整合角、効率を計算した結果をFig. 13に示す。Fig. 13(a)は、x軸がシグナル光の波長(800-900 nm), y軸がポンプ光の波長(550-650 nm), z軸が発生する波長にそれぞれ対応し、この計算より発生する中赤外光パルスの波長はおおよそ1500-3500 nmとなる。Fig. 13(b)は各波長での位相整合角を計算した結果であり、これより全波長帯域で位相整合角の幅は $2^\circ$ 以下に収まることがわかる。このため、広帯域位相整合条件を満たす方法として用いられる角度分散法[9]を利用せずに波形整形器から直接結晶に入射できる。Fig. 13 (c)は、結晶の厚さを0.1mm, 位相整合角を $20.60^\circ$  (シグナル光の波長が850 nm, ポンプ光の波長が600 nmの場合の位相整合角)とした時の効率を計算した結果である。Fig. 13 (c)からも分かるように、位相整合角を一定にした場合、すなわち波形整形器から出たパルスを直接結晶に入射した状態でも広い波長帯域で高効率を得られる。

この手法の利点は、1つの光源から中赤外光パルスが発生する点の他、中赤外光パルスの位相や波長帯域を制御できる点も挙げられる。Fig. 14にそのメカニズムをモデル化した図を示す。Fig. 14はシグナル光、ポンプ光、アイドラ光の瞬時角周波数であり、Fig. 14(a)はポンプ光とシグナル光に適切な位相変調を与えることでアイドラ光に任意の位相変調を与えることができる。Fig. 14(b)はポンプ光とシグナル光に逆符号の分散を与えることで非常に広帯域な中赤外光パルスが発生できる。Fig. 14(c)はポンプ光とシグナル光に同量の分散を与えることで非常に狭帯域な中赤外サブピコパルスが発生する仕組みである。

Fig. 14を詳しく説明するため、白色光実験で得られたSC光パルスのスペクトルと位相整合の効率を加味した上で、それぞれの状態で発生する中赤外光パルスのスペクトル強度と位相を仮想的に算出した結果をFig. 15に示す。なお、効率は先ほどと同様、厚さ0.1 mmのtype- I BBO結晶に入射した状態で計算した。Fig. 15からも分かるように、この手法を用いることで発生する中赤外光パルスの位相変調とスペクトル制御の両方が可能であると言える。

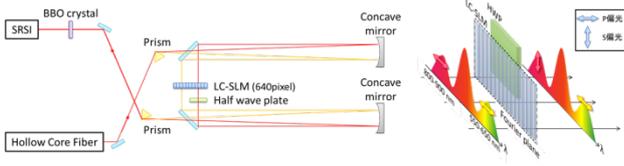


Fig. 12 Experimental setup of different frequency mixing. Polarization rotation of the seed pulses using the half wave plate in the Fourier plane.

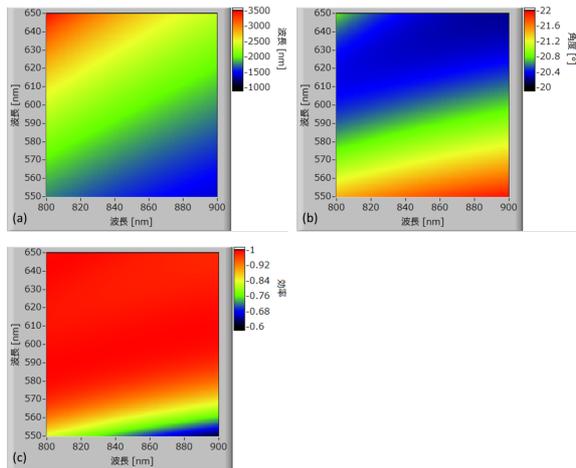


Fig. 13 Calculation of the (a)wavelength, (b)phase matching angle and (c)efficiency in difference-frequency mixing.

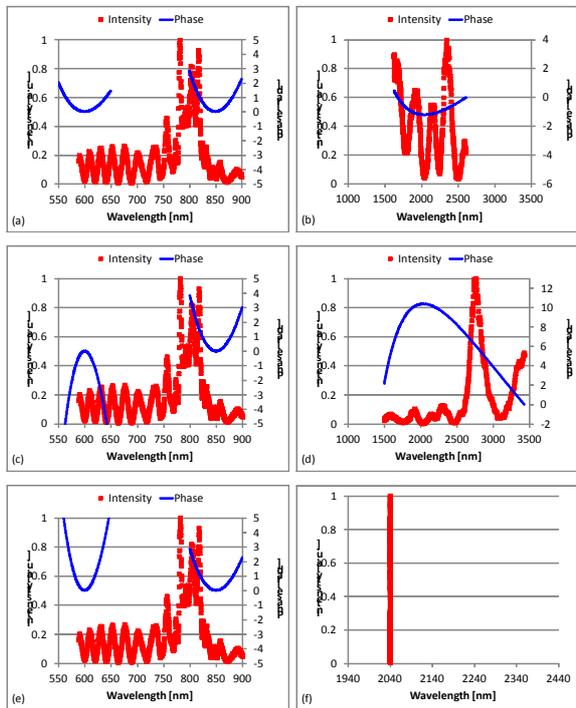


Fig. 14 Calculation of the spectral intensity and phase in generating and pulse shaping of (a),(b)mid-infrared pulses, (c),(d)ultra-broadband mid-infrared pulses and (e),(f)tunable narrowband mid-infrared pulses.

## 5. まとめ

本研究では新しい中赤外光パルスの発生と波形整形を行う手法の考案と実証を試みた。中空ファイバを用いた白色光実験では、SPMによって所望するスペクトル帯域のSC光パルスが得られたが、IPMによる更なるスペクトルの広帯域化は確認できなかった。SC光パルスの波形整形器では、プリズムによる材料分散の補償として、ビームサイズの縮小と非対称4-f光学配置の2つの対策を施すことで解決した。差周波混合では、厚さ0.1mmのtype- I BBO結晶を使用することで広帯域位相整合光学系を構築しなくとも高効率の位相整合の実現が計算によって確認できた。またこの手法は、発生する中赤外光パルスの位相変調とスペクトル制御の両方が可能であることを計算的に検証できた。

今後は、波形整形器を用いてSC光パルスの圧縮を試みた上で、差周波混合による中赤外光パルスの発生と波形整形の実証を行う。また、白色光実験ではチャープミラーを用いた新しいセットアップを構築し、IPMによるSC光パルスの更なる広帯域化を試みる。

## References

- [1] H. Rabitz, et.al., Science, **292**, 709 (2001).
- [2] M. Shapiro, et.al., Chem. Phys. Lett., **126**, 6, 541, (1986).
- [3] T. Binhammer, et al, IEEE J. Quantum Electron., **41**, 1552(2005).
- [4] T. Brixner et. al., Opt. Lett., **26**, 557 (2001)
- [5] L. Polachek, et. al., Opt. Lett., **31**, 631(2006).
- [6] A. Gehner, et. al., Appl. Phys. B, **76**, 6, 711(2003).
- [7] J.W. Wilson, et. al., Opt. Express, **15**, 8979( 2007).
- [8] T. Brixner, et. al., Appl. Phys. B., **88**, 519 (2006).
- [9] Y. Nabekawa, et. al., Opt. Express, **11**, 324(2003).