

# 石英薄板アレイにおける自己および誘起位相変調を用いた 超広帯域フェムト秒光パルスの発生

Supercontinuum generation by self- and induced-phase modulation processes  
with an array of fused silica thin plates

山口 勇輝(B4), 鈴木 敬和(M2), 肥田 遼平(M1)

Yuki Yamaguchi, Takakazu Suzuki, Ryohei Hida

## Abstract

Supercontinuum (SC) optical pulse generation using solid-state thin plates is demonstrated for a femtosecond laser pulse with relatively narrower initial spectrum width of  $\sim 20$  nm (50 fs, FWHM). We propose two methods for obtaining SC pulses with good beam quality. First, we increase the number of thin fused silica plates and optimize their positions along the optical path using SPIDER measurements. Second, we employ induced-phase modulation by the second-harmonic pulses in the thin plates. We obtain SC pulses ranging from 450 to 900 nm, which is comparable to the pulses generated by a rare-gas filled hollow core fiber.

## 1. はじめに

超広帯域フェムト秒光パルス発生は、今日まで、フォトリック結晶ファイバ (Photonic crystal fiber: PCF), 気体伝播中の自己フィラメンテーション, 希ガス封入中空ファイバ(Hollow core fiber :HCF)などを用いて研究されてきた。現在、高強度の超広帯域パルス発生には、HCF を用いた方法が広く用いられている。しかし、この方法はパルスエネルギーのスループットが低く、装置が大規模になりがちであり、特にファイバ入射端での希ガスイオン化により透過パルスの出力、スペクトルが揺らぐといった問題があり、差動排気方式などが考案されてきた。近年、高強度の広帯域パルスを発生させる新しい手法

として、薄板状の固体媒質を用いた方法 [1]が注目されている。この方法では、固体媒質中での自己収束効果による集光スポットを空气中に作成し空气中での回折とを交互に起こすことで固体非線形媒質の損傷を防いでいる。Fig. 1 にその概念図を示す。

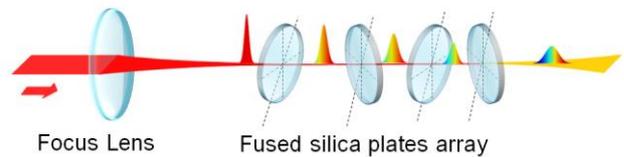


Fig. 1 Diagram of generation of SC light by using fused silica plates array

この手法で発生したパルスはアト秒パルス発生にも利用されている。 [2]

## 2. 予備実験および本研究の目的

先行研究 [1]を受け、本研究室のレーザ装置を用い、同様の方法を用いて広帯域パルスを発生させようと試みたが、先行研究同様の広帯域パルスを得ることができなかった。これは、入射パルス幅、スペクトル幅の違いによるものと考えられる。先行研究では、時間幅 25 fs, スペクトル幅 36 nm(FWHM)であったのに対し、本実験で用いたパルスは時間幅 50 fs, スペクトル幅 18 nm(FWHM)であった。

そこで本研究では時間幅 50 fs, スペクトル幅 18 nm(FWHM)の、比較的狭帯域のパルスから石英薄板を用いて効果的に広帯域フェムト秒パルスを発

生させるための方法を2つ提案し研究を行った。1つ目は、先行研究では非線形媒質である石英薄板が4枚であったのに対し、薄板を7枚に増加し、さらに、SPIDER計測を用いて石英薄板の配置を最適化する方法である。2つ目は、HCFを用いた広帯域光発生でも用いられている誘起位相変調(Induced phase modulation: IPM)を石英薄板アレイでの広帯域化に適用する方法である。これらの方法を導入することで従来の広帯域化手法が持つ問題を解決できる広帯域化手法を開発することを本研究の目的とする。

### 3. 薄板枚数の増加及び配置の最適化

比較的長いパルス幅を持つフェムト秒パルスからでも、スペクトル広帯域化を促進するための1つ目の手法として、薄板の枚数を増加し、その配置を最適化した。実験系はFig. 2を用いた。集光レンズの焦点距離は、ビームスポットにおけるピーク強度が自己収束の閾値と石英薄板損傷の閾値の間となるように選んだ。石英薄板は厚さ50 $\mu\text{m}$ のものを3枚、100 $\mu\text{m}$ のものを4枚用い、損失を低減するためにブリュースター角に傾け、ビームの中心付近で大きな非線形効果が起きるので、薄板アレイ透過後にビームの中心付近のみをアイリスで取り出した。

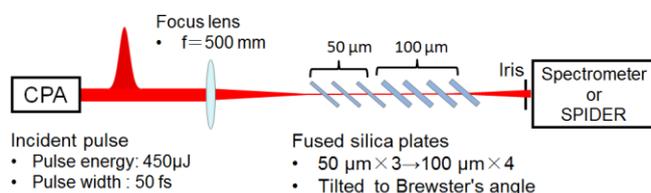


Fig. 2 Experimental setup with 7 pieces fused silica plates

先行研究では4枚の薄板を用いていたのに対し、今実験では7枚の薄板を用い、配置の最適化にはSPIDER計測を利用した。先行研究では、1枚目の薄板は集光レンズの集光点におき、その後の薄板は

最もスペクトルが広がる位置に薄板の間隔を調整することで白色光を発生していた。しかし、パルス幅50 fsの入射パルスを用いると、最初の数枚でのスペクトルの広がり是非常に小さく、薄板をどの間隔で配置するのが最適化なのかをスペクトルの広がりから判断することが難しい。そこで、薄板配置の最適化の基準に、SPIDERによって計測されたスペクトル位相を利用した。広帯域化のために用いている主な非線形光学効果は自己位相変調 (Self phase modulation :SPM)である。SPMはパルスのピーク強度が大きいときに強く誘起され、SPMが起きたパルスの中心付近の位相は2次分散で近似できる。このことを利用し、大きな2次分散が計測された位置に薄板を配置することで、パルスのピーク強度が高い位置に薄板を配置することができることとなる。ここで、薄板を徐々に集光点に近づけていき、その時のSPIDERで計測した2次分散から薄板の最適な配置を決定する方法を試みた。薄板を配置していない状態から、最初の薄板を集光点の後方から徐々に近づけていったときの、SPIDERで計測された群速度分散 (Group phase modulation: GVD)はFig. 3のようになった。

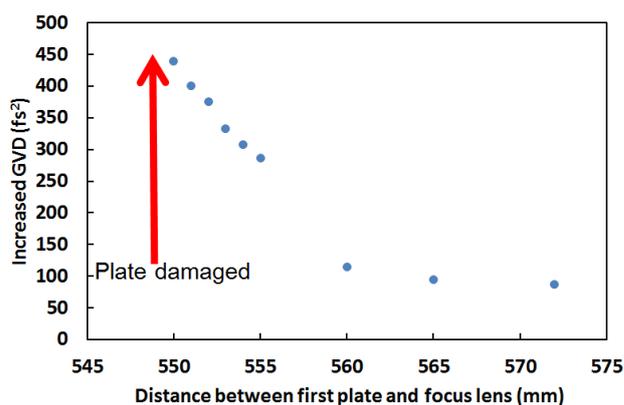


Fig. 3 GVD that increases as the first plate gets closer to the focal point

Fig. 3の結果より、集光点に近づけるにつれ、2次分散が増加していることから、ピーク強度が高まり、

大きな SPM の効果が起きていることがわかる。これより、薄板が損傷せず、大きな SPM を引き起こせるのは集光レンズの焦点から 50 ~55 mm の範囲にあるということがわかったので、1 枚目の薄板を集光レンズから 53 mm の位置に配置した。2 枚目以降も同様に十分に後方から前の薄板に近づけていき、大きな SPM を引き起こせる場所を SPIDER によって計測し、薄板の配置を決定していった。Fig. 3 より、450 fs<sup>2</sup> の GVD が生じる位置では薄板が損傷するため、各薄板で増加する GVD が 400 fs<sup>2</sup> となるように調整した。薄板間隔は順に、12 mm, 10 mm, 8 mm, 7 mm, 7 mm, 7 mm となった。このようにして 7 枚目までの薄板を配置し、広帯域スペクトルを発生することができた。薄板通過ごとのスペクトル広がりには Fig. 4 のようになった。

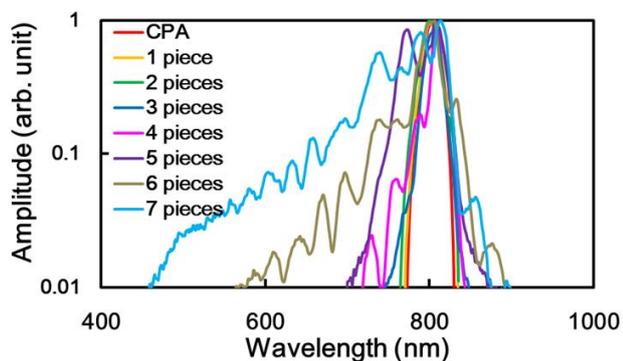


Fig. 4 SC spectra generated from fused silica array

入射パルスの帯域幅は比較的狭いが、7 枚の薄板を用いて、SPIDER 計測を配置の最適化に用いることで、先行研究 [1]と同様の、短波長側に大きなスペクトル広がりを持つ SC スペクトルを発生することができた。

現在、高強度の広帯域フェムト秒パルスの発生方法として広く用いられている HCF と、石英薄板アレイを比較する。まず、スペクトルの比較をする。HCF には、Ar ガスを 200 kPa で封入した。

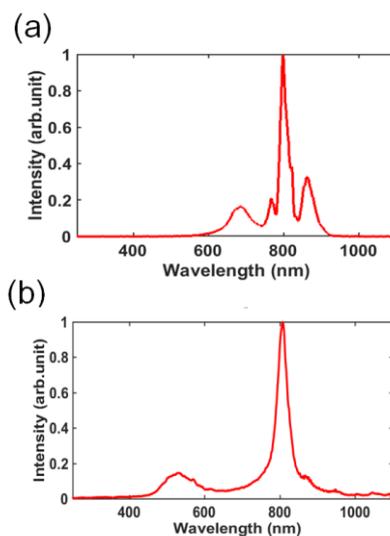


Fig. 5 Comparison of spectrum generated by (a) hollow core fiber and (b) fused silica plates array

この実験条件では、HCF を用いるよりも石英薄板アレイを用いたほうがより広帯域化した。HCF は、入射パルスエネルギーを上げる、ガス圧を高めるといった手法をとることでさらに広帯域化を進めることもできるが、それに伴い、ファイバ入射端でのイオン化が顕著になり、スペクトルが不安定になってしまう。

次に、パルスエネルギー、スループットの比較をしたのが、Table 1 である。

Table 1 Comparison of pulse energy and throughput

	Hollow core fiber	Fused silica plate array
Input pulse energy ( $\mu\text{J}$ )	405	450
Output pulse energy ( $\mu\text{J}$ )	90	240
Throughput (%)	20.5	53

HCF はファイバ伝搬中に電界がクラッドに漏れ出してしまうため、透過率が低下してしまうが、石英薄板アレイでは透過率が高く、より高効率で高

強度の広帯域パルスが発生するのに適しているといえる。

最後に、空間プロファイルの比較をする。それぞれの方法で発生した広帯域パルスの、7枚目の薄板から40 cmの位置でのビームプロファイルをFig. 6に示した。

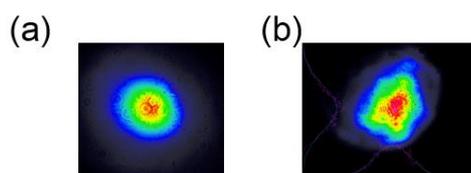


Fig. 6 Comparison of beam profile generated by (a) hollow core fiber and (b) fused silica plates array

HCFは空間フィルタの役割を持つため、理想的な空間プロファイルの広帯域パルスを得ることができる。一方で、石英薄板アレイでは、HCFと比較すると空間プロファイルの乱れがみられるが、バルク固体材料に高強度パルスを入射した時のようなホットスポット形成による空間プロファイルの大きな乱れは見られず、十分に実用的な空間プロファイルであると考えられる。

さらに、石英薄板アレイで発生したSC光がイメージング光源として応用できるだけの空間プロファイルを持っているかを確認した。今回は、本研究室で取り組んでいる超高速現象のバーストイメージング手法である、SF-STAMP [3]に石英薄板アレイで発生した広帯域光を適用し、イメージングに十分な空間プロファイルを持っているかどうかを確認した。実験系はFig. 7を用いた。石英薄板アレイからSF-STAMP光学系までの距離は約10 mである。

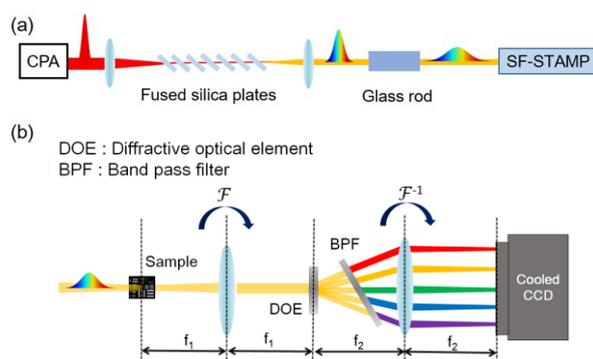


Fig. 7 (a) Schematic of application of SC light to SF-STAMP system (b) Schematic setup of SF-STAMP [3]

SF-STAMPは本来、超高速に変化する現象の時間変化をシングルショットで2次元イメージでとらえる手法であるが、今回の実験の目的は石英薄板アレイで発生した白色光の空間プロファイルが良いことを確認することであるため、サンプルには時間変化することのない試料(USAFテストターゲット)を用いた。冷却CCDで得られた画像はFig. 8のようになった。

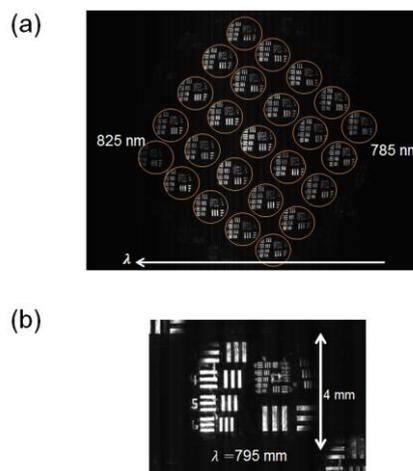


Fig. 8 (a) Overall image obtained by STAMP system (b) An expanded image with wavelength of 795 nm

Fig. 8より、各波長のイメージが欠けることなくCCD上に結像できていることが分かる。これより、石英薄板アレイで発生した白色光は波長785

nm から 825 nm においてプロファイルに欠けはなく、顕微光学系の照明として利用できる光源であることが確認された。

#### 4. 石英薄板アレイでの IPM

石英薄板を用いたスペクトル広帯域化を促進させるための手法の 2 つ目として、HCF でさらなる広帯域光発生に利用されている IPM を石英薄板アレイに適用した。実験系は、Fig. 9 を用いた。

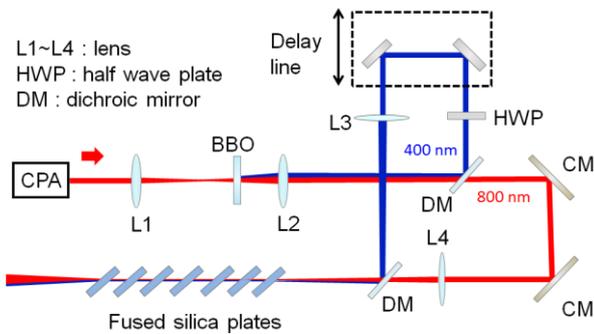


Fig. 9 Experimental setup for IPM at fused silica plates array

IPM では、基本波と二倍波の相互作用によって 1 枚目の石英板における広帯域化を促進するため、2 つのパルスの空間、時間を一致させる必要がある。まずは光路上の 2 点で CCD カメラを使って 2 つのビームの位置を一致させた。次に、2 つのパルスを時間的に一致させるために Fig. 10 のような実験系を用いて、周波数干渉 (Spectral Interferometry:SI) 計測を行った。

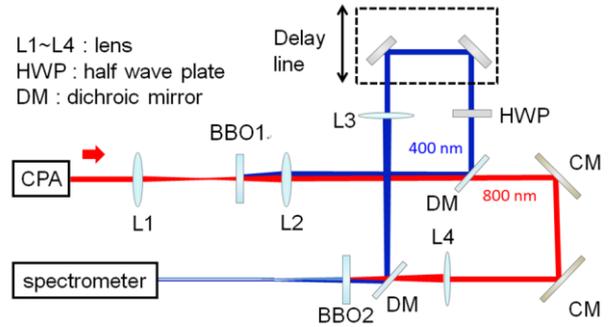


Fig. 10 Experimental setup for delay adjustment

まず、Fig. 9 に示した実験系の半波長板の軸を二倍波の偏光方向と一致させ、偏光を回転させない状態にする。次に、合波用のダイクロミックミラーの直後に BBO 結晶 (BBO2) を設置し、BBO1 と BBO2 で発生した二倍波の周波数域の干渉をとる。干渉縞の間隔はパルスの遅延時間に反比例するため、フリッジの間隔が広がる位置で遅延光学系を固定すれば、2 つのパルスは重なった状態となる。このように基本波と二倍波の遅延時間を調整した。

基本波と二倍波の空間と時間を一致させた状態で Fig. 9 の実験系に戻し、石英薄板アレイでの IPM 実験を行った。入射パルスは基本波 250mW、二倍波 80mW であった。CPA のコンプレッサーでの分散補償は、SHG 強度を最大にするように調整した。薄板を 7 枚配置したときの実験結果は Fig. 11 のようになった。薄板間隔はそれぞれ、9 mm, 8 mm, 7 mm, 7 mm, 7 mm, 7 mm で実験を行った。

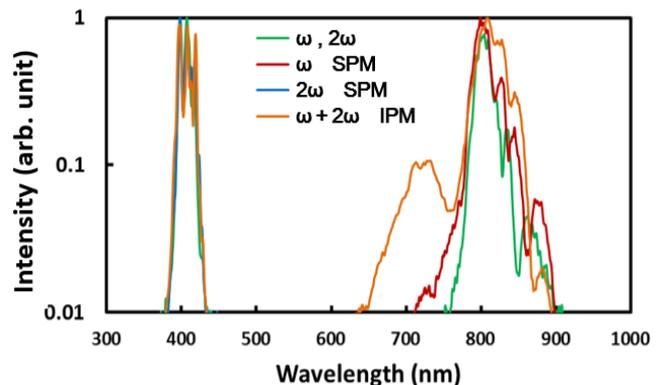


Fig. 11 Spectrum of IPM through 7 fused silica plates

基本波単独で SPM を起こすよりも、基本波と二倍波を同時に入射し、IPM を起こした時のほうがスペクトルが広がっていることから、IPM の効果を得られていることが分かる。しかし、Fig. 4 のような白色光発生には至らなかった。

石英薄板での IPM は、HCF での IPM と比較して、広帯域のスペクトルを得ることができなかった原因として考えられるのは、まず、石英が固体媒質であり、大きな材料分散を持っていることである。材料分散により、異なる波長帯のパルスには時間、空間的にずれが生じる。まず、石英の波長 800 nm での屈折率は 1.4533、波長 400 nm での屈折率は 1.4701 [4]であるため、ブリュースター角に傾けた石英薄板に入射した基本波と二倍波の屈折角はそれぞれ、 $34.309^\circ$ 、 $33.863^\circ$  となる。屈折角の差による光路長のずれと、群速度の差から、100  $\mu\text{m}$  の薄板を通過後に生じる基本波パルスを二倍波パルスの時間差は、6.8 fs となる。このことから、石英薄板アレイにおいて 2 つのパルスが時間的に一致して伝搬できるのはアレイの中の 1 枚目の薄板だけである。1 枚目での IPM の効果よりも、セットアップ内でのパワーの損失が多くなったことのほうが、広帯域化に影響が大きかったと考えられる。

## 5. 結論

本研究では、HCF に代わる手法として、石英薄板アレイを用いた高強度超広帯域パルス発生手法の開発を行った。パルス幅 50 fs(FWHM)の比較的長いパルス幅を持つ CPA パルスからでは、パルス幅 25 fs(FWHM)のパルスと比べて広帯域化が進みにくいが、石英薄板を 7 枚に増加し、SPIDER 計測を利用して薄板の配置を最適化することで、波長 450 nm~900 nm にわたる白色光を発生できた。石英薄板アレイでの白色光発生手法は、HCF と比較

して、高いスループット、安定したスペクトルといった長所を持っており、また、その空間プロファイルは、イメージングに十分応用できるものであった。

また、HCF では白色光発生が報告されている IPM を、石英薄板アレイに適用した。石英薄板アレイでも IPM の効果は確認できたが、発生した広帯域スペクトルは 650 ~900 nm であり、HCF での IPM で発生した広帯域スペクトルには及ばなかった。石英薄板アレイでの IPM では、石英薄板アレイでの広帯域化を促進することはできるが、セットアップ内での損失増加の影響が大きく、SC 項発生には至らなかった。これらの実験結果から、IPM を利用するよりも基本波のみを SPM によって広帯域化する手法が有用であると考えられる。

## References

- [1] C.-H. Lu, Y.-J. Tsou, H.-Y. Chen, B.-H. Chen, Y.-C. Cheng, S.-D. Yang, M.-C. Chen, C.-C. Hsu, and A. H. Kung, "Generation of intense supercontinuum in condensed media," *Optica* 1, 400 (2014).
- [2] P.-C. Huang, C.-H. Lu, C. Hernandez-García, R.-T. Huang, P.-S. Wu, D. D. Hickstein, D. A. Thrasher, J. Ellis, A. H. Kung, S.-D. Yang, A. Jaron-Becker, A. Becker, H. Kapteyn, M. M. Murnane, C. Durfee, and M.-C. Chen, "Isolated, Circularly Polarized, Attosecond Pulse Generation," in *Conference on Lasers and Electro-Optics* (OSA, 2016), p. JTh4A.7.
- [3] T. Suzuki, F. Isa, L. Fujii, K. Hirose, K. Nakagawa, K. Goda, I. Sakuma, and F. Kannari, "Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP) utilizing spectral filtering," *Opt. Express* 23, 30512 (2015).
- [4] I. H. Malitson, "Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica," *J. Opt. Soc. Am.* **55**, 1205 (1965).