

超広帯域液晶空間変調器を用いたアト秒パルスレーザーの開発

米田研究室 鈴木 知基

1. はじめに

超短パルスレーザーを希ガス中で集光させ、非線形光学効果により容易に発生させられる超広帯域光は、紫外から近赤外までの比較的位相変化がゆっくりとした光となるため、原理的にはサブフェムト秒パルスを発生させることができる。この超広帯域光のスペクトル位相制御には、4-f 光学系の中心に空間光位相変調器(Spatial Light Modulator: SLM) を設置して補償することが行われてきた。[1] しかしながら、従来の液晶を使うものは、その位相制御性に優れているものの透過帯域が 450 nm 程度以上に制限されて、これが生成できる周波数帯域及びパルス幅を制限してきた。

本研究では、液晶材料を見直し、新しく京都の企業連合と共同開発された SLM[2]を用いて、従来よりも 150% 広帯域化したスペクトル位相制御システムを構築し、パルス圧縮を実証することを行った。この研究では、合わせて高感度にスペクトル位相を測定できる変形スパイダー(Modified Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction: M-SPIDER)[3] を広帯域化したものの開発、それからのスペクトル位相情報を SLM にフィードバックするシステムも開発している。

2. SPIDER の原理

SPIDER は 2 光束干渉を利用して、スペクトル位相を測定できる光学系である。

2 光束として、光波 $E_1(\omega)$ と $E_2(\omega)$ を考える。このとき、干渉スペクトル $S(\omega)$ は次式のように表される。

$$S(\omega) = |E_1(\omega) + E_2(\omega)|^2$$

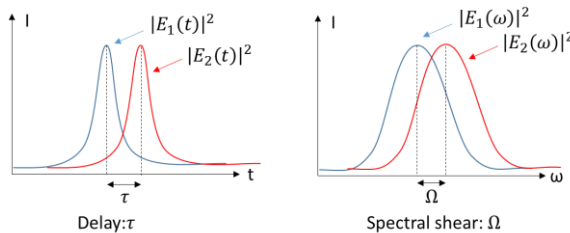


図 1 遅延 τ とスペクトルシアー Ω をもったパルス

$E_1(\omega) = E(\omega) = \sqrt{I(\omega)} \exp[i\phi(\omega)]$ とし、それに遅延 τ 、周波数シフト Ω をもたせた光波を $E_2(\omega)$ とすると、 $E_2(\omega) = E(\omega - \Omega) \exp(i\omega\tau)$ となり、式は次のようになる。

$$S(\omega) = |E(\omega) + E(\omega - \Omega) \exp(i\omega\tau)|^2$$

$$S(\omega) = I(\omega) + I(\omega - \Omega)$$

$$+ 2\sqrt{I(\omega)I(\omega - \Omega)} \cos[\phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega) + \omega\tau]$$

スペクトル干渉の \cos 内の位相にスペクトル位相が存在していることがわかる。そのため、この位相項を抽出することでスペクトル位相の測定が可能となる。

3. 超広帯域光のパルス圧縮実験構成

本研究における実験構成を図 2 に示す。Ti:sapphire レーザー増幅器(パルス幅: ~25fs, 中心波長: 800 nm, 繰り返し周波数 500 Hz)から出射された光はビームスプリッター BS1 で 2 つのパスに分けられる。1 つは Kr ガスチャンバー中で集光され、非線形光学効果により超広帯域光を発生させる。その後、4-f と呼ばれる波長分散光学系によってスペクトル位相を SLM で制

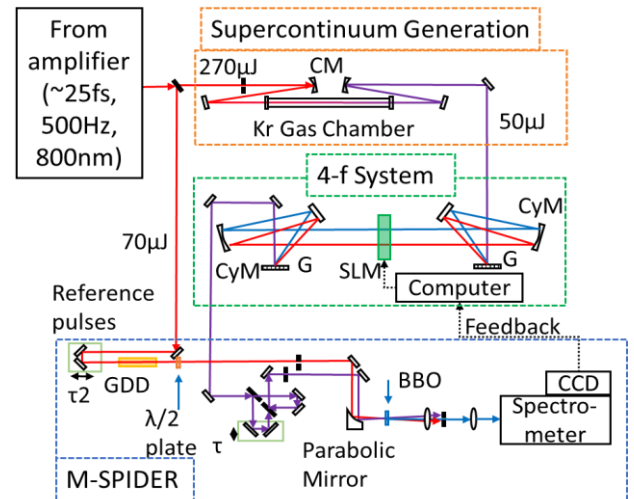


図 2 実験構成図

御される。M-SPIDER では、位相制御された 4-f 系からの被測定光をマイケルソン干渉計を用いて、二つのレプリカパルスからなる遅延光対にし(以下、この時の遅延時間を τ としている。)、それらと BS1 から参照チャープ光とを BBO 結晶中(タイプ II、結晶角 45°)で交差するように集光し、遅延時間 τ 、スペクトルシアー $\Omega/2\pi$ を伴う二つの和周波光を発生させる。それらの干渉スペクトルを分光器で取得し、そこから得られるスペクトル位相を SLM にフィードバックすることで、最短パルスへの圧縮を目指している。

4. 超広帯域光のパルス圧縮実験

4-f 系のアウトプットの超広帯域光のスペクトルを図 3 に示す。380~860nm(半値で 680~835 nm)にかけて十分に広がる超広帯域光が観測できた。

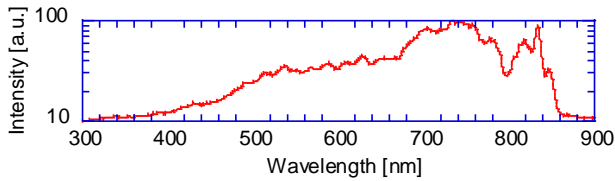


図3 超広帯域光のスペクトル

4-f系では、京都光技術研究会、大日本科研、システムロード、大興製作所との共同研究により開発した超広帯域空間位相変調器 (UV-NIR SLM) を利用した。この透過特性を図4に示した。300-1050nm にかけて60%以上の透過率を持つことがわかる。

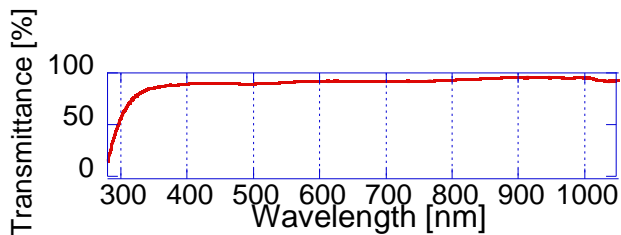


図4 SLMの透過特性

この SLM の波長領域と波長分散を合わせ、384-916nm の光が制御できるよう 4-f 系の回折格子、シリンドリカルミラーを選択した。波長分解能 $\Delta\lambda = 0.83\text{nm/px}$ となった。

測定した SPIDER シグナルを図5に示す。これは遅延時間 τ 、スペクトルシアー $\Omega/2\pi$ を伴う二つの和周波のスペクトル干渉である。

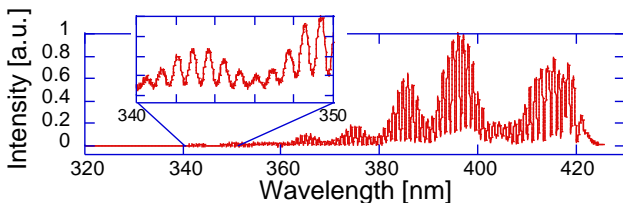


図5 M-SPIDER シグナル

τ と $\Omega/2\pi$ はそれぞれ 554 fs、4.39 THz とマイクロソーン干渉計の出力のスペクトル (図6) とレプリカパルスのそれぞれ和周波スペクトル (図7) の解析により求められた。

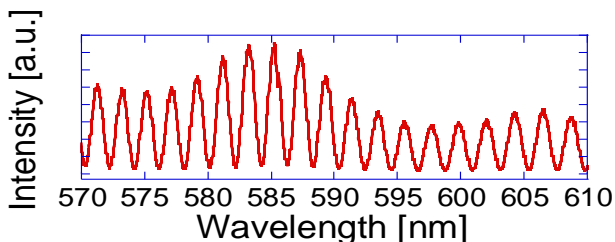


図6 遅延 τ によるスペクトル干渉

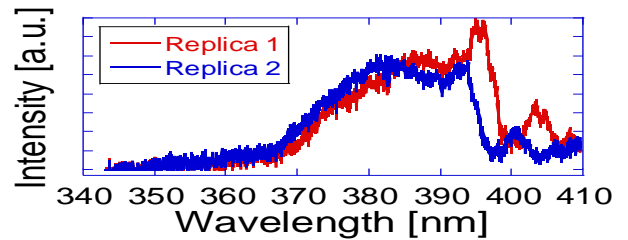


図7 レプリカパルスの和周波スペクトル

SPIDER シグナルは次式に従うことが明らかになっている。

$$S(\omega) = I(\omega) + I(\omega - \Omega)$$

$$+ \sqrt{I(\omega)I(\omega - \Omega)} \cos[\phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega) + \omega\tau]$$

このシグナルの位相 π ごと (山と谷) の波長を測定することで位相を抽出できる。これを $\theta(\omega)$ とすると次のようになる。

$$\theta(\omega) = \phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega) + \omega\tau$$

ここに、遅延時間 τ 、スペクトルシアー Ω を代入し計算することで、スペクトル位相 $\phi(\omega)$ を得ることができる。その結果を図8に示す。

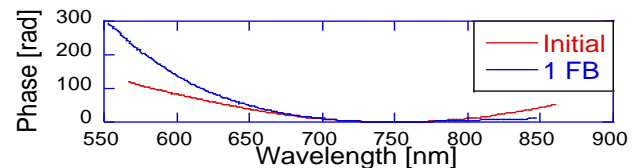


図8 超広帯域光のスペクトル位相

ここで赤線、青線はそれぞれ SLM による調整前と、スペクトル位相をフィードバックした場合 ($\psi(\omega) = -\phi_{\text{initial}}(\omega)$) を表す。

スペクトル位相及び図8で測定したスペクトル強度から計算された実時間パルス波形を図9に示す。赤線、青線は図4と同様であり、緑線はフーリエ限界スペクトル (スペクトル位相 $\phi(\omega) = 0$) として計算をした結果である。

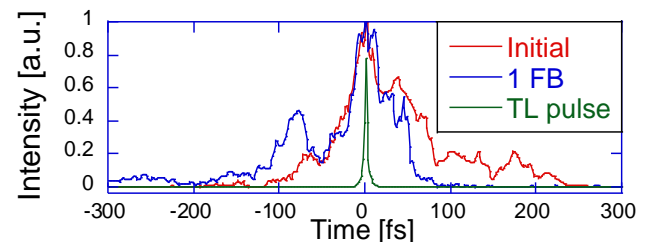


図9 超広帯域光の実時間パルス波形

図9の FWHM は位相制御前(赤線)が 73 fs、位相制御後(青線)が 34 fs となった。補償前から補償後にかけてパルス幅が減少しているが、フーリエ限界パルスよりもはるかに長いパルス幅を持つ結果となっている。この原因は、システムにおいて広帯域光のスペクトル位相を安定に保てる時間が、測定から制御する

フィードバック時間より短いためであると考えられる。実際、この計測では3時間を超えるフィードバック時間を要している。

そこで、高速、高精度に測定できるよう M-SPIDER の改良を行った。測定にはスペクトル分解能 0.1 nm 以下で 180-500 nm のスペクトル域を測定する必要がある。このため、SPIDER シグナルの測定では 50cm 分光器の回折格子を回転させながら 7、8 個のスペクトル範囲で測定している。そこで、新たに 12 bit の 1 inch の大面積、高精度な CCD2 次元検出器を導入し、広帯域を高ダイナミックレンジで少ないスキャン回数で測定できるようにした。

5. SPIDER 解析プログラムの構築

SPIDER シグナルの位相情報の取得を手作業で行うとフィードバックまでに数時間を要し、レーザーの安定な時間を超える問題があった。そこで、高速なフィードバックに向けて位相情報を FFT を用いて抽出するプログラムの構築を行った。また、シミュレーション用のスペクトルを用意し、結果が正しいことの確認を行った。

図 10 にシミュレーション用スペクトルとして中心波長 $\lambda_c = 800 \text{ nm}$ 、スペクトル幅 $\Delta\nu = 17.64 \text{ THz}$ とし、 $\omega_c = 2\pi c/\lambda_c$ 、 $\sigma^2 = (2\pi\Delta\nu)^2/8 \ln 2$ を仮定したガウシアンスペクトルを示す。波長域は 700 - 900nm、分解能は 0.2 THz とした。800nm において群遅延分散(GDD)は 1000fs^2 とした。

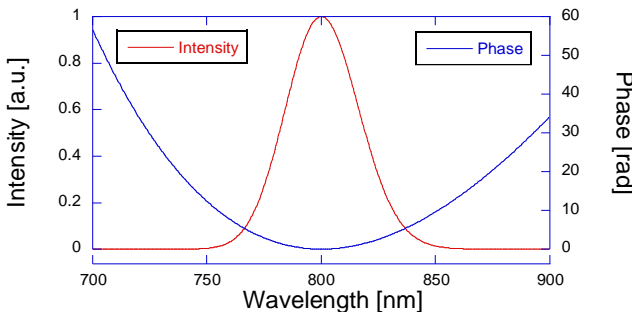


図 10 シミュレーション用スペクトル

ここで、SPIDER シグナルは次式のように表される。

$$S(\omega + \omega_c) = |E(\omega) + E(\omega - \Omega) \exp(i\omega\tau)|^2$$

遅延 $\tau=300\text{fs}$ 、スペクトルシアー $\Omega/2\pi = 3 \text{ THz}$ と仮定し、SPIDER シグナルを算出すると図 11 のようになった。

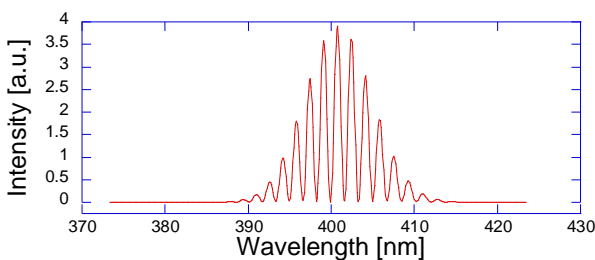


図 11 SPIDER シグナル

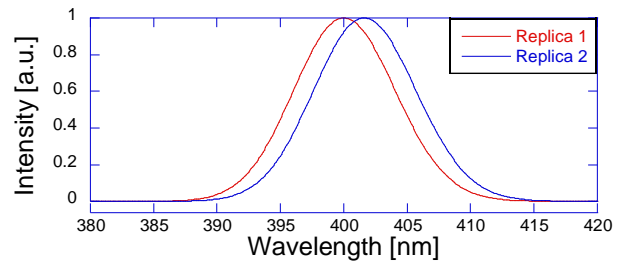


図 12 レプリカパルスの和周波スペクトル

SPIDER シグナルを窓関数としてハン窓をかけた後 IFFT を行った。

IFFT されたスペクトルは次のように表される。

$$S(t) = \mathcal{F}^{-1}[S(\omega + \omega_c)] \\ = S_{dc}(t) + S_{ac-}(t) + S_{ac+}(t)$$

ここで、 $S_{dc}(t)$ 、 $S_{ac+}(t)$ 、 $S_{ac-}(t)$ はそれぞれ $t = 0$ 、 τ 、 $-\tau$ にピークを持ち、 $S_{ac+}(t)$ 次式で表される。

$$S_{ac+}(t) = \mathcal{F}^{-1} \left[2\sqrt{I(\omega)I(\omega - \Omega)} \exp i[\phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega) + \omega\tau] \right]$$

$|t - \tau| < \tau/2$ を満たす $S(t)$ をハン窓を用いて抽出し、 $S_{ac+}(t)$ とし、その他の成分は 0 とした。

ここで、偏角を取り、位相成分 $\psi(\omega - \omega_c)$ を求めると、

$$\psi(\omega + \omega_c) = \arg[S_{ac+}(\omega - \omega_c)] \\ = \phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega) + \omega\tau$$

となる。

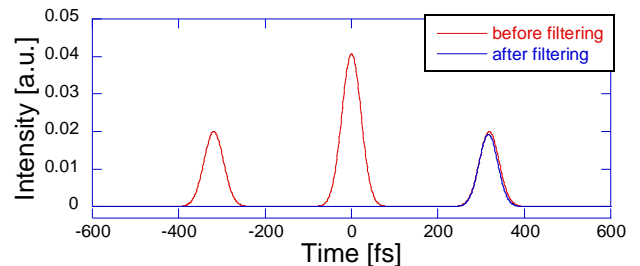


図 13 IFFT された SPIDER シグナル

導出した $\psi(\omega + \omega_c)$ の両辺から $\omega\tau$ を引き、左辺を $\theta(\omega + \omega_c)$ とすると次のようになる。

$\theta(\omega + \omega_c) \equiv \psi(\omega + \omega_c) - \omega\tau = \phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega)$
ここで $\theta(\omega + \omega_c)$ はスペクトル位相の差分方程式となっていることがわかる。

階差方程式は次のように解くことができる。

この階差方程式を $\phi(\omega) = 0$ を満たす ω を ω_0 として、

⋮

$$\begin{aligned}
\phi(\omega_0 - 2\Omega) &= -\theta(\omega_0 - \Omega) \\
&\quad - \theta(\omega_0) \\
\phi(\omega_0 - \Omega) &= -\theta(\omega_0) \\
\phi(\omega_0) &= 0 \\
\phi(\omega_0 + \Omega) &= \theta(\omega_0) \\
\phi(\omega_0 + 2\Omega) &= \theta(\omega_0 - \Omega) + \theta(\omega_0) \\
&\quad \vdots
\end{aligned}$$

故に、内挿を用いて $\theta(\omega + \omega_c)$ から $\phi(\omega)$ を求めた。

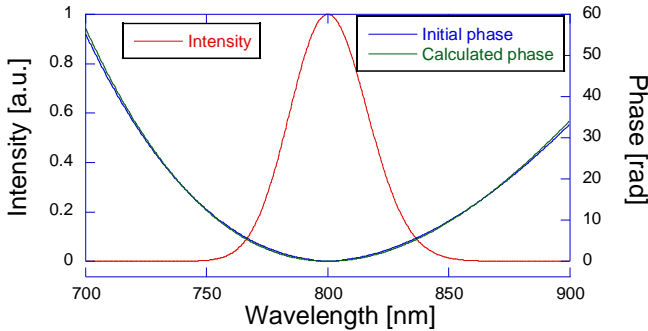


図 14 スペクトル強度とスペクトル位相

仮定したスペクトル位相と SPIDER シグナルの分析によって算出されたスペクトル位相は図 14 に示したとおり、一致している。仮定した GDD は 1000fs^2 であるのに対して、SPIDER シグナルの分析により算出された GDD は 1033fs^2 となった。

スペクトル $E(\omega)$ は次式で与えられる。

$$E(\omega) = \sqrt{I(\omega)} \exp[i\phi(\omega)]$$

$I(\omega)$ には仮定したものを用い、 $\phi(\omega)$ には導出したものとフーリエ限界パルスを計算するために $\phi(\omega) = 0$ の 2 種類を用いることとした。

スペクトル $E(\omega)$ と実時間パルス $E(t)$ の関係は次式で与えられる。

$$E(t) = \mathcal{F}^{-1}[E(\omega)]$$

故に IFFT を用いてスペクトルから実時間パルスの計算を行った。

強度 $I(t)$ は次式で与えられる。

$$I(t) = |E(t)|^2 = |\mathcal{F}^{-1}[E(\omega)]|^2$$

よって実時間パルス強度を算出し、パルス幅を求めた。

計算した実時間パルス $\text{Re}[E(t)]$ を図 15 に示す。

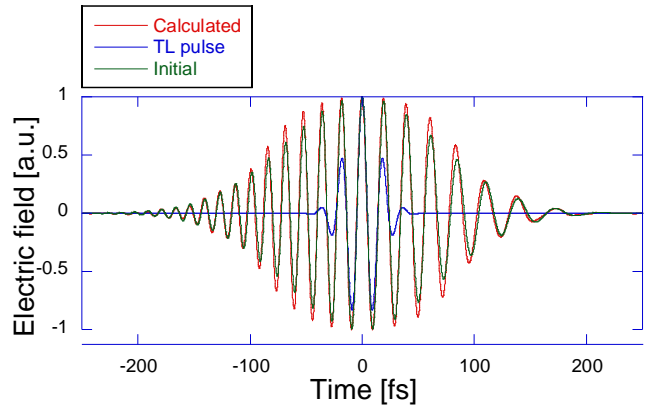


図 15 実時間パルス

次に、実時間パルス強度を示す。

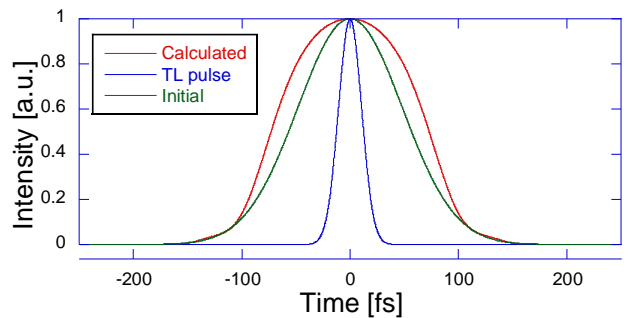


図 16 実時間パルス強度

仮定したスペクトル位相の場合と計算によって求めたスペクトル位相には多少のずれが発生した。パルス幅は仮定したスペクトル位相では 114fs 、算出したスペクトル位相では 156fs となった。

次に $\text{GDD} = 100\text{fs}^2$ としたときのスペクトルを同様に計算した。

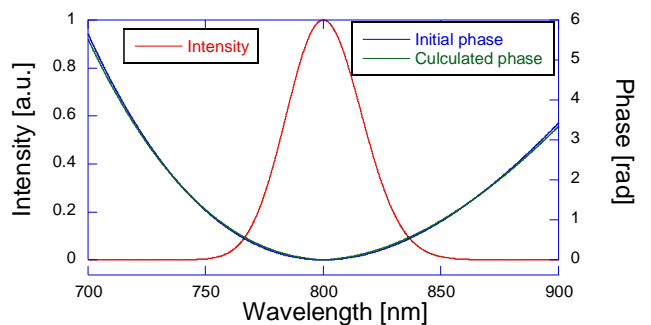


図 17 スペクトル強度とスペクトル位相

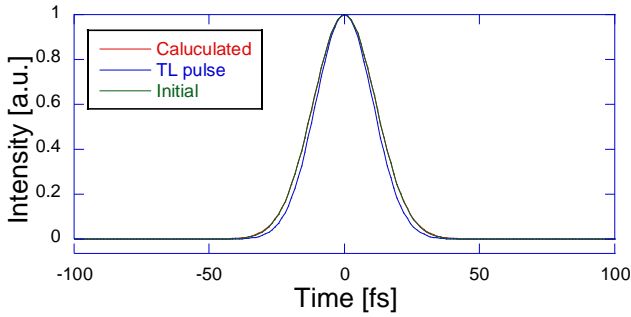


図 18 実時間パルス強度

$GDD = 100\text{fs}^2$ の場合には、パルス幅が共に 24.5fs となり、スペクトル位相の誤差が実時間パルス幅に影響を与えないレベルまで低下したのがわかる。

6. 4-f 光学系デザインの変更

4-f 系の初期デザインは図 19 のように設計を行っていた。

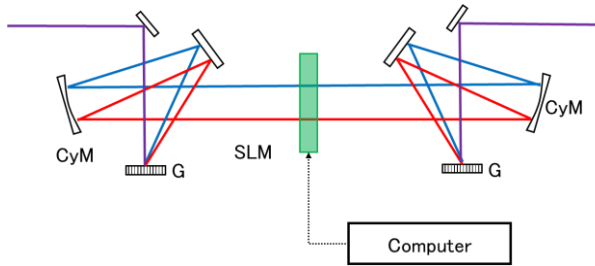


図 19 初期の 4-f 系のデザイン

以前の系ではシリンドリカルミラーに対して斜めに入射していた。しかしながら、この状態では、フリエ面が SLM に対して斜めになってしまう。また、形が点对称でなく、線対称であることから、波長に応じてシリンドリカルミラー間の距離が異なるということがわかった。これまで、アライメントにおいて He-Ne レーザーや超広帯域光を用いていたため、気づけなかったが、波長 633nm の He-Ne レーザーと 532nm のグリーンレーザーの 2 色でアライメントした際に He-Ne レーザーでは 4-f 系から出射されるレーザーが円形であるのに対し、グリーンレーザーでは楕円形となっており、コリメートに失敗していることがわかった。

そこで、4-f 系のデザインを改良し、以下のようなセットアップにした。

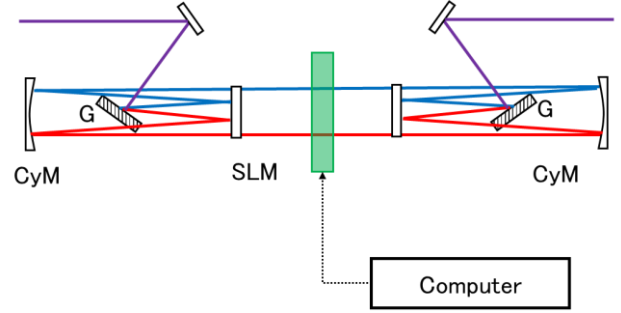


図 20 改良後の 4-f 系のデザイン

定盤と垂直に設置された回折格子に対し、定盤と平行にビームを入射する。分光されたビームは次のミラーによって若干打ち上げられ、回折格子の上を通過し、シリンドリカルミラーに垂直に入射する。シリンドリカルミラーでは再び定盤と平行になるように反射させ、SLM と向かう。ここまでと逆の手順により 1 つのビームへと再構成される。

打ち上げ角はできるだけ短くすることで、上下方向でのシリンドリカルミラーの距離がでないように設計を行った。これに伴い、市販の回折格子ホルダーでは上部が干渉し打ち上げ角が大きくなるため、あまり上部が干渉しない治具の製作を行った。

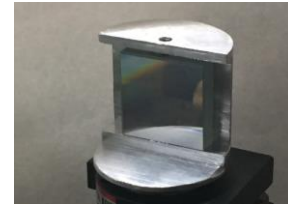


図 21 作製した回折格子ホルダー

7. 改良した M-SPIDER によるパルス圧縮実験

この改良型 M-SPIDER システムの動作を調べるために、Kr ガスチャンバー中を真空にし、広帯域化を抑えた被測定光を利用した。図 22 にその時のスペクトルを示している。

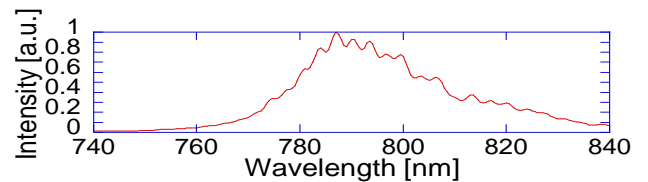


図 22 被測定光のスペクトル

このときの SPIDER シグナルは図のようになった。388-404nm にかけて広がるシグナルが得られた。

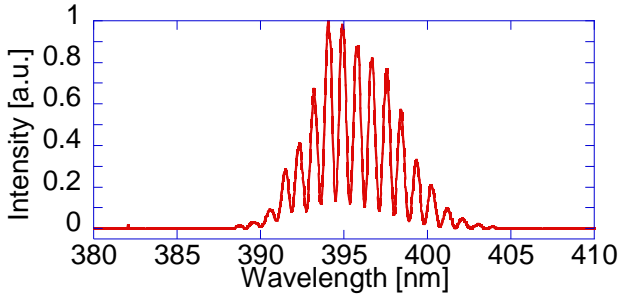


図 23 SPIDER シグナル

τ と $\Omega/2\pi$ はそれぞれ 610fs、5.21 THz とマイケルソン干渉計の出力のスペクトル (図 24) とレプリカパルスのそれぞれ和周波スペクトル (図 25) の解析により求められた。

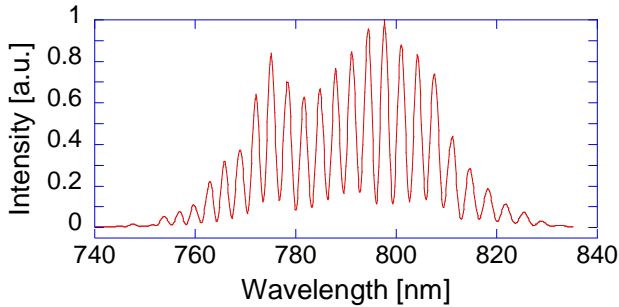


図 24 遅延 τ によるスペクトル干渉

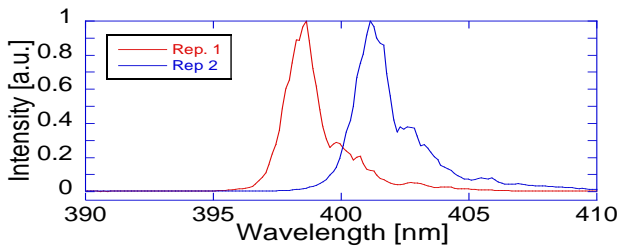


図 25 レプリカパルスの和周波スペクトル

FWHM は赤線で示された位相制御前のパルスで 92fs に対し、青、緑、黒線で示された 1、2、3 回フィードバックしたパルスでは 24-29fs となった。

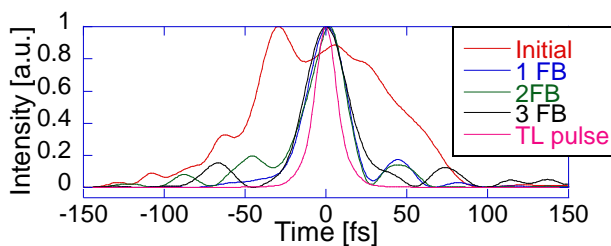


図 26 実時間パルス波形

同一条件下で複数回の測定を繰り返した際のスペクトル位相の測定データを図 26 に示す。

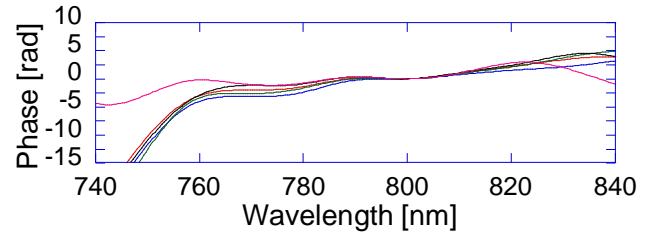


図 27 同一条件下のスペクトル位相

これから、同一条件下であっても例えば波長 780nm では数 rad の位相ゆらぎがあることが分かり、この大きさは、実時間パルスでパルス幅を数 fs 変化させることがわかった。これは、空気伝搬部による分散変化の影響が考えられ、今後パーズもしくは真空化などの対策が必要である。

8. まとめ

超広帯域光発生装置および位相補償光学系の構築を行った。新しい SLM は 300 nm から 1050 nm までの広い光を利用できる。新たに開発した M-SPIDER を用いて 550 nm から 850 nm までのスペクトル位相を測定し 34 fs の超広帯域光を得ることができた。フーリエ限界パルス幅 2.6fs まで圧縮が行かない理由は、広帯域発生部において光の位相を安定に保てていないことが原因だと考えられた。位相検出の高速化を目指した結果、770-830nm の光に対しては、92fs→24fs のパルスの圧縮を行うことができた。この測定においても、スペクトル位相の揺らぎがまだ数 rad あることが明らかになった。

参考文献

- [1] A. M. Weiner, et. al., Opt.Lett. **16**(6), 326-328(1990).
- [2] T. Tanigawa, et. al, Opt.Lett. **34**(11), 1696-1698(2009).
- [3] M. Hirasawa, et. al. , Appl. Phys. B **74** [Suppl], S255-S299 (2002).
- [4] E. Matsubara, et al., Optical Society of America B, **24** , 985-989 (2007)
- [5] C. Rullère, “Femtosecond Laser Pulses Principles and Experiments Second Edition”, Springer
- [6] K. Yamane et al., , Optics Letter **28**, 2258-2260 (2003)