

超広帯域パルスレーザを用いた中赤外短パルス発生，波形整形および増幅

Short pulse laser generation, shaping, and amplification in the mid infrared region
from ultra-broadband laser pulses

伊佐 文宏(M2)

Fumihiko Isa

Abstract

In this report, versatile femtosecond mid infrared pulse generation where the bandwidth, the center wavelength and the pulse shape are variable are achieved using a single supercontinuum light shaped by a 4-f vector pulse shaper and a type-I BBO crystal. The mid infrared pulses are characterized by using the technique of cross-correlation frequency resolved optical gating (XFROG). These femtosecond pulses are amplified by optical parametric amplification in periodically-poled lithium niobate with 800 nm laser as the pump.

1. はじめに

波長 $2\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$ にあたる中赤外領域は多くの有機物質に含まれる官能基の振動モードが存在するため，広帯域で機能性のある超高速コヒーレント光源の開発が望まれている．この中赤外領域においてパルス波形を任意に整形できるフェムト秒レーザを実現するには，光音響空間変調器や光音響位相分散フィルタなどの直接変調方式[1,2]と液晶空間光変調器を用いて波形整形した近赤外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光パルスを間接的に生成するという方法[3]の先行例がある．しかし，前者では分解能の問題があり，後者では 2 波長のレーザ光源が必要となる．本研究では，最初に 2 つの光源を使用することなく，広帯域スペクトルを持つ単一レーザパルス内での差周波混合により中赤外パルス発生と波形整形を行う装置を構築し，その性能を検

証する．希ガス封入中空ファイバにより広帯域化したパルスを 0 分散 4 波形整形器により波形整形を行い，そのパルスを Type I BBO 結晶に入射し，差周波混合を行うことで間接的に波形整形を行う．これにより，コンパクトなセットアップで中赤外パルス発生と波形整形を達成することができる．本方式では，差周波混合を行う 2 つの帯域の群速度分散量および群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およびスペクトル幅を連続的に可変にできるという特徴を有する．また，XFROG を構築し，発生した中赤外パルスを CPA の一部を参照パルスとして用いることで，計測した．次に，強度が弱い中赤外パルスを PPLN 結晶にて光パラメトリック増幅を CPA の一部を励起光として用いることで増幅した．

2. 中赤外パルス発生

2 段階増幅の CPA システムにより増幅された平均パワー $1.0\ \text{W}$ ，時間幅 $50\ \text{fs}$ ，中心波長 $800\ \text{nm}$ ，スペクトル幅 $20\ \text{nm}$ のパルスのうち $500\ \text{mW}$ を焦点距離 $400\ \text{mm}$ のレンズを用いて，コア径が $126\ \mu\text{m}$ ，長さが $40\ \text{cm}$ の中空ファイバに集光させた．

本実験では，広帯域パルス内で差周波混合を行うため， $600\ \sim\ 950\ \text{nm}$ 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 $250\ \text{kPa}$ に設定し，スペクトルを広帯域化させた．この時の発生した広帯域スペクトルを Fig.1 に示す．この中空ファイバ透過後の広帯域レーザパルスは回折格子，凹ミラー，液晶空間光変器，半波長板から成る 4-f 波形整形器によって

位相及び偏光整形を行った。

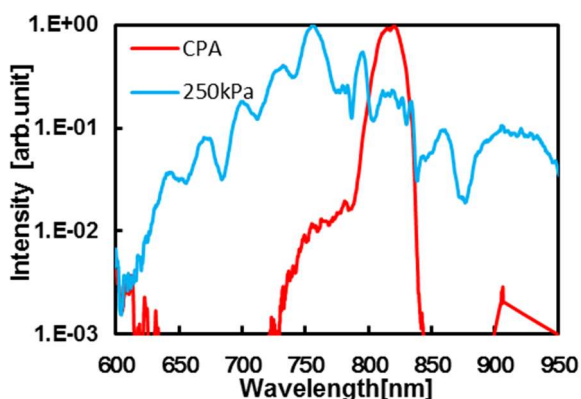


Fig. 1 Spectrum intensity of supercontinuum pulse before and after hollow core fiber.

本波形整形器では広帯域パルスの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。ただし、半波長板を設置したことによる短波長と長波長の間には 4 ps の時間遅延が発生してしまう。これを抑えるために短波長側に偏光を回転させないよう同じ半波長板を設置した。

波形整形器後の広帯域パルスを厚さ 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。

中空ファイバ後の広帯域パルスに負分散を加えることで、中空ファイバ以降に加わった分散が補償した。本実験では、波形整形器で負分散を加え広帯域パルスが FTL になった際にすべての差周波発生 の組み合わせが可能となることから、その条件を広帯域パルスの FTL 化と判断した。実際、この条件下の時にフォトダイオードで中赤外光の強度が最も強くなるようになり、その時に波形整形器で加えた分散量は全体に -500 fs² であった。この時の負分散の変化による中赤外パルスのスペクトル幅の

変化を確認した結果を Fig. 2 に示す。この時の 2 次分散の変化に応じて、中心波長帯が一致するように長波長側の時間遅延を調整した。この計測の結果、広帯域パルスが FTL パルスに近づく、-500 fs² に近づくにつれスペクトルは広帯域化し、それから遠ざかるとさらにスペクトルが狭帯域化していくことがわかった。

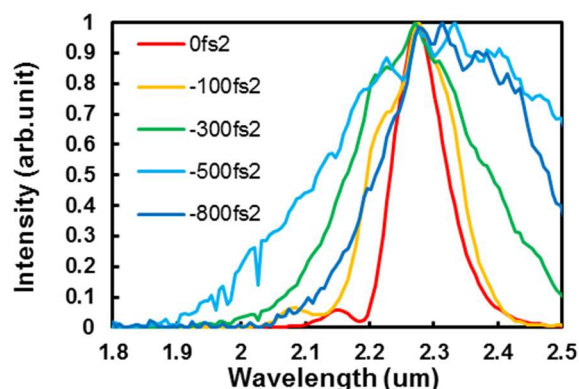


Fig. 2 Mid infrared spectra when various negative GVD were added to the supercontinuum pulse by the 4f-pulse shaper

また中空ファイバ後の広帯域パルスに負分散を加えずに、500 fs² の分散を持った状態の広帯域パルスの長波長側に時間遅延を加えることによって、中赤外パルスを発生させ、長波長側の時間遅延を調整することによって中心波長可変中赤外スペクトルを発生させた。長波長側に 330-380 fs の時間遅延を加えた時に発生した中赤外スペクトルを Fig. 3 に示す。このようにして中心波長可変中赤外スペクトルを得ることができた。

また、このときに発生した中赤外スペクトルと位相は以下の周波数域畳み込み積分を用いて得られる。

$$E_{DFG}(\Omega; \tau, L, \theta) \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \eta E_S(\omega) E_I(\omega - \Omega) \exp[i\{\Phi_S(\omega) - \Phi_I(\omega - \Omega)\}] \cdot \exp\left(i \frac{\Delta k L}{2}\right)$$

この式と Fig. 1 の広帯域スペクトルの強度から、Fig. 3 と同じ波長帯域で発生させるために 2 次分散量を調整し、中赤外スペクトル強度を計算した結果を Fig. 4 に示す。このときの 2 次分散量は 420 fs² となり、実験で与えた 500 fs² よりも小さくなってしまった。

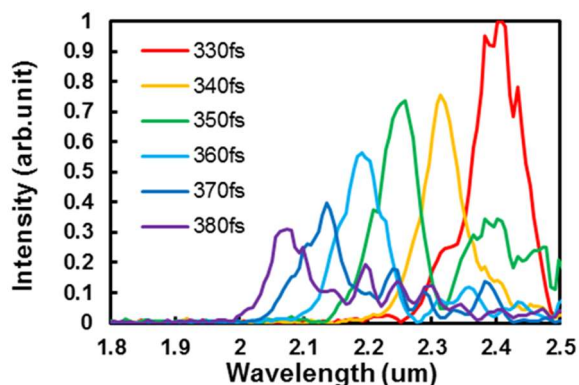


Fig. 3 Mid infrared spectra when various GD were added for the long wavelength band at a 4f pulse shaper.

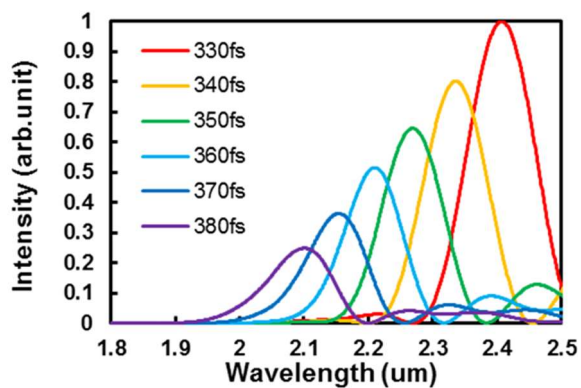


Fig. 4 Mid infrared spectra calculated when various GD were added for the long wavelength band.

Fig. 3 と Fig. 4 からわかるように線形周波数チャープしている広帯域パルスの長波長帯に時間遅延を加えることで実験と同様の波長帯域での中心波長可変の中赤外スペクトルを得ることができ、2.0 ~ 2.5 μm の中心波長可変性を達成した。数値

計算において 2 次分散量の値が変わってしまったのは広帯域中赤外スペクトルを発生させるために 2 次分散のパラメータを細かく調整しなかったことが考えられる。

3. 中赤外パルス計測

発生した微弱な中赤外パルスを計測するために XFROG を構築し、計測を行った。実験セットアップを Fig. 5 に示す。

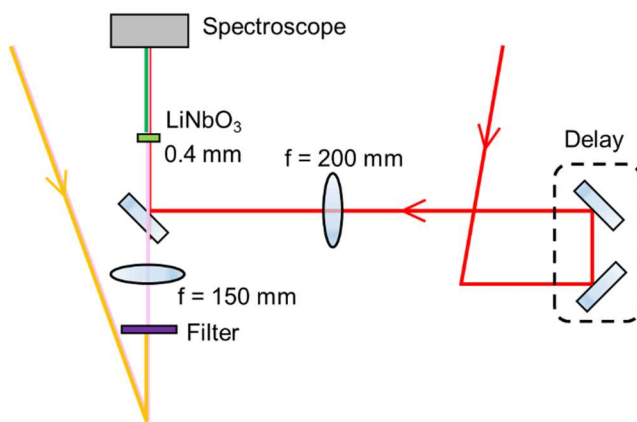


Fig. 5 Experimental setup of XFROG.

中赤外パルスを信号光、CPA パルスの一部を参照光として用いて、0.4 mm、47.6° カットの Type I LiNbO₃ 結晶に非同軸で入射し、和周波発生を行った。ピコモータを用いて、信号光と参照光の遅延時間を操作しつつ、分光器で和周波を計測することで FROG 画像を得ることができる。

本実験では 420 fs² 分散を持った状態の広帯域パルスの長波長側に 410 fs の時間遅延を加えることによって発生させた中赤外パルスを計測した。計測したスペクトル強度と位相を Fig. 6 (a)、時間波形の強度と位相を Fig. 6 (b)に示す。Fig. 6 (a) では、黄色の点線が分光器で計測した強度、青の実線が XFROG により求められたスペクトル強度、赤の実線が位相を表している。Fig. 6 (b)では、XFROG 解析結果を表示しており、青の実線が時間波形における強度、赤の実線が位相を表している。これより、

FWHM が 81 fs となる中赤外パルスを計測することができた。

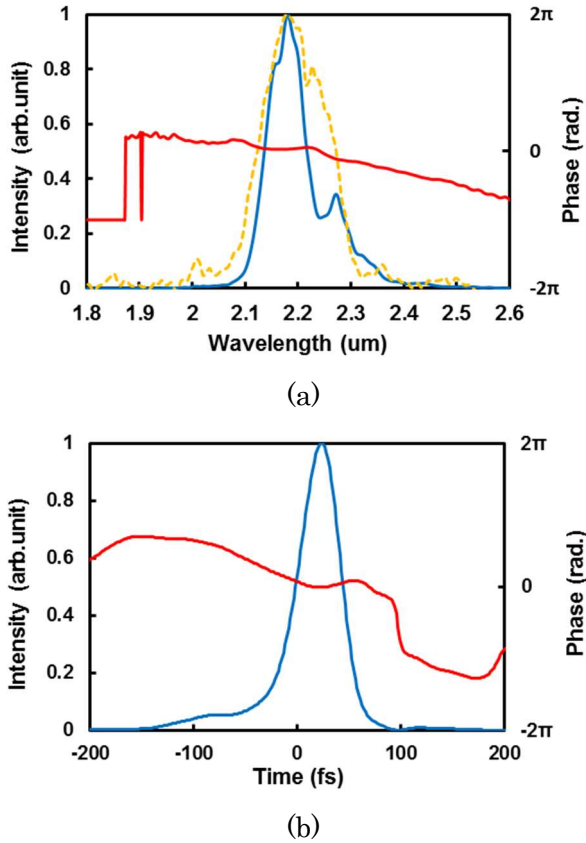


Fig. 6 Measured mid infrared intensity and phase in (a) spectrum domain, and (b) time domain

しかしながら、本研究では FTL の広帯域パルスの差周波混合により発生する広帯域の中赤外パルスの計測を行うことができなかった。それは、結晶の位相整合の影響により、発生する和周波の波長が制限されてしまうからである。そのため、広帯域の中赤外パルスの計測を行うためには結晶を回転させ、発生する和周波を計測すれ必要がある。

4. 中赤外パルス増幅

発生した中赤外パルスを増幅させるために MgO 添加 PPLN 結晶を用いて増幅を行った。PPLN 結晶は疑似位相整合を満たすことにより、複屈折率位相

整合に比べて高い非線形定数を利用することが可能である。本実験の実験セットアップを Fig. 7 に示す。ビームスプリッタを用いて、広帯域パルス内 DFG により発生した中赤外光と CPA 出射後に分けた参照光を同軸で長さ 1.0 mm の MgO 添加 PPLN 結晶に入射し、中赤外パルスを増幅した。

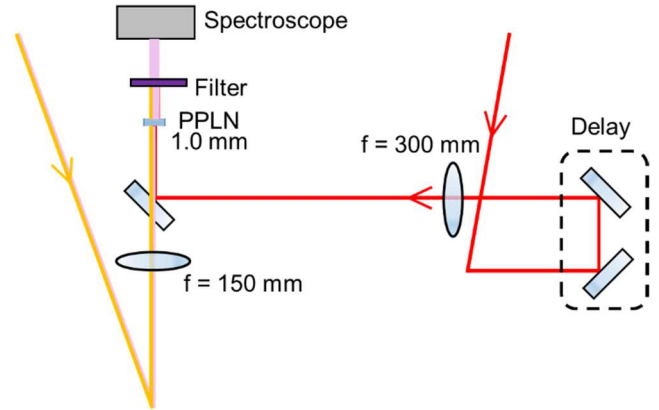


Fig. 7 Experimental setup of mid infrared pulse amplification by OPA.

まず、中赤外パルスを増幅するための PPLN 結晶の反転周期と結晶の温度を計算により求めた。本実験で用いた PPLN 結晶は反転周期が $21.5 \sim 23.0 \mu\text{m}$ の中で $0.25 \mu\text{m}$ 間隔で複数の反転周期を使用できるものであり、結晶の温度はオープンにより $0 \sim 200^\circ\text{C}$ の間で設定することができる。広帯域パルス内差周波混合により発生した中赤外スペクトルを 800nm の励起光増幅するために疑似位相整合の条件を合わせるために結晶の温度を 47°C 、反転周期を $21.5 \mu\text{m}$ として、増幅を行った[5]。

広帯域スペクトル全体に波形整形器で 450 fs^2 の 2 次分散を加えて、FTL 状態に近づけた時の広帯域パルスを用いた差周波混合により発生した広帯域中赤外スペクトルを用いて増幅の確認を行った。CW での公称損傷閾値 10 GW/cm^2 であり、実験的に 20 mW まで実際に損傷が起こらないことを確認しているため、 5 mW の励起パルスを用いて増幅を行った。中赤外パルスと励起パルスを同時に入

射させるためにディレイステージの距離を 35 μm (11.67 fs)の単位でステージを動かし、最適時間遅延を探した. OPA 前後のスペクトルの比較を Fig. 8 に示す. なお, 5 mW の励起パルス単体で PPLN 結晶に入射させた際には, 励起が弱く Optical parametric down conversion (OPDC)による中赤外スペクトルの発生は確認できなかった.

また, この最も増幅した位置での増幅率を Fig. 8 より求めたものを Fig. 9 に示す. 1.8 μm での増幅率が高くなっているのは増幅前の中赤外スペクトルの強度が弱いからである. これより, 5 mW の励起光を用いることで 60 倍の増幅を確認することができた.

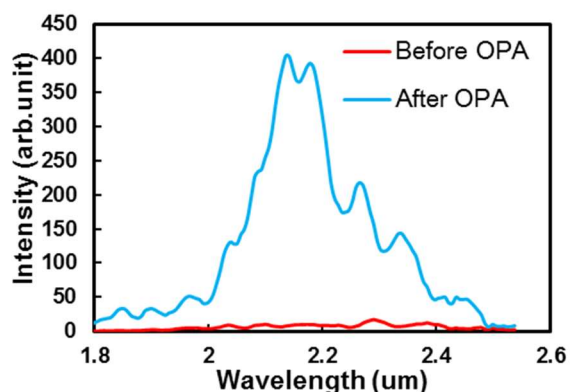


Fig. 8 The spectrum of mid infrared pulses before and after OPA

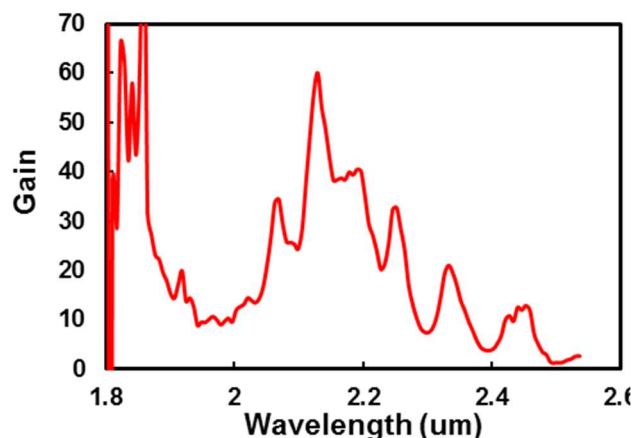


Fig. 9 The gain spectrum of OPA

5. まとめ

線形チャープを持つ広帯域パルス(600 - 950 nm)に対して, 長波長側に時間遅延を加えることにより, 同時刻に来る周波数差が変化するため, 2 μm から 2.5 μm の波長域での中心波長可変中赤外パルスを達成した. また, 帯域パルス全体の分散量と長波長側と短波長側の時間遅延を調整することで帯域幅可変の中赤外パルスを発生させることに成功し, 最大 500 nm(FWHM)に広がる広帯域中赤外パルスを達成した. また, 中赤外パルスの特性を評価するために XFROG を構築し, 時間幅 81 fs (FWHM)となる中赤外パルスを確認した. 本研究で行うことはできなかったが, 結晶を回転させ, 位相整合の影響を考慮し, 複数回の相関波形を取ることで, 広帯域の中赤外パルスの特性を評価することができる. 中赤外パルス増幅では MgO 添加 PPLN 結晶を適切な温度に設定し, ビームスプリッタを用いて同軸で励起光と中赤外光を PPLN 結晶に入射することで増幅を行った. 結晶の温度を 47°C, 反転周期 21.5 μm 部分に 5 mW の励起光を入射することで 60 倍の増幅を確認することができた.

References (書式は OSA 形式)

- [1] S.-H. Shim, D. B. Strasfeld, E. C. Fulmer, and M. T. Zanni, "Femtosecond pulse shaping directly in the mid-IR using acousto-optic modulation," *Opt. Lett.* **31**, 838–840 (2006).
- [2] C. M. Andrea Cartella, Stefano Bonora, Michael Först, Giulio Cerullo, Andrea Cavalleri, "Pulse shaping in the mid-infrared by a deformable mirror," *Opt. Lett.* **39**, 1485–8 (2014).
- [3] M. M. T. Witte, K.L. Kompa, "Femtosecond pulse shaping in the mid infrared by

difference-frequency mixing," *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **76**, 467–471 (2003).

- [4] J. K. S. Linden, H Giessen, "XFROG- A New method for Amplitude and Phase Characterization of Weak Ultrafast Pulses," *Phys. Status Solidi B* **206**, 119–124 (1998).
- [5] O. Gayer, Z. Sacks, E. Galun, and A. Arie, "Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃," *Appl. Phys. B* **91**, 343–348 (2008).