

広帯域光内差周波混合で発生した中赤外光パルスの波形計測

Measurement of Mid Infrared Laser Pulses Generated by Difference Frequency Mixing in a Supercontinuum Pulse

肥田 遼平 (M1), 鈴木敬和 (M2), 山口勇輝 (B4)

Ryohei Hida, Takakazu Suzuki, and Yuki Yamaguchi

Abstract

In this report, we measured the waveform of the mid-infrared (MIR) laser pulse. MIR laser pulse was generated through difference frequency mixing (DFM) using a single supercontinuum (SC) pulse. By controlling the spectral phase of the SC pulse using a liquid crystal spatial light modulator (LC-SLM), our method can arbitrarily adjust the center wavelength, bandwidth, and pulse shape of the MIR pulse.

1. はじめに

中赤外領域(波長 $2\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$)のレーザー光は、その領域内に多くの有機物質に含まれる振動モードが存在するため、利用価値が非常に高い。実際、分子振動モードの分光計測や分子の構造変化の計測[1]や分子応答の制御[2], プラズモン応答の計測[3]など、幅広い分野で利用されており、任意のパルス整形を可能とする超高速コヒーレントな中赤外レーザー光源の開発が望まれている。本研究では、広帯域スペクトルを有する単一レーザーパルス内での差周波混合により中赤外光パルスを発生させ、その発生した中赤外光パルスを、XFROG法を利用して波形計測を行なった。本手法では、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量を波形整形器によって調整することで、発生する中赤外光パルスの中心波長およびスペクトル幅を任意に変化できるという特徴を有する。

2. 実験装置

本研究で使用する実験装置を Fig. 1 に示す。実験装置は(a)広帯域光発生、(b)波形整形、(c)中赤外光

発生部の3部から成る。

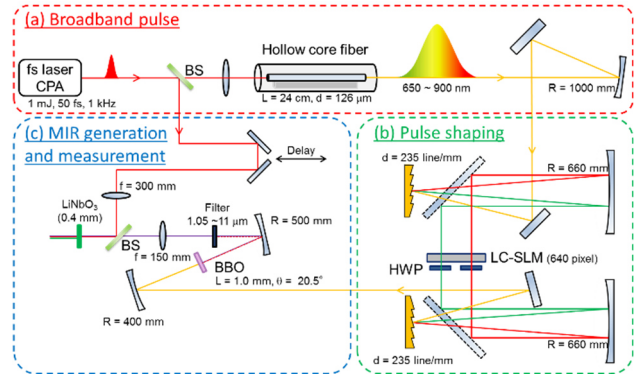


Fig. 1 Schematic of MIR pulse generation. (a) Broadband pulse generation, (b) Pulse shaping, and (c) MIR pulse generation.

本研究で用いる光源は、モードロック Ti:Sapphire レーザ (Coherent, Mira) をチャープパルス増幅器 (CPA : Chirped pulse amplifier) により増幅したフェムト秒レーザーパルスである。このフェムト秒レーザーパルス(平均出力 1.1 W, 繰り返し周波数 1 kHz, パルス幅(FWHM)50 fs)のうち 500 mW を、焦点距離 400 mm のレンズを用いてコア径が $126\ \mu\text{m}$, 長さが 24 cm の希ガス封入中空ファイバ (HCF : Hollow core fiber) へ入射させることで、広帯域光パルスを発生させた。ここで、中空ファイバの透過率を上昇させるため、差動排気によって中空ファイバ内に圧力勾配を持たせる装置を構築した[4]。また、中空ファイバへ入射するビームは位置の検出器とピエゾミラーによるフィードバック制御によって安定化させた。中空ファイバには 400 kPa の Ar ガスが封入され、自己位相変調 (SPM : Self phase modulation) によって広帯域光パルスを発生させた。発生した広帯域光パルスを Fig. 2 に示す。ここで、広帯域光パ

パルスの波形計測には SPIDER を用いた。Fig. 2 より波長 650 nm から 900 nm に渡る時間幅 250 fs (FWHM) の広帯域光パルスが計測された。この広帯域スペクトル位相から群速度分散値を算出すると 500 fs^2 となった。また、中空ファイバ出射後の広帯域光パルスのパルスエネルギーは $150 \mu\text{J}$ である。

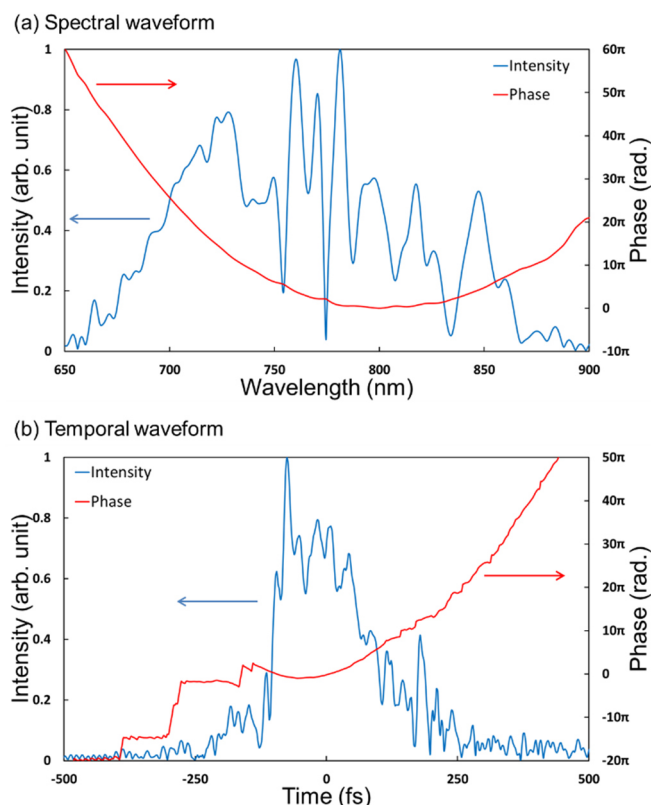


Fig. 2 Spectral and temporal waveform of SC pulse. (a) spectral waveform, and (b) temporal waveform. A blue curve is intensity and a red curve is phase of the SC pulse measured by SPIDER.

次に、この中空ファイバ透過後の広帯域光パルスは回折格子、凹ミラー、半波長板、液晶空間光変器 (LC-SLM: Liquid crystal spatial light modulator) で構成される 4-f 波形整形器によって位相及び偏光整形される。まず、入射した広帯域光パルスは格子間隔 235 /mm の回折格子によって角度分散が加えられる。その後焦点距離 660 mm の凹ミラーによ

って平行光となり、フーリエ面に配置した LC-SLM によって位相整形される。また本研究では、広帯域光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、LC-SLM 後に半波長板を設置し、これにより偏光整形を行なう。

その後、広帯域光パルスを厚さ 1 mm の Type-I BBO 結晶へ集光し、差周波混合による中赤外光パルス発生を行なった。上述したように、本手法では、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量を波形整形器によって調整することで、発生する中赤外光パルスの中心波長およびスペクトル幅を任意に変化できる。

その後、中赤外光パルスを XFROG 計測により波形計測を行なった。XFROG では、中赤外光パルスを信号光、あらかじめ分岐しておいた CPA により増幅したフェムト秒レーザパルスを参照光として用い、厚さ 0.4 mm , 47.6° カットの Type I LiNbO_3 結晶に非同軸で入射し、和周波混合を行なうことで計測した。用いる非線形結晶を回転させることで広帯域の位相整合を満たし、広帯域波形計測を行なうことができる[5]。

3. 実験結果

3.1 中赤外光パルス発生

発生させた中赤外光パルスのスペクトルを Fig. 3 に示す。波形整形器によって広帯域光パルスの位相を操作することで任意の中赤外光パルスを生成できる。Fig. 3(a)に示すのは、波形整形器によって群速度分散量を操作することで、発生する中赤外光パルスの帯域幅が変化する様子である。SPIDER 計測から、この広帯域光パルスは 500 fs^2 の 2 次分散を持っていることが分かっているため、波形整形器によって -500 fs^2 の 2 次分散値を加えることで広帯域パルスが FTL パルスとなり、発生する中赤外光パルスも最も広帯域な状態となる。また、Fig. (b)に示

すのは、波形整形器によって群遅延量を操作することで、発生する中赤外光パルスの中心波長が変化様子である。長波長側に 330 から 380 fs の時間遅延を加えることで中赤外光パルスの中心波長のシフトを確認した。

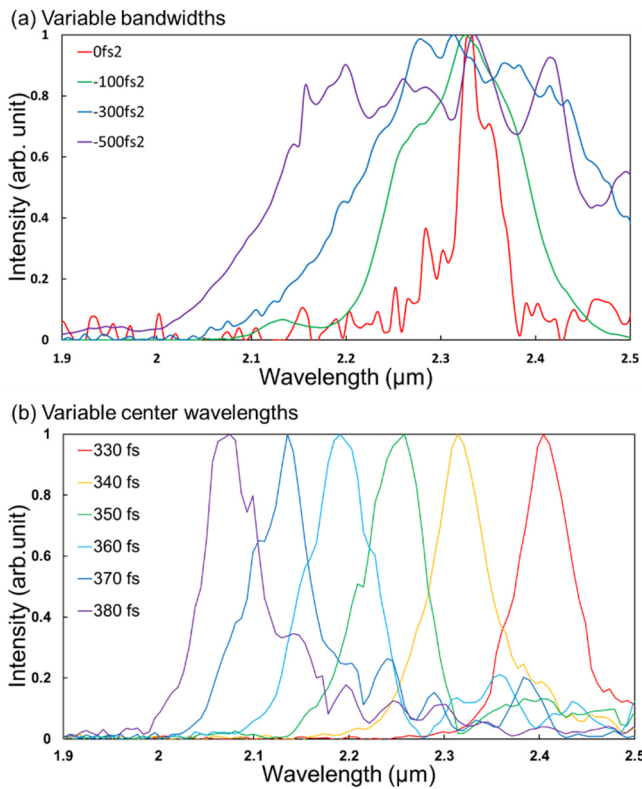


Fig. 3 Spectra of 2- μm pulses with variable bandwidth and center wavelength. (a) variable bandwidths and (b) variable center wavelengths.

3.2 中赤外光パルス波形計測

中赤外光パルスを XFROG 法により波形計測した。本実験では、長波長帯側に 360 fs の時間遅延を加えることで発生した波長 2.2 μm 帯の中赤外光パルスの波形計測を行なった。2.2 μm の中赤外光と 800 nm の近赤外光による和周波混合であるので、590 nm 付近に和周波混合光が発生する。計測では Delay はピコモータを用いて 10 fs ずつ 900 fs を走査し、結晶は 0.3 度ずつ 2.1 度分回転させ計測した。計測した和周波光スペクトルの例を Fig. 4 に

示す。

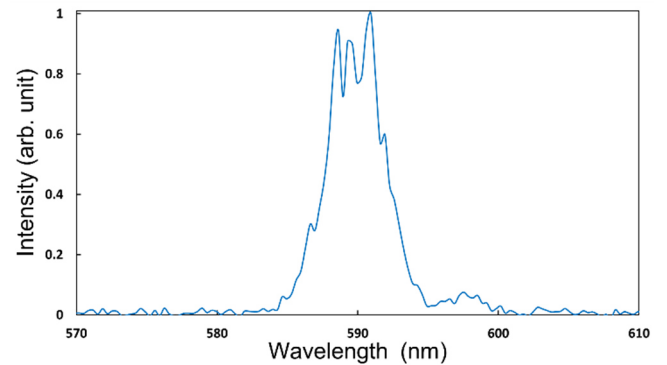


Fig. 4 Measurement example of SFG pulse spectrum.

その後、計測したすべての和周波光スペクトル強度を足し合わせることで、広帯域な FROG トレースを得た。取得した FROG トレースを Fig. 5 に示す。

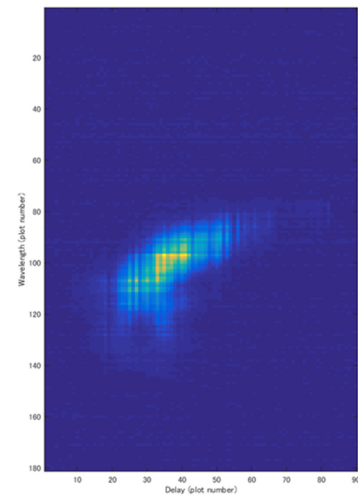


Fig. 5 XFROG trace.

その後、取得した XFROG トレースから XFROG アルゴリズムにより中赤外波形を算出した。波形計測結果を Fig. 5 に示す。これにより、時間幅が 120 fs (FWHM) となる中赤外光パルスが計測された。また FROG エラーは 2.4 %であった。

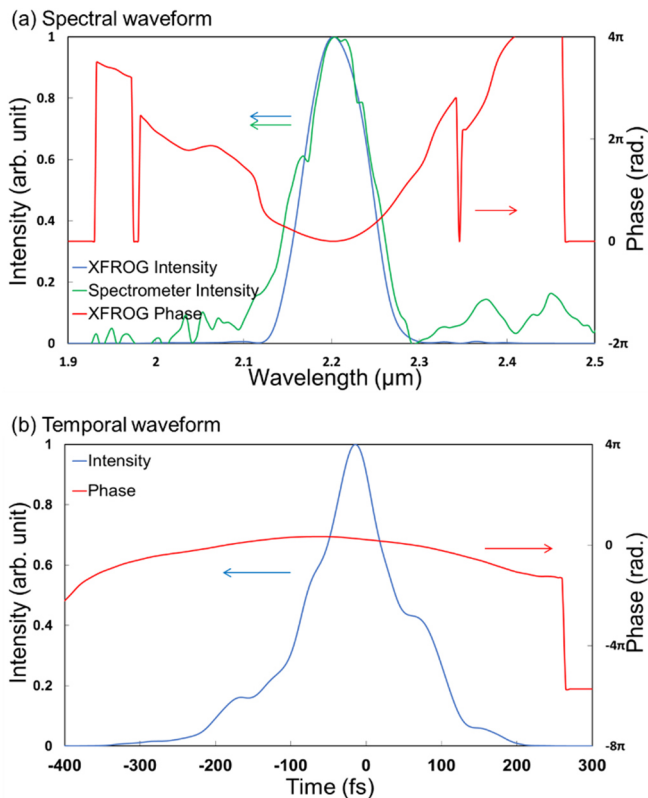


Fig. 5 Spectrum (a) and time history (b) of 2- μm pulse. A blue curve is intensity and a red curve is phase of the SC pulse measured by XFROG.

4. 結論

本研究では、単一広帯域光パルス内での差周波混合により中赤外光パルスが発生させ、その発生した中赤外光パルスの波形計測を、XFROG法を用いることによって可能とした。本手法を用いることで波形整形器によって位相を操作することで、任意の中心波長、スペクトル帯域幅を有する中赤外光パルスが発生させることが可能となった。XFROG計測より、時間幅 120 fs (FWHM)となる中赤外パルスが確認された。

References

- [1] E. T. J. Nibbering, and T. Elsaesser, “Ultrafast Vibrational Dynamics of Hydrogen Bonds in the Condensed Phase,” *Chem. Rev.* 104, 1887

- (2004).
- [2] L. Liu, and H. J. Bakker, “Infrared-Activated Proton Transfer in Aqueous Nafion Proton-Exchange-Membrane Nanochannels,” *Phys. Rev. Lett.* 112, 258301 (2014).
- [3] H. Matsui, Y. L. Ho, T. Kanki, H. Tanaka, J. J. Delaunay, and H. Tabata, “Mid - infrared Plasmonic Resonances in 2D VO₂ Nanosquare Arrays,” *Adv. Opt. Mater.* 3, 1759 (2015).
- [4] A. Suda, M. Hatayama, K. Nagasaka, and K. Midorikawa, “Generation of sub-10-fs, 5-mJ-optical pulses using a hollow fiber with a pressure gradient,” *Appl. Phys. Lett.* 86, 111116 (2005).
- [5] W. Wasilewski, P. Wasylczyk, and C. Radzewicz, “Femtosecond laser pulses measured with a photodiode - FROG revisited,” *Appl. Phys. B Lasers Opt.* 78, 589 (2004).