

周波数チャープパルスとスペクトラルフィルタリングを用いた

全光学超高速 25 枚連写イメージング

All-optical Ultrafast 25-frame Burst Imaging using a Frequency-chirped Pulse and Spectral Filtering

鈴木 敬和 (M2), 肥田 遼平 (M1), 山口 勇輝 (B4)

Takakazu Suzuki, Ryohei Hida, Yuki Yamaguchi

Abstract

We demonstrate and improve SF-STAMP (STAMP utilizing spectral filtering) where we use a newly made 25-beam generating DOE which generates 5×5 beams. A BPF (center wavelength of 830 nm and a bandwidth (2.2 nm (FWHM))) enables to select bandwidth of ~ 40 nm. Combining a microscopic imaging system with the SF-STAMP, an ultrafast crystalline-to-amorphous phase transition of $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) induced by a femtosecond laser excitation pulse is captured. Moreover, to utilize broadband spectra of a probe pulse ranging from 650 to 900 nm, we construct a 25-BPF-array where each BPF selects different band. The entire band width selected by the BPF-array is extended to the range of 660–810 nm. Using broadband frequency-chirped pulses ranging at 650–950 nm laser, ablation processes with a ~ 100 ps time window is measured.

1. はじめに

従来の CCD や CMOS などのイメージセンサーを用いた高速度カメラ[1-3], あるいはパルスレーザと時間領域のフーリエ変換を応用した Serial Time-Encoded Amplified Microscopy (STEAM)[4-7] に代表される Time-stretch imaging (レーザパルスの時間幅で露光時間, 繰り返し周波数でフレームレートが決定) を使用することで連続撮影が可能であるが時間分解能の限界はナノ秒領域である. ナノ秒以下の超高速現象の撮影[8]には, 超短パルスレー

ザを用いたポンプ・プローブ法による時間分解計測 [9,10] が広く利用されているが繰り返し計測が必要であるため再現性に乏しい現象をシングルショットで撮影することはできない. この時間領域での単発撮影を実現する手法として, 単一の線形周波数チャープパルスと光学的フーリエ変換を応用した超高速 2 次元連写撮像法 Sequentially Timed All-optical Mapping Photography (STAMP)[11,12] が考案された. チャープパルスを照明光として利用し「時間-波長」の対応関係を用いたシングルショットイメージングは以前から報告されているが, 断層計測[13] や 1 次元計測[14] であった. STAMP では, 「時間-波長」に加え「波長-空間」の対応関係で結ばれた画像情報を時空間的に分解することで, チャープパルスの時間幅を計測時間窓とする時間分解能可変 2 次元高速連写撮影を実現している. しかし, STAMP では, 空間分解を実現するペリスコープアレイ構造により最大連写枚数は現状では 6 枚に制限されている.

本研究では, 回折光学素子 (Diffractive optical element: DOE) と波長選択バンドパスフィルタ (Band-pass filter: BPF) を 4f 結像光学系に組み合わせたイメージング光学系に線形周波数チャープパルスを用いることで実現した STAMP の改訂版に当たる Sequentially Timed All-optical Mapping Photography utilizing Spectral Filtering (SF-STAMP) [15,16] の性能拡張 (同時撮影枚数増加・計測時間窓拡大) を使用する回折光学素子 (DOE)・波長選択バンドパスフィルタ (BPF)・光源の波長帯域幅の 3

つの観点から行った。実証実験として、ピコ秒領域では、カルコゲナイド系光相変化物質 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) のフェムト秒レーザ励起による結晶相からアモルファス相への超高速相変化過程のシングルショット 25 枚連写計測を、サブナノ秒領域に関しては、フェムト秒レーザによるガラスのアブレーション過程の観測を行った。

2. SF-STAMP の原理

2.1. 多波長イメージ同時計測

最初に STAMP による超高速連写イメージングを行うために必要な要素を説明する。STAMP では線形周波数チャープパルスを利用し被写体の情報を取得している。すなわち、チャープパルスでは瞬時周波数ごとに到着する時刻が異なることを利用し、波長情報にこの時刻を対応させることで、超短パルスの時間幅の間に起きる超高速現象の時間変化を観測できる。ただし、この周波数チャープパルスの時間軸上に並んだ波長情報を 2 次元イメージ、つまり、空間上に分離されたマルチスペクトラルイメージとして単一ショットで取得する必要がある (イメージセンサーの露光時間は STAMP の時間分解能には無関係である)。したがって、STAMP による超高速 2 次元連写撮影は、単一ショットによるマルチスペクトラルイメージング系 [17,18] を構築し、線形周波数チャープパルスを利用することで実現される。マルチスペクトラルイメージの数が、STAMP における連写枚数に対応する。オリジナルの STAMP 装置では、6 個のペリスコープをアレイ状に並べた特殊な $4f$ 光学系 (スペクトラルシェイパー) を構築することで 6 枚のマルチスペクトラル像を取得した [19]。超高速イメージング計測は行われていないが、スライスマイラーを用いた 5 枚のマルチスペクトラルイメージングを用いた STAMP 手法も報告されている [20]。

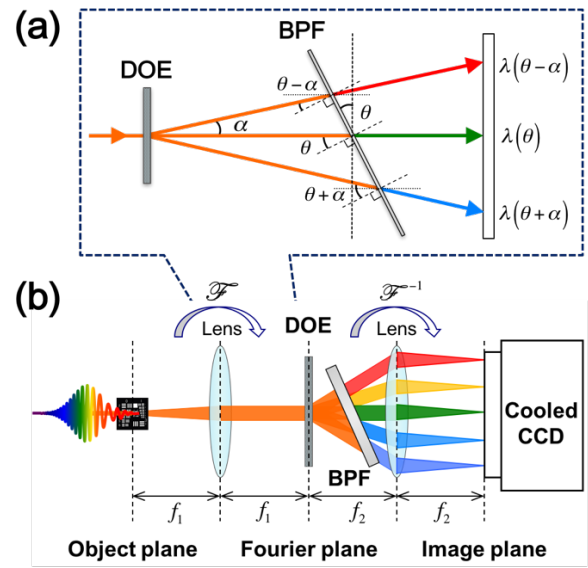


Fig. 1 (a) Schematic of spatially and spectrally resolving by a DOE and a BPF, (b) Schematic setup of SF-STAMP system.

自由度の高い連写枚数の増加手法としてスペクトラルフィルタリングによる方法でマルチスペクトラル像を取得する SF-STAMP について説明する。SF-STAMP における波長成分の空間分解は、Fig. 1 (a) に示すように DOE と BPF によって行われる。これは、超短パルスのシングルショット 2 次元波形計測法である Spatially and Temporally Resolved Intensity and Phase Evaluation Device: Full Information from a Single Hologram (STRIPED FISH) [21–23] の手法から得た着想であり、これにより、ペリスコープアレイを用いたマルチスペクトラルイメージング系と比べ、枚数の向上だけでなく、大幅な簡素化・小型化を実現した。SF-STAMP 光学系は Fig. 1 (b) に示すような 2 枚のレンズ、DOE、BPF から構成される $4f$ 結像光学系である。Object 面のイメージが 1 枚目のレンズ (焦点距離 f_1) で光学的にフーリエ変換され、DOE を配置する面がフーリエ面となる。その後、DOE で複製されたアレイビームは、ドット状のパターンを形成する様な回折角をもち空間

上を伝搬する。これらのアレイビームは、光軸に対して傾けて配置した BPF に異なる角度で入射する。誘電体多層膜からなる干渉バンドパスフィルタの入射角に依存した波長選択特性を利用することで異なる波長に選択された後に、2 枚目のレンズ (焦点距離 f_2) により光学的に逆フーリエ変換される。その結果、Image 面に配置したイメージセンサーの受光面上に空間的に分散した 2 次元のマルチスペクトラルイメージが同時に結像される。Fig. 2 に 25 枚 SF-STAMP 光学系を用いて計測した USAF テストターゲットのマルチスペクトラルイメージを示す。なお、本実験系では 25 個のドットパターンを形成する DOE (回折角 25.6° , HOLOEYE 社製) と BPF (中心波長 830 nm , バンド幅 2.2 nm , IRIDIAN 社製) を $f_1=f_2=50\text{ mm}$ の $4f$ 結像光学系に組み合わせることでシングルショットの波長帯域幅 40 nm ($825\sim 785\text{ nm}$) のシステムを構築した。検出イメージセンサーには受光面のサイズが $24.0\text{ mm}\times 36.1\text{ mm}$, 4872×3248 ピクセル (ピクセルサイズ $7.4\text{ }\mu\text{m}\times 7.4\text{ }\mu\text{m}$) の大口径冷却 CCD カメラ (BITLAN 社製, BU-55LN) を用いた。

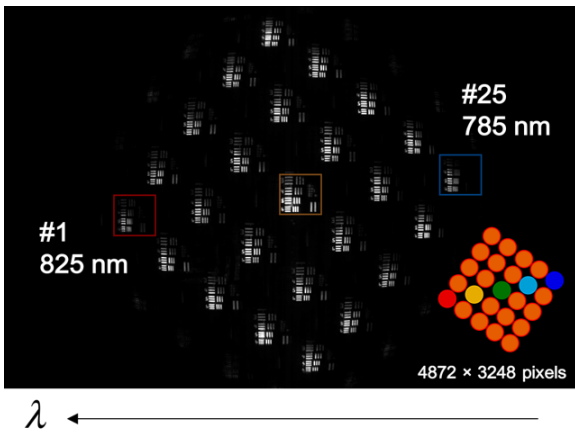


Fig. 2 A multispectral image captured by SF-STAMP system which contained 25 different spectral band images.

照明光に線形周波数チャープパルスを用いることで、イメージセンサー上で結像されるマルチスペ

クトラルイメージは時間差の付いたスナップショット画像となり、BPF で選択される長波長端から短波長端までの波長帯域幅 $\Delta\lambda_{\text{window}} = \lambda(\theta-\alpha) - \lambda(\theta+\alpha)$ に対応する時間幅を計測時間窓とする、シングルショット超高速バースト撮影が実現される。このとき、フレーム数は DOE から分岐するアレイビームの数により決定される。したがって、25 枚より増加することも可能である。このように、本手法では、1 つの $4f$ 光学系で時間-空間写像を行えるためシステムが簡素化できる。また、使用する BPF の帯域および傾きを調整することで容易に選択波長帯域を可変にできる。一方で欠点としては、ビームの複製および波長フィルタリングを行うため、ペリスコープを用いる方法に比べてプローブ光の光利用効率が低下する。また、STAMP, SF-STAMP 共にチャープパルスのプローブ光が必要なため、Compressed Ultrafast Photography (CUP)[24-27] のようなパッシブな手法とは異なり蛍光などの自発光現象の超高速撮影はできない

2.2. 時間分解能

SF-STAMP における時間分解能は、STAMP 同様の設計が可能である[28]。なお、理論的な最適パラメータは文献 28 に詳しい。Fig. 3 に SF-STAMP システムで分解される各波長成分の波長幅と時間幅の対応関係を示す。

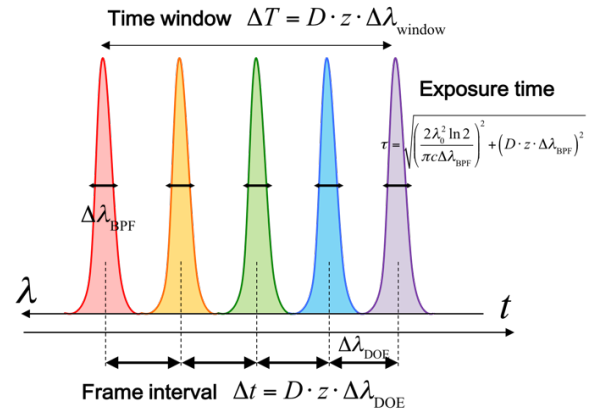


Fig. 3 Relationship of spectral and time widths of SF-STAMP.

SF-STAMP の 1 ショットで得られる全体の波長帯域幅を $\Delta\lambda_{\text{window}}$, BPF で各ビームが波長選択されるスペクトル幅を $\Delta\lambda_{\text{BPF}}$, 選択された各波長間の波長差を $\Delta\lambda_{\text{DOE}}$ とすると, 計測時間窓 ΔT は, 式(1) で表現される. なお, $\Delta\lambda_{\text{window}} = \lambda(\theta+\alpha) - \lambda(\theta-\alpha)$ である.

$$\Delta T = D \cdot z \cdot \Delta\lambda_{\text{window}} \quad (1)$$

ただし, D は分散パラメータ, z は分散媒質の長さである. したがって, 計測時間窓は, プローブ光に付加する線形周波数チャープ量 (2 次分散量) $D \cdot z$ と $\Delta\lambda_{\text{window}}$ の値により可変となる. また, 各波長イメージの露光時間 τ は, 式(2)で表現される. ここで, λ_0 は光源の中心波長, c は真空中における光速である.

$$\tau = \sqrt{\left(\frac{2\lambda_0^2 \ln 2}{\pi c \Delta\lambda_{\text{BPF}}}\right)^2 + (D \cdot z \cdot \Delta\lambda_{\text{BPF}})^2} \quad (2)$$

式(2)は, BPF で各ビームが波長選択されるスペクトル幅が狭いほど各フレームショットの時間分解能は上がる一方で, スペクトル幅が狭すぎるとフーリエ変換の関係で時間幅が広がることを示している.

フレーム間隔 Δt は, 各波長間の遅延時間, すなわち波長差 $\Delta\lambda_{\text{DOE}}$ で決定され, 式(3)のようになる. なお, $\Delta\lambda_{\text{DOE}}$ は DOE と BPF の配置により変化するので必ずしも等間隔ではないことを注意しておく.

$$\Delta t = D \cdot z \cdot \Delta\lambda_{\text{DOE}} \quad (3)$$

以上のように, 分散量 $D \cdot z$, 全体の波長選択幅 $\Delta\lambda_{\text{window}}$, 波長選択バンドパスフィルタのバンド幅 $\Delta\lambda_{\text{BPF}}$ を適切に設定することで任意の時間分解能

と時間窓, イメージングのタイミングを設計可能である.

3. SF-STAMP による超高速イメージング

SF-STAMP 光学系を用いた実験で観測されたピコ秒領域の現象の計測結果を示す. 実験は Fig. 4 に示すシングルショットのポンプ・プローブ法を用いて行った. 光源には, チャープパルス増幅されたレーザパルス (繰り返し周波数 1 kHz, 平均出力エネルギー 850 μJ , 中心波長 800 nm, スペクトル幅 20 nm (FWHM), パルス幅 50 fs (FWHM)) を使用し, 中空ファイバ (Hollow core fiber: HCF) 入射前に, ポンプ光とプローブ光の 2 つに分けた. STAMP では超短パルスのスペクトル成分を撮影枚数に合わせて分割する. 多くのフレームを得るためには, 照明光となる超短パルスの帯域は広いほうが好ましい. そこで, プローブ光は Ar ガスを封入した中空ファイバ (コア径 126 μm) に集光させ自己位相変調により広帯域化を行い, 光学ガラス (N-SF11 および BK7) を伝搬させることで線形周波数チャープを付加させた. 観察部分の顕微光学系と SF-STAMP 光学系は暗室内に構築した. 本実験ではシングルパルスによる単発撮影を行うのでビームスプリッターの手前に設置した光学チョップとシャッターにより 1 パルスだけを切り出してシングルショット撮影を行った.

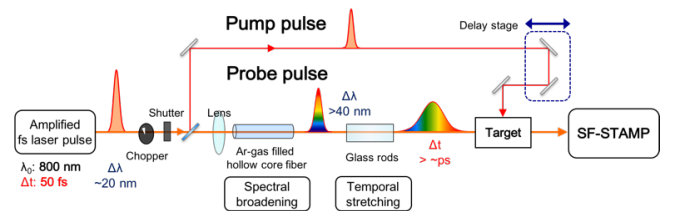


Fig. 4 Schematic setup of single-shot pump-probe measurement by SF-STAMP.

3.1. フェムト秒レーザー励起による相変化材料の超高速相変化過程の観測

STAMP による単一ショットでの超高速計測が求められる不可逆な現象としてカルコゲナイド系光相変化物質 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) の結晶からアモルファスへの相変化過程を観測した。GST は、結晶状態では反射率が高く、アモルファス状態では反射率が低下し透過率が上昇する。この性質は DVD ディスクなどの光メモリに利用されている[29]。DVD などの情報の読み出し、書き出しには CW レーザによる熱的過程による相変化を利用しているが、近年、フェムト秒レーザー励起による非熱的過程による超高速な結晶からアモルファスへのサブピコ秒オーダーの超高速相変化が報告されている[30–36]。これは、超短パルスによる、価電子帯 (結合軌道) の電子を伝導体 (反結合軌道) の電子に励起することで Ge の弱い結合が切れ、6 配位から 4 配位の方方向へ構造変化するためと考えられている。この速度が Ge の格子振動の周期 (約 3.5 THz) 程度であり、サブピコ秒の現象である。ポンプ・プローブ法などの時間分解計測による方法により、透過率などの光学特性の変化が計測されているが、このような超高速な時間スケールにおけるシングルショットの 2 次元イメージの計測例は未だ報告されていない。まさに、STAMP の手法の利用が期待される対象である。Fig. 5 に実験に使用した GST サンプル (2.5 cm 角, SiO_2 保護膜 (10 nm) / 結晶 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (10 nm) / SiO_2 基板 (0.3 mm) から構成) と光学顕微鏡で観察したサンプル表面の様子を示す。GST では結晶部分の反射率が高く、アモルファス部分では透過率が高いので透過型の光学顕微鏡では、結晶部分が暗く、アモルファス部分が明るくコントラストの付いたイメージとなる。

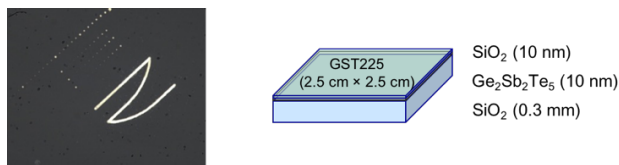


Fig. 5 Microscopic image of GST sample and its structure.

Fig. 6 にフェムト秒レーザー励起によるシングルショットポンプ・プローブ実験系を示す。相変化を引き起こすために必要なフルエンスは、約 20 mJ/cm^2 であり、対物レンズ ($\times 20$, $\text{NA} = 0.40$, OLYMPUS 社製, LMPLFLN20x) を用いてプローブ光と同軸の反対側からポンプ光を集光した。なお、ポンプ光は第二高調波 (波長 400 nm) に変換してプローブ光の波長帯域と重ならないような条件にした。偏光についても直交するように調整した。GST の相変化は、強度変化のみを観測するので透過型の顕微光学系を構築し、プローブ光の強度は、プローブ自体で相変化が起きない閾値以下に設定した。ガラスのような材料ではサンプルの変化がプローブ光の強度に対して敏感ではないので十分に利用できるが、相変化材料では、プローブ光の強度に注意が必要である。また、GST サンプルからの反射光による迷光の影響を排除するためにサンプルはわずかに傾けて配置した。

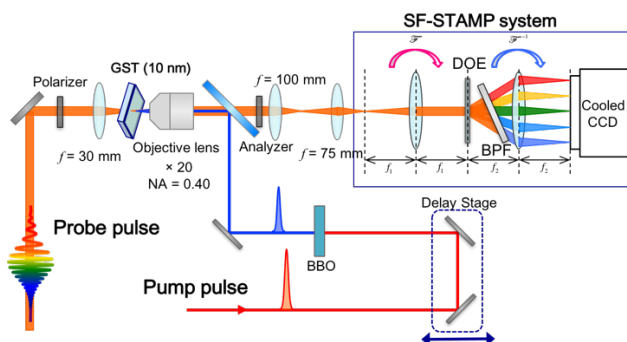


Fig. 6 Experimental setup of ultrafast crystalline-to-amorphous phase transition in GST.

Fig. 7 と Fig. 8 に 5 枚 SF-STAMP と 25 枚 SF-STAMP によるシングルショット連写計測結果を示す. プローブの広帯域パルスには光学ガラスを伝搬させることで $D \cdot z = 0.082$ (ps/nm) の線形チャープを加えたので 25 枚の合計の時間窓は 3.3 ps, 平均フレーム間隔は 133 fs (7.52 Tfps 相当), 平均露光時間は 465 fs である. なお, 露光時間がフレーム間隔より大きいのはフーリエ変換による影響である. 各波長イメージは 450×355 ピクセルであり, 結果に示した画像はいずれも変化前との差分を取り, コントラストを調整したものである.

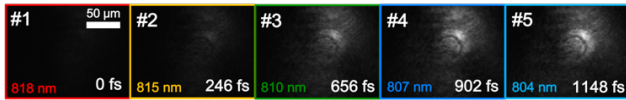


Fig. 7 Measured images of crystalline-to-amorphous phase transition in GST by 5-frame SF-STAMP (single-shot time window of 1.1 ps with the frame intervals of 287 fs).

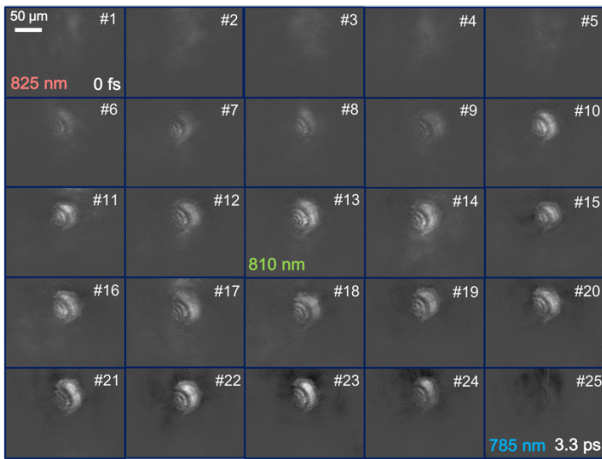


Fig. 8 Measured images of crystalline-to-amorphous phase transition in GST by 25-frame SF-STAMP (single-shot time window of 3.3 ps with the frame intervals of 133 fs).

上記の実験結果より, 励起後約 600 fs 経過した辺り (6 フレーム目) から透過率が上昇し明るく映るアモルファスマークが観測された. 先行研究で報告されている時間スケールに一致する結果であり, 1 ショットでの 2 次元計測としては現在のところ STAMP 法のみが捉えることができる結果である

3.2. バンドパスフィルタアレイの構築

SF-STAMP による計測時間窓は, 分散量と波長帯域幅で決定される. 25 ビーム分岐 DOE を用いることにより 1 ショットで利用できる波長帯域幅は 40 nm まで拡大した. しかし, 単独の BPF では広帯域線形周波数チャープパルスの周波数成分を存分に利用できていない. 式(1)に示すように, 波長帯域幅が拡大することで計測時間窓は, 少ない分散量で拡大することができる利点がある. そこで, 波長選択幅からの時間窓の拡大という観点から, 複数の BPF を用いた BPF アレイを作製し 25 ビームの波長を個々に選択することで波長帯域幅の拡大~150 nm (810 nm~666 nm) を目指した.

希ガス封入中空ファイバ内における自己位相変調により広帯域化したプローブパルスの帯域 (810 nm~650 nm) を活用するために, Fig. 9 に示す BPF アレイを構築した. なお, 図中の上段はビームの入射角, 下段は透過波長を表す.

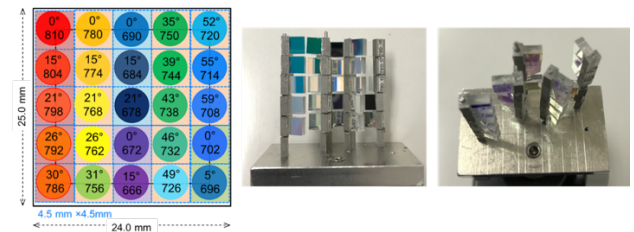


Fig. 9 Schematic of 25-beam selecting BPF-array structure.

これは, 4.5 mm 角の波長選択バンドパスフィルタを 2 次元に配置したものであり, 使用したフィルタは, Semrock 社製 LL01-810 (中心波長 810 nm, スペクトル幅 2.1 nm)×5, Semrock 社製 LL01-780

(中心波長 780 nm, スペクトル幅 3.0 nm)×13, Semrock 社製 FF01-700/13 (中心波長 700 nm, スペクトル幅 13 nm)×2, Semrock 社製 FF01-690/8 (中心波長 690 nm, スペクトル幅 8 nm)×3, Semrock 社製 LL01-671 (中心波長 671 nm, スペクトル幅 2.6 nm)×2 の 25 枚である. 透過波長は, 各 BPF への入射角を変えることで調整を行った. 広帯域光源を利用する場合は, DOE の波長依存性を考慮する必要があり, 波長 810 nm の光と波長 660 nm の光では回折広がり角が異なるため, BPFs アレイの平面内に所望の波長成分が伝搬する様に光軸方向の奥行きを調整した (左の列から順に DOE から 62 mm, 65 mm, 73 mm, 67 mm, 70 mm の位置に配置). Fig. 10 に構築した BPF アレイによる透過波長を示す. なお, 各透過スペクトルは規格化して表示してある.

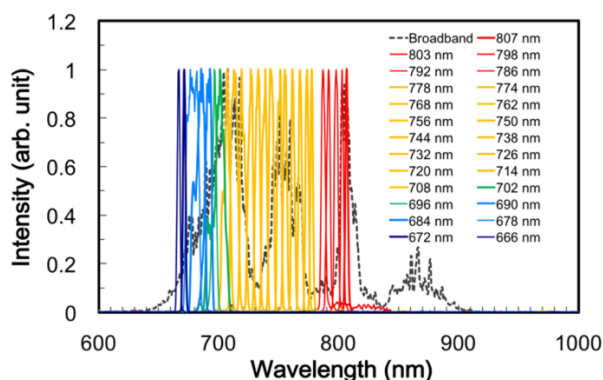


Fig. 10 25 different spectra selected by BPF-array structure (666 ~ 807 nm).

Fig. 10 の結果の様に, BPF アレイを用いることで帯域幅~150 nm (810 nm~666 nm) の波長選択が可能となる.

続いて, 作製した BPF アレイを SF-STAMP に組み込むために 2 つの 4f 光学系を組み合わせたリレー光学系 (Fig. 11), すなわち, SF-STAMP 光学系と縮小光学系を構築した.

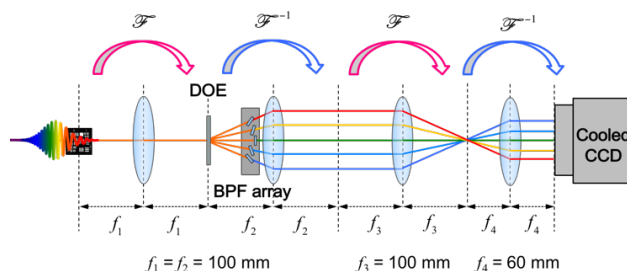


Fig. 11 Schematic of SF-STAMP system with 25-BPF-array structure.

BPF アレイは, 24 mm×25 mm の大きさで DOE から分岐したアレイビームを選択する. そのため, 最初の SF-STAMP 光学系には, $f_1 = f_2 = 100$ mm の倍率 1 倍の設計で構築した. したがって, Image 面でのマルチスペクトル像は冷却 CCD の受光面より大きくなってしまいますので 2 つ目の 4f 光学系 ($f_3 = 100$ mm と $f_4 = 60$ mm (非球面)) を用いて 0.6 ($M = 60/100$) 倍に縮小した. Fig. 12 に BPF アレイを用いた SF-STAMP 光学系で得られたマルチスペクトラルイメージを示す. なお, レンズは全て色収差を抑えるためにアクロマティックレンズを使用した. この結果が示すように, 広帯域パルスと BPF アレイを組み合わせることで 810 nm~666 nm に渡る広帯域なスナップショットマルチスペクトラルイメージが得られる. しかし, 広帯域光を用いることでアレイビームは空間的に広がってしまうため BPF アレイの隙間を抜けてしまう成分が迷光になってしまうことや, 元の広帯域光発生の際に十分な帯域が得られないと欠けてしまう帯域があるといった問題がある. 迷光による影響は計測後に画像処理を行うことで, 帯域不足に関しては, 安定した広帯域光発生を行うことで対応可能と考えられる.

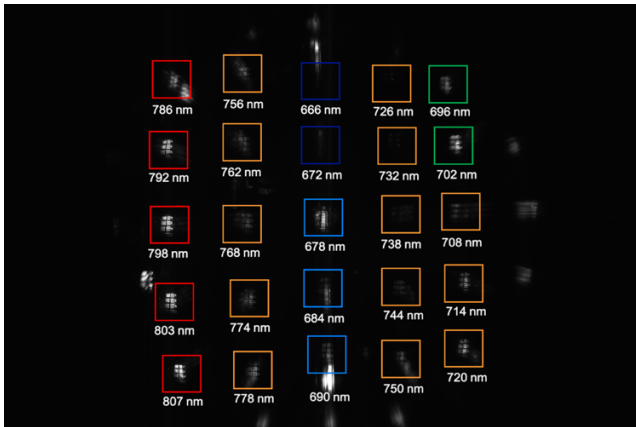


Fig. 12 A broadband multispectral image captured by BPF-array combined SF-STAMP system.

本実験で構築した BPF アレイと SF-STAMP 光学系の組み合わせによりサブナノ秒の時間窓でのシングルショット実験が可能になる。Fig. 13 に 810 nm~666 nm の帯域を計測窓にする広帯域パルスに 0.505 ps/nm の分散を与えて~73 ps まで時間窓を広げたチャープパルスを用いてガラスのアブレーション過程を計測した結果を示す。ガラス表面にアブレーションプラズマが生じる様子の撮影を行なった。

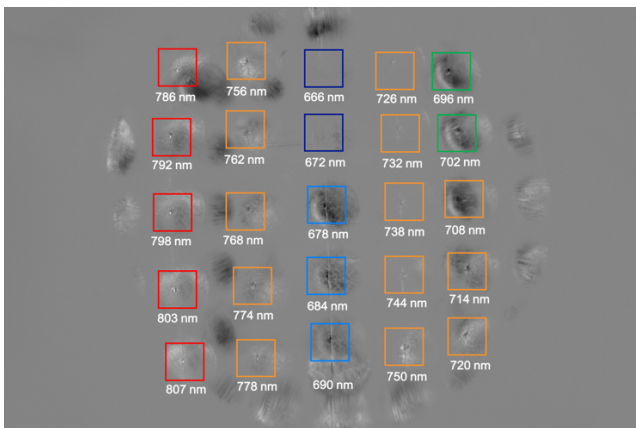


Fig. 13 Measured images of generation of ablation plume in a single shot by BPF-array combined SF-STAMP system.

4. まとめ

本研究では、シングルショット超高速 2 次元連写イメージング手法である SF-STAMP (Sequentially timed all-optical mapping photography utilizing spectral filtering) の性能拡張 (同時撮影枚数増加・計測時間窓拡大) を使用する回折光学素子 (DOE)・波長選択バンドパスフィルタ (BPF)・光源の波長帯域幅の 3 つの観点から行った。

改良した 25 枚 SF-STAMP 光学系を用いることで、同一の波長選択フィルタを単独で用いた場合には 5 枚 SF-STAMP 光学系よりも 1 ショットでの波長選択幅の拡大を実現した。この DOE からのアプローチの実証実験としてピコ秒領域の現象 (カルコゲナイド系光相変化物質 $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ (GST) のフェムト秒レーザ励起による結晶相からアモルファス相への超高速相変化過程) のシングルショット連写イメージングを行った。以下が、撮影条件である。

- ・連写撮影枚数: 25 枚
- ・波長選択帯域幅: 40 nm (825~785 nm)
- ・分散量: 0.082 ps/nm
- ・時間窓: 3.3 ps
- ・平均フレーム間隔: 133 fs (7.52 Tfps 相当)
- ・平均露光時間: 465 fs
- ・透過型顕微光学系利用

また、時間窓を拡大するアプローチとして、異なる波長選択フィルタを組み合わせることで波長選択幅を拡大する BPF アレイを構築した。これにより 666~810 nm の帯域 (~150 nm) をシングルショットで選択が可能になった。この BPF アレイを SF-STAMP 光学系に組み合わせることで 150 nm の帯域に渡る 25 波長マルチスペクトラルイメージ (波長間隔: 6 nm) を取得した。得られたマルチスペクトラル像の画質は 1 枚の BPF を用いた手法に比べると迷光や光源の帯域不足のため劣るが、チャープパルスを用いた超高速撮影を行うことで、サブナノ秒の時間窓の計測が実現可能である。ただし、こ

の場合は、波長依存性の無視できる対象に関してのみ有用である。

BPF アレイを用いた超高速撮影実験では、ガラスのアブレーション過程の計測を

- ・波長選択帯域幅: ~150 nm (810~666 nm)
- ・分散量: 0.505 ps/nm
- ・時間窓: ~73 ps
- ・平均フレーム間隔: ~3 ps

の撮影条件で行った。

以上より、異なるサンプルに対しても SF-STAMP 法による超高速連写撮影は有効であり、撮影対象に合わせた時間分解能を設定することで他のサンプルに対しても有効な手法であると言える。しかし、相変化材料などのプローブ光強度に敏感な対象に対しては、相変化を誘起する閾値以下で観察する必要があり、DOE と BPF で光の損失の多い SF-STAMP の方法では注意が必要である。

本手法では、1つの4f光学系で時間-空間写像を行えるためシステムが簡素化できる。なお、使用する BPF の帯域および傾きを調整することで容易に選択波長帯域を可変にできる。一方で欠点として、波長フィルタリングを行うため、プローブ光の光利用効率が低下する。この特徴を踏まえた上で、SF-STAMP はサブピコ秒からサブナノ秒の範囲に起きる高速現象の観測に有用なツールであり、誰もが自在に扱えるような技術として今後広く利用されることを期待する。

最後に、今後の課題として、挙げられることを述べる。

・原理的に STAMP は超短光パルスを伸ばすことで、速い現象から遅い現象を見るというアプローチであるため、フェムト~ピコ秒に関しては非常に強力なツールであるが、課題はいかに遅い現象 (数 10 ピコ秒~サブナノ秒) を観測できるようにするかである。本研究では主に、SF-STAMP 装置からのアプローチで改良を行ったが、使用する光源側からの

アプローチも有効であり、ナノ秒間隔の中心周波数の異なるパルス列を発生させる手法やサブナノ秒領域をカバーする STAMP 用の光源開発や安定した広帯域パルスの発生手法の確立が必要であろう。

・THz 波帯など異なる波長帯での STAMP 応用も可能であり実現が期待される。

References

1. T. G. Etoh, C. Vo Le, Y. Hashishin, N. Otsuka, K. Takehara, H. Ohtake, T. Hayashida, and H. Maruyama, "Evolution of Ultra-High-Speed CCD Imagers," *Plasma Fusion Res.* **2**, S1021 (2007).
2. Y. Tochigi, K. Hanzawa, Y. Kato, R. Kuroda, H. Mutoh, R. Hirose, H. Tominaga, K. Takubo, Y. Kondo, and S. Sugawa, "A Global-Shutter CMOS Image Sensor With Readout Speed of 1-Tpixel/s Burst and 780-Mpixel/s Continuous," *IEEE J. Solid-State Circuits* **48**, 329–338 (2013).
3. F. Mochizuki, K. Kagawa, S. Okihara, M. Seo, B. Zhang, T. Takasawa, K. Yasutomi, and S. Kawahito, "Single-event transient imaging with an ultra-high-speed temporally compressive multi-aperture CMOS image sensor," *Opt. Express* **24**, 4155–4176 (2016).
4. K. Goda, K. K. Tsia and B. Jalali, "Serial time-encoded amplified imaging for real-time observation of fast dynamic phenomena," *Nature* **458**, 1145–1150 (2009).
5. K. Goda and B. Jalali, "Dispersive Fourier transformation for fast continuous single-shot measurements," *Nat. Photonics* **7**, 102–112 (2013).
6. 鶴川 昌士, 井手口 拓郎, 合田 圭介 "時間領域のフーリエ変換を用いた超高速分光法と応用技術", *レーザー研究* **43**, 193–197 (2015).

7. C. Lei, B. Guo, Z. Cheng, and K. Goda, "Optical time-stretch imaging: Principles and applications," *Appl. Phys. Rev.* **3**, 011102 (2016).
8. H. Mikami, L. Gao, and K. Goda, "Ultrafast optical imaging technology: principles and applications of emerging methods," *Nanophotonics* **5**, 98–110 (2016).
9. M. C. Downer, R. L. Fork, and C. V. Shank, "Femtosecond imaging of melting and evaporation at a photoexcited silicon surface," *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 595–599 (1985).
10. M. Domke, S. Rapp, M. Schmidt, and H. P. Huber, "Ultrafast pump-probe microscopy with high temporal dynamic range," *Opt. Express* **20**, 10330–10338 (2012).
11. K. Nakagawa, A. Iwasaki, Y. Oishi, R. Horisaki, A. Tsukamoto, A. Nakamura, K. Hirose, H. Liao, T. Ushida, K. Goda, F. Kannari, and I. Sakuma, "Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP)," *Nat. Photonics* **8**(9), 695 (2014).
12. 中川 桂一, "超高速かつ非反復的な現象を捉える STAMP", *レーザー研究* **43**, 198–202 (2015).
13. K. Minoshima, H. Matsumoto, Z. Zhang, and T. Yagi, "Simultaneous 3-D Imaging Using Chirped Ultrashort Optical pulse," *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L1348–L1351 (1994).
14. Z. Jiang and X.-C. Zhang, "Measurement of Spatio-Temporal Terahertz Field Distribution by Using Chirped Pulse Technology," *IEEE J. Quantum Electron.* **36**, 1214–1222 (2000).
15. 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**(23), 30512 (2015).
16. T. Suzuki, R. Hida, R. Ueda, F. Isa, K. Nakagawa, and F. Kannari, "Single-shot Ultrafast 2D-burst Imaging by STAMP utilizing Spectral Filtering (SF-STAMP)," in *International Conference on Ultrafast Phenomena*, OSA Technical Digest (online) (Optical Society of America, 2016), paper UTh4A.18.
17. N. Hagen and M. W. Kudenov, "Review of snapshot spectral imaging technologies," *Opt. Eng.* **52**, 90901 (2013).
18. L. Gao and L. V Wang, "A review of snapshot multidimensional optical imaging: Measuring photon tags in parallel," *Phys. Rep.* **616**, 1–37 (2016).
19. K. Hashimoto, H. Mizuno, K. Nakagawa, R. Horisaki, A. Iwasaki, F. Kannari, I. Sakuma, and K. Goda, "High-speed multispectral videography with a periscope array in a spectral shaper," *Opt. Lett.* **39**, 6942 (2014).
20. M. Tamamitsu, Y. Kitagawa, K. Nakagawa, R. Horisaki, Y. Oishi, S. Morita, Y. Yamagata, K. Motohara, and K. Goda, "Spectrum slicer for snapshot spectral imaging," *Opt. Eng.* **54**, 123115 (2015).
21. P. Gabolde and R. Trebino, "Single-shot measurement of the full spatio-temporal field of ultrashort pulses with multi-spectral digital holography," *Opt. Express* **14**, 11460–11467 (2006).
22. P. Gabolde and R. Trebino, "Single-frame measurement of the complete spatiotemporal intensity and phase of ultrashort laser pulses using wavelength-multiplexed digital holography," *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, A25 (2008).
23. Z. Guang, M. Rhodes, M. Davis, and R. Trebino, "Complete characterization of a spatiotemporally

- complex pulse by an improved single-frame pulse-measurement technique,” *J. Opt. Soc. Am. B* **31**, 2736–2743 (2014).
24. L. Gao, J. Liang, C. Li and L. V. Wang, “Single-shot compressed ultrafast photography at one hundred billion frames per second,” *Nature* **516**, 74–77 (2014).
 25. J. Liang, L. Gao, P. Hai, C. Li, and L. V Wang, “Encrypted Three-dimensional Dynamic Imaging using Snapshot Time-of-flight Compressed Ultrafast Photography,” *Sci. Rep.* **5**, 15504 (2015).
 26. L. Zhu, Y. Chen, J. Liang, Q. Xu, L. Gao, C. Ma, and L. V. Wang, “Space- and intensity-constrained reconstruction for compressed ultrafast photography,” *Optica* **3**, 694–697 (2016).
 27. J. Liang, C. Ma, L. Zhu, Y. Chen, L. Gao, and L. V Wang, “Single-shot real-time video recording of a photonic Mach cone induced by a scattered light pulse,” *Sci. Adv.* **3**, e1601814 (2017).
 28. M. Tamamitsu, K. Nakagawa, R. Horisaki, A. Iwasaki, Y. Oishi, A. Tsukamoto, F. Kannari, I. Sakuma, and K. Goda, “Design for sequentially timed all-optical mapping photography with optimum temporal performance,” *Opt. Lett.* **40**, 633–636 (2015).
 29. H. Iwasaki, Y. Ide, M. Harigaya, Y. Kageyama, and I. Fujimura, “Completely erasable phase change optical disk,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 461–465 (1992).
 30. A. V Kolobov, P. Fons, A. I. Frenkel, A. L. Ankudinov, J. Tominaga, and T. Uruga, “Understanding the phase-change mechanism of rewritable optical media,” *Nat. Mater.* **3**, 703–708 (2004).
 31. M. Konishi, H. Santo, Y. Hongo, K. Tajima, M. Hosoi, and T. Saiki, “Ultrafast amorphization in $\text{Ge}_{10}\text{Sb}_2\text{Te}_{13}$ thin film induced by single femtosecond laser pulse,” *Appl. Opt.* **49**, 3470–3473 (2010).
 32. 齋木 敏治, “フェムト秒レーザー励起を用いた GeSbTe における超高速相変化の誘起,” *レーザー研究* **38**, 96–100 (2010).
 33. J. Takeda, W. Oba, Y. Minami, T. Saiki, and I. Katayama, “Ultrafast crystalline-to-amorphous phase transition in $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$ chalcogenide alloy thin film using single-shot imaging spectroscopy,” *Appl. Phys. Lett.* **104**, 261903 (2014).
 34. M. Hase, P. Fons, K. Mitrofanov, A. V Kolobov, and J. Tominaga, “Femtosecond structural transformation of phase-change materials far from equilibrium monitored by coherent phonons,” *Nat. Commun.* **6**, 8367 (2015).
 35. M. Hada, W. Oba, M. Kuwahara, I. Katayama, T. Saiki, J. Takeda, and K. G. Nakamura, “Ultrafast time-resolved electron diffraction revealing the nonthermal dynamics of near-UV photoexcitation-induced amorphization in $\text{Ge}_2\text{Sb}_2\text{Te}_5$,” *Sci. Rep.* **5**, 13530 (2015).
 36. E. Matsubara, S. Okada, T. Ichitsubo, T. Kawaguchi, A. Hirata, P. F. Guan, K. Tokuda, K. Tanimura, T. Matsunaga, M. W. Chen, and N. Yamada, “Initial atomic motion immediately following femtosecond-laser excitation in phase-change materials,” *Phys. Rev. Lett.* **117**, 135501 (2016).