

パルス内差周波混合を用いた波長可変中赤外フェムト秒レーザの発生、波形整形、そして光パラメトリック増幅

肥田 遼平(M2), 鈴木 敬和(副専攻 M1*), 山口 勇輝(M1), 根本 寛史(B4)

Wavelength-Tunable Mid-Infrared Femtosecond Laser Pulses Generation, Shaping and Optical Parametric Amplification by Intra-Pulse Frequency Mixing

Ryohei Hida, Takakazu Suzuki, Yuki Yamaguchi, and Hirofumi Nemoto

Abstract

We generate a versatile mid-infrared (MIR) laser pulses with a single super-continuum (SC) pulse generated from 800-nm femtosecond laser. MIR pulses are generated through difference frequency mixing (DFM) in a Type-I nonlinear crystal between the short and the long wavelength band in a single SC pulse. By controlling the spectral phase of the SC pulse using a liquid crystal spatial light modulator (LC-SLM) in a 4-f pulse shaper, our method can arbitrarily adjust the center wavelength, bandwidth, and pulse shape of the MIR laser pulses. In addition, we amplified the MIR pulses by OPA using a PPLN crystal, and measured waveform by XFROG system. In principle, these mid infrared pulses exhibit stable carrier-envelope phase (CEP) since they are generated from a single SC pulse.

1. はじめに

中赤外領域(波長 $2\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$)のレーザ光は、その領域内に多くの有機物質の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、中心波長、スペクトル幅、さらには任意のパルス整形を可能とする超高速コヒーレント中赤外レーザ光源の開発が望まれている。

中赤外フェムト秒パルス発生には、差周波混合が用いられる。差周波混合は二つのパルスが相互作用するパルス間(inter-pulse)方式と、単一パルス内で

行なうイントラパルス(intra-pulse)方式に二分される。前者では、二つのパルス特性を個々に操作できるが、光路が複雑になってしまう。後者では、CEP 安定である点や、シンプルさが利点だが、パルス特性の自由度が制限されるという欠点がある[4]。また、中赤外フェムト秒レーザを波形整形する手法として LC-SLM(Liquid crystal spatial light modulator)を用いて波形整形した近赤外パルスを用いて中赤外光パルスを発生させることで、間接的に中赤外パルスを波形整形する手法が挙げられる[5]。LS-SLM を用いることで、他の波形整形法と比較して効率の良い波形整形が可能となる。ただし、単一パルス内で差周波混合で中赤外光を発生するためには、より広い帯域幅が必要となるため、もとのレーザパルスがこの帯域幅条件を満たさない場合は何らかの広帯域化が必要である。

本研究では、希ガスを用いて広帯域化された supercontinuum(SC)光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る。差周波混合を行う二つの帯域の群遅延量および群速度分散量を LC-SLM 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。またその発生した中赤外光パルスを、MgO 添加 PPLN 結晶を用いた OPA により増幅し、XFROG 光学系により波形計測を行なった。

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 の 3 部から成る。

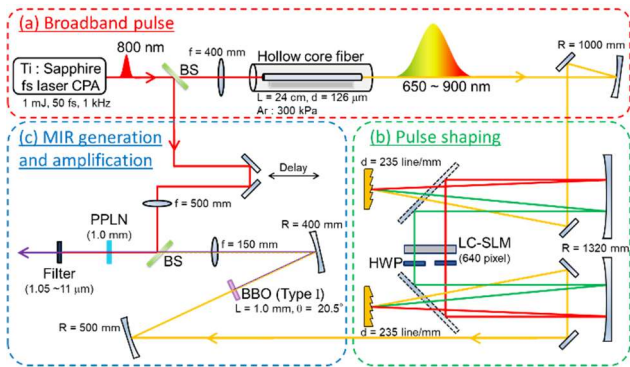


Fig. 1 Schematic of MIR pulse generation. (a) Broadband pulse generation, (b) Pulse shaping, and (c) MIR pulse generation.

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 1.0 mJ, 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 μm , 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[6]。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 300 kPa の Ar ガスが封入され, 自己位相変調 (SPM : Self phase modulation) によって SC 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 SC 光パルスが計測された。この帯域幅は FTL パルスの場合, パルス幅 10 fs に相当する。この SC 光スペクトル位相から群速度分散値を算出すると 500 fs² となった。また, 中空ファイバ出射後の SC

光パルスのパルスエネルギーは 150 μJ である。

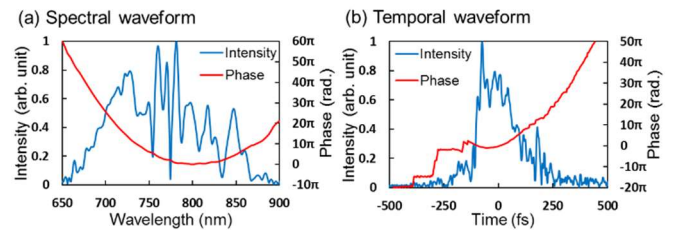


Fig. 2 Spectral and temporal waveform of SC pulse. (a) spectral waveform, and (b) temporal waveform. A blue curve is intensity and a red curve is phase of the SC pulse measured by SPIDER.

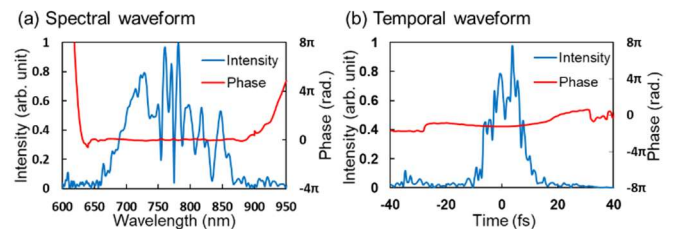


Fig. 3 Spectral and temporal waveform of SC pulse (after dispersion compensation). (a) spectral waveform, and (b) temporal waveform. A blue curve is intensity and a red curve is phase of the SC pulse measured by SPIDER.

次に, この中空ファイバ透過後の広帯域光パルスを回折格子, 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した。まず, 入射した SC 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, SC 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った。波形整形器によって Fig. 2 の逆分散を加えることで分散補償された広帯域

パルスの SPIDER 計測 Fig. 3 に示す. Fig. 3 より時間幅 10 fs (FWHM) の広帯域光パルスが計測された.

その後、整形された SC 光パルスを厚さ 1 mm, カット角 20.5 度の 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. 結晶を薄くすることで広帯域位相整合を満たすことが可能となる. 差周波混合のメカニズムを Fig. 4 に示す.

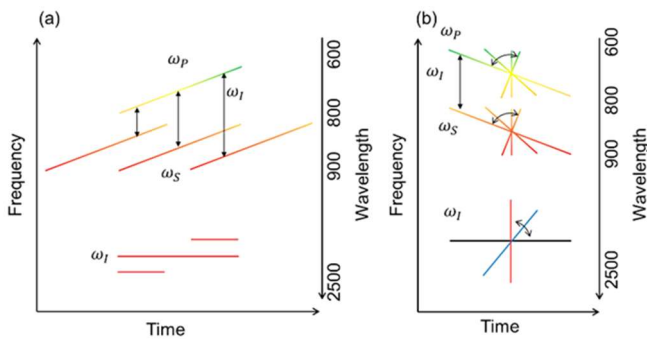


Fig. 4 Mechanism for DFM in a single SC pulse. (a) variable center wavelength, and (b) variable bandwidth.

Fig. 4 (a)のように、二つの帯域の群遅延量を LC-SLM 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を任意に変化できる. また、Fig. 4 (a)のように、二つの帯域の群速度分散量を LC-SLM によって調整することで、発生する中赤外光パルスのスペクトル幅を任意に変化できる. その後、中赤外パルスを MgO 添加 PPLN 結晶へ入射し、OPA により増幅した. ポンプ光にはあらかじめ分岐しておいた CPA パルスを用いた. PPLN 結晶の設計は Ref. [7]を参考にしない、結晶長を 1 mm, 結晶温度を 47 度, 反転周期を 21.5 μm とした. 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ー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 LiNbO₃ 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[8].

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. 5 に示す. Fig. 5 (a)に示すのは、波形整形器によって群遅延量のみを操作することで、発生する中赤外光パルスの中心波長が変化する様子である. SC 光パルスの長波長側に 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. しかし、発生した中赤外スペクトルの長波長側に裾が引いているのが分かる. これは SC 光パルスが高次分散を持っているのが原因である. そこで広帯域パルスの 3 次分散を調整することでスペクトルの裾を滑らかにすることを試みた. その結果が Fig. 5 (b)である. このように、600 fs³ の三次分散を加えることでスペクトル形を整形できた.

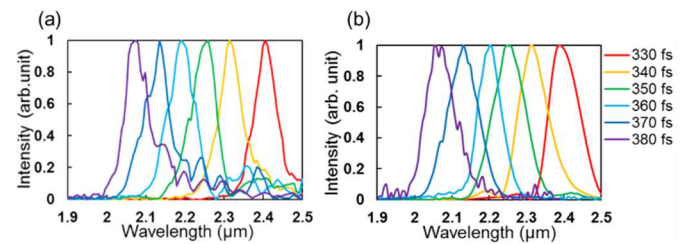


Fig. 5 Spectra of variable center wavelengths MIR pulses. (a) only temporal delay, and (b) delay + 3rd dispersion.

また、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を変化させることが出来る. その様子を Fig. 6 に示す. SPIDER 計測から、この SC 光パルスは元々 500 fs²

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ほぼ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。

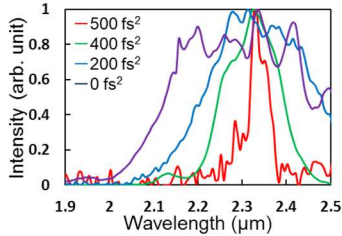


Fig. 6 Spectra of variable bandwidths MIR pulses.

また、SC光パルスの長波長成分をさらに二分化(800~850 nmと850~900 nm)することで発生する中赤外パルスも二分化される。その様子をFig. 7に示す。このように、任意の位相を加えることで発生する中赤外パルスも任意のスペクトルを持たせることが可能である。

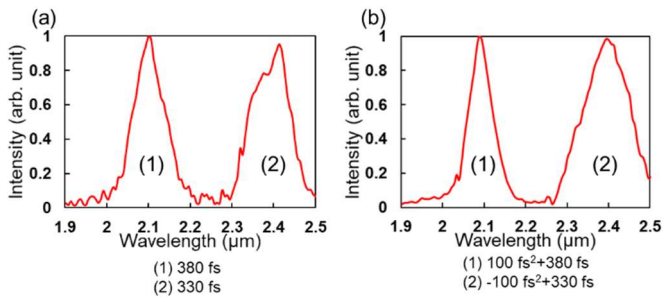


Fig. 7 Dual center wavelength MIR pulses. (a) added delay, and (b) added delay + 2nd dispersion.

3.2 中赤外光パルス増幅

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OPAによる増幅を行なった。OPAの温度特性、反転周期特性、入出力特性を計測した結果をFig. 8に示す。Fig. 8(a)に示すように、結晶温度を+40度まで変化させても帯域に

変化は見られなかった。また、Fig. 8(b)に示すように、反転周期を変化させることにより帯域がシフトしていることが確認できた。また、Fig. 8(c)に示すように、OPAによって出力強度が90倍になっていることが確認できた。

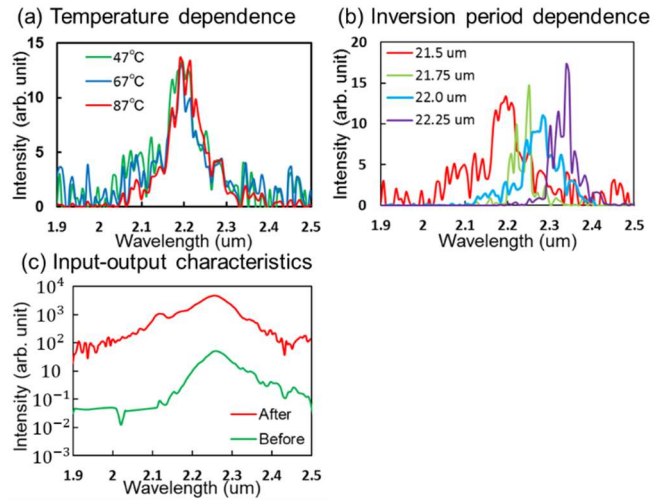


Fig. 8 Characteristics of MgO-PPLN OPA. (a) temperature dependence, (b) inversion period dependence, and (c) input-output characteristics.

次に、Fig. 9に増幅した中赤外パルスのスペクトルを示す。このとき、励起光はエネルギー $10 \mu\text{J}$ 、パルス幅150 fsである。入射パルスはFig. 5(b)の3次分散補正をしたパルスである。

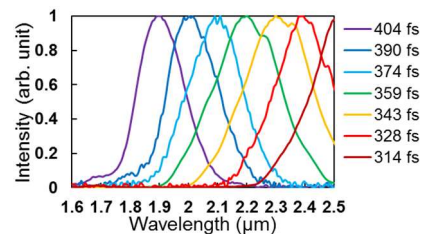


Fig. 9 Spectrum of MIR pulses with variable center wavelengths after OPA

Fig. 9に示すように、OPAによって中心波長可変中赤外パルスの増幅を行なうことができた。増幅前

と比較してスペクトル帯域が広がっているが、これは OPA の増幅帯域が広いいため、ノイズレベルの中赤外光までもが増幅された結果である。このとき、増幅した中赤外パルスのパルスエネルギーは 800 nJ であった。

3.3 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。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、FROG トレースを得た。XFROG による増幅前の中赤外パルス波形計測結果を Fig. 10 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。各波長で時間幅や位相に大きな変化は見られなかった。また FROG エラーは 2.4 % であった。

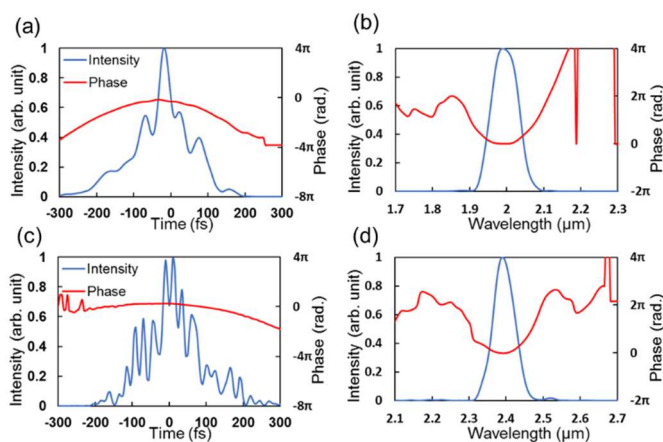


Fig. 10 Spectral and temporal waveform of MIR pulses measured by XFROG. (a) temporal waveform with center wavelength of 2.0 μm , (b) spectral waveform with center wavelength of 2.0 μm , (c) temporal waveform with center wavelength of 2.4 μm , and (d) spectral waveform with center wavelength of 2.4 μm .

次に、増幅後の MIR パルス計測結果を Fig. 11 に示す。このとき、結晶は 0.3 度ずつ 8.1 度分回転さ

せ計測した。Fig. 11 より、時間幅が 140 fs (FWHM) となる中赤外光パルスが計測された。増幅することで PPLN 結晶由来の分散が生じ、スペクトル位相が変化していると考えられる。また、スペクトル強度に凹凸があるが、これは結晶の回転をより細かくすることで改善できると考えられる。FROG エラーは 3.0 % であった。

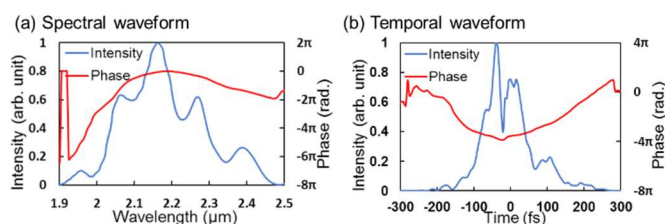


Fig. 11 Spectral and temporal profile of MIR pulses after OPA

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を発生させた。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を発生させることが可能となった。発生した中赤外パルスを増幅することで、パルスエネルギー 800 nJ、時間幅 140 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] G. Ernotte, P. Lassonde, F. Légaré, and B. E. Schmidt, “Frequency domain tailoring for intra-pulse frequency mixing,” *Opt. express* **24**, 24225 (2016).
- [5] T. Witte, D. Zeidler, D. Proch, K. L. Kompa, and M. Motzkus, “Programmable amplitude- and phase-modulated femtosecond laser pulses in the mid-infrared,” *Opt. Lett.* **27**, 131 (2002)
- [6] 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).
- [7] 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 (2008).
- [8] W. Wasilewski, P. Wasylczyk, and C. Radzewicz, “Femtosecond laser pulses measured with a photodiode - FROG revisited,” *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **78**, 589 (2004).