

超広帯域パルス発生に向けての多重パス増幅器の改良 Improvement of Multi-pass Amplifier for Ultra-broadband Pulse Generation.

近藤 昇平(M1), 吉清健太(B4), 大石裕

S. Kondo, K. Yoshikyo and Y. Oishi

Abstract

We complete the development of a multi-pass amplifier. The output laser energy after pulse compression is 980 μJ , which is approximately twice as much as one in the last year. The output energy is sufficient to produce ultra-broadband pulses with a rare-gas filled follow tube. However, the beam quality at M^2 of ~ 1.5 is still need improvement.

1. はじめに

最近の超短パルス技術は数サイクルパルスを発生し、希ガス中で高次高調波を発生してアト秒パルスを得るまでに達している[1]。数サイクルパルス幅にパルス圧縮する技術はいくつかあるが、最も広く使われている技術は希ガス中空ファイバにおける自己位相変調 (SPM: Self Phase Modulation) を用いたものである[2]。中空ファイバを用いる利点は、確実に広帯域化になることと出射後のビームプロファイルの質が良いことが挙げられる。昨年本研究室では、この中空ファイバを用いて白色光の発生を試みたが中空ファイバの入射強度が $400\mu\text{J}$ であり、入射強度が十分ではなかった。中空ファイバ中では3次の非線形性 SPM によってスペクトルが広帯域化するの、入射強度を強くすればさらに広帯域化可能となる。しかし、入射端の集光強度が強くなると自己収束やイオン化という問題が生じてファイバのスループットが悪くなる上、プラズマ吸収によって広帯域自体も制限される。

我々は、入射強度を強くするために多重パス型 2nd Amp. の改良を行いそのビームクオリティを調べた。

2. 実験と結果

2.1 2nd Amp. の改良

昨年度より高いパルスエネルギーの出力のために 2nd Amp. の構築に着手した[3]。励起光源には LD 励起 Nd:YLF レーザ (Coherent 社 Evolution15, 1kHz 繰返

し動作時に 12 mJ) を導入し、マルチパス方式を採用して飽和増幅領域でのエネルギー取り出しを行った (Fig.1.)。

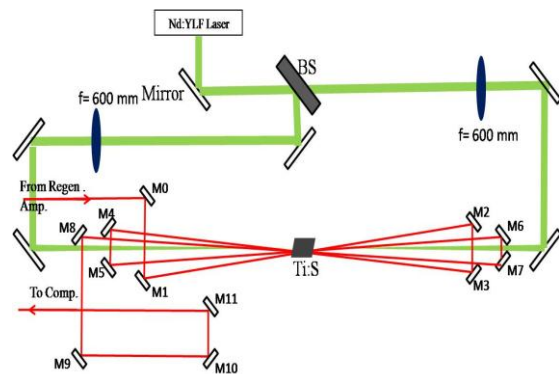


Fig.1. Experimental setup of the second-stage 4-pass-amplifier. The pump beams are focused to a Ti:sapphire crystal (20 mm length) placed at the center of the amplifier.

今年度、2nd Amp. の出力が 3.0 mJ、その励起効率が 20% 以上となるように調整を行った。その結果を Fig.2 に示す。再生増幅器からのパルスエネルギーが 0.95 W、励起パワーが 7.80 W である。4 pass 増幅後のパワーは、2.63 W となった。

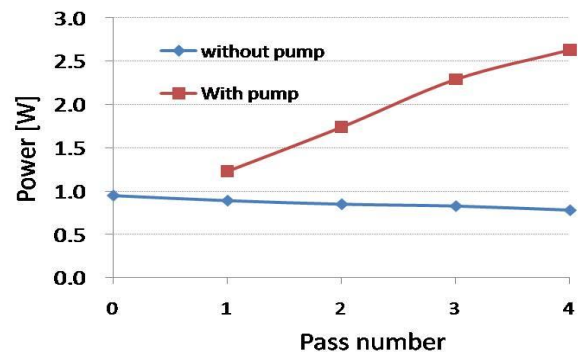


Fig.2. Power evolution of the multi-pass amplifier with the pumping laser power of 20.5 W.

次に励起パワーを変えて 4pass 後の増幅出力を調べた (Fig.3)。励起パワーが 8.8 W のときに増幅パワーが 2.98 mJ、取り出し効率は 23.1% となり、当初の目的出

力を達成できた。

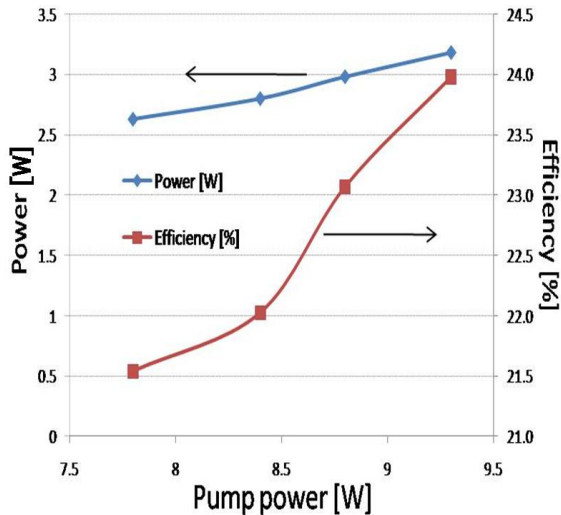


Fig.3 Amplifier laser output as a function of excitation laser power.

2.2 M² の測定

2nd Amp.からの光を中空ファイバに入れるためにビームクオリティの測定(M²の測定)を行った。その実験系を Fig. 4.に示す。まずは He-Ne レーザをガイドレーザとして中空ファイバに入射する。そして、中空ファイバのチャンバーとその前の f=600 mm との間にウェッジプレートとプリズムを設置して一部の光を取り出し CCD カメラに入射させる。そして、2nd Amp.からの光パルスを He-Ne と空間的に重なるように調整し、CCD カメラの位置を前後にずらすことにより M²を測定した。中空ファイバ内にレーザを入射する際に 2nd Amp.光パルスのビーム径を $\omega_0 = 43.75\mu\text{m}$ としたいので(1)式を用いて CPA からのビーム径 ω を見積もった。(M²の値は 1.3 と仮定した。) その結果、ビーム径 $\omega = 4.53\text{mm}$ となり入射光パルスをその値になるように調整した。

$$\omega = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{M^2 \lambda z}{\pi \omega_0^2}\right)^2} \quad (1)$$

M²の測定結果を Fig.5.に示す。このときの 2nd Amp.後の出力は 2.3 mJ であった。実験結果に基づいて M²

の値を変えて実験値とのフィッティングを行った。その結果、y 方向の M² 値は 1.16, x 方向の M² の値は 1.42 となった。また、それぞれの最小スポットサイズは y 方向が 60 μm , x 方向のスポットサイズは y 方向の最小スポットサイズの位置が 0.5 cm ずれて 80 μm あった。この結果から、中空ファイバに入る際のビームが楕円形となっており非点収差が起きていることが分かる。また、入射強度を高めればより非点収差が大きくなりビームクオリティが劣化することがわかった。

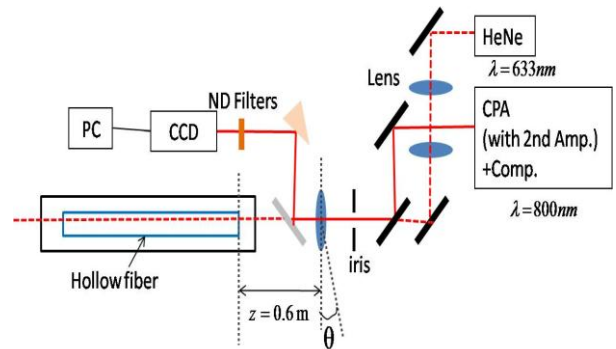


Fig.4. Experimental setup for adjusting the beam incidence into a hollow fiber.

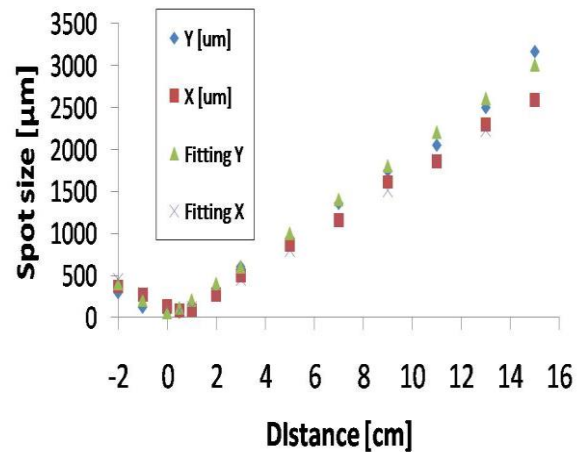


Fig.5. Beam spot size focused by an f=400 mm lens as a function of distance from the lens.

また、昨年度と今年度(2nd Amp.の改良後)の CPA 後の光パルスのパワー、M² 値、透過率の比較を Table 1 に示す。

Table 1 .Comparison of the output laser power, M^2 factor and transmission efficiency for the beams before and after improvement.

	2010FY	2009FY
Pulse energy	980 μ J	400 μ J
M2 factor	~1.5	1.2~1.3
Transmission	~33%	~33%

2.3 中空ファイバに入れるためのビームプロファイル調整

中空ファイバへの入射パワーは昨年度と比べて2倍となる980 μ Jとなった。2.2節でも述べているようにx方向のスポットサイズが中空ファイバのコア径よりも大きく中空ファイバのコア径よりも大きいため、入射ビーム径 w を変えた。この時もx方向とy方向の最小スポットサイズの位置のずれが起こり、非点収差が起こっていた。そのため中空ファイバの直前のf=600mmを傾けることで擬似のシリンドリカルレンズとして作用させ心円のビームプロファイル発生した。その結果、x方向が17.7 μ m, y方向が17.6 μ mとほぼ心円となった。このときの集光強度は 13.3×10^{15} W/cm²である。昨年度白色光発生実験を行った際は、2nd.Amp.無しでの集光強度が 2.6×10^{15} W/cm²[4]であったため、約4倍

に集光強度が大きくなった。

3. まとめ

今年度は2nd.Amp.を用いることでCPAからのパルスエネルギーが400mJから980mJと約2倍となった。ビーム径をx方向が17.7mm, y方向が17.6mmと中空ファイバのコア径の約半分の値に整形し、集光強度を 13.3×10^{15} W/cm²まで向上させた。しかし、このパルスをガス圧が30kPaのAr.ガスが注入されている中空ファイバに入れるとイオン化が起こり十分な広帯域化ができなかった[5]。この解決策としては、イオン化ポテンシャルの高いNeガスに代えることが必要である。

参考文献

- [1]R. Kienberger et al, Nature **427**, 817 (2004).
- [2] M. Nisoli et al, Appl. Phys.Lett. **68**, 2793 (1996).
- [3]大石裕, 神成研究室アニュアルレポート,(2009)
- [4]根本寛之, 慶應義塾大学卒業論文(2009)
- [5]吉清健太, 神成研究室アニュアルレポート(2010)

中空ファイバによる白色光発生と圧縮パルスの計測

Compression of White Continuum Pulse Generated in an Ar Gas-Filled Hollow Fiber.

吉清健太(B4), 近藤昇平(M1), 大石裕

K. Yoshikiyo, S. Kondo, and Y. Oishi

Abstract

White light continuum pulses are generated in an Ar gas-filled hollow fiber and compressed by chirped mirrors. The laser pulses are measured by SPIDER. When the femtosecond laser pulses generated from a multi-pass amplifier enter the hollow fiber, the shorter wavelength region is broadened but the longer wavelength side is not broadened presumably due to photo-ionization plasma.

1. はじめに

フェムト秒パルスレーザーは超高速性、広帯域性、高強度などCWレーザーにはない特性を持っているためその応用は多岐にわたるものである[1,2]。中でもフェムト秒レーザーを用いることで光と物質の相互作用を観察し化学反応等の制御をする研究が広く行われているが、より広帯域なスペクトル成分をカバーすることで、制御性の向上が期待できる。また、高い光電場下では、トンネル電離などの非線形光学も誘起でき、低光電場では不可能な制御性を利用することも出来る。通常、このようなパルス得る技術として中空ファイバを用いた広帯域化とパルス圧縮がある[3]。

一方、超短パルスレーザーの時間域におけるパルスの測定はフェムト秒という超高速性ゆえに、直接的には困難であり、通常は非線形光学結晶を用いた間接的な測定を行うのが一般的であり、中でもFROG (Frequency-Resolved Optical Gating)[4] と SPIDER(Spectral Phase Interferometry for Direct Electrical-field Reconstruction)[5]は広く使われている。我々もこれまで、FROGの一種で光カー効果による偏光ゲートを利用したPG-FROG (Polarization-Gate FROG)[6]によるパルス測定を行ってきた。しかし、この方法は、非線形結晶における位相整合帯域の制限を受けるので、白色光パルス計測には適さない。よって我々は広帯域化されたパルスの測定も出来るよう SPIDER を構築し、チャープミラーおよび

LC-SLM(Liquid Crystal Spatial Light Modulator)波形整形器を用いた分散補償によって中空ファイバで広帯域化された白色光パルスのパルス圧縮を検証した。

2. SPIDERを用いたパルス波形計測

Fig.1にSPIDERのセットアップを示す。被測定パルスははじめ、石英板により①透過光②石英板表面の反射光③石英板裏面の反射光の3つのパルスに分ける。①の透過光はその後ガラス(SF10)の分散素子を通過するため2次分散(22411 fs^2)を与えられ線形チャープパルスとなる。一方、②と③のパルスは遅延時間 $\tau=499.5 \text{ fs}$ のダブルパルスとなる。チャープパルスとダブルパルスはミラーの距離を調節することで非線形結晶であるBBO結晶から和周波を発生するが、ダブルパルス②と③の遅延時間差 τ によって発生する和周波の周波数はシフトする。この2つの和周波を分光器で測定するとスペクトルは周波数干渉を起こす。干渉のフリンジ解析からスペクトル位相を求め、フーリエ変換によって被測定パルスの電界波形ができる。

Fig.2はSPIDERを評価するため、CPAからのパルスをSPIDERとPG-FROGの両方で測定した結果である。なお、(c)(d)はLC-SLMで3次分散(TOD: Third Order Dispersion)を与えFTL(Fourier Transform Limit)パルスにした時のスペクトルである。まず(a)(b)を比較した場合、両者ともスペクトル位相がフラットでないことがわかる。一方、(c)(d)ではLC-SLMによる分散補償を行ったため、両者ともスペクトル位相がフラットであるのが確認できる。このことから、パルス幅30 fs秒のパルスに対しては、FROGとSPIDERの両者の測定結果が一致していることを確認できた。

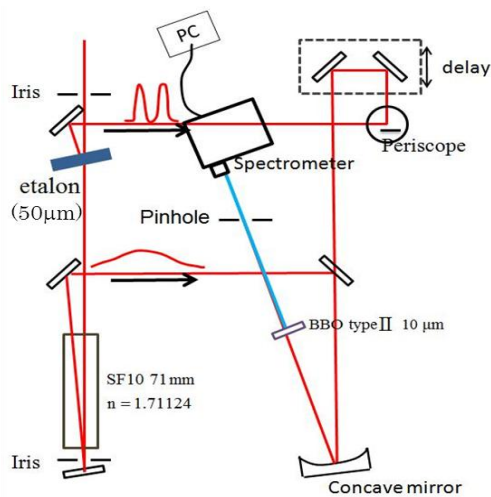


Fig.1 Experimental setup of SPIDER

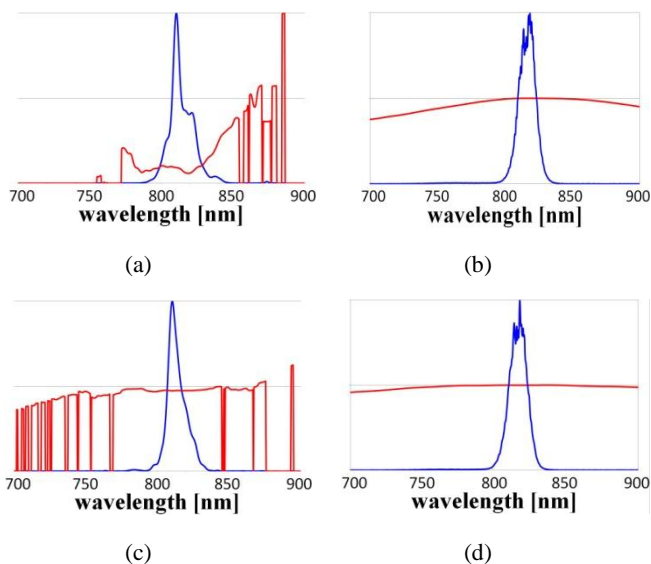


Fig.2 Experimental results of pulse compression measured by FROG and SPIDER (a)FROG TOD:0 ps⁻³ (b)SPIDER TOD: 0 ps⁻³ (c)FROG TOD: 3 × 10⁻⁴ ps⁻³ (d)SPIDER TOD: 3 × 10⁻⁴ ps⁻³

3. 中空ファイバによる白色光発生とパルス圧縮

Fig.3に白色光発生における実験セットアップの概要を記す。モード同期発信器からのパルスは前置型波形整形器のLC-SLMによって任意の分散量を与えられた後、チャープパルス増幅器(Chirped Pulse Amplification)に入射される。

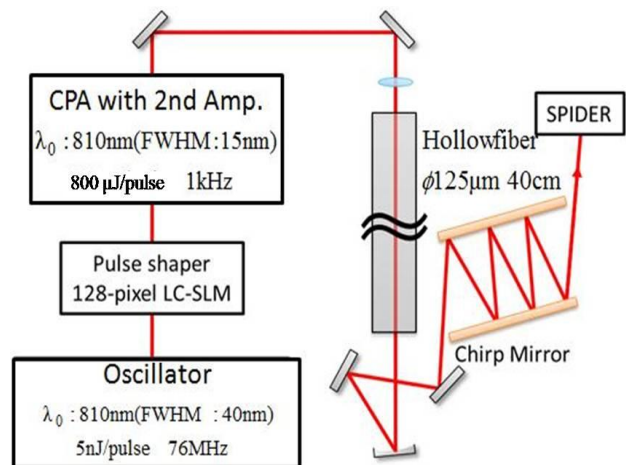


Fig.3 Experimental setup of white light generation.

なお、以前CPA内のパルスストレッチャーにおいて、凹面鏡と凸面鏡の表面が酸化されており、シード強度の低下によりASE成分も無視できなかった。それらを新しく取り替えたためオシレーターからストレッチャーへのスループットは1.3%から9.1%と7倍ほど向上した。さらにCPA内の増幅器では再生増幅器とマルチパス増幅器の2段階の増幅によってCPA出射後の平均エネルギー800 μJ/pulseが得られた[7]。このCPAからの出射パルスにCPA内のコンプレッサーで取り除くことのできない3次分散がある。これはCPA内のコンプレッサーのグレーティングの距離を2次分散が最適になるように調整したためである。この3次分散を取り除くためにLC-SLMで3次分散量(TOD)3.00 × 10⁻⁴ ps⁻³を与えた(Fig.5)。これでCPA後の出射パルスはほぼFTLパルスとなったといえる。しかしその一方で、利得媒質の帯域特性などの原因によりスペクトルの狭帯域化が生じ、帯域幅が発振器の40nm(FWHM)から15nmまで狭まってしまった。このCPAからのパルスを使ってアルゴンガス充填の中空ファイバによってスペクトルの広帯域化を行った。Fig.6にガス圧を変化したときのスペクトル変化を示す。また、Fig.7に昨年度に行ったCPA出射後の平均エネルギー400 μJ/pulseでの同様にガス圧を変化したときのスペクトル変化を示す[8]。

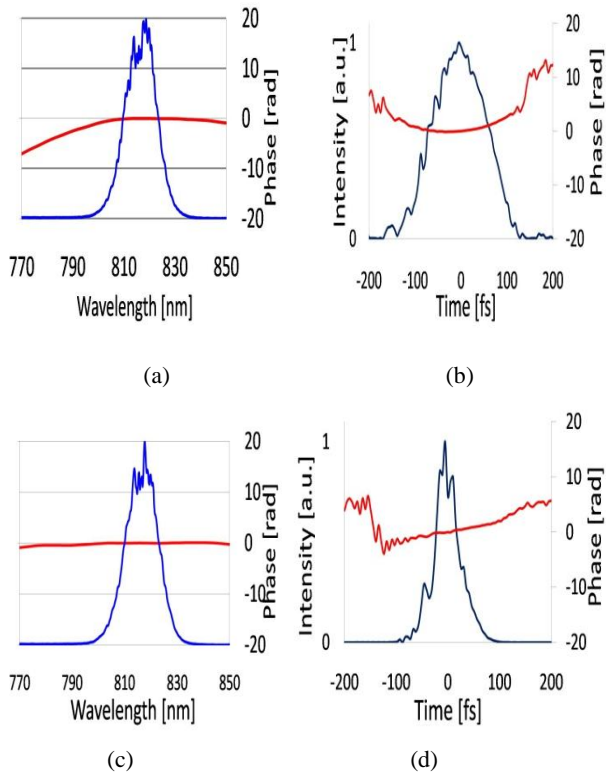


Fig.5 (a) Power spectrum and spectral phase of the output pulses from the CPA system. (b) Reconstructed temporal waveform of (a). (c) Power spectrum and spectral phase of the output pulses from the CPA system after compensating third order dispersion ($3 \times 10^{-4} \text{ ps}^{-3}$) with LC-SLM. (d) Reconstructed temporal waveform of (c).

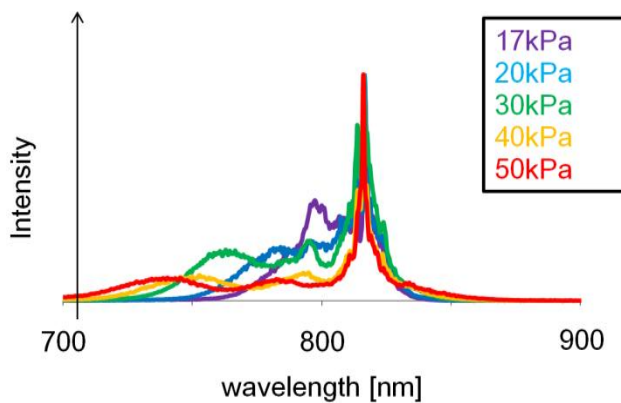


Fig.6 The spectrum by the changing of gas pressure.

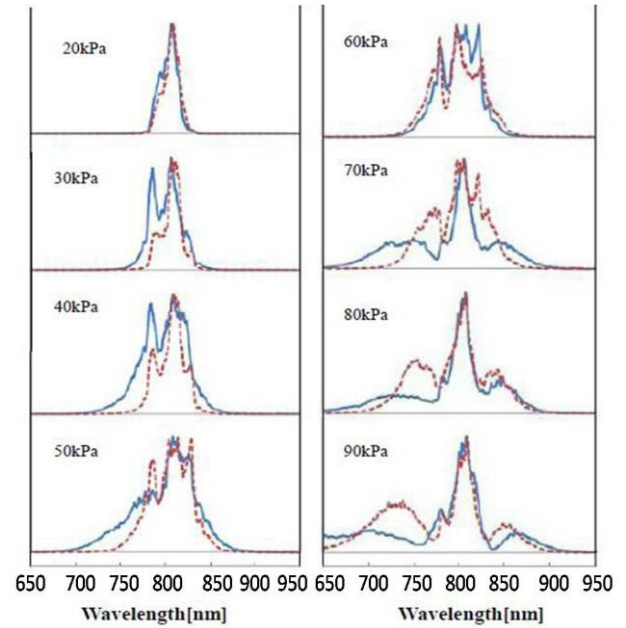


Fig.7 Measurement of spectrum evolution at different gas pressure for linearly polarized (solid line) and circularly polarized (dashed line) beam pulse [8].

Fig.7ではガス圧を90kPaまで上げてても広帯域化がされているが、Fig.6ではいずれのガス圧でも長波長側で広帯域化がされていない。この原因としてファイバ内におけるイオン化が考えられる。このため本実験ではファイバ出射後のビームのプロファイルが最も良い状態であった30kPaで設定し実験を行った。ガス圧を変えた時のビームの透過率をFig.8に示す。Fig.8より30kPaでのビームの透過率は26%であった。

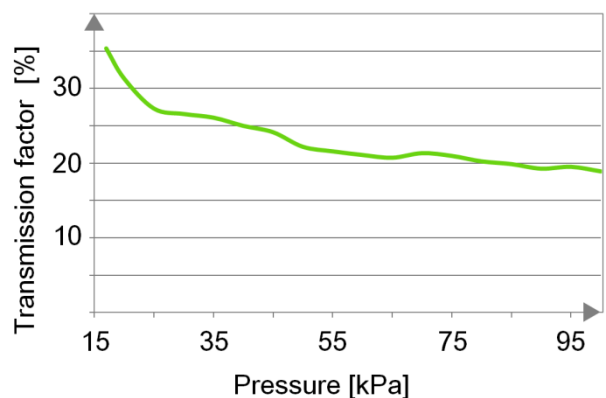


Fig.8 The transmission factor by the changing of gas pressure

中空ファイバでは主に正の2次分散が生じるため、中空

ファイバ後のパルスの分散補償としてチャープミラーを使用した。本実験で使用するチャープミラーは負の二次分散がかかるように設計されており、チャープミラーの反射回数を調節することで大まかな二次分散を取り除くことができる。Fig.9にチャープミラーの反射往復回数の変化によるスペクトル位相の変化を示す。反射往復回数を3~5回でのスペクトルの測定を行った。その結果、反射往復回数が5回の際にスペクトル位相がフラットとなり、二次分散量がゼロになっていることが分かる。

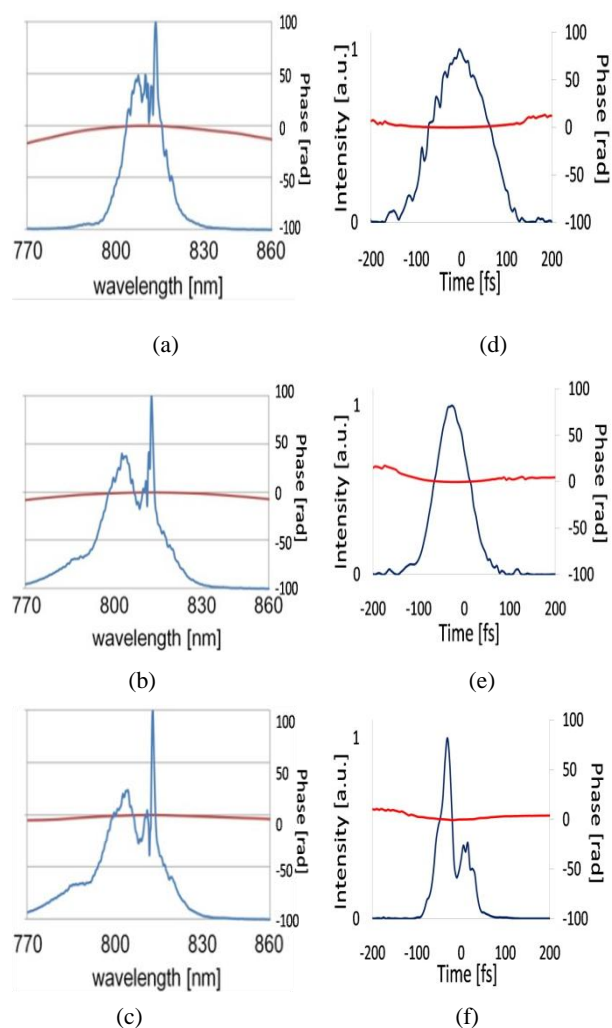


Fig.9 Spectrum intensity and phase at the each reflection of chirped mirrors: (a) three round trips (b)four round trips, and (c)five round trips. (d)Reconstructed temporal waveform and phase of (a). (e)Reconstructed temporal waveform and phase of (b). (f)Reconstructed temporal waveform and phase of (c).

5. まとめ

本研究では広帯域高強度超短パルスの波形測定方法として、新たに構築したSPIDERを用い、中空ファイバによって広帯域化されたパルスの測定を行った。さらに、前置波形整形器とチャープミラーの反射回数の調節により白色光パルスの圧縮も行った。

今後の方針としては、ピークパワーが高いために中空ファイバ内でイオン化が起きているので、ファイバ内のガスをアルゴンガスからイオン化閾値の高いネオンガスに交換することや、ファイバのコア径がより大きいファイバを使用したりする等の対策を行い、より広帯域な白色光パルスの発生を試みる必要がある。

References

- [1] T. Sekiawa *et al*, Nature 432,605(2004)
- [2]M. Dantus *et al*, Chem. Rev., 104, 1813(2004)
- [3] U.Eichmann *et al*. Nature 461, 1261(2009)
- [4] K. W. DeLon *et al*, J. Opt. Soc. Am .B 11, 2206 (1994)
- [5]C. Iaconis *et al*, IEEE J. Quantum Electron.,35, 501(1999)
- [6]R. Trebino *et al*. Rev.Sci. Instrum., 68, 3277(1997)
- [7]近藤昇平, 神成研究室アニュアルレポート, (2010)
- [8]根本寛之, 神成研究室アニュアルレポート,(2009)

Fabrication of Photorefractive Grating With 800 nm Femtosecond Lasers in Fe:LiNbO₃ and Rh:BaTiO₃ Crystals

Md. Masudul Kabir (D3)

Abstract

Refractive index gratings have been successfully formed in Fe:LiNbO₃ and Rh:BaTiO₃ crystals using 800 nm femtosecond laser pulses via two-photon and one-photon absorption respectively for the amplification of laser pulses by nonlinear two-wave mixing process. It was confirmed that one-photon absorption is dominant in Fe:LiNbO₃ up to 70 GW/cm². Chirped grating was formed in Fe:LiNbO₃ using amplified high-energy 1 kHz repetition rate femtosecond laser pulses whereas uniform grating was formed in Rh:BaTiO₃ using low-energy 76 MHz repetition femtosecond laser pulses. It was found that Rh:BaTiO₃ exhibits higher two-wave mixing gain and faster response time than that of Fe:LiNbO₃.

1. Introduction

Two-wave mixing (TWM) in photorefractive (PR) crystals have been used for chirp compensation [1], measuring [2-3], temporal storing [4], shaping [5], amplification [6] and self-pumped phase conjugation [7] of ultrashort laser pulses. Grating formation have been carried out with low energy and high repetition rate laser pulses using one-photon and two-photon absorption where multiple pulse effects and cumulative buildup of space-charge electric fields are responsible for the generation of refractive index grating. In BaTiO₃ and Fe:LiNbO₃ crystals, gratings have been formed either by the interference of Fourier transform limited (FTL) pulses [3,6-7] or by the interference of chirped and the corresponding Fourier transform limited pulses [1-2, 4-5].

However, in these early studies, the role of chirped volume grating for encoding and amplification of broadband optical laser pulses was not explored. Very recently Nishioka *et al.* [8] demonstrated formation of chirped volume grating in Fe:LiNbO₃ in order to amplify few cycle femtosecond laser pulses. The PR effects in wide band gap (4 eV) LiNbO₃ [9] crystal with femtosecond laser pulses in the near-IR regime can be governed by either linear one-photon or nonlinear two-photon absorption (TPA) using iron impurity centers, depending on the crystal doping concentration and intensity of the writing laser pulses. Although the experimental results of femtosecond laser pulse amplification using chirped volume grating formed in Fe:LiNbO₃ at 800 nm by Nishioka *et al* [8] was interpreted based on two-photon absorption, so far there is no research report showing direct evidence of TPA at 800 nm in Fe:LiNbO₃. It was intended to amplify 800 nm shaped femtosecond laser pulses generated from a Ti:Al₂O₃ amplifier via nonlinear TWM process in Fe:LiNbO₃. Because the repetition rate of regenerative amplifier is ~ 1 kHz, higher absorption rates are required to form chirped grating in Fe:LiNbO₃ within a reasonable writing time. Therefore, it is important to examine whether nonlinear absorption is available at the intensity range of the amplified laser pulses.

Investigation was carried-out to confirm which physical process of light absorption causes the refractive-index changes

in Fe:LiNbO₃ upon illumination with 800 nm femtosecond laser pulses up to 400 GW/cm² intensity range. It was confirmed that one-photon absorption is dominant in Fe:LiNbO₃ up to 70 GW/cm². Chirped grating was formed by two-photon absorption in Fe:LiNbO₃ by high energy 800 nm laser pulses at a repetition rate of 1 kHz for the amplification of femtosecond laser pulses via TWM.

On the other hand, undoped BaTiO₃ crystal is not suitable for grating formation in TWM via one-photon absorption in the near-infrared region because of its low linear absorption in this wavelength regime. Intensive research has been recently conducted to improve the sensitivity of BaTiO₃ in the near-infrared region. As a result, a new type of BaTiO₃ crystal was grown, blue in color, with rhodium (Rh) as a main dopant. This Rh:BaTiO₃ crystal proved to have significantly increased red and infrared absorption in these wavelength regimes [10]. Imaizumi *et al.* [11] first reported amplification of ultrafast laser pulses in 0°-cut Rh:BaTiO₃ at 1000 nm wavelength using picosecond laser pulses. They also measured phase conjugate reflectivity in their crystal. Nawata *et al.* [12-13] also demonstrated picosecond phase conjugation in 0°-cut Rh:BaTiO₃ at 1000 nm wavelength.

However, so far there is no research report demonstrating amplification of femtosecond laser pulses in Rh:BaTiO₃. Amplification of femtosecond laser pulses in a 0°-cut Rh:BaTiO₃ crystal at 800 nm wavelength has been demonstrated via TWM process utilizing its high single-photon absorption in the near-infrared region of wavelength.

2. Grating Formation in Fe:LiNbO₃ by TWM

2.1 Experiments and Results

2.1.1 Measurement of Light absorption

The measurement of light absorption was performed using a balanced detection technique. Fig. 1 shows the experimental setup for the measurement of light absorption in Fe:LiNbO₃ crystal.

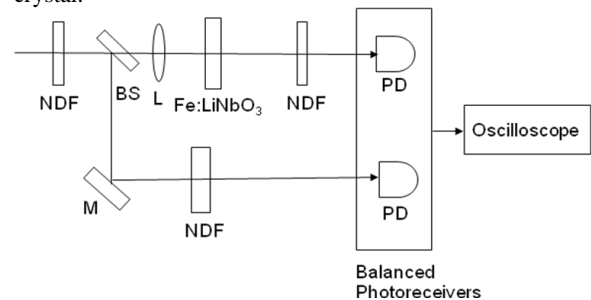


Fig. 1 Experimental setup for measurement of absorption coefficient in Fe:LiNbO₃

The laser source was a mode-locked Ti:Al₂O₃ oscillator, which

generates 30-fs (FWHM) femtosecond laser pulses at 800 nm and at repetition rate of 76 MHz. The spatial spot diameter (at $1/e^2$ intensity level) of the laser beam was ~ 2 mm. Absorption was measured up to ~ 5 GW/cm² for 76-MHz oscillator pulses. A 2-mm-thick Fe:LiNbO₃ (Fe concentration: 0.05 mol%) crystal was used to measure the light-absorption coefficient. The c-axis of the crystal was kept parallel to the light polarization. Absorption of the same crystal was also measured using laser pulses amplified by the regenerative amplifier at 1 kHz at the incident laser intensity ranging from 10 to 388 GW/cm². Transmission spectra of the same crystal was also measured shown in Fig. 2.

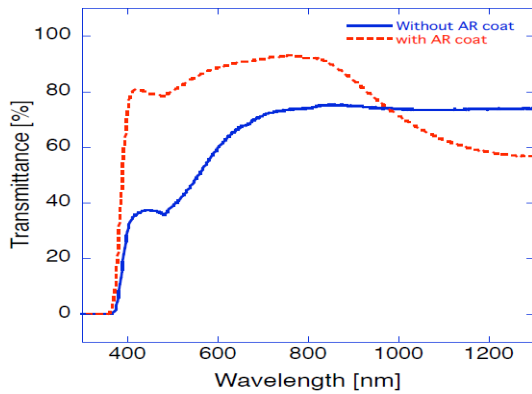


Fig.2 Transmission spectra of Fe:LiNbO₃ crystal.

Fig. 3 shows experimental results of light absorption coefficient for ordinarily polarized light.

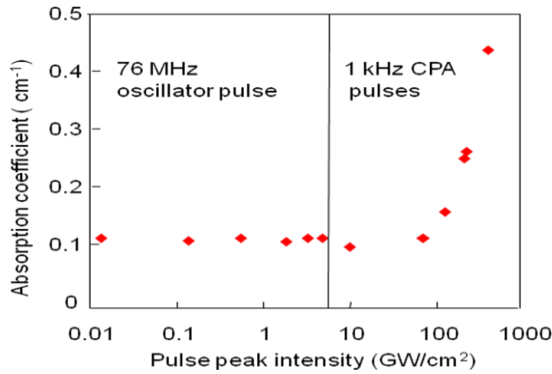


Fig. 3 Absorption of 800-nm femtosecond laser pulses at peak intensity ranging from 15 MW/cm² to 388 GW/cm² in Fe:LiNbO₃.

From Fig. 3 it is observed that up to 70 GW/cm², light absorption is almost linear with an absorption coefficient of ~ 0.11 /cm. Above 70 GW/cm², a trend of slight increase of absorption coefficient is visible and a sharp increase of absorption starts after 100 GW/cm². At around 400 GW/cm², the obtained nonlinear absorption coefficient is ~ 0.34 /cm which is ~ 3 times as high as that of the linear absorption coefficient. The nonlinearly absorption starts above 70 GW/cm², most probably is due to two-photon impurity-to-band transition by iron ion centers located in the midgap of LiNbO₃ crystal. The observed nonlinear absorption may also be

influenced by second harmonic light generated in the crystal in the GW/cm² intensity regime.

2.1.2 Grating Formation by 76 MHz and 1 kHz Laser Pulses

Volume phase gratings were formed in the same crystal that was used to measure the absorption coefficient. Figure 4 shows the experimental setup for grating formation by amplified femtosecond laser pulses. The seed laser pulses generated from a Ti:Al₂O₃ laser oscillator were amplified by the regenerative chirped pulse amplifier (CPA). The output energy of the amplified laser pulses at the repetition rate of 1 kHz is 0.4 mJ/pulse after pulse compression. The shortest pulse width (FWHM) of the output pulses after the compression is ~ 50 fs. The amplified laser beam was split into two beams: a strong pump beam (I_p) and a weak signal beam (I_s) by the beam splitter (BS). The signal beam passed through the variable time-delay stage and interfered with the pump beam in the crystal. Before grating recording, spatial overlap of the two writing beams was confirmed by adjusting the mirrors used in the optical path of the pump beam, whereas temporal overlap was confirmed by using an SHG crystal placed in the recording position.

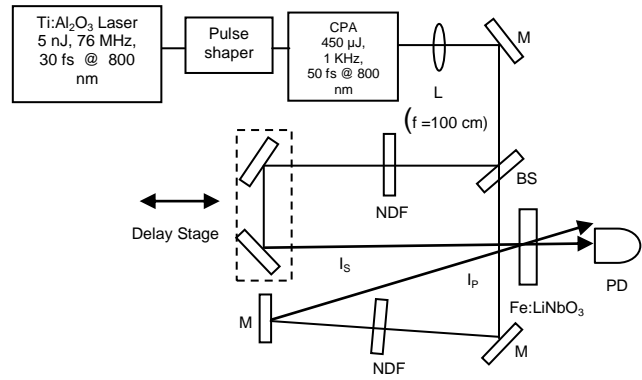


Fig. 4 Experimental setup for monitoring grating formation in TWM experiment. BS: Beam Splitter, M: Mirror, NDF: Neutral density filter, PD: Photo-detector.

A double-path 40-mm-thick fused silica block was used to stretch the temporal width of the pump pulse to 166 fs. NDFs were used to control the power of the writing beams. The writing half-angle of the incident beams was fixed in such a way that a grating spacing of 5.22 μ m was formed in the crystal. The pump beam and signal beam entered the crystal symmetrically in a plane containing the c-axis of the crystal so that the grating vector would be parallel to the c-axis of the crystal. The polarization of the writing beams was made parallel to the c-axis of the crystal. The spatial spot diameter (at $1/e^2$ intensity level) of the two beams at the input face of the crystal was kept to 2 mm by inserting a lens of focal length 100 cm. The diffraction efficiency of the pump beam was measured by blocking the signal beam for a short time.

Grating was also formed using the weak oscillator laser beam operated at 76 MHz. The experimental setup was almost the same as that with the amplified laser pulses as shown in Fig. 4. The signal pulse width was stretched by a double-path 40-mm-thick fused silica block from 30 fs to 210 fs.

Gratings were recorded first by low-energy and high-repetition-rate oscillator pulses. Figure 5 shows the time evolution of diffracted signals of the pump beams from gratings recorded by 800-nm femtosecond pulses with a repetition rate of 76 MHz. The average power of a pump beam was 230 mW. The signal beams were 107 mW for the FTL pulses and 85 mW for the stretched pulses (210 fs). During the experiment, it was observed that the diffracted signal from the recorded gratings formed by unstretched pulses is extremely small. For the unfocused recording condition (beam diameter of 2 mm), maximum diffraction efficiency, which was determined from the average power of the diffracted pump beam relative to the incident pump beam power, of $\sim 0.8\%$ was obtained for writing pulse peak intensities of $I_p=2.63 \text{ MW/cm}^2$ and $I_s=0.11 \text{ MW/cm}^2$. On the other hand, with the stretched signal pulse at $I_s=0.0122 \text{ MW/cm}^2$ and the unstretched pump pulse at $I_p=2.63 \text{ MW/cm}^2$, a maximum diffraction efficiency of 4.80% was obtained after 1800 sec. For the focused beam recording condition (beam diameter of 0.46 mm), when the signal pulses were not stretched ($I_p=58.3 \text{ MW/cm}^2$, $I_s=2.44 \text{ MW/cm}^2$), extremely weak diffracted signal was observed at a diffraction efficiency of $\sim 0.8\%$ from the recorded gratings. However, when the signal pulse was stretched ($I_p=58.3 \text{ MW/cm}^2$, $I_s=0.27 \text{ MW/cm}^2$), a maximum diffraction efficiency of 13.0% was obtained after 600 sec.

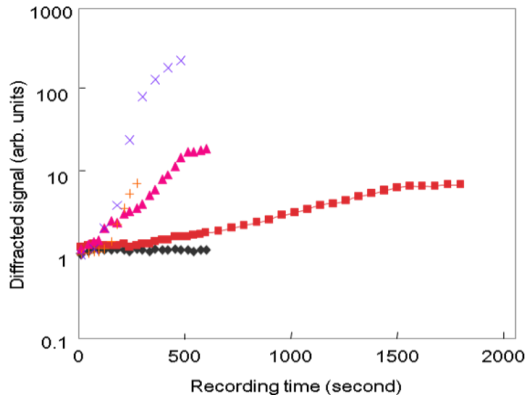


Fig. 5 Time evolution of diffracted signals of the pump beam of 800-nm cw and femtosecond pulse lasers generated from a mode-locked $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ laser in TWM experiments. The plus and cross plots correspond to cw laser recording with unfocused ($I_s=2.5 \text{ W/cm}^2$ and $I_p=5.5 \text{ W/cm}^2$) and focused beams ($I_s=59 \text{ W/cm}^2$ and $I_p=126 \text{ W/cm}^2$), respectively. Diamond and square plots correspond to unstretched ($I_s=0.11 \text{ MW/cm}^2$ and $I_p=2.63 \text{ MW/cm}^2$) and stretched pulse recording ($I_s=0.0122 \text{ MW/cm}^2$ and $I_p=2.63 \text{ MW/cm}^2$) with an unfocused beam, respectively. Triangles correspond to stretched pulse ($I_s=0.27 \text{ MW/cm}^2$, and $I_p=58.3 \text{ MW/cm}^2$) recording for a focused beam.

It was observed that when grating was formed by the continuous laser beams at 800-nm wavelength, the diffraction efficiency was always higher than that of pulse recording for both the unfocused and focused beam recording conditions for a particular recording time with the same average recording power at ($I_s=2.5 \text{ W/cm}^2$ and $I_p=5.5 \text{ W/cm}^2$) and ($I_s=59 \text{ W/cm}^2$ and $I_p=126 \text{ W/cm}^2$), respectively, as shown in Fig. 5.

Figure 6 shows experimental results for the time evolution

of diffracted signals from the gratings formed by 1 kHz amplified laser pulses generated from the amplifier (CPA).

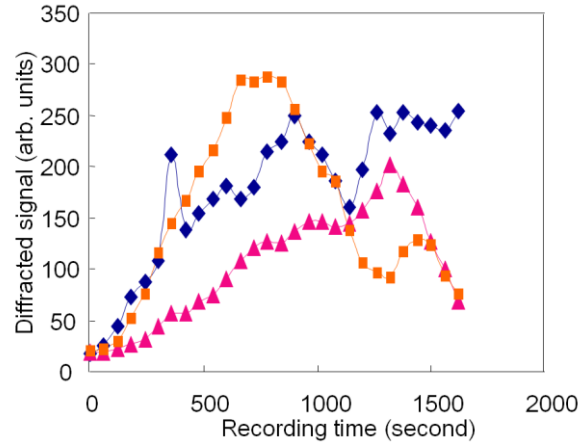


Fig. 6 Time evolution of diffracted signals of the shaped amplified pump beam in TWM experiments. Square plot corresponds to the diffracted signals at $I_p = 15 \text{ GW/cm}^2$ and $I_s = 31 \text{ GW/cm}^2$ for the pump pulse (166 fs) and signal pulse (50 fs) respectively. Triangle and diamond plots correspond to the results at $I_p = 18 \text{ GW/cm}^2$ (166 fs) and $I_s = 23 \text{ GW/cm}^2$ (50 fs) and at $I_p = 18 \text{ GW/cm}^2$ (166 fs) and $I_s = 38 \text{ GW/cm}^2$ (50 fs), respectively.

The highest diffraction efficiency of 17% was obtained when the peak pulse intensities were $I_p = 15 \text{ GW/cm}^2$ and $I_s = 31 \text{ GW/cm}^2$ for the pump pulse (166 fs) and the signal pulse (50 fs), respectively. When writing peak intensities were changed to $I_p = 18 \text{ GW/cm}^2$ (166 fs) and $I_s = 23 \text{ GW/cm}^2$ (50 fs) and to $I_p = 18 \text{ GW/cm}^2$ (166 fs) and $I_s = 38 \text{ GW/cm}^2$ (50 fs), the obtained highest diffraction efficiencies were 10 and 12.6% , respectively. Gratings were erasable and reproducible, and although there were some anomalies in diffraction efficiencies with recording intensities, the trend was similar. There were also some fluctuations in the diffracted signals. Interferometric instability during relatively longer writing time may have caused such fluctuations in the diffracted signals.

Two-wave mixing amplification was carried-out with high-energy laser pulses operated at 1 kHz. The average power ratio of the signal to pump beam was kept to $1:17.4$. The average power of the pump pulsed beam was 260 mW, and the pump pulse was stretched from 50 fs to 166 fs by a fused silica block. The average power of the signal beam was 15 mW on the front face of the crystal, while the transmitted power of the signal beam without a pump beam was 14.5 mW. The signal beam was amplified when the both beams were allowed to interfere in the crystal. Fig. 7 shows the time evolution of amplified signal beam in TWM. An amplification of the order 34% was obtained.

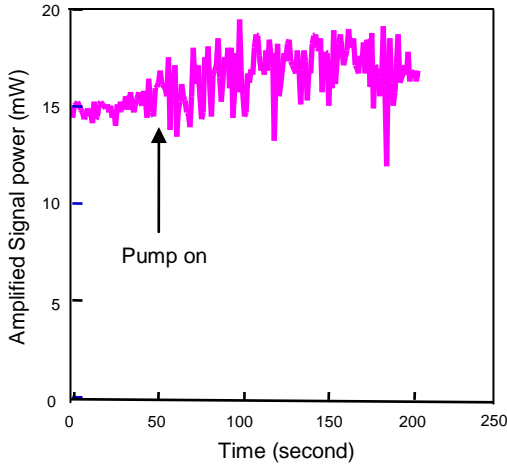


Fig. 7. Time evolution of amplification of signal beam of 800 nm femtosecond laser pulses generated from chirped pulse amplifier in TWM.

The spectrum of the amplified signal pulse is shown in Fig. 8. The amplified signal pulse shifted slightly toward the high-frequency components due to phase-mismatched diffraction of different frequency components from the secondary gratings caused by TWM of different frequency components of the interacting beams.

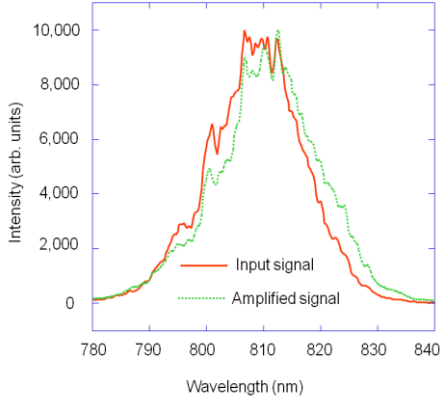


Fig. 8 Input and amplified spectra of signal pulse.

3. Grating Formation in Rh:BaTiO₃ by TWM

3.1 Experiments and Results

Two-wave mixing amplification (TWMA) was carried out in an anti-reflection coated Rh:BaTiO₃ crystal having a dimensions of 5 x 5 x 4 mm with the c-axis parallel to the 4-mm side. The doping concentration of rhodium in the melt was 400 ppm. The linear absorption coefficient of light measured at 800 nm for the crystal was 1.34/cm. Experimental setup for the measurement of TWMA of low-energy 76 MHz pulses at 800 nm was similar to that shown in Fig. 4. The Fourier transform limited 30-fs (FWHM) pulses were derived from the mode-locked Ti:Al₂O₃ laser oscillator with the output energy of 5 nJ/pulse. The pulsed laser beam was divided into two beams: a strong pump beam (I_p) and a weak signal beam (I_s) by a beam splitter (BS). ϕ_s and ϕ_p are the external angles of incidence for

the signal and pump beam, respectively with respect to the crystal normal. The external crossing angle between the signal and pump beam was fixed at 11° which creates an internal crossing angle of 4° between the beams to form an index grating of spacing $\Lambda = 4.87 \mu\text{m}$ inside the crystal for all experiments were performed. Orientation of the crystal was varied with a view to optimizing the TWMA gain and minimizing the beam fanning (light-induced scattering) effect to form the angle between the grating vector and c-axis of the crystal ranging at 77°-78°. To minimize the beam fanning, ordinarily polarized light was used as the input beams which forms a slanted grating inside the crystal. The spatial spot diameter (FWHM) of the two beams was adjusted by placing a lens of focal length of 80 cm. Neutral density filter (NDF) was used to adjust the signal to pump beam intensity ratio. TWMA gain measurement was also carried out using 800 nm ordinarily polarized cw laser beams. A power meter was used to measure the power of the amplified signal beam during the TWM experiments. Necessary care was taken by the placing the detector of the power meter far behind the crystal so that scattered light can not reach to the detector during TWMA.

The average input intensity ratio of the signal to the pump beam was fixed to ~1:10 for all the experiments performed. Average power of the signal and the pump beams on the front face of crystal were 15 mW and 157 mW, respectively. The average power of transmitted signal beam in the absence of pump beam was 9 mW, whereas the average power of the transmitted pump beam in the absence of signal beam was 91 mW. Since the spatial extent of the femtosecond pulse laser is of the order of micrometers, to achieve maximum TWMA gain, measurements were performed first by keeping the beam overlapping width $H = w_0/\cos\theta$ of the two pulsed beams smaller than the grating width $W = c\tau/n\sin\theta$ formed by the two interfering pulses inside the crystal, where w_0 is the incident beam width, c is the speed of light in the vacuum, τ is the pulse duration in the crystal, n is the refractive index of BaTiO₃ for ordinary polarized light and θ is the writing half-angle inside the crystal. When the two beams were allowed to interfere in the crystal, the power of the signal beam increased while the power of the pump beam decreased. The direction of power flow between the two beams was reversed when the crystal's c-axis was inverted. Figure 9 shows the temporal evolution of the amplified signal beam for different incident beam angles for the beam overlapping width $H = 0.1 \text{ mm}$ [FWHM] and the grating width $W = 0.3 \text{ mm}$ [FWHM].

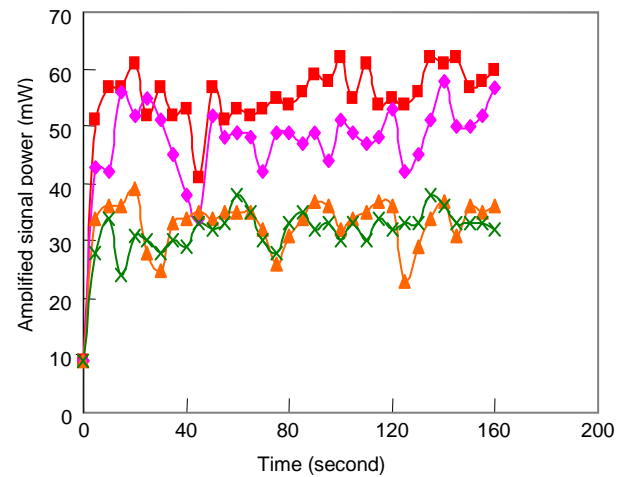


Fig. 9 Time evolution of amplification of signal beam of 800 nm femtosecond pulse laser generated from a mode-locked Ti:Al₂O₃ laser in TWM in Rh:BaTiO₃ for 1:10 signal ($I_s = 180 \text{ W/cm}^2$) to pump beam ($I_p = 1884 \text{ W/cm}^2$) average intensity ratio for different incident beam angle. $W/H=0.3/0.1$. Diamond, square, triangle and cross plots correspond to the amplifications of signal beam for 24°, 25°, 26° and 27° angles of incidence of signal beam on the crystal surface.

From Fig. 9, we can see that the average power of the signal beam increases with time until reaching an approximately steady state value. The fluctuations in the amplified signal beams are due to beam fanning from the signal beam itself. The value of maximum gain for signal beam for different incident angles is somewhat different but the trend of time evolution of amplified signals is similar for all measurements. The maximum gain of 6.44, 6.88, 4.33 and 4.22 were obtained when the signal beam was incident at 24°, 25°, 26° and 27° on the crystal front face, respectively.

To investigate the role of the geometric factors concerning grating width and the beam overlapping width that influence the femtosecond TWMA process, TWMA gain of signal beam was measured by keeping the beam overlapping width ~ 2 times larger than that of the grating width [$H = 0.55 \text{ mm}$ (FWHM), $W = 0.3 \text{ mm}$ (FWHM)]. The average power of signal and pump beam on the front face of crystal were 21.5 mW and 215 mW, respectively. The average power of the transmitted signal and pump beams in the absence of grating were 10 mW and 108 mW, respectively in this experiment. Figure 10 shows the time evolution of the amplified signal beams for different incident beam angles.

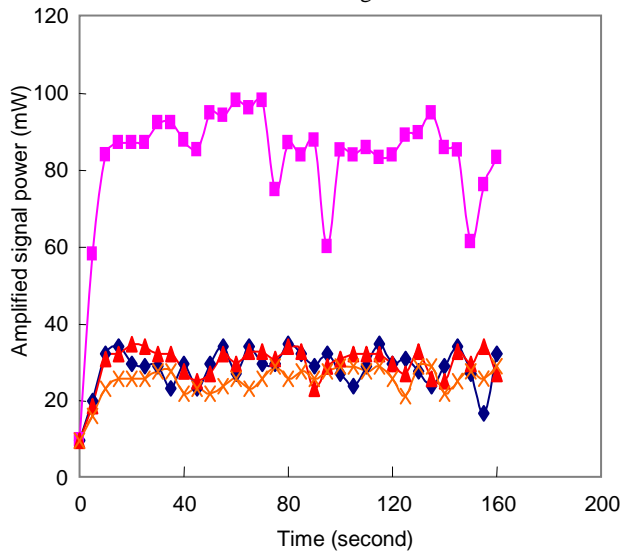


Fig. 10. Time evolution of amplification of signal beam of 800 nm femtosecond pulse laser generated from a mode locked Ti:Al₂O₃ laser in TWM in Rh:BaTiO₃ for 1:10 signal ($I_s = 9 \text{ W/cm}^2$) to pump beam ($I_p = 90 \text{ W/cm}^2$) average intensity ratio for different incident beam angle. $W/H=0.3/0.55$. Diamond, square, triangle and cross plots correspond to the amplifications of signal beam for 24°, 25°, 26° and 27° angles of incidence of signal beam on the crystal surface.

At the incident beam angles except for 25°, the obtained maximum gains were ~ 2.9 -3.5. These gains are smaller than those obtained with the small beam overlapping width ($H = 0.1 \text{ mm}$) in Fig. 9. A maximum gain of 9.8 was obtained when the signal beam was incident at 25° on the crystal front face.

TWMA gain was also measured in the same crystal using cw laser at 800 nm keeping the beam overlapping width $H = 0.55 \text{ mm}$ that was used for femtosecond TWMA gain measurement. In this experiment, the average power of signal and pump beam on the front face of crystal were 21 mW and 210 mW, respectively. The average power of transmitted signal and pump beams were 11 mW and 114 mW, respectively in the absence of grating. Figure 11 shows the time evolution of amplified signal beam of cw laser.

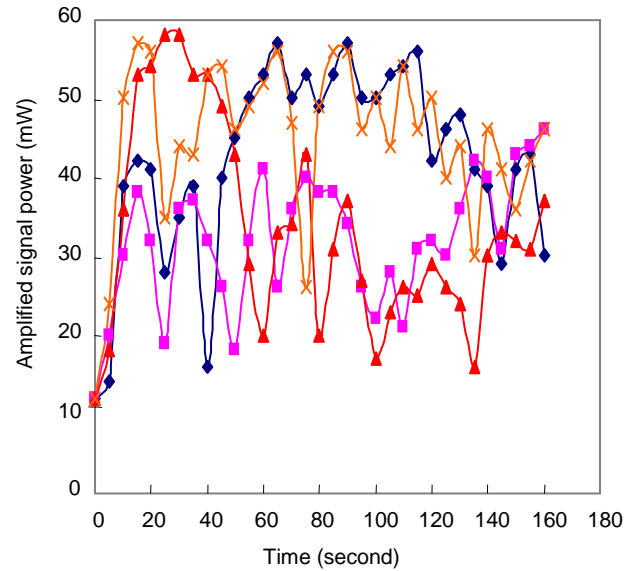


Fig. 11. Time evolution of amplification of signal beam of 800 nm cw laser generated from a mode-locked Ti:Al₂O₃ laser in TWM in Rh:BaTiO₃ for 1:10 signal ($I_s = 8.8 \text{ W/cm}^2$) to pump beam ($I_p = 88 \text{ W/cm}^2$) intensity ratio for different crystal orientations. Diamond, square, triangle and cross plots correspond to the amplifications of signal beam for 24°, 25°, 26° and 27° angles of incidence of signal beam on the crystal surface.

In this case, for all incident angles except 25°, the maximum measured gain reached ~ 5 . At 25° angle of incidence of signal beam, the obtained gain was slightly lower at 4. The severe fluctuations and gradual reduction of amplification with time in the amplified signal beams can be attributed to the strong beam fanning arising from both the pump and signal beams.

The spectra of the input and amplified femtosecond signal pulses were also recorded as shown in the Figs. 12 (a) and 12 (b).

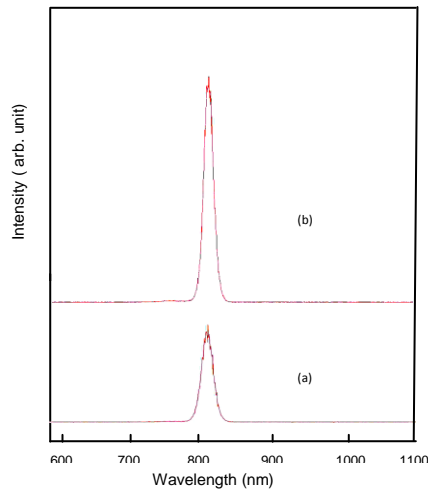


Fig. 12 Spectrum of the signal pulse: (a) before the crystal front surface and (b) amplified signal pulse by TWM in Rh:BaTiO₃.

The profile of both spectra are same with the spectrum width of ~ 20 nm (FWHM) which means that there is less phase-mismatching in diffraction of different frequency components of the pulse while they diffracted from the gratings formed by the frequency components other than their own frequency components.

4. Conclusion

Volume phase gratings were formed using 1 kHz high-energy and 76 MHz low-energy femtosecond laser pulses in Fe:NiNbO₃ and Rh:BaTiO₃ crystals respectively via two-wave mixing process. Grating was formed in Fe:LiNbO₃ by two-photon absorption which appears at pulse peak intensity > 70 GW/cm² where the measured linear absorption coefficient in the crystal was ~ 0.11 /cm at 800 nm. On the other hand, gratings were formed in Rh:BaTiO₃ by one-photon absorption having a linear absorption coefficient of ~ 1.34 /cm at 800 nm. It was found that Rh:BaTiO₃ is more efficient photorefractive crystal than Fe:NiNbO₃ for the amplification of femtosecond laser pulses at 800 nm wavelength because of its higher two-wave mixing gain and faster response time compared to Fe:NiNbO₃.

References

- [1] M. L. Roblin, F. Gires, R. Grousson, and P. Lavallard: *Opt. Commun.* 62, 209 (1987).
- [2] V. Dominic, X. S. Yao, R. M. Pierce, and J. Feinberg, *Appl. Phys. Lett.* 56, 521 (1990).
- [3] R. Trebino, C. C. Hayden, A. M. Johnson, W. M. Simpson, and A. M. Levine, *Opt. Lett.* 15, 1079 (1990).
- [4] L. H. Acioli, M. Ulman, E. P. Ippen, J. G. Fujimoto, H. Kong, B.S. Chen, and M. Cronin-Golomb, *Opt. Lett.* 16, 1984 (1991).
- [5] X. S. Yao, and J. Feinberg, *Opt. Lett.* 18, 622 (1993).
- [6] M. Horowitz, B. Fischer, Y. Barad, and Y. Silberberg, *Opt. Lett.* 21, 1120 (1996).
- [7] C. Yang, K. Minoshima, K. Seta, H. Matsumoto, and Y. Zhu, *Appl. Opt.* 38, 1704 (1999).

- [8] H. Nishioka, K. Hayasaka, S. Ohta, H. Tomita, and K. Ueda, *Opt. Express*, 15, 4830 (2007).
- [9] O. Beyer, I. Breunig, F. Kalkum, and K. Buse, *Appl. Phys. Lett.* 88, 051120 (2006).
- [10] B. A. Wechsler, M. B. Klein, C. C. Nelson, and R. N. Schwartz, *Opt. Lett.* 19, 536 (1994).
- [11] T. Imaizumi, M. Goto, Y. Ojima, and T. Omatsu, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43, 2515 (2004).
- [12] K. Nawata, Y. Ojima, M. Okida, T. Ogawa, and T. Omatsu, *Opt. Express*, 14, 10657 (2006).
- [13] K. Nawata, M. Okida, K. Furuki, and T. Omatsu, 15, 9123 (2007).

Rh:BaTiO₃ および Fe:LiNbO₃ を用いた 800 nm フェムト秒レーザーの 2 光波混合増幅

Two-wave mixing amplification of Rh:BaTiO₃ and Fe:LiNbO₃ by 800 nm femtosecond pulse laser

伊東 大騎 (B4)、モハメド マスドゥル カビル(D3)

Daiki Itoh, Masdul Kabir

Abstract

We report the experimental results in the two-wave mixing amplification of two different photorefractive crystals, Rh:BaTiO₃ and Fe:LiNbO₃, using 800 nm femtosecond pulse laser for the first time. Functionality as a photorefractive crystal is also observed for both crystals.

1. はじめに

フォトリフラクティブ(PR: Photorefractive)効果は光強度の空間分布によって屈折率変化が形成される現象であり、2 光波混合はそのユニークな現象の 1 つとして知られている。可視連続発振(CW: Continuous Wave)レーザーのように狭いスペクトル線幅を持つ光を使った 2 光波混合増幅(TWMA: Two-Wave Mixing Amplification)は容易に確認できているものの、広帯域な超短パルスレーザーによる増幅作用についての報告例は少ない。特に 800 nm のフェムト秒レーザーによる増幅技術は未だ研究成果が成されておらず、唯一、Nishioka により 800 nm におけるパルス幅 9 fs、繰り返し周波数 76 MHz のフェムト秒パルスレーザーによる 2 光子吸収を用いた Fe:LiNbO₃ の回折実験が報告されている [1]。Nishioka は最大回折効率 27 % を記録しているが、この程度では著しい TWMA は見込めない。広帯域パルスレーザーでは実効的な格子形成領域が小さくなるため TWMA が困難であるのに加えて、これに適した PR 結晶がなかったというのも、報告

例が少ない理由の一つである。しかし、Huot によって 1.06 μm における繰り返し周波数 10 Hz、パルス幅 10 ns の Nd:YAG パルスレーザーによる Rh:BaTiO₃ の TWMA が確認されており、利得係数 14.2 cm^{-1} が得られたと報告されている [2]。波長 800 nm 付近でも高い光子吸収量を示すと報告されていることから、有望な PR 結晶として期待できる。

本研究では、Rh:BaTiO₃ および Fe:LiNbO₃ を用い、波長 800 nm におけるフェムト秒パルスレーザーによる 2 光波混合増幅計測を行った。また、800 nm における線形吸収が著しく低い Fe:LiNbO₃ に関しては、周波数チャープをかけて増幅作用の効率化を試みた。TWMA の広帯域性、時間波形計測についても報告する。

2. 実験セットアップ

チタンサファイアフェムト秒レーザー（波長 800 nm、パルス幅 30 fs、繰り返し周波数 76 MHz、

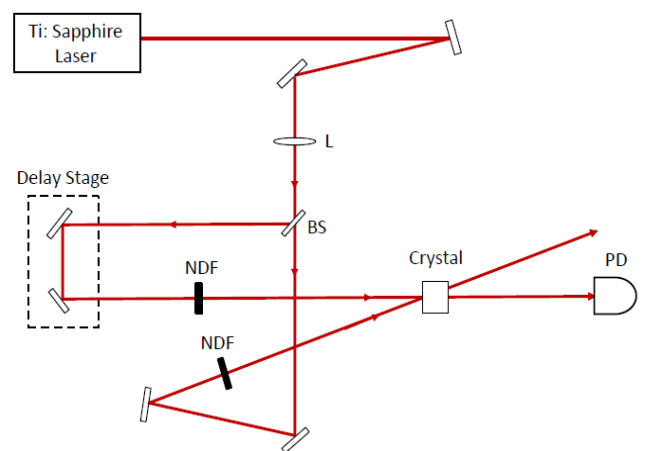


Fig. 1. Experimental setup of TWMA.

MIRA) を用いた Rh:BaTiO₃ および Fe:LiNbO₃ の TWMA 実験セットアップを Fig. 1 に示す。Fe:LiNbO₃ は厚さ 2 mm の AR コートのない結晶を使い、Rh:BaTiO₃ は厚さ 4 mm、Rh ドープ濃度 400 ppm の AR コート付き結晶(800 nm における残留反射率~3%)を用いた。このとき、Fe:LiNbO₃ の線形吸収係数は 0.1 /cm、Rh:BaTiO₃ の線形吸収係数は 1.31 /cm とおよそ 10 倍もの差がある。

Fig. 1 より、800 nm のフェムト秒パルスレーザーはビームスプリッター (BS: Beam Splitter) によってポンプ光(I_p)およびシグナル光(I_s)に分けられ、シグナル光は遅延ステージを通り、結晶の表面にてポンプ光と干渉する。また、シグナル光の光路中に設置した減光(ND: Neutral Density)フィルターで強度比を調整し、結晶透過後のシグナル光の強度を計測する。このとき、Fe:LiNbO₃ は著しく低い線形吸収を示すことから回折格子が十分に形成されるまで時間がかかる。そこで、厚さ 40 mm の石英ガラスをポンプ光の光路中に挿入し周波数チャープさせることで格子形成領域を大きく取り、回折効率の向上を目指した。Fe:LiNbO₃ 結晶は分散量が 210 fs²/mm、厚さが 2 mm しかないので結晶透過後のパルス広がりも顕著でないが、Rh:BaTiO₃ 結晶は分散量が 410 fs²/mm、厚さが 4mm もあるため、かなりパルス幅が広がる。従って、Rh:BaTiO₃ に関してはビーム径 0.6 mm 以下であればビーム交差領域に対して格子形成領域が十分に満たされている($W > H$)。

3. 実験結果

A. Rh:BaTiO₃ を用いた 2 光波混合増幅

波長 800nm においても 1.3 /cm の高い線形吸収を示す Rh:BaTiO₃ を使用した 2 光波混合増幅計測を行った。まずはシグナル光のみを照射させ光透過強度の標準値を計測した。次にポンプ光をシグナル光と干渉させ、3 分間ほど増幅するシグナル光の強度を

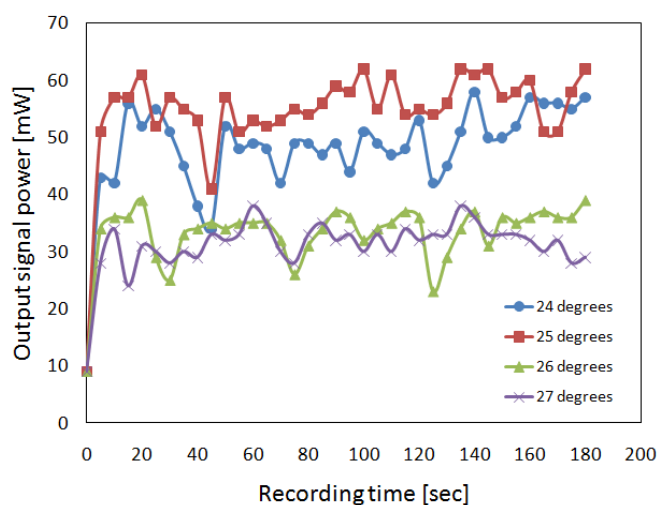


Fig. 2. Time evolution of two-wave mixing for Rh:BaTiO₃ by 800 nm femtosecond pulse laser, where $W/H = 3$.

計測した。また、全ての計測において強度比 1:10 を使用した。

はじめに、結晶面でのビーム径を 0.20 mm と設定し、ビーム交差領域 H に対して格子形成領域 W が目一杯おさまるようにした($W = 0.3$ mm, $H = 0.1$ mm, $W/H = 3$)。入射ピーク強度を 20.9 MW/cm²、219.2 MW/cm² とした。Fig. 2 にその計測結果を示す。このとき、シグナル光は~20 秒で最大増幅値に到達し、およそ 4~6 の増幅利得が得られた。結晶角度 24°、25°、26°、27°において、それぞれ 6.44、6.88、4.33、4.22 の利得が得られた。最高値に到達した後も信号の変動が確認できるが、これはビームファニングや干渉縞のずれによる現象であると考えられる。また、Fig. 2 より多少の結晶角度差は TWMA に影響を及ぼさないと判定するのが妥当である。

次に、ビーム交差領域に対して格子形成領域が十分でない場合の計測を行い、Fig. 2 と比較する($W = 0.3$ mm, $H = 0.55$ mm, $W/H = 0.54$)。このときの入射ピーク強度を 21.5 MW/cm²、215 MW/cm² とした。Fig. 3 にその計測結果を示す。この場合も応答速度は速く、~20 秒で最高増幅値に到達している。しかし、Fig. 2 に比べて形成される体積格子が小さい

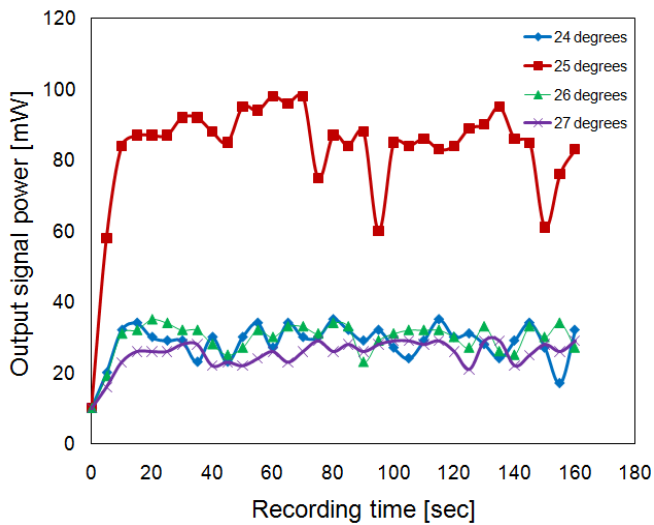


Fig. 3. Time evolution of two-wave mixing for Rh:BaTiO₃ by 800 nm femtosecond pulse laser, where $W/H=0.54$.

め、結晶角度 24°、25°、26°、27°における増幅利得は 2.9~3.86 と比較的により低い数値が得られた。従って、TWMA を最適化するには格子形成領域がビーム交差領域よりも大きく取れている必要がある。また、角度 25°において最大増幅利得 11 が得られたが、このような著しく高い増幅は、結晶の不均一性により稀に起きる現象である。

800 nm の CW レーザーを用いた TWMA 実験も行

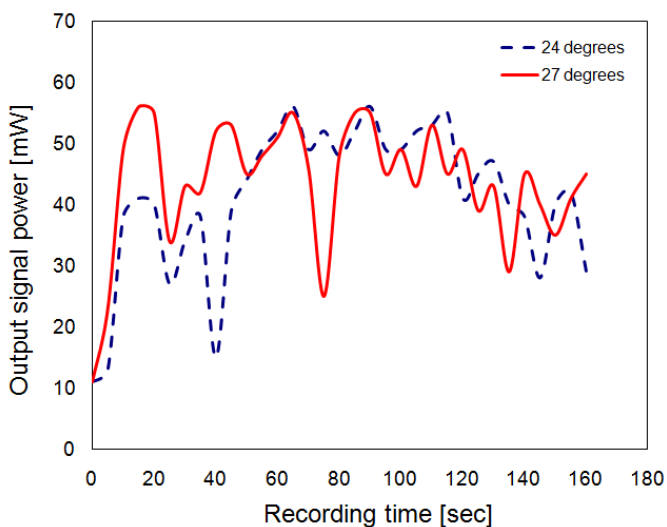


Fig. 4. Time evolution of two-wave mixing for Rh:BaTiO₃ by 800 nm CW laser.

った。このとき、Fig. 3 と同様に $H=0.55$ mm とし、入射平均強度を 3 W/cm^2 、 30 W/cm^2 とした。CW レーザーの場合は、ビーム交差領域に対して体積格子が容易に目一杯形成される。Fig. 4 にその計測結果を示す。このとき、結晶角度 24°および 27°において増幅利得 5~5.4 が~20 秒で得られた。また、CW レーザーの場合は多少の干渉ずれに対しても正確に反応してしまうため、パルスレーザーの TWMA に比べて激しい変動が確認できる。

最後に、周波数干渉法による周波数位相計測からパルスのスペクトル強度および位相が維持されていることを確認できた。その結果を Fig. 5 に示す。

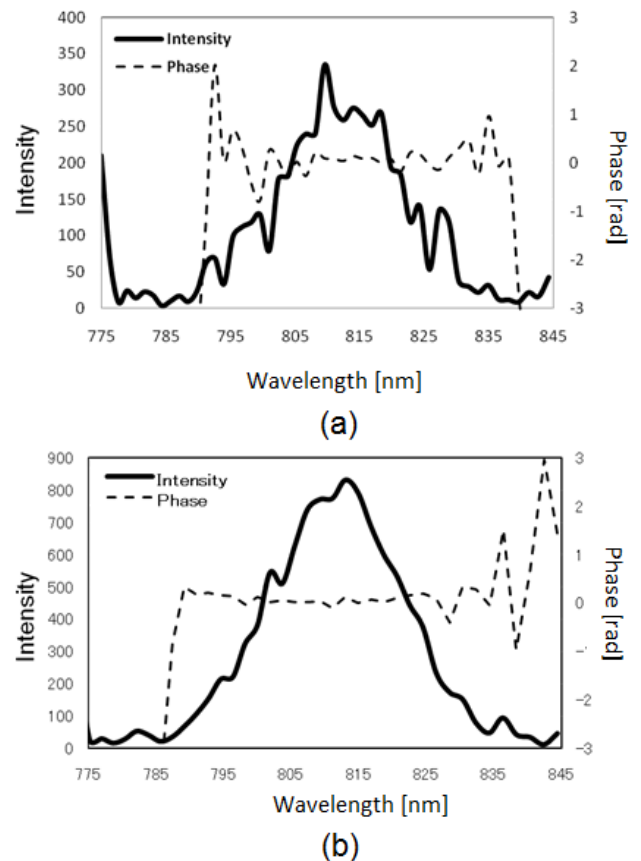


Fig. 5. Spectral interferometry for the phase measurement of (a) input and (b) amplified signal pulse in two-wave mixing amplification.

下記の理論式 [3] より、Fig. 5 で示す TWMA 後のスペクトル幅は 10 nm ($\kappa \sim 4 / \text{cm}$, $A=4.17 \mu\text{m}$, $n_0=2.2$ 、

$\theta_B=5.5^\circ$)となるが、計測結果では TWM 後もスペクトル幅 30 nm が維持されており、理論値とは異なる結果となった。

$$\Delta\lambda_{1/2} = \frac{2\kappa\Lambda}{\pi} n_0 \Lambda \cos \theta_B, \quad (1)$$

フェムト秒パルスレーザーを用いた PR 体積格子作成で問題となるのは、結晶内でのパルスの実効的な干渉体積が極めて小さい、あるいは体積格子が形成されるまで時間がかかり、結果的に回折効率が著しく低くなってしまうことにあるが、Rh:BaTiO₃ の場合は光子吸収量が十分に大きいため、パルスレーザーでも有効な PR 結晶として使えることが確認できた。パルスレーザーでも、CW レーザーと同様に 20 秒程度で最大増幅値が得られた。ただし製作が容易ではなく、温度管理も不可欠であることから取り扱いには十分な注意が必要である。

B. Fe:LiNbO₃ を用いた 2 光波混合増幅

Rh:BaTiO₃ は PR 結晶として有効的であることが確認できた。次には、0.11 /cm と低い線形吸収を示す Fe:LiNbO₃ を用いて同様の実験を行った。全ての計測において強度比 1:20 およびビーム径 0.30 mm を用いた。

まずは 800 nm における CW レーザーを使った TWMA 実験を行った。入射平均強度を 13 W/cm²、255 W/cm² とした。Fig. 6 にその計測結果を示す。このとき、最大利得 6 が 27 分後に観測できた。次にパルスレーザーによる TWMA 実験結果を Fig. 7 に示す。Fe:LiNbO₃ は Rh:BaTiO₃ に比べて光子吸収量が圧倒的に少ないため、パルスレーザーに関しては応答速度が著しく遅くなる。そこでポンプ光を周波数チャープさせ回折体積格子を大きくした状態で計測を行った。入射ピーク強度を 6 MW/cm²、118 MW/cm² とし、パルス幅を 30 fs、137 fs とした。このとき、 $W/H = 0.9$ と体積格子は十分に形成されるのにも関わらず、数十分観測しても最大利得 2.5

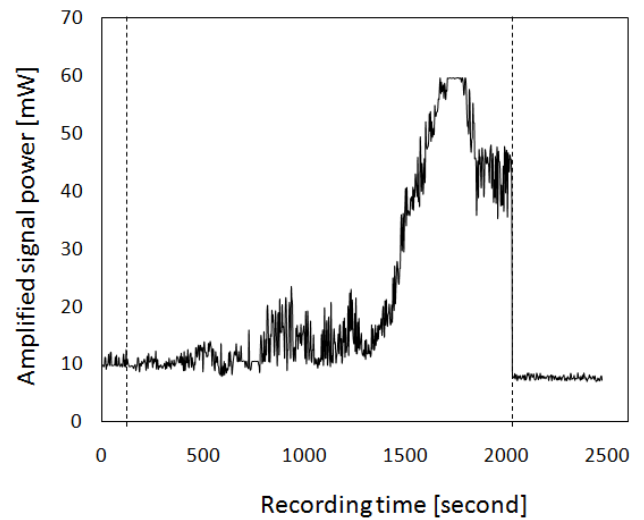


Fig. 6. Time evolution of two-wave mixing for Fe:LiNbO₃ by 800 nm CW laser.

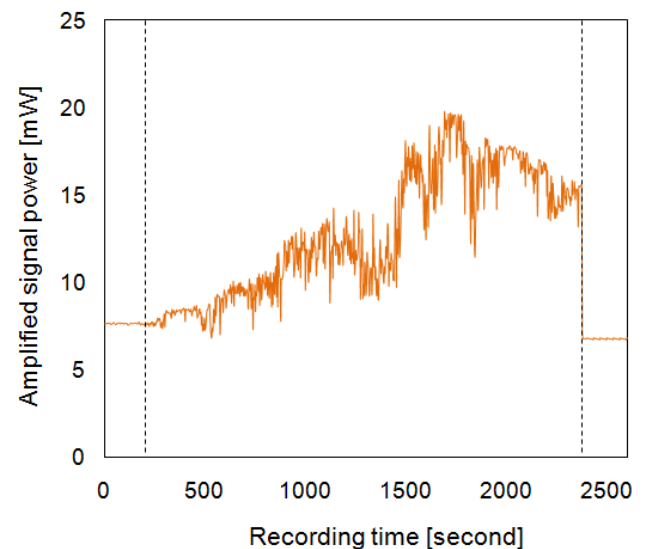


Fig. 7. Time evolution of two-wave mixing for Fe:LiNbO₃ by 800 nm femtosecond pulse laser, where $W/H = 0.9$.

しか観測できなかった。従って、Fe:LiNbO₃ では Rh:BaTiO₃ なみの増幅が得られるのに数時間かかる可能性があり、著しい向上は期待できない。

4. まとめ

Rh:BaTiO₃ は近赤外波長で高い線形吸収を示すことから数十秒以内に高い TWMA を示し、PR 結晶

としての性質は抜群であることが確認できた。また、
ビーム径を大きく取り周波数チャープさせること
で、さらに高い TWMA を示すと考えられる。一方、
Fe:LiNbO₃ を使った TWMA は最大増幅値に到達す
るまで長時間かかるため、劇的な向上は望めない。

References

- [1] Hajime Nishioka, Keisuke Hayasaka, Shuji Ohta, Hitoshi Tomita, and Kenichi Ueda: Opt. Expr. **15** (2007) 4830
- [2] N. Huot, J.M.C. Jonathan, G. Roosen, D. Rytz: Opt. Lett. **22** (1997) 976
- [3] P. Yeh: *Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics*, WILEY (1993)

光電子コインシデンス計測法を用いたフェムト秒UVレーザー励起エタノールの解離性イオン化反応過程の解析

Photoelectron-photoion coincidence imaging for dissociative ionization of ethanol in intense femtosecond laser fields

生田朋也 (M2),
Tomoya Ikuta

Abstract

The dissociative ionization of ethanol in intense UV laser fields (400 nm, 96 fs) was investigated, and the correlation between the ionization and dissociation processes, and electronic excitation mechanism were elucidated based on channel-specific coincidence photoelectron images.

1 はじめに

これまで、高強度なレーザーパルスを用いた化学反応制御は、さまざまな研究が行われている。現在までに、分子の選択的結合解離反応や結合再配置反応などの制御が達成されている[1-3]。これまでに、高強度レーザー場における気相エタノール分子(C_2H_5OH)の解離性イオン化反応を調査してきた[4-6]。しかし、これまでの研究は、エタノール分子にレーザーパルスを照射した際に生成されるイオンのみを観測し、その情報から物理現象を考察してきた。そのため、解離反応における詳細なメカニズムが明らかにされていなかった。そんな中、最近、エタノールの解離性イオン化反応において光電子・光イオンの同時計測による反応過程の詳細な解析が進んできた[7]。この研究では、近紫外領域の高強度フェムト秒レーザーパルスをエタノール分子に照射し、解離イオンチャンネルごとに相関する光電子の運動量画像を計測し、光電子スペクトルを取得している。そして、照射するパルスの強度・パルス幅を変化させた時に観測された光電子スペクトルからイオン化メカニズムの変化を示した。

我々は、高強度な紫外領域のフェムト秒レーザーパルスを用いて、エタノール分子に関して光電子・光イオン同時計測を行い、400 nm パルス特有のイオン化機構を明らかにした。今回、計測された各生成イオンに相関した光電子スペクトルをより定量的に解析することで、400 nm パルスにおけるエタノール分子のイオン化機構および電子励起機構を明確に示すことができた。また、

400 nm パルスにおいて、強度を変化させていった際のイオン化機構及び電子励起機構を明確に示すことで、強度変化に応じたイオン化メカニズムの変化を定量的にはじめて明らかにした。

2 実験

実験は、チャープパルス増幅器(CPA)によって得られる高強度フェムト秒レーザーパルスを用いた。中心波長 796 nm, パルス幅 38-fs, パルスエネルギー 1.8 mJ/pulse のレーザーパルスである。そして、CPA 後に 0.1 mm の BBO 結晶に入射することで、中心波長 400 nm, パルス幅約 96 fs の第2高調波を発生させ、紫外領域パルスとする。今回、紫外領域パルスは、Self-Diffraction Frequency Resolved Optical Gating (SD-FROG)を用いることで、パルス幅を測定した。測定された紫外領域レーザーパルスは、 $f = 200$ mm の集光レンズを用いて光電子光イオン運動量画像同時計測装置内に集光した。今回の光電子光イオン同時計測実験においては、Fig.1 に示したような装置を用いた。

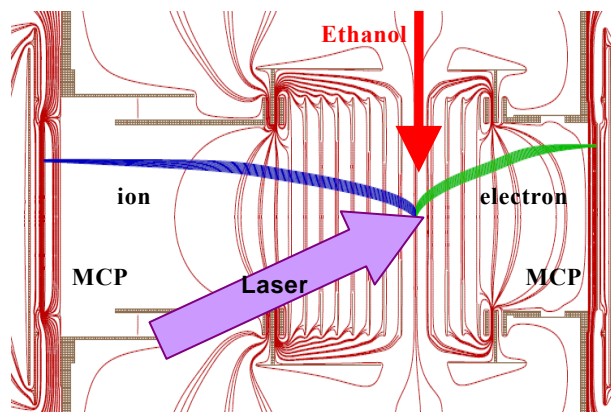


Fig.1 Photoelectron-Photoion Coincidence Imaging Apparatus is shown.

真空チャンパー内にエタノールの気体分子を注入し、そこへ、高強度紫外領域レーザーパルス（400 nm パルス）を集光した。そこで、イオン化反応が起き、生成される光イオンとイオン化の際に剥ぎ取られる光電子をチャンパー内の高電圧によって マイクロチャンネルプレート (Micro-Channel Plate: MCP) へ飛ばし検出した。このとき検出される光電子の検出時刻と検出位置から、3次元の光電子運動量画像が取得され、その運動量から光電子のエネルギーが導かれるので、最終的に光電子スペクトルが取得される。真空チャンパー内は、1 レーザパルスに対して、1 分子以下が反応するような真空度を保つ。照射する紫外領域レーザーパルスの強度を変化させ、その変化に応じた解離チャンネルごとの光電子スペクトルを計測し、イオン化及び電子励起機構の詳細を観測した。

3 実験結果

まず、以前に行われた近赤外領域レーザーパルス（783 nm, 35 fs, 1 kHz, 9.3 TW/cm²）によるエタノール分子の解離チャンネルごとの光電子スペクトルを解説する[7]。親イオン C₂H₅OH⁺、親イオンから水素が脱離したイオン C₂H₄OH⁺に相関する光電子スペクトルにおいては、周期的な構造が現れる。これは、ATI (Above Threshold Ionization) 構造という。それに対して、C-C 結合解離に対応するイオン CH₂OH⁺、C-O 結合解離に対応するイオン C₂H₅⁺に相関する光電子スペクトルは、構造がなく全体として広がったスペクトルを示す。ここで、照射する近赤外レーザーパルスの強度を強くしていったとき、解離イオンに相関した光電子スペクトルにおいて、ATI 構造が現れてくるのが確認されている。強度が 24 TW/cm² のとき、解離イオンに相関する光電子スペクトルは、親イオンの ATI 構造にはほぼ一致することが分かっている。これは、親イオンもしくは水素が脱離したイオンの状態を経由して解離イオンへイオン化していることを意味している。つまり、強度を強くすることによって、それまで解離イオンへは直接的な 1 価イオンの励起準位への遷移によるイオン化が支配的であったものが、親イオンもしくは水素脱離イオンの電子基底状態を経由した段階的なイオン化が非常に大きくなるということである。こういった結果を踏まえ、今回、紫外領域レーザーパルス（400 nm, 96 fs, 1 kHz）を用いて、光電子スペクトルを観測した。まず、強度が最も弱い 1.3 TW/cm² における光電子スペクトルを Fig.2 に示す。

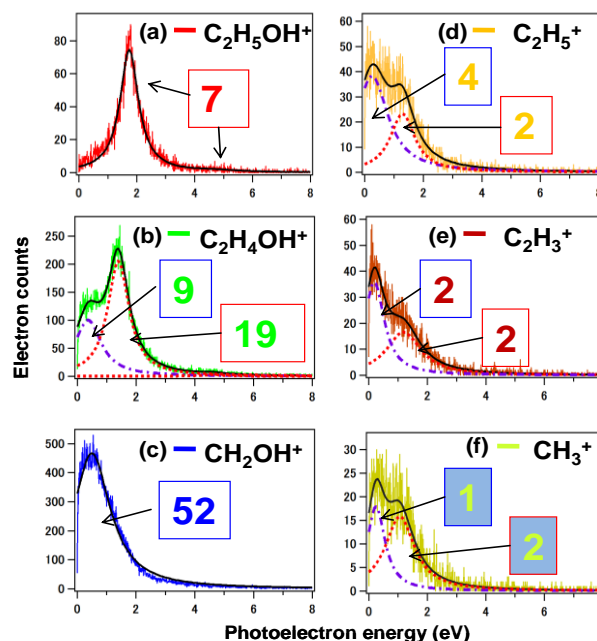


Fig.2 Photoelectron spectra correlated with the formation of (a) C₂H₅OH⁺, (b) C₂H₄OH⁺, (c) CH₂OH⁺, (d) C₂H₅⁺, (e) C₂H₃⁺, and (f) CH₃⁺ measured with intense UV laser pulses ($\lambda \sim 400$ nm, $I = 1.3$ TW/cm², $\tau = 96$ fs). These spectra are reproduced well with a combination of Lorentzian functions (solid black line). The spectra are deconvoluted into the peaks corresponding to the four photon and five photon ionization to the electronic ground state (dotted line) and the four photon ionization to the first electronically excited state (dash-dotted line).

今回、取得した各生成イオンに相関した光電子スペクトルは、それぞれ、1 価の電子基底状態へイオン化した成分と 1 価の電子励起状態へイオン化した成分の 2 つによって説明することができる。そこで、それぞれの光電子スペクトルに対して、ローレンツ関数によるフィッティングを行った。フィッティングした赤色と紫色のローレンツ関数のピーク面積がそれぞれ 1 価の電子基底状態と 1 価の電子励起状態へのイオン化の分岐比を表す。その足し合わせによるフィッティング結果が黒のラインである。さらに生成された各イオンのイオン収量比を面積比と対応させてグラフの中に数値として記した。親イオンに相関した光電子スペクトルは、4, 5 光子励起による 1 価の電子基底状態へのイオン化を表す 2 つのピークが観測され、2 つのローレンツ関数によってフ

イットティングされた。CH₂OH⁺の解離イオンに相関する光電子スペクトルは、親イオンの4光子励起に対応したピークよりも～1.25 eV 低エネルギー側にシフトしたブロードなピークが観測され、1つのローレンツ関数によってフィッティングされた。このエネルギーシフトは、1価の電子基底状態と1価の第一電子励起状態のエネルギー差に対応しているため、このスペクトルのピークは、4光子励起による1価の第一電子励起状態へのイオン化を表す。イオン収量比を見ると、全体の52%が1価の電子励起状態へイオン化し、CH₂OH⁺を生成したことになる。水素脱離イオンに相関した光電子スペクトルは、まず4,5光子励起による1価の電子基底状態へのイオン化を表す2つのピークが観測された。ここで、注目すべきなのは、0 eV 付近にブロードなピークが現れていることである。これは、CH₂OH⁺に相関した光電子スペクトルで観測された、4光子励起による1価の第一電子励起状態へイオン化する成分に対応している。つまり、3つのローレンツ関数によってフィッティングされていて、水素脱離イオン生成には、1価の電子基底状態へイオン化する経路と、1価の電子励起状態へイオン化する経路が存在することになる。残りのC₂H₅⁺、C₂H₃⁺、CH₃⁺（炭化水素イオン）は、どれも類似していて、約1.5 eV 付近に鋭いピークがあり、0 eV 付近にブロードなピークが存在している。まず、ブロードなピークは、CH₂OH⁺に相関した光電子スペクトルに類似していることから、4光子励起による1価の第一電子励起状態へイオン化する成分を表している。次に、約1.5 eV 付近の鋭いピークは、水素脱離イオンに相関した光電子スペクトルの鋭いピーク位置にほぼ一致していることから、1価の電子基底状態（の振動励起状態）へイオン化する成分を表している。よって、3つの炭化水素イオン生成に相関した光電子スペクトルは、どれも2つのローレンツ関数によってフィッティングされていて、3つの炭化水素イオン生成には、1価の電子基底状態へイオン化する経路（その後、段階的に電子励起する）と、1価の電子励起状態へイオン化する経路（その後、段階的に電子励起する）が存在することになる。生成されたイオン全体で見ると、約7割の解離イオンが生成されているが、そのほとんどが、1価の電子励起状態へイオン化する経路から生成されていることが明らかとなった。

次に、強度が最も強い18.1 TW/cm²における光電子スペクトルを Fig.3 に示す。

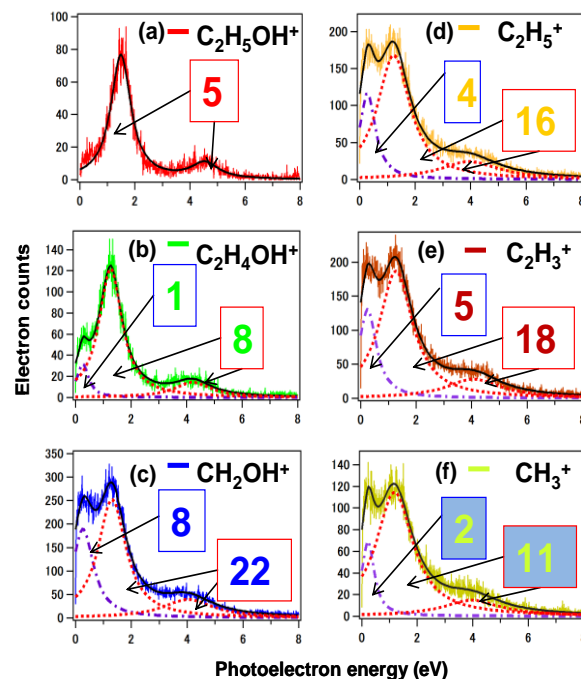


Fig.3 Photoelectron spectra correlated with the formation of (a) C₂H₅OH⁺, (b) C₂H₄OH⁺, (c) CH₂OH⁺, (d) C₂H₅⁺, (e) C₂H₃⁺, and (f) CH₃⁺ measured with intense UV laser pulses ($\lambda \sim 400$ nm, $I = 18.1$ TW/cm², $\tau = 96$ fs).

親イオンに相関した光電子スペクトルは、4,5光子励起による1価の電子基底状態へのイオン化を表す2つのピークが観測され、2つのローレンツ関数によってフィッティングされた。水素脱離イオンに相関した光電子スペクトルは、まず4,5光子励起による1価の電子基底状態へのイオン化を表す2つのピークが観測された。そして、0 eV 付近にブロードなピークが観測され、これは、4光子励起による電子励起状態へイオン化する成分に対応する。よって3つのローレンツ関数によってフィッティングされていて、水素脱離イオン生成には、強度が弱い時と同様に1価の電子基底状態へイオン化する経路と、1価の電子励起状態へイオン化する経路が存在することになる。そして、CH₂OH⁺、C₂H₅⁺、C₂H₃⁺、CH₃⁺は、どれも類似した構造を示した。まず、約1.2, 4.0 eV 付近に鋭いピークがあり、それぞれ4, 5光子励起して1価の電子基底状態へイオン化した成分を表す。一方、0 eV 付近にブロードなピークが存在し、これは、4光子励起して1価の第一電子励起状態へイオン化する成分を表す。よって、どれも3つのローレンツ関数によってフィッティングされていて、1価の電子基底状態へイオン化する経路と、1価の電子励起状

態へイオン化する経路が存在することになる。イオン収量比を見ると、1 価の電子基底状態へイオン化した後に段階的な電子励起をして、 CH_2OH^+ 、 C_2H_5^+ 、 C_2H_3^+ 、 CH_3^+ がそれぞれ全体の 2.2%、1.6%、1.8%、1.1% ずつ生成されている。全体で見ると、約 9 割の解離イオンが生成されるが、その多くが、1 価の電子基底状態へイオン化した後に段階的に電子励起する経路から生成されていることが明らかとなった。

本実験では、1.3 ~ 18.1 TW/cm^2 において、5 つの集光強度で得られた光電子スペクトルに、ローレンツ関数によるフィッティングを行い、強度に依存したイオン化経路を解析した。強度に依存した電子基底状態もしくは電子励起状態へのイオン化経路の比率を Fig. 4 に示す。

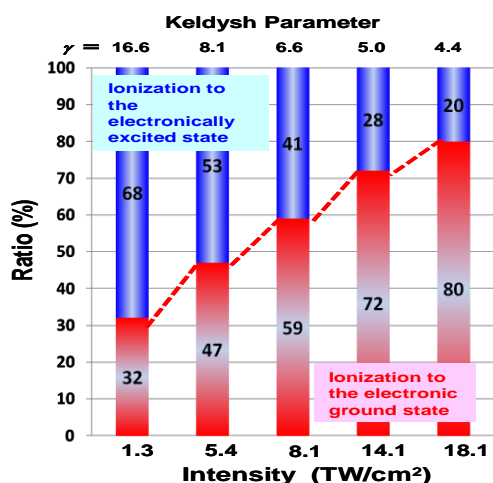


Fig.4 The intensity dependence of the branching ratio between the electronic ground state and the electronically excited state upon the ionization is shown.

集光強度が 1.3, 5.4, 8.1, 14.1, 18.1 TW/cm^2 であるのに対して、それぞれケルディッシュパラメータが 16, 8.1, 6.6, 5.0, 4.4 となっている。最も強度が弱い時は、電子励起状態へのイオン化が支配的であるが、強度を強くしていくことによって、徐々にイオン化の経路が変化し、電子基底状態へのイオン化の比率が増えていくことがわかる。この要因として考えられるのがトンネルイオン化である。トンネルイオン化領域では、イオン化ポテンシャルが急激に高くなるので、電子励起状態へのイオン化はほとんど起こらなくなり、基本的に電子基底状態へのイオン化が中心に起こる。つまり、強度を強くすることで多光子イオン化からトンネルイオン化の領域へと移行したと考えることができる。

4 結論

今回、紫外領域レーザーパルス (400 nm, 96 fs, 1 kHz) を用いて、気相エタノール分子の光電子光イオン同時計測実験を行い、生成されるイオンチャンネルごとに相関した光電子スペクトルを計測した。そこから、紫外レーザー特有のイオン化及び電子励起機構を定量的に解析し、以下のことが明らかとなった。

- ①400 nm パルスを照射し、強度が 1.3 TW/cm^2 の時、1 価の電子励起状態へのイオン化が支配的に起こり、それによって主に解離イオンが生成される。
- ②強度が 18.1 TW/cm^2 の時、1 価の電子基底状態へのイオン化が支配的に起こり、その後、段階的な電子励起によって主に解離イオンが生成される。
- ③強度を強くしていくことで、イオン化のメカニズムが多光子イオン化からトンネルイオン化へと移行していく。

5 謝辞

本研究は、独立行政法人日本原子力研究開発機構関西光科学研究所光量子科学ユニットにおける実験環境で、研究員板倉隆二博士のご指導を受け行われました。厚く御礼申し上げます。また、共同研究者である穂坂綱一博士、赤木浩博士にも厚く御礼申し上げます。

References

- [1] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber, *Science*, **282**, 919 (1998).
- [2] R. J. Levis, G. M. Menkir, and H. Rabitz, *Science*, **292**, 709 (2001).
- [3] B. J. Sussman, D. Townsend, M. Y. Ivanov and A. Stolow: *Science*, **314**, 278 (2006)
- [4] R. Itakura, K. Yamanouchi, T. Tanabe, T. Okamoto, and F. Kannari, *J. Chem. Phys.*, **119**, 4179 (2003).
- [5] H. Yazawa, T. Tanabe, T. Okamoto, M. Yamanaka, F. Kannari, R. Itakura, and K. Yamanouchi, *J. Chem. Phys.*, **124**, 204314 (2006).
- [6] H. Yazawa, T. Shioyama, Y. Suda, F. Kannari, R. Itakura and K. Yamanouchi, *J. Chem. Phys.*, **125**, 184311 (2006).
- [7] K. Hosaka et al., *Chem.Phys.Lett.* 475, 19 (2009)

Axial scanning by pulse shaper for simultaneous spatial and temporal focusing of femtosecond laser pulses

Qiyuan Song (M1), and Yasunori Sunohara (M2)

Abstract

We develop a wide-field simultaneous spatial and temporal focusing (SSTF) setup for two-photon excited fluorescence microscopy and its axial focusing point is scanned by second-order dispersion added by a femtosecond laser pulse shaper placed before the setup. We measure the axial resolution of second harmonic generation (SHG) at the edge of a BBO crystal.

1. Introduction

Simultaneous spatial and temporal focusing (SSTF) is proposed and realized in 2005 [1,2]. Compared with point-scanning or line-scanning multi-photon microscopy, it's possible to obtain full-frame depth resolved imaging completely without scanning in the x-y plane [2]. On the other hand, it shows the great potential to significantly reduce the background excitation in multi-photon microscopy which limits the imaging depth in highly scattering biological specimens [1]. Zhu developed the analytical expressions to describe this method [1], while Oron demonstrated the axial resolution of 4.5 μm for SSTF two-photon microscopy which is comparable to that of line-scanning two-photon microscopy [2]. Later Dust showed that SSTF can linearly scan the temporal focal plane axially by adjusting the group velocity dispersion [3]. This shows a highly promising application, axial scanning multi-photon fluorescence fiber probe without any moving parts at the distal end [3].

In our work, first we built a wide-field SSTF setup and verified its axial resolution by a differential SHG detection scheme [4] where the axial resolution of the second harmonic signal generated at the edge region of BBO crystal is measured. Then, we used a femtosecond laser pulse shaper to add the group delay dispersion (GDD) in order to scan the temporal focal plane axially.

2. Experimental setup

We built an SSTF setup shown in Fig. 1. We used a mode-locked Ti:Sapphire laser (Venteon) with an average power of 130mW and a repetition rate of 150 MHz as a light source. The bandwidth is 450 nm and the central wavelength is 800nm. In the present SSTF setup, not all the spectrum was used. The actual bandwidth we used was 70 nm, (800- 870 nm). The actual laser power after the objective lens was 4-6 mW. The laser beam was first sent to a pulse shaper consisting of a couple of grating and lens, and a liquid crystal spatial light modulator LC-SLM). Then, the laser beam was angularly dispersed with a diffractive grating ($G=150/\text{mm}$) and collimated by the mirror with a focal length of 400 mm. Finally, the beam was focused by the objective lens (Olympus UPLSAPO 40X) with focal a length of 4.5 mm and a numerical aperture of 0.95 into a 300- μm thick BBO crystal. The second harmonic generation signal was extracted by a dichroic mirror and detected by the photo-multiplier.

In order to calibrate the distance between grating and focusing mirror to cancel the geometric dispersion, we use a spatial spectral interferometer (SSI) to measure the spectral phase and tune the distance until there is no dispersion [5]. Figure 2 shows the SSI measurement result when there was no dispersion.

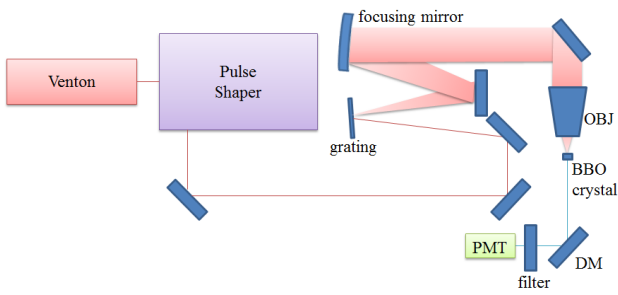
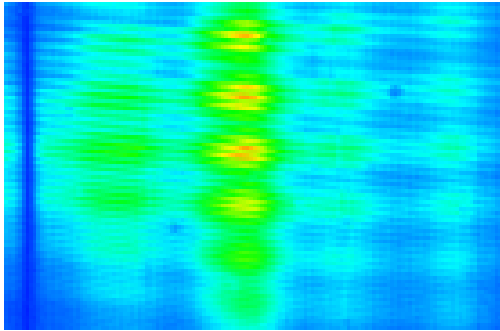
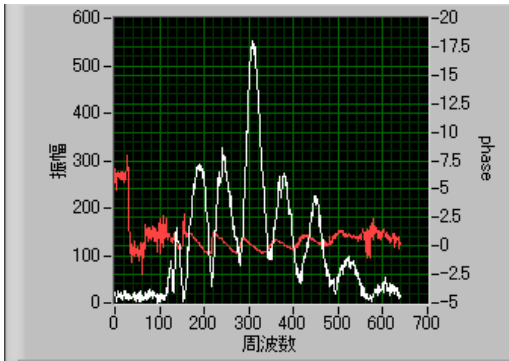


Fig. 1. SSTF experimental setup. Vention: mode-locked Ti:Sapphire laser. OBJ: objective lens (Olympus UPLSAPO 40X). DM: dichroic mirror. PMT: Photomultiplier tube.

Note that the saw-like phase was the measurement error came from the background interference pattern.



(a)



(b)

Fig. 2 SSI measurement result (a) SSI pattern (b) calculated phase and spectrum from the pattern.

In order to optimize the distance between objective lens and focusing mirror, we used the zero-order diffracted light and measure the central power one meter away from the objective lens by a CCD camera. Once we tune the distance to get the

highest central power, the distance is optimized which means the diffraction effect for each mono-chromatic beam is lowest in SSTF setup.

3. Results

First, we compensate for the dispersion generated by objective lens and other possible optics in the SSTF system by pulse shaper. We used the zero-order diffraction light and measure the SHG signal. We tune the group delay dispersion (GDD) by pulse shaper to get the highest SHG signal. Figure 3 shows the relation between GDD and SHG signal.

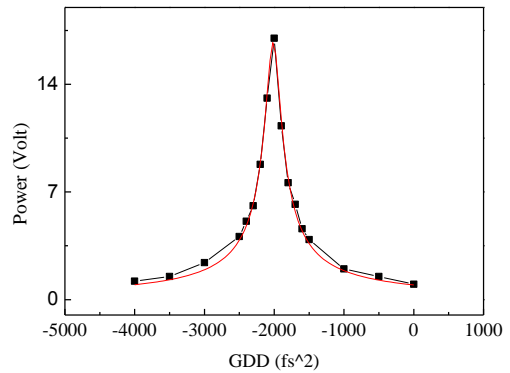
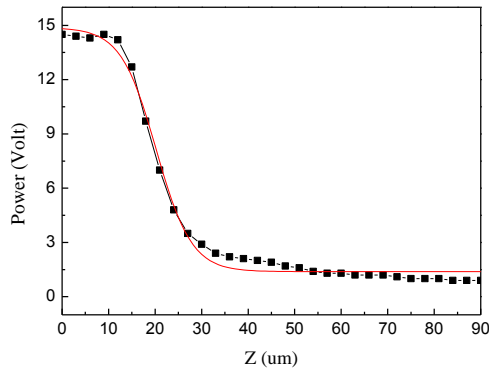


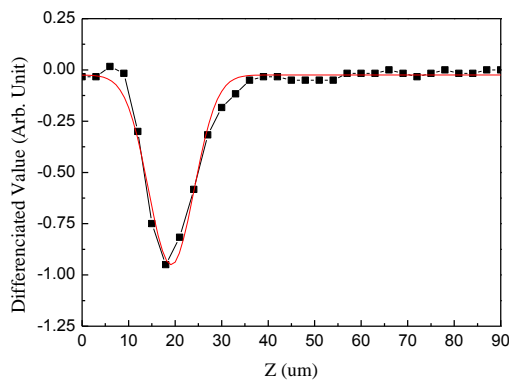
Fig. 3 SHG signal power and GDD relationship

Then, we used the axial edge scheme to measure the SHG signal generated by the SSTF setup and estimate the axial resolution of SSTF setup. Note that the SHG resolution is the same as the two-photon excitation resolution for two-photon microscopy since these are only determined by the amplitude and phase distribution of the laser beam. Figure 4 shows the result. The axial resolution of our system is 15 μm . Note that the dispersion of the BBO crystal itself and the refraction is the error source for this measurement.

Finally, we tune GDD by the pulse shaper to axially scan the focal plane. For every GDD value, we measured the axial position of the middle point of SHG signal using the axial edge scheme. Figure 5 shows the result. It shows good linearity between axial position of focal plane and added GDD value. Note that there are



(a)



(b)

Fig. 4. Axial resolution measurement by axial edges: (a) direct measurement by BBO crystal; and (b) differentiated value from (a).

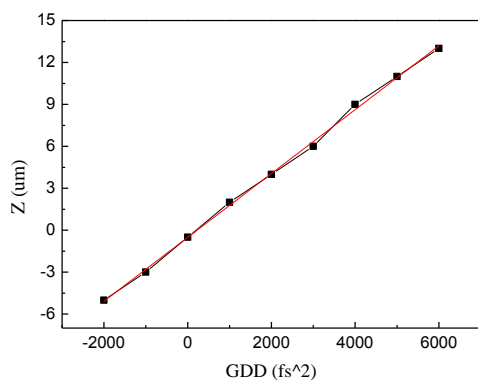


Fig. 5. Change in axial position of the focal plane by GDD added to the excitation laser pulses.

more errors when the GDD is larger due to the limitation of the pulse shaper.

4. Conclusion

We succeeded in building the wide-field SSTF setup. We verified the axial resolution by using axial edge scheme of a BBO crystal. The axial resolution of our setup is 15 μm . Furthermore, we succeeded in tuning GDD by pulse shaper to linearly scan the focal plane.

Reference

- [1] G. Zhu et al., Optics Express, 13, 2153 (2005).
- [2] D. Oron et al., Optics Express, 13, 1468 (2005).
- [3] M.E. Dust et al., Optics Express, 14, 12243 (2006).
- [4] E. Stelzer et al., Optics Communications, 104, 223 (1994).
- [5] A.P. Kovacs et al., Optics Letters, 20, 788 (1995).

プラズモン時空間制御に用いる微細加工ナノ構造試料の設計、作製

Manufacturing and design of nano-samples for spatiotemporal control of plasmons

原田卓弥(D3)

T. Harada

Abstract

Well designed nanostructures must be prepared to demonstrate spatiotemporal control of local plasmon or surface-plasmon polariton (SPP) by shaped femtosecond laser pulses. We design Au nanocrosses to demonstrate polarization dependent local plasmon resonance, which could be measured by SNOM or dark-field microscopy. E-beam lithography is employed for these nano-fabrication. We also propose a new functional plasmon enhancement structure, Bull's eyes..

1. はじめに

近年、近接場光学、プラズモニクスやナノフォトニクスといった回折限界以下の寸法領域で光を扱う分野が注目されている。我々は広帯域の超短パルスレーザを用いたプラズモンの時空間制御を目的に幾つかの手法を用い研究を行っている。群速度分散を乗せた超広帯域フェムト秒レーザパルスとアスペクト比の異なる金ナノロッドの組み合わせにより、ナノ領域での時空間制御が可能であることは計算により示した[1]。これらを実験的に証明するためには作り込まれたナノ構造を設計し作製することが不可欠である。

測定試料としてガラス基板平面に設計されたナノ構造を配置されたものを用いることは我々の研究の原理実証に非常に有用である。そこで、シミュレーションによって構造による特性を計算し、それに基づき設計した構造を微細加工法を用い測定試料の作製を試みた。

2. 微細構造設計および作製

現在学術および産業の分野の研究、開発において CAE (Computer Aided Engineering)は無くしてはならないものと言っても過言でない。CAE で解析される領域は電磁波のみならず力学、熱と多岐に渡り、それぞれ単

独での解析のみならず、複合的な解析も可能となってきた。CAEにより設計、試作、評価という流れから改めて設計にフィードバックするというループのプロセスを大幅に短縮することができ、時間と費用を劇的に圧縮することが可能となる。今回、微細構造試料作製にあたり FDTD(Finite Define Time Domain)法を用いた電磁波解析ソフトにより微細構造の設計および評価を行った。

従来、我々は粒径が異なる銀ナノ粒子やアスペクト比の揃った金ナノロッドをガラス基板にスピコート法により塗布した試料を使用していたが、原理実証のためには微細加工により作り込まれた形状の測定が不可欠である。Fig.1 に設計した微細構造を示す。金ナノロッドはそのアスペクト比を変化させることにより局在プラズモンの共鳴波長が異なることがよく知られている[2]。Fig.1(a)は金ナノロッドを基に設計した長軸長が異なる十字型の金ナノクロス構造で、偏光方向を変化させることにより、異なる長軸方向の共鳴波長でプラズモン共鳴が起こる構造となっている。

Fig.1(a)の構造を作製するにあたり、微細加工を請け負ってもらえるメーカー (NTT-ATN) に発注した。先方の加工機器の仕様の都合により、加工方法は電子線描画(EB: Electron Beam)リソグラフィーを用いたリフトオフ加工で、最小線幅 50 nm、側面テーパ角が 45°~60° という条件である。ロッドは短軸長が 50 nm、高さ 20 nm とし、長軸長をパラメータとして 120 nm – 180 nm の範囲で変化させている。計算に用いられた入射パルスの光源は中心波長 800 nm、半値全幅 400 nm、で 84 fs² の群速度分散を持つパルスを設定した。これは実際に実験で用いられる VENTEON の波長帯域である 600~1100nm を想定して作製した入射光源である。計算結果よりこれらのアスペクト比の組み合わせで構造を作製すれば使用レーザの波長帯域内で共鳴が起きることが確認できた。

Fig.1(b)は実際に作製された金ナノクロス構造を近接場光学顕微鏡(SNOM: Scanning Near-field Optical Microscope)で観察したものである。設計・作製した金

ナノクロス構造は近接場光学顕微鏡のプロープの分解能よりも小さいため、クロス形状を観察することは出来ないが、設計した寸法で構造が二つ並んで配置されていることが確認できた。計測結果の詳細は本集の松井氏らのレポートに譲る。

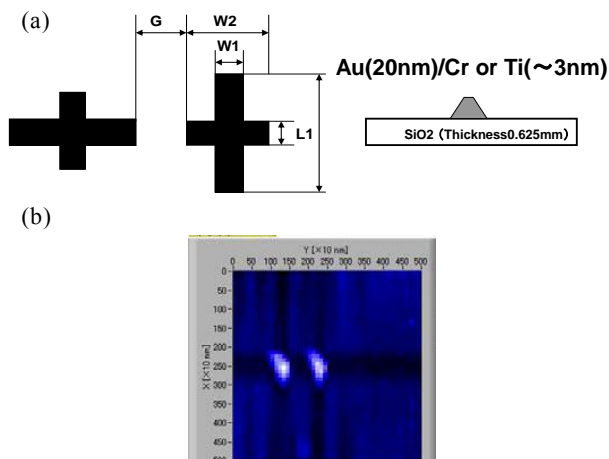


Fig.1 (a) Schematics of designed Au nanocrosses (b) topography mapping view nanocrosses.

3 Bull's eye デバイス

クロス構造以外にも広帯域フェムト秒レーザとの組み合わせにより従来には無かった特性を示すことができるプラズモニック構造の例を計算で示す。Fig.2(a)は Bull's eye 型プラズモン増強構造である[3]。我々の計算では中心の穴のみ基板まで抜いており、周囲に

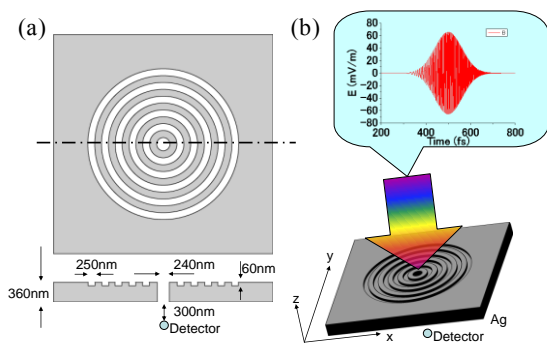


Fig.2 (a) Basic model of Bull's eye plasmon enhance device and (b) simulation condition using chirped ultra broadband fs laser pulses

数 100 nm の同心円状の溝をもつ Bull's eye 構造に鉛直方向から中心は超 800nm で 84fs^2 の群速度分散をもつ

広帯域 fs レーザパルスを照射し、穴の裏側直下 300nm の位置での透過電界を検出する計算モデルによりシミュレーションを行った。ブルズアイ構造に関しては構造設計と微細加工法との都合上、実際に作製するまでには至らなかった。

Fig.3 (a)は異なる溝ピッチを持つ2つの Bull's eye 構造を4分割し、x及びy軸対象に配置した構造である。図と同じ条件で偏光方向をyで入射したときの時間波形の出力を Fig.3 (b)に、xで入射したときの結果を Fig.3 (c)に示す。この構造では溝ピッチにより共鳴、透過波長が決定されるため、x偏光での入射は 350 nm ピッチの溝と共鳴を起こすため、y偏光での 250 nm 間隔の溝との共鳴よりも長波長の要素が共鳴する。入射波長に正の二次分散を乗せているため、Fig.3 (b)に比べ Fig.3 (c)の方が共鳴が早いタイミングで起こっていることが見て取れる。この構造では溝間隔の共鳴波長の違いを利用し、偏光方向を変化させることにより透過波長をスイッチングさせることが可能である。

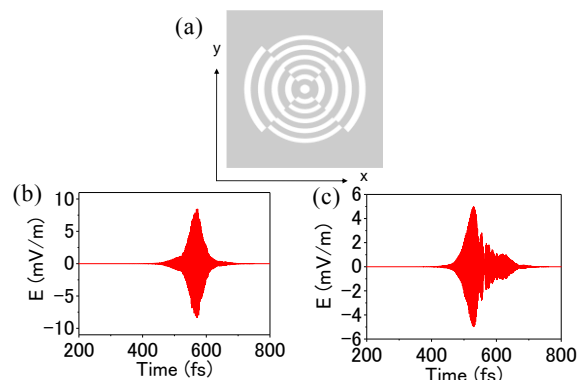


Fig.3 (a) Simulation model of the divided bull's eye structure. Detected time histories irradiated by (b) y polarization and (c) x polarization

さらにこの構造は対称性を必要としない。Fig.4 (a)のようにy軸対象に片側半面に 250 nm、もう半面に 350 nm ピッチの溝を刻み、入射光の偏光をx方向にし、Fig.2 (b)と同条件で計算するとそれぞれを単独で計算したときの波形を足し合わせた Fig.4 (b)に示す波形が測定された。

Fig.4 (d)はFig.3 (a)の4分割構造の境界に水平方向に入射したとき(Fig.4 (c))の計算結果である。構造の境目に沿って入射してもそれぞれの構造で入射したときの結果を足し合わせた Fig.4 (b)の結果と同様の結果を得ることが出来た。

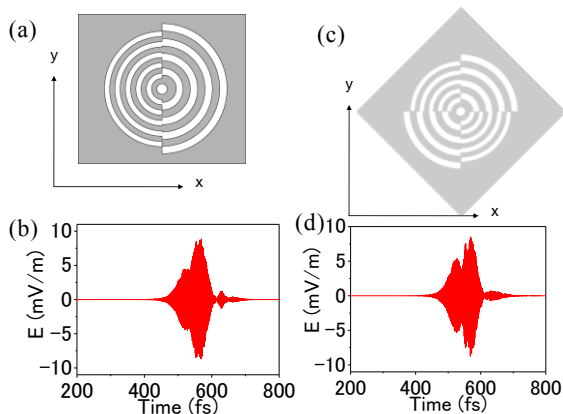


Fig.4 Calculation model of various Bull's eye enhance devices irradiated by chirped fs laser pulse with x polarization. (a) Hybrid bull's eye structure divided by y axis. (b) Time history of the structure Fig.4 (a). (c) 45 degree rotated structure of Fig.3 (a), (d) Time history of the Fig.4 (c)

これらの計算結果からさらに新しい Bull's eye 構造を提案することが可能である。Fig.5 に示すのが提案の一例である。円の中の色違いの扇状の領域 a、b、c および d は溝間隔の異なる Bull's eye 構造を分割したものである。Fig.5 (a)では Fig.3 (a)の 4 分割の分割数を増やし 6 分割にした構造である。x 偏光では領域 a による共鳴波長のピーク a が、偏光方向を x 偏光から 60 度、120 度と回すことにより共鳴ピーク b、c を検出することができる。

Fig.5 (b)は Fig.4 (a)、(c)を基に考案した全ての領域での溝間隔が異なるブルズアイ構造である。非対称構造では対になる構造による波形を足し合わせたピークが検出することが可能であることから x 偏光では共鳴ピーク a と b、y 偏光では共鳴ピーク c と d を検出できる。さらに境界に沿った入射では境界に接した領域の構造全ての共鳴を使用できることから、偏光方向を 45 度で入射することにより共鳴ピーク a、b、c および d を検出することが可能である。

これらの構造と広帯域フェムト秒レーザを使用することにより微細領域でプラズモン増強された任意の波長帯域のみを使用することが可能となる。

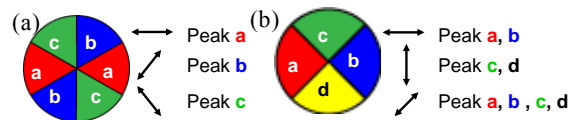


Fig.5 Ideas of the bull's eye structures and combination of polarization and detected enhanced peaks of wavelength, (a) divided bull's eyes in six pieces and (b) asymmetric divided bull's eye.

4. 結論

特性を FDTD 法によって計算し、設計した金ナノクロス構造を e-beam リソグラフィを用いた方法によりガラス基板上に作製することができた。構造は近接場光学顕微鏡および暗視野の測定において観察することができた。

Bull's eye 型プラズモン増強構造を基にし、広帯域フェムト秒レーザと組み合わせて使用することにより新たな機能を持つ形状を提案し計算した。この構造を作製できれば新たなナノ光源を実現することが可能となる。

References

- [1] T. Harada, K. Matsuishi, 神成研究室 Annual Report (2010).
- [2] S. Link, and M. A. El-Sayed, J. Phys. Chem. B, **103**, 8410 (1999)
- [3] T. W. Ebbesen et. al., Nature, **391**, 667, (1998)

周波数域干渉 NSOM を用いたフェムト秒プラズモンの応答関数計測

Measurement of response function of femtosecond Plasmon by spectral interferometry with Near-field scanning optical microscopy

松石圭一郎(M2), 大西秀太朗(B4)

K. Matsuishi and S. Onishi

Abstract

We applied a nova method of a spectral interferometry combined with Near-field scanning optical microscopy (NSOM) in the spatio-temporal characterization of femtosecond localized Plasmon at metal nano-structures. And, we measured response function of femtosecond localized Plasmon at metal nano-structures by this method.

1 はじめに

従来の伝播光には回折限界があり、波長の2分の1以下に光を絞ることは出来ない。しかし、デバイスの大容量化、高集積化、省電力化という時代の流れが、回折限界以下の光を扱う技術を求めている。ナノ領域で光を扱う方法の一つに金属ナノ構造のプラズモン現象を用いる方法がある。局在プラズモン共鳴とは、金属ナノ構造が特定の波長と共鳴して、その結果著しく増強した電場が、ナノ構造近傍に局在する現象である。ナノ構造の局在プラズモン共鳴現象には、入射波の周波数依存性、偏光依存性がある。この特性を応用することで、ナノ領域で局在プラズモン場を時空間的に制御できると考えられている。これまでに規則的なナノ構造とフェムト秒レーザーパルスのアダプティブ偏光波形整形を用いることで、局在プラズモンを空間的に制御する研究が報告されている[1]。また、局在プラズモンの時空間制御を、プラズモン応答関数を測定して、励起光の波形整形とプラズモン応答関数によって実現するという研究も報告されている[2,3]。

我々は局在プラズモンの時空間制御を目指して、まず周波数干渉(SI)法と近接場光学顕微鏡(NSOM)を組み合わせた新たな測定系(SI-NSOM)により、金属ナノ構造におけるフェムト秒レーザー励起局在プラズモンの時空間特性を測定し、プラズモン応答関数を計測した。

今後、測定したプラズモン応答関数と励起光のフェムト秒波形整形技術を用いることで、局在プラズモン場の時空間制御が実現可能だと考えられる。

2 理論

この章では、プラズモン応答関数によるプラズモン場の制御について簡単に説明する。プラズモン応答関数を $\mathbf{E}_{\text{impulse}}(\square, \mathbf{r})$ 、波形整形された入射波を $S_{\text{shaped}}(\square)$ とすると、制御されたプラズモン場 $\mathbf{E}_{\text{new}}(\square, \mathbf{r})$ は、

$$\mathbf{E}_{\text{new}}(\omega, \mathbf{r}) = S_{\text{shaped}}(\omega) \cdot \mathbf{E}_{\text{impulse}}(\omega, \mathbf{r})$$

と表すことができる。すなわち、プラズモン応答関数を求めることができれば、その応答関数とフェムト秒波形整形技術によって、局在プラズモン場は時空間的に制御が可能であると考えられる。

3 実験セットアップ

SI-NSOM の実験セットアップを Fig.1 に示す。光源

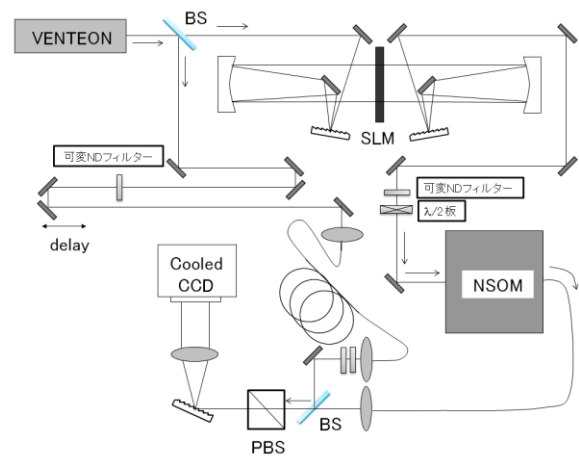


Fig. 1 Experimental setup for SI-NSOM.

は Ti:Sapphire レーザ (パルス幅~8 fs, 繰返し周波数 150 MHz, スペクトル帯域 650-1100 nm, VENTEON) である。今回は 4f 系の関係でスペクトル帯域は 750-920 nm である。近接場光学顕微鏡は自作のものであり、プリズムを用いた全反射照射系である。プローブは開口径 160 nm, 遮光コートアルミのファイバプローブを用いており、コレクションモードにより近接場光を取得した。VENTEON のレーザ光を BS で信号光と参照光に分け、信号光は 4-f 波形整形器で、波形整形して、 $\lambda/2$ 板で偏光方向を調整して、近接場光学顕微鏡に入射し、ファイバプローブでナノ構造近傍の光を検出している。一方、参照光は遅延時間をつけて、分散補償用にファイバプローブと同質のファイバに伝搬させた後に、BS で信号光と同一線状にしている。その後、グレーティング-レンズ対、冷却 CCD カメラによって、周波数干渉縞を測定している。

測定に用いたナノ構造は Fig. 2(a)のようにアスペクト比の異なるナノロッドを十字構造に組み合わせた金十字ナノ構造をガラス基板上に作製したものであり、アスペクト比は 3 と 3.5~7 である。Fig. 2(b)にシミュレーションによって計算される共鳴波長を示す。

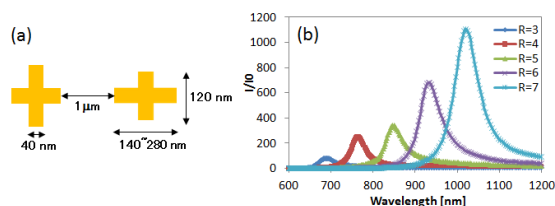


Fig. 2 Cross-shaped nanostructure. (a) The schematic view of nanostructures. (b) Resonance spectra of nanostructures.

4 実験結果

NSOM による測定結果を Fig. 3 に示す。(a)はトポグラフィ、(b)は 2ω のロックイン検出 (ω :チューニングフォークの共鳴周波数)での強度マッピング、(c)は DC 検出での強度マッピングを示している。入射光は臨界角(43°)以上になるように入射して、偏光方向は S 偏光である。使用したプローブの先端径が 500 nm 程度あるため十字構造を読み取ることはできないが、試料があることはトポグラフィ結果で確認できる。またトポグラフィと強度マッピングの結果に相関性があることが分かる。さらに、Fig. 3(d)に Fig. 3(c)の測定点において測定した DC 検出での距離依存性を示す。この

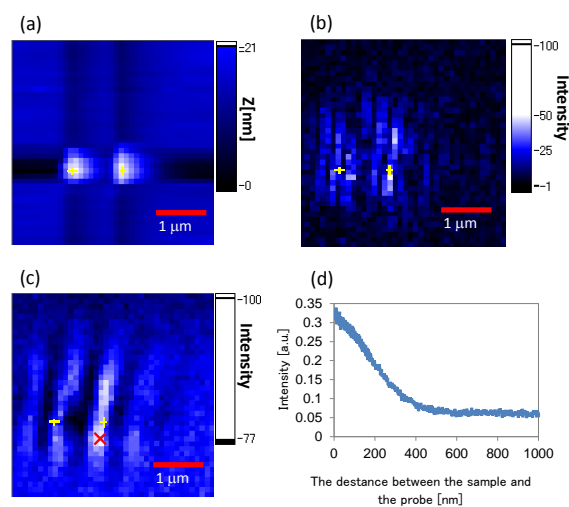


Fig. 3 The result of NSOM measurement of Au cross-shaped nanostructure. (a) Topography. (b) Intensity mapping by 2ω lock in detection. (c) Intensity mapping by DC detection. (X is measurement point.) (d) Distance dependence.

結果から検出される光強度に距離依存性が確認でき、プラズモン場を測定できていると考えられる。つまり、ロックイン検出のできない周波数干渉法でも測定可能であると考えられる。この測定点において、プラズモン応答関数を測定した。まず、冷却 CCD 分光器に用いて測定したスペクトルを Fig. 4 に示す。プラズモンスペクトルを入射光のスペクトルで割ることで、周波数域における強度応答関数を求めることができる。次

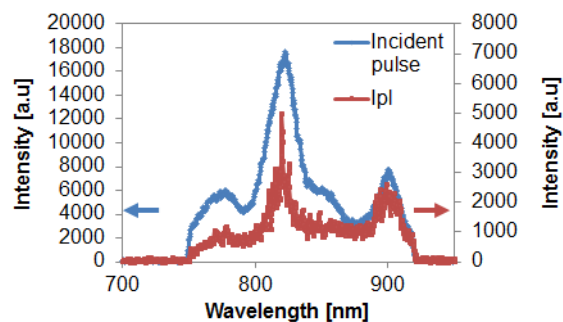


Fig. 4 Spectrum of Incident pulse and the near-field light.

に、SI-NSOM によって測定した干渉縞を Fig. 5(a)に示す。冷却 CCD カメラの露光時間は 30 ms である。この干渉縞をフーリエ変換位相解析法によって解析して求めた相対位相を Fig. 5(b)に示す。信号光と参照光の分散補償をすることで、周波数域における位相応答関数を求めることができる。以上の方法で求めた周波数域

プラズモン応答関数を Fig. 6(a)に示す。さらに周波数域応答関数をフーリエ変換することで得られる時間域応答関数を Fig. 6(b)に示す。

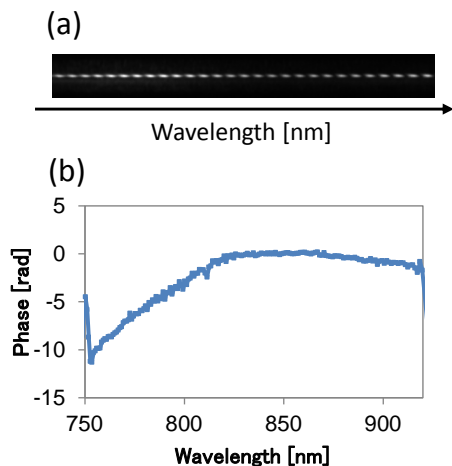


Fig. 5 The result of SI-NSOM. (a) SI fringe pattern measured by SI-NSOM. (b) Reconstructed phase from.

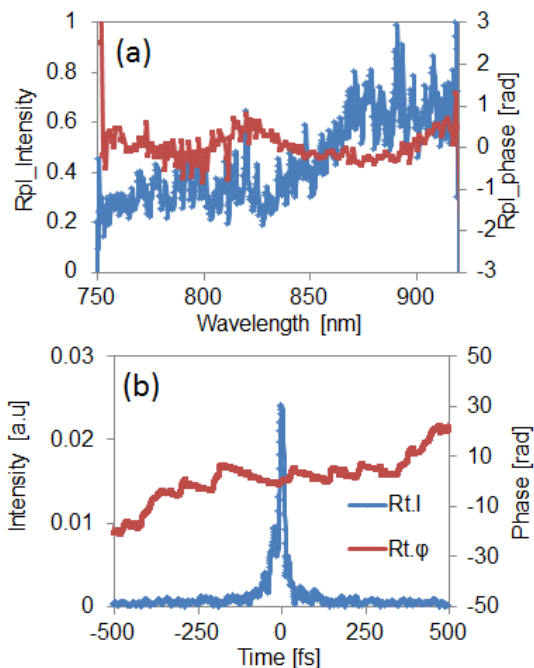


Fig. 6 Plasmon response function. (a) Frequency domain. (b) Time domain.

Fig.6 から SI-NSOM によってプラズモン応答関数を求めることができたことが分かる。しかし、Fig.6 (a) から分かるように、周波数域応答関数は位相も振幅も

ほぼ線形である。これは、アルミコートプローブの影響でナノ構造のプラズモン共鳴がなくなってしまうためである。つまり、アルミコートプローブ存在下での金ナノ構造のプラズモン応答関数を測定していると考えられる。

5 まとめ

SI-NSOM という新たな実験系によって、プラズモン応答関数を測定することができた。今回、金属コートプローブの影響が大きく金ナノ構造のプラズモン共鳴は測定できなかったのが、コートなしのプローブを用いてプラズモン共鳴を測定できる可能性がある。プラズモン共鳴を観測できれば、本手法によりプラズモン応答関数を取得して、その応答関数とフェムト秒波形整形技術により、ナノ構造のプラズモン場を時空間的に制御できると考えられる。

References

- [1] M.Aeschlimann, M.Bauer, D.Bayer, T.Brixner, F. Javier, G.Abajo, W.Pfeiffer, M.Rohmer, C.Spindler and F.Steeb, Nature 446, 301 (2007)
- [2] J. S. Huang, D. V. Voronine, P. Tuchscherer, T. Brixner, and B. Hecht, Phys. Rev. Lett. **B79** 195441 (2009)
- [3] A. Anderson, K. S. Deryckx, X. G. Xu, G. Steinmeyer and M. B. Raschke, Nano. Lett. **10**, 2519 (2010)

電界自己相関型暗視野顕微鏡によるフェムト秒レーザー励起

プラズモン場の時空間特性計測

Auto-correlation dark-field microscopy measurement of spatio-temporal plasmon field excited by femtosecond laser pulses

大井潤(M1), 松石圭一郎(M2), 原田卓弥(D3)
Jun Oi, Keiichiro Matuishi and Takuya Harada

Abstract

We demonstrated auto-correlation measurement of plasmon field at Au nanorods excited by femtosecond laser pulses using dark-field microscopy. Although the spatial resolution is limited by the diffraction limit of the microscope, we can simultaneously obtain the plasmon spectra of various nanorods from the auto-correlation images measured by a CCD camera.

1. はじめに

金や銀などの貴金属ナノ構造は、紫外から近赤外域の波長の光電場とカップリングして局在プラズモン共鳴 (LSPR: Localized Surface Plasmon Resonance) を起こす。このような現象を用いることで、光の回折限界を超えたナノメートル領域に光エネルギーを閉じ込めることができるため、ナノスケールの光導波路、光スイッチ、イメージセンサーなどへの応用が可能となる。

こういった背景から近年、プラズモニクス (Plasmonics) に関する研究が盛んに行われている。Lamprecht ら[1]は金ナノ粒子や銀ナノ粒子にフェムト秒レーザーを照射したときの強度自己相関波形を測定した。また Kubo ら[2]は、検出器に光電子顕微鏡 (PEEM) を用いることで、フェムト秒レーザー励起プラズモンの自己相関波形を2次元イメージで測定した。マルチポイントでの測定は実際の微細加工されたプラズモン回路の応答関数を測定するうえで必要な手段である。自己相関計測ではなくプラズモン応答時間波形を測定した例としては、Alexandria Anderson ら[3]が FROG を用いて金ナノ短針におけるプラズモン時間波形を測定した。

このように近年、フェムト秒レーザーパルス在金や銀などの微粒子やナノ構造に照射したときのプラズモン応答関数を測定あるいは計算するといった研究が盛んに行われている。我々は PEEM よりも簡便な暗視野顕微鏡を用いることで、CCD で計測した2次元面内の複数の位置において同時に異なったプラズモン波形が得られることを実験的に確かめた。この手法を用いることで、PEEM と比較してとても短い測定時間で相関波形を得ることが可能となった。これによって周波数チャープや偏光を波形整形し、時間的空間的にプラズモンダイナミクスを制御するための定量的な手法が確立できると考えている。

2. 実験方法、結果

本実験に用いたチタンサファイアレーザー (VENTEON, $\Delta\lambda = 650\sim 1100$ nm) のスペクトルを以下に示す。

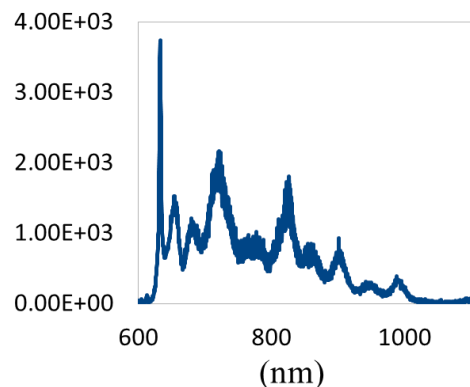


Fig. 1 Spectrum of VENTEON

本研究において用いた試料は、VENTEON のスペクトル帯域に共鳴波長が含まれるような金ナノロッド (共鳴波長 ~ 800 nm) をガラス基板上 (SiO_2) にランダム

に散布したものをを用いている。Fig.2の実験セットアップにあるように偏光を変化させることにより、励起軸を変えてプラズモン共鳴を励起することができる。

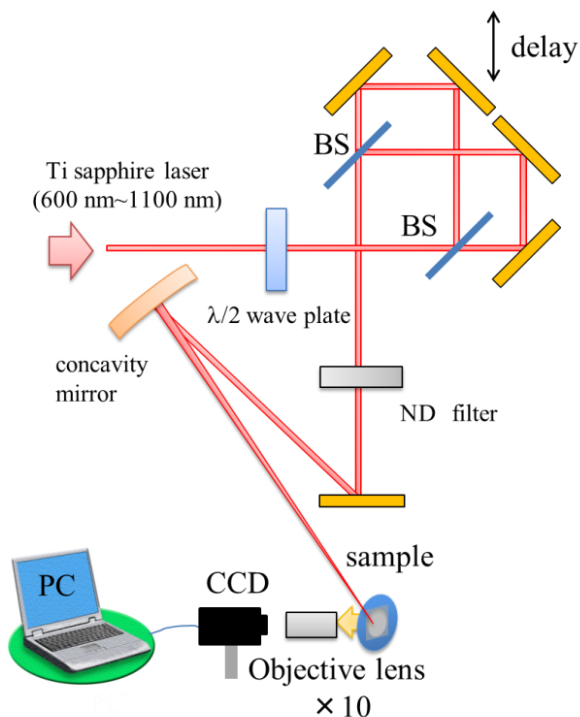


Fig. 2 Experimental set up

VENTEON の光を干渉計に通し、その光を凹ミラーで絞りながら暗視野照明を行った。プラズモン共鳴による散乱光は 10 倍の対物レンズを通過し CCD で Fig. 3 のようにそれぞれの光点として測定することができる。Fig.4 は CCD 画像上の点 A, 点 B, 点 C におけるそれぞれの励起光に対する偏光依存性を示している。

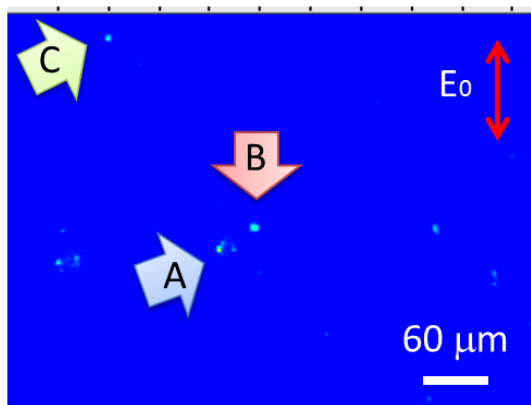


Fig.3 Snap-shot of CCD image at a certain delay time.

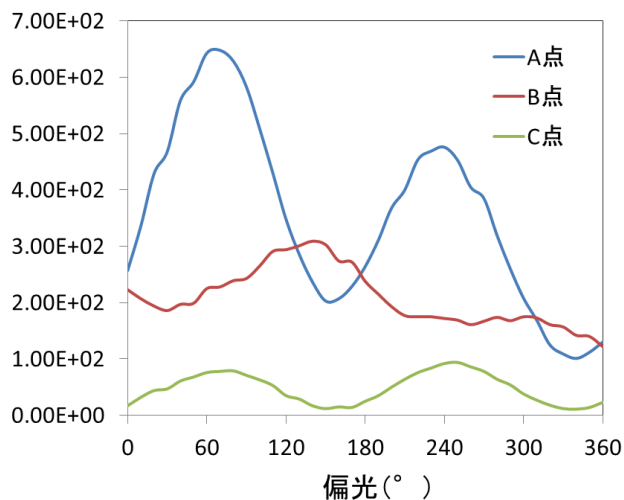


Fig.4 Polarization dependence of local plasmon intensity at three nanorods.

干渉計の delay の分解能は 30 nm であり、1 プロットピコモーターを動かすごとに CCD の画像を保存できるようにコンピュータプログラミング制御を行った。これにより 1 プロットあたりにかかる時間は CCD の露光時間(0.033 秒)程度にまで短くすることができた。

自己相関波形の測定結果を Fig.5 および Fig.6 に示す。Fig.5 は Fig.4 における偏光が 160 度の際のそれぞれの光点における電界自己相関波形を表しており、Fig.6 はそれに直交する偏光 70 度の際のそれぞれの光点における電界自己相関波形を表している。C 点においては強い偏光依存性がみられる。A 点と B 点は偏光によってその散乱光の強度が著しく変化していることがわかる。これにより金ナノロッドの偏光依存性による電界自己相関波形の異なるプラズモン波形を取得することが確かめられた。

自己相関波形をフーリエ変換することでそれぞれの点におけるスペクトルを求めることができる。Fig.5 の自己相関波形をフーリエ変換したものを Fig.7 に、Fig.6 のフーリエ変換を Fig.8 に示す。

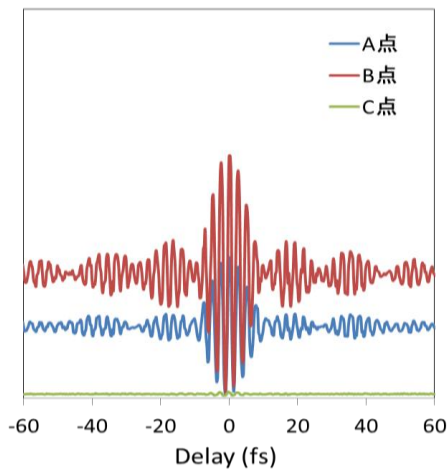


Fig.5 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of 160°

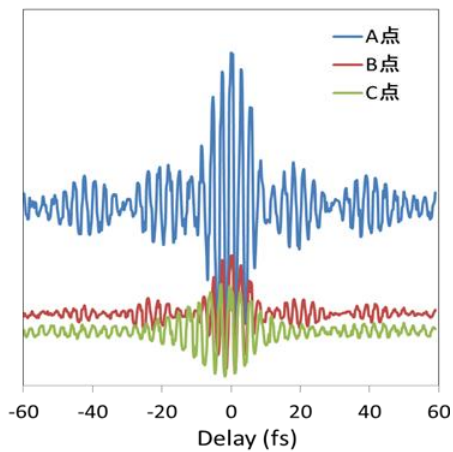


Fig.6 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of 70°

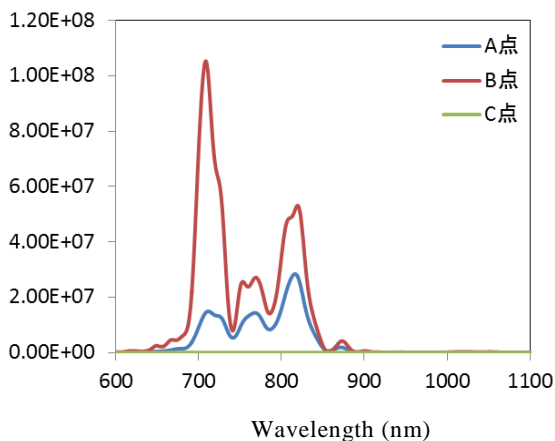


Fig.7 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of 160°

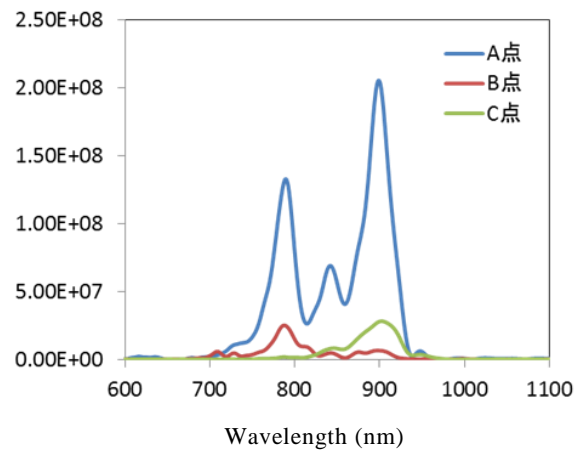


Fig.7 Auto-correlation waveforms for the polarization angle of 160°

まとめ

われわれは電界自己相関型暗視野顕微鏡を用いることで、CCDで計測された面内の任意の点におけるプラズモン場の電界自己相関波形を測定することに成功した。この手法を生かし、自己相関から相互相関にセットアップを用いることでプラズモン応答関数の振幅・位相特性を取得できる。

References

- [1] B. Lamprecht, A. Leitner, F.R. Aussenegg, Appl. Phys. B **68**, 419–423(1999)
- [2] Atsushi Kubo, Ken Onda, Hrvoje Petek, Zhijun Sun, Yun S. Jung, and Hong Koo Kim, Nano Lett. **5**, 1123-1127 (2005).
- [3] Alexandria Anderson, Kseniya S. Deryckx, Xiaoji G. Xu, Gu`nter Steinmeyer and Markus B. Raschke Nano Lett. (2010), 10, 2519–2524

相関計測暗視野顕微鏡を用いたフェムト秒プラズモンの応答関数計測

Measurement of Plasmon Response Functions with Femtosecond Laser Cross-correlation Microscopy

大井潤(M1), 松石圭一郎(M2), 大西秀太郎(B4), 原田卓弥(D3)

Abstract

We experimentally demonstrate a new characterization method of ultrafast plasmon generated in nanostructures: electrical-field cross-correlation imaging using dark-field microscopy. One of the split femtosecond laser beam simultaneously irradiates gold nanostructures with different shape and the scattered light is collected by the object lens, while the other beam directly reaches to the CCD camera with variable optical delay. A series of image shots by varying the time delay between the pump and the reference pulses were obtained, and the fringe-resolved cross-correlation images are analyzed for the nanostructures.

1. はじめに

ナノ構造をもった金や銀などは、紫外から近赤外域の波長の光電場とカップリングして局在プラズモン共鳴 (LSPR: Localized Surface Plasmon Resonance) を起こす。このような現象を用いることで、光の回折限界を超えたナノメートル領域に光エネルギーを閉じ込めることができるため、ナノスケールの光導波路、光スイッチ、イメージセンサーなどへの応用が可能となる。こういった背景から近年、プラズモニクス(Plasmonics)に関する研究が盛んに行われている。

超高速パルスで励起された局在プラズモンの時空間特性に関しては、PEEMを用いて複素電界計測をした例や[1]、励起フェムト秒レーザーパルスのベクトル波形整形を用いて時空間制御する提案[2]などがこれまでに報告されている。我々はプラズモンの時空間特性を計測・制御するために、周波数応答関数を求め、決定論的に制御する手法の開発を行っている。今回、フェムト秒暗視野型電界相互相関計測を用いて同一の励起光源において、異なる光学応答を示す金ナノ構造の応答関数を求めることに成功した。この手法を用いれば、プラズモン場の時間波形の振幅位相成分

を取得することが可能となる。

2. 理論

電界相互相関 $\tilde{M}(\omega)$ は局在プラズモン応答関数 $R(r, \omega)$ を用いて以下のように表せる。

$$\tilde{M}(\omega) = \tilde{E}(r, \omega) \tilde{E}_{ref}^*(\omega) = [\tilde{R}(r, \omega) \tilde{E}_{pump}(\omega)] \tilde{E}_{ref}^*(\omega) \quad (1)$$

$\tilde{E}(r, \omega)$ は局在プラズモン電界波形を表し、 $\tilde{E}_{pump}(r, \omega)$ は励起光電界波形、 $\tilde{E}_{ref}(r, \omega)$ 参照光電界波形をそれぞれ表している。式(1)によると局在プラズモン電界応答関数 $\tilde{R}(r, \omega)$ は、 $E_{pump}(\omega) = E_{ref}(\omega)$ のとき、参照光スペクトルと相互相関波形の結果から以下の式で表される。

$$R(r, \omega) = \frac{\tilde{M}(\omega) / \tilde{E}_{ref}^*(\omega)}{\tilde{E}_{pump}(\omega)} = \frac{\tilde{M}(\omega)}{|\tilde{E}_{ref}(\omega)|^2} \quad (2)$$

波形整形された局在プラズモン波形 $\tilde{E}_{shape}(r, \omega)$ は波形整形された参照光 $\tilde{S}_{shape}(\omega)$ を用いて、

$$\tilde{E}_{shape}(r, \omega) = \tilde{R}(r, \omega) \tilde{S}_{shape}(\omega) = \frac{\tilde{M}(\omega)}{|\tilde{E}_{ref}(\omega)|^2} \tilde{S}_{shape}(\omega) \quad (3)$$

と表せる。

3. 実験結果

本実験で用いた試料の暗視野顕微鏡画像を Fig.1(a) に示す。A~E 点におけるそれぞれのナノロッドのアスペクト比とそれに対応するプラズモン共鳴波長を、FDTD 法を用いて計算した結果を Fig.1(b) に示す。シミュレーションモデルは金ナノロッドが、ガラス基板にあるときの計算結果となっている。中央の 2 行 8 列の光点において十字構造で作られた Au ナノロッドが 2 つお互い直行する十字形状で作られている。

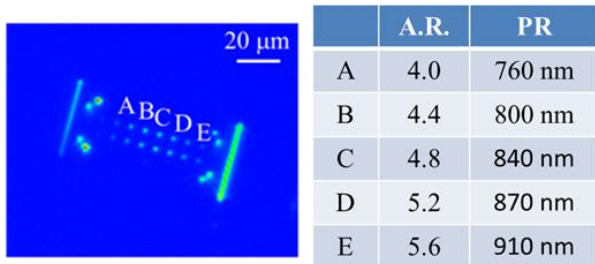


Fig.1 (a)CCD image of gold nanorods using the dark-field microscopy.(b)The simulation result of plasmon resonance (PR)at each nanorod placed on a SiO₂ substrate in the CCD image(Fig.1(a)) using FDTD method.

またその外側の線上の部分はガラスの溝が掘られており、試料を CCD 上で確認するための目印として用いている。しかしながら、このガラスの溝の光は励起光の反射成分によるものが直接的に CCD の露光面に入射しているため、ナノロッドによる散乱光より強い光強度を示す。したがって Fig.1(a)のようになるべくガラスの溝による反射光強度を小さくするよう、ガラスの溝の角度を調整しなければならない。これによって相互相関計測を行う場合には、それぞれのナノロッドにおける励起パルスの到達に時間差が生じるようになってしまい、相互相関波形に 1 次分散が乗る。またガラスの溝は測定の性質上、それぞれのナノロッドの相互相関波形に影響を与えることを相互相関計測の CCD 画像から確認した。

次に実験に用いたレーザー光源について記述する。実験に用いた励起光源は超広帯域レーザー (VENTEON, $\Delta\lambda = 650\sim 1100$ nm)を用いており、波形整形器の SLM において帯域制限しているため透過後の帯域は 750 nm~920 nm となっている。その帯域における励起光源のスペクトルおよび位相を測定したものを Fig.2 に示す。

スペクトルは分光器を用いて測定し、位相は VENTEON の分散を 2 次分散と 3 次分散のみと仮定し、SLM と 2 光子フォトダイオードを用いて検出強度が最も強くなる 2 次分散および 3 次分散の値のときにフーリエ限界パルスであるとして測定したものである。それぞれ測定値は 2 次分散 190 fs², 3 次分散 400 fs³ となった。

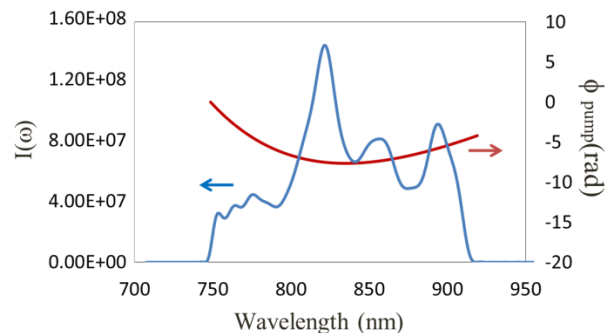


Fig.2 Amplitude and phase of excitation light (VENTEON).

次に、相互相関計測の実験セットアップを Fig.3 に示す。

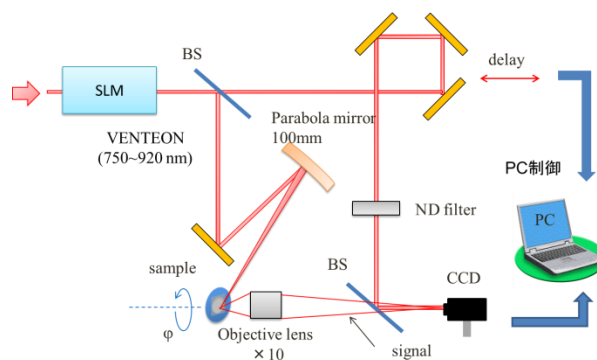


Fig.3 Experimental setup of cross-correlation measurement.

超広帯域レーザー (VENTEON, $\Delta\lambda = 650\sim 1100$ nm)を励起光源とし、signal 光を凹ミラー ($f=100$ mm)を用いて集光し試料に照射した。試料上に作製した金ナノロッドの散乱場成分を対物レンズ ($\times 10$, N.A.=0.25)を用いて CCD に入射させ光を検出した。参照光パルスは直接 CCD に入射させた。測定は CCD を露光時間 0.033 s で連続的に画像を取得し、その間にピコモーターを一定速度で動作させる方法で行い、これにより短い測定時間と高い時間分解能 (0.033 fs) で測定できる実験系を確立した。またこの方法では CCD 上の任意の数点における相関波形を一度に取得するマルチポイント測定が可能である。

Fig.4 に相互相関計測結果を示す。

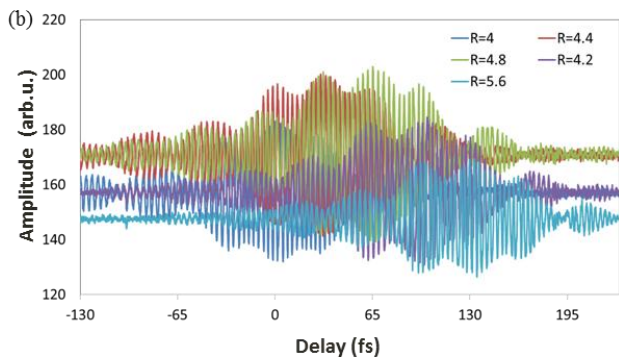


Fig.4 Experimental result of cross-correlation measurement for five different nanorods.

Fig.4 の相互相関波形は Fig.1(a)上の A~E の光点の相互相関波形を表している。これら 5 つのフリンジ分解相互相関波形は 5 つのアスペクト比の異なるナノロッド(R=4~5.6)をフェムト秒レーザーで同時に励起したものである。この相互相関波形をフーリエ変換し、Fig.2 で示した参照光パルスのスペクトルで割ったものを Fig.5 に示す。Fig.5 からそれぞれのナノロッドでの共鳴波長の異なりを確認できる。

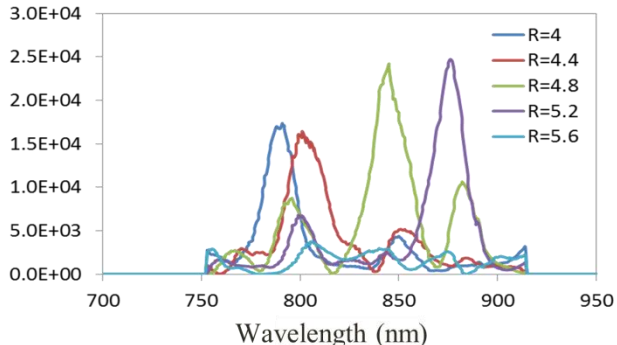


Fig.5 Plasmon spectra of various nanorods.

相互相関波形をフーリエ変換することで金ナノロッド散乱光と参照光の位相差も取得することができる。位相差には対物レンズと ND フィルターによる 2 次分散が含まれているため、これらを補償する必要がある。一例として、R=5.2 の金ナノロッドにおけるスペクトルと、対物レンズと ND フィルターの分散を補償した位相を Fig.6 に示す。

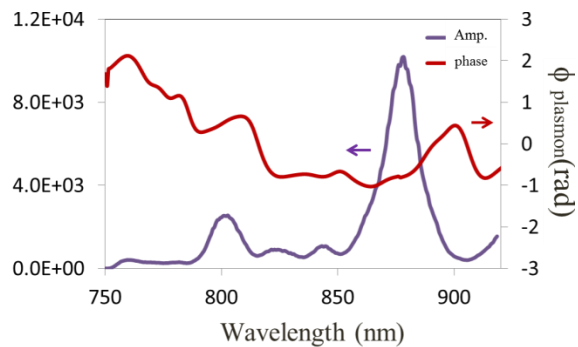


Fig.6 Amplitude and phase of frequency domain at R=5.2.

周波数領域におけるプラズモン共鳴の位相と振幅を取得できたため、これらを用いて逆フーリエ変換することで時間域における位相と振幅も表すことができる。それぞれのナノロッドにおけるプラズモン時間波形を Fig.7 に示す。

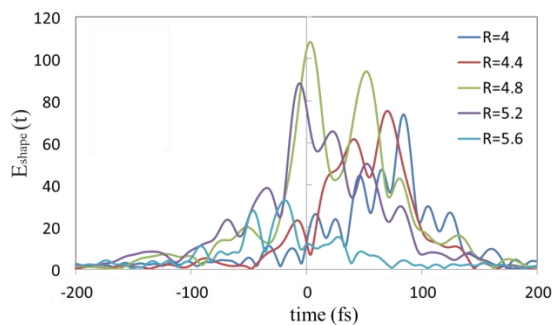


Fig.7 Plasmon waveforms of various Au nanorods.

Fig.7 を見ればわかるように、同一光源で励起されたアスペクト比の異なる Au ナノロッドにおいて、それぞれ異なった光学応答を示すことを実証した。これは元の励起光源が Fig.2 で示したように 2 次分散を持っていることが一つの要因である。しかしながら、それぞれのナノロッドの位置の違いによって励起パルスがナノロッドに到達するのに時間差があるため、Fig.7 には 1 次分散の影響も含まれている。そのためこれらを補償する必要がある。

一例として、R=5.2 の金ナノロッドの時間領域における位相と振幅を表したものを Fig.8 に示す。このように相互相関計測により時間領域における位相と振幅を示すことができた。

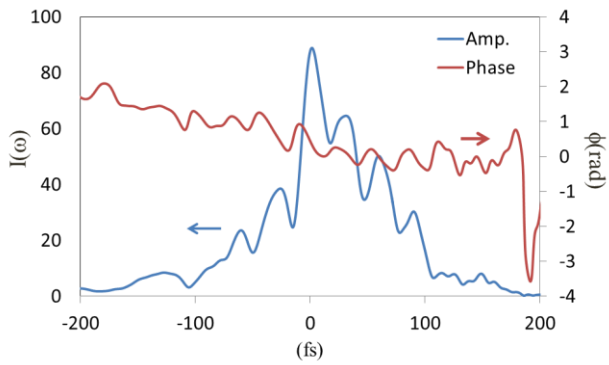


Fig.8 Amplitude and phase of time domain at R=5.2.

Fig.8 では時間波形振幅成分は左右非対称なグラフとなっており、これはプラズモン共鳴によって励起パルスが通過したのちも Au ナノロッド内の自由電子が振動しているためであると考えられる。

まとめ

我々は前年度行った自己相関計測をさらに発展させ、相互相関計測に移行することで個々のナノロッドのスペクトルだけでなく位相情報も取得できる実験系を確立した。またこれにより同一励起光源における複数のナノロッドの時間波形を同時に計測することが可能となった。これを可能としたのは、超広帯域なパルスレーザと独自の実験系を用いたためである。今後はこの方法を用いることで、励起光源を光変調し金微粒子の周囲の電磁場を時空間制御していきたい。

References

- [1] A. Kubo, K. Onda, H. Petek, Z. Sun, Y. S. Jung, and H. K. Kim, Nano Lett. 5 (2005) 1123.
- [2] M. Aeschlimann, M. Bauer, D. Bayer, T. Brixner, F. Javier Garcia de Abajo, W. Pfeiffer, M. Rohmer, C. Spindler and F. Steeb, Nature, 446 (2007) 301.

相互相関 SNOM を用いたフェムト秒プラズモンの時間波形計測

Measurement of time waveform of femtosecond localized plasmon by cross-correlation with SNOM

大西秀太郎(M1), 松石圭一郎(M2)

S. Onishi and K. Matsuishi

Abstract

We apply a new method of a cross-correlation with SNOM in the spatio-temporal characteristics of femtosecond localized plasmon at metal nano-structures. Temporal characteristics of femtosecond localized plasmon at Au are measured by this method.

1 はじめに

近年、光の回折限界を超えたナノ領域におけるプラズモン現象に関する研究が盛んに行われている。その中でも、ナノ領域における光技術の実現のために注目されている現象の1つとして、金属ナノ構造の局在プラズモン共鳴が挙げられる。局在プラズモン共鳴とは、金属ナノ構造中の電気分極と入射波が共鳴を起こすことであり、この際にナノ構造の大きさに依存した著しく増強した電場を発生することができる。この局在プラズモン共鳴の特性はナノ構造によって異なり、局在プラズモン共鳴によってナノ領域に局在した光を扱うことができる[1,2]。また、局在プラズモン共鳴には、入射波の周波数依存性、偏光依存性があることから、規則的なナノ構造に偏光波形整形したフェムト秒レーザーパルスを用いることで、局在プラズモンを空間的に制御する研究も報告されている[3]。局在プラズモンの時空間制御を可能にするためには、フェムト秒レーザー励起局在プラズモンの時間測定が必要であり、これまでに光電子顕微分光(PEEM)とフリンジ分解自己相関計測を組み合わせた方法によって、時間特性を測定した報告がある[4]。

我々は局在プラズモンの時空間制御を目指して、時間域電界相互相関法と近接場光学顕微鏡(SNOM)を組み合わせた新たな測定系により、金属ナノ構造におけるフェムト秒レーザー励起局在プラズモンの時空間特性を測定した。この

測定系には、PEEM ではなく SNOM いるので測定試料を限定しないなどの利点が挙げられる。この測定法の確立によって、局在プラズモンの時空間特性を測定することができ、更には局在プラズモンの時空間制御へとつながると考えられる。

2 実験セットアップ

時間域電界相互相関法と SNOM を組み合わせた実験セットアップを Fig. 1 に示す。光源は Ti:Sapphire レーザ(パルス幅~8 fs, 繰返し周波数 150 MHz, スペクトル帯域 650-1100 nm, VENTEON)である。今回は用いたファイバのカットオフ波長が 850 nm であるので、4f 系においてスペクトル帯域を 750-920 nm にして光源として使用した。SNOM は自作のものを用いている。プローブは開口径 100 nm、遮光金コートされたファイバプローブを用いており、コレクションモードにより近接場光を取得した。4f 系でスペクトルを狭帯化した後、ビームスピリッターで2つのパルスに分ける。一方のパルスはシグナル光として金属ナノ構造(金コート回折格子(N=830 lines/mm))に斜め上から照射し、局在プラズモンをファイバプローブによって検出する。

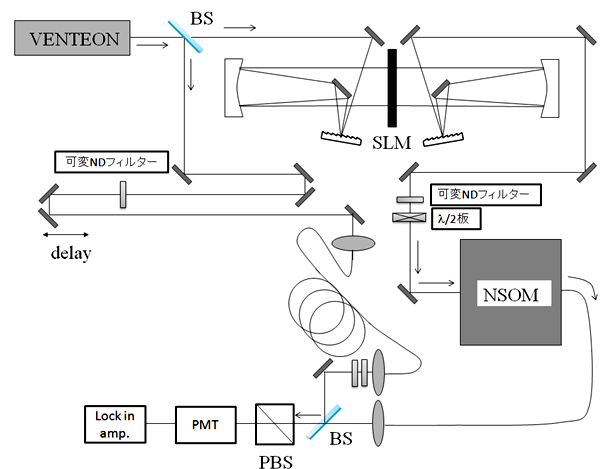


Fig. 1 Experimental setup

もう一方のパルスは、参照光として遅延時間をつけた後、ファイバプローブと同質のファイバを伝搬させる。その後、ビームスプリッターによって2つのパルスをコリニアにして、PMTで検出した後に、ロックイン検出している。得られた相互相関波形をフーリエ変換することで局在プラズモンの相対スペクトル強度、相対スペクトル位相を求めた。

3 実験結果

金コート回折格子表面のプラズモン強度の大きい位置において、電界相互相関計測した結果を Fig. 2 に示す。Fig. 2(a)は DC 検出、(b)はロックイン検出による相互相関波形を示している。

測定条件は、積算時間 100 ms、ピコモーター待ち時間 100 ms、測定時間 12 分である。これが、積算時間、ピコモーター待ち時間を最小にして、最も測定時間が短くなるようにして測定した結果である。Fig. 2 の結果より、DC 検出、ロックイン検出においても相互相関波形を測定できていることが分かる。しかし、時間に対して強度の安定性がないことが分かる。また、この測定においては、フリッジはある程度きれいに測定できている。

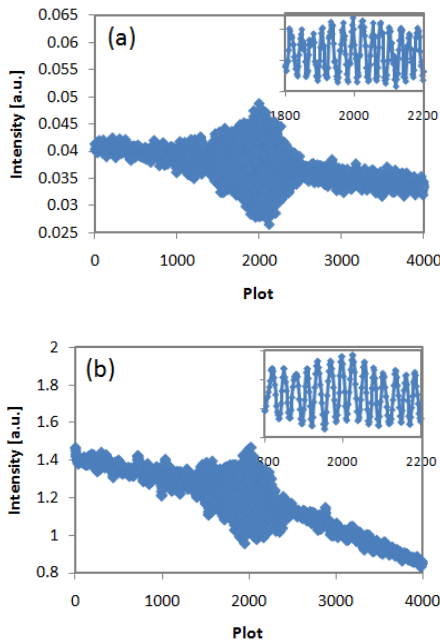


Fig. 2 Cross-correlation waveform

(a) DC detection (b) 2ω lock-in detection

Fig. 2(b)に示される 2ω のロックイン検出の相互相関波形をフーリエ変換することで求めた相対スペクトル強度と相対スペクトル位相を Fig. 3 に示す。Fig. 3 に示されている相対スペクトル強度と相対スペクトル位相の結果を見ると位相が正しく取得できていないことがわかる。したがって、共振器の安定性を長時間確保するのが難しく、プラズモン応答関数を測定することは難しいと考えられる。

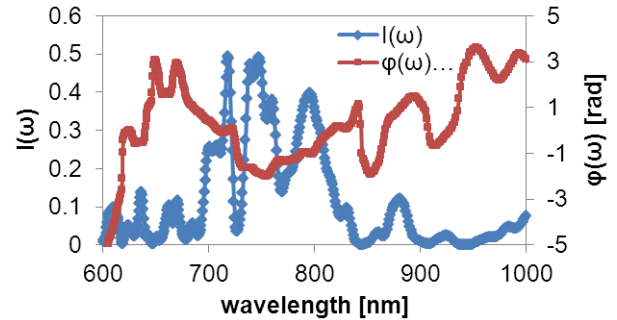


Fig. 3 Spectral intensity and phase calculated by Fig. 2(b)

4 まとめ

今回、時間域電界相互相関法と SNOM を組み合わせた新たな実験系によって、ファイバプローブ先端に結合した局在プラズモンのフェムト秒における時間波形を計測することができた。しかし、この実験系では測定時間が長いことで、共振器の安定性に問題が生じ、プラズモンの時空間制御を行う上で必要な応答関数を測定することが難しいことが分かった。したがって、周波数干渉法(SI)などの方法によって、この問題を解決していく必要がある。

References

- [1] S.Link, and M. A. El-Sayed, Phys. Chem. B 103, 8410 (1999)
- [2] P. K. Jain, W. Huang, and M.A.El-Sayed, Nano Lett. 7, 2080 (2007)
- [3] M.Aeschlimann, M.Bauer, D.Bayer, T.Brixner, F. Javier, G.Abajo, W.Pfeiffer, M.Rohmer, C.Spindler and F.Steeb, Nature 446, 301 (2007)
- [4] A.Kubo, K.Onda, H.Petek, Z.Sun, Y.S.Jung, and H.K.Kim, Nano Lett. 5, 1123 (2005)

フェムト秒 OPO 共振器の安定化制御

Feedback control of femtosecond OPO cavity

佐々信介(M1), 伊東泰幸(M2)

S.Sassa and Y.Ito

• Abstract

In order to maintain the optimum output spectrum of a 1.5 μ m femtosecond OPO for a long time to use it in squeezed vacuum pulse generation with fiber nonlinearity, we introduce feedback control. The error signal is acquired by the change of polarization state of the intracavity light. The output of homodyne detection is fed to a PID circuitry and controls one of cavity mirrors by a PZT transducer. In order to maintain the optimum output spectrum of a 1.5 μ m femtosecond OPO for a long time to use it in squeezed vacuum pulse generation with fiber nonlinearity, we introduce feedback control. The error signal is acquired by the change of polarization state of the intracavity light. The output of homodyne detection is fed to a PID circuitry and controls one of cavity mirrors by a PZT transducer,

1 はじめに

スクイズド状態は量子もつれ状態に必要な不可欠なリソースである。我々は連続変数のもつれ合い光源を用いた量子テレポーテーションなどの量子情報処理の実現を目指し、光ファイバによるスクイズド光発生実験を進めてきた。光通信波長帯 1.5 μ m の波長において、ファイバ干渉計で安定な自己位相変調を起こし、真空スクイズドパルスが発生させるためには、高次の非線形効果を効率よく引き起こすために 1.55 μ m における良質なパルス光源が必要となる。1.55 μ m のパルス光源としては、ファイバ増幅レーザーがあるが、自然放出による雑音(ASE; Amplified Spontaneous Emission)により厳密なコヒーレント状態の光源になっていない。そこで我々は波長 800 nm Ti:sapphire フェムト秒レーザーを励起に用いた OPO リング型共振器を構築することによってコヒーレント状態の 1.55 μ m の光を得てきた。しかしこの OPO は時間経過とともにスペクトル波形が変化や、出力強度の変動が大きく安定性に問題があった。

Fig.1,2 にスペクトルと出力パワーの時間変化の様子を示す。本研究ではそれら安定性の問題点を解決した実験について報告する。

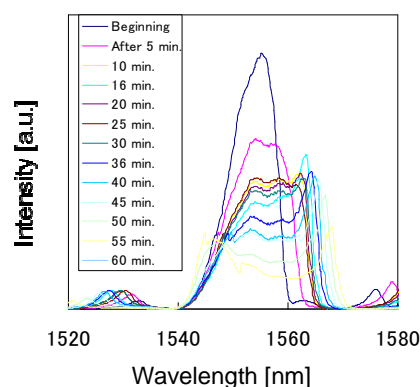


Fig. 1 Temporal change in the OPO output spectrum during 1-hour.

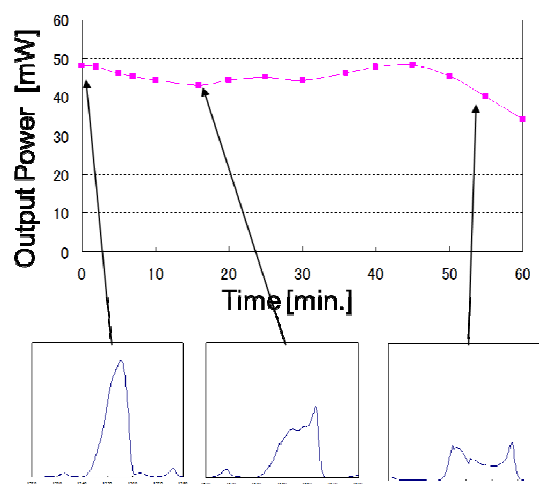


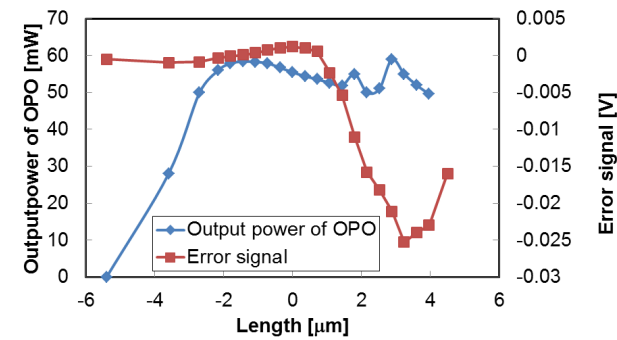
Fig. 2 Temporal change in the OPO output power during 1-hour.

2 共振器安定化手法

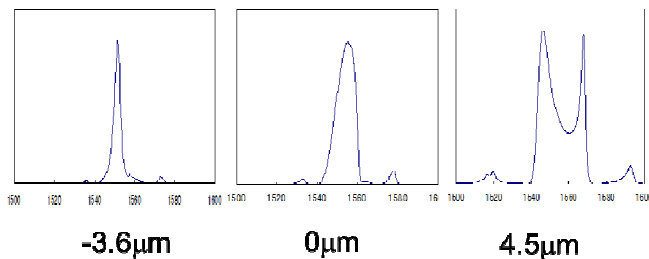
レーザー周波数安定化の方法はいくつかある。代表的な方法として Pound- Drever- Hall 法 [2]と Hansch- Couillaud 法 [3]があるが、我々は後者の方法を用いて OPO の周波数安定化を行った。OPO 共振器内の光の偏光は共振器長が変化して励起レーザーの繰り返し周波数から離調すると、直交偏光成分が生じるので、そのわずかな偏光の変化をエラ

ーシグナルとして利用する。全反射共振器ミラーからの $1.55\mu\text{m}$ の漏れ光をホモダイン計測することでエラーシグナルを取得し、ミラーに付属させた PZT を PID フィードバック制御することによって共振器長を一定に保った。

共振器長とエラーシグナルの対応関係を Fig.3 に示す。



(a)



(b)

Fig.3 Characteristics of error signal: (a)relation between the error signal and the OPO output power; (b) examples of OPO output spectrum at some cavity length shifts.

Fig.3 は、共振ポイントを $0\mu\text{m}$ としたとき共振器長を変化させたときのエラーシグナルと出力パワーおよびスペクトル波形の関係を示す。スペクトル波形は非常に細い状態から徐々に共振ポイントに近づき、そしてさらにスペクトル幅が広がりながら波形が崩れていくことが読み取れる。エラーシグナルと共振器長は一定の範囲内で一対一の対応関係にあることが読み取れる。一方出力パワーとスペクトル波形は必ずしも一対一の対応関係にない。そのため単に漏れ光が最大値になるように制御するのではなくホモダイン計測し偏光のずれをエラーシグナルにしなければならぬことが確認できた。

3 制御実験

実験セットアップを Fig.4 に示す。励起に用いたレーザーはモード同期フェムト秒パルスレーザーMaiTai (平均出力 $700\text{--}900\text{ mW}$, 中心波長 810 nm , 繰り返し周波 80 MHz パルス幅約 100 fs , スペクトル幅約 15 nm) である。

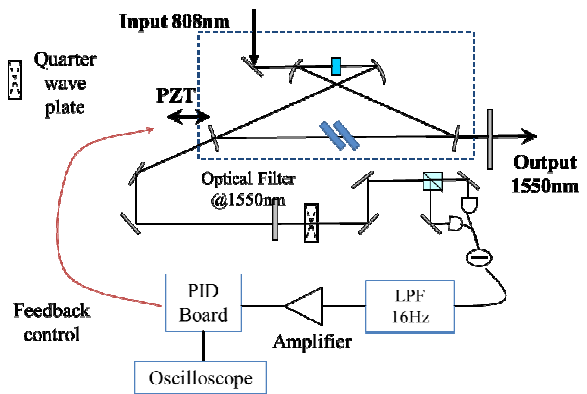


Fig.4 Experimental setup

非線形結晶はオキサイド社製 MgO ドープ PPLN (PPLN; Periodically poled lithium niobate) を用いた。結晶のサイズは断面積が $0.5 \times 10.0\text{ mm}$ であり、光軸方向が 1.0 mm である。PPLN の分極反転周期は $0.1\mu\text{m}$ きざみである。共振器長が励起レーザーの繰り返し周波数に一致し、結晶に信号パルスと励起パルスが同時に入射する時にパラメトリック発振によって $1.55\mu\text{m}$ に波長変換された光が生成される。

一枚のミラーからの $1.55\mu\text{m}$ 漏れ光の直線偏光からのずれをホモダイン計測することによってエラーシグナルを取得する。ホモダイン計測の測定回路を Fig.5 に示す。偏光ビームスプリッタで分けた光についてのフォトダイオードの差信号を、増幅できる回路になっている。共振器の変動は温度変化や空気の揺らぎなどメカニカルな要因によって引き起こされているので、 160 Hz の LPF を挿入し高い周波数成分をカットし余計な雑音を除去する。フィードバックにはタートル工業社製 PID ボード T-PID01Z を用いた。PID ボードからの出力は $\pm 15\text{ V}$ の範囲で PZT に印加する。PZT は 3 つ直列に並べることにより変化量を増やし最大 $\pm 2.7\mu\text{m}$ の範囲で調整が可能となっている。

ホモダイン計測の測定回路を Fig.4 に示す。

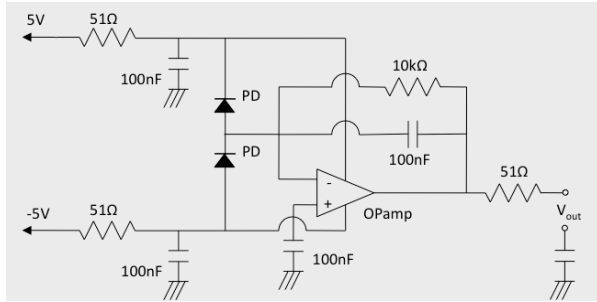
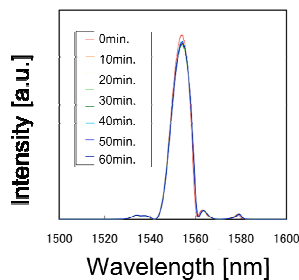


Fig.5 Electric circuit of Homodyne detection

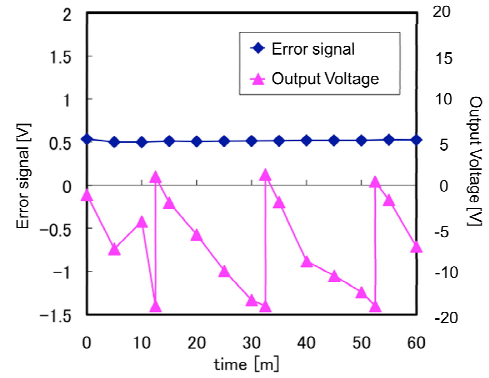
PID ゲインの調整は、まず基準値、P,I,D ゲインを 0 にした状態から PID ボードのスイッチをいれる。エラーシグナルは波長板により出力が 0V 付近になるように調整する。次に I のゲインを少しずつ増やしゆっくりと出力が応答するように調整する。スイッチを OFF から ON にしたときにエラーシグナルが安定させたいところで安定するように、スイッチを ON,OFF しながら基準値を微調整する。スイッチを ON にしたときにエラーシグナルが求める値で安定したら、スイッチを ON にしたまま P と I のゲインを大きくする。今回は変化量が少ないので PI ゲインの調整のみでフィードバックはかかるが、状況に応じて D ゲインも使えばより精度の高い制御になる。

なおPIDボードの入力電圧には十分注意する必要がある。ホモダイン回路によって二つのフォトダイオードの差分をアンプした信号を測定しているが、何らかの原因で片方の光路がささぎられてしまうとバランスが崩れ片方のダイオードからの電圧がアンプされてボードにかかる。すると一気に大きな電圧がかかり故障の原因になるので注意する。

4 実験結果



(a)



(b)

Fig.6 Experimental results: (a) temporal change in OPO spectrum ; (b) Temporal change in the error signal and PID circuit output.

実験結果を Fig.6 に示す。Fig. 6(a)はスペクトル波形の時間変化を示す。Fig. 2 とは異なり、1 時間内のスペクトル波形に変化がない。 Fig. 6(b)はエラーシグナルの変動と PID ボードの出力を示す。用いた PID ボードでは±15V の範囲でしか電圧調整ができないため、20 分程度で手動で距離調整を行った。

5 まとめ

我々は、Hansch- Couillaud 法を用いて OPO リング型共振器の安定化に成功した。PID ボードによる補償の範囲が狭くロックできる時間が短いことが問題であるが、電圧増幅器を用いることで長時間の制御ができる。

• References

- [1] 廣澤賢一, 神成研究室 Annual Report 2006-2007 36
- [2]R.W.P Drever et al, Appl. Phys. B **31** 97 (1983)
- [3]T.W.Hansch and B.Couillaud, Opt. Commun.**35**, 441 (1980)

フェムト秒レーザ非線形ファイバ干渉計を用いた
光子数スクイーミング、真空スクイーミング、偏光スクイーミングの比較
**Comparison among photon number squeezing, polarization squeezing and squeezed vacuum
generated by femtosecond laser nonlinear optical fiber interferometer**

佐々信介(M1), 伊東泰幸(M2)

S.Sassa and Y.Ito

• **Abstract**

Fiber nonlinear interferometer driven by femtosecond laser pulses can generate three-different squeezed pulses: (1) photon-number squeezing, (2) quadrature squeezed vacuum, and (3) polarization squeezing. We experimentally generate these three squeezed pulses with a common fiber interferometer and compare the squeezing levels.

1. はじめに

光ファイバの三次非線形光学効果を用いたスクイズド光生成は量子情報通信や量子情報処理の実現に向けて必要な連続量量子もつれ合い状態光を発生させる有効な手法である。ソリトン光パルスの光ファイバ伝播は長距離にわたって自己位相変調を享受できるため高いスクイーミング発生が可能である。自己位相変調効果によって生じる位相平面上でのスクイーミングをいかに評価するかによって、我々は3種類のスクイズド状態を発生可能である。すなわち、光子数スクイーミング[1], 真空スクイーミング[2], 偏光スクイズド光[3]である。光子数スクイーミングは計測が容易であるが、量子もつれ光の評価において位相方向の評価が容易ではない。電場の直交位相振幅成分の揺らぎを圧搾した直交位相スクイズド光の中でも真空スクイズド(SV)光, および, 偏光ストークスパラメータのゆらぎを圧搾した偏光スクイズド光は, 連続量量子もつれ光パルス発生に有用である。今回, 我々はこれらの違う種類のスクイズド光を同一のファイバ干渉計を用い, かつ同じ条件のレーザーパルスで測定し比較を行った。実験には, 1550 nm フェムト秒パルスレーザを光源に用い, ファイバによる非線形偏光干渉計(NOPI: Nonlinear Optical Polarization Interferometer)を用いた。

2. 偏光スクイーミング理論

量子ストークス演算子は以下のように表現される。

$$\begin{aligned}\hat{S}_0 &= \hat{a}_x^\dagger \hat{a}_x + \hat{a}_y^\dagger \hat{a}_y = \hat{n}_x + \hat{n}_y = \hat{n} \\ \hat{S}_1 &= \hat{a}_x^\dagger \hat{a}_x - \hat{a}_y^\dagger \hat{a}_y = \hat{n}_x - \hat{n}_y \\ \hat{S}_2 &= \hat{a}_x^\dagger \hat{a}_y - \hat{a}_y^\dagger \hat{a}_x \\ \hat{S}_3 &= i(\hat{a}_x^\dagger \hat{a}_x - \hat{a}_y^\dagger \hat{a}_y)\end{aligned}$$

ただし \hat{a}_{xy} および \hat{a}_{xy}^\dagger はそれぞれの偏光に対応した光子の生成消滅演算子である。 \hat{n}_x および \hat{n}_y はそれぞれのモードの光子数演算子であり, \hat{n} は全体の光子数演算子である。

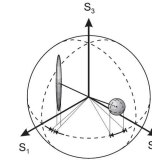


Fig.1 The Poincaré sphere with a coherent state (sphere) and a polarization squeezed beam (cigar).

このとき, 交換関係は以下ようになる。

$$\begin{aligned}[\hat{S}_0, \hat{S}_j] &= 0, \quad j=1,2,3 \\ [\hat{S}_1, \hat{S}_2] &= 2i\hat{S}_3\end{aligned}$$

不確定性関係による分散は以下のように表現される。

$$V_1 V_2 = \langle \hat{S}_3^2 \rangle, \quad V_3 V_1 = \langle \hat{S}_2^2 \rangle, \quad V_2 V_3 = \langle \hat{S}_1^2 \rangle$$

ただし V_j はストークスパラメーターの分散を表し

$$V_j = \langle \hat{S}_j^2 \rangle - \langle \hat{S}_j \rangle^2$$

偏光スクイーミングはストークスパラメーターのゆらぎがコヒーレント状態よりも小さくなるだけでなく最少不確定性も下回る必要がある。よって次式の条件が必要となる。

$$V_j < V_j^{coh} = \langle \hat{n} \rangle$$

さらに次式の条件が必要となる。

$$V_j < \langle \hat{S}_i \rangle < V_k$$

3. 実験

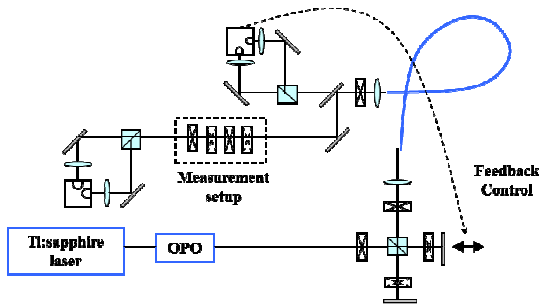


Fig.2 Experimental setup

実験セットアップを Fig.2 に示す。光源に用いたレーザーはフェムト秒パルスレーザー(Spectra Physics 社製 MaiTai)励起 OPO で中心波長 1550 nm, 繰り返し周波 80MHz, スペクトル幅 15 nm(FWHM)である。使用したファイバはボータイ型偏光面保持ファイバー (HB1500G; 長さ 3m) である。Table.1 にファイバの諸特性を示す。

Table.1 Fiber parameters

	HB1500G
コア系 [μm]	7.9
非線形係数 [ps^2/mm]	25
ソリトンパワー [mW]	15
ソリトン長 [m]	2.5

マイケルソン干渉計によりファイバコアの slow 軸, fast 軸に直交するように 2つの直線偏光パルスを時間遅延をつけて入射させる。ファイバ光軸による遅延を補償し, 出射光が偏光干渉で直線偏光になるように微調している。このとき光路長の微調整はミラーについている PZT によって行い, 概ね 98%程度のビジビリティーを確認した。またマイケルソン干渉計は非常に外乱に弱く空気の揺らぎなどが原因で消光比が悪くなるのでPID制御により安定させている。この時エラーシグナルは, 図中の 45 度反射ミラーの微小な透過光を利用した。s 偏光と p 偏光の透過率が違うミラー (s 偏光 99%:p 偏光 99.9%) を使用し, 損失による量子効率低下を最小限にした。すなわち, パルスの所望の偏光と反射率の高いミラーの軸をあわせることによ

り損失を減らし, エラーシグナルの偏光方向は透過率の高い軸に沿うので, 信号が取得しやすくなる。

3種類のスクイズド状態の測定には Fig.3 の測定系と平衡ホモダイン検出を用いた。ホモダイン検出の際, 二つの Photo Diode (PD)の差電流を RF スペクトルアナライザで測定し, 側帯波の微弱な信号を電圧増幅器 (エヌエフ社製 SA-230F5) で増幅している。このとき繰り返しの信号と直流付近の信号によって電圧増幅器が飽和しないよう, また GAWBS ノイズのスパイクを避けるように 20 MHz の LPF (Minicircuit 社製) を挿入し, 10 MHz における位相ノイズを測定した。

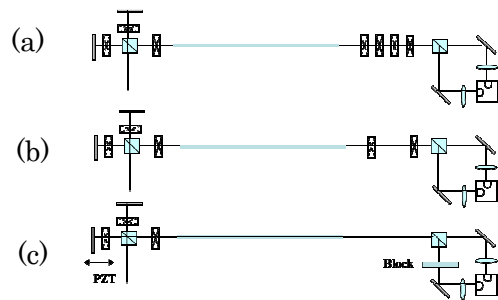
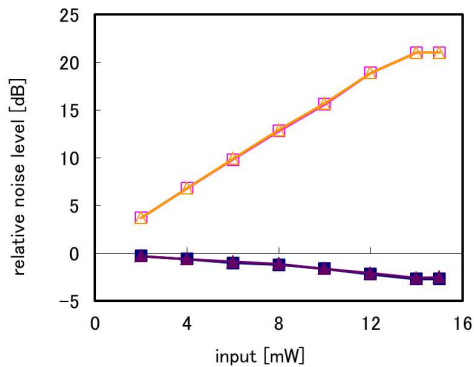


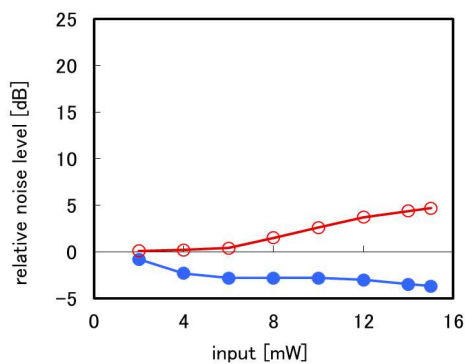
Fig.3 Measurement systems for three squeezed states: (a) squeezed vacuum; (b) polarization squeezing; and (c) photon number squeezing.

Fig.3(a)は Squeezed Vacuum(SV)の測定系である。偏光干渉において destructive な干渉をした光が SV であり, また constructive に干渉をした光を LO (local oscillator) 光として用いる。フェイズシフタにより SV と LO 光との相対位相差を調節し, 平衡ホモダイン測定する。Fig.3.(b)は偏光スクイズド光の測定系である。出射光を 1/4 波長板により円偏光にし, ホモダイン系の 1/2 波長板を回すことにより測定できる。フェイズシフタを用いないので光学系の損失は最低限にできる。Fig.3.(c)は光子数スクイズド光の測定系である。他の2つと異なり, マイケルソン干渉計の PBS で強度比が 90:10 になるように 1/2 波長板を調整する。干渉計の delay を調整しながら出射光を PD で観測する。光子数ゆらぎのみを計測するので LO 光は必要ない。

4. 実験結果および考察



(a)



(b)

Fig.5 Experimental result; 0dB line is shot noise level. (a) polarization squeezing; open triangles are anti-squeezed level and solid triangles are squeezed level. vacuum squeezing; open squares are anti-squeezed level and solid squares are squeezed level. (b) photon number squeezing, open circles are anti-squeezed level and solid circles are squeezed level.

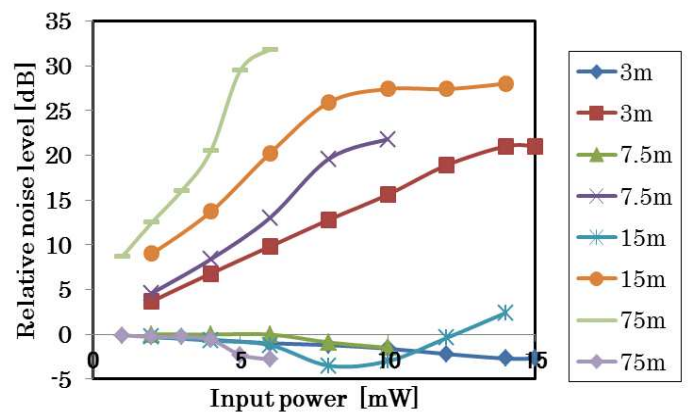
実験結果を Fig.5 に示す。横軸は slow 軸（光子数スクイージングでは強い入射強度の側）の入射強度を表しており、縦軸に量子雑音限界 Shot Noise Level (SNL) を基準としたノイズレベルを示した。Fig. 5(a) 偏光スクイージングと真空スクイージングは全く同じ実験結果となった。Fig. 5(b) に光子数スクイージングの結果を示す。SV と偏光スクイージングは入射強度が同じであれば全く同じ結果となった。

SV と偏光スクイージングは入射強度が同じであれば全く同じ結果となった。スクイージングの原理から、直線偏光で取り出すか、円偏光で取り出すかの違いしかないの

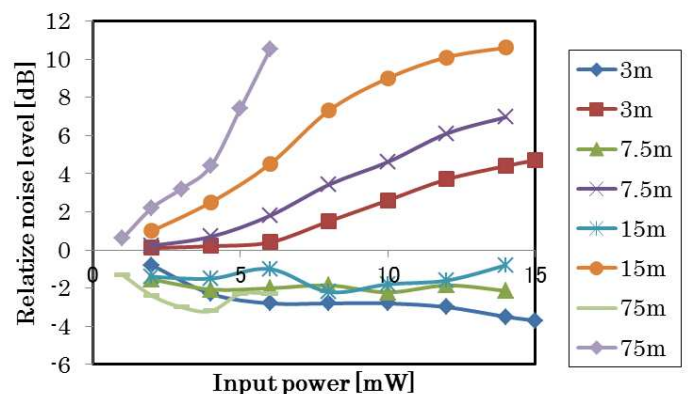
で、この結果は妥当である。むしろ、この結果から我々の SV および偏光スクイージング計測が正確であることを証明できた。

光子数スクイージングは偏光、真空スクイージングと比べて常に高いスクイージングを示した。大きな違いは、導波性ブリリュアン散乱 (GAWBS) に起因した位相のイズが、前者の2つの直交位相スクイージングには大きく影響するが、光子数スクイージングには特に低い入射強度において影響が小さい点にある。これは、GAWBS ノイズが位相ノイズであることに起因すると思われる。

Fig.6 にファイバの長さを変化させたときの実験結果を示す。



(a)



(b)

Fig.6 Experimental result; 0dB line is shot noise level; (a) polarization squeezing, and (b) photon number squeezing

偏光スクイージングの場合、ソリトンパワー15 mW 以下の入射においては、パルス幅が広がりソリトン条件を満

たしたところでソリトンとなるが、ピーク強度は低いので、非線形効果が高くパルスエネルギーに比例する GAWBS ノイズを相対的に低下できるという点では、N=1 ソリトンを入射において満たしているのがスクイーミング発生には優れているはずである。15 m での結果以外はその傾向が見られる。長さに関しては、Raman 散乱ノイズを考慮すると7ソリトン長程度が最適であるとモデル計算から予測されているが、我々の結果からは明確には最適長さを断言できない。

Fig.7に PCF を用いて SV および偏光スクイーミングを測定した結果を示す。また Table 2 使用した PCF のパラメータを示す。

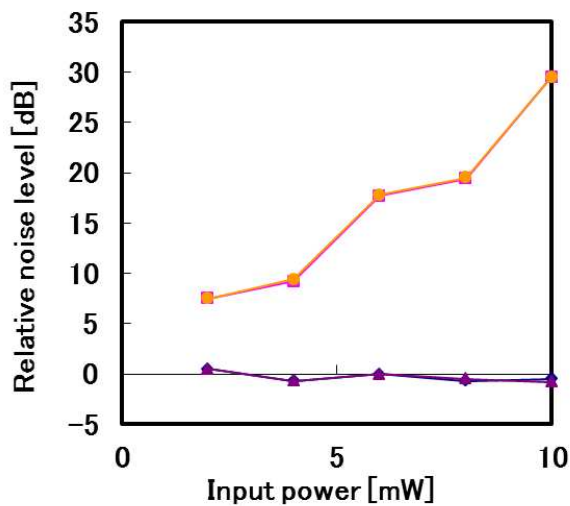


Fig.6 Experimental result; 0dB line is shot noise level. Polarization squeezing; squares are anti-squeezed level and diamonds are squeezed level. Vacuum squeezing; circles are anti-squeezed level and triangles are squeezed level.

Table.2 PCF parameters

	PM1550-01
コア系 [μm]	3.9/3.4
非線形係数 [ps^2/mm]	-75
ソリトンパワー [mW]	7.5/8.1
ソリトン長 [m]	0.93/0.86

大きな非線形効果を示すにも関わらずスクイーミングによるノイズ削減レベルは低かった。理由のひとつとしては、ファイバの長軸と短軸の非線形性が異なるために、偏

光干渉のビジビリティが低下してしまうことが考えられる。

今回の計測で得られた最大の偏光スクイーミングは、-3.4 dB であり、以下で定義される量子効率を用いてロスを換算する。

$$\eta = \eta_{\text{vis}}^2 \eta_{\text{loss}} \eta_{\text{dark}} \eta_{\text{PD}}$$

ここで各量子効率は、 $\eta_{\text{vis}} = 0.98$, $\eta_{\text{loss}} = 0.82$, $\eta_{\text{dark}} = 0.95$, $\eta_{\text{PD}} = 0.89$ である。これらを用いて測定値を補正すると、-7.1 dB に相当する。

6. まとめ

今回我々NOPI を用いて同じ条件で3種類のスクイーミングを評価することができた。その結果偏光スクイーミングと真空スクイーミングのノイズ圧搾量は等しいことが実験的に確認できた。

• References

- [1] S. Schmitt, J. Ficker, M. Wolff, F. König, A. Sizmann, and G. Leuchs, Phys. Rev. Lett. **81** 2446 (1998)
- [2] Norihiko Nishizawa, Kyosuke Sone, Junichi Higuchi, Masakazu Mori, Kazuo Yamane and Toshio Goto, Jpn. J. Appl. Phys. **41** 130 (2002)
- [3] Joel F. Corney, Joel Heersink, Ruifang Dong, Vincent Josse, Peter D. Drummond, Gerd Leuchs, and Ulrik L. Andersen, Phys. Rev. A **78** 023831 (2008)

Q スイッチ Pr:YLF レーザの共振器内 2 次高調波発生によるパルス紫外光発生

Intra-Cavity Second-Harmonic Generation in UV of Q-switched Pr:YLF Laser

渡辺洋次郎(M2), 小城絢一朗(D3), 根本寛之(M1)

Y. Watanabe, J. Kojou, and H. Nemoto

Abstract

Q-switched Pr:YLF laser at 522 nm pumped by four GaN laser diodes (444 nm and 441 nm) is tried. The transmission at 522 nm for AOM is too low to allow the laser oscillation.

1 はじめに

Pr³⁺ ドープ材料は青色から赤色にかける可視光域に多くの発光遷移があり、また波長 440 nm 帯に強い吸収スペクトルを持つ。また高出力化・長波長化が進んできた GaN 系半導体レーザ (GaN-LD) による励起が可能であり、可視域のレーザ発振を波長変換なしで実現できる。さらに 2 倍波変換で紫外光を得ることも可能で、コンパクト化・高効率化に向けた材料として注目されている。

これまでに、我々は出力パワー 1 W の GaN-LD を励起源として赤色 (639 nm), 橙色 (607 nm), 緑色 (522 nm) のレーザ発振の実験を行った。また音響光学効果を利用して波長 639 nm および 607 nm において、Pr:YLF レーザを Q-switch 動作させた。さらに波長 639 nm における Q スイッチ Pr:YLF レーザの共振器内に LBO 結晶を挿入し、共振器内 SHG によって波長 320 nm の紫外パルスの発生実験を行った。

今回我々は波長 522 nm における Q スイッチ動作の実験を行った。

2 実験:V 字共振器 CW 発振実験

実験は、長さ 3.7 mm, Pr³⁺ を 0.5 at.% ドープした YLF 結晶を用いた。この結晶は c 軸と平行にカットされている。励起源には、最大出力 1 W の 444 nm および 441 nm の GaN-LD を使用した。

Fig. 1 に Pr:YLF レーザの CW 発振の実験セットアップを示す。励起源である波長 444 nm の LD 光を非球面

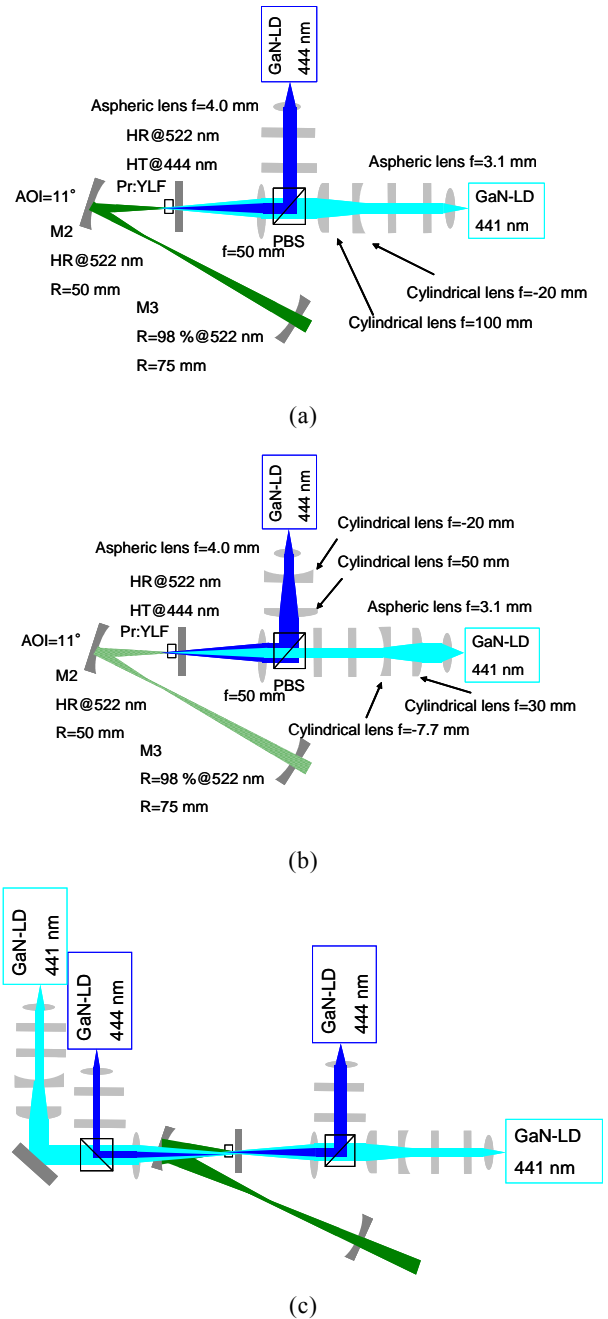


Fig. 1 Experimental setups of CW Pr:YLF laser. (a) Pumping system for horizontal direction. (b) Pumping system for vertical direction. (c) Four GaN-LDs pumping system for horizontal direction.

レンズ $f=4.0\text{ mm}$ で平行光線にし、シリンドリカルレンズ対 $f=-20\text{ mm}$ および $f=50\text{ mm}$ でビームシェイピングを行った後、PBS で波長 441 nm の LD 光と光路を合わせた。波長 441 nm の半導体レーザ光は、非球面レンズ $f=3.1\text{ mm}$ で平行光線にし、シリンドリカルレンズ対 $f=30\text{ mm}$ および $f=-7.7\text{ mm}$ で鉛直方向を $f=-20\text{ mm}$ 、 $f=100\text{ mm}$ で水平方向のビームシェイピングを行った。2つの半導体レーザ光を集光レンズ $f=50\text{ mm}$ で結晶の端面に集光した。共振器は $\text{HR}>99.5\% @522\text{ nm}$ の平面鏡、 $\text{HR}>99.5\% @522\text{ nm}$ の凹面鏡 ($R=50\text{ mm}$) および $R=98\% @522\text{ nm}$ の凹面鏡 ($R=75\text{ mm}$) で構成した。

Fig. 2 に共振器モードの計算結果を示す。V字の折り返し角は 22° ($\text{AOI}=11^\circ$) である。Fig. 3 は結晶内の波長 444 nm および波長 441 nm の半導体レーザ光と共振器モードの関係である。CW 発振実験ではさらに、Fig. 1 (c)に示されているように、凹面鏡側からも励起を行った。このときのそれぞれの波長の LD に対する励起光学素子は平面鏡側から入射しているものと同じものを使用した。Fig. 4 は吸収パワーに対する CW 発振時の出力パワーである。励起は Fig. 1 (c)の平面鏡側の LD の電流を上げていった。まず波長 444 nm の LD の電流を上げていき、最大駆動させ (900 mA)、その状態で波長 441 nm の LD の電流を上げていき、最大駆動させた (750 mA)。同様に凹面鏡側の LD についても波長 444 nm の LD については 1000 mA まで、波長 441 nm の LD については 750 mA まで電流を上げて励起を行った。Fig. 4 の出力特性をみると傾きが一定ではな

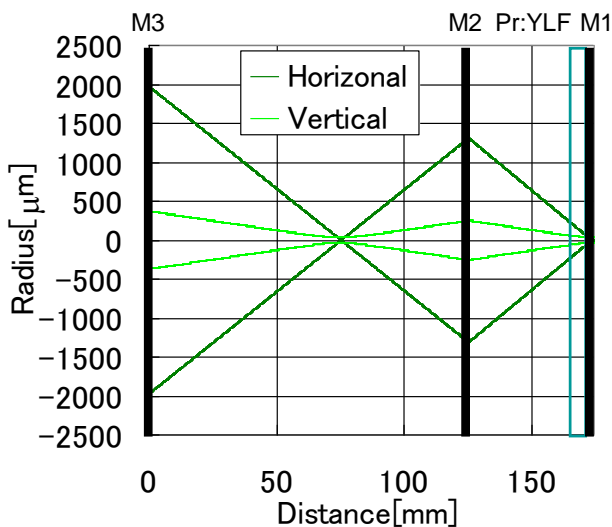
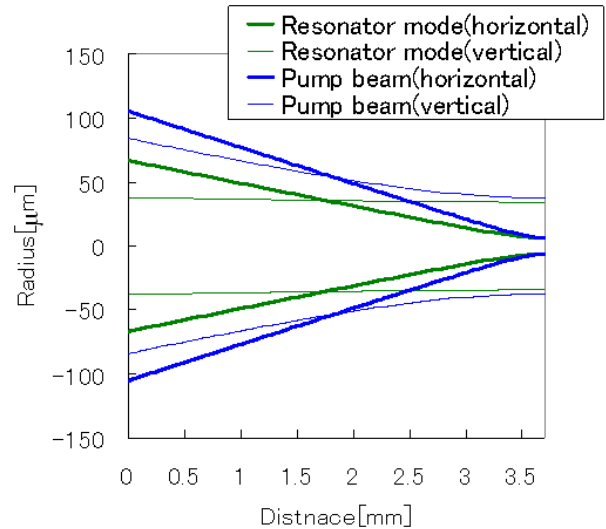
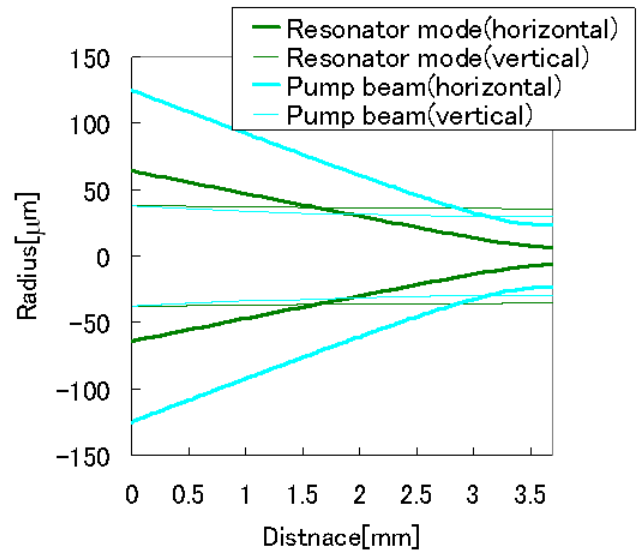


Fig. 2 The calculated beam profile in the laser resonator with a cavity length of 174.34 mm .

い。傾きが小さいところが 2箇所あるが、これは励起の仕方を、平面鏡側の波長 444 nm の LD、波長 441 nm の LD、凹面鏡側の波長 444 nm の LD、波長 441 nm の LD という順番に駆動電流を上げていき、Fig.3 から分かるように波長 441 nm の LD 光と共振器モードの整合は波長 444 nm のそれに比べて悪いので、吸収パワーに対する出力特性が悪くなっている。



(a)



(b)

Fig. 3 The calculated resonator mode and pump beam profiles of (a) 444 nm GaN-LD and (b) 441 nm GaN-LD in the Pr:YLF crystal.

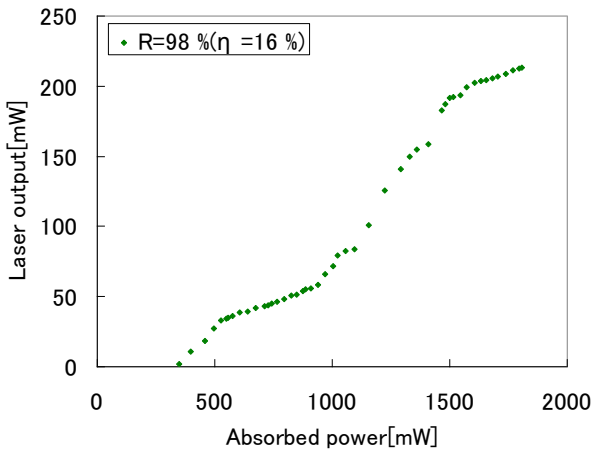


Fig. 4 Plots of the output power at 522 nm as a function of absorbed pump power.

3 実験: Q スイッチ

Fig. 1 (c)のセットアップで AOM を共振器内に挿入した (Fig. 5) . 出力鏡の反射率を HR@522 nm に代えたが, 励起光学系や他の共振器を構成しているミラーは CW 発振時と同じ素子を用いた. しかし AOM を挿入した状態では発振させることができなかった. そこで Fig. 6 のような実験セットアップで AOM を共振器の外部に置き, AOM の損失を測定した. 波長 522 nm のレーザ光の偏光に対して AOM を共振器内に入れた場合と同じ方向と AOM を 90° 回転させた方向の透過率を測定した結果, それぞれの場合で透過率が 96 % および 94 % であった. Fig. 4 の出力特性から, AOM を挿入していない場合の波長 522 nm のレーザ発振閾値が 300 mW ほどであることが分かる. このとき出力鏡の反射率が 98 % であり, 共振器の損失としては 2 % にあたる. Fig. 5 のように共振器を構成しているミラーの反射率は全て HR@522 nm であり, 共振器の損失は AOM における損失 8 % (往復として) である. したがって閾値がおよそ 4 倍の 1.2 W ほどになると見積られる. Fig. 4 において吸収パワーが 300 mW から 500 mW の傾きで 1.2 W まで励起できたとすると, 出力は 200 mW ほどと見積られる. しかし現状では出力を 200 mW まで上げるには吸収パワーを 1.5 W まで上げる必要がある. したがって AOM を挿入した場合, 閾値ぎりぎりであると考えられる. 以上から, AOM の損失が原因で発振閾値が上がり, 励起パワーが発振閾値ぎりぎりになってしまい, 発振が難しかったのではないかと考

えられる. 改善方法としては, 透過率の高い AOM を用いること, V 字の角度をさらに小さくすることによって非点収差を小さくすること, YLF 結晶の熱による影響を減らすために結晶を冷却することなどがあげられる.

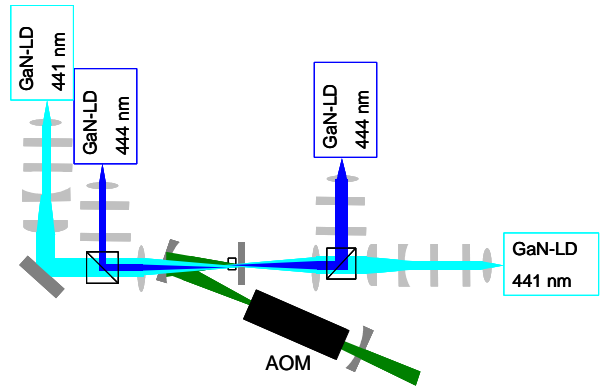


Fig. 5 The setup of AO Q-switched of Pr:YLF laser at 522 nm

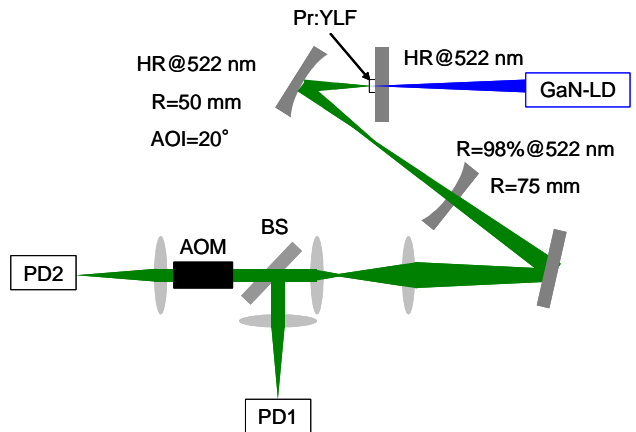


Fig. 6 Measurement of transmission at 522 nm for AOM.

4 結論

本研究では, 波長 522 nm における Q スイッチ Pr:YLF レーザの共振器内 SHG の実験を行うことを目的として, GaN-LD を 4 台用いて Q スイッチの実験を行った. しかし, AOM を共振器内に挿入した段階ではレーザ発振をさせることができなかった. 原因は, AOM の透過率が, レーザ発振をさせるには低かったのではないかと考えられる. 改善方法としては, 透過率の高い AOM を用いること, V 字の角度をさらに小さくすることによって非点収差を小さくすること, YLF 結晶の熱による影響を減らすために結晶を冷却することなどがあげられる.

Pr:YLF レーザ励起用 GaN 半導体レーザーの温度制御特性

Temperature Control of GaN Diode Lasers for Pumping Pr:YLF Lasers

根本寛之(M1),渡辺洋次郎(M2)

H. Nemoto, Y.Watanabe

Abstract

To scale-up diode-pumped Pr:YLF lasers, operation condition of GaN diode-lasers is reexamined. A GaN-LD exhibits significant wavelength red-shift due to carrier separation at the quantum well and the laser pumping efficiency decreases. We try to decrease the red-shift by cooling the diode by Peltier devices

1. はじめに

一般的な固体レーザー材料は近赤外域に発光遷移を持つものに対して Pr³⁺イオンは可視域に多数の発光遷移が存在する。過去において Pr³⁺ドープレーザー材料は Ar イオンレーザー励起[1]により実現されたが、青色域でレーザー発振する GaN 系半導体レーザー (GaN-LD)が開発されたことにより再度研究が行われてきている。

現在までに GaN-LD 励起 Pr:YLF 固体レーザーにおいて赤色、橙色、緑色の CW 発振、赤色、橙色の AO-Q-switch 発振[2], 共振器内 CW-SHG による紫外線発振[2]等が報告されている。次の段階を考えると必然的に、緑色での AO Q-switching, パルス SHG 変換, passive-Q-switching, モード同期発振等の高い共振器内光強度を用いた非線形効果を利用した動作の開発が期待される。しかしながら、現在市販 GaN-LD の定格は最大 1 W であり励起光強度が十分ではない。さらに量子井戸構造における電荷分離による半導体レーザーの中心波長の長波長シフトにより、吸収線幅があまり広くない結晶母材では、励起出力を最大限利用できていないのが現状である。そこで我々は、現有する GaN-LD の動作特性を詳しく調べた。GaN-LD の出力を最大限に利用するために冷却機構を製作し、冷却時の性能を詳しく調査し、緑色での Q-switching, SHG 発振、Passive Q-switching、モード同期発振の実験への準備を行った。

2. 励起ビーム径の測定

最初に共振器内 Pr:YLF 結晶中の GaN-LD のビーム径を測定し、私たちの計算結果との比較を行った。

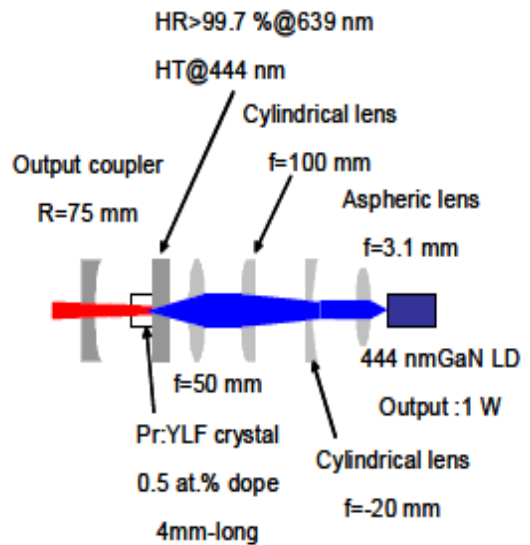


Fig. 1 Experimental setup of a red CW Pr:YLF laser.

実験系は Fig.1 に示す中心波長 444nm の GaN-LD、非球面コーリメートレンズ、シリンダリカルレンズ対、集光レンズ、長さ 4 mm の Pr:YLF 結晶 2 枚の共振器ミラーで構成される。赤色 CW 発振レーザー共振器を組み、最大強度で発振するように調整後、共振器部分を外し、CCD カメラを設置して励起レーザープロファイルを測定した。結果を Fig.2 に示す。この結果から、垂直方向のビーム径はビーム広がり角の定格値を用いて理論計算と良く一致しているが平行方向はあまり一致してなく、さらにビームの広がり角が対称でないことが分かる。この計測結果から、GaN-LD の実効広がり角を補正して光学系設計を行う必要があることがわかった。

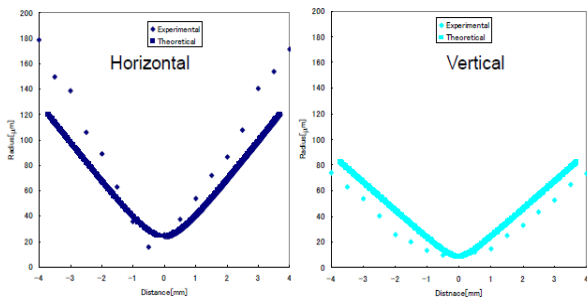


Fig. 2 Measured pumping beam profiles compared with the theoretical prediction obtained by the rated beam divergence of GaN-LD.

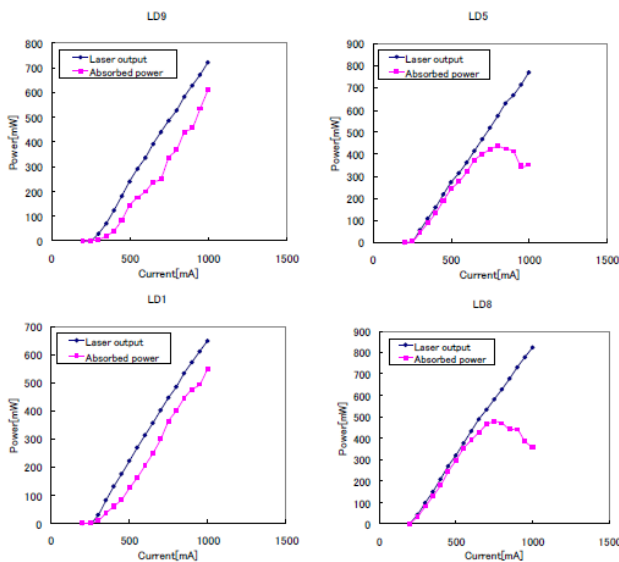


Fig. 3 Output power of four GaN-LDs and absorbed power by 4-mm Pr:YLF crystal as a function of current.

3. 電流-出力、吸収パワー特性の測定

Fig. 3 に GaN-LD の電流-出力特性と 4-mm 長 Pr:YLF の吸収パワー特性の測定結果を示す。番号は LD を区別するために便宜上つけられた物である。LD1,9 は出力が増加するごとに、吸収パワーも増加するが、しかし LD5,6 は出力が 700mW を超えるあたりで吸収パワーが減少に転じている。これは青色 LD のキャリア注入による中心波長シフトにより Pr:YLF の吸収スペクトルピーク (Fig. 4)444nm から大幅にずれるからである。

4. 出力-波長特性の測定

Fig. 5 に GaN-LD の出力-波長特性の測定結果を示

す。どの LD も基本的に出力が増加するごとに中心波長が長波長にシフトすることが分かる。波長シフトが連続的ではないのは、共振器モードジャンプが起きるためである。

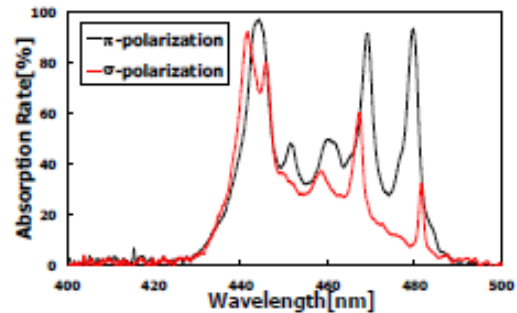


Fig. 4 Absorption spectra of Pr:YLF crystal around 450nm at room temperature for π and σ polarizations.

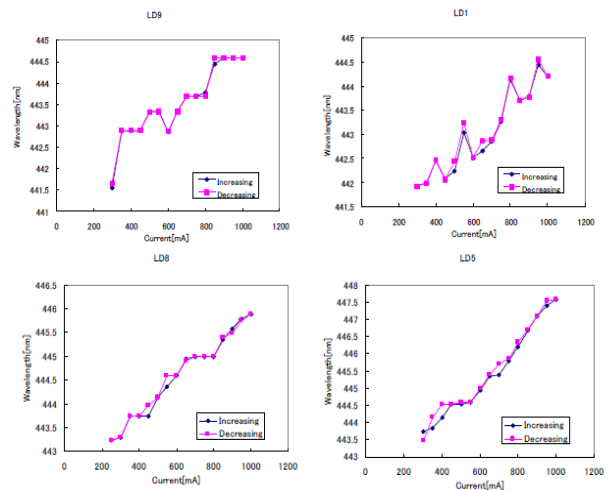


Fig. 5 Laser wavelength shift of the GaN-LDs as a function of current.

5. LD の冷却機構

制作した LD の冷却機構を Fig. 6 に示す。冷却には、フェローテック社製の最大吸熱量 6.9W の穴あきペルチェ素子 9506/023/040B を使用している。LD の発熱量は最大 4W と見積もれるのでこのペルチェ素子で充分 LD を冷却できる。ペルチェ素子の熱はヒートシンクと空冷により逃がしている。ヒートシンクは H40×100×100mm の大きさの物を使用している。

構造としては LD を銅製の LD ホルダーで固定し、そのホルダーにペルチェ素子密着させて LD の熱を逃がす構造になっている。LD の電気的な接続はヒ

ートシンクに開けた穴とペルチェ素子の穴を通して行っている。また、ペルチェ素子とホルダーとヒートシンクの間はシリコングリスを塗ることにより熱伝導率を上げている。

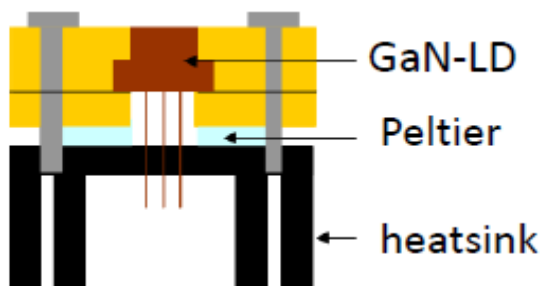


Fig. 6 Cooling structure of GaN-LDs.

6. LD の冷却効果

LD のペルチェ冷却有無での温度変化は Fig. 7 に示す。ペルチェ素子には 4A の電流を流している。最大で 20 度程度温度が下がっている。

Fig. 8, 9 に LD の冷却時の波長、出力特性を示す。波長は冷却の効果により最大で 2 nm ほど減少しており、電流 1A 時に励起に最適な発振波長 444nm に近づいているが、励起効率の高い 444nm には達することはできなかった。GaN-LD の波長温度依存性は 0.053 nm/k、光出力依存性は 0.016nm/mW であり[3]、実験結果ともほぼ一致している。出力は、冷却の効果により電流 1 A 時に 120 mW ほど増加している。Fig. 10 は冷却による、吸収パワーの改善を示している。冷却をしない場合は途中で吸収パワーは減少しているが、冷却時には吸収パワーは減少せずに単調増加している。そのため、冷却をしていない場合にくらべると 320mW ほど増加しており、大きな改善が見られた。Fig. 1 の実験装置の場合、赤色 CW 発振では 140mW ほどの出力の増加が見込まれる。

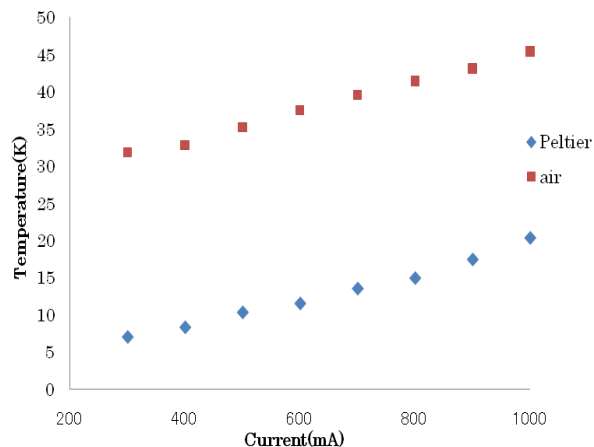


Fig. 7 Operation temperature of GaN-LD with and without external cooling as a function of injection current.

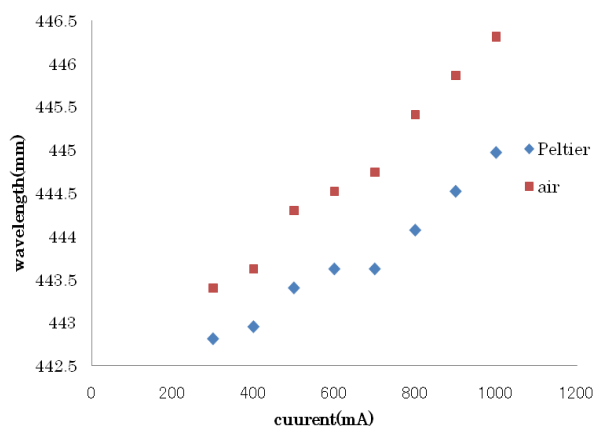


Fig. 8 Wavelength of GaN-LD with and without external cooling as a function of injection current.

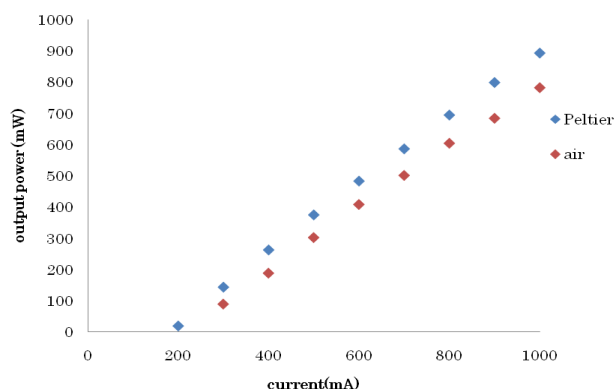


Fig. 9 Output power of GaN-LD with and without external cooling as a function of injection current.

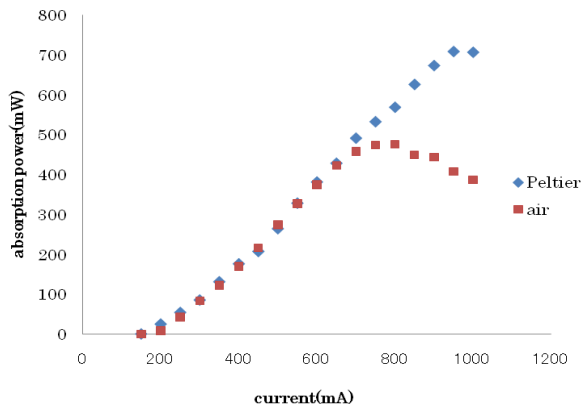


Fig. 10 Absorbed pump laser power with and without external cooling as a function of injection current.

7. まとめ

青色 LD の特性を調査することにより、励起ビーム径と波長シフトによる吸収パワーに問題が生じていることが発覚した。励起ビーム径は、実測された M2 値を用いて整形する必要があり、吸収パワーの問題はペルチェ素子による冷却機構により、一応の改善ができた。より吸収パワーを増加させるためには水冷等でより強力に冷却するか、1W 動作で許容波長で発振する LD を用意する必要がある。

References

- [1] H.Taniguchi et al, AppL.Phys.Lett. **1**,2421(1995).
- [2] 児嶋洋典 慶應義塾大学工学部卒業論文 (2009).
- [3] 小野正明 東芝レビュー**60**, 9 (2005).

透明材料を用いた高次高調波用ビームスプリッター

Beam Splitters for High-Order Harmonics Using Materials Transparent to Fundamental Laser

児嶋洋典(M1)

Y. Kojima

Abstract

It is a crucial issue to separate high-order harmonic (HH) beams from the intense fundamental laser beam when we apply the HH beams to spectroscopic measurements. The beam splitter (BS) mirror made of Si or amorphous SiC has been used for the attenuation of the fundamental beam. But these BSs absorb the fundamental beam, so there is a concern of thermal expansion due to increase of an average power of the fundamental beam. In fact, the average power of the fundamental beam from our laser system is now tenfold magnitude compared with that from the previous laser system. Therefore, we examined the BS property of transparent materials in 700 to 900 nm, which are aimed to suppress the generation of heat.

1 はじめに

フェムト秒レーザーを基本波として発生した高次高調波を利用するためには、同軸上を伝搬している基本波から分離する必要がある。そのための手法として、基本波と高次高調波に対する屈折率の違いを利用したビームスプリッター(BS)が考案された。これは、結晶の光学研磨された面を基本波に対してブリュースター角に設定することによって基本波の反射を抑え、高次高調波は屈折率が異なるため反射されるというものである。その材料には最初に提案された Si とアモルファス SiC[1]が今も使われており、最低でも 0.8 TW/cm^2 という高い損傷閾値をもっている。また、基本波(800 nm)の減衰率(反射率)は $\sim 10^{-5}$ 、高次高調波の反射率は 29.6 nm に対して Si は 0.56, SiC は 0.45 という値が報告されている。ここで今新たに BS 材料の調査を行ったのは、これら従来の BS 材料は基本波を吸収するため(Si の侵入長は $3 \mu\text{m}$, SiC は 9 nm 程度)、基本波の平均パワー上昇に伴い熱による変形が起こる可能性が考えら

れるからである。近年では $12 \text{ fs} \cdot 40 \text{ mJ} \cdot 100 \text{ Hz}$ のレーザーシステム[2]や $5 \text{ fs} \cdot 5 \text{ mJ} \cdot 1 \text{ kHz}$ のレーザーシステム[3]など、従来の 10 倍程度の平均パワーをもつ高強度高繰り返しレーザーが開発されてきた。これらのレーザーの高繰り返しを活かしつつ高品質の高次高調波ビームラインを得るためには、高平均出力化による熱の影響を最小限にする高次高調波用 BS が不可欠である。そこで我々は、基本波(700-900 nm)を透過する材料を用いることで熱の発生を抑制することを考えた。どの材料が高次高調波用 BS に適しているか確かめるべく高次高調波に対する反射率と基本波に対する減衰率(反射率)を測定したので、その特性をここに報告する。

2 材料の選定

ここでは BS 用材料の選定について述べる。まずは高次高調波用 BS の概略図を Fig. 1 に示す。光学研磨した結晶を P 偏光の基本波に対してブリュースター角に置く。ここで、基本波が吸収されず透過するのが従来の高次高調波用 BS との違いである。そして高次高調波は、基本波と同じく P 偏光ではあるが、基本波とは屈折率が大きく異なるためブリュースター角とはならず、屈折率と入射角に応じていくらか反射される。ここで高次高調波の屈折率は概して 1 より小さく、入射角が大きいほど高い反射率が得られる傾向にある。また、屈折率が大きいほどブリュースター角は大きく

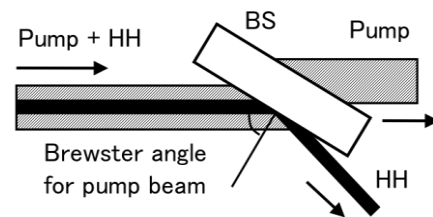


Fig. 1 Schematic of the BS for high-order harmonic fields.

なる。そのため、基本波に対する屈折率が大きいほど高次高調波に対して高い反射効率を期待できる。また、屈折率が1に近いほど反射率は下がるので、高次高調波に対する屈折率は小さいほど(1から離れるほど)BS用材料に適しているといえる。よって、(1)基本波に対する屈折率が大きい、(2)高次高調波に対する屈折率が小さい、(3)化学的に安定で面精度の良い結晶が得られる、といった条件が設定される。我々はこれらの条件に適合する透明材料として、多結晶 SiC, C(ダイヤモンド), TiO₂(ルチル), GaPに着目した。

SiC は本来透明であるが、純度の高い結晶をつくるのが難しく、従来の高次高調波用 BS に使われていたものは不純物により基本波の吸収が起こっていた。今回、高純度の透明 SiC が手に入ったのでその特性を測定する。C は高い熱伝導率を持つ非常に堅固な物質であるため、高出力レーザー下でも安定した性能が期待できる。TiO₂ は複屈折性を持つため c 軸の角度を調節する必要があり、熱伝導率も非常に低いが、従来の BS 材料である Si と SiC の反射率が下がる 20 nm 付近に反射率のピークを持っている。また、GaP は低次側で高い反射率が期待でき、他の 3 つの材料に比べると安価で容易に入手できる。Table 1 に選んだ材料の基本波に対する屈折率と熱拡散係数をまとめる。

Table 1 Refractive index and thermal diffusivity of SiC, C, TiO₂, and GaP.

	Refractive index at 800 nm	Thermal diffusivity [$10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$]
SiC	2.6	229
C	2.4	985
TiO ₂	2.8	2.64
GaP	3.2	121

3 高次高調波の反射率測定

Fig. 2 に実験セットアップを示す。測定には、100 Hz・サブ 15 fs のレーザー光[2]をポンプ光として用い、高次高調波を Xe ガス(11-19 次高調波)または Kr ガス(13-27 次高調波)を非線形媒質として発生させた。発生

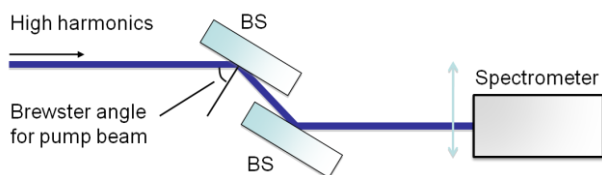


Fig. 2 Setup for measuring the BSs' reflection efficiency.

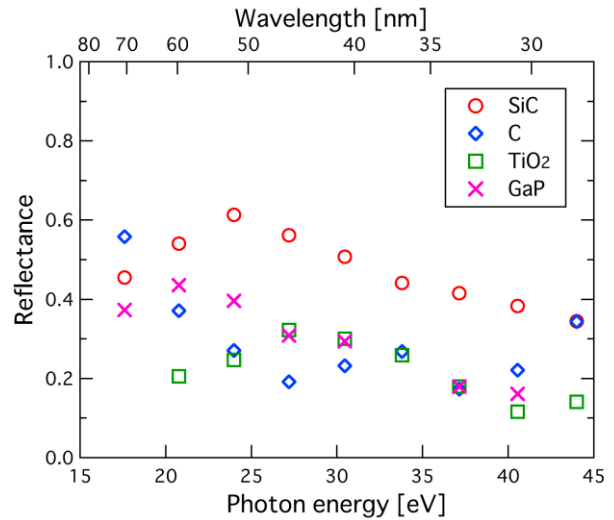


Fig. 3 The measured reflectance of SiC (open circles), C (open diamonds), TiO₂ (open squares), and GaP (crossings).

した高次高調波は SiC の BS で反射された後、極端紫外用分光器に導いて、スペクトル強度を観測する。その途中に反射率を計測する BS 材料(2 枚組)をブリュースター角入射で反射する様に出し入れできる真空チャンバーを配置した。反射率は、高調波が直接分光器に入射した時のスペクトル強度, BS 材料 2 枚反射後のスペクトル強度比から、1 枚あたりの平均の反射率として算出している。

Fig. 3 は測定結果を表している。最も優れた反射特性を見せているのは SiC であり、70-30 nm において 0.4-0.6 という高い反射率を示している。良好な面精度が保たれている限り、この波長帯域の高次高調波用 BS に最適な透明材料は SiC であるといえる。

4 基本波(800 nm)の減衰率測定

Fig. 4 に基本波の減衰率(反射率)測定のためのセットアップを示す。高次高調波用 BS にブリュースター角で入射したときの反射強度を測定することで基本波の減衰率を求めた。光源は Ti サファイアのモードロックオシレーターを用いた。光源の S 偏光成分は P 偏光成分の 0.23 倍程度であり、さらに消光比 100,000:1 の偏光子を置くことで、P 偏光に対する S 偏光の強度を 10^{-6} 程度に抑えている。まずは BS の手前にピンホールフォトダイオードを置いて、入射光強度を測定した。測定の際は、フォトダイオードが飽和しないように ND フ

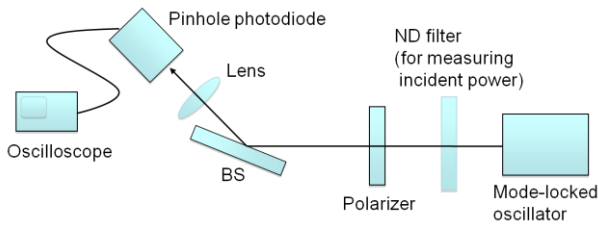


Fig. 4 Setup for measuring the attenuation of BSs.

フィルターを挿入して入射光強度を十分に落としている。次に、BS を入射光に対してブリュースター角となるように置いて、反射光強度を測定した。反射光強度は非常に小さいため、ノイズを低減する必要がある。そこで、検出した信号をフーリエ変換し、光源の動作周波数である 78MHz 付近の成分のみを取り出すことで S/N 比を上げている。そして、測定した入射光強度と反射光強度の比から減衰率を算出した。

Table 2 に測定値を示す。基本波の減衰率は $\sim 10^{-5}$ となっている。また、S 偏光強度は検出された反射光強度の 100 分の 1 程度なので、S 偏光成分を除外するような計算処理はしていない。ここで、各材料の値の差異に関係しうるパラメータとしては、(1)結晶の面精度、(2)波長による屈折率の分散、(3)吸収係数、(4)屈折率の非線形性などが考えられるが、(2)-(4)は測定値との相関はなく、減衰率は主に結晶の面精度に依存していると考えられる。今後、面精度の測定を行う予定である。また、参考として、高次高調波の発生効率は概ね $\sim 10^{-5}$ 程度なので、通常はスリットやフィルターと組み合わせることでさらに基本波を減衰させる必要がある。

Table 2 The measured attenuation rate of BSs for pump pulse at Brewster angle.

	Attenuation rate
SiC	4.2×10^{-5}
C	7.9×10^{-4}
TiO ₂	4.1×10^{-4}
GaP	5.8×10^{-4}

5 まとめ

高次高調波用ビームスプリッターに適した透明材料として SiC, C, TiO₂, GaP に着目し、これらの各次数の高次高調波に対する反射効率および基本波の減衰率を測定した。中でも SiC が最も高い反射効率を示して

おり、BS 用材料として最適だと考えられる。この透明材料による高次高調波用 BS は高出力レーザー下での使用に向いており、今後のさらなるレーザーの高出力化にも伴ってその重要性を増していくであろう。

また、まだ実施していない実験項目としては、面精度の測定と、高出力レーザー下での表面の変形の有無を確認する必要があるため、それらを今後行っていきたいと思う。

謝辞

本研究は理化学研究所緑川レーザー物理工学研究室主任研究員緑川克美博士に実験環境を提供して頂き、研究員鍋川康夫博士の指導を受けて行われました。厚く御礼申し上げます。

References

- [1] E. J. Takahashi, *et al.*, *Opt. Lett.* **29**, 507 (2004).
- [2] Y. Nabekawa, *et al.*, *Appl. Phys. B.* **101**, 523 (2010).
- [3] S. Bohman, *et al.*, *Opt. Lett.* **35**, 1887 (2010).