

# Ar ガス封入中空ファイバによる白色光発生とパルス圧縮によるサブ 10fs レーザパルス発生

## Supercontinuum generation using an Ar gas filled hollow-core fiber and pulse compression for sub-10fs laser pulse

阿部智明(B4), 塩山正真(M2)

T. Abe and T. Shioyama

### Abstract

Supercontinuum generation using an Ar gas filled hollow-core fiber was studied to generate sub-10fs laser pulses. Effect of various experimental conditions such as gas pressure, fiber core diameter and pre/post pulses of the incident laser to the output spectrum was investigated.

### 1 はじめに

近年の高強度超短光パルス技術の発展は目覚しく、光パルス幅数 10 fs, パルスエネルギー数 100  $\mu$ J 程度の高強度フェムト秒光パルスであれば、そのスペクトル振幅・位相をシンセサイズできる波形整形技術と組み合わせる利用できるようになった。一方で、数サイクル(10 fs~4 fs)パルス発生[1-3], パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)[4], キャリアエンベロープ(CEP)位相制御[5], アト秒光パルス発生[6]などの極めて高度なレーザ技術も、各国で競って実現されている。

これらの光パルス技術の進歩によって、光と物質のコヒーレント制御もまた大きな進展を遂げている。特に気相分子との相互作用においては、反応システムの時間発展に追従できる光パルスの「極短時間性」が重要な意味を持ち、これによって時間発展が数 fs で進行する超高速分子システムの反応制御が多く達成されている[7, 8].

我々も高強度フェムト秒レーザパルス ( $10^{12}$ ~ $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>, 40 fs~1 ps, 800 nm~400 nm)を用いて、C-C 結合と C-O 結合の 2 つの主反応軸を有する気相エタノール分子の選択的結合解離反応を調査してきた。その結果、相対的なC-O 結合解離反応が光パルス幅や周波数によって制御できることを示した[9-11]。しかし、この解離反応の絶対的な分岐確率はわずか数 fs で決定される

ため、よりフレキシブルな制御を目指す場合、さらなる極短時間を有する光パルスの発生が必要である。

そこで、本研究では、Ar ガス充填中空ファイバを用いて、レーザの周波数広帯域化(700 nm~900 nm)およびその時間圧縮により、数サイクルパルス(~8 fs)の発生を試みた。

### 2 実験方法

実験セットアップを Fig.1 に示す。光源から発生した中心周波数 800 nm, スペクトル幅 40 nm(FWHM), フーリエ限界パルス幅 20 fs のフェムト秒レーザパルスを、チャープパルス増幅器(CPA)によって約 0.37 mJ/pulse まで増幅する。出射光パルスのスペクトル幅は 25 nm であり、このときフーリエ限界パルス幅は 40 fs である。また、ビーム径は~8 mm( $1/e^2$ )である。その後、アクロマティック集光レンズ ( $f=400$  mm or 800 mm)により Ar ガス充填中空ファイバへと結合させ(集光強度:  $1.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> or  $7.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>), 自己位相変調によって周波数広帯域化を行う。

Ar のガス圧力の設定は 270 Torr から 500 Torr 以内とした。中空ファイバのコア径とファイバ長はそれぞれ 126  $\mu$ m, 44 cm および 250  $\mu$ m, 51 cm の 2 つを用意した。ファイバ伝搬によるスペクトル分散(主に正の 2 次分散)はチャープミラーによって負の 2 次分散を付加させることで補償し、光パルスの時間圧縮を行った。時間圧縮された光パルスは、フリッジ分解 SHG 自己相関計測によって評価した。このとき用いた SHG 結晶は Type-1  $\beta$ -BBO であり、650 nm~1000 nm までの広帯域で位相整合が取れるように結晶長が十分短いもの(10  $\mu$ m)を使用した。

### 3 中空ファイバによる周波数広帯域化

#### 3.1 Ar ガス圧力依存性

中空ファイバに充填された気体の非線形屈折率は、そのガス圧力に依存する。Ar ガスの場合、非線形屈折率は  $9.8 \times 10^{-24} \text{ m}^2/\text{Watm}$  である。理想的な周波数広帯域化を得るための最適圧力を調査するため、中空ファイバ内の Ar ガス圧力を変化させてファイバ後の出力光パルスのスペクトルを計測した。その結果を Fig.2(a) に示す。なお、このとき用いた中空ファイバのコア径は  $126 \mu\text{m}$  である。

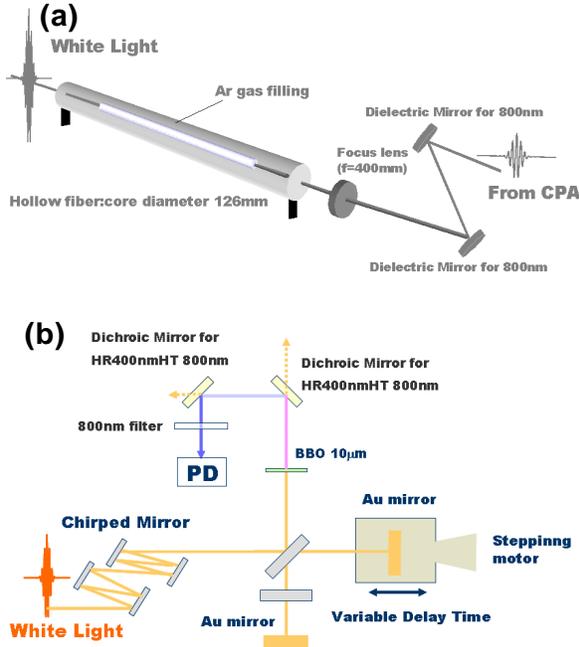


Fig.1 Experimental set up for (a) the generation of intense few-cycle laser pulse and (b) the measurement of the fringe-resolved SHG autocorrelation trace.

基本的にガス圧力の増加とともに出力光パルスの周波数帯域は広がってゆくが、圧力の増加は中空ファイバ結合時の集光スポットにおけるプラズマ発生の要因となり、ファイバ透過率が低下してしまうため、我々の実験条件では、ガス圧力は 400 Torr が最適値であると決定した。

### 3.2 ファイバコア径依存性

中空ファイバのコア径を変化させると、ファイバのスルーputと出力光パルスのスペクトル広がりを変化させる。この効果を調査するため、中空ファイバのコア径が  $126 \mu\text{m}$  と  $250 \mu\text{m}$  の場合における出力光パルスのスペクトル変化を調査した。結果を Fig.2(b) に示す。

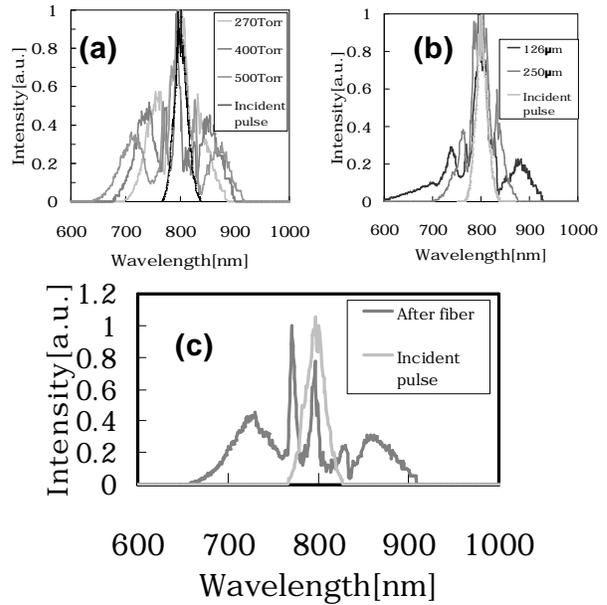


Fig.2: Dependence of the broad-banded spectrum on (a) the Ar gas pressure, and (b) the fiber core diameter. (c) The optimal spectrum after the ratio between the main pulse and the pre/post pulse was optimized. The spectrum of the incident pulse is shown together in all the figure.

このとき、中空ファイバへのカップリング効率に差が出ないように、集光スポットがコア径の 80 ~ 90 % 程度になるよう、アクロマティック集光レンズはコア径  $126 \mu\text{m}$  の場合は  $f=400 \text{ mm}$ 、 $250 \mu\text{m}$  の場合は  $f=800 \text{ mm}$  のものをそれぞれ用いた。Ar ガスの圧力は 1 atm とした。比較的高圧である理由は SPM の効果を比べやすくするためである。

まず、2 つの場合におけるスルーputを比較すると、コア径  $126 \mu\text{m}$  の場合では 50 % であるのに対し、コア径  $250 \mu\text{m}$  では 70 % となった。従って、単純に高スルーputを狙うのであれば、コア径は大きいほうが良い。ただし、Fig.2(b) に示すように、出力スペクトルを比較すると、コア径  $126 \mu\text{m}$  の場合の方がコア径  $250 \mu\text{m}$  の場合に比べてより広い周波数広帯域化が達成されている。コア径  $250 \mu\text{m}$  を用いた場合、コア径  $126 \mu\text{m}$  の場合と同等の周波数広帯域化を得るには、Ar ガス圧力をさらに増加させる必要があるが、前述のように、高ガス圧力は結果的に低スルーputを招く。

従って我々の実験条件では、コア径は 126  $\mu\text{m}$  が適切であると判断した。

### 3.3 入射光パルスのプレ・ポストパルスの影響

Fig.2(a),(b)の結果より、波長成分 700 nm~900 nm までの周波数広帯域化が実現されているが、入射光パルスの 800 nm に対応するピーク成分が大きく残っているのがわかる。通常、CPA システムからの出力光パルスにはメインパルスの前後(7.5 ns)に CPA 共振器内を行き来しているプレパルス、ポストパルスが存在している。これは、CPA 共振器内に設置されているポッケルスセル(パルスピッカー)の設定電圧や結晶傾きなどのミスアライメントから派生する。我々の CPA システムにはメインパルスに対して 30 %程度の割合で存在していることがわかった(Fig.3)。これらのプレ・ポストパルスには中空ファイバ伝播による周波数広帯域化は起こらないので、結果として測定スペクトルに 800 nm 成分が大きく残ってしまうと我々は考えた。そこで、CPA 共振器内ポッケルスセルの電圧・傾きを調整しさらに ASE 成分の立ち上がりよりも早く信号が飽和できるように調整し、メインパルスの取り出し効率が最も大きくなるようにした。改善後のプレ・ポストパルスとメインパルスの出力信号を Fig.3 に示す。メインパルスに対するプレ・ポストパルスの割合が 15 %程度まで改善されていることがわかる。この状態で、最終的に得られた出力スペクトルを Fig.2(c)に示す。800 nm に対応するピーク成分が Fig.2(a),(b)と比較して抑制されていることが確認される。

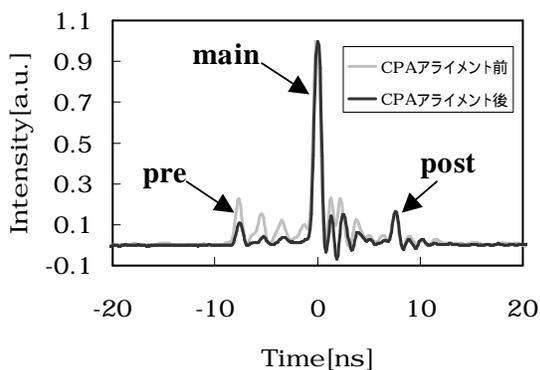


Fig.3 Amplified signals of the incident pulse from the CPA system detected by a high-speed photo diode.

## 4 光パルスの時間圧縮

前述の通り、最終的な実験条件として、中空ファイバのコア径は 126  $\mu\text{m}$ 、ファイバ長は 44 cm、そして Ar ガス圧力は 400 Torr と決定した。中空ファイバ伝播後の出力スペクトルは Fig.2(c)に示している。このときのシステムスルーputは約 50 %であり、出力光パルスのパルスエネルギーは 0.15 mJ/pulse である。この条件で、次に我々は出力光パルスの時間圧縮(分散補償)を行った。

分散補償のため用いたチャープミラーは、1 回の反射あたり  $-65 \text{ fs}^2$  の負の 2 次分散が付加される。しかし、チャープミラーはペア(2 回反射)で使用しなければならないため、 $-130 \text{ fs}^2$  ほどの分散補償しかできない。そこで、より細かい分散補償のためには、厚さ 1 mm の石英板 (約  $+40 \text{ fs}^2$ ) と組み合わせて時間圧縮を行うこととした。

Fig.5 に出力光パルスが最も時間圧縮された場合のフリンジ分解 SHG 自己相関測定結果を示す。このときのチャープミラーの反射回数は 8 回 ( $-520 \text{ fs}^2$ )、出力光パルスが透過する石英板の厚さは 8.5 mm (約  $+340 \text{ fs}^2$ ) である。また、完全な分散補償(フーリエ限界パルス)が達成された場合のフリンジ分解 SHG 自己相関波形を測定スペクトルから計算し、同図に示している。計算は以下の式に従った。

$$\int_{-\infty}^{\infty} E^2(t)E^{*2}(t-\tau)dt \quad (1)$$

ここで、 $E(t)$  は測定スペクトル振幅とフラット位相から逆フーリエ変換によって得られる光電界(フーリエ限界パルス)である。

Fig.5 の結果から、時間圧縮された光パルスの相関幅は 10.9 fs であり、この結果から光パルス幅は 7.6 fs と見積もられ、数サイクルパルスの発生が実現できていることが確認された。しかし、フーリエ限界パルスでは 6.9 fs であるので完全な分散補償は達成されていない。これらの要因は、チャープミラーでは補償できない高次分散の影響であると考えられる。これらの完全な分散補償のためには、中空ファイバ後に 4-f 型波形整形器を構築し、これを用いて分散補償することで解決される [12]。

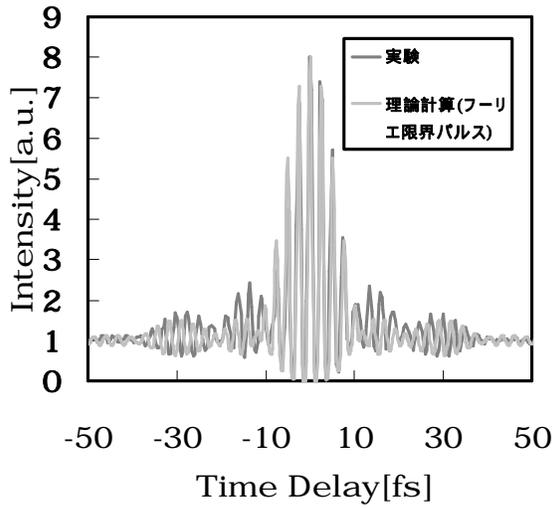


Fig.4 Fringe-resolved SHG autocorrelation trace obtained when the best dispersion compensation was done. Transform-limited pulse calculated from the measured spectrum is also shown.

## 5 まとめ

Ar ガス充填中空ファイバを用いたレーザーパルスの周波数広帯域化を行った。また様々な実験条件を変化させながら、周波数広帯域化への影響を調べた。結果、波長成分 700 nm~900 nm までの広帯域化を達成した(システムスループット~50%)。

また、出力光パルスの分散補償をチャープミラーと石英板により行った結果、光パルス幅 7.6 fs の数サイクルパルスの発生を達成した。

この数サイクルパルスによって、気相分子をはじめとした、さらなる極限時間域における光-物性コヒーレント制御の可能性が開かれるだろう。

## References

- [1] A.J.Verhoef, et al., Appl. Phys. B., **82**, 513 (2006)
- [2] N. Karasawa, et al., Opt.Lett.**25**, 183(2000).
- [3] A.Baltuska, et al., Opt. Lett., **27**, 306 (2002)
- [4] N. Ishii, et al, Opt. Lett., **30**, 567 (2005)
- [5] A.Baltuska, et al., Nature, **421**, 611 (2003)
- [6] G. Sansone, et al., Science, **314**, 443 (2006)
- [7] M. F. Kling, et al., Science, **312**, 246 (2006)

- [8] H. Niikura, et al., Phys. Rev. A, **73**, 021402 (2006)
- [9] R. Itakura, et al., J. Chem. Phys, **119**, 4179 (2003)
- [10] H. Yazawa, et al., J. Chem. Phys, **124**, 204314 (2006)
- [11] H. Yazawa, et al., J. Chem. Phys, **125**, 184311 (2006)
- [12] M. Yamashita et al., J. Opt. Soc. Am. B, **21**,458(2004)