

低エネルギーパルスによる

2 光子誘起屈折率回折格子の書き込み

西岡研究室 早坂 圭介 (0112102)

1. 序論

当研究室では2光子ゲート法を用いたパルス波形の記録と再生を行っている(図1)。光強度の2乗に比例して起きる2光子吸収によって屈折率が変化する材料を用いて、パルスの周波数情報を格子間隔として記録する。記録した回折格子を用いるとパルスの時間反転再生を行うことができる。書き込み材料として色ガラスを用いた研究は既に成功しているが、書き込みに必要なパルスエネルギーが数mJで増幅システムを用いる必要があり、装置の小型化・低エネルギー化の障害になっている。そこで、この研究では発振器単独で2光子吸収により屈折率変化がおきる材料を開発することを目的とし、mJからnJへの6桁の低エネルギー化を目指した。

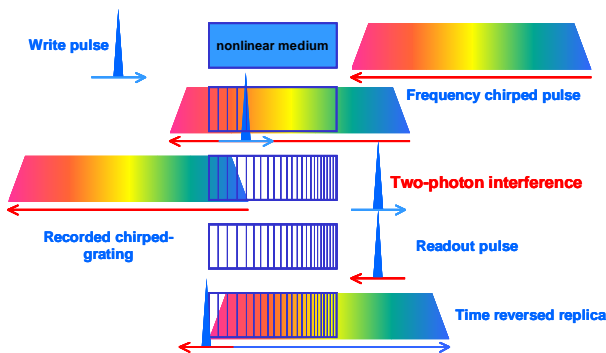


図1 2光子ゲート法を用いたパルス波形の記録と時間反転再生の様子。

2. 超短パルス・微小領域書き込み光学系

この研究では高い光強度と時間分解能を得るためにサブ10 fsのモード同期レーザーを用いた。図2がそのパルス幅とスペクトルである。

10 fsのパルスの空間的な長さはわずか3 μmでその中にレーザーの中心波長である800 nmの光はわずか4サイクルしか存在できない。そのため、このパルスの干渉により屈折率回折格子を書き込んだ場合、書き込まれる回折格子の周期数もまたわずか4本である。

また、このような超短パルス光を発生させるには半値全幅にして146 nmに及ぶ広帯域なスペクトルの光が必要になる。そのため、10 fsのパルスの記録と再生を行う際にはこの点に注意する必要がある。

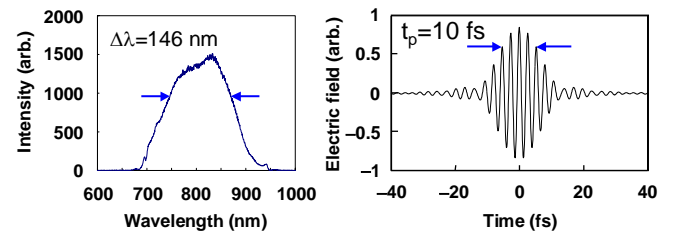


図2 モード同期レーザーのスペクトル(左)とモード同期レーザーのパルス幅(右)。

図3が書き込みに用いた装置図である。

この実験では光源から試料まで4 mあるので、ビームが持つ初期の広がり角が無視できない。そこでコリメーションミラーを用いてビームの広がり角を軽減している。

サブμmオーダーの高安定な干渉計を組み、2つのパルスの時間合わせを行い、ビームスプリッター上にできる干渉縞を2つのレンズを用いて試料中に縮小投影する。また、この2つのレンズの群遅延分散を補償するためにチャープ鏡対を使用した。

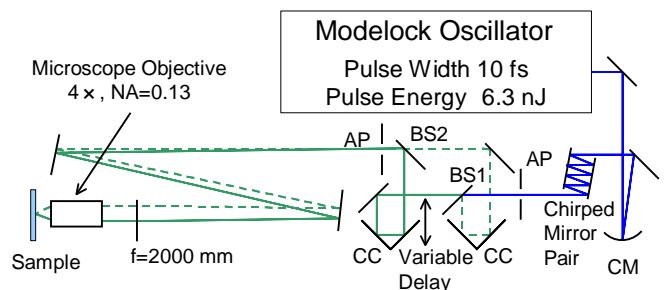


図3 書き込み装置図(CM:Collimation Mirror, AP:Aperture, BS:Beam Splitter, CC:Corner Cube)。

この実験では書き込み時の光強度を上げるために、図4のような縮小投影を行った。縮小倍率は2つのレンズの焦点距離で決まる。干渉像を1/44倍にして縮小投影することにより、書き込み時の光強度をビームスプリッター上の光強度の2000倍にしている。

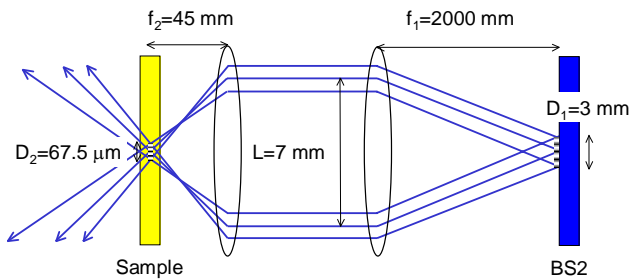


図4 干渉像の1/44倍縮小投影

このような高倍率な縮小投影を行うと0次光の集光位置と干渉縞ができる位置が接近すると考えられる。

屈折率変化は光強度の2乗に比例して起きる。干渉縞の明の部分より0次光の集光位置の光強度の方が高いので、離れていないと試料中には干渉縞がなく2つのスポットが書き込まれることになる。

そこでこの位置関係を計算したのが図5である。0次光の集光位置と干渉縞ができる位置は1015 μm離れていて、Confocal長は1128 μmであることから、この実験では十分離れているといえる。

この縮小投影を用いると、試料中に図5のような干渉縞ができる。試料中にできる干渉縞は幅13 μm、厚さ207 μm、格子間隔3.363 μm、F値は6.4である。また、書き込み時の光強度は3.73 GW/cm²である。

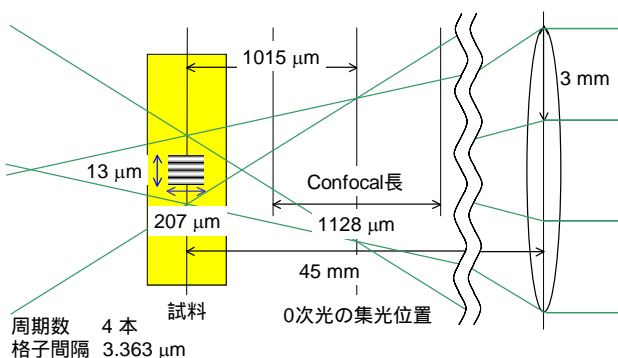


図5 試料中にできる干渉縞の様子。

縮小投影に用いる2つのレンズは図6のような群遅延分散を持っていて、800 nmにおいては合計1261 fs²である。これにより10 fsのパルスは130 fsにまで広がってしまう。

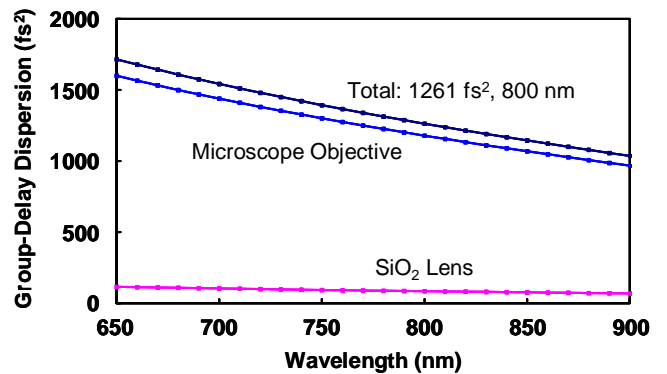


図6 2つのレンズの群遅延分散

そこで図7のような負分散を持つチャープ鏡上で22回反射させ合計で-1320 fs²の分散を与えて、2つのレンズの群遅延分散補償を行った。

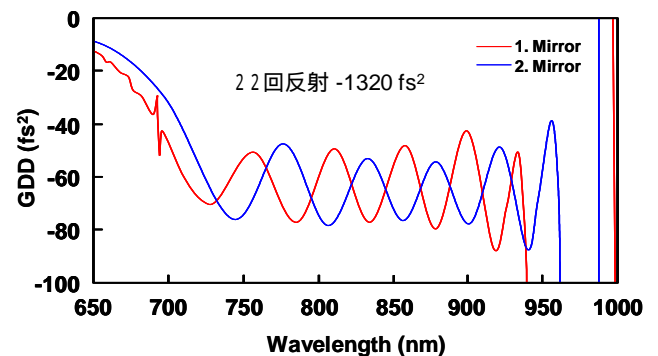


図7 チャープ鏡の群遅延分散

3. 2光子記録材料

低エネルギーパルスで屈折率変化が起きる材料として我々が注目した材料は吸収断面積が10⁻¹⁶ cm²オーダーの色素である。

2光子吸収波長の400 nmで大きな吸収を持ち、基本波の800 nmでまったく吸収のない色素を検索した。その結果、Coumarin102とCoumarin307が適合した。図8がその吸収スペクトルである。2光子吸収波長において大きな吸収を持つことが分かる。

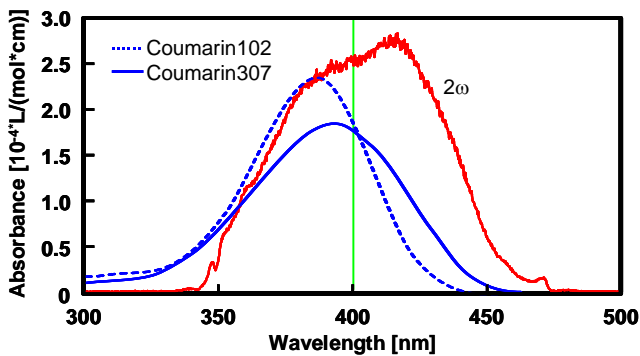


図8 色素の吸収スペクトル。

色素は酢酸ビニル樹脂に溶かし、石英板上で薄膜にして、書き込み材料として使用する。用いた色素と膜厚の異なる3つの試料を作成し(表1)実験を行った。

表1 作成した書き込み試料

使用した有機色素	色素膜の厚さ (nm)	光学密度 (400 nm)
Coumarin307	26	4
Coumarin102	30	5
Coumarin307	72	11

3. 広帯域な回折

図9の装置を用いて回折波のスペクトルと書き込み光のスペクトル(Reference)を測定した。測定に当たっては書き込み光の1つをシャッターで遮り、再生された回折波をNDフィルターとディフューザーを用いて減衰し、分光器に取り込む。図9の波線部分には図3の光源・干渉計・チャープ鏡対が省略されている。

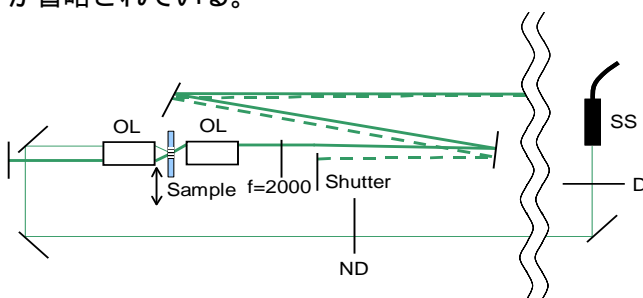


図9 回折波のスペクトル測定装置(S:Shutter, D:Diffuser,OL:Objective Lens, SS:Spectro Scope, ND:ND filter)。

この装置を用いて測定した結果が図10である。書き込み時間を変えて測定を行っている。ただし、Referenceは波形比較のため測定値の1/200にしている。図10より書き込み時間とともに回折波の長

波長側のスペクトル帯域が広がっていくことが分かる。これは、色素の長波長側の吸収が小さいため、観測可能な光強度の回折波が起きるだけの屈折率変化を得るのに時間がかかるためであると考えられる。また、書き込まれた回折格子から広帯域な回折が起きていることが分かる。

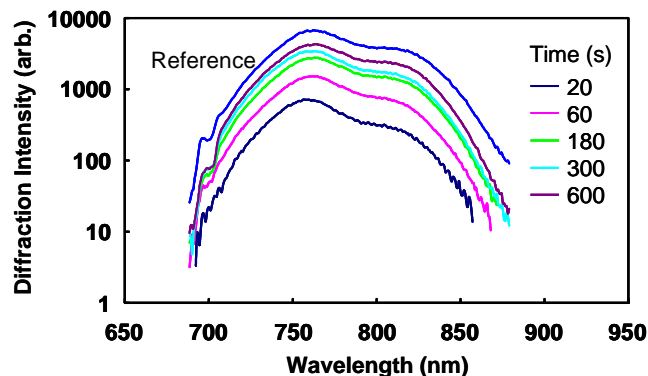


図10 測定した回折波のスペクトル (Coumarin307,72 μm)。

4. 残留1光子吸収がないことの確認

この研究は2光子吸収による屈折率回折格子の書き込みが目的なので1光子吸収が起きてはいけない。1光子吸収はCW光の光強度でも起きるので、試料に基本波の吸収があれば屈折率回折格子が書かれると予想できる。そこでまず残留1光子吸収がないことを確認するためにモードロックを落とし、CW光で回折格子の書き込みを行った。その結果、回折効率が0なので、残留1光子吸収がないことを確認できた。

次に、モードロックをかけてパルスにした状態で回折格子の書き込みを行った。その結果、回折効率が書き込み時間とともに上昇したので、2光子吸収による書き込みが行えたことが分かる。

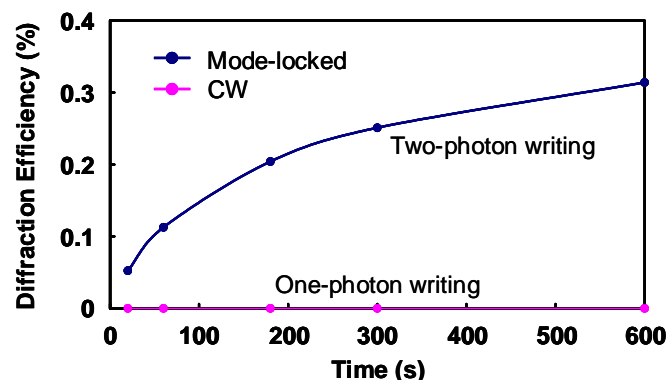


図11 残留1光子吸収がないことの確認。

5. 回折効率の時間変化

書き込み時間を変えて回折効率を測定したのが図12である。回折効率は書き込み時間が10分に達するまでは時間とともに上昇し、それ以降減少することが分かった。ピーク時の回折効率は0.31%である。

この回折効率の減少の原因は2つ考えられる。1つは機械振動や空気の擾乱によるビームの集光位置のずれや入射角の変化により、試料中にできる干渉縞の位置や格子間隔が変わってしまうことである。もう1つは熱拡散により、干渉縞の暗の部分の屈折率も変わってしまうことである。

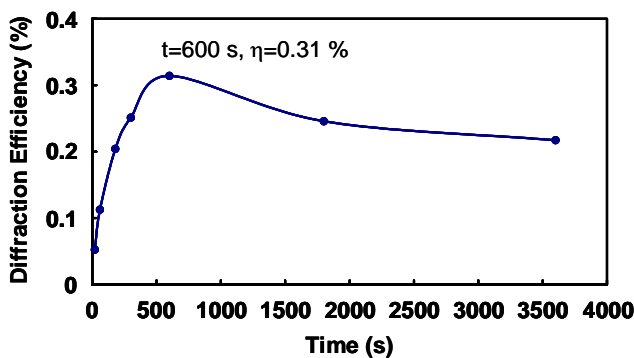


図12 回折効率の書き込み時間に対する変化 (Coumarin307, 72 μm)

6. 回折効率と屈折率変化

測定した回折効率より屈折率変化を求める。そのために書き込まれた回折格子を光学長λ/4で屈折率の高い層と低い層が交互に積層された多層膜であるとして、その反射率を求めることにより屈折率変化を求めた。

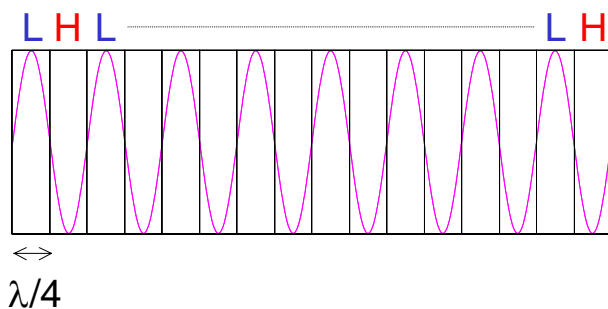


図13 多層膜モデル。

まず、屈折率の異なる境界面での光電界の反射係数Γは式1で表せる。

$$\Gamma = \frac{\frac{n_1}{n_2} - 1}{1 + \frac{n_1}{n_2}} = \frac{\frac{n_0}{n_0 - \Delta n} - 1}{1 + \frac{n_0}{n_0 - \Delta n}} = \frac{\Delta n}{2n_0 - \Delta n} \quad \text{式1}$$

ただし、 n_0 は試料の線形屈折率、 Δn は2光子吸収によって誘起される屈折率変化である。

4サイクルの光が干渉すると、光強度は8サイクルになる。屈折率回折格子は光強度で書き込まれるので境界面は16枚できる。さらに反射係数Γは十分小さいので、多層膜の光強度の反射率Rは式2で表せる。

$$R = (16\Gamma)^2 = \eta \quad \text{式2}$$

ただし、 η は測定した回折効率である。

この式に $\eta=0.31\%$ 、 $n_0=1.5$ を代入すると、 $\Delta n=0.01$ である。

7. まとめ

6.3 nJのパルスで2光子吸収による屈折率回折格子の書き込みができ、4周期で0.31%の回折効率が得られた。屈折率変化にして $\Delta n=0.01$ に相当する。

参考文献

- [1] M. C. Nielsen, X. Shi and B. Lawrence, Proc. of. Leos, WEE2(2004).
- [2] H. Nishioka and K. Ueda. "Femtosecond pulse encoding and self phase-reconstruction by Time-Ordered Recording/Readout in Periodic Diffractive Optics (TORPEDO)", (2004).
- [3] 顕微鏡ユニットガイド 装置組み込みに最適なUIS光学系顕微鏡ユニット (OLYMPUS 2003).
- [4] U. Brachmann, Lambdachrome Laser Dyes 3rd Edition, LAMBDA PHYSIK (2000).
- [5] Pochi Yeh, Introduction to Photorefractive nonlinear Optics (John Wiley & Sons, Inc., 1993).
- [6] Sigman, Lasers (University Science Books, 1981).
- [7] L. Hesselink, S. S. Orlov and M. C. Bashaw, Proc. Of. IEEE. **92**, 1231(2004).
- [8] A. Stingl, M. Lenzner, Ch. Spielmann, F. Krausz and R. Szipocs, Opt. Lett. **20**, 602(1995).
- [9] A. Stingl, Ch. Spielmann, F. Krausz and R. Szipocs, Opt. Lett. **19**, 204(1994).