

10 fs 超短パルスレーザーポンプ・プローブ計測システム を用いた固体-プラズマ遷移の研究

電子工学専攻 米田研究室 内藤 兼行

1 はじめに

fs領域の超短パルスでTWからPWのエネルギーを有するレーザーを用い、固体をその流体力学的な膨張を無視する時間内で加熱できれば、固体物理学が対象とするエネルギー密度数よりも10桁程度高い高エネルギー密度状態を作ることができる。高エネルギー密度状態とは、従来の固体物理、材料化学、流体力学などにおいて取り扱う状態よりも非常に高いエネルギー密度の状態である。

高エネルギー密度状態として、固体物理学的なパラメータ領域と理想プラズマ物理学が網羅する領域の中間に位置するWarm Dense Matter (WDM) と呼ばれる領域が注目されている。WDM領域は、温度が0.1 eVから10.0 eV程度で、原子密度が固体密度と同じか100分の1程度までの領域を示す。また、WDM領域では、高エネルギー密度状態でプラズマのようにイオン化、電子励起状態でありながら、一方で固体結晶のような秩序性、化学結合力も存在している状態となっている。

これまでに数多くの研究がなされ、固体表面は照射により200から300 fsオーダーで熱膨張することがわかってきた^[1]。しかし近年、WDM状態において熱の変化に伴う大きな導電率の変化が存在することが確認され、この測定が急務となっている。だが、現在WDM状態の測定に用いられている100 fsオーダーの超短パルスレーザーでは、前述の熱膨張により密度が低下してしまうため、一定の高密度で温度が変化という状態変化を観測することは難しい。そのため、この密度変化よりも1桁小さいパルス幅を持つ、sub-10から10 fsオーダーの超短パルスレーザーを用いた測定が必要である。また、膨張速度は時間の平方根に拠るため、10分の1のパルス幅をもつレーザーであれば、3倍の温度の測定も行える。

本研究では、サブ10 fsのパルス幅を持ち、固体と光の相互作用研究を行えるポンプ・プローブシステムを開発し、それを用いたポンプ・プローブ測定により、高密度状態でのWDM物性の測定を行うことを目的とする。100 fsオーダー以下での高時間分解能での正確な測定は世界でも未だ例がない。

金属を加熱し密度が低下すると、導電率が低下することがよく知られている。これは過熱による膨張、

すなわち原子間距離の広がりか試料中で不均一に起き、バンド構造が誘電体的に変化することに起因する。一方、超短パルスレーザーを用いることにより、試料を加熱しつつ原子間距離の広がりが数10分の1から2分の1程度という、従来は測定し得なかった高エネルギー密度状態における超高時間分解能測定が可能となる。測定ターゲットとしては、従来測定してきた金、水銀とともに原子番号が高い鉛を選択した。また、電磁波誘起透明化 (Electromagnetically induced transparency, EIT) という現象があるが^[2]、高密度鉛では実験例がなく、この測定という目的も持つ。

本研究では、まず実験システムの設計から始める。加熱の際、熱拡散の影響による物質の膨張が起こる前に、密度を一定に保ったまま温度を上昇させ固体からプラズマへと状態変移させる必要から、フェムト秒の超短パルスレーザーを用いなければならない。本研究では、発振器からのパルス幅20 fs、エネルギー4 nJの超短パルスをチャープパルス増幅を用いて1 mJまで増幅し、さらに自己位相変調を用いたスペクトル幅の拡張によりsub-10 fsのパルス幅の超短パルスレーザーを作製する。続いて、これを鉛試料へ集光し、ポンプ・プローブ測定を行う。作製した超短パルスレーザーの一部をフォトニック結晶ファイバを用いて白色光としてこれをプローブ光として用い、その残りの光をポンプ光としてポンプ・プローブ測定を行う。プローブ光の反射光のp偏光・s偏光の強度および位相情報を得ることで、光学屈折率を得ることができる。これにより、WDMの温度変化に伴う状態変化のデータを得ることができ、WDM領域のモデル化に大きく寄与できる。

2 実験システムの設計と作製

2.1 はじめに

本研究における実験ステージのセットアップをFig. 1に示す^[3]。本研究は、まずチャープパルス増幅ステージの作製から始めた。発振器から出力されたパルスは、パルス広げステージでポジティブチャープを与えられ、結晶表面のダメージおよび非線形光学効果を最小にするためにポジティブチャープにより広げられ、増幅段へと送られる。増幅段でTi:Sapphire結晶を6パス通り増幅されたパルスは、

パルススライサへと送られ、繰返し周波数を落とされる。その後、パルスは増幅段へ戻され、更に6パス通る。最初に6パスのマルチパス増幅が行われた後にパルススライサを行うことにより、12パス増幅後の高いコントラストを得ることができる。

増幅されたパルスはプリズムコンプレッサーにより圧縮された後、Ar ガスを充填したキャピラリーチューブによりバンド幅を広げられ、再圧縮される予定であるが、現時点では圧縮されたパルスはそのままチェンバへと送られ、測定を行っている。

測定部では、レーザーはチェンバ内に置かれた液体金属試料へと集光され、挿入光と反射光の強度を測定し、反射率比率の計測を行う。

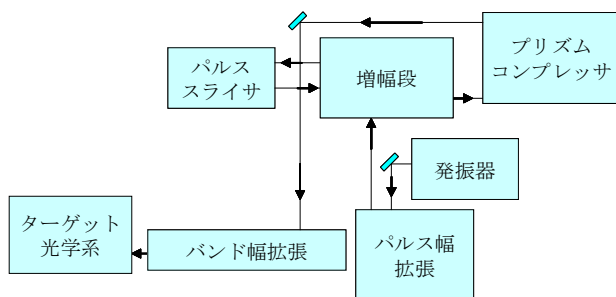


Fig. 1 実験セットアップ

2.2 発振器およびパルス幅拡張ステージ

発振器からの出力パルスは、安定のためにファラデーアイソレータを通過した後、このステージでポジティブチャープにより広げられる。チタンサファイア発振器(femtsource ; FEMTOLASERS Produktions GmbH, p 偏光, 繰返し周波数 75 MHz, 12 fs)からの出力をシード光とし、長さ 8.5 cm の SF57 高屈折率分散ガラスを2度通すことによってポジティブチャープを与え、パルス幅を広げる。シード光のバンド幅は FWHM で 103 nm である。オシレータ内部には、観察およびアライメントに用いるグレーティングを用いた分光器およびフォトディテクタを用いたタイミング回路を作製し、取り付けた。これにより、発振器のリアルタイム観測が可能となった。

シード光は、ファラデーアイソレータを通した後、SF57を通し、チャープミラー (LAYERTEC, HR(0°, 660-1100 nm)~99.9%, GVD(740-1010 nm)=-70±20 fs²) に16回反射させる。その後、ファラデーローテータにより回転された偏光を p 偏光に戻すために半波長板を通り、パルスは増幅段へ送られる。ここで p 偏光に戻す理由は、結晶をブリュースター角に合わせロス減らすためである。また、発振器から増幅段への像転送を行うために反射鏡に r = 1500 [mm] の Al 凹面鏡を一枚使用した。

サブ 10 fs システムのために、ミラー類はすべて分散保障された誘電体多層膜ミラー (LAYERTEC, HR(45°, 720-850 nm ±10 nm)>99.9%,

GVD($R_s \cdot R_p$)<20 fs²) を使い、角度が規定のもの以外の場合には、金ミラーを用いることにしている。これらは、すべて増幅後の圧縮に対し、高次の分散の補償のために行われている。ピーク波長 800 nm, バンド幅 100 nm において、SF57 で加えられる長波長側と短波長側の広がり は 4.1ps である。また、二次の分散は、SF57 において約 40000 fs² となる。これらの分散、またさらに高次の分散は、チャープミラーおよびプリズムコンプレッサーの調整によって補償される。

2.3 増幅段およびパルススライサ

ポンプ-プローブ測定において、ポンプ光にはこの USP レーザーを用いるが、WDM 領域まで温度を上げるためには 10¹⁴~10¹⁵ W/cm² が必要となる。仮に 10 μm まで集光すれば、10⁸~10⁹ W のピークパワーが必要となり、10 fs のパルスであれば 1~10 μJ のエネルギーが必要となる。また、この USP レーザーの一部を PCF 等により白色光とし、これをプローブとして用いることで、広帯域測定が可能となる。その他に重要なファクターとして、固体を照射するためにプレパルスクリーンであること、高いデータ精度を得るために高繰返し周波数、高安定性が挙げられる。

増幅段およびパルススライサのセットアップを Fig. 2 に示す。増幅段は、r = 500 mm の凹面鏡対、5 mm 長の Ti:Sapphire 結晶、レトロリフレクタから成るマルチパス光学系である。マルチパス光学系に挿入されたパルスは、凹面鏡によって集光され、Ti:Sapphire 結晶に挿入される。ここで増幅され、結晶を出たパルスはもう1枚の凹面鏡によりコリメーションされ、レトロリフレクタに反射される。反射されたパルスは凹面鏡に戻り、Ti:Sapphire 結晶に再度集光され、増幅される。これを繰返し、パルスは Ti:Sapphire 結晶を6パス通過し、増幅される。ここで重要なのは複数パスのパルスと励起光のオーバーラップである。

シード光は一旦マルチパス光学系を通った後、パルススライサによって繰返し周波数を落とされる。パルスのスライサは2個のポラライザ、半波長板、ポッケルスセル(Model 5046 ; Lasermetrics)によって行われる。ポッケルス前のポラライザによりパルスの偏光は p 偏光に揃えられ、ポッケルスセルを通過することでスライスされる。その後半波長板を通り、高さ方向をずらすことにより最初の6パスと空間的に分かれた状態で、再度マルチパス増幅系を通過する。即ち、パルスは合計12パスTi:Sapphire結晶を通過することになる。増幅結晶の励起はDiode-pumped Nd:YLF Laserの二倍波出力 (1.14 kHz, 8mJ, Evolution COHERENT)を用いており、その光を2分して結晶の双方向から励起している。この方法をとることにより、最初の6パスで大

きな利得を得ることができ、また次の6パスではサチレーションまで安定して増幅を行うことができる。

ポンプレーザーおよびポッケルスセルのトリガは、オシレータ内部に取り付けられたフォトディテクタからの75 MHzの信号を元として得る。この信号をD-フリップフロップを用いた16 bitカウンタによって1.14 kHzまで落とし、これをパルスジェネレータのトリガとして用い、適当なディレイを加えられ、上記ディレイを得る。

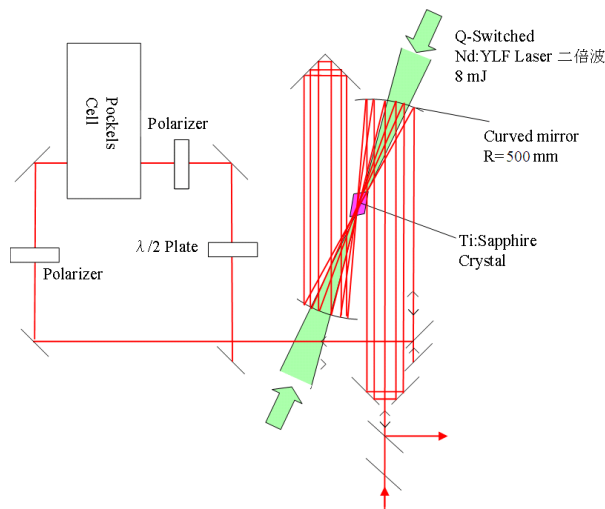


Fig. 2 増幅段およびパルススライサ

2.4 プリズムコンプレッサーおよび評価装置

増幅されたパルスは、合成石英を用いたダブルペアプリズムコンプレッサーを2パス通ることにより圧縮される。パルスの広いバンド幅により、SF57および合成石英プリズムのプリズムコンプレッサーを用いたパルス幅広げおよび圧縮を行うことができる。これはグレーティングを用いた方法と比較してロスが低く、また高次分散が少ないために綺麗に圧縮が行えるため、超短パルスレーザーにおいて有用である。ピーク波長 800 nm、バンド幅 100 nm として計算を行うと、システムの主要なコンポーネントによって加わる1次の分散量は 5.24 ps、2次の分散量は 60423.13 fs²となる。これらの補償のための最適なプリズム間距離を求めたところ、3.98 m となった。この距離において、1次の分散は 1 fs 以下となる。2次の分散量は約-10⁴ fs²となり、2次およびさらに高次の分散はチャープミラーによって行われる。この距離をとんだパルスのパターンは、周波数成分が分解され、空間的に横方向に 10 cm 程度広がったパルスとなる。このため、2 個目のプリズムペアに用いる合成石英プリズムは、一辺長が 15 cm の大きなもの

を使用した。

また、増幅後のパルスのパルス幅およびバンド幅のリアルタイム測定のための GRENOUILLE を設計し、作製した^[5-6]。Fig. 3 に設計された GRENOUILLE の各部パラメータを示す。なお、この図においては見易さを重視しており、図上でのスケールは必ずとも一致していない。示したセットアップにおいて、10.5~120 fs のパルス幅、30.4~201 nm のバンド幅の測定が可能となる。このように、このセットアップでは本研究の目標とする sub-10 fs のパルスには対応しておらず、この測定には、別の設計を行う必要がある。しかしながら、このセットアップにおいて、数 10 fs のパルス幅を持つ超短パルスレーザーの測定を行うことができる。

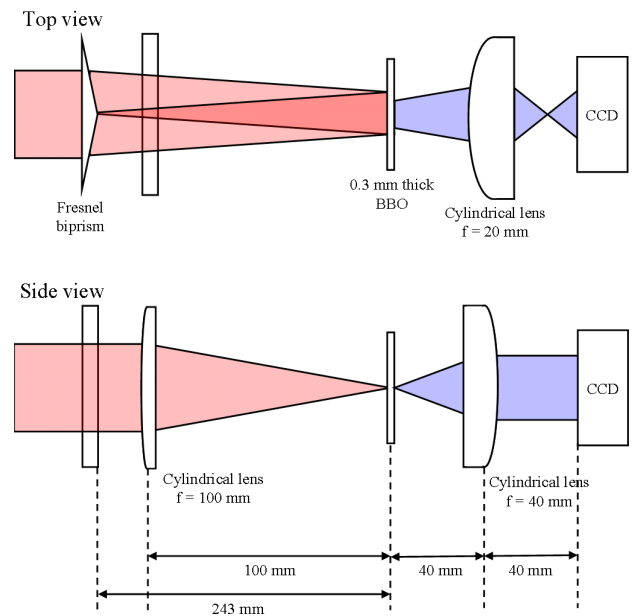


Fig. 3 GRENOUILLE セットアップ

2.5 ターゲット光学系

Fig. 4に、ターゲット光学系のセットアップを示す。この光学系はディレイは設置されておらず、試料表面への超短パルスレーザーの照射強度による反射率の変化を調べることが可能となる。プリズムコンプレッサによって圧縮されたパルスは縦置きブレッドボードに入る。超短パルスレーザーの分散補償のため、1枚目のミラーおよび1枚目のハーフミラーには分散補償された誘電体多層膜ミラーを用いた。また、後に述べる白色光による観測系の光量確保のため、2枚目のハーフミラーにも上記のものを用いた。1枚目のハーフミラーによって分けられた光のうち片方は入射光の強度の測定のためにフォトディテクター1に挿入され、もう片方は対物レンズを通してターゲットに集光される。透過型の対物レンズではレンズ内で分散が発生してしまうため、反射型の対物レンズを使用した。ターゲットから反射された光は、1枚目のハーフミラーを通り抜けた後、2枚目のハーフミラーによって更に分けられる。片方は反射光の強度の測定のためにフォトディテクター2に挿入され、もう片方はレンズを通してCCDカメラにターゲット表面の像を転送する。ターゲットとしては熱溶解した液体の金属を用いる。これにより、高繰り返し周波数においても常に表面をクリーンに保つことができる。ターゲットは酸化を防ぐために真空のチャンバーに入れられ、チャープを防ぐために反射型の対物レンズによって集光される。

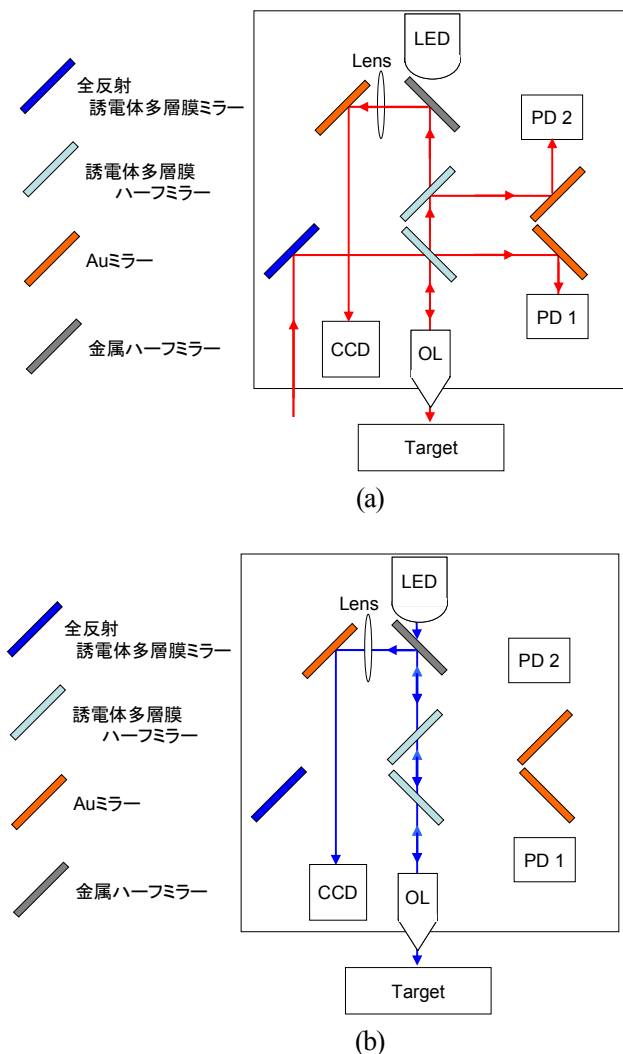


Fig.4 ターゲット光学系。

(a)超短パルスレーザー光学系(b)白色光観測系

3 測定結果

3.1 発信器およびパルス幅拡張ステージ

Fig. 5に、発信器からのシード光のスペクトルを示す。中心波長は800 nm、バンド幅はFWHMで103 nmとなった。また、1パルスエネルギーは、オシレータ直後では5.9 nJ、パルス幅拡張ステージ後では2.6 nJとなった。この減少はファラデーアイソレータおよびSF57の表面反射によるものであると考えた。なお、システム上チャープは補償されているためにパルス幅はある程度保たれていると仮定し、バンド幅の評価を中心に行った。

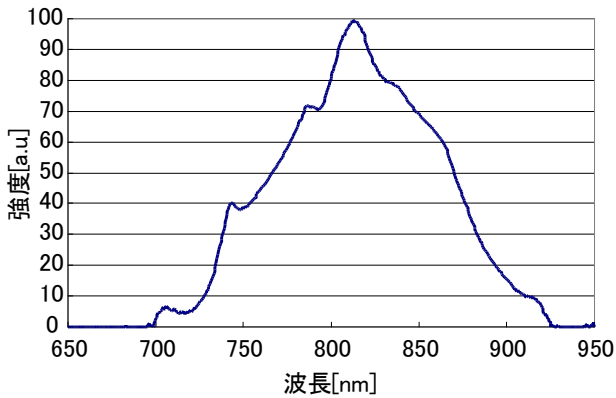


Fig. 5 オシレータスペクトル

3.2 増幅段およびパルススライサ

検証のため、ポンプ光を挿入しない状態での6パスマルチパス増幅ステージ通過後のパルスの評価を行った。この際のパルスのスペクトルをFig. 6に示す。長波長側において減少が起きているが、これはミラーの反射率に拠るものと考えた。ミラー1枚あたり、および増幅段通過までの反射回数である18枚の反射率を見ると、850 nm前後で反射率の低下がある。実際にはアライメントの反射角度ずれも含まれると予想されるため、このスペクトル減少を防ぐためにはアライメントの向上、または更にブロードバンドのミラーを用いる必要がある。また、増幅段通過後の1パルスエネルギーは1.7 nJ、ポッケルスセル通過後では1.4 nJであった。

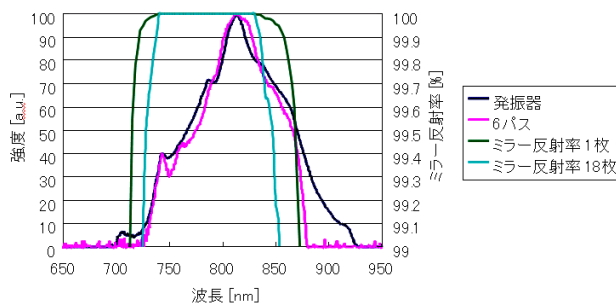


Fig. 6 増幅段通過後のスペクトル

続いて、ポンプ光を挿入した状態での評価を行った。増幅後のパルススペクトルをFig. 7に示す。6パス目および12パス目それぞれでバンド幅の減少がみられる。これはゲインナローイングによるものと考えられ、その場合適当なエタロン板などをキャビティ内に挿入することで改善される。

最初の6パスにおいて、ピークパワーは500倍まで増幅されており、仮に全てのパスで同じ利得を持つと仮定すれば、1パス当たりの利得は9.0 dBとなる。これ

により、0.7 μ Jのパルスエネルギーを得た。

増幅されたパルスはパルススライサステージに送られる。ここでの消光率は700:1となった。さらにこれを向上させるためには、直後もしくは12パス増幅後にもう1段のパルススライサステージを加える必要があるが、12パス増幅後では高エネルギーによる非線形の影響が懸念される。

次の6パスにおいては44倍の増幅が行われ、同様に利得の計算を行うと5.5 dBとなる。この減少はサチレーションによるものと考えた。また、この際の1パルスエネルギーは30 μ Jであり、目的とする1~10 μ Jを得ることができた。この際のバンド幅は58 nmであった。仮にこの際のフーリエ変換限界パルス幅を求めれば、36.7 fsとなる。

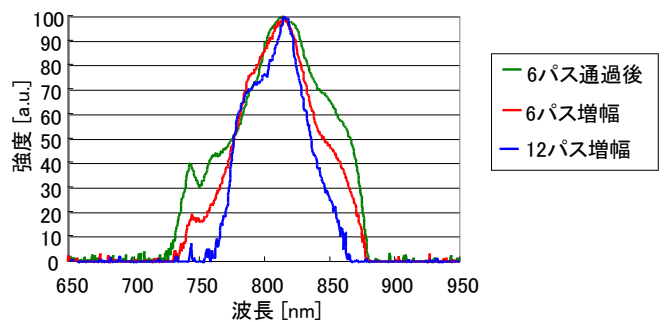


Fig. 7 増幅後のパルススペクトル

3.3 プリズムコンプレッサーおよび評価装置

増幅されたパルスを、作製されたプリズムコンプレッサーに1パス通過させた際、長波長側および短波長側において減少が見られ、バンド幅は41 nmとなった。これは2個目のプリズムペアにおいてプリズムに入りきらずに漏れてしまっている部分が発生しているものと思われる。2.4項で述べたにプリズムは十分に大きいものを用い、またアライメントの際にIRビューアを用いて漏れの発生しないように行ったにも関わらず、スペクトルを見ると減少が発生してしまっているため、この改善のためには更に大きなプリズムを使用する必要がある。

また、プリズムコンプレッサーを1パス通過後、挿入前には約3~4 mm程度であったビームパターンが1 cm程度まで広がってしまっており、現段階では2度目の挿入が行えていない。このため、縮小光学系などを用いて補正を行う必要がある。

3.4 増幅ステージのまとめ

システム各部での 1 パルスエネルギー、パルス幅、バンド幅の測定結果のまとめを Fig. 8 に示す。オシレータからの出力パルスは、ポジティブチャープステージの SF57、およびファラデーローターおよびその他の光学機器の分散によって約 5 ps まで広がる。1 パルスエネルギーは 5.9 nJ から 2.6 nJ まで低下し、その後増幅段に送られたパルスは、励起光を入れない状態では 1.7 nJ、パルススライサ通過後は、1.4 nJ となる。他方、励起光を入れて増幅段を通過したパルスは、1 パルスあたり 700 nJ まで増幅され、1 パスあたりの利得は 9.0 dB となった。バンド幅については 71 nm まで減少し、ゲインナローイングが原因と考えられるため、エタロンを増幅段のキャビティ内に入れることでこれを改善する。パルススライサを通過したパルスは再度増幅段にて増幅され、1 パルスエネルギーは 30 μ J となる。この際の 1 パスあたりの利得は 5.5 dB となった。バンド幅は 58 nm となった。プリズムコンプレッサーを通過したパルスのバンド幅は 41 nm となったが、これはプリズムコンプレッサーのアライメントにより改善されると思われる。

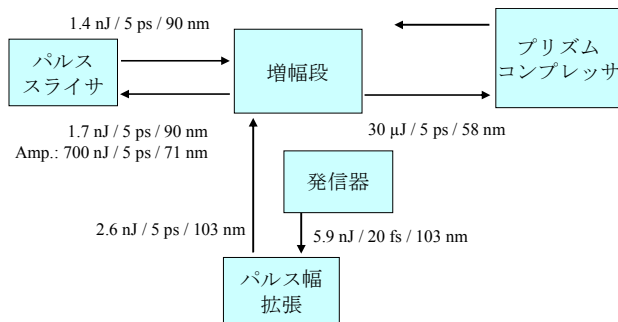


Fig. 8 システム各部のパルス評価まとめ

3.5 ターゲット光学系

液体鉛ターゲットに対し、増幅され未圧縮のパルスを挿入し、ポンプ光の強度を調整することで 1 パルスエネルギーを変化させ、反射率の測定を行った。その結果を Fig. 9 に示す。なお、計算上、スポットサイズを 100 μ m、パルス幅 5 ps を仮定した。また、集光には対物レンズではなく、アクロマートレンズを使用した。強度が上昇するにつれて反射率が低下していることがわかる。これは熱膨張により導電率が低下し、屈折率が変化することによるものであると思われる。

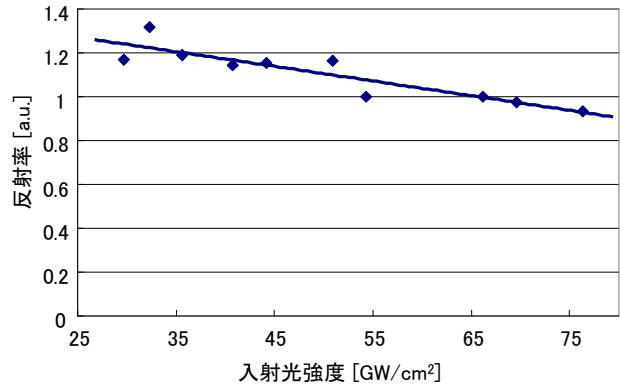


Fig. 9 ターゲットステージ反射率測定結果

4 おわりに

Sub-10 fs 超短パルスレーザーを用いたポンプ-プローブ測定のための、超短パルスレーザーのチャープパルス増幅システム的设计を行い、これを作製した。その結果、1 パルスエネルギー 30 μ J、バンド幅 58 nm、繰返し周波数 1.14 kHz の出力パルスを得た。この圧縮に最適なプリズムコンプレッサーを設計し作製した。

また、増幅されたパルスを真空中に置かれた液体鉛に集光し、反射率測定を行った結果、照射強度の増加による反射率の低下が確認された。

今後の予定として、本研究で作製され、圧縮されたパルスのバンド幅を自己位相変調により広げ、再圧縮を行うことで sub-10 fs 超短パルスレーザーを作製する。また、ターゲット光学系にディレイ系を付加することで、ポンプ-プローブ測定を行う。これにより、Warm Dense Matter 状態のモデル化に寄与することができる。

参考文献

- [1] 修士論文 守上英寿 米田仁紀研究室 電気通信大学 (2004).
- [2] K.-J. Boller, A. Imamolu, and S. E. Harris, Phys. Rev. Lett. 66, 2593 - 2596 (1991)
- [3] S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, Ch. Spielmann, and F. Krausz, Opt.Lett, 22, 1562 (1997).
- [4] Z.Cheng, F.Krausz, Ch.Spielmann, Optics Communications 201 (2002) 145-155
- [5] Rick Trebino, Kenneth W. DeLong, David N. Fittinghoff, John N. Sweetser, Marco A. Krumbu`gel, and Bruce A. Richman, Rev. Sci. Instrum. 68 (9), September 1997
- [6] Patrick O'Shea, Mark Kimmel, Xun Gu, and Rick Trebino, OPTICS LETTERS / Vol. 26, No. 12 / June 15, 2001

発表実績

- (1) 内藤兼行, Todor Petrov, Shikne Rakesh Dakroo, 米田仁紀 2009 年日本物理学会 春季大会 (予定)