

新しい超高速科学の研究を可能にする 最新の同期技術

イアン・リード、ケヴィン・オキーフ

ポンププローブ分光法の成功は超短パルス発振器システムの時間ジッタの最小化が鍵になる。最近、二つの独立した発振器間の同期が高エネルギー増幅システムに応用され、二つの増幅器間のサブ200fs同期が実現された。

時間分解分光法は世界中の科学者たちに使用され、サブナノ秒の時間スケールのプロセスが研究されている。過去20年間、この技術は大幅に進歩し、より高度な計測機器へのニーズが次々に発生している。これらの進歩は、まず理論的に明らかにされ、その後実験家たちが新分野の研究を可能にする計測機器の登場を待っている場合もある。このような事例の一つは超短パルスレーザー科学の分野だ。1950年にレーザーが出現して以来、科学者たちはレーザー光源、つまり、多数の波長、大きなエネルギー、短いパルスを発生するユニークな光源に対して大きな関心を示してきた。現在のレーザーはピコ秒(10^{-12})とフェムト秒(10^{-15})のパルスを容易に発生できる。超短パルスレーザーの科学技術は現代の化学、物理学、さらには生物学の顕著な進歩を可能にしてきた^{(1)~(3)}。

現代の時間分解分光法のなかでは、ポンププローブ分光法、つまり分子物性(例えば2D赤外[IR]ラマン)、半導体物理(例えばキャリア動力学)、材料科学などの過渡現象を測定できる分光技術が最も普及している⁽⁴⁾。この技術は空間と時間の状態が相互に整合された二つの光パルスを使用する。エネルギーの高い第1(励起)のパルスを用いて誘起された試料中の過渡現象は、第2(プローブ)のパルスを用いてサンプリングされる。この過渡現象の時間発展

は検出器に到着する励起パルスと探測用のプローブパルスの時間間隔を変える計測法を用いて測定される。時間分解能はプローブパルスの持続時間だけから決まる。最も簡単な構造の場合の励起パルスとプローブパルスは、同じビームを2分割したレーザーパルスを使用する。単一パルスを用いることで時間ジッタから生じる問題を回避できるため、この単色ビームによる配置はいくつかの利点をもつ。2台のレーザーが必要になる場合、例えば2色実験や単一レーザーからのパルスエネルギーが不十分な場合は、その2台のレーザーは、パルス間の時間ジッタを最小化して全体の測定精度を最適化するために、同期が必要になる。

超短パルス発振器システムの時間ジッタの最小化はいくつかの方法を用いて行われる。そこでは光発振器と参照発振器との間で電子的比較が行われることが多い。これらの発振器間のジッタの相違は、光発振器の共振器長を精密に調整し、その出力を参照発振器の特性に整合して最小化される。この方法では二つの独立した発振器間の時間ジッタを200fs以内に低減できる。この方式を用いてコヒーレント反ストークスラマン散乱(CARS)イメージングなどの技術が開発された。この技術は多数の研究所で採用され、自由電子レーザーとシンクロトロンを用いる実験の

パルス同期法として使用されている。このアプローチでは信頼性と再現性が確保でき、装置コストも妥当な範囲に収まるが、低エネルギーの発振器にしか適用できない。ごく最近、この同期法が拡張され、より高いエネルギーのレーザー増幅システムにも応用された。

超短パルス増幅器の同期

伝統的な高エネルギー超短パルスレーザーシステムの多くは、チャープパルス増幅(CPA)を使用して、超短パルス低エネルギー(nJ)発振器のパルスを高エネルギー(mJ)のパルスへ変換する。高エネルギーパルスからの光損傷は増幅前の発振器パルスを延伸して回避する。フェムト秒パルスの帯域幅は非常に大きい(約10~60nm)ため、このパルスは回折格子を用いて数百psのパルスへ延伸される。延伸されたパルスは再生増幅器を用いて増幅される。次に高エネルギーピコ秒パルス(数mJ)は圧縮されて当初のパルス幅に戻る。

このCPAプロセスは複数のレーザー光源、つまり超短パルスを発生するためのシードレーザー、増幅段にパワーを注入するための増幅励起レーザー、さらには増幅器などの同期した動作が必要になる。従来は増幅器スイッチ(ポッケルスセル)を制御するアナログ電子モジュールを使用して、これらの要素部品のタイミングが制御されてきた。こ

これらのスイッチと増幅レーザは同期されるが、シードレーザは「自励」モードで動作する。この方式による動作は多くの用途を満足させるものだが、高精度測定が必要な場合は一つの限界が生まれる。シードレーザと増幅レーザの繰返し周波数は整合しないため、この増幅器システムのタイミングは不整合の関数として変化する。80MHzで動作するシード発振器の場合、全体システムのタイミング不確か性は12.5nsが限界になる。この限界を克服するには増幅器システムの各部品を同期しなければならない。精密な同期を行うには、同期精度を改善して多重増幅器システムの同期を可能にしたスペクトラ・フィジックス (Spectra-Physics) のタイミング遅延発生器 (TDG) のようなデジタル方式の同期モジュールが必要になる。

デジタル同期

この数年間で、CPA レーザシステムの全体のタイミング機能を改善するためのデジタル機器が開発された。デジタル電子機器はシードレーザを使用することで、スイッチングエレクトロニクスを支配できる。シードレーザからの80MHz信号を約1kHzに分割すると、付加する増幅器システムは一つ以上のシードレーザに対して<200fsへの同期が可能になる(図1)。二つのシードレーザを使用すると、それぞれの増幅パルスの相対的な到着時間は $t=0$ から $t=t_{max}$ まで調整できる。ここで、 t_{max} はシードレーザのパルス間隔に等しい。この調整はシードレーザ到着時間の電子位相を調整することによって行われる。タイミングエレクトロニクス (TDG1とTDG2)は付加される増幅器の部品を制御する。実際に、この利点を生かしたいいくつかの方法が実験されている。よく知られた実験例は擬

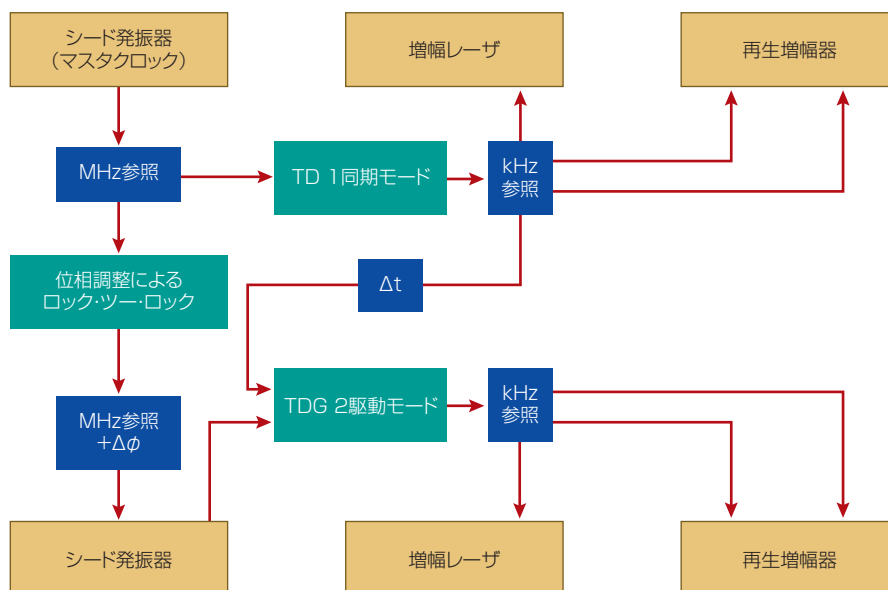


図1 スペクトラ・フィジックスの先進的タイミング装置の概念図を示している。二つの再生増幅器システムは200fs以内に同期される。シード発振器の位相を調整すると、0~12.5nsの遅延を光遅延線の使用なしに発生できる。

似位相整合 (QPM) を用いた高次高調波発生 (HHG) である。

高次高調波発生

フェムト秒レーザからのHHGは変換効率が非常に低い。標準的な変換効率は100eVの光子エネルギーの場合には 10^{-6} となり、1keV近傍の光子の場合には 10^{-15} という小さな値に減少する。このような低い変換効率になる理由の一つは、駆動レーザと高調波ビームの位相速度の相違にある。このことが原因になって、発生したそれぞれの高調波の強度は伝搬距離とともに振動し、振動周期は $2L_c$ になる。ここでコヒーレント長 L_c は $\pi/\Delta k$ に等しく、 Δk は波数ベクトルの不整合を示している。この問題を克服するには、高調波発生の位相整合を行い、 $\Delta k=0$ にしなければならない。ガス充填中空コア導波路中の異なる分散源を平衡状態にすると、このことは100eVまでの出力光子エネルギーに対して実現できる。しかし、ある値以上のイオン化レベルになると、

イオン化のときに生成されるプラズマから生じる負の分散の補償は不可能になり、位相整合には別の方法が必要になる。

QPMは高次高調波の発生効率の増強に適した代替法として利用できる。QPMの目的は高調波ビームの位相と一致しない領域のHHGを抑圧することにある。 N 本のHHGが抑圧されると、高調波ビームの全体強度は N^2 倍となり、この光源の効率が大幅に増加する。この増加はフェムト秒レーザの対向伝搬パルス列を用いることで実現できる。パルス列のQPMによる高調波発生は、駆動レーザパルスが対向伝搬パルスと重なる領域において抑圧される。この相互作用は光イオン化電子の軌道の修正をもたらす。今までのところ、この技術はわずか数個のパルスでできたパルス列を用いて実行されている。QPMの効率を増強するには、大量の高エネルギー対向伝搬パルスの発生が必要となり、それらの相対時間間隔の制御も必要になる。

最も簡単な構成では、単一の高エネルギー出力パルスを二つの成分に分離する単一増幅器光源を使用する。第1の成分は未処理のまま高調波の発生に利用され、一方で第2の成分は対向伝搬パルスを発生する。このパルス列は、まず、線形パルスをフェムト秒パルス上に導入して生成される。次に、チャープパルスが入射パルスの偏光に対して45°の相対角度で方位した複屈折板を通過する。さらに、直線偏光を入射パルスと平行の方向に配置する。波長板/偏光子の組合せは $\pi/2$ の奇数倍の遅延をもつすべての波長部品に減衰をもたらす。パルス列の各パルスは複屈折板の厚みに依存した一定の間隔になる。最近は以下に述べるように、この方法が拡張され、パルス列の各パルスの間隔をコンピュータで制御する方法も実証されている⁽⁵⁾。

高効率HHGのパルス列の最適化

可変パルス間隔をもつパルス列を発生させる方法は、導波路中の高調波のコヒーレンス長を最適な状態に操作できるため、QPMにとって非常に興味深い⁽⁶⁾。このコヒーレンス長は導波路中の局所条件に依存して変化する。多数のコヒーレントゾーンに対してQPMを行うには、十分なエネルギーをもつ多数のパルスが必要になるが、これらのパルスはパルス列の各パルスが高調波発生を抑圧可能にし、パルス間隔を制御して非線形のパルス間隔を生成しなければならない。これらのパルス列のプログラマブル制御は特定の高調波のQPMに適したパルス列を容易に合成できる大きな利点を持つ。

この制御レベルを実現するには、まず、駆動パルスと対向伝搬パルスを二つの異なる増幅器光源から取出し、これらの光源を完全に同期させる必要が

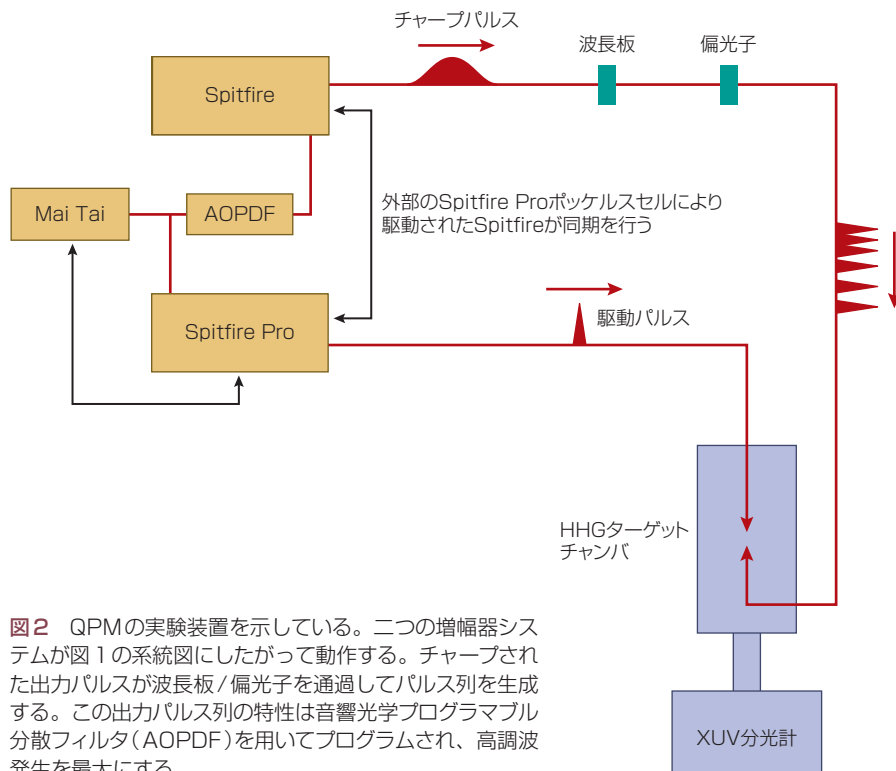


図2 QPMの実験装置を示している。二つの増幅器システムが図1の系統図にしたがって動作する。チャープされた出力パルスが波長板/偏光子を通過してパルス列を生成する。この出力パルス列の特性は音響光学プログラマブル分散フィルタ(AOPDF)を用いてプログラムされ、高調波発生を最大にする。

ある(図2)。この配置の場合、駆動パルスは第1の増幅器から処理なしで供給される。対向伝搬パルスは第2の増幅器から発生し、その特性はパルス整形器を用いて制御される。可変パルス間隔をもつパルス列が生成され、そのHHGはQPMによって最大になる。駆動パルスと対向伝搬パルスはレー

ザショットごとに導波路の同じ位置で衝突する必要があるため、この配置の増幅器パルスはQPMに対する同期が重要になる。スペクトラ・フィジックスのタイミング遅延発生器は、コストを追加することなく二つの増幅器間のサブ200fs同期を実現できる簡便性とロバスト性を備えている。

参考文献

- (1) A.H. Zewail, Femtochemistry: Ultrafast Dynamics of the Chemical Bond, World Scientific Series in 20th Century Chemistry, Vol. 3, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore (1994).
- (2) Y. Silberberg, "Ultrafast Physics: Quantum Control with a Twist," Nature, 430, 624-625(Aug. 5, 2004).
- (3) W.Denk, J.H. Strickler, W.W. Webb, "Two-photon laser scanning microscope," Science, 248,73-76(1990).
- (4) C. Weiman, T.W. Hänsch, Phys. Rev. Lett., 36, 1170(1976).
- (5) K. O'Keefe, T. Robinson, and S.M. Hooker, "Generation and control of chirped, ultrafast pulse trains," J.Opt., 12, 015201(2010).
- (6) T. Robinson, K. O'Keefe, S.M. Hooker, "Generation and control of ultrafast pulse trains for quasi-phase-matching high-harmonic generation," J. OSA B, 27,763-772(2010).

著者紹介

イアン・リード(Ian Read)は米ニューポート社(Newport)スペクトラ・フィジックス・レーザ事業部のプロダクトマネージャ(e-mail: ian.read@newport.com)、ケヴィン・オキーフ(Kevin O'Keefe)は英オックスフォード大学クラレンドン研究所物理学部の上級研究員。