

# 反射型エシェロンを用いた超短光パルスとフォノンポラリトンの

## シングルショット時間・周波数イメージング

堺原弘行<sup>A</sup>、片山郁文<sup>B</sup>、武田淳<sup>A</sup>

横浜国立大学大学院 工学府 物理情報工学専攻<sup>A</sup>

横浜国立大学 学際プロジェクト研究センター<sup>B</sup>

### Single-Shot Time-Frequency 2D Imaging for Ultrashort Laser Pulses and Phonon-Polariton Dispersion with an Echelon Mirror

H. Sakaibara<sup>A</sup>, I. Katayama<sup>B</sup>, J. Takeda<sup>A</sup>

*Graduate School of Engineering, Yokohama National University<sup>A</sup>*

*Interdisciplinary Research Center, Yokohama National University<sup>B</sup>*

We propose a new scheme for time-frequency two-dimensional (2D) ultrafast spectroscopy with an echelon mirror. Since the spatially-dependent temporal delay is provided to probe pulses using an echelon mirror, the time-frequency 2D images for ultrafast phenomena can be obtained on a single-shot basis. Using this technique, we have demonstrated the 2D images for ultrashort laser pulses and for the phonon-polaritons in ferroelectric LiNbO<sub>3</sub> by optical Kerr gate method. The chirp characteristic of the ultrashort laser pulses can be evaluated with the phase-retrieval procedure. The frequency-dependent oscillations for the E-mode phonon-polaritons have been observed in LiNbO<sub>3</sub>. These results show that this technique is a powerful tool to study various kinds of ultrafast optical responses.

#### 1. はじめに

不可逆な超高速光反応を測定するため、超短パルスレーザーを用いた様々な分光法が開発されてきた。特に測定すべきサンプルの量や大きさが十分にない場合は、光劣化や反応生成物の影響を避けて、シングルショット・ベースで時間応答を計測する必要がある。このため、時間情報を空間情報にエンコードして計測するいくつかの手法が考案されている[1,2]。しかしながら、例えば、二つの階段状プリズムを用いる方法では、透過するプローブパルスに空間的に異なったチャープが付与されるという問題がある[1]。一方、実時間イメージング分光法では、サンプルに対して線状に集光されるポンプパルスとプローブパルスとの角度を利用することで空間的に時間遅延を付与するため、十分な測定時間範囲や時間分

解能を確保するにはある程度のサンプルの大きさが必要になる[2]。

そこで、現在我々は階段状のミラー（**反射型エシェロン**）を利用した新しいイメージング分光技術の開発に取り組んでいる[3,4]。反射型エシェロンにより回折したプローブパルスは、階段の高さを反映した空間的時間遅延を持った段数分のパルスに分割される。空間的に時間遅延の付いたプローブパルスをサンプルに集光することができるので、小さなサンプルに対してチャープを抑えたシングルショット測定が可能だと期待される。本手法の最初のデモンストレーションとして、光 Kerr 効果による超短光パルスの時間・周波数 2 次元イメージング計測（FROG 計測：frequency-resolved optical gating）を行った。光パルスのチャープ量は再生増幅レーザーの内蔵コンプレッサー

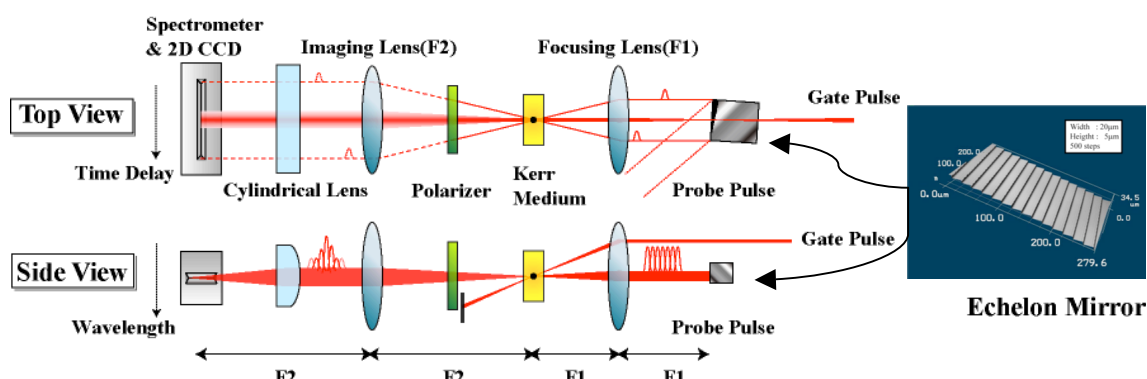


図 1. 反射型エシェロンを用いた光 Kerr ゲート法による超短光パルス計測の概念図。偏光子はプローブパルスに対してクロス配置であり、ゲートパルスと入射タイミングの合うプローブパルスのみが 2 次元 CCD 付き分光器で検出される。フォノンポラリトンの計測は Kerr 媒質と LiNbO<sub>3</sub> 単結晶を単純に置き換えるだけで行うことができる。

を移動することで調整した。また、反射型エシェロンを用いた物性測定の例として、強誘電体 LiNbO<sub>3</sub> 単結晶の E モードフォノンポラリトンの 2 次元イメージング計測を行った[5-7]。

## 2. 実験方法

反射型エシェロンは Ni ブロック (10x10 x15mm<sup>3</sup>) を精密研磨することにより作製した。反射型エシェロンの全段差は 500 段であり、各段の高さは 5µm、幅は 20µm である。これは一段あたり約 34fs、全体として約 17ps の時間遅延に相当する。

反射型エシェロンを用いた超短光パルスのイメージング計測の概念図を図 1 に示す。再生増幅 Ti:sapphire レーザー (<150fs, 795nm, 1kHz) の基本波を二つに分け、一方をプローブパルス、他方をゲートパルスとした。ゲートパルスの偏光はプローブパルスに対して 45° の直線偏光である。反射型エシェロンにより空間的な時間遅延が付与されたプローブパルスは、ゲートパルスとともに Kerr 媒質 (石英) へと入射する。ゲートパルスとの時間差に応じて光 Kerr 効果により偏光回転したプローブパルスは偏光子を通過し、2 次元 CCD 検出器付き分光器 (1024x1024pixel) の入射スリット上に線状に集光される。時間遅延の情報は分光器のスリット方向に付与されるため、2 次元 CCD 検出器には超短光パルスの時間と周波数の特性が一度にマッピングされる。LiNbO<sub>3</sub> を計測する場合、Kerr 媒質を x-cut の LiNbO<sub>3</sub>

と置き換え、誘導ラマン過程により励起される E モードフォノンの時間・周波数特性を光ヘテロダイン検出した。

## 3. 結果と考察

図 2(a) に計測した超短光パルスの時間・周波数 2 次元イメージを示す。ここで、NC、TL、PC は、各々、負チャープパルス、フーリエ限界パルス、正チャープパルスを表す。チャープを調整することにより、それぞれの特徴を反映した 2 次元イメージが計測できている。2 次元イメージの計測時間はわずか 20ms (パルス 20 発分) であるため、コンプレッサーを操作しながらリアルタイムで超短光パルスの時間・周波数特性を観測できる。また、(b) に計算により再現した 2 次元イメージ (FROG ソフトウェア: Femtosoft FROG) を、(c) にそこから得られた光パルスの位相及びスペクトルを示す。FROG ソフトウェアで再現された 2 次元イメージは計測結果とよく一致しており、位相へのフィッティングから群遅延分散 (GDD) 及び 3 次の分散 (TOD) などを求めることができる。

次に、LiNbO<sub>3</sub> 単結晶のフォノンポラリトンのイメージング計測結果を図 3(a), (b) に示す。結晶の c 軸に対して 45° の直線偏光でポンパルスを入射させ、誘導ラマン過程によりフォノンポラリトンを励起し、c 軸に対して (a) 垂直 (常光線) と (b) 平行 (異常光線) の直線偏光のプローブパルスで検出した。いずれの場合も、時間原点付近の電子応答直後に明確な振動構

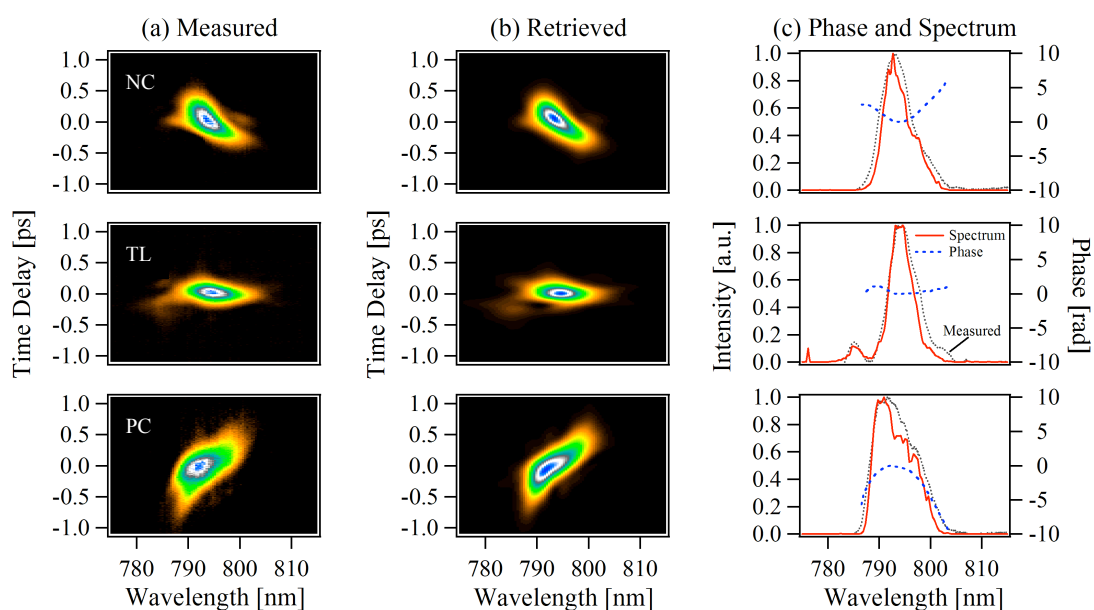


図 2. (a) 計測した負チャープパルス(NC)、フーリエ限界パルス(TL)、正チャープパルス(PC)の時間・周波数 2 次元イメージと(b) 計算により再現されたイメージ及び(c) そこから得られた位相とスペクトル。再現されたスペクトル(実線)は実測したスペクトル(破線)とよく一致する。

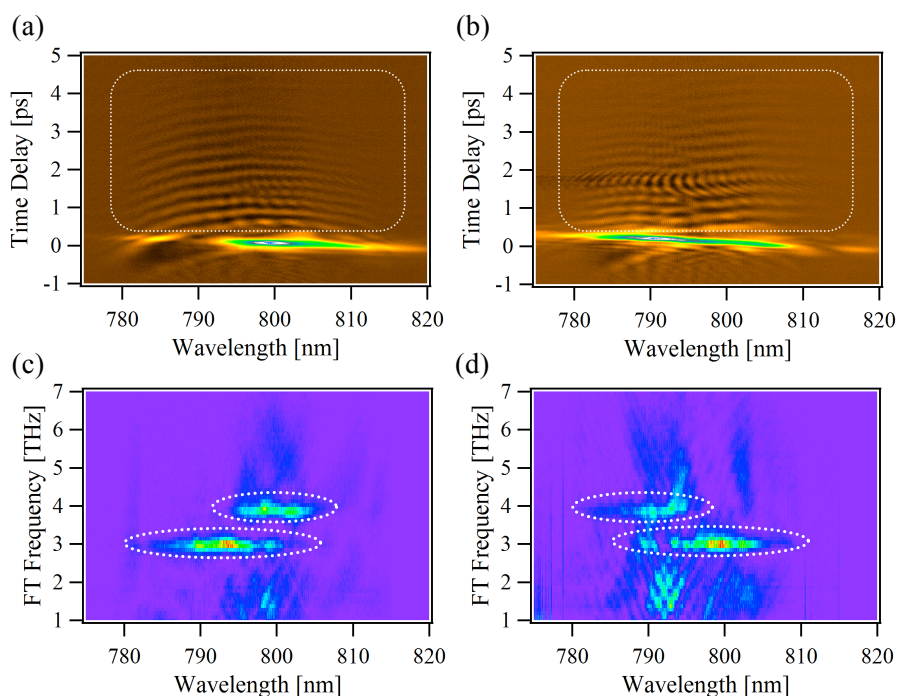


図 3. (a),(b) LiNbO<sub>3</sub> 単結晶のフォノンポラリトンの時間・周波数 2 次元イメージ及び(c),(d) そのフーリエ変換。(a), (c)はプローブパルスとして常光線を、(b), (d)では異常光線を用いた。

造がみられる。また、得られた 2 次元イメージから電子応答を差し引き、時間軸に対してフーリエ変換すると、3THz 付近と 4THz 付近に振動成分があることが分かった。また、それらが観測される波長域は、破線で示すように、中心波長 (~795nm) に対して反転している(図

3(c), (d))。一方で、ポンプパルスの偏光が  $c$  軸に対して垂直または平行である場合や  $z$ -cut の LiNbO<sub>3</sub> を用いた場合には、この様な振動構造は見られなかった。すなわち、計測された振動はポンプパルスの常光線(o)と異常光線(e)成分の両成分により励起された E

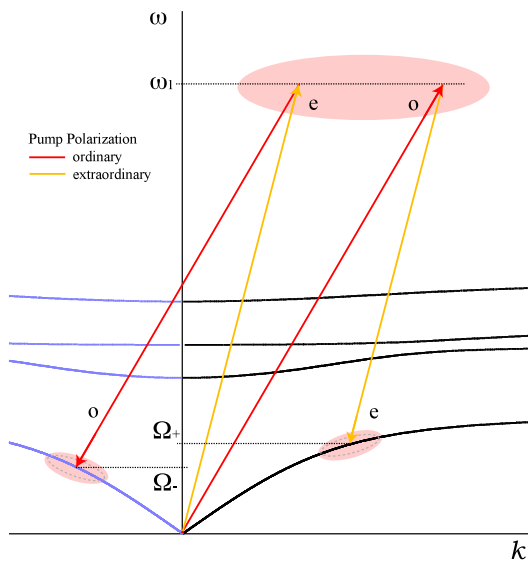


図 5. 常光線・異常光線を用いたフォノンポラリトンの励起過程。波数が負の領域については後進するフォノンポラリトンを表す。

モードフォノンポラリトンであると考えられる。図 5 に示すように、ポンプパルスの常光線成分と異常光線成分により、次の(1)、(2)式の位相整合条件を満たす $(k_+, \Omega_+)$ 、 $(k_-, \Omega_-)$ の E モードフォノンポラリトンが励起される。ここで、 $c$  は光速、 $n_{e,o}$  は屈折率、 $k_{\pm}$  は波数、 $\Omega_{\pm}$  は角振動数である。

$$k_+ = \frac{n_o}{c} \omega_1 - \frac{n_e}{c} (\omega_1 - \Omega_+) \quad (1),$$

$$k_- = \frac{n_e}{c} \omega_1 - \frac{n_o}{c} (\omega_1 - \Omega_-) \quad (2),$$

プローブパルスが常光線の場合、プローブパルスとフォノンポラリトンの差周波として長波長側に $\Omega_+$ 、和周波として短波長側に $\Omega_-$ のシグナルが検出されることになる。また、異常光線ではその逆となる。

以上の考察を基に実験で得られた 2 次元イメージの各波長から求めたフォノンポラリトンの振動数と(1)、(2)式から計算した波数を LiNbO<sub>3</sub> の分散曲線[6,7]と比較したところ、図 6 に示すように非常によく一致することがわかった。また、ここで強調したいのは、我々のイメージング分光法では時間と周波数の 2 次元情報が得られるため、図 6 の二つの挿入図に示

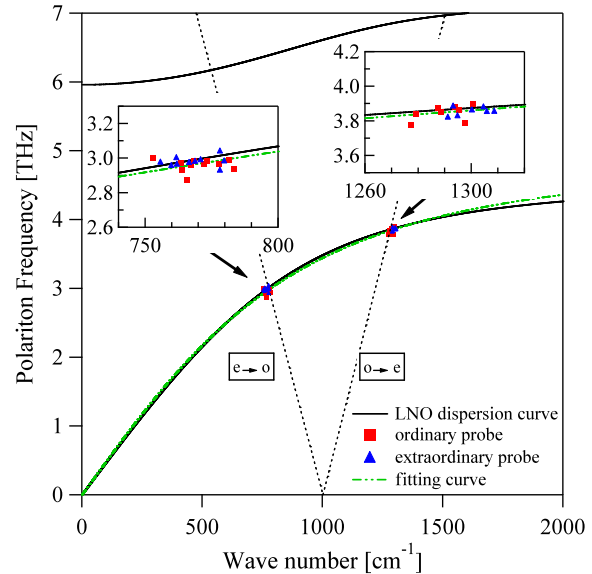


図 6. 計測した 2 次元イメージから得られた分散(破線)と文献から求めた LiNbO<sub>3</sub> の E モードフォノンポラリトン分散曲線(実線)[6,7]。

すように、ある波数範囲のフォノンポラリトンの分散を一度にマップすることができる点である。したがって、よりパルス幅の短いレーザーを用いて測定を行えば、さらに広い波数範囲や upper branch のフォノンポラリトンを一度に得ることができると考えられる。

#### 4. まとめ

反射型エシエロンを用いて、超短光パルス及び LiNbO<sub>3</sub> のフォノンポラリトンの時間・周波数イメージング計測に成功した。本手法はシングルショット計測も可能であったことから、超短光パルスモニターとしてだけでなく、不可逆な超高速光反応測定への応用も期待される。

#### 参考文献

- [1] G. P. Wakeham and K. A. Nelson, *Optics Lett.*, **25**, 505-507 (2000).
- [2] N. Furukawa, C. E. Mair, V. D. Kleiman, J. Takeda, *Appl. Phys. Lett.*, **85**, 4645-4647(2004).
- [3] H. Sakaibara, I. Katayama, J. Takeda, *CLEO/QELS 2010, JTh\_E83* (2010).
- [4] I. Katayama, H. Sakaibara, J. Takeda, *in preparation*.
- [5] T. F. Crimmins, N. S. Stoyanov, K. A. Nelson, *J. Chem. Phys.*, **117**, 2882-2896 (2002).
- [6] C. -C. Lee *et al.*, *JJAP*, **43**, 6829-6833 (2004).
- [7] A. S. Barker, Jr., and R. Loudon, *Phys. Rev.*, **158**, 433-445 (1967).