

伝播するフェムト秒光パルスの瞬間強度分布の 時間分解画像化計測

藤 本 正 俊

Time-Resolved Imaging of Instantaneous Intensity Distributions of Propagating Femtosecond Optical Pulses

Masatoshi FUJIMOTO

We have proposed and demonstrated an imaging technique to visualize instantaneous intensity distributions of intense femtosecond optical pulses propagating in various media. The method makes use of the optical Kerr effect in the media and is called femtosecond time-resolved optical polarigraphy (FTOP). In this paper, after the principle of FTOP is reviewed, it is shown that the instantaneous intensity distributions of propagating optical pulses can be derived from the FTOP images. The image illustrated here was obtained by the FTOP measurement of 95-fs pulses (800-nm, 13-mJ) being focused into helium gas by an $f=50$ mm lens. The image corresponding to the instantaneous intensity distribution in the middle of the propagation clearly shows a temporal-shape modulation shorter than the incident pulse width, which is considered to result from nonlinear interactions.

Key words: ultrafast measurement, polarization sensitive measurement, femtosecond optical pulse, optical Kerr effect, nonlinear pulse propagation

フェムト秒光パルスは、超高速の相互作用の解明に利用できるだけでなく、大強度化が比較的容易なため、基礎・応用の各方面で利用されている。ところで、フェムト秒光パルスということは、伝播方向の分布がマイクロメートル程度であることに対応する。よって伝播方向のサイズがビーム断面のそれを大きく超えることはない。また、高強度光の強度分布は、自己集束や自己位相変調等の効果により線形光学の予測から著しくはずれ、伝播とともに大きな変化を示す。これらのことから、高強度フェムト秒光パルスの伝播を議論するときは、ある面を通過する光の断面強度分布が時間とともにどのように変化するかという描像よりも、むしろ、三次元強度分布が時間とともに変化しているという描像のほうが、より現実に即しているといえよう。

伝播途中での断面形状やパルス幅の計測は重要である。例えば、レーザー光を集光して物質の改変を行う場合、集

光スポット径を非侵襲計測できれば有用である。一方、パルス幅に関しては、入射光に対する計測しか一般にはなされていないが、物質に作用する点においても入射光と同じなのか定かでない。特に光強度の大きいときや、集光点に至るまでに非線形効果等の著しい媒質を通過するときは、入射光の特性から大きく変化していることが予想される。このように、光パルスが伝播する途中の各時点でどのような特性をもっているかを計測することは、高強度フェムト秒光パルスの産業応用にとっても重要であるといえる。

上記に鑑み、高強度フェムト秒光パルスの瞬間形状を非侵襲で計測可能なフェムト秒時間分解偏光画像化計測法 (femtosecond time-resolved optical polarigraphy: FTOP) が提案・実証された¹⁻⁶⁾。本稿では FTOP の原理および FTOP による高強度フェムト秒光パルス伝播の計測例とその解析についての解説を行う。

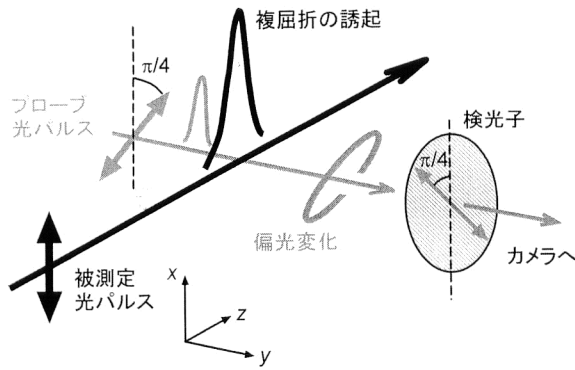


図1 FTOPの配置. 片矢印は光パルス伝播の向きを表す. 各パルスは直線偏光であり, 電場の振動方向を両矢印にて示す. 被測定光の瞬間強度分布に応じて誘起される実効的な複屈折により, プローブ光の偏光が変化する. 偏光の変化分は検光子によって抽出される.

1. FTOPの原理と条件

FTOPは, 被測定光の引き起こす光カー効果を利用して, 被測定光の瞬間の形状を画像化計測することを, 基本原理としている. 図1の光学配置に従って説明する. 計測対象であるところの被測定光は直線偏光の光パルスとし, その伝播の向きに z 軸を, 電場の振動方向に x 軸を, それぞれ設定する. プローブ光は y 軸に沿って伝播している直線偏光の光パルスで, その電場の振動方向が xz 面内で x 軸と $\pi/4$ の角度をなしている. ここで, 被測定光の強度が十分大きいとき, 光カー効果により媒質中に x 方向と yz 面内とで異なる大きさの実効的な屈折率変化がもたらされる⁷⁾. そのため, 被測定光と交差するプローブ光電場の x 成分と z 成分の間に位相差が生じ, 結果としてプローブ光の偏光状態が変化する. 屈折率変化の分布と被測定光の強度分布とが比例関係にあるため, プローブ光の偏光変化成分を画像化することで, 被測定光の瞬間の強度分布を画像として観測することが可能となる. 以上がFTOPの計測原理についての簡単な説明である. もちろん, 光伝播媒質の光応答に要する有限な時間や高次の非線形性を無視した近似での議論であるが, とりあえず2章でとりあげる実験系では, 光伝播媒質がヘリウム気体であり, かつ光パルスの波長がヘリウム原子の吸収波長から大きく離れており, また光強度が高次の非線形性を顕著にするほどでないため, これらの仮定が十分満たされている. この近似の正当性に関しては文献5)に詳述している.

被測定光パルスとプローブ光パルスのタイミング(遅延時間) τ の各値において, xz 面内の二次元計測を行うことができるため, FTOP像は, 空間二次元, 時間一次元の情報を持ち, $W(x, z, \tau)$ と書ける. これは, 位置 (x, y, z) , 時刻 t における被測定光強度 $I(x, y, z, t)$ を用いて, 定係

数を除き,

$$W(x, z, \tau) = \int dt G(t) \left[\int dy I(x, y, z, t + \tau + y/v_g) \right]^2 \quad (1)$$

と表せる⁵⁾. ここで, $G(t)$, v_g はプローブ光の時間波形, 群速度をそれぞれ表している. 式(1)より, FTOP像にはプローブ光の時間波形が重畳されることがみとれることから, 計測結果の時間分解能が, プローブ光の時間幅によって制限されてしまうように思える. しかし, $G(t)$ を特定できる場合, 逆畳み込み法による変換で, FTOP像からプローブ波形の影響を除去することも可能である. ただし, 厳密にこの変換を行うには, 細かい遅延時間ごとのFTOP像が必要となる. これでは, 一度の変換に必要なデータ量が莫大なものとなるばかりか, 計測にも時間がかかりすぎてしまうことにもなり, 実用にそぐわない. この困難を回避するためには, 多少の近似を行ってでも, 1枚の測定画像から1枚の変換画像を得るようにしたほうがよい. そこで, 被測定光が z 方向にあまり形状を変えずに伝播しているという平行伝播の仮定をおき,

$$I(x, y, z, t) = \hat{I}(x, y, z - V_g t) \quad (2)$$

と近似する. ここで, V_g は被測定光の群速度を表す. 式(2)は, 集束しつつある光に対して成り立っていないが, 集束の中心軸付近においてプローブ光が交差する時間幅程度の間だけに限れば問題ないと考えられる.

プローブ波形の影響を除去すると, 媒質の光応答時間程度の時間分解能を有する画像を得ることができる. 特に, 電子の運動に起因する光カー効果の応答時間は数フェムト秒以下であることが知られており⁷⁾, ゆえに適切な媒質を用いることで, 数フェムト秒程度の時間分解能の画像化計測が達成できることになる. ただし, FTOPにより計測できる情報は, $\int dy I(x, y, z, \tau + y/v_g)$ (もしくは式(2)の近似のもとで $\int dy \hat{I}(x, y, z - V_g \tau - V_g y/v_g)$) に対応する量であることに注意すべきである. これは, 被測定光を観測する時刻が分布の y 座標によって異なっていることを表す. この効果は, 被写体の移動速度が大きいため起こり, 原理的に除去できない. 計測画像を吟味するときには, この点を考慮しなければならない.

2. 実験

FTOPを用いて行った実験は多岐にわたるが, ここでは文献5)の内容をもとにした一例を示す. 実際に行った実験系を上からみたものが図2である. チタンサファイアレーザー増幅装置は, 中心波長800nm, パルス半値全幅95fsの光パルスを繰り返し10Hzで出射する. 出射光は直線偏

光で、電場が誌面に平行方向に振動している。使用した光源系は、最大で 50 mJ 程度のパルスエネルギーを生成することができる。これは、ピークパワーで 0.5 TW 程度に相当する。ただし、以下に報告する実験ではエネルギーを抑えて使用した。

光源から出射した光パルスは、光分岐器により、一部がプローブ光パルスとして分離される。被測定光パルスは、可変光学遅延器を通過後、1/2 波長板で電場の振動方向を誌面に垂直方向に変換され、焦点距離 50 mm の平凸レンズによって集光される。レンズ入射直前での被測定光断面の $1/e$ 直径は 12.8 mm であった。高強度フェムト秒光パルスがヘリウム気体中を伝播していくときの様子を観測するときは、集光点近傍の観測領域に常温・常圧のヘリウム気体を封入した直方体の石英ガラスセルを置いた（その他の物質中の伝播を観測するときは、随時この位置に適当なサンプルを挿入する）。一方、プローブ光は、1/2 波長板を用いて電場の振動方向を $\pi/4$ だけ回転し、さらに、消光比を向上させるため、同方向に配向した偏光子を通過後、観測領域へと照射されている。観測領域通過後の偏光変化は、リレーレンズ系内の直交ニコル配向の検光子によって抽出される。リレーレンズ系は、観測領域を電荷結合素子 (charge-coupled device: CCD) 上へと結像させるためのもので、これによって画像化計測を実現している。ここで、今回の計測条件における取得画像と被写体との大きさの対応は $1.30 \mu\text{m}/\text{pixel}$ であった。用いた CCD の画素数が横 600 × 縦 480 pixel² なので、視野の大きさは横 780 × 縦 624 μm^2 である。また、このときの空間分解能は、開口数から $3.0 \mu\text{m}$ と見積もられる。

上記の配置のもと、被測定光が結像系の視野内にあるとき、プローブ光が被測定光と交差するなら、1 章の原理により、被測定光の瞬間強度分布が CCD 画像として取得できる。ただし、被測定光の強度が十分大きいときには、集光点付近で白色の発光を有するプラズマが生成されるが、計測画像においてこの発光が FTOP 像に重畳されるため、これを減じることも必要になる。そこで、リレーレンズ系内に 800 nm 透過の干渉フィルターも設置した。CCD 画像はコンピューターへと取り込み電子データとして処理されるので、各種演算が容易に実行できる。3 章で示す画像は、1 秒間（よって 10 ショット）の積算によって得られたものである。また、計測画像にはプローブの漏れ光やプラズマ発光が重畳されているため、これらを個別に計測後、画像データ上で減算して FTOP 計測画像とした。

被測定光パルスとプローブ光パルスの交差のタイミングは、被測定光路中の可変光学遅延器によって調節できる。

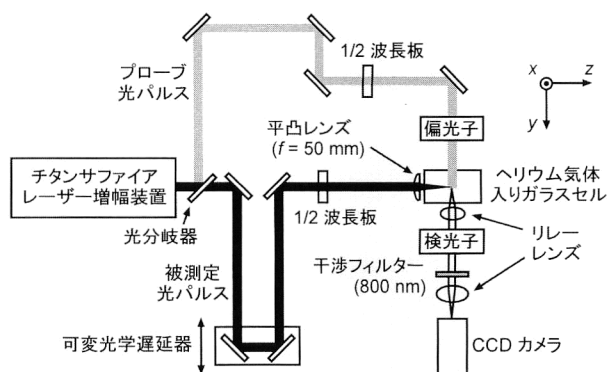


図2 FTOPの実験系。ヘリウム気体中のパルス伝播を計測したときの配置を表示した。座標軸は観測領域にて図1と同一になるよう設定している。

これにより、各遅延時間における被測定光の瞬間形状計測が可能となる。ただし、高拡大率での計測においては、遅延時間のわずかな変化でも被測定光が視野の外にはずれてしまうため、一連のデータを取得するのが困難となる。このときは、可変光学遅延器を動かす代わりに、被測定光集光レンズを被測定光の伝播軸に対して平行方向に移動させることによって、伝播全体の把握を行う。ただし、ガラスセル入射時のビーム径が変化するため、同一の伝播には対応しなくなる場合があるので、注意すべきである。

3. 実験結果と解析

図3は、エネルギー 13 mJ、パルス幅 95 fs の光パルス（ピークパワー 0.12 TW）が、ヘリウム気体中を焦点距離 50 mm の平凸レンズで集光されながら伝播していく過程の FTOP 計測結果の一例で、取得画像の一部の範囲（ $256 \times 256 \text{ pixel}^2$ の大きさ）を抽出して表示したものである。図で、被測定光は上から下へと伝播している。図3は、集光点到達より 3.50 ps だけ前の遅延時間における FTOP 像であり、真空中の集光点に対応する点を座標原点としている。図3より、入射光パルスは、集光点到達以前に多数のフィラメントに分離していることがわかる。この構造は、被測定光強度が不均一なため局所的な自己集束が起きた結果である、と解することができる。このように、FTOP を用いると、フェムト秒光パルスの複雑なフィラメント化の様子も直接的に、かつ非侵襲で計測できる。

図3の FTOP 像をもとに、1 章で述べた近似を用いて図3からプローブ波形の影響を除去し、画素ごとに平方根演算を行った結果を図4に示す。ここで、実験時に遅延時間をプローブ光のパルス幅程度前後させても FTOP 像の形状変化がほとんどなかったため、式(2)の適用は正当化されている。この変換において、光パルスの群速度 V_g , v_g

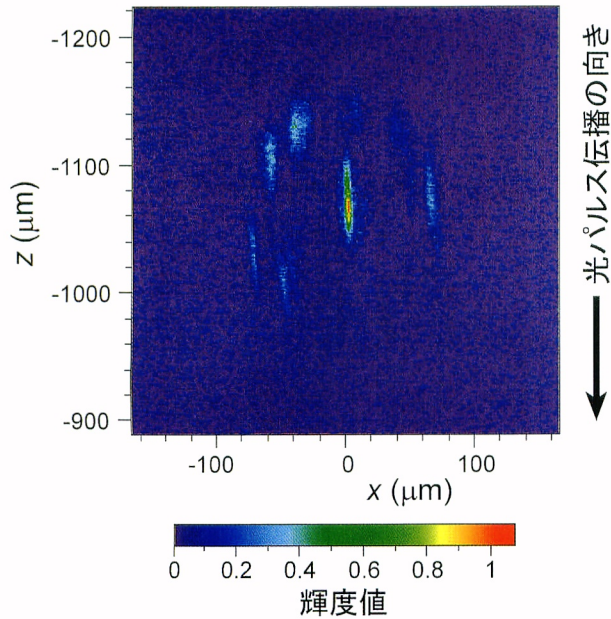


図3 13 mJ, 95 fsの光パルスがヘリウム気体中を焦点距離50 mmの平凸レンズで集光されながら伝播していくときのFTOP像の例。被測定光は上から下へと伝播している。集光点到達より3.50 psだけ前の遅延時間におけるFTOP計測結果であり、真空中の集光点に対応する点を座標原点としている。1画素あたりの被写体大きさは、 $1.30 \mu\text{m}/\text{pixel}$ であり、開口数から見積もられた空間分解能 $3.0 \mu\text{m}$ より細かい画像となっている。画像は相対的な輝度値で表示している。

は真空中の光速 c とし、 $G(t)$ は半値全幅 95 fs の sech^2 型とした。図4は $\int dy \hat{I}(x, y, z - c\tau - y)$ に対応し、図3と比べて瞬間強度分布の形状がよりはっきりとわかる。

瞬間強度分布を定量的に評価するには、適当な線分に沿って画像輝度をグラフにするとよい。ただし、今回は変換時に平行伝播の近似を使用しているため、ビーム断面の中心付近のみが信頼できる。そこで中心付近のフィラメントを1つ選び、その分布幅をみることにする。図4の画像内に示した座標軸に平行な点線 (a), (b) に沿って各画素の輝度値をプロットしたものを図5(a), (b) に黒丸でそれぞれ示す。これら黒丸を適当な関数でフィッティングすれば、 $\int dy \hat{I}(x, y, z - c\tau - y)$ の分布幅を見積もることができる。ただし、画像変換の過程で平方根演算を行ったため、そのままフィッティングすべきではなく、平方根をとる前の $[\int dy \hat{I}(x, y, z - c\tau - y)]^2$ に相当する分布に対して最小二乗法を行い、近似関数を求めるのがよい。非線形伝播途中の分布に厳密な関数形を設定することは困難なので、まず最も一般的なガウス型の分布を仮定することにした。この結果を図5の破線で示す。図5(a), (b) とともに、測定結果である黒丸からのずれが明らかに大きくなった。そこで、図5(a), (b) のグラフがともに2つのガウス関数の和の形状であると仮定して、再度近似関数を求めた。その結果を

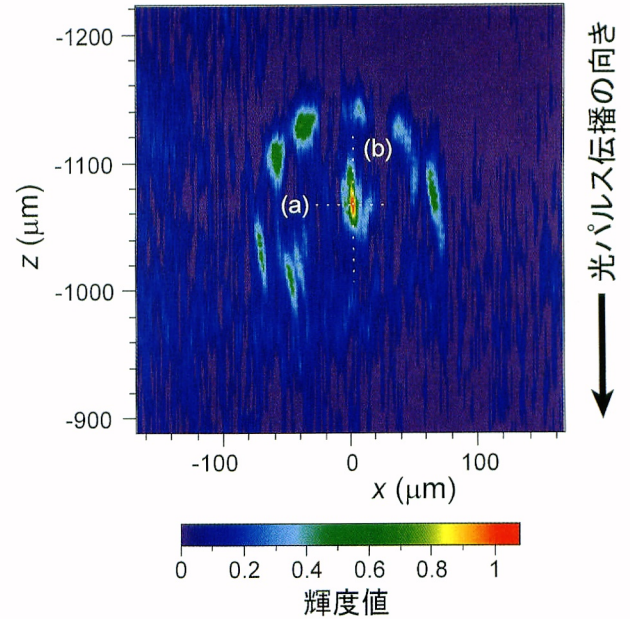


図4 図3をもとに導出した $\int dy \hat{I}(x, y, z - c\tau - y)$ に対応する画像。集光点到達時刻を基準とすると、 $\tau = -3.50 \text{ ps}$ である。画像は相対的な輝度値で表示している。座標軸に平行な点線 (a), (b) に沿って分布形状の解析を行う。

図5の実線で示す。今回はかなり良好に測定結果を再現している。よって、2つのガウス関数の和の形状の分布をしていると結論できる。それぞれのガウス関数に対して、半値全幅を求めると、

$$(a) : 4.6 \pm 1.2 \mu\text{m}, 27.7 \pm 3.9 \mu\text{m}$$

$$(b) : 21.7 \pm 1.1 \mu\text{m}, 46.9 \pm 1.3 \mu\text{m}$$

となる。ここで、誤差は、フィッティング誤差、結像時の回折の効果、画素の大きさ、から見積もっている。

$\int dy \hat{I}(x, y, z - c\tau - y)$ の分布幅を求めることができたが、より興味あるのは、被測定光強度 $\hat{I}(x, y, z)$ 自体の分布幅である。これを見積もる目的のため、 $\hat{I}(x, y, z)$ の分布は各座標軸に沿って独立で、さらに伝播軸に関して対称であるとする。この対称性の仮定は分布全体に対しては当然成り立っていないが、注目している1本のフィラメントに限れば、ほぼ成立すると考えてよいだろう。この仮定のもと、 $\hat{I}(x, y, z)$ の x, y 方向の分布は、ともに半値全幅が (a) で与えられる2つのガウス関数の和であると考えられる。また、 z 方向の分布に関しては、 $\int dy \hat{I}(x, y, z - c\tau - y)$ の z 方向の分布が、 $\hat{I}(x, y, z)$ の y 方向と z 方向の分布の畳み込みで与えられるという事実を考慮することで、求めることができる。通常、伝播軸方向の分布は時間幅として表されるので、ここでもその表記を用いる。以上より、注目しているフィラメントの伝播軸方向の分布は2つのガウス関数の和で近似でき、それぞれの半値全幅が

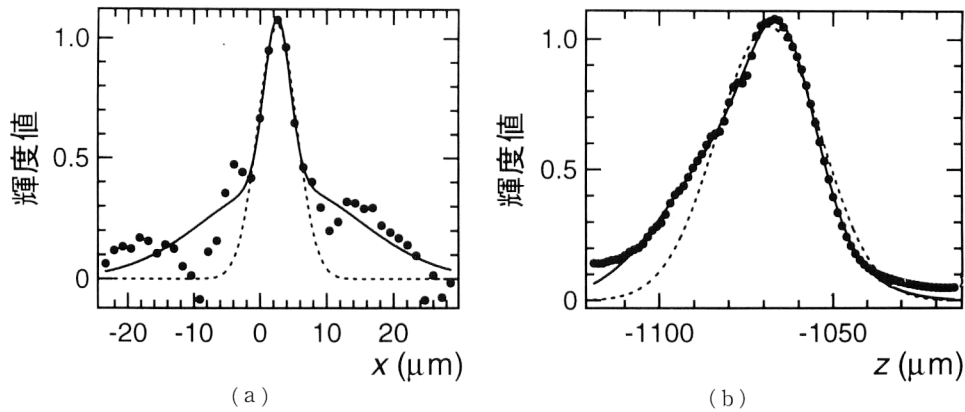


図5 図4の点線 (a), (b) それぞれに沿っての分布のグラフ. 横軸は点線に沿っての距離をそれぞれの座標値で表し, 縦軸は各画素における相対的な輝度値を表している. 実験結果を黒丸で, それらの近似関数を曲線で示す. ここで, 輝度値が負の値をもっている黒丸は, 測定時の雑音が原因で, 画像変換時の平方根演算 (絶対値の平方根をとった) の前に負の値をもっていたことを表している.

(c) : 70.9 ± 4.8 fs, 126.2 ± 16.6 fs

で与えられると結論できる. ただし, 誤差は, (a)(b) からのみ見積もっている. (c) から, 被測定光入射時のパルス幅 95 fs より短い構造も現れていることがわかる. 非線形伝播の結果, 出射光のパルス幅が短くなったりパルス波形に微細構造が現れたりする現象はすでに知られているが^{8,9)}, 本計測法を用いればその途中過程も観察できることが明らかとなった. ただ今回の系は, 画像化計測の空間分解能が $3.0 \mu\text{m}$ 程度なので, 幅が 10 fs 程度より長い構造に対してのみ有効であると考えられる. 10 fs 程度以下のさらに短い構造の計測を有効な精度で行うためには, 計測系の空間分解能を向上させなければならない.

以上, フェムト秒の時間分解能を有する FTOP にてフェムト秒光パルスの瞬間強度分布についての計測を行い, 得られた FTOP 像から画像処理によりプローブ光波形の影響を除去することで, $\int dy \hat{I}(x, y, z - ct - y)$ に対応する画像を生成することに成功した. これを用いて, 原理的な観測時刻のずれも考慮に入れて強度分布の解析を行うことで, 伝播の途中で入射パルス幅より短い構造が現れていることを確認した. 本稿では, 1 枚の FTOP 像をもとに解説を行ったが, 異なる遅延時間や異なる入射パルスエネルギーにおける計測も行っている. 文献 5) には, それらの結果から, プラズマ生成による光エネルギーの減少や, 非線形効果による集光点での分布幅の拡大についての議論もしている.

4. 最近の進展・今後の動向

ここまで, パルス伝播の計測例とその解析を通じて, 高強度フェムト秒光パルス応用時における FTOP の有効性について述べてきた. 最近, さらに発展した結果が得られ

ているので, それらについても紹介する.

まず, これまでに述べた方法では, 伝播の全体像を一度にみることができない. 時間分解能を損なうことなく伝播全体も観測するためには, いくつかのパルスからなるパルス列をプローブ光として利用すればよい. このとき, それぞれのパルスが遅延時間の異なる FTOP 像を形成するため, 被測定光の時刻の異なる瞬間強度分布を一度に計測することが可能となる. これに関して, 筆者らは, プローブ光を等時間間隔の 4 連パルス列とした実験を行い, 計測結果から, ショットごとの伝播ゆらぎを直接観測することに成功している¹⁰⁾. また, 適当な媒質中に誘起された光カー効果は, 回転ラマン効果の寄与により, エコーのような現象を生じる. この現象を利用して, プローブ光が交差するときより過去の時点における被測定光の瞬間形状を見積もる試みも行っている¹¹⁾.

また, すべての FTOP 像に対して画像変換を行うのは大変な作業であるため, もっと簡便な分布幅の見積もり方法があれば実用上役に立つ. そこで, FTOP 像から直接断面幅や時間幅を見積もる方法も開発した¹¹⁾. ただし, 本方法は被測定光の強度分布やプローブ光の波形が単純なガウス型の構造を有しているときのみ有効である.

今後はさらなる時間・空間分解能の向上が望まれる. 実験によって得られる, 被測定光強度分布についてのある種の投影的積分量から, 被測定光強度分布を求める方法も開発すべきであろう. また, 電磁場を生成消滅演算子で表現することにより本方法を量子論的に取り扱えば, 測定対象の光子数を変化させることなく光子数を測定することが可能であるという, 量子非破壊測定的側面も示せるだろうと期待している.

研究の機会を与えてくださった浜松ホトニクス株式会社代表取締役社長晝馬輝夫，中央研究所長鈴木義二博士の両氏に深く感謝いたします。また，同社における実験に際して，受賞論文の共著者でもある，土屋裕博士，青島紳一郎博士，細田誠博士（現大阪市立大学教授）の各氏にご協力いただきました。なお，本研究の一部は文部科学省科学技術振興調整費「高密度パルス光の発生と先端的物質制御に関する研究」の一環として行われました。

文 献

- 1) M. Fujimoto, S. Aoshima, M. Hosoda and Y. Tsuchiya: "Femtosecond time-resolved optical polarigraphy: Imaging of the propagation dynamics of intense light in a medium," *Opt. Lett.*, **24** (1999) 850-852.
- 2) S. Aoshima, M. Fujimoto, M. Hosoda and Y. Tsuchiya: "Visualization of ultrafast dynamics of laser pulse propagation in the atmosphere using a novel measurement method, FTOP (femtosecond time-resolved optical polarigraphy)," *Proc. SPIE*, **3885** (2000) 461-470.
- 3) M. Fujimoto, S. Aoshima, M. Hosoda and Y. Tsuchiya: "Femtosecond propagation dynamics of intense light pulse in air observed by FTOP," *Technical Digest on CLEO 2000* (San Francisco, May 2000) pp. 294-295.
- 4) 藤本正俊，青島紳一郎，細田 誠，土屋 裕：“高密度レーザー—誘起複屈折を利用したフェムト秒時間分解偏光画像化計測法”，*応用物理*，**70** (2001) 173-177.
- 5) M. Fujimoto, S. Aoshima, M. Hosoda and Y. Tsuchiya: "Analysis of instantaneous profiles of intense femtosecond optical pulses propagating in helium gas measured by using femtosecond time-resolved optical polarigraphy," *Phys. Rev. A*, **64** (2001) article no. 033813.
- 6) M. Hosoda, S. Aoshima, M. Fujimoto and Y. Tsuchiya: "Femtosecond snapshot imaging of propagating light itself," *Appl. Opt.*, **41** (2002) 2308-2317.
- 7) R. W. Boyd: *Nonlinear Optics* (Academic Press, San Diego, 1992).
- 8) J. K. Ranka, R. W. Schirmer and A. L. Gaeta: "Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media," *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1996) 3783-3786.
- 9) A. A. Zozulya, S. A. Diddams, A. G. Van Engen and T. S. Clement: "Propagation dynamics of intense femtosecond pulses: Multiple splittings, coalescence, and continuum generation," *Phys. Rev. Lett.*, **82** (1999) 1430-1433.
- 10) M. Fujimoto, S. Aoshima and Y. Tsuchiya: "Multiframe observation of an intense femtosecond optical pulse propagating in air," *Opt. Lett.*, **27** (2002) 309-311.
- 11) M. Fujimoto, S. Aoshima and Y. Tsuchiya: "Ultrafast imaging to measure instantaneous intensity distributions of femtosecond optical pulses propagating in a medium," *Meas. Sci. Technol.*, **13** (2002) (in press).

(2002年6月17日受理)