

平成22年6月1日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008～2009

課題番号：20750006

研究課題名（和文） 搬送波位相制御極短レーザーパルスを用いた多光子顕微鏡の開発

研究課題名（英文） Development of multi-photon microscope using carrier envelope phase stabilized ultrashort laser pulses

研究代表者

沖野 友哉（OKINO TOMOYA）

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：40431895

研究成果の概要（和文）：搬送波位相制御極短レーザーパルスを用いた多光子顕微鏡の開発のため、高繰り返し高強度フェムト秒レーザーの出力を差動排気型ネオン充填中空ファイバーパルス圧縮器に入射することによって、高強度搬送波位相制御極短レーザーパルス（2 mJ/pulse, 6 fs, 5 kHz, ~ 200 mrad）を発生することに成功した。また、多光子顕微鏡に用いる対物レンズ由来の正分散が、高屈折率プリズム対と高負分散ミラーを用いて補償できることを確認した。

研究成果の概要（英文）：Carrier envelope phase stabilized ultra-short laser pulse (2 mJ/pulse, 6 fs, 5 kHz, ~ 200 mrad) was generated from high repetition high power femtosecond laser system for developing the multi-photon microscope by using the differentially pumped neon filled hollow fiber pulse compressor. For compensating the positive dispersion using objective lens of the multi-photon microscope, nine high-dispersive negative chirped mirrors and high refractive index (SF57) prisms were used and it was confirmed that the pulse duration can be minimized at the sample of the multi-photon microscope.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：搬送波位相、多光子顕微鏡、極短パルス、白色光、三次元顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

極短レーザーパルスは、(1)パルス幅が数フェムト秒と短い、(2)スペクトル帯域が1オクターブにわたる白色光であるという特徴を

持つ。「レーザー電場の包絡線のピークに対する、搬送波のピークの相対的な位相」として定義される搬送波位相の値によってレーザー電場の値は大きく異なってくる。

したがって、搬送波位相制御極短レーザーパルスを用いることによって、多光子吸収がおこる時間を極めて短い時間に制限することが可能である。開口数が大きい集光光学系を用いることによって、空間的にも、焦点でのみ多光子吸収が起こる条件を実現することができる。このため、搬送波位相制御極短レーザーパルスを用いた多光子顕微鏡では高い空間分解能（XY 方向および深さ方向）が実現できる。

これまで、搬送波位相制御レーザーパルスを多光子顕微鏡に適用した例はない。これは、これまでの多光子顕微鏡で用いられてきた透過型の集光光学系をそのまま用いることができないことが大きな障害となっていた。また、フェムト秒の時間分解能でポンププローブ計測を行うためには、適切なビームスプリッターを用いて光の分割を行う必要があるが、超広帯域パルスである極短レーザーパルスを用いる場合には、透過光学素子を用いてポンプ光とプローブ光を生成することが難しいという問題があった。

2. 研究の目的

「搬送波位相制御極短レーザーパルス」と「空間分割型高精度干涉集光光学系」を組み合わせる方法によって、上記の問題を解決し、フェムト秒の時間分解能で試料の3次元顕微測定を行う。

具体的には、

- (1) 搬送波位相制御パルスを用いたレーザー電場の顕微サンプル上での時空間局在化
- (2) 多光子顕微鏡用極短パルス集光光学系の開発と性能評価
- (3) 数 μm の空間分解能と数 fs の時間分可能を有する多光子顕微鏡の開発を到達目標とする。

3. 研究の方法

- (1) 発振器の搬送波位相制御の高度化
- (2) 高繰り返し高出力レーザーパルスの搬送波位相制御
- (3) 高強度数サイクルパルスの発生とキャラクタリゼーション
- (4) 高強度数サイクルパルスの搬送波位相制御
- (5) 高強度数サイクルパルスの集光特性評価と分散制御

4. 研究成果

- (1) 発振器の搬送波位相制御の高度化
発振器の搬送波位相制御は、通常、AOMを用いてポンプ光の強度に変調を加えることによって、オフセット周波数を繰り返し周波数の1/4に合わせることによって実現する。しかし、AOMを用いた場合には、変調を加えることができる周波数が ± 5 MHz程度に

限られることから、温度・湿度の制御を行った実験室においても数時間程度しか搬送波位相を安定化することはできない。本研究では、発振器 (Rainbow, Femtolasers-CEP) の出力について、①レーザーキャビティー内のピエゾステージにマウントされたウェッジ板を動かし、キャビティー長を調整すること、および②レーザー結晶の冷却する冷却水の温度を制御する (0.1°C 刻みで $19 \pm 5^\circ\text{C}$ の間) ことを組み合わせることによって、100 mrad 以下の位相誤差で長時間 (30 時間以上) の搬送波位相制御を達成した。

(2) 高繰り返し高出力レーザーパルスの搬送波位相制御

発振器出力が 100 mW (パルスエネルギー: 1 nJ/pulse) と多光子吸収を誘起するには不十分であったことと、ビーム品質に問題があったことから、発振器のままでは、搬送波位相制御多光子顕微鏡を製作するのが難しいことが明らかとなった。そこで、再生増幅器およびマルチパス増幅器を用いて発振器出力を増幅後、増幅出力の搬送波位相を制御することとした。増幅器の振動および音響波を低減することによって、増幅器出力においても搬送波位相の制御が可能となった。

具体的には、①励起レーザーのレーザーヘッド冷却のための循環冷却システムへ防振ダンパーを設置することによる振動の光学ベンチへの伝達の低減、②エアフローの影響を最小限に抑えるためのシステムへのシールド機構の開発および設置、③防音・防振・制振材を用いることによる空調および計測機器からの振動伝搬の抑制を行った。その結果、最大出力 30 W (6 mJ/pulse)において、回折格子を用いたパルス伸長器およびパルス圧縮器でもあるにもかかわらず、数時間にわたる 200 mrad 以下の位相誤差で搬送波位相制御を達成した。なお、増幅出力の搬送波位相は、f-2f 干渉計で計測を行った。

図 1 に、前置増幅器出力 (3W) に関する搬送波位相制御結果、図 2 に、最終増幅器出力 (30W) に関する搬送波位相制御結果を示す。

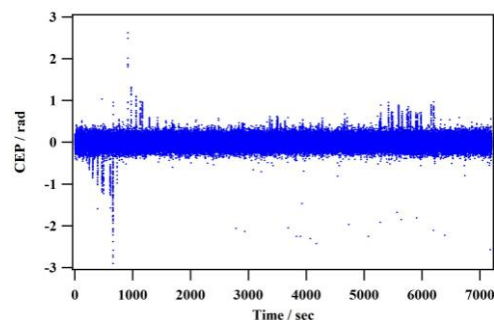


図 1: 前置増幅器出力 (3W) の搬送波位相制御 (145 mrad rms)

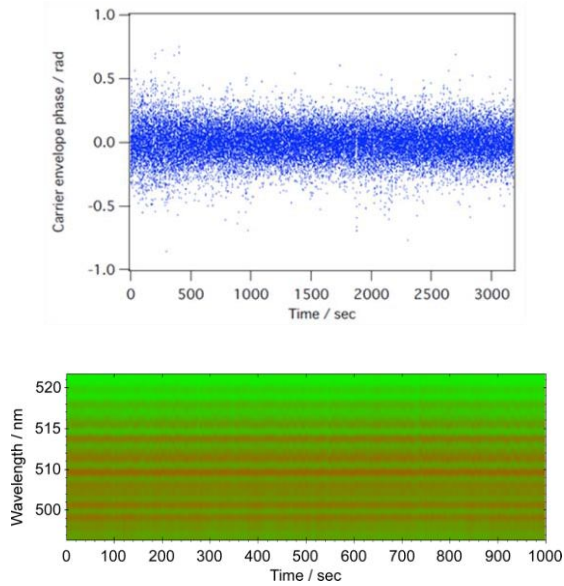


図 2 : 最終増幅器出力 (30 W) の搬送波位相制御 (165 mrad rms) (上) f-2f 干渉計の干渉スペクトルの時間変化 (下)

(3) 高強度数サイクルパルスの発生とキャラクタリゼーション

増幅器出力のパルス幅は、最短で 30 fs 程度であり、そのままでは搬送波位相の効果は観測できず、三次元多光子顕微鏡を作成するためには用いることができない。そこで、搬送波位相の効果が顕著に表れてくる 5 fs の極短パルスの発生を目的とし、差動排気型中空ファイバースパルス圧縮器 (長さ 1 m、外径 3 mm、内径 0.3 mm) の製作およびその性能評価を行った。

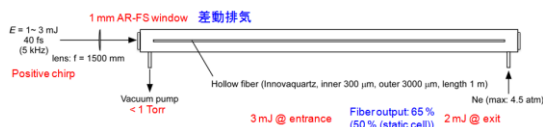


図 3 : 差動排気中空ファイバースパルス圧縮器入射側は、スクロールポンプを用いて、1 Torr 以下まで真空排気を行った。

その結果、中空ファイバースパルス圧縮器にネオンガスを 3 bar 充填した場合に、3 mJ (40 fs) の入力に対して、2 mJ の出力を確認した。パルス圧縮後のポインティング安定性および出力安定性が、差動排気中空ファイバースパルス圧縮器の採用によって大きく改善され、顕微鏡製作に十分であることが確認できた。出力安定性に関しては、差動排気を行わなかった場合には、10 %程度の単一ショット毎の強度変化および大きなスペクトル変化が観測され

たが、差動排気を行うことによって、2 %程度まで強度変動を低減することとスペクトル変化の低減に成功した。

差動排気を行わない場合には、入射エネルギーが高いため、ファイバースパルス圧縮器の入射端におけるイオン化によるプラズマ生成が起り、出力が低下し (40 %のスループット)、不安定になることと、ビーム品質が劣化することが確認された。一方、差動排気を行った場合には、ファイバースパルス圧縮器の入射端におけるイオン化が抑制され、スループットの向上 (最大 70 %) およびビーム品質の向上が見られた。

また、数サイクルパルスのパルス特性評価のため、フリンジ分解型自己相関計測装置の製作を行った。厚さ 10 μm の BBO 結晶を用いることによって、5 fs 以下のパルス幅計測を可能とした。また、パルス位相の評価のため、周波数分解光ゲート法 (SHG-FROG) に基づくパルス幅とパルス位相の評価装置の製作を行い、その性能評価を行った。

その結果、図 4 に示すように、6 fs 程度のパルスが得られていることが確認された。なお、中空ファイバースパルス圧縮器への入射エネルギーを 2 mJ 程度に抑えた場合には、1 mJ、5 fs の出力を得ることができ、高出力化には、中空ファイバースパルス圧縮器のコア径を大きくすることが不可欠であることが明らかとなった。

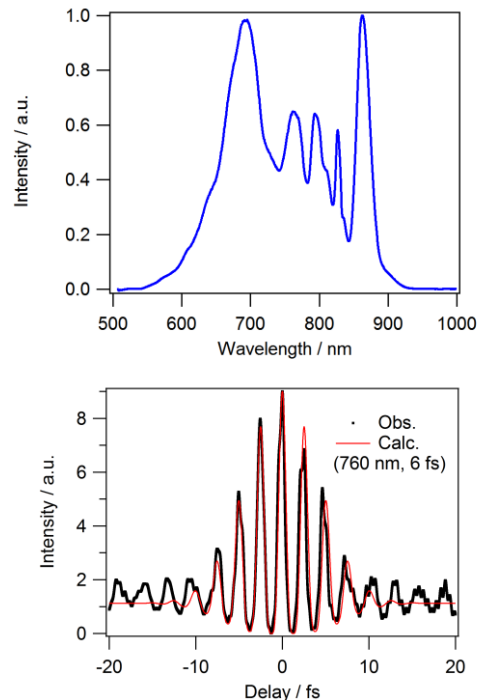


図 4 : 中空ファイバースパルス圧縮器の出力スペクトル (上) とフリンジ分解自己相関波形 (下) (赤線は、中心波長 760 nm、パルス幅 6 fs のガウシアン波形を過程した場合のシミュレーション結果を表している。)

(4) 高強度数サイクルパルスの搬送波位相制御

中空ファイバー出力の搬送波位相が中空ファイバー入射前同様に制御できているかどうかについては自明ではない。そこで、中空ファイバー出力の搬送波位相が制御できていることを確認するために、出力スペクトルが1オクターブにわたっていることを利用した(なお、図4では、分光器の帯域が狭いため1オクターブにわたるスペクトルは計測できていない。)、 $f2f$ 干渉計の設計および製作を行った(図5)。その結果、300 mradの位相誤差で搬送波位相が制御できていることを確認した。この計測には、中空ファイバーの出力の不安定性(エネルギー・ポインティング)による計測誤差が含まれており、中空ファイバーへの光入射位置を能動的にコントロールすることによって、中空ファイバー前の搬送波位相制御パルスと同様の搬送波位相制御性が保つことができるものと考えられる。

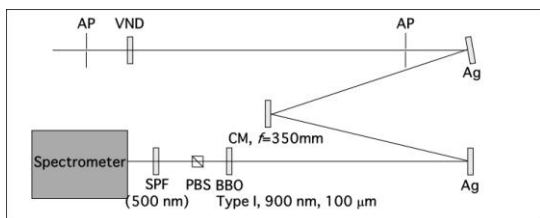


図5：中空ファイバー出力の搬送波位相計測装置 (AP: Aperture, VND: Variable neutral density filter, CM: Concave mirror, Ag: Ag mirror, PBS: polarization Beamsplitter cube, SPF: Shortpass filter)

(5) 高強度数サイクルパルスの集光特性評価と分散制御

① 集光特性評価

多光子顕微鏡の空間分解能を評価するためには、数サイクルパルスがどの程度の径まで集光できるかを評価する必要がある。焦点距離 50 mm の非軸放物面鏡を用いて、中空ファイバー出力の集光特性を評価した。その結果、直径 10 mm の入射ビーム径の場合に、10 μm 以下まで、集光が可能であることが確認された。

② 分散制御

多光子顕微鏡を製作するにあたっては、サンプル中において最短パルスを達成する必要がある。そのためには、あらかじめレーザー光がサンプルに到達するまでに加わる正分散を補償する必要がある。本研究では、屈折率の大きい材質が SF57 のプリズム対および、負分散量の大きいチャープミラー(合計 9 枚、一枚あたり -100 fs² の分散)を用いることによって、負分散量の高精度制御を可能

とした。プリズム対と異なり、負分散ミラーのほうは、ミラー1枚当たりの反射回数を制御する(1回~3回)ことによって、分散量の調整を可能とした。負分散ミラーとプリズム対で取り除くことのできない高次分散については、液晶空間光変調器を用いた波形整形器を用いた除去を検討した。その結果、液晶空間光変調器のダメージ閾値を超えないようにする必要があるため、入射パルス強度を反射型光学系で減衰させる必要があることが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計0件)

[学会発表] (計2件)

① 沖野友哉、山内 薫、高繰り返し高強度フェムト秒レーザーの搬送波位相制御：強光子場における水素マイグレーションの実時間観測へ向けて、日本化学会第90春季年会2010年3月26日、近畿大学

② T. Okino, Carrier envelope phase stabilization of high repetition high power laser system for investigating ultrafast hydrogen migration in intense laser fields, International Symposium on Generation and Application of Carrier Envelope Phase Locked Pulses and Attosecond Pulses, 2010年3月12日、東京大学

[その他]

ホームページ等

<http://www.yamanouchi-lab.org/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

沖野 友哉 (OKINO TOMOYA)

東京大学・大学院理学系研究科・助教

研究者番号：40431895