



## 解説

# 単一ショットバーストイメージング法 STAMP の原理と応用

## Principles and Applications of Single Shot Burst Imaging: Sequentially Timed All-optical Mapping Photography (STAMP)

神成文彦

KANNARI Fumihiko

慶應義塾大学理工学部電気情報工学科

(原稿受付：2020年6月8日)

瞬時周波数が時間と共に線形に変化した光パルスを用い瞬時周波数を時刻と対応させることで、高速現象を能動的に単一ショットで時間分解イメージ計測することが可能となる。ただしその実現には、異なる瞬時周波数のイメージを単一ショットで撮像できる分光イメージング法が不可欠である。この原理を、フェムト秒レーザーパルスを用いて実現したのが STAMP (Sequentially Timed All-optical Mapping Photography) である。サブピコ秒の時間分解能で20以上のバーストフレーム画像を単一ショットで取得できる STAMP の原理、時間分解能、計測時間窓などについて解説する。

### Keywords:

ultrafast burst imaging, femtosecond laser, chirped laser pulse, hyper spectral imaging

### 1. はじめに

レーザーの短パルス化とともに、再現性の高い現象であれば、時間遅延を走査したポンプ・プローブ法を用いた繰り返し計測により、レーザーパルス幅を時間分解能とした超高速光学計測が可能となり広く利用されてきた。短パルスレーザーを用いた類似法として、自己相関計測法[1, 2], 光Kerrゲート法[3, 4], 和周波発生ゲート法[5]などがあるが、再現性に乏しい現象に対しては、これらの繰り返し計測手法は適応できない。一方、光電子ストリーク管を用いたストリークカメラは、これまで唯一汎用的な単一現象計測手法であった。ストリークカメラで取得できるのは空間的一次元情報ではあるが、 $10^{12}$  fps の高速撮影が実現されている。近年、時間域圧縮センシング手法を用いた CMOS (Complementary Metal-Oxide-Semiconductor) カメラも研究されているがその撮像速度は  $10^8$  fps である[6]。通常のストリークカメラ撮影において、空間的に直交するもう一軸をエンコードして二次元イメージ取得する手法も考案され実用されてきた[7-9]。最近では、符号化多重でもう一軸をエンコードして記録し、像再構築を行うことで  $10^{11}$  fps の高速二次元イメージングを行う手法 CUP (Compressed Ultrafast Photography) が注目されている[10, 11]。ただし、CUP 等の圧縮センシング法は、計測時間窓を非常に広くできる利点の一方で、像再構築における両義性が高く空間分解能は犠牲となってしまう。

ポンプ・プローブ計測で高い時間分解能を実現する際には、パルス幅が最短となるフーリエ変換限界 (FTL: Fourier Transform Limited) パルスと呼ばれるパルスの周

波数モード間の相対位相が一定か周波数に対して1次関数のパルスを用いる。しかし、パルス内で瞬時周波数が時間に対して線形に変化するような光パルス (線形周波数チャープ光パルス) を用いると、瞬時周波数と時刻を1対1で対応させることができるので、フーリエ光学に基づいた周波数域での光操作により今までにはない超高速計測法が可能になる。もちろんレーザーパルスはFTLパルス幅よりも長くなるが、もはやそれらの方法においては時間分解能とパルス幅は対応しない。チャープパルスを用いた「時間-周波数」の対応関係を用いたシングルショットイメージングは断層計測[12]や一次元計測[13]に用いられた報告例は存在したが、二次元超高速イメージング法に応用する際の鍵となるのは、異なる周波数のイメージを同時に何枚も取得できる分光イメージング法にあった。

2014年、筆者等は単一のレーザーパルスをCCDカメラのフレーム上に時空間的に6分割するシステムを構築し、プローブ光である周波数チャープパルスの各周波数に時間を対応させることで単一ショットのフェムト秒バーストイメージ撮影法 STAMP (Sequentially Timed All-optical Mapping Photography) を開発した[14]。この手法で最大  $4.4 \times 10^{12}$  fps に相当する超高速連写撮影が実現された。

本解説では、周波数チャープについて説明し、時間域と空間域の双対性を概説した上で、STAMP の基本原理と性能を定義する要素を解説し、これまで STAMP で用いられている3種類の分光イメージング法とその計測例を紹介する。

## 2. 周波数チャープを利用した時間-周波数変換

### 2.1 周波数チャープ

自由空間を伝搬するレーザーパルスの光電界 $E(t)$ は、時間変化する振幅 $A(t)$ 、位相 $\theta(t)$ を用いて次のように表現できる。

$$E(t) = A(t)e^{j\theta(t)} \quad (2.1)$$

$|A(t)|^2$ は光強度の時間変化を表し、観測されるパルスの時間波形における包絡線に対応する。また位相 $\theta(t)$ は、中心角周波数 $\omega_0$ 、時間依存位相 $\varphi(t)$ 、絶対位相 $\theta_0$ を用いて

$$\theta(t) = \varphi(t) - \omega_0 t + \theta_0 \quad (2.2)$$

と表される。これらのパラメータを変化させることで、超短光パルスは様々な振幅・位相特性を示すことができる。 $\theta(t)$ の時間による1階微分は瞬時周波数を意味する。

フェムト秒レーザーパルスのような広帯域パルスでは、時間領域における記述に加え、周波数領域での記述が分散特性の理解やレーザーパルスの制御という観点から重要になる。レーザーパルスの光電界 $E(t)$ をフーリエ周波数成分の合成として表すと、フーリエ変換の関係から

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} F(\omega) e^{-j\omega t} d\omega \quad (2.3)$$

となる。 $F(\omega)$ は、フーリエ周波数成分であり、スペクトル振幅 $B(\omega)$ 、スペクトル位相 $\phi(\omega)$ を用いて次のように表現される。

$$F(\omega) = B(\omega) e^{-j\phi(\omega)} \quad (2.4)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{j\omega t} dt \quad (2.5)$$

上式からわかるように、振幅 $A(t)$ 、位相 $\theta(t)$ の組が決まれば、スペクトル振幅 $B(\omega)$ 、スペクトル位相 $\phi(\omega)$ の組も一意的に定まり、逆も同様である。ここで、 $\phi(\omega)$ の周波数による1階微分は群遅延を表す。スペクトル位相が一定あるいは1次関数のときには、レーザーパルスの群遅延が全周波数成分にわたり一定となり（モード同期）、パルスの時間幅が最も短くなる。これがFTLパルスである。このとき、パルス幅 $\Delta t$ と周波数幅 $\Delta\nu (= \Delta\omega/2\pi)$ の間に不確定性関係の等号が成立する。

$$\Delta t \Delta\nu \geq K \quad (\text{定数}) \quad (2.6)$$

また、スペクトル位相 $\phi(\omega)$ を何らかの方法で変調（整形）することにより、パルスの時間波形を変化させることが可能となることも容易に予想できる。これは、フェムト秒レーザーパルスのフーリエ波形整形技術として汎用的に利用されている。

次に、レーザーパルスのスペクトル位相 $\phi(\omega)$ が周波数に依存して変化する、群遅延分散効果について説明する。たとえば光パルスを光ファイバーに通すと、光の周波数変化に伴い物質の屈折率が変化する材料分散と導波路の構造に起因する構造分散によりパルスの周波数成分は異なる群遅延を受ける。スペクトル位相 $\phi(\omega)$ を中心角周波数 $\omega_0$

の周りでテイラー展開すると以下ようになる。

$$\begin{aligned} \phi(\omega) &= \phi_0 + \frac{d\phi}{d\omega}(\omega - \omega_0) \\ &+ \frac{1}{2} \frac{d^2\phi}{d\omega^2}(\omega - \omega_0)^2 \\ &+ \frac{1}{6} \frac{d^3\phi}{d\omega^3}(\omega - \omega_0)^3 + \dots \end{aligned} \quad (2.7)$$

この式の右辺第2項の係数 $d\phi/d\omega$ は、レーザーパルスに群遅延を与え1次分散と呼ばれる。右辺第3項の $d^2\phi/d\omega^2$ は、群遅延分散（GDD: Group Delay Dispersion）または2次分散と呼ばれ、レーザーパルスの波形を変化させる。右辺第4項以降の係数は、高次の分散と呼ばれ、パルス幅が短くなると影響を考慮しなければならない。

ここで、2次分散がレーザーパルスの時間波形に与える効果について考える。入射光としてガウス型のFTLパルスを仮定すると時間領域におけるレーザーパルスの光電界 $E_{in}(t)$ は、次式のように表現できる。

$$E_{in}(t) = A_0 e^{-at^2} e^{-j\omega_0 t} \quad (2.8)$$

なお、ガウス型パルスのパルス幅（半値全幅） $\Delta t$ とスペクトル幅 $\Delta\omega$ （半値全幅）は次のようになる。

$$\Delta t = \sqrt{\frac{2\ln 2}{a}} \quad (2.9)$$

$$\Delta\omega = \frac{4\ln 2}{\Delta t} \quad (2.10)$$

このレーザーパルスが媒質中を伝搬し、2次分散（群遅延分散） $\phi_g = d^2\phi/d\omega^2$ が付加されるとき、出力パルスの光電界 $E_{out}(t)$ は次式のように得られる。

$$\begin{aligned} E_{out}(t) &= \frac{A_0}{2\sqrt{a\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp\left\{-\frac{(\omega - \omega_0)^2}{4a}\right\} \\ &\times \exp\left\{-j\frac{\phi_g}{2}(\omega - \omega_0)^2\right\} e^{-j\omega t} d\omega \\ &\propto \exp\left\{-\frac{\alpha}{1 + 4\alpha^2\phi_g^2}t^2\right\} \\ &\times \exp\left\{-j\left(\frac{2\alpha^2\phi_g}{1 + 4\alpha^2\phi_g^2}t^2 - \omega_0 t\right)\right\} \end{aligned} \quad (2.11)$$

これより、2次分散によりスペクトル位相が変化し、その結果、時間領域では振幅の形状が変化してパルス幅が広がることがわかる。出射パルスの複素振幅成分が、 $\alpha \rightarrow \alpha/(1 + 4\alpha^2\phi_g^2)$ と変化するのでパルス幅は、(2.11)式より、2次分散の正負に関わらず入射パルスの $\sqrt{1 + 4\alpha^2\phi_g^2}$ 倍に広がる。ここで、瞬時角周波数 $\omega(t)$ は、

$$\omega(t) = -\frac{d\theta(t)}{dt} \quad (2.12)$$

$$\begin{aligned} &= -\frac{d}{dt} \left( \frac{2\alpha^2\phi_g}{1 + 4\alpha^2\phi_g^2}t^2 - \omega_0 t \right) \\ &= \omega_0 - \frac{4\alpha^2\phi_g}{1 + 4\alpha^2\phi_g^2}t \end{aligned} \quad (2.13)$$

となり、正常分散 ( $\phi_g < 0$ ) のとき、瞬時角周波数は時間と共に線形に増加する正のチャープとなり、異常分散 ( $\phi_g > 0$ ) の場合は、時間と共に周波数が線形に減少する負のチャープとなることがわかる。正のチャープが乗った光パルスでは長波長成分が短波長成分よりも速く伝搬し、負のチャープでは逆に短波長が長波長より速く伝搬する。図1に時間変化する線形周波数チャープパルスの概念図を示す。

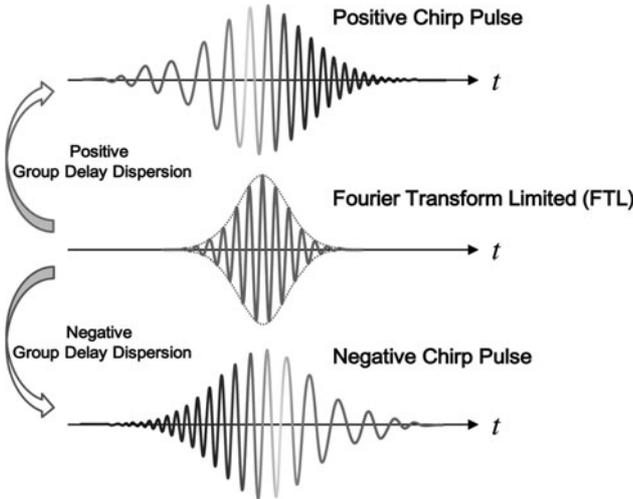


図1 正常(正)分散, 異常(負)分散を受けたフーリエ変換限界パルスの瞬時周波数変化とパルス幅の変化。

### 3. STAMP

STAMPの原理を図2に示す。STAMPの基本概念は、極めて単純である。フェムト秒レーザーパルスに2次分散を与えて時間幅を伸ばし、時間に比例して変化する瞬時周波数を時刻と対応させる(図では波長の異なるパルス列化しているが、パルス列にすることは必須ではない)。分光イメージング手法により異なる周波数(帯)のイメージを空間的に分割して高速性を必要としない通常のカメラで捉えるのがSTAMPである。まず、異なる周波数成分が時間軸上に規則的に並んだ周波数チャープ光パルスで高速に変化する被写体をプローブし、透過率(あるいは屈折率)変化を個々の周波数成分に反映させる(以下の説明では透過率変化による振幅変化に限って記述する。干渉計測あるいは偏光計測を用いれば位相イメージも取得できる)。ここで重要なことは、被写体である高速現象の波長依存性は無視しなくてはならないことである。プローブ光の周波数は時刻としての指標に用いるので物性的分光計測はできない。逆に、時刻としての指標を捨てれば静的な物性的分光イメージ計測法として機能する[15]。

被写体の過渡情報が埋め込まれた光パルスの周波数成分を2次元イメージセンサ上に分光し空間的に分離することができれば、高速現象を異なる時刻で捉えた複数のイメージが単一ショットで後処理無しに直接取得できる。STAMP開発の鍵は、この単一ショット分光イメージング法の発明であったと言っても過言ではない。連写イメージ間のフレーム間隔および露光時間は、後述のように2次元カメラ上への分光特性で決定される。

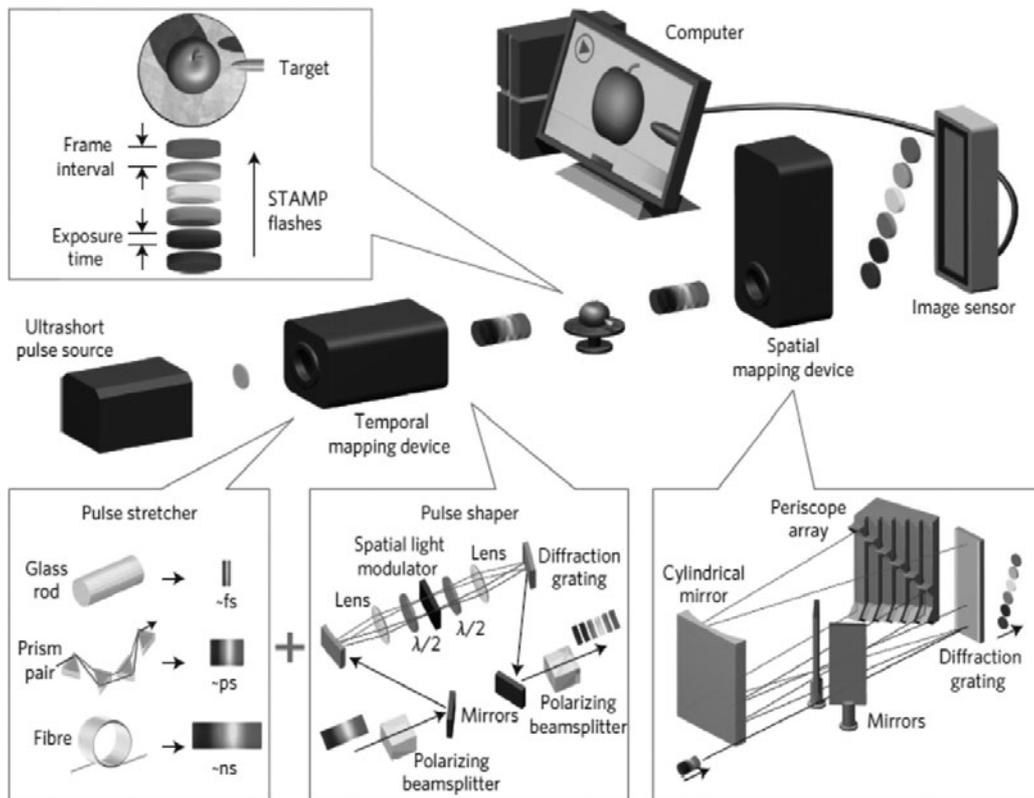


図2 線形周波数チャープパルスを用いた単一ショット超高速バーストイメージング法 STAMP の原理と、初機のペリスコープアレイを用いた分光イメージングのセットアップ(参考文献[14]から許諾を得て転載)。

### 4. 分光イメージング手法

#### 4.1 幾何光学的角度分散分光イメージング

初機の STAMP においては図 2 のように空間分散装置 (SMD: Spatial Mapping Device) と呼ぶ回折格子とペリスコープ (反射鏡対の組み合わせ) アレイを用いた [11]. 周波数チャーププローブ光は回折格子に入射し角度分散を受け円筒鏡で光学的にフーリエ変換される. フーリエ面に置かれた波長毎に光路差の調整されたペリスコープアレイに入射して, 空間的に 6 つのビームに分割される. 空間的に分割された異なる周波数帯の光は逆フーリエ変換後再度回折格子を介して 1 つのイメージセンサ上で同時に計測される (イメージセンサの露光時間は STAMP の時間分解能に無関係である). シングルショットで撮影できる分光イメージの枚数 (連写枚数) は, ペリスコープアレイの個数で決定される. 初機では微細加工の制限から最大 6 枚のコマ撮りを実現した (計測結果は 6 章に記載した).

#### 4.2 バンドパスフィルター分光イメージング

ペリスコープアレイに代えて連写枚数のスケージングに適した方法として考案したのがバンドパスフィルター (BPF: Band-Pass Filter) を用いて分光イメージを取得する簡便な手法であり, 我々は SF-STAMP (STAMP utilizing Spectral Filtering) [16] と呼んでいる. 光学計測部の概念図を図 3 に示す. 回折光学素子 (DOE: Diffractive Optical Element) と BPF を 4f 結像光学系に用いる非常に簡便な手法である. この DOE と BPF を用いる波長フィルタリングのアイデアは, 超短光パルスのシングルショット 2 次元波形  $E(x, y, t)$  をホログラフィック干渉で計測できる STRIPED FISH (Spatially and Temporally Resolved Intensity and Phase Evaluation Device: Full Information from a Single Hologram) [17] から得たものである.

DOE と BPF による周波数成分の空間分解の概念図を図 3 (a) に示す. まず, DOE に入射したビームは回折広がり

り角  $\alpha$  で広がる分岐ビーム (アレイビーム) になる. つまり, 入射ビームは DOE により同じ特性をもったアレイビームに複製され, 空間的に分解される. したがって, DOE から発生するアレイビームの数が実現可能な連写枚数に対応する.

次に, アレイビームは BPF により波長選択が行われる. 誘電体多層膜からなる BPF はビームの入射角  $\theta$  に依存して, (4.1) 式のように透過波長  $\lambda(\theta)$  が変化する. (ただし,  $\lambda_0$ : BPF の中心波長,  $\theta$ : 入射角,  $n_{\text{eff}}$ : BPF の基板の有効屈折率である)

$$\lambda(\theta) = \lambda_0 \left( 1 - \frac{\theta^2}{2n_{\text{eff}}^2} \right) \quad (4.1)$$

この性質により図 3 に示すように誘電体多層膜から構成される BPF を回転させ入射角  $\theta$  を変化させることで波長選択が可能となる. さらに DOE から発生するアレイビームは回折広がり角  $\alpha$  で伝搬していくので,  $\theta$  傾いた BPF の両端に入射するアレイビームの入射角はそれぞれ,  $\theta + \alpha$ ,  $\theta - \alpha$  となる. これにより 0 次光  $\lambda(\theta)$  を中心に長波長  $\lambda(\theta - \alpha)$ , 短波長  $\lambda(\theta + \alpha)$  の帯域幅での波長選択が実現される. さらに DOE をビームの光軸を回転軸にして回転することでアレイビームも回転する. よって, DOE と BPF を組み合わせることで一枚の BPF により  $\lambda(\theta - \alpha)$  から  $\lambda(\theta + \alpha)$  の波長の範囲内  $\Delta\lambda_{\text{window}} = \lambda(\theta - \alpha) - \lambda(\theta + \alpha)$  で異なる波長帯で個々のアレイビームを分光できる.

#### 4.2.1 時間分解能

ここで SF-STAMP における時間分解能についてまとめる. 図 4 に SF-STAMP の BPF で選択される波長幅と時間幅の対応関係を示す. SF-STAMP の 1 ショットで得られる全体の波長帯域幅 (レーザーのスペクトル幅に対応) を  $\Delta\lambda_{\text{window}}$ , BPF でアレイビームの 1 つが波長選択されるスペクトル幅を  $\Delta\lambda_{\text{BPF}}$  (すべてのアレイビームに対して一定

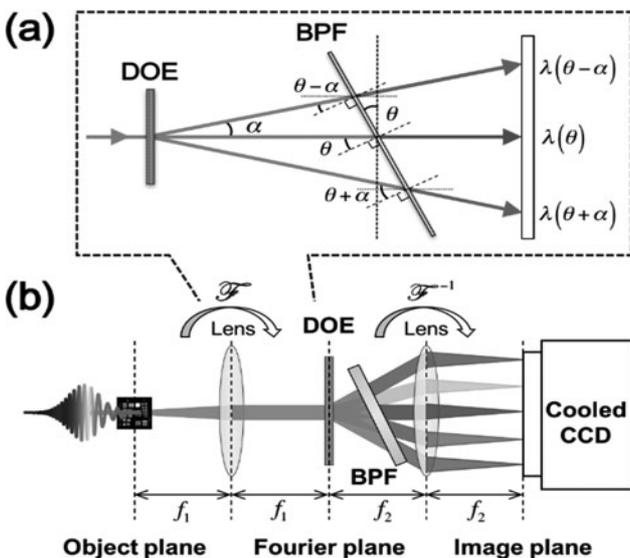


図 3 DOE と BPF を用いた SF-STAMP の光学系セットアップ. (a) は DOE によって生成されるアレイビームが BPF に異なる角度で入射することにより透過帯域に変化が生じる原理を示す (参考文献 [16] から許諾を得て転載).

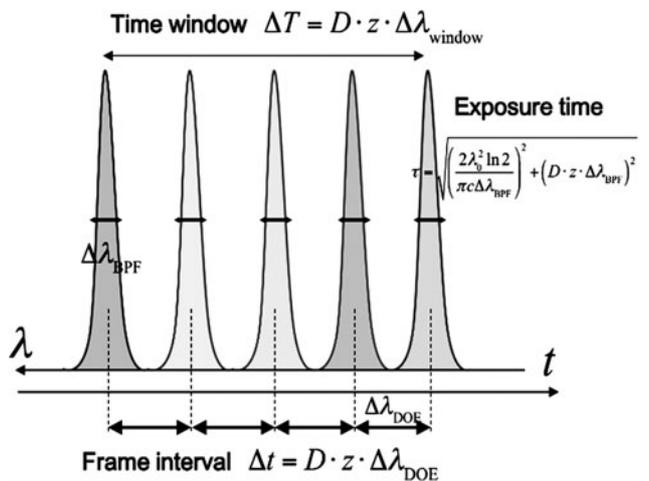


図 4 STAMP 法における観測時間窓  $\Delta T$ , 各フレームの露光時間  $t$ , フレーム間隔  $\Delta t$  が決定される原理. 各変数の説明は本文を参照. この図では, BPF の異なる帯域を通過した中心波長の異なる 5 つの時間遅延をもったパルスで表現しているが, 周波数チャーププレートが小さくなると, パルス間隔が狭まり時間的に重なり合い始める (参考文献 [16] から許諾を得て転載).

にはならない), 波長選択されたアレイビームの中心波長差を $\Delta\lambda_{\text{DOE}}$ とすると, 計測時間窓 $\Delta T$ は, (4.2)式で表現される. なお,  $\Delta\lambda_{\text{window}} = \lambda(\theta - \alpha) - \lambda(\theta + \alpha)$ である. ただし,  $\Delta\lambda_{\text{DOE}}$ も DOE と BPF の配置により変化するので必ずしも等間隔ではないことに注意が必要である.

$$\Delta T = D \cdot z \cdot \Delta\lambda_{\text{window}} \quad (4.2)$$

ただし,  $D$  はレーザーパルスに二次分散量を与える際に用いた媒質固有の分散パラメータ,  $z$  は分散媒質の長さである. したがって, 計測時間窓は可変にできる. より広帯域なレーザーパルスを用いると少ない分散量で時間窓を広くできるが, イメージング光学系における色収差の影響を補正する必要がある.

各波長イメージの露光時間 $\tau$ は, (4.3)式で表現される[18]. ここで,  $\lambda_0$  は光パルスの中心波長,  $c$  は真空中における光速である.

$$\tau = \sqrt{\left(\frac{2\lambda_0^2 \ln 2}{\pi c \Delta\lambda_{\text{BPF}}}\right)^2 + (D \cdot z \cdot \Delta\lambda_{\text{BPF}})^2} \quad (4.3)$$

(4.3)式の右辺ルート内の第一項は, スペクトル幅と時間幅の関係を示す時間・周波数の双対性から決まる要素である. 第二項は, 周波数チャープパルスから狭い周波数帯域を切り出すことで時間幅が狭くできることを示している. すなわち, BPF の帯域を狭くすることで第二項により露光時間を狭めることが可能であるが, 帯域を狭めすぎると第一項の効果で逆に時間分解能は劣化してしまうことになる.

フレーム間隔 $\Delta t$ は, 各波長間の遅延時間, すなわち波長差 $\Delta\lambda_{\text{DOE}}$ で決定され(4.4)式のようになる.

$$\Delta t = D \cdot z \cdot \Delta\lambda_{\text{DOE}} \quad (4.4)$$

以上のように, 分散量 $Dz$ , プロブ光全体の波長幅 $\Delta\lambda_{\text{window}}$ , 波長選択フィルタのスペクトル幅 $\Delta\lambda_{\text{BPF}}$ を適切に設定することで時間分解能を設計可能である.

#### 4.2.2 空間分解能

SF-STAMP の空間分解能は, 使用するイメージセンサの分解能およびイメージング光学系の分解能で決まる. 図3の SF-STAMP 光学系は4f結像光学系がベースになっているためObject面に像を転写することで, 顕微光学系など他のイメージング法との組み合わせが可能である. Object面への光学拡大率とObjectレンズの倍率から, 通常の CCD カメラで数 $\mu\text{m}$ の顕微イメージングは容易に可能である.

#### 4.3 レンズアレイを用いた統合面内分光イメージング

SF-STAMP では, ビームを複製してから波長選択を行うという特性上, 撮影枚数の増加とともに, 照明光の光利用効率が低下しイメージングの SN が低下するという課題がある. そこで, 光利用効率改善のため, マイクロレンズアレイ (MLA) と回折格子を利用した統合面内分光法 [19, 20] を応用し, 高い光利用効率で画像情報の時空間分解を実現する単一ショットバースト撮影法 LA-STAMP (STAMP with Lens Array) を開発した[21]. 構築した

セットアップを図5に示す. 測定対象のイメージは, 結像レンズによって, MLA (60 $\times$ 60)上に結像し, 各微小レンズによって空間的にサンプリングされ, 焦点面にアレイ状のスポットを形成する. 各レンズから出射したビームは, コリメートレンズによって平行光となり, 回折格子に異なる入射角度で入射する. 回折格子によって波長分散を受けた各ビームは, 結像レンズを通過し, スペクトル分解されたスポットがカメラ上の異なる場所にそれぞれ結像される. このとき, 回折格子による角度分散で隣り合うレンズのスポットと空間的に重ならないように MLA を回転させて調整する. 撮像後, 後処理として, 欲しい波長帯の強度のみを対応するカメラのピクセル信号から集め, 60 $\times$ 60のマトリクス表示することで分光イメージを構築できる. 収集する帯域幅によって時間分解能, 分光イメージ枚数は決定される. 最小帯域幅は CCD カメラの1ピクセルサイズあるいは, 回折格子とレンズによるフーリエ変換によって決まる単一波長成分のスポットサイズの大きい方で決まる. もちろん, (4.3)式の時間・周波数の双対性から決まる制限は同様に受ける.

図6は, 波長帯毎に収集した分光イメージを6波長帯について再構築した例である. 計測ターゲットは USAF-1951 テストターゲット (Newport 社製, RES-1) である. イメージは顕微光学系で50倍に拡大して取得した. テストターゲットの構造から空間分解能は4.4 $\mu\text{m}$ 以下と評価できた. これは, 光学的拡大率と MLA のピッチで決まる分解能にほぼ一致する.

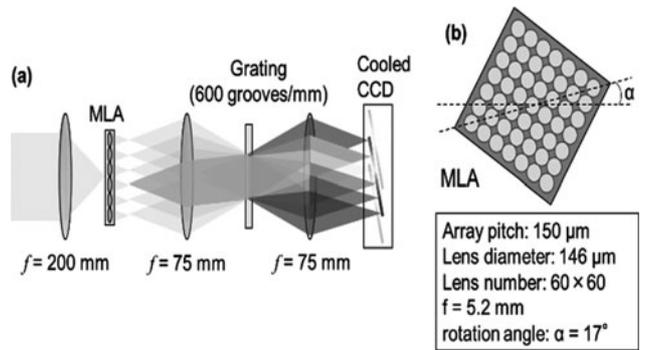


図5 マイクロレンズアレイと回折格子を用いた面内分光法をもちいた LA-STAMP の光学系セットアップ. (b)は, フーリエ面で分光スポットが重なり合わないようマイクロレンズアレイを角度 $\alpha$ だけ回転させる必要性を示している.

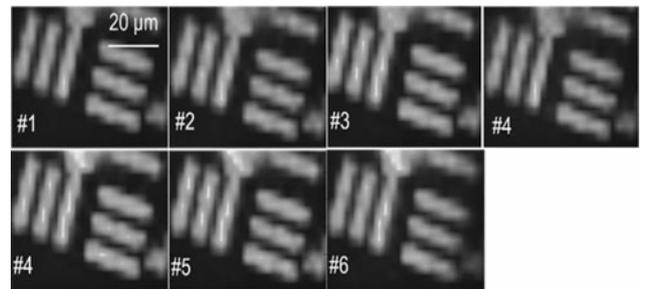


図6 LA-STAMP で像再構成した際の空間分解能を確認するために計測した六枚の中心波長の異なる分光イメージング. 計測対象は約4 $\mu\text{m}$ 間隔のスリットアレイのチャート板である (参考文献[21]から許諾を得て転載).

### 5. ナノ秒域への計測時間窓の拡張

サブピコ秒域の単一ショット超高速コマ撮り計測が注目される一方で、一般的な高速フレームカメラでは計測できない数ナノ秒時間窓での単一ショット計測も、衝撃波、レーザーアブレーション等のダイナミクスを観察するためには有効な手段である。STAMPの時間窓は二次分散量でスケーリング可能であるが、バルク石英等を透過させる方法では現実的に数10 psが限界である。光ファイバーは原理的に有効であるが、イメージングに使用できるような数10 μJのフェムト秒パルス透過させた場合、線形分散以外に自己位相変調、誘導ラマン散乱、四波混合などの非線形効果によるスペクトル変調が起き、扱いが難しくなる。

ナノ秒域時間窓での単一ショットバースト撮影を実現するため構築した、中心波長が時間と共に掃引されたパルス列を生成するFACED (Free-space Angular-Chirp-Enhanced Delay) 光学系を図7(a)に示す[22, 23]。波長毎に異なる入射角で非平行ミラー対に入射した光は、多重反射後に鉛直反射の条件を満たした波長のみが異なる遅延時間をもって光路を戻り、再び回折格子によりコリメートビームに近い空間特性で出射される。FACEDを利用した時間幅伸長では、入射光路と出射光路が一致するのは、入射角がミラー対の角度 $\alpha$ の整数倍である波長成分のみであり、その他の波長成分では、完全には一致しない。FACED出射後の伝搬方向は波長成分ごとに僅かに異なるため、伝搬するにつれて空間的に分離するとともに、伝搬経路の違いによる光路長の違いから、サンプル面において時間的なずれが生じる。このFACEDの特性によって生じる、反射回数と同じ波長成分間での時間的なずれが、各パルスの実効的なパルス幅となり、シングルショット撮影における時間分解能となる。FACEDから出射したパルスの空間的にずれた成分をカットするため、回折格子から200 mmの位置に開口4 mmのスリットを配置し、コリメート成分のみを切り出した。FACED出射パルスのスペクトルを図7(b)に示す[24]。この実験で用いた図7(a)の

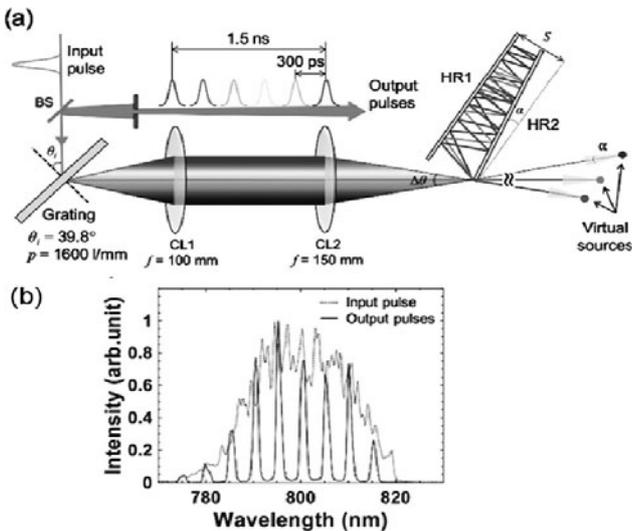


図7 ナノ秒の観測時間窓を実現するために導入したFACEDの光学系セットアップ。(b)は4 mm幅の空間フィルタ後の中心波長掃引パルス列のスペクトル。

FACED光学系では、全反射鏡対の間隔 $S$ が45 mm、角度 $\alpha$ が0.68度であり、その結果、パルス間隔は約300 psでパルス幅は約22 psである。フレーム間隔は非平行鏡対の間隔 $S$ 、パルス数は鏡の角度 $\alpha$ を変化させることで可変であることから、群遅延分散を用いたチャープ量の調整に変わる手法として計測時間窓を広げるためには有効な手段である。

### 6. 単一ショットバーストイメージング計測例

ここでは、STAMP, SF-STAMP, LA-STAMPを用いた計測例をいくつか紹介する。

図8は、LiNbO<sub>3</sub>結晶にパルス幅70 fs、中心波長800 nmのフェムト秒レーザーパルス(40 μJ)を線集光した際のImpulsive Stimulated Raman過程によって発生したフォノン波の伝播を計測した例である[14]。単一ショットで計測しているのは6枚のフレームである。周波数チャープ量を調整することで、フレーム間隔を切り変えて計測できることがわかる。図の中段および下段のフレーム間隔が約200 fsの計測においては、(4.3)式の時間・周波数の双対性により分光イメージされたフレームごとの時間パルスの裾が隣接するフレームに被さっており、完全に時間的に分離された分光イメージにはなっていないが、フォノン波の伝播速度に対して時間分解能は十分であり、鮮明な像が得られている。

図9は、SF-STAMPを用いて計測したフェムト秒レーザーを厚さ約10 nmのGe<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub> (GST) 薄膜表面に点集光した際に結晶からアモルファスに高速相変化する現象を計測した例である[25]。この計測では、プローブ光に

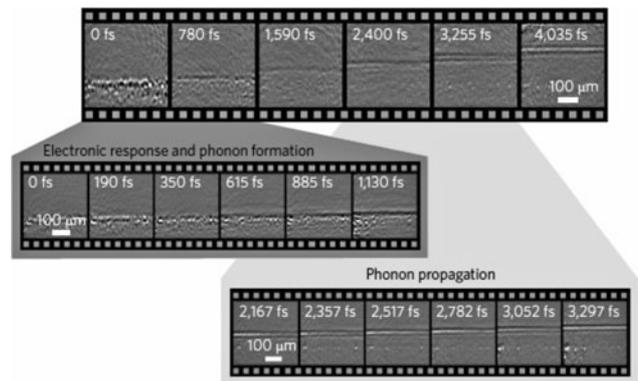


図8 初機STAMPで計測した線集光フェムト秒レーザー励起フォノン波の伝播をフレーム数6枚で単一ショットバーストイメージ計測した例。周波数チャープ量を二次分散量で変化させることでフレーム間隔を変化できることを示した(参考文献[14]から許諾を得て転載)。

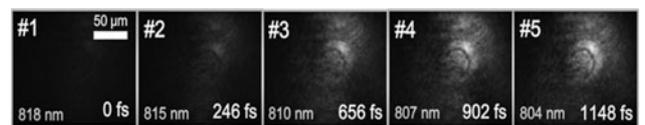


図9 SF-STAMPを用いて計測したフェムト秒レーザーパルス誘起GST薄膜の高速相変化。図中の波長は各フレームを撮像した光パルスの中心波長[24](参考文献[25]から許諾を得て転載)。

0.082 ps/nm の二次分散量を与え、1.1 ps の時間窓内で、平均フレーム間隔 287 fs かつ平均露光時間 465 fs で計測を行った。露光時間がフレーム間隔より大きいのは、これも時間・周波数の双対性による制限である。実験結果より、励起後約 250 fs 経過した辺り（2 フレーム目）から透過率が上昇し明るく映るアモルファスマークが観測された。これは先行研究で報告されている時間スケールに一致する結果であり、シングルショットでの 2 次元イメージ計測としては現在のところ STAMP 法のみが捉えることができる結果である。

図10は、厚さ 50 μm の薄膜ガラス（日本電気硝子社製、Ultra Thin Glass[OA-10G]）内部にフェムト秒レーザーパルスが f=8 mm のレンズで側面から点集光させ、透明材料の内部屈折率変化の超高速ダイナミクスのシングルショット25枚バースト撮影を行った結果である[26]。ポンプ光のパルス幅は 50 fs、中心波長は 800 nm、パルスエネルギーは 30 μJ であった。プローブ光には 0.14 ps/nm の二次分散量を与え、時間窓は 5.6 ps、平均フレーム間隔は 0.23 ps、平均露光時間 0.52 ps であった。7-9 フレームでは円形の屈折率変化が見え、輝度変化が徐々に大きくなる。それに伴い、細長い電離領域が成長していく様子がわかる。最後の25フレームでは、中央に黒いプラズマ領域と、その上下に線状の屈折率変化が明瞭に浮かび上がっている。このように、5.6 ps の時間窓の間に励起パルスの集光点付近にプラズマフィラメントが形成される様子が、シングルパルスを用いた25フレームの超高速スナップショットとして観測された。この計測は、シャドウグラフィックな強度イメージであるが、位相差顕微鏡のセットアップで位相変化を強度イメージとして計測することも可能である。

図11は、プローブ光には 4f-FACED で生成した波長掃引パルス列を用いた LA-STAMP での計測結果である。薄膜ガラス表面におけるアブレーション過程を 300 ps のフレーム間隔で 1.8 ns にわたってシングルショット撮影し[21]。観測時間窓をナノ秒まで延ばすことで、アブレーションプラズマの過渡状態がはじめて単一ショットバースト撮影できた。

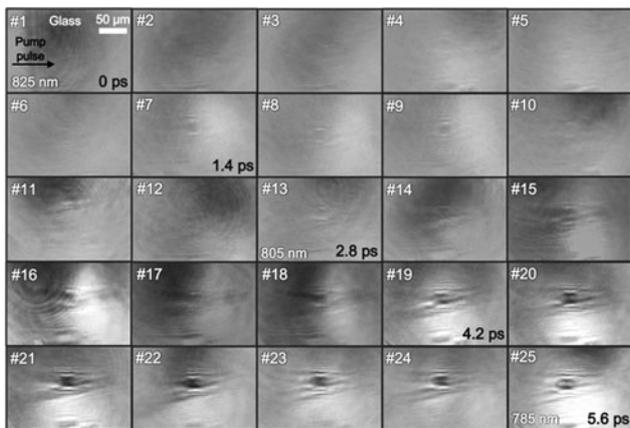


図10 SF-STAMP を用いて計測したフェムト秒レーザーパルスを透明ガラス内部に集光した際の屈折率変化。図中の波長は各フレームを撮影した光パルスの中心波長（参考文献[25]から許諾を得て転載）。

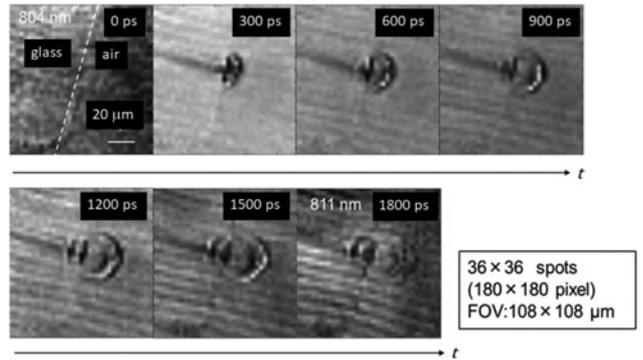


図11 LA-STAMP に FACED で生成した中心波長掃引パルス列を適用して計測した、フェムト秒レーザーパルスでガラス表面をアブレーションさせた際の、単一ショットバーストイメージ。観測時間窓を 500 ps 以上に広げることでブルーブの進展が観測できている（参考文献[21]から許諾を得て転載）。

STAMP 法は、高速カメラと組み合わせることで、1 kHz の繰り返しフェムト秒レーザー照射によるガラス加工のパルス積算加工において、各パルスでのアブレーション前駆過程や加工進展中の変化をリアルタイムでバーストイメージ計測する応用も可能である[27]。様々なレーザーパルスパラメータや材料特性に対するレーザー加工性能の比較を容易にするデータベースを短時間で取得できる。

### 7. まとめ

瞬時周波数が時間と共に線形に変化した光パルスを用い瞬時周波数を時刻と対応させることで、高速現象を能動的にイメージ計測することを可能とするのが STAMP である。数 10 fs のレーザーパルスであれば材料分散を用いて線形周波数チャープを与えることで 10 ps 程度までの計測時間窓内で最短 100 fs 程度の時間分解能での単一ショットバーストイメージングが可能となる。計測パラメータは二次分散量で可変である。STAMP は様々な分光イメージング法を利用できるが、とくに SF-, LA-STAMP 法はフレーム数を容易に拡張できる。時間分解能をより向上させてさらに超高速な過渡状態を計測することも挑戦的であるが、一般的な高速カメラではまだカバーできないナノ秒領域まで観測時間窓を拡張することも衝撃波伝播、レーザーパルス加工等の観測には極めて有効である。中心波長が時間掃引されるパルス列を発生できる FACED は STAMP との組み合わせにより、ナノ秒時間窓での単一ショットバーストイメージングが実現できる。

これまでの STAMP は発光特性の計測には応用できていないが、和周波変換を利用することで可能となるであろう。比較的簡便で高価なストリークカメラを必要としない本手法が広く応用されることを期待したい。

### 謝辞

本論文に記載した研究は多くの方々のご貢献によって実現できたものですが、とくに中川桂一先生（東京大学）、鈴木敬和氏（現（株）資生堂）、根本寛史氏（現）ベネッセコーポレーション）の多大なる貢献に対して感謝いたします。

参考文献

- [ 1 ] H.P. Weber, J. Appl. Phys. **39**, 6041 (1968).
- [ 2 ] E.P. Ippen and C. V. Shank, Appl. Phys. Lett. **27**, 488 (1975).
- [ 3 ] M.A. Duguay and J. W. Hansen, Appl. Phys. Lett. **15**, 192 (1969).
- [ 4 ] C.V. Shank and E. P. Ippen, Appl. Phys. Lett. **26**, 62 (1975).
- [ 5 ] H. Mahr and M. D. Hirsch, Opt. Commun. **13**, 96 (1975).
- [ 6 ] F. Mochizuki *et al.*, Opt. Express **24**, 4155 (2015).
- [ 7 ] H. Shiraga *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **66**, 722 (1995).
- [ 8 ] M. Heya *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **72**, 755 (2001).
- [ 9 ] 部谷 学 他：プラズマ・核融合学会誌 **75**, 507 (1999).
- [10] J. Liang *et al.*, Sci. Rep. **5**, 15504 (2015).
- [11] P. Wang *et al.*, Nat. Commun. **11**, 2091 (2020).
- [12] K. Minoshima *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L1348 (1994).
- [13] Z. Jiang and X.-C. Zhang, IEEE J. Quantum Electron. **36**, 1214 (2000).
- [14] K. Nakagawa *et al.*, Nat. Photonics **8**, 695 (2014).
- [15] K. Hashimoto *et al.*, Opt. Lett. **39**, 6942 (2014).
- [16] T. Suzuki *et al.*, Opt. Express **23**, 30512 (2015).
- [17] P. Gabolde and R. Trebino, Opt. Express **14**, 11460 (2006).
- [18] P.H. Lissberger, J. Opt. Soc. Am. **49**, 121 (1959).
- [19] J.A.-Smith and R. Content, Publ. Astron. Soc. Pac. **110**, 1216 (1998).
- [20] A. Boniface *et al.*, Optica **6**, 274 (2019).
- [21] H. Nemoto *et al.*, Opt. Lett. (*in press*).
- [22] J. Wu *et al.*, Light Sci. Appl. **6**, e16196 (2017).
- [23] Y. Xu and S. G. Murdoch, Opt. Lett. **44**, 3697 (2019).
- [24] H. Nemoto *et al.*, Appl. Opt. **59**, 5210 (2020).
- [25] T. Suzuki *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 092502 (2017).
- [26] 鈴木敬和 他：レーザー研究 **45**, 333 (2017).
- [27] T. Suzuki *et al.*, Appl. Phys. A **126**, 135 (2020).



かん なり ふみ ひこ  
神成文彦

慶應義塾大学理工学部電気情報工学科教授。(社)レーザー学会副会長。

博士学生の時代にはレーザー核融合をめざして電子ビーム励起高出力気体レーザーの

研究をしていたので弱電離プラズマもかじっていましたが、教員になってからはフェムト秒レーザーの広帯域性を利用したコヒーレント光学，超高速フーリエ光学，プラズモンナノ光学，量子シミュレーター開発，および新型レーザー開発の研究に従事しています。博士教育リーディングプログラムのコーディネータとして，すでに10年間文理融合大学院教育を学内横断的に進めています。