

令和 2 年 6 月 1 日現在

機関番号：14501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2019

課題番号：16K13934

研究課題名（和文）位相共役光発生を用いた超短パルス光の時空間制御法の開拓

研究課題名（英文）Development of Wavefront Shaping of Ultrashort Optical Pulses via Digital Optical Phase Conjugation

研究代表者

太田 薫 (Kaoru, Ohta)

神戸大学・分子フォトサイエンス研究センター・特命准教授

研究者番号：30397822

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：光学的に不透明で不均一な媒質をレーザーなどのコヒーレント光が透過する際には、光の散乱や拡散が起こり、ある特定の場所に光を効率よく集めることが非常に困難となる。このため、光散乱は分光法や微小領域のイメージングにおいて大きな障害となると考えられてきた。近年、空間領域での波形制御法を巧みに利用することにより、光散乱が起こる系においても特定の場所に光を集光させることが可能であることが示された。本研究により、空間領域と時間領域での波形制御法を組み合わせることにより、散乱体透過後の超短パルス光を空間上の任意の一点に集光し、時間方向に広がった超短パルス光の特性を操作、最適化することが可能になった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、天文学の分野で観測像の歪みを補正する目的で開発された波面補償法が、生体組織深部のイメージングの分野で盛んに行われるようになった。しかし、本研究で対象としているような光の散乱や拡散が起こるような系では全く無力である。本研究課題では、このような困難な状況でも適用できる超短パルス光の波形制御法を開発した。本研究手法を用いることにより、散乱体透過後の超短パルス光を空間上の任意の一点に集光することが可能となる。本手法を、超短パルス光を用いた様々な非線形光学イメージングに応用した場合、散乱の寄与が非常に大きい生体試料などその適用範囲は劇的に広がるものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：When a coherent light propagates in scattering media, the scattered light forms a destructive interference pattern, which is known as "speckle". It was considered that this light scattering was a fundamental obstacle for molecular spectroscopy and optical microscopy. However, it was shown that one can focus the light at a desired target even in scattering media by spatially shaping the wavefront of the incident light. This is based on the fact that the scattering process is linear and deterministic. In this study, we demonstrated the spatio-temporal pulse-shaping technique to control the amplitude and phase of ultrashort pulses both in space and time. For ultrashort pulses, it is important to control not only the wavefront of the pulse but also the spectral phase distortions caused by the transmission of the dispersive media. We used the pulse shaper to manipulate the optical properties of ultrashort pulses in time domain.

研究分野：物理化学

キーワード：透過行列 散乱体 超短パルス光 波形制御 空間位相変調器

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

生体組織などの不透明な媒質をレーザー光が透過する際には、散乱が起こり、ある特定の場所に光を効率よく集めることが非常に困難となる。特に、超短パルス光を適用した場合には、試料中での多重散乱により時間特性も大きく変化するため、短い時間幅という特徴を活かした分光計測を行うことが不可能である。近年、空間領域での波形制御法を巧みに利用することにより、多重散乱が起こる系においても特定の場所に光を集光させることが可能であることが示された(I. M. Vellekoop *et al.*, *Opt. Lett.*, 32, 2309, 2007 など)。我々は時間、空間領域での超短パルス光の波形制御法の開発を目指し、微小空間領域での時間分解分光や散乱体深部での分光計測に応用するという課題に挑戦している(太田, レーザー研究, 41, 613, 2013)。しかし、このような実験では、波形制御のために非常に多くの変数を最適化する必要がある。また、超短パルス光の振幅と位相が空間領域と時間領域で完全に独立ではないため、その制御手法は必ずしも自明ではないという問題があった。本研究では、散乱体透過後の超短パルス光の位相共役光を発生させ、時間領域での波形制御と融合する技術を開発することで、上記の困難を克服するという目的で本研究の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究課題では、まず、2次元液晶空間位相変調器を用いたデジタル位相共役光発生のための光学系を構築し、時空間領域の波形制御を融合させることで、散乱体透過後の超短パルス光を空間上の任意の1点に集光し、時間方向に広がった超短パルス光の特性を操作、最適化することを目的としている。当初、デジタル位相共役発生法による空間領域での波形制御を予定しており、連続発振レーザー光を用いた光学系を構築し、超短パルス光への応用を目指した。連続発振レーザー光ではデジタル位相共役光を発生させることができたが、超短パルス光への応用では光源である光パラメトリック増幅器からのパルス光のビームパターンが良くなく、デジタル位相共役光発生は難しいと考えた。そのため、光学系の構築が容易である透過行列(Transmission Matrix)法をベースとした制御法に変更した。この手法により、散乱体透過後の超短パルス光を空間上の任意の一点に集光させることができる。このときの超短パルス光の振幅、位相は透過前とは大きく異なったものとなる。それらのパラメータをまず、周波数領域での干渉法により決定する。この情報を基に時間領域での波形制御や空間領域での波面補償を行うことで、時間方向に広がった超短パルス光の時間特性を操作、最適化するための手法や技術開発を行う。

3. 研究の方法

図1に製作した時空間領域での波形制御法の光学系を示す。光源には非同軸光パラメトリック増幅器で発生させた可視領域の広帯域パルス光を用いた。広帯域超短パルス光はゼロ分散コンプレッサーと1次元液晶空間変調器を時間領域でのパルスシェーパを通したあと、サンプル光と参照光に分ける。サンプル光は空間領域の波形制御を行う2次元液晶空間変調器を通り、散乱体に入射させる。その後、参照光と重ね、アクロマティックレンズを用いて直径25 μmのピンホールに集光し、透過した超短パルス光のスペクトルを分光器とCCDカメラにより測定した。サンプル光と参照光のスペクトル干渉を計測することで、散乱体を透過した後のサンプル光と参照光の位相差スペクトルを知ることができる。また、参照光の振幅と位相は2倍波のスペクトルを測定することで特徴づけることができる。ここでは時間領域でのパルスシェーパを用いた多光子パルス内干渉位相

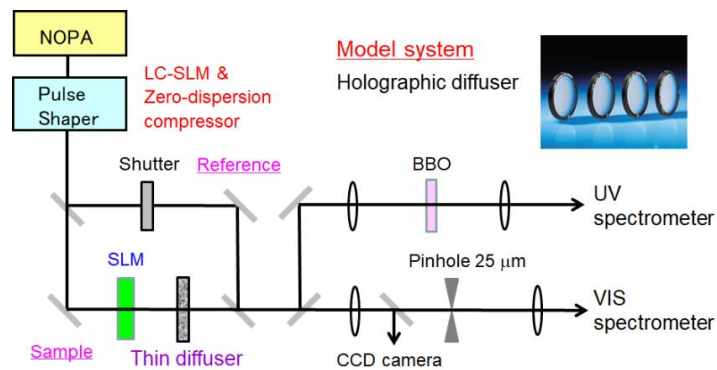


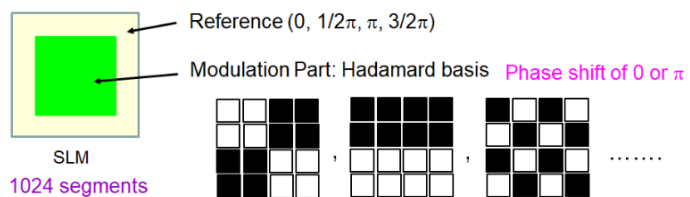
図1 時空間領域での波形制御法の光学系の概要

Popoff *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* (2010)

$$E_m^{out} = \sum_n t_{mn} E_n^{in} \quad I^\phi = |E^{out} + e^{i\phi} E^{ref}|^2$$

Four steps to extract E^{out} $E^{out} \propto (I^0 - I^\pi) + i(I^{3/2\pi} - I^{1/2\pi})$

Use a part of the speckle as a reference (common-path interferometer)



Modulation is much larger compared to canonical basis (only single pixel is "on").

図2 透過行列法を用いた空間領域での波形制御の概要

スキアン (Multiphoton Intrapulse Interference Phase Scan) 法により評価した。空間領域での光散乱の波形制御法には、透過行列をベースとした手法を用いた (図2)。この手法では、まず、空間領域の波形制御に用いる液晶空間光位相変調器の一部を 1024 (縦方向 32、横方向 32) 個の領域に分け、各要素の位相が 0 と π で構成されるアダマール行列を書き込む。この変調器に入射されたパルス光は散乱体を透過後、レンズによりピンホールに集光する。ピンホールを透過したパルス光は分光器に導入し、CCD 検出器によりそのスペクトルを測定した。アダマール行列の表示に使用した残りの表示部分を参照光用として用い、アダマール行列部分に対応した変調光と参照光の干渉を測定することで透過行列の位相を求めた。散乱体としては拡散角度 0.5 度のビーム整形ディフューザーを用いた。

4. 研究成果

図3に参照光のスペクトルとMIIPS法により圧縮した超短パルス光の時間特性を示す。この図から空間領域の液晶空間光位相変調器導入前の超短パルス光の時間幅は 10 fs 以下であり、フーリエ限界に近いことがわかる。空間領域の透過行列を測定することにより、散乱体の光学特性を評価し、

透過行列の位相共役を計算し、その値を液晶空間光位相変調器に書き込むことで、超短パルス光の空間領域での光強度を最適化することができる。スペクトル分解した透過行列の行は空間光位相変調器の 1024 個の領域に対応し、列は各波長に対応した位相成分を表す。実験結果から、透過行列の位相共役の計算において、どの波長領域の成分を取り入れるかで、最適化した超短パルス光のスペクトル分布が異なることがわかった (図4)。また CCD カメラによるビーム形状を観察すると最適化前ではビーム整形ディフューザーによるスペックルパターンが観測されているが、590-610 nm の波長領域での透過行列の位相共役を変調器に書き込むことにより、空間上の 1 点に集光されていることがわかる (図4)。

次に最適化前後のサンプル光と参照光の位相差スペクトルをスペクトル干渉法により計測した。図5にその結果を示す。結果から散乱体透過前では 10 fs 以下のパルス光が入射しているにもかかわらず、透過後では大きくチャープしていることがわかる。位相分布を特徴づけることができたので、その分布を反転したものを時間領域のパルスシェーパーに書き込むことにより、このチャープを補正することができる。この場合、参照光の位相分布は図5の結果を反転したものになるはずである。実際に参照光の位相分布がそうなっているかを MIIPS 法により、評価した (図6)。その結果、位相差は波長に対して直線状の依存性を示すことが

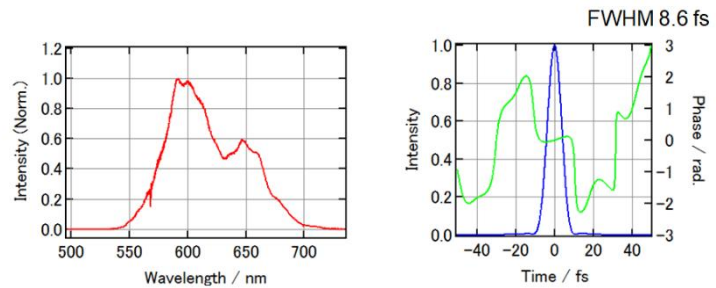


図3 参照光のスペクトルとMIIPS法により圧縮した超短パルス光の時間特性

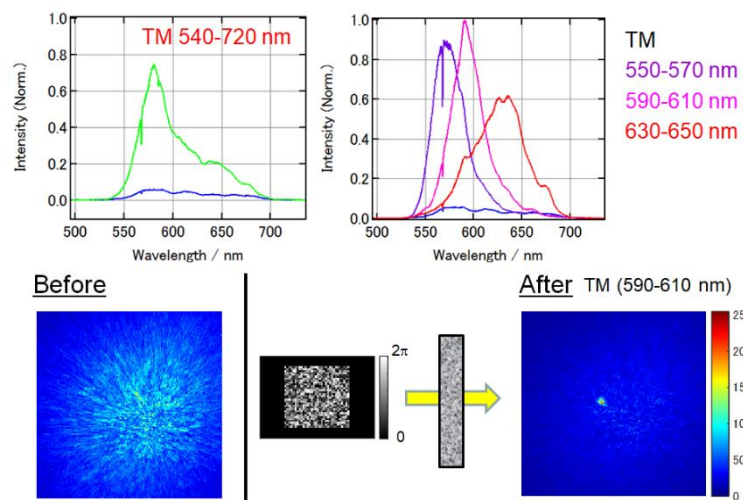


図4 透過行列法により、スペクトル強度を最適化した結果とCCDカメラで観測したビーム形状

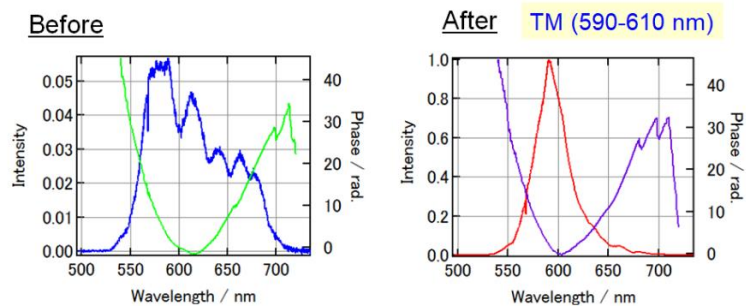


図5 散乱体透過後の空間領域の波形制御の最適化前(左)と最適化(右)の超短パルス光の強度スペクトルと位相分布

わかった。また、図6より反転した位相分布を書き込んでもサンプル光の集光強度や形状に大きな変化がないことがわかる。MIIPS法では位相を振動数に対してテイラー展開した際の2次以上の高次の展開係数を決定できるが、1次の成分を決定することはできない。そのため、スペクトル干渉法とMIIPS法による位相分布に直線状の差が表れたものと考えることができる。この1次項は遅延時間に対応している。これを差し引き、超短パルス光の周波数領域と時間領域の特性を求めたものを図7に示す。この図から散乱体透過によるチャープを補償することで、サンプル光の時間幅は11.1 fsであることがわかる。参照光に比べて、時間幅は広がった原因は最適化後に超短パルス光のスペクトル幅が狭くなったためである。

さらに、集光効率に大きな影響を与える拡散板透過後のスペックルパターンの波長依存性を測定し、相互相関関数の特性評価を行った。その結果、拡散角度0.5度のビーム整形光学拡散板では相関幅は20 nm以下と狭いことがわかった。現在の超短パルス光のスペクトル幅は50 nm程度であり、空間領域領域での波形制御を行った後も同様なスペクトル幅を有することから、超短パルス光の時間特性が多く影響していることがわかった。さらに、パラフィルムなどの異なる散乱体での実験も行い、時空間波形制御について同様の結果を得ている。

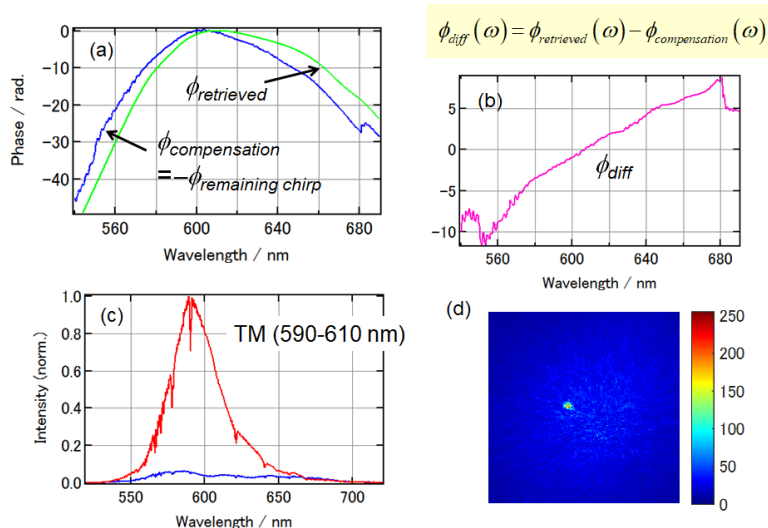


図6 (a) 散乱体透過後の超短パルス光の位相分布 スペクトル干渉法(青線)とMIIPS法(緑線)による評価と(b) その位相差スペクトル (c) 反転した位相分布を書き込んだ場合のスペクトル強度と(d) ビームの集光パターン

$$\phi(\omega) = \phi_0 + \phi_1(\omega - \omega_0) + \frac{\phi_2}{2}(\omega - \omega_0)^2 + \dots$$

Time delay

Multiphoton Intrapulse Interference Phase Scan
Chirp Scan

Iterative estimation of ϕ_2 and compensation of spectra phase distortion

Shifted by -26.7 fs → Ambiguity of ϕ_0 and ϕ_1

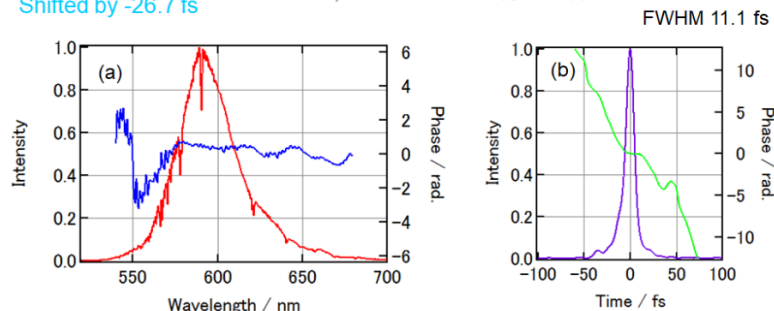


図7 (a) 時空間波形制御後のサンプル光のスペクトル特性と(b) 時間特性

その結果、拡散角度0.5度のビーム整形光学拡散板では相関幅は20 nm以下と狭いことがわかった。現在の超短パルス光のスペクトル幅は50 nm程度であり、空間領域領域での波形制御を行った後も同様なスペクトル幅を有することから、超短パルス光の時間特性が多く影響していることがわかった。さらに、パラフィルムなどの異なる散乱体での実験も行い、時空間波形制御について同様の結果を得ている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件）

| |
|------------------------------------|
| 1. 発表者名 太田 薫 |
| 2. 発表標題 散乱体透過後の超短パルス光の伝播特性と波面制御 |
| 3. 学会等名 第12回分子科学討論会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohta |
| 2. 発表標題 Development of Wavefront Shaping Technique for Ultrashort Optical Pulse |
| 3. 学会等名 9th Asian and Oceanian Photochemistry Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2016年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohta |
| 2. 発表標題 Development of Wavefront Shaping Technique for Ultrashort Optical Pulses |
| 3. 学会等名 6th International Conference on Photoinduced Phase Transitions (国際学会) |
| 4. 発表年 2017年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohta |
| 2. 発表標題 Propagation Characteristics and Wavefront Shaping of Ultrashort Optical Pulses through Scattering Media |
| 3. 学会等名 Indo-Japan workshop, Frontiers in Molecular Spectroscopy: From Fundamentals to Applications in Chemistry and Biology, October 30-November 2, 2019, Kobe University, Kobe (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Kaoru Ohta |
| 2. 発表標題 Wavefront Shaping of Ultrashort Optical Pulses through Scattering Media |
| 3. 学会等名 The 11th Asian Conference on Ultrafast Phenomena, January 12-15, 2020, East China Normal University in Shanghai, China (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
| | | | |