

令和 2 年 7 月 8 日現在

機関番号：33924

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02801

研究課題名（和文）光電場波形計測法の開発と新しい非線形光学の開拓

研究課題名（英文）Light wave measurement and sub-cycle nonlinear optics

研究代表者

藤 貴夫（Fuji, Takao）

豊田工業大学・工学（系）研究科（研究院）・教授

研究者番号：20313207

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、光電場の周期よりも長いパルスを用いても、光電場の振動する様子を計測できる技術を確立し、その技術を使って光電場振動に敏感な非線形光学の研究を進めた。独自に開発した光電場波形計測法を用いて、赤外光から可視光へ波長変換するような非線形光学過程を調べた。そして、その波長変換の効率が、光電場の位相によって大きく変化する様子を観測した。また、その現象を、様々な次数の高調波同士の干渉によって説明できることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

数フェムト秒の周期で振動する超短光パルスの光電場を直接的に計測することは、その周期よりもはるかに短いアト秒パルスによってしかできないものと信じられてきたが、本研究では、光電場の周期よりも長いパルスを用いても、光電場の振動する様子を計測できる技術を確立した。この技術によって、以前よりもはるかに簡便に光電場波形に敏感な非線形現象を解明できることを実際に示した。今後、この技術は、光を使った超高速情報処理などの進展に役立つと考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this research, we have established a technique that can measure the oscillation of the electric field even when using a pulse longer than the period of the optical field, and we have advanced the research of the nonlinear optics which is sensitive to the oscillation of the optical field using that technique. We have investigated the process of the wavelength conversion from infrared light to visible light, a kind of nonlinear optical process, by using the originally developed optical field waveform measurement method. It was observed that the efficiency of the wavelength conversion greatly changed depending on the phase of the input electric field. Moreover, it is shown that the phenomenon can be explained by the interference between the harmonics of various orders.

研究分野：レーザー物理

キーワード：非線形光学 超短光パルス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

光が波の性質を持つということは、100年以上前から知られていることであるが、その光の波が振動する様子を直接観測することは、現在の最先端の技術を使っても、容易なことではない。光の振動周期は1-2フェムト秒程度と、非常に高速なためである。このような超短光パルスの光電場を直接的に計測することは、その周期よりも十分に短いアト秒パルスを用いることでできないと信じられてきた。

2002年にアト秒パルス発生が現実のものとなり、2004年には、ドイツのマックスプランク量子光学研究所において、そのアト秒パルスを参照光として使った光電場の直接計測が行われた[Science 305 1267 (2004)]。さらに、この手法を使って、光電場の振動に追従するような光スイッチに関する研究も同研究グループにおいて進められている[Nature 493 70 (2013), Nature 493 75 (2013), Nature 534 86 (2016)]。

この手法は、アト秒ストリーク法と呼ばれており、発表されてから10年ほどになる。しかし、この手法の発明をきっかけとして、光電場計測が広い分野で行われるようにはならなかった。その理由は、アト秒パルスの発生および取扱いが非常に難しいことだと考えられる。アト秒パルスを発生させるためには、位相の安定したパルス幅4-5フェムト秒の高強度パルスを用いて、高次高調波発生を行い、発生した極端紫外光のスペクトルの一部分を切り出すことが必要である。高出力レーザーおよび空气中を伝搬しない極端紫外光を、アト秒の精度で制御する技術はかなり難易度が高く、光電場測定は、まだごく少数の研究グループで行われているにすぎない。

2012年ごろ、本研究の提案者は、従来まったく無関係と考えられていた2つのフェムト秒光パルス計測手法である周波数分解光ゲート法(FROG)[Opt. Lett. 18 823 (1993)]と電気光学サンプリング法(EOS)[Appl. Phys. Lett. 67 3523 (1995)]を組み合わせることで、計測対象の光電場の周期よりも長い参照光パルスを使っても、その光電場の振動を計測できることに気がついた。そのことを証明するため、申請者の研究室で開発されたサブサイクル中赤外光パルスを計測対象とし、そのパルス幅、中心波長の周期(11フェムト秒)よりもはるかに長い30フェムト秒の参照光パルスを用いて電場波形計測を行った。結果として、中心波長の周期よりもパルス幅(6.9フェムト秒)が短いサブサイクル中赤外光パルスの振動電場を直接的に計測することができた。

この研究結果は、2013年にNature Communicationsに掲載された[Nat. Commun. 4 2820 (2013)]。本手法は、Frequency-Resolved Optical Gating capable of Carrier-Envelope-Phase determination (FROG-CEP) と名づけられている。

2. 研究の目的

本研究においては、独自に開発した光電場波形計測法をさらに発展させ、自己参照による光電場計測法の開発と、その計測技術を、光電場振動に敏感な非線形光学の研究に利用することを目的とする。

研究対象の非線形光学効果としては、固体からの高次高調波発生とした。高次高調波発生は、アト秒パルス発生において、最も重要な非線形光学現象と言える。ここ数年において、固体からの高次高調波発生は、超高速光科学と固体物理学の分野で特に注目を集めている。

固体は、気体に比べて、原子の密度がはるかに大きいため、高次高調波を高い効率で発生できる可能性がある。固体からの高次高調波発生は、小型のアト秒パルス発生装置やペタヘルツエレクトロニクスの実現において、鍵となる技術になるかもしれない。

3. 研究の方法

(1) 自己参照での光電場波形計測

自己参照での光電場波形計測について研究を進めた。20fs程度のパルスについて、上記のFROG-CEP法を適用して、光電場波形が計測できることを確かめる実験とデータ解析を行う。具体的には、自己相関を測定する手法と同様に、20fsのパルスを2つに分けて、セレン化ガリウム結晶に集光し、2つのパルスが重なったときに発生する第二高調波の信号をスペクトル分解して測定する。それと同時に発生する自己回折光と片側のパルスから発生する第二高調波との干渉を測定することで、位相の情報得られる。それらの情報を組み合わせて、光電場波形の完全な情報を得ることができる。

(2) サブサイクルパルスによる固体からの高次高調波発生の研究

本研究では、入力パルスをサブサイクルパルスとして、固体から発生する高次高調波の光電場波形依存性について調べた。高次高調波発生では、入力光電場振動の1周期程度における物理が重要となるため、サブサイクルパルスを入力光とすることで、高調波発生の起源を明らかにすることが期待できる。具体的には、サブサイクルパルスを入射光としてシリコン結晶(Si)から発生した高次高調波スペクトルのキャリア・エンベロープ位相(CEP)依存性を調べることを行った。

(3) 可視光パルスについての光電場波形計測の研究

チタンサファイア増幅器からの30fsのパルスを、希ガスを充填した中空ファイバによって、5フェムト秒のパルスに圧縮し、それについて、光電場波形計測法を適用させることを行った。やはり、自己相関測定と同様に、パルスを二つに分け、二つのパルスが重なったときに発生する第二高調波のスペクトルを測定するが、そのスペクトルの二つのパルスの遅延時間依存性を、単一ショットで測定する必要がある。

4. 研究成果

(1) 自己参照での光電場波形計測

上記の方法によって、図 1 のような電場波形を再現することができ、実験的に、自己参照によって、光電場波形を計測できることを示した。この研究成果は Laser Photonics Review の Letter Article として掲載された [Laser Photon. Rev. **11** 1600244 (2017)]。

(2) サブサイクルパルスによる固体からの高次高調波発生の研究

本実験で用いたサブサイクルパルスは、分子科学研究所の藤グループで開発されたフィラメンテーション法で発生させている。その光電場波形とパワースペクトル、位相スペクトルを図 2(a)と(b)に示す。キャリア・エンベロープ位相を変えることで、形が大きく変わっている。このサブサイクルパルスを、シリコン(Si)薄膜に集光することで、300nm 付近まで広がった高調波を発生させることができた。

サブサイクルパルスの CEP を掃引しながら、高次高調波スペクトルを測定した結果を図 2(c)に示す。位相が 変化することと同じ高調波スペクトルが現れたが、これは反転対称性をもった

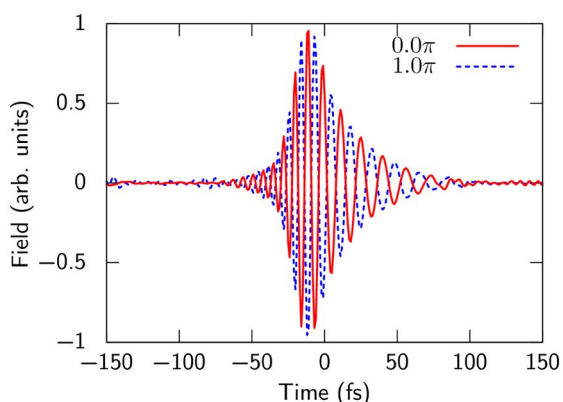


図 1: 自己参照で測定された 20fs パルスの光電場波形。位相が反転する様子も測定できている。

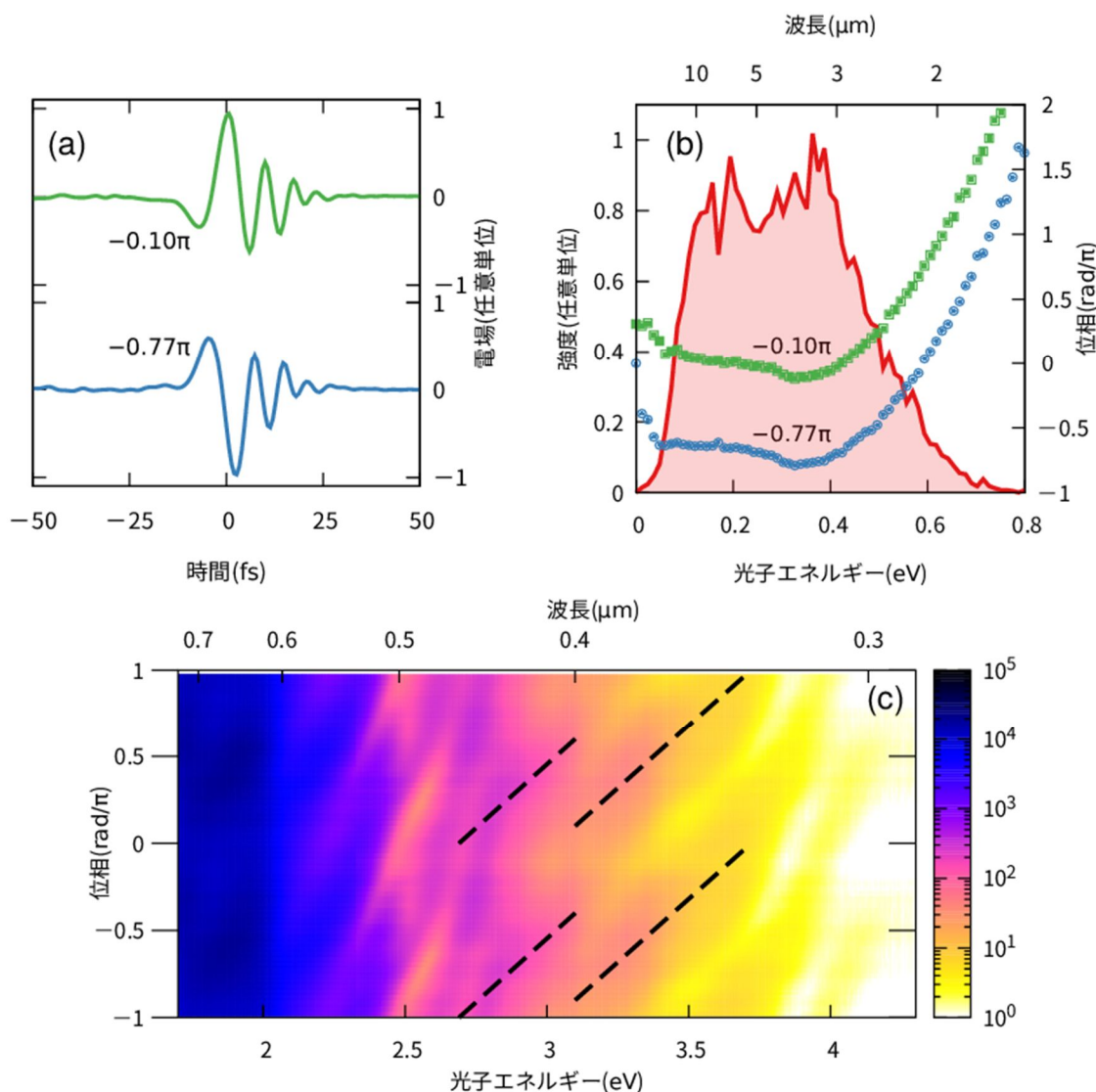


図 2: (a)高調波発生に使用したサブサイクル中赤外光パルスの光電場波形(CEP が -0.10 と -0.77 の場合)。(b)パルスのパワースペクトルと位相スペクトル(CEP が -0.10 と -0.77 の場合)。(c)発生した高次高調波の CEP 依存性。

試料からの高調波としては、妥当なものである。

また、位相が増加することで、スペクトルが短波長にシフトする様子が観測された。これは、サブサイクルパルスがもっているチャープが原因であることを、数値シミュレーションによって結論づけた。

さらに、このシミュレーション結果から、今よりも 16 倍ほど高い強度のパルスを使えば、プラトーやカットオフなど、非摂動領域で現れる高調波スペクトルを観測できる見込みがあることがわかった。この研究成果は、1 つの原著論文[Opt. Lett. **43** 2094 (2018)]と 1 つの解説論文[固体物理 **54** 693 (2019)]として発表された。

(3) 可視光パルスについての光電場波形計測の研究

中空ファイバにチタンサファイア増幅器出力を集光し、パルス圧縮によって、5 フェムト秒のパルスを発生させることに成功した。発生するパルスの位相はショットごとに異なるため、単一ショットでの測定が必要である。単一ショットで波形測定が可能な図 3 のような光学系を構築し、実際に測定した結果を図 4 に示す。

その位相測定において、二つに分けたビームの一方から発生する第二高調波を取り除く必要があることがわかった。単純なフィルタでは、測定される光の位相が変わってしまうため、工夫が必要である。そのための光学素子として、25mm 角の石英ガラス基板の光学研磨面下半分を 20nm 程度の厚みでアルミを蒸着させたものを製作した。それをプリユスター角に置くことによって、上半分のコートしていない部分は、一つのビームから発生した第二高調波をほぼ 100% 透過することを確認した。反射する基本波とのコントラストは 10^6 程度と見込まれた。一方、下面のアルミ面は 60% 程度第二高調波を反射するので、のちに基本波との干渉信号は十分な強度が得られることが見込まれている。この光学素子を干渉法によって評価し、確かに反射によって、位相のずれは 0.1π 以下であることを確認した。この光学素子を使用した光学系によって、可視光領域の光電場波形計測が可能となる。

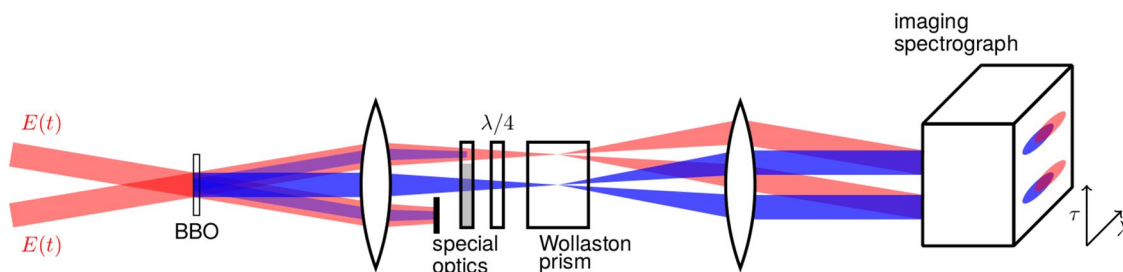


図 3: 単一ショット電場波形計測装置の概念図。測定対象のパルス $E(t)$ はまず二つに分かれ、自己相関信号発生のための BBO 結晶に入射する。結晶の表面が、イメージング分光器のスリット上で結像するようになっている。CCD カメラの縦方向と横方向がそれぞれ遅延時間と波長に対応している。 $\lambda/4$ 板とウォラストンプリズムによって、位相の反転した二つの第二高調波 FROG トレースが測定される。 $\lambda/4$ 板の前の特別な光学素子は、基本波と同軸にでている二倍波を取り除く。

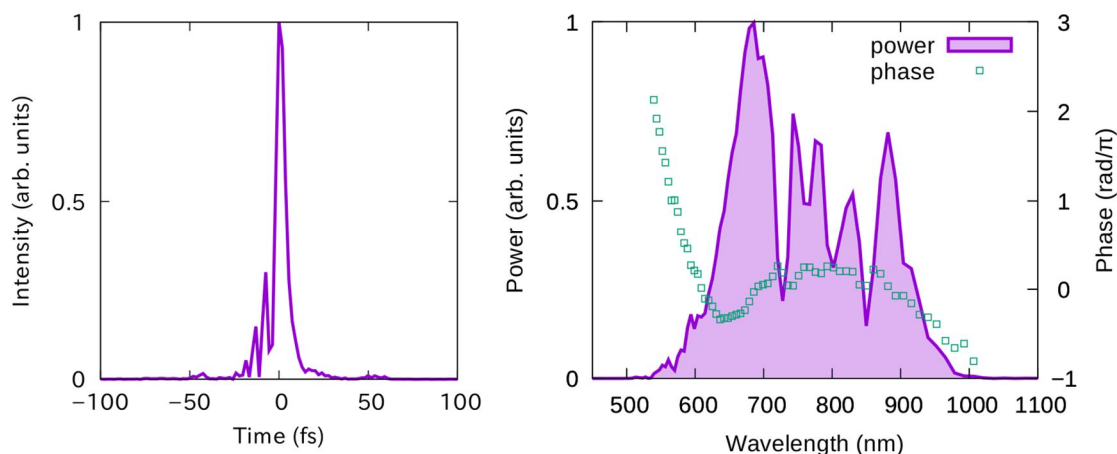


図 4: 上記の装置で測定したパルス。左は時間領域であり、右は周波数領域である。パルス幅の半値全幅は 6.0fs となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hideto Shirai, Fumitoshi Kumaki, Yutaka Nomura, and Takao Fuji	4. 巻 43
2. 論文標題 High-harmonic generation in solids driven by subcycle midinfrared pulses from two-color filamentation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Opt. Lett.	6. 最初と最後の頁 2094-2097
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.43.002094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hideto Shirai, Yutaka Nomura, and Takao Fuji	4. 巻 11
2. 論文標題 Self-Referenced Measurement of Light Waves	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Laser Photonics Review	6. 最初と最後の頁 1600244
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/lpor.201770043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hideto Shirai, Fumitoshi Kumaki, Yutaka Nomura, and Takao Fuji	4. 巻 43
2. 論文標題 High-harmonic generation in solids driven by subcycle midinfrared pulses from two-color filamentation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 2094-2097
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OL.43.002094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 4件／うち国際学会 7件）

1. 発表者名 Hideto Shirai, Fumitoshi Kumaki, Yutaka Nomura, and Takao Fuji
2. 発表標題 High-harmonic generation in solids driven by sub-cycle mid-infrared pulses from laser filamentation
3. 学会等名 XXI International Conference on Ultrafast Phenomena (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hideto Shirai, Fumitoshi Kumaki, Yutaka Nomura, and Takao Fuji
2. 発表標題 High-harmonic generation from crystalline silicon driven by sub-cycle mid-infrared pulses
3. 学会等名 CLEO:QELS Fundamental Science (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takao Fuji
2. 発表標題 Complete waveform characterization of mid-infrared ultrashort pulses
3. 学会等名 2nd URSI Atlantic Radio Science Meeting (AT-RASC) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takao Fuji
2. 発表標題 High harmonic generation in Si driven by sub-cycle mid-infrared source based on twocolor laser filamentation
3. 学会等名 COFIL2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takao Fuji, Hideto Shirai, and Yutaka Nomura
2. 発表標題 Self-Referenced Light Wave Measurement Of Few-Cycle Mid-Infrared Pulses
3. 学会等名 CLEO Pacific Rim Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Takao Fuji, Hideto Shirai, and Yutaka Nomura
2. 発表標題 Self-Referenced Waveform Measurement of Ultrashort Mid-Infrared Pulses
3. 学会等名 ALT'17 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Hideto Shirai, Fumitoshi Kumaki, Yutaka Nomura, and Takao Fuji
2. 発表標題 High-harmonic generation driven by single-cycle mid-infrared pulses in solids
3. 学会等名 Ultrafast Optics XI (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 熊木文俊、白井英登、野村雄高、藤貴夫
2. 発表標題 サブサイクル中赤外パルスによる固体からの高次高調波発生
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 熊木文俊、白井英登、野村雄高、藤貴夫
2. 発表標題 サブサイクル中赤外パルスを用いたSi薄膜からの高次高調波発生
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第38回年次大会
4. 発表年 2018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
--	---------------------------	-----------------------	----