# 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 2 0 日現在

機関番号: 12612

研究種目: 基盤研究(B)(一般)

研究期間: 2020~2022

課題番号: 20H01837

研究課題名(和文)位相の自在な操作を組込むことによる非線形光学過程の新しい可能性の開拓

研究課題名(英文)Development of novel nonlinear optical phenomena by implementing arbitrary optical phase manipulation

#### 研究代表者

大饗 千彰 (Ohae, Chiaki)

電気通信大学・量子科学研究センター・助教

研究者番号:80787664

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文):非線形光学過程はそこに関与する光の相対位相に敏感であることが知られている。この位相関係を媒質中で積極的に制御することで、非線形光学過程自体の進行する方向とその速度を操作することができる。本研究は、このような操作によって可能となる非線形光学過程の新たな可能性を探ることを目的としている。本研究ではこの手法を、パラ水素を用いた高次のラマン共鳴4波混合過程に適用し、この非線形光学過程を多様な形態に操作することを試みた。その結果、発生した多数の周波数の光のうちの、特定の周波数を選択して発生、すべての周波数で均等に発生、といった非常に特徴的な非線形光学過程の操作が可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究で得られた成果を基にして、これを真空紫外域にスケーリングすることで、未踏のレーザー技術である" 真空紫外100-200 nm全域で波長可変な単一周波数レーザー"を実現できると期待される。真空紫外域において、 このようなレーザー技術が確立されれば、これまでレーザー光源による制約から困難であった様々な応用研究が 可能になると予想される。

研究成果の概要(英文): Nonlinear optical processes are known to be sensitive to the relative phase of the light involved in these processes. By artificially controlling this phase relationship in the medium, it is possible to manipulate the direction and speed of the progress of the nonlinear optical process itself. This study aims to explore new possibilities of nonlinear optical processes by implementing such manipulations to these processes. In this study, we applied this technique to a higher-order Raman resonance four-wave mixing process with para-hydrogen, and attempted to manipulate this nonlinear optical process into various forms. As a result, we have shown that it is possible to manipulate the nonlinear optical process in characteristic forms, such as on-demand generation of radiation with a specific frequency, or generating a flat optical spectrum.

研究分野:原子・分子・光科学

キーワード: 非線形光学過程 真空紫外レーザー

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1.研究開始当初の背景

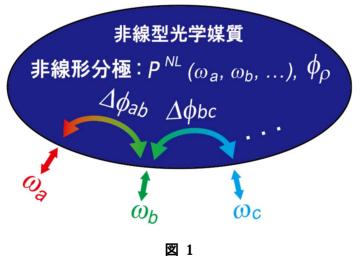
非線形光学過程は、一般に、関連する光の位相関係に敏感であることが知られている。この光位相は進行過程において媒質物性などで自ずと決定されるものと考えられているが、実は原理的に操作可能な物理量で、光位相を操作することによってどのような可能性が生まれるか議論されてこなかった。近年、申請者は媒質中で光位相を人工的に制御することにより、非線形光学過程を自在に操作できることを示した。

この手法は普遍的なもので、どのような非線形光学過程にも適用できる。気体水素分子を媒質とした高次のラマン共鳴 4 波混合過程によって発生する多波長の光の位相を人工的に操作した場合には、中赤外から真空紫外の広帯域にわたる任意の波長で選択的に単一周波数レーザーが発生できると考えられる。特に、真空紫外域 100-200 nm 全域で単一周波数・波長可変レーザーは未踏のレーザー技術として残されており、この技術が確立されれば、真空紫外域における新たな原子・分子・光科学が創出されると期待できる。

## 2. 研究の目的

図 1 は非線形光学過程を模式的に表したものである。( 非線形光学 ) 媒質と、複数の ( 一般には異なる周波数の ) 光波が相互作用している。この光と物質の相互作用を通して媒質中に非線形光学分極 $P_{NL}$ が形成され、さらに、この非線形分極 $P_{NL}$ を介して、この光学過程に関与する複数の光波の間にエネルギーのやり取りが生まれる。このとき、このエネルギーの流れの向きや速さは、関与する光波の間の相対的な " 位相関係 " に強く支配される ( 正確には、非線形分極 $P_{NL}$  の位相も含まれる )。このこと自体は、ある意味、非線形光学が始まった当初より分かっていたことであるが、通常、この位相関係は、非線形光学過程の進行とともに自ずと決定されるものと捉えられ、それを積極的に操作する可能性については、これまでほとんど議論されてこなかった ( 注:ここでいう位相関係は、いわゆる位相整合条件とは全く異なる )。

本研究は、非線形光学現象が進行する過程で、この位相関係を人為的に操作する自由度を組みこんだ時に、非線形光学過程にどのような新しい可能性が生まれるかについて探求することにある。



### 3.研究の方法

上記の手法は普遍的なもので、どのような非線形光学過程にも適用できる。ここでは、パラ水素を媒質として用いた高次のラマン共鳴 4 波混合過程に適用し、そこで発生する多数の周波数の光の間の位相関係を操作することでこの非線形光学過程を自在に操作することを試みる。

図2は実験系の概要図である。低温のガスセル(77 K)内に封入したパラ水素分子の基底状態-振動励起状態間のラマン遷移にほぼ共鳴した2本のドライビングレーザー(波長がそれぞれ801.0817 nm および1201.6370 nm)を照射し、これらの準位間のコヒーレンスを生成する。ここにさらに、プローブレーザー(波長400.5409 nm)を同時・同軸に入射することで、生成されたコヒーレンスを介して高次のストークス光と反ストークス光が発生する。これらの光の位相関係をガスセル内6か所に挿入した合成石英プレートの角度を変えることで制御する。

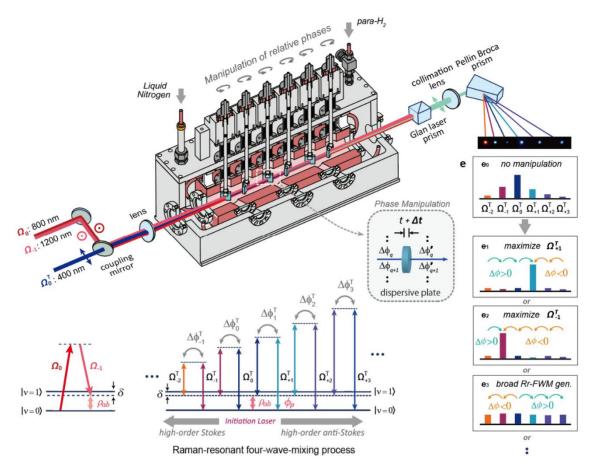


図 2

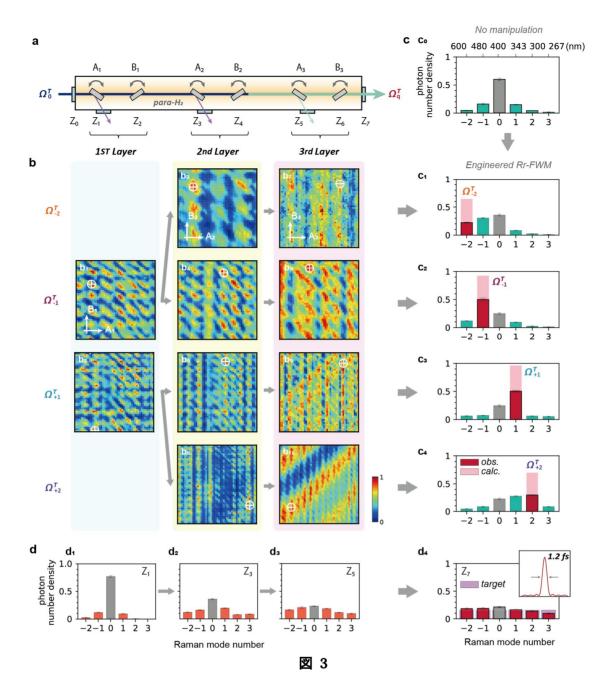
#### 4. 研究成果

本研究では、特定の周波数の光にエネルギーを集中、すべての周波数に均等に分散、という2種類の対極的な非線形光学過程の操作を試みた。図3にその結果を示す。図3aに示したように、媒質内の6か所の位相操作は2か所ずつに分けて最適化を行った。最適化の結果を図3bに示す。それぞれのカラーマップの横軸・縦軸は2か所の位相操作量を示しており、カラーマップの色で光強度を示している。 $\Omega_1^T$ と書かれた行は i 次の光にエネルギーを集中させるように操作した結果を示しており、それぞれの列は対応する位相操作プレートのペアによる位相最適化の結果である。

図中の白い十字で示した位相操作量において目的とする周波数の光の発生効率が最大になることが分かった。図 3c は c0:位相操作しなかった場合、c1-c4:6 か所の位相操作を最適化した場合の出力光の光スペクトルを示したものである。位相操作しなかった場合には正負どちらの次数も対称に光が発生しているのに対して、位相操作することでオンデマンドに次数を選択して光を発生できた。この時、発生効率は位相操作をしない場合と比べて、それぞれ 3-25 倍に増幅された。

さらに、上記の特定次数の選択発生と対極的な操作であるすべての周波数に均等に分散して発生させる操作を試みた結果を図 3d に示す。光スペクトルが最も平たんになるように、6 か所で位相操作した結果、図3のd4に示したようにほぼ平坦な光スペクトルを得ることができた。

以上のように、パラ水素を用いた高次のラマン共鳴4波混合過程において、特定の周波数の光にエネルギーを集中、すべての周波数に均等に分散して発生、という多様な非線形光学過程の操作を実現した。ここで得られた成果を基に、これを真空紫外域にスケーリングすることで、未踏のレーザー技術である"真空紫外域100-200 nm 全域で単一周波数・波長可変レーザー"技術を確立できると考えられる。



#### 5 . 主な発表論文等

【雑誌論文】 計2件(うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)

「維誌論又」 iT21十(つら宜読刊論又 21十/つら国際共者 U1十/つらオーノノアグセス U1十)	
1.著者名	4 . 巻
Tetsushi Takano, Hisashi Ogawa, Chiaki Ohae, and Masayuki Katsuragawa	29
0 +0-1-1-0-1	- 7%/-/-
2. 論文標題	5.発行年
10 W injection-locked single-frequency continuous-wave titanium:sapphire laser	2021年
3 . 雑誌名	6.最初と最後の頁
optics express	6927
担我会会のPOL(ごごクリナイン)。 カー 神叫フト	本芸の左伽
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1364/0E.415583	有
オープンアクセス	国際共著
│ オープンアクセス │	国際共著
	国際共著
	国際共著 - 4.巻
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	-
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 1 . 著者名 Tetsushi Takano, Hisashi Ogawa, Chiaki Ohae, and Masayuki Katsuragawa	- 4.巻 29
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  1 . 著者名 Tetsushi Takano, Hisashi Ogawa, Chiaki Ohae, and Masayuki Katsuragawa  2 . 論文標題	- 4 . 巻 29 5 . 発行年
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 1 . 著者名 Tetsushi Takano, Hisashi Ogawa, Chiaki Ohae, and Masayuki Katsuragawa	- 4.巻 29
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  1 . 著者名 Tetsushi Takano, Hisashi Ogawa, Chiaki Ohae, and Masayuki Katsuragawa  2 . 論文標題	- 4.巻 29 5.発行年
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  1 . 著者名 Tetsushi Takano, Hisashi Ogawa, Chiaki Ohae, and Masayuki Katsuragawa  2 . 論文標題 10 W injection-locked single-frequency continuous-wave titanium:sapphire laser	- 4 . 巻 29 5 . 発行年 2021年

査読の有無

国際共著

有

## 〔学会発表〕 計16件(うち招待講演 3件/うち国際学会 2件)

掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)

1.発表者名

オープンアクセス

10.1364/0E.415583

大久保直幸, 豊永大貴, 永野正統, 長谷川健司, 大饗千彰, 桂川眞幸

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

2 . 発表標題

ナノ秒パルスレーザー光の高効率・高品質な波長変換

3.学会等名

日本光学会年次学術講演会OPJ2021

4 . 発表年

2021年

1.発表者名

戸村 暁廣, 大饗千彰, 美濃島薫, 桂川眞幸

2 . 発表標題

CWレーザーの位相同期をベースとしたサブフェムト秒光シンセサイザー

3 . 学会等名

日本光学会年次学術講演会0PJ2021

4.発表年

2021年

1 . 発表者名 戸村 暁廣、大饗 千彰、美濃島 薫、桂川 眞幸	
2 . 発表標題 任意な位相・振幅操作による光波形生成とその再現性	
3.学会等名 応用物理学会	
4 . 発表年 2021年	
1 . 発表者名 音瀬 めぐみ、渡邊 哲人、大久保 直幸、佐藤 昂大、豊永 大貴、大饗 千彰、桂川 眞幸、江尻 省、中村 卓司	
2 . 発表標題 高層大気中の中性原子およびイオンの同時計測を可能にする二波長発振注入同期チタンサファイアレーザーの開発	
3 . 学会等名 レーザー学会	
4.発表年 2021年	
1 . 発表者名 永野 正統、大饗 千彰、大久保 直幸、豊永 大貴、桂川 眞幸	
2 . 発表標題 高効率・高品質な波長変換による深紫外光の生成	
3 . 学会等名 レーザー学会	
4 . 発表年 2021年	
1 . 発表者名 C. Ohae, W. Liu, J. Zheng and M. Katsuragawa	
2. 発表標題 Tailoring nonlinear optical phenomena by artificially manipulating the relevant optical phases – Toward high-resolution laser spectroscopy in the vacuum ultraviolet region –	
3.学会等名 29th International Laser Physics Workshop (LPHYS'22)(招待講演)(国際学会)	
4 . 発表年 2021年	

1 . 発表者名 音瀬 めぐみ , 佐藤 昂大 , 橋本彩香 , 大饗 千彰 , 桂川 眞幸
2 . 発表標題 共鳴散乱ライダーによる中間圏・熱圏下部金属層観測のためのレーザーシステムの開発
3.学会等名 応用物理学会
4 . 発表年 2021年
1 . 発表者名 Weiyong Liu, Chiaki Ohae, Jian Zheng, Soma Tahara, Masaru Suzuki, Kaoru Minoshima, Masayuki Katsuragawa
2.発表標題 Engineered generation of a specfic Stokes order in stimulated Raman scattering process
3 . 学会等名 The 2020 CLEO, CLEO Technical Digest(国際学会)
4 . 発表年 2020年
1.発表者名 大饗 千彰、桂川 眞幸
2 . 発表標題 光位相の自在な操作が拓く線形・非線形光学過程の新たな道
3 . 学会等名 超高速光エレクトロニクス研究会(招待講演)
4.発表年 2020年
1 . 発表者名 大饗 千彰、鄭 健、劉 衛永、田原 壮馬、鈴木 勝、美濃島 薫、桂川 眞幸
2 . 発表標題 能動的に様々な形態に操作される非線形光学過程
3 . 学会等名 レーザー学会(招待講演)
4 . 発表年 2020年

1.発表者名 戸村 暁廣、大饗 千彰、美濃島 薫、桂川 眞幸
2 . 発表標題 任意な位相・振幅操作による光波形生成とその再現性
3.学会等名 応用物理学会
4 . 発表年 2021年
1 . 発表者名 音瀬 めぐみ、渡邊 哲人、大久保 直幸、佐藤 昂大、豊永 大貴、大饗 千彰、桂川 眞幸、江尻 省、中村 卓司
2 . 発表標題 高層大気中の中性原子およびイオンの同時計測を可能にする二波長発振注入同期チタンサファイアレーザーの開発
3 . 学会等名 レーザー学会
4.発表年 2021年
1 . 発表者名 永野 正統、大饗 千彰、大久保 直幸、豊永 大貴、桂川 眞幸
2 . 発表標題 高効率・高品質な波長変換による深紫外光の生成
3 . 学会等名 レーザー学会
4 . 発表年 2021年
1 . 発表者名 音瀬 めぐみ、渡邊 哲人、林 湧斗、大饗 千彰、桂川 眞幸、江尻 省、中村 卓司
2.発表標題 Ca^+とCaのLiDAR計測が可能な二波長注入同期ナノ秒パルスレーザーの開発
3 . 学会等名 応用物理学会
4 . 発表年 2020年

1.発表者名 永野 正統、長谷川 健司、田原 壮馬	、大饗 千彰、桂川 眞幸		
2 . 発表標題 ナノ秒パルスレーザー光の高効率か <sup>、</sup>	O高ビーム品質な波長変換		
3 . 学会等名 レーザー学会			
4 . 発表年 2020年			
1.発表者名 音瀬 めぐみ、大饗 千彰、桂川 眞幸	·		
2 . 発表標題 注入同期ナノ秒パルスチタンサファ	イアレーザーの出力スケーリング		
3 . 学会等名 レーザー学会			
4 . 発表年 2020年			
〔図書〕 計0件			
〔産業財産権〕			
〔その他〕			
- C			
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	
7 . 科研費を使用して開催した国際研究集会			
〔国際研究集会〕 計0件			

相手方研究機関

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国